

INAUGURAL-DISSERTATION

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlich-Mathematischen
Gesamtfakultät

der

Ruprecht-Karls-Universität

Heidelberg

vorgelegt von

Dipl.-Phys. Gudrun Fickenscher

aus Koblenz

Tag der mündlichen Prüfung: 23.01.2013

**Phasenkohärenz und Energierelaxation
von Tunnelsystemen in Gläsern**
Messung und Analyse von Polarisationsechos an BK7

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

Phasenkohärenz und Energielaxation von Tunnelsystemen in Gläsern

Die Tieftemperatureigenschaften von Gläsern werden durch atomare Tunnelsysteme (TS) bestimmt. Deren Einfluss auf viele physikalische Größen kann durch das Standardtunnelmodell gut beschrieben werden. Betrachtet man jedoch dynamische Eigenschaften der Gläser, werden Wechselwirkungen zwischen TS und Phononen (Relaxation) und zwischen TS und benachbarten TS (spektrale Diffusion) relevant. Die Untersuchung des Zerfalls der Amplitude von Polarisationsechos mit steigender Verzögerungszeit gibt Aufschluss über Relaxations- und Dekohärenzprozessen in Gläsern. In dieser Arbeit wurden erstmals Zwei-, Dreipuls- und Rotationsechos im Borsilikatglas BK7 bis zu sehr langen Pulsabständen > 10 ms gemessen. Die Daten werden mit numerischen Berechnungen verglichen, in die die spektrale Diffusion und die Relaxation eingehen. Dabei zeigt sich, dass eine Untergruppe der angeregten TS wegen einer schwachen Kopplung an Phononen kaum an Wechselwirkungsprozessen teilnimmt, so dass die Echoamplitude langsamer zerfällt als erwartet. Alle Datensätze können konsistent beschrieben werden, wenn eine Verteilung des Deformationspotentials γ angenommen wird, die auch sehr kleine Werte $\gamma \approx 0$ erlaubt.

Phase coherence and energy relaxation of tunnelling systems in glasses

The low-temperature properties of glassy materials are governed by atomic tunnelling systems (TS). Many physical quantities can be described well by applying the standard tunnelling model. However, when dynamic properties are investigated the interaction between TS and phonons (relaxation) and TS and neighbouring TS (spectral diffusion) have to be taken into account. The study of the decay of dielectric polarization echoes with increasing delay times sheds light on relaxation and decoherence processes of TS in glasses. In this thesis 2- and 3-pulse as well as rotary echo measurements in the borosilicate glass BK7 have been performed for the first time up to very long pulse separation times > 10 ms and compared to numerical calculations which include the theories of spectral diffusion and relaxation. We conclude that there exists a subset of TS that only very weakly take part in relaxation and decoherence due to a small value of the deformation potential. This leads to a much slower decay of the echo amplitude than expected. Assuming a distribution of deformation potentials including very small values, all data sets could be fitted consistently with one set of parameters.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Gläser bei tiefen Temperaturen	4
2.1.1	Das Standardtunnelmodell	5
2.1.2	Erfolg und Grenzen des Standardtunnelmodells	9
2.2	Wechselwirkung der Tunnelsysteme mit elektromagnetischen Wechsel- feldern	12
2.3	Dielektrische Polarisationsechos	17
2.3.1	Zweipuls-Echos	18
2.3.2	Dreipuls-Echos	22
2.3.3	Rotationsechos	27
2.4	Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen	32
2.4.1	Spektrale Diffusion	33
2.4.2	Kollektive Anregungen	38
2.5	Kerneffekte	42
3	Experimentelle Methoden	45
3.1	Erzeugung und Messung tiefer Temperaturen	45
3.1.1	Verdünnungskryostat	45
3.1.2	Thermometrie	47

3.2	Erzeugung von Polarisationsechos	49
3.2.1	Elektronischer Aufbau	49
3.2.2	Probenhalter: Mikrowellenresonator	51
3.3	Probe: BK7	54
4	Daten und Diskussion	57
4.1	Datenauswertung	57
4.1.1	Auswertung der Echoamplitude	57
4.1.2	Rauschen und Störeinflüsse	60
4.1.3	Reproduzierbarkeit der Messung	67
4.2	Zweipuls-Echomessungen	69
4.3	Dreipuls-Echomessungen	70
4.4	Pausenrotationsecho-Messungen	77
4.5	Diskussion	83
4.5.1	Verteilung der Tunnelsysteme bei gepulsten Echos	84
4.5.2	Vergleich der Zerfallskurven mit theoretischen Berechnungen	86
4.5.3	Schwach wechselwirkende Tunnelsysteme	99
5	Zusammenfassung	111
	Literaturverzeichnis	115
	Danksagung	119

1. Einleitung

Bereits Goethes Faust verzweifelte an der Tatsache, dass jedes Detail an neuem Wissen eine noch größere Menge Unwissen hervorruft. In seinem berühmten Ausruf - „Hier steh ich nun, ich armer Tor, und bin so klug als wie zuvor!“ - ist zusammengefasst, was Wissenschaftler aller Zeiten und Orte an- und umtreibt: Es ist nicht möglich, ein nicht idealisiertes System bis ins letzte Detail zu begreifen. Daher hört die Suche nach den Geheimnissen der Natur auch nie auf.

Der Prototyp eines idealisierten Systems ist in der Festkörperphysik der ideale Kristall. Er ist durch Konzepte wie Gitterschwingungen und das reziproke Gitter theoretisch beinahe lückenlos beschreibbar. Je weiter man sich von dieser Idealvorstellung entfernt, desto schwieriger wird auch die theoretische Behandlung der physikalischen Eigenschaften des Festkörpers. Für amorphe Festkörper, die sogenannten Gläser, sind lediglich phänomenologische Theorien vorhanden. Experimente zeigen, dass sich die thermischen, akustischen und dielektrischen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen fundamental von denen der Kristalle unterscheiden [Hun00]. Bereits 1971 zeigten Zeller und Pohl dies am Beispiel der spezifischen Wärme und Wärmeleitfähigkeit [Zel71]. Zudem sind die thermischen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen universell, unterscheiden sich also ungeachtet der chemischen Zusammensetzung der Glasprobe qualitativ und quantitativ kaum. Die Ursache sind Zweiniveausysteme mit einer breiten Verteilung von Anregungsenergien, die ihren Ursprung eben nicht in der chemischen Zusammensetzung des Glases, sondern in dessen ungeordneter Struktur haben. In dem 1972 von Phillips [Phi72] und Anderson, Halperin und Varma [And72] veröffentlichten phänomenologischen Standardtunnelmodell werden sogenannte Tunnelsysteme vorgeschlagen, die entstehen, wenn ein „Tunnelteilchen“ zwei energetisch nahezu äquivalente Gleichgewichtspositionen zur Verfügung hat. Zwischen diesen kann es, sobald bei tiefen Temperaturen die thermische Aktivierung nicht mehr ausreicht, hin- und hertunneln. Die daraus resultierenden Zweiniveausysteme haben eine breite Verteilung von Energieaufspaltungen. Das Standardtunnelmodell beschreibt viele, aber nicht alle experimentellen Daten von Gläsern gut. Sein größtes Manko ist, wie Phillips selbst schreibt [Phi81], dass es kein eindeutiges mikroskopisches Bild der Tunnelsysteme liefert. Obwohl in vielen Fällen berechnet werden kann, welche Effekte die Gesamtheit der Tunnelsysteme hervorruft, ist es uns nicht möglich, die Bewegung oder Art eines Tunnelteilchens festzustellen. Auch die mikroskopischen Vorgänge, die die Dynamik des Ensembles von Tunnelsystemen verursachen, sind bis heute ungeklärt. Die Existenz von Wechselwirkungen zwischen bis dahin als unabhängig angenommenen Tunnel-

systemen wurde bereits 1975 von Hunklinger und Arnold in Sättigungsmessungen erkannt [Arn75]. Eine weithin anerkannte Theorie, die die über Phononen vermittelte Wechselwirkung zwischen resonanten und thermisch angeregten Tunnelsystemen behandelt, ist die spektrale Diffusion [KA62], [BH77], [Hu74]. Sie konnte zuletzt von Faßl [Fas10] erfolgreich auf den Zerfall der Zweipuls-Polarisationsechoamplitude angewandt werden. In jüngerer Zeit wurde jedoch auch die Möglichkeit von kollektiven Anregungen durch die direkte Wechselwirkung zwischen resonanten Tunnelsystemen diskutiert [Bur98], [Bur98a]. Einen experimentellen Hinweis auf einen möglichen Phasenübergang von unabhängigen bzw. mit thermischen Nachbarn wechselwirkenden Tunnelsystemen hin zu einem kollektiven, mit einer makroskopischen Wechselwirkung beschreibbaren Zustand wurde 1998 von Strehlow [Str98] gefunden. Er konnte bis heute noch nicht bestätigt werden.

Ziel dieser Arbeit war es, die Relaxations- und Dekohärenzmechanismen in Gläsern besser zu verstehen. Eine etablierte Technik zur Untersuchung der Wechselwirkung von Tunnelsystemen untereinander und mit Phononen sind Polarisationsechoexperimente. Durch die Auswahl bestimmter Anregungssequenzen kann das Augenmerk stärker auf Dekohärenz- oder Relaxationseffekte gelegt werden. Es wurden verschiedene Typen von dielektrischen Polarisationsechomessungen an dem Borsilikatglas BK7 durchgeführt. Dieses Glas wurde gewählt, weil es ein besonders großes elektrisches Dipolmoment trägt. Deshalb und wegen eines verbesserten Aufbaus konnten kohärente Effekte über sehr lange Zeiten bis zu etwa 15 ms bei 7,5 mK beobachtet werden. Die gemessenen Zerfälle wurden mit den bisher bekannten Theorien zur Wechselwirkung von Tunnelsystemen verglichen. Dabei konnte gezeigt werden, dass eine kleine Untergruppe von Tunnelsystemen existiert, die zwar stark an elektrische Felder, aber schwach an Phononen koppeln und daher länger kohärent zum Echo beitragen als mit den bisherigen Theorien anzunehmen war.

In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen gelegt, die zum Verständnis der Messdaten nötig sind. Dazu gehört neben dem Standardtunnelmodell und der theoretischen Behandlung der Polarisationsechos vor allem die Diskussion der spektralen Diffusion und der kollektiven Anregungen. Kapitel 3 enthält die Beschreibung der experimentellen Methoden zur Erzeugung von Polarisationsechos und stellt die verwendete Probe vor. In Kapitel 4 werden zunächst die gemessenen Echodaten gezeigt und erläutert. Anschließend werden sie mit theoretischen Berechnungen verglichen und Schlüsse über die Wechselwirkungen und die Verteilung der Tunnelsysteme gezogen. Im letzten Kapitel werden die Ergebnisse noch einmal zusammengefasst und bewertet.

2. Theoretische Grundlagen

Die Eigenschaften eines Festkörpers werden nicht nur durch seine Bestandteile, sondern zu einem großen Teil auch durch deren strukturelle Anordnung bestimmt. Ein sehr bekanntes Beispiel ist Kohlenstoff, der bei gleicher Zusammensetzung sowohl als Graphit als auch als Diamant auftreten kann. Generell kann man Festkörper in zwei Gruppen einteilen, in kristalline und amorphe Festkörper. Erstere zeichnen sich durch eine regelmäßige Anordnung der Atome bzw. Moleküle aus, die sich über die gesamte Ausdehnung des Kristalls periodisch wiederholt. Man spricht davon, dass sowohl Nah- als auch Fernordnung im Kristallgitter vorhanden sind. Amorphe Festkörper hingegen sind definitionsgemäß ungeordnet. In dieser Arbeit werden die Eigenschaften von Gläsern, typischen Vertretern der amorphen Festkörper, behandelt. Ein Glas entsteht aus der Schmelze, wenn die Kühlrate sehr hoch ist. Die Relaxationszeiten für atomare Umordnungen steigen unterhalb einer gewissen Temperatur, die als Glasübergangstemperatur des Materials bezeichnet wird, so schnell an, dass sich kein Kristallgitter ausbilden kann. Es handelt sich bei einem Glas also um eine eingefrorene Flüssigkeit, die keinen Phasenübergang durchlaufen hat, aber im Rahmen experimentell zugänglicher Zeitskalen erstarrt ist. Als Glasübergang wird willkürlich der Punkt festgelegt, bei dem die Viskosität der Schmelze den Wert 10^{13} Poise überschreitet. Die dazugehörige Glasübergangstemperatur T_g liegt typischerweise bei etwa Zwei Drittel der Schmelztemperatur des entsprechenden kristallinen Materials.

Die Struktur eines Glases lässt sich so beschreiben, dass zwar eine gewisse Nahordnung, d.h. verhältnismäßig wohldefinierte Bindungslängen und -winkel, vorhanden ist, die Fernordnung aber völlig fehlt. Daraus ergeben sich in allen Temperaturbereichen typische physikalische Eigenschaften, die zum Teil drastisch von denen des entsprechenden Kristalls abweichen. In dieser Arbeit interessieren wir uns Eigenschaften bei Temperaturen unter 1 K, wo die sogenannten Tunnelsysteme, auf die im folgenden Abschnitt eingegangen wird, das Verhalten der Gläser bestimmen. Der Fokus der Arbeit liegt insbesondere auf der Relaxation und der Wechselwirkung zwischen den Tunnelsystemen. Sie werden über die Messung ihres Verhaltens in hochfrequenten elektrischen Feldern untersucht.

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen für die im Rahmen dieser Arbeit erfolgten Messungen und die Auswertung der Daten gelegt. Nach einer kurzen allgemeinen Vorstellung der Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen und des Standardtunnelmodells werden die dielektrischen Polarisationsechos theoretisch behandelt. Im Anschluss wird die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen diskutiert und der Einfluss von Kernmomenten auf die Echoamplitude erläutert.

2.1 Gläser bei tiefen Temperaturen

Die thermischen, elastischen und dielektrischen Eigenschaften von Gläsern unterscheiden sich bei tiefen Temperaturen deutlich von denen ihrer kristallinen Gegenstücke. In Abbildung 2.1 ist beispielhaft die spezifische Wärme von Quarzglas in Abhängigkeit von der Temperatur im Vergleich mit dem erwarteten Verlauf für kristallinen Quarz dargestellt. Anstatt der vom Debye-Modell vorhergesagten T^3 -Abhängigkeit verläuft die spezifische Wärme des Glases unterhalb von etwa 500 mK nahezu linear mit der Temperatur. Außerdem liegt ihr Absolutwert einige Größenordnungen über der spezifischen Wärme des Quarzkristalls.

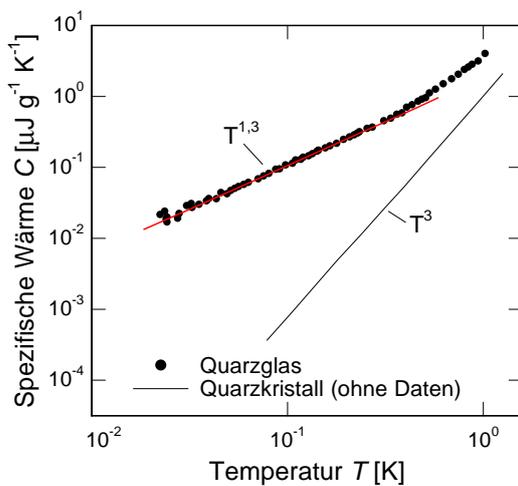


Abb. 2.1: Vergleich der spezifischen Wärme von Quarzglas und Quarzkristall [Hun77].

Die Wärmeleitfähigkeit von Gläsern hingegen ist deutlich kleiner als die von Kristallen und verläuft proportional zu T^2 [Zel71],[Poh02]. Das thermische Verhalten von Gläsern lässt sich durch die Anwesenheit von niederenergetischen Anregungen mit einer breiten Verteilung von Anregungsenergien erklären, die einerseits Energie speichern können und so zur spezifischen Wärme beitragen und andererseits als Streuzentren für Phononen wirken können und so die Wärmeleitfähigkeit vermindern.

Eine weitere Besonderheit der Gläser bei tiefen Temperaturen ist in Abbildung 2.2 dargestellt. Aufgetragen ist die Wärmeleitfähigkeit einiger sehr verschiedener Gläser und glasartiger Substanzen in Abhängigkeit von der Temperatur. Darunter sind das supraleitende metallische Glas ZrPd, der Kunststoff PMMA und das molekulare Glas CaKNO_3 . Auffällig ist insbesondere, dass unterhalb von 1 K nicht nur der qualitative Verlauf der Wärmeleitfähigkeit mit der Temperatur bei allen Stoffen übereinstimmt, sondern auch die Absolutwerte der Wärmeleitfähigkeit in einem sehr engen Bereich liegen, der durch die blauen Linien angedeutet wird.

Diese annähernde Unabhängigkeit der Messgröße von der chemischen Zusammen-

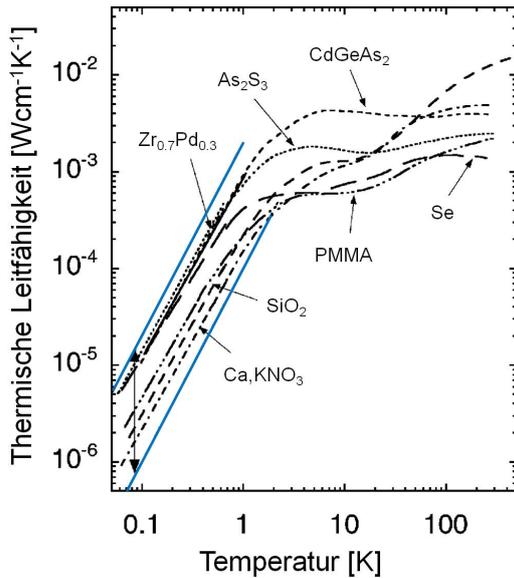


Abb. 2.2: Wärmeleitfähigkeit verschiedener glasartiger Substanzen bei tiefen Temperaturen [Poh02]. Die blauen Linien zeigen den Bereich an, in dem die Absolutwerte für alle Gläser liegen.

setzung des Glases wird als Universalität der Glaseigenschaften bezeichnet. Für die oben bereits erwähnten niederenergetischen Anregungen bedeutet dies, dass sie nur von der Struktur des Glases, also der Unordnung, und nicht von den Eigenschaften der Atome oder Moleküle verursacht werden können, aus denen es besteht. Das etablierte Standardtunnelmodell liefert eine phänomenologische Beschreibung für diese Anregungen.

2.1.1 Das Standardtunnelmodell

Das Standardtunnelmodell wurde 1972 von Anderson, Halperin und Varma [And72] und Phillips [Phi72] unabhängig voneinander entwickelt. Sie postulierten die Anwesenheit von Doppelmuldenpotentialen in der Energielandschaft des Glases, in denen sich jeweils ein effektives Teilchen befindet. Anschaulich kann man sich vorstellen, dass ein Atom oder eine Gruppe von Atomen aufgrund der Unordnung und der damit einhergehenden leicht verzerrten Bindungswinkel innerhalb der Struktur des Glases zwei energetisch nahezu äquivalente Positionen einnehmen kann. Die Energiebarriere zwischen diesen Positionen kann es bei hohen Temperaturen thermisch angeregt überwinden. Bei tieferen Temperaturen muss es durch die Barriere tunneln, man spricht dann von Tunnelsystemen. Dies ist lediglich eine Modellvorstellung. Über die mikroskopischen Eigenschaften der Tunnelsysteme macht das Standardtunnelmodell keine Aussage.

In Abbildung 2.3 ist ein solches Doppelmuldenpotential schematisch dargestellt. Es besteht aus zwei harmonischen Potentialen, die einen Abstand d im Konfigurationsraum haben. Die Mulden haben die Nullpunktenergien $\frac{1}{2}(\hbar\Omega \pm \Delta)$, wobei die Größe Δ als Asymmetrieenergie bezeichnet wird. Zwischen den beiden Einzelmulden

befindet sich eine Potentialbarriere der Höhe V . Das Tunnelteilchen mit der Masse m bewegt sich zwischen den beiden Mulden. Seine Wellenfunktion in der isolierten linken bzw. rechten Mulde wäre Ψ_a bzw. Ψ_b . Haben diese Wellenfunktionen einen endlichen Überlapp, kann die Gesamtwellenfunktion des Teilchens im Doppelmuldenpotential als Linearkombination

$$\Psi = a\Psi_a + b\Psi_b \quad (2.1)$$

der beiden Ein-Mulden-Wellenfunktionen beschrieben werden. Das resultierende Zwei-Niveau-System wird in der Basis (Ψ_a, Ψ_b) durch den Hamilton-Operator

$$\mathcal{H}_{\text{TS}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \quad (2.2)$$

beschrieben. Löst man die Schrödingergleichung $\mathcal{H}\Psi = E\Psi$ mit dem Variationsansatz, erhält man die Eigenwerte $\frac{1}{2}(\hbar\Omega \pm E)$ [Ens05], mit

$$E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2}. \quad (2.3)$$

Die Größe Δ_0 ergibt sich zu

$$\Delta_0 = \hbar\Omega e^{-\lambda} \quad (2.4)$$

und wird als Tunnelaufspaltung bezeichnet. Sie ist das Produkt aus der Nullpunktenergie und der Tunnelwahrscheinlichkeit $e^{-\lambda}$. Sie ist somit ein Maß für den Überlapp der Wellenfunktionen der einzelnen Mulden. Der sogenannte Tunnelparameter

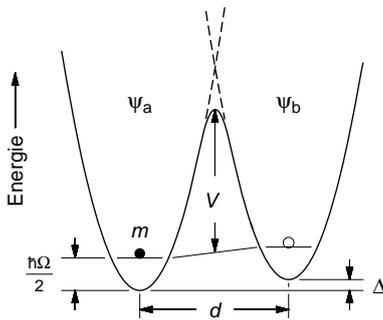


Abb. 2.3: Schematische Darstellung eines Doppelmuldenpotentials mit einem Tunnelteilchen der Masse m .

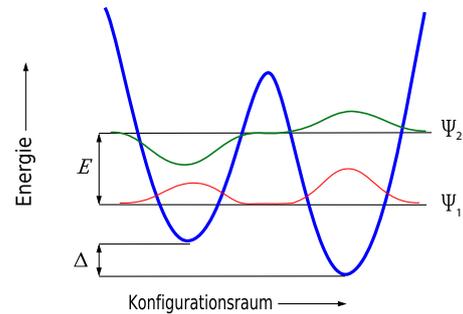


Abb. 2.4: Darstellung eines Doppelmuldenpotentials als Zweiniveausystem mit Wellenfunktionen.

λ wird von den geometrischen Eigenschaften des Tunnelsystems bestimmt und kann mit Hilfe der WKB-Methode als

$$\lambda \approx \frac{d}{2\hbar} \sqrt{2mV} \quad (2.5)$$

angenähert werden. Der Abstand der Tunnelmulden d , die Barrierenhöhe V und die Masse des Tunnelteilchens m sind in Abbildung 2.3 eingezeichnet.

Man erhält also ein Zweiniveausystem mit der Energieaufspaltung E . Seine Eigenfunktionen Ψ_1 und Ψ_2 ergeben sich für ein symmetrisches Tunnelsystem gerade aus der symmetrischen und antisymmetrischen Linearkombination von Ψ_a und Ψ_b . Für ein Tunnelsystem mit $\Delta \neq 0$ und $\Delta_0 \neq 0$ ist der Verlauf von Ψ_1 und Ψ_2 in Abbildung 2.4 skizziert. Üblicherweise definiert man den Nullpunkt des Potentials genau zwischen den beiden Energieniveaus. Die zu Ψ_1 und Ψ_2 gehörigen Eigenwerte betragen dann $-E/2$ bzw. $+E/2$. In der Basis (Ψ_1, Ψ_2) kann der Hamilton-Operator des Tunnelsystems

$$\mathcal{H}'_{\text{TS}} = \frac{E}{2} \sigma_z \quad (2.6)$$

mit der Pauli-Matrix $\sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$ ausgedrückt werden. Dieser Operator ist formal äquivalent zu dem eines magnetischen Dipols mit Spin 1/2 in einem statischen magnetischen Feld. Diese Analogie zwischen Tunnelsystemen und Spins werden wir in den folgenden Abschnitten für die Berechnung der Bewegungsgleichungen und das intuitive Verständnis der Tunnelsysteme ausnutzen. Im Folgenden werden alle Operatoren, die in der Basis (Ψ_1, Ψ_2) angegeben sind, durch einen Strich gekennzeichnet.

Bisher wurden lediglich die quantenmechanischen Eigenschaften eines einzelnen Doppelmuldenpotentials betrachtet. Die zentrale Annahme des Standardtunnelmodells für Gläser ist nun, dass die Asymmetrieenergie Δ und der Tunnelparameter λ unabhängig voneinander und jeweils gleich verteilt sind:

$$P(\Delta, \lambda) d\Delta d\lambda = \bar{P} d\Delta d\lambda . \quad (2.7)$$

Da in den hochfrequenten Messungen Tunnelsysteme mit einer wohldefinierten Energieaufspaltung E angeregt werden, eignen sich die Parameterpaare (Δ_0, E) und (Δ, E) besser für die Auswertung der Experimente. Mit einer Jakobi-Transformation erhält man aus (2.7)

$$P(\Delta_0, E) d\Delta_0 dE = \bar{P} \frac{E}{\Delta_0 \sqrt{E^2 - \Delta_0^2}} d\Delta_0 dE . \quad (2.8a)$$

$$P(\Delta, E) d\Delta dE = \bar{P} \frac{E^2}{E^2 - \Delta^2} d\Delta dE \quad (2.8b)$$

Die Verteilung der Tunnelaufspaltung und der Asymmetrieenergie bei einer festen Energieaufspaltung spielt eine wichtige Rolle für das Verständnis der Daten, die in dieser Arbeit gezeigt werden, und ihre theoretische Beschreibung. Sollen bei resonanter Anregung von Tunnelsystemen einer bestimmten Energieaufspaltung alle Tunnelsysteme miteinbezogen werden, muss über diese Verteilungen integriert werden. Als Integrationsparameter wurde dafür in dieser Arbeit Δ/E gewählt. Von Δ_0/E abhängige Größen können dann nach Gleichung (2.3) mit $\frac{\Delta_0}{E} = \sqrt{1 - (\frac{\Delta}{E})^2}$ dargestellt werden. Um eine bessere Vorstellung zu erhalten, wie sich Größen, die von Δ_0 oder Δ abhängen, verhalten, und welche Sorte Tunnelsysteme für sie eine besonders große Rolle spielen, sind in Abbildung 2.5 die Verteilungen $P(\frac{\Delta_0}{E}, E = \text{const.})$ (durchgezogene Linie) und $P(\Delta/E, E = \text{const.})$ (gestrichelte Linie) jeweils in Abhängigkeit von $\frac{\Delta}{E}$ für eine feste Energie E skizziert. Die völlig symmetrischen Tunnelsysteme befinden sich in der Abbildung links, die total asymmetrischen rechts. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung $P(\Delta_0/E, E = \text{const.})$ divergiert sowohl für symmetrische, $\Delta/E \rightarrow 0$, als auch für asymmetrische Tunnelsysteme, $\Delta/E \rightarrow 1$. Insbesondere ist zu beachten, dass die Divergenz von $P(\Delta_0/E, E = \text{const.})$ für kleine Δ_0 bzw. große Δ nicht integrierbar ist. Von Δ_0/E hängen unter anderem die resonante Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Phononen sowie die Rabi-Frequenz ab. Beide Größen werden daher hauptsächlich durch Tunnelsysteme in den Grenzwerten großer und kleiner Asymmetrien Δ bestimmt. Die Existenz der sehr asymmetrischen Tunnelsysteme führt unter anderem zu den in sogenannten Wärmeabgabe-Experimenten an Gläsern gefundenen extrem langsamen Beiträgen zur Relaxationszeit.

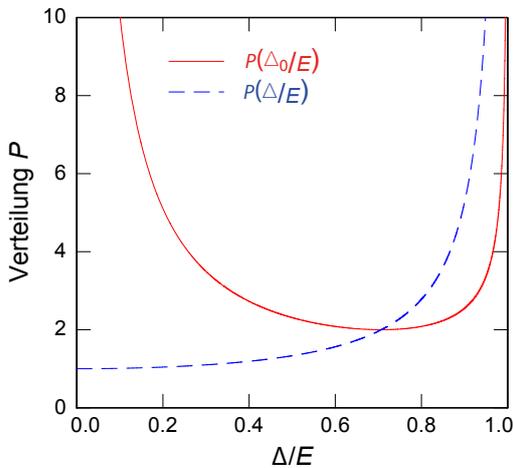


Abb. 2.5: Aus dem Standardtunnelmodell vorhergesagte Wahrscheinlichkeitsverteilung der Asymmetrie Δ (gestrichelte Linie) und der Tunnelaufspaltung Δ_0 (durchgezogene Linie) bei fester Energieaufspaltung E . Sehr symmetrische und sehr asymmetrische Tunnelsysteme sind besonders häufig.

Von Δ/E wird beispielsweise die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen bestimmt (s. Abschnitt 2.4.1). Die Verteilung $P(\Delta/E, E = \text{const.})$ divergiert nur für $\Delta/E \rightarrow 1$, also sehr asymmetrische Tunnelsysteme, und nimmt für kleine Δ den Wert 1 an. Demnach sind für die durch Δ/E bestimmten Größen in der Hauptsache asymmetrische Tunnelsysteme relevant.

Um zu überprüfen, ob das Standardtunnelmodell mit der angenommenen Verteilung (2.7) die breite Verteilung der niederenergetischen Anregungen in Gläsern beschreibt, ermittelt man die Zustandsdichte der Tunnelsysteme durch Integration von (2.8a) über Δ_0 . Da die Divergenz von (2.8a) für kleine Δ_0 nicht integrierbar ist, können wir formal ein minimales $\Delta_{0,\text{min}}$ einführen, das so interpretiert werden könnte, dass es einen Maximalwert für den Tunnelparameter, d.h. eine maximale Barrierenhöhe, gibt. Man erhält für die Zustandsdichte eine logarithmische, also nahezu konstante Abhängigkeit von E [Ens05], und somit $C \propto T$. Die im Experiment gefundene ungefähr lineare spezifische Wärme kann durch die Verteilung der Anregungsenergien im Standardtunnelmodell korrekt wiedergegeben werden.

2.1.2 Erfolg und Grenzen des Standardtunnelmodells

Das Standardtunnelmodell hat sich als Grundlage für die theoretische Beschreibung der Glaseigenschaften bei tiefen Temperaturen etabliert. Viele experimentelle Ergebnisse lassen sich korrekt vorhersagen. Für die spezifische Wärme erhält man, wie bereits erwähnt, einen linearen Term aus der vom Tunnelmodell vorhergesagten Zustandsdichte. Der etwas steilere gemessene Verlauf lässt sich mit der Verteilung der Relaxationszeiten und den endlichen Messzeiten erklären [Zim81].

In anderen Bereichen weist das Standardtunnelmodell jedoch deutliche Schwächen auf. In Abbildung 2.6 ist die relative Änderung des Realteils der dielektrischen Funktion $\delta\epsilon/\epsilon$ des Borosilikatglases BK7 in Abhängigkeit der Temperatur aufgetragen [Ens90],[Woh01]. Von tiefen Temperaturen kommend fällt er zunächst ab, durchläuft ein Minimum und steigt dann wieder an. In der logarithmischen Auftragung findet man für so gut wie alle Gläser ein Steigungsverhältnis von $-1 : 1$. Das Standardtunnelmodell sagt die Frequenzabhängigkeit der Lage des Minimums korrekt voraus (nicht gezeigt), findet aber ein Steigungsverhältnis von $-2 : 1$. Bei Messungen der relativen Änderung der Schallgeschwindigkeit, des akustischen Analogons zu $\delta\epsilon/\epsilon$, stößt man auf die gleiche Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment. Die Ursache für diese Abweichungen ist bislang unbekannt.

Das größte Problem bei der theoretischen Beschreibung von Gläsern ist, dass das Standardtunnelmodell kein mikroskopisches Modell der Tunnelsysteme liefert. Es ist völlig unklar, ob es sich bei den Tunnelteilchen einzelne Atome oder Moleküle oder ein ganzes Kollektiv von Atomen bzw. Molekülen handelt. Auch die Natur

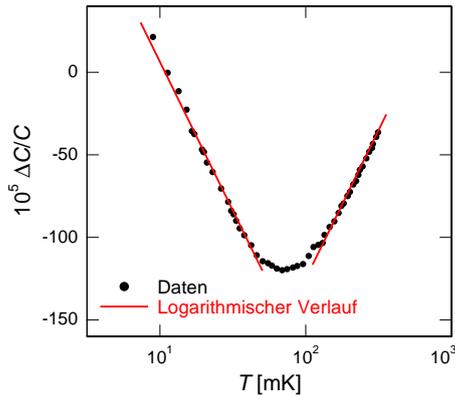


Abb. 2.6: Die relative Änderung der Kapazität eines mit BK7 gefüllten Kondensators bei einer Anregungsfrequenz von 1 kHz und einer Feldstärke von 75 V/m [Woh01]. Diese ist proportional zum Realteil der dielektrischen Funktion. Die Steigungen der logarithmischen Fits haben ein Steigungsverhältnis von exakt $-1 : 1$.

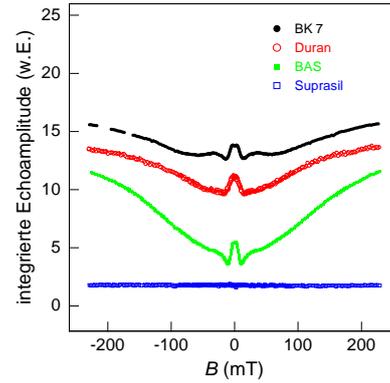


Abb. 2.7: Amplitude von dielektrischen Zweipuls-Polarisationsechos an verschiedenen Mehrkomponentengläsern in Abhängigkeit von der magnetischen Flussdichte [Lud03]. Suprasil ist das einzige Material, das keine nuklearen Quadrupolmomente enthält.

der „Konfigurationskoordinate“ ist nicht bekannt. Erste Lösungsansätze gab es bei der Entdeckung der Magnetfeldabhängigkeit der DK dielektrischer Gläser [Str98] und des sogenannten Quadrupoleffekts [Wue02]. In Abbildung 2.7 sind die Ergebnisse von dielektrischen Polarisationsechomessungen in Abhängigkeit vom Magnetfeld an verschiedenen nichtmagnetischen Mehrkomponentengläsern gezeigt. Die deutliche Magnetfeldabhängigkeit, die für das Silikatglas BAS ($\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$) auch in der Dielektrizitätskonstante gezeigt wurde [Str98], wird vom Standardtunnelmodell nicht vorhergesagt. Für dielektrische Polarisationsechos konnte sie eindeutig auf die Wechselwirkung von elektrischen und magnetischen Kernmomenten der Tunnelteilchen mit lokalen Feldern zurückgeführt werden [Wue02],[Nag04]. Aus dieser ersten nicht-universellen Eigenschaft von Gläsern konnten für Glycerin erste Schlüsse auf die Rotationskomponente der Tunnelbewegung gezogen werden [Fis05]. Der Quadrupoleffekt und seine Relevanz für diese Arbeit wird in Abschnitt 2.5 erläutert.

Desweiteren nimmt das Standardtunnelmodell unabhängige, nicht miteinander wechselwirkende Tunnelsysteme an. Wie im Abschnitt 2.4 gezeigt werden wird, ist die Annahme einer Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen jedoch notwendig, um beispielsweise den Zerfall von Polarisationsechos zu verstehen. Eine in diesem Zusammenhang interessante Messung wurde 1998 von Strehlow veröffentlicht [Str98]. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 2.8 gezeigt. Aufgetragen ist dort der Realteil der bei einer Frequenz von 1 kHz gemessenen dielektrischen Funktion von BAS-

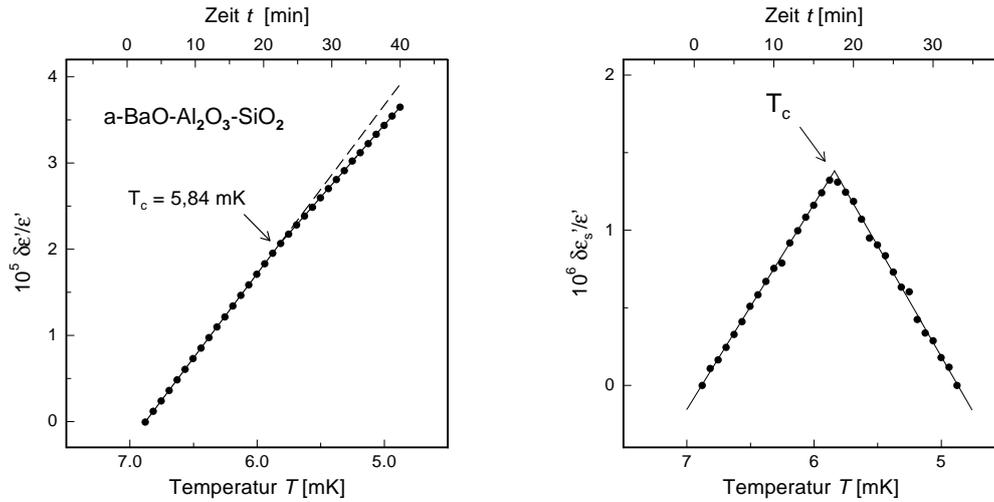


Abb. 2.8: Verlauf des Realteils der dielektrischen Funktion von BAS-Glas mit der Temperatur [Str98]. Bei $T_c = 5,84 \text{ mK}$ tritt eine Diskontinuität auf. Zieht man eine Gerade von den Datenpunkten ab, erhält man eine scharfe Spitze, wie in der rechten Abbildung dargestellt.

Glas in Abhängigkeit der Temperatur. Er weist bei der Temperatur $T_c = 5,84 \text{ mK}$ einen Knick auf. Zieht man die Gerade, die den ersten mit dem letzten Punkt der Messung verbindet, von den Messwerten ab, erhält man, wie in der eingesetzten Abbildung dargestellt, einen scharfes Maximum. Unterhalb von T_c zeigte die dielektrische Funktion außerdem eine starke Abhängigkeit vom Magnetfeld und ein deutlich vermindertes Rauschen. Die Diskontinuität wurde von Strehlow et al. als möglicher Phasenübergang interpretiert, der den Übergang von einer unabhängigen Tunnelbewegung der einzelnen Tunnelsysteme zu einer kollektiven, womöglich durch eine makroskopische Wellenfunktion beschreibbare Tunnelbewegung markiert. Ziel der vorliegenden Arbeit war daher, die Wechselwirkung zwischen den Tunnelsystemen, die bereits bei höheren Temperaturen existiert, durch verschiedene dielektrische Polarisationsmessungen im Detail zu untersuchen. Nachdem im nächsten Abschnitt kurz die Wechselwirkung von Tunnelsystemen mit elektrischen Feldern erläutert wird, wird die Entstehung von solchen Polarisationsechos und die unterschiedlichen Zerfallscharakteristika, die sie aufweisen, im Abschnitt 2.3 dargelegt.

2.2 Wechselwirkung der Tunnelsysteme mit elektromagnetischen Wechselfeldern

Befindet sich das Ensemble von Tunnelsystemen bei endlicher Temperatur T im thermischen Gleichgewicht, ist die Besetzungszahldifferenz der Energieniveaus für Tunnelsysteme gegeben durch

$$\Delta N(E, T) = N \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right), \quad (2.9)$$

wobei N die Zahl der Tunnelsysteme mit der Energieaufspaltung E ist. Viele der für Gläser typischen Eigenschaften können dadurch erklärt werden, dass Phononen in der Glasprobe oder Photonen, die in das Glas eingestrahlt werden, an resonanten Tunnelsystemen gestreut werden und dabei Übergänge zwischen den Energieniveaus induzieren. Dies soll im folgenden für elektrische Felder erläutert werden.

Setzt man eine Glasprobe einem äußeren elektrischen Wechselfeld $\mathbf{F}_{\text{EF}} = \mathbf{F} \cos(\omega_{\text{EF}}t)$ mit der Amplitude \mathbf{F} und der Frequenz ω_{EF} aus, können, sofern das Tunnelsystem ein elektrisches Dipolmoment trägt, durch Absorption eines resonanten Photons mit der Energie $\hbar\omega_{\text{TS}} \approx \hbar\omega_{\text{EF}}$ Übergänge zwischen den Tunnelniveaus induziert werden. Ist das elektrische Feld klein genug, kann die Wechselwirkung mithilfe von Störungsrechnung erster Ordnung behandelt werden. Der Hamilton-Operator, der die Störung beschreibt, hat die Form $(\mu\sigma_z + \mu'\sigma_x)F$, wobei μ und μ' das permanente bzw. oszillierende Dipolmoment darstellt. Die Pauli-Matrizen sind gegeben durch

$$\sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.10)$$

Die Außerdiagonalelemente des Störoperators sind also proportional zu μ' . Sie führen zu Übergängen zwischen den Energieniveaus bzw. zur Erzeugung quantenmechanischer Mischzustände, während die zum permanenten Dipolmoment μ proportionalen Diagonalelemente die Energieniveaus verschieben¹.

Die Kopplung der äußeren Felder an das Tunnelsystem erfolgt hauptsächlich über die Asymmetrieenergie Δ . Dies liegt einerseits daran, dass die Wellenlänge des elektromagnetischen Felds λ_{EF} viel größer ist als der Abstand d der Mulden, d.h. die Störungen am Ort des Tunnelsystems sind in guter Näherung linear. Außerdem kann gezeigt werden, dass die Übergangsmatrixelemente für Veränderungen in Δ deutlich

¹Der Einfluss von akustischen Feldern wird äquivalent beschrieben. Das elektrische Feld wird ersetzt durch das elastische Feld e und das elektrische Dipolmoment durch die elastische Kopplungskonstante γ .

größer sind als die für Veränderungen in Δ_0 [Phi81]. Folglich kann der Störoperator durch das elektrische Feld in der Basis (Ψ_a, Ψ_b) symmetrisch angenommen werden:

$$\mathcal{H}_{\text{EF}} = \mathbf{P} \cdot \mathbf{F} \cos(\omega_{\text{EF}}t) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \mathbf{p} \cdot \mathbf{F} \cos(\omega_{\text{EF}}t) . \quad (2.11)$$

Hier ist \mathbf{P} die Polarisation des Tunnelsystems, \mathbf{p} die Änderung des elektrischen Dipolmoments beim Übergang von einer Mulde in die andere, \mathbf{F} die Amplitude und ω_{EF} die Frequenz des elektrischen Felds. Nach Transformation in die Basis (Ψ_1, Ψ_2) erhält man

$$\mathcal{H}'_{\text{EF}} = \mathbf{P}' \cdot \mathbf{F} \cos(\omega_{\text{EF}}t) = \frac{1}{2E} \begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \mathbf{p} \cdot \mathbf{F} \cos(\omega_{\text{EF}}t) . \quad (2.12)$$

Dieser Hamilton-Operator hat die oben bereits erwähnte Form. Aus einem Koeffizientenvergleich erkennt man, dass das oszillierende Dipolmoment

$$\mu' = \frac{\Delta_0}{E} p \cos(\vartheta), \quad \cos \vartheta = \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{F}}{pF} \quad (2.13)$$

der in Abbildung 2.5 gezeigten Verteilung unterliegt.

Der Hamilton-Operator des durch ein elektrisches Feld getriebenen Tunnelsystems ergibt sich aus der Addition von \mathcal{H}'_{TS} aus Gleichung (2.6) und \mathcal{H}'_{EF} aus Gleichung (2.12). Zur Vereinfachung wird der Gesamt-Hamilton-Operator noch zusätzlich in ein mit ω_{EF} rotierendes Koordinatensystem transformiert

$$\mathcal{H}''_{\text{ges}} = e^{i\omega_{\text{EF}}t\sigma_z} (\mathcal{H}'_{\text{TS}} + \mathcal{H}'_{\text{EF}}) e^{-i\omega_{\text{EF}}t\sigma_z} - \hbar\omega_{\text{EF}}\sigma_z . \quad (2.14)$$

Mithilfe dieses Operators kann man die zeitliche Entwicklung der Wellenfunktion $\Psi = c_1(t)\Psi_1 + c_2(t)\Psi_2$ des Tunnelsystems bestimmen.

Zunächst soll aber noch eine anschauliche Darstellung für die zeitliche Entwicklung eines Tunnelsystems in Anwesenheit eines elektrischen Felds vorgestellt werden. Dabei greifen wir auf die sogenannte Bloch-Kugel zurück, die sonst für die Visualisierung von magnetischen Momenten in Magnetfeldern verwendet wird. Wie bereits in Abschnitt 2.1.1 erläutert wurde, kann das Tunnelsystem als reines Zweiniveausystem mithilfe von Spinformalismen beschrieben werden. Da es sich aber um keinen realen, im dreidimensionalen Raum orientierten Spin handelt, werden wir im folgenden von „Pseudospinvektoren“ sprechen, die sich im Pseudospinraum bewegen.

In Abbildung 2.9 ist eine Bloch-Kugel gezeigt, die die möglichen Zustände des Pseudospinvektors \mathbf{S} veranschaulicht. Der in der Bloch-Kugel dargestellte Zustand

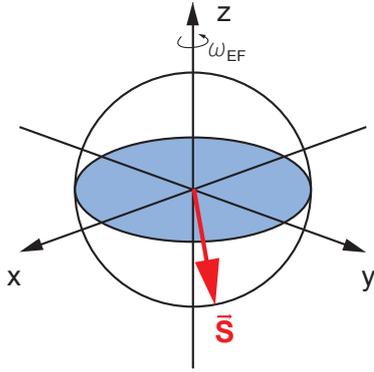


Abb. 2.9: Die Bloch-Kugel dient zur Visualisierung des Pseudospinraums. Der Pseudospinvektor \mathbf{S} bewegt sich in den drei Koordinaten, wobei die z -Achse die Besetzungszahldifferenz, die y -Achse die Richtung der Polarisation und die x -Achse die Richtung des elektrischen Felds angibt. Das Koordinatensystem rotiert mit ω_{EF} um die z -Achse.

ist bereits in ein mit ω_{EF} rotierendes Koordinatensystem transformiert. Die Erwartungswerte $\langle S_i \rangle$ entlang der Koordinaten des Pseudospinraums haben dabei folgende Bedeutungen: Die z -Komponente entspricht der Besetzungszahldifferenz des Tunnelsystems: Zeigt der Pseudospinvektor nach unten, befindet sich das Tunnelsystem im Grundzustand mit der Wellenfunktion Ψ_1 , zeigt er nach oben, befindet sich das Tunnelsystem im angeregten Zustand mit der Wellenfunktion Ψ_2 . Alle anderen Zustände sind quantenmechanische Mischzustände. Der Erwartungswert $\langle S_y \rangle$ stellt die Polarisation des Tunnelsystems dar. Je größer die y -Komponente eines Pseudospinvektors, desto größer ist der mögliche Beitrag dieses Tunnelsystems zur makroskopischen Polarisation. Dies kann man sich durch Betrachtung der Wellenfunktionen Ψ_1 und Ψ_2 in Abbildung 2.4 veranschaulichen. Im reinen Zustand ist das Teilchen quantenmechanisch über beide Mulden verschmiert. Mischt man diese beiden Wellenfunktionen durch Addition, führt das zu einer Lokalisierung des Tunnelteilchens in der linken Mulde, bei Subtraktion $\Psi_1 - \Psi_2$ wird das Teilchen in der rechten Mulde lokalisiert. Trägt das Teilchen eine Ladung, verursacht die Lokalisierung des Tunnelteilchens eine messbare Polarisation. Der Erwartungswert $\langle S_x \rangle$ hat keine einfach interpretierbare Bedeutung.

Befindet sich ein Tunnelsystem nun in einem beliebigen Zustand $\Psi = (c_1, c_2)$ in der Basis (Ψ_1, Ψ_2) und man schaltet ein elektrisches Wechselfeld mit $\omega_{\text{HF}} = E/\hbar$ ein, wird die zeitliche Entwicklung der Wellenfunktion durch den Propagator

$$\exp\left(-i\frac{\Omega_{\text{R}}t}{2}\sigma_x\right) = \hat{\mathbf{1}} \cos\left(\frac{\Omega_{\text{R}}t}{2}\right) - i\sigma_x \sin\left(\frac{\Omega_{\text{R}}t}{2}\right). \quad (2.15)$$

gegeben, der sich auf die Transformation in (2.14) zurückführen lässt. Offensichtlich handelt es sich um eine Rotation um die x -Achse des „rotierenden“ Pseudospinraums

mit der Frequenz

$$\Omega_{\text{R}} = \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{F}}{\hbar} \left(\frac{\Delta_0}{E} \right), \quad (2.16)$$

die als Rabi-Frequenz bezeichnet wird. Anders ausgedrückt führt das elektrische Feld zu einer mit der Rabi-Frequenz oszillierenden Umbesetzung der Tunnelniveaus. Auch die Rabi-Frequenzen sind in einem Glas gemäß (2.8a) verteilt.

Weicht die Energieaufspaltung des angeregten Tunnelsystems von der Frequenz ω_{EF} ab, sorgt dies im rotierenden Koordinatensystem in Abwesenheit eines treibenden Feldes für eine Präzessionsbewegung des Pseudospins um die z -Achse des Pseudospinraums mit der Frequenz

$$\omega_{\text{d}} = \omega_{\text{EF}} - \omega_{\text{TS}}. \quad (2.17)$$

Die zeitliche Entwicklung der Wellenfunktion in Abwesenheit eines treibenden Feldes ist durch den Propagator

$$e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_{\text{TS}}'' t} = e^{-\frac{1}{2} i \omega_{\text{d}} t \sigma_z} \quad (2.18)$$

gegeben. Der Winkel $\phi = \frac{1}{2} \omega_{\text{d}} t$, der sich nach einer Zeit t einstellt, entspricht der Phase, die das Tunnelsystem in dieser Zeit im Vergleich zu den resonanten Tunnelsystemen mit $E = \hbar \omega_{\text{EF}}$ aufgesammelt hat.

Bedenkt man die unterschiedliche Interpretation der Koordinatenachsen, sind die Bewegungsgleichungen, die die zeitliche Evolution des Tunnelsystems mit der Energieaufspaltung $\hbar \omega$ wie die eines gewöhnlichen Spins im Magnetfeld durch die Blochgleichungen [Blo46]

$$\dot{S}_x(t) = -\frac{1}{T_2} S_x(t) - (\omega - \omega_{\text{TS}}) S_y(t) \quad (2.19a)$$

$$\dot{S}_y(t) = (\omega - \omega_{\text{TS}}) S_x(t) - \frac{1}{T_2} S_y(t) + \Omega_{\text{R}} S_z(t) \quad (2.19b)$$

$$\dot{S}_z(t) = -\Omega_{\text{R}} S_y(t) - \frac{1}{T_1} (S_z(t) - S_z^{\text{th}}) \quad (2.19c)$$

gegeben. Die Größe S_z^{th} bezeichnet den Wert von S_z im thermischen Gleichgewicht und wird aus Gleichung (2.9) bestimmt. Die Relaxationszeiten T_1 und T_2 wurden von Bloch ursprünglich phänomenologisch eingeführt. Auf sie soll im folgenden Abschnitt genauer eingegangen werden.

Relaxationszeiten

Die beiden in den Blochgleichungen eingeführten Relaxationszeiten beschreiben die Bestrebung des Pseudospinsystems, nach einer Störung durch ein elektrisches Feld wieder zurück in ihren Ausgangszustand zu gelangen. Man unterscheidet zwischen zwei unterschiedlichen Relaxationsmechanismen. Die longitudinale oder Spin-Gitter-Relaxationszeit T_1 gibt die Zeit an, die eine Gruppe von Tunnelsystemen benötigt, um ins thermische Gleichgewicht zurückzukehren. Im Bild der Bloch-Kugel bedeutet dies, dass die z -Komponente des Pseudovektors wieder in ihre Ausgangslage zurück gedreht wird und die natürliche Besetzungszahldifferenz wieder hergestellt wird. Die Relaxation der Tunnelsysteme aus dem angeregten Zustand geschieht über eine Wechselwirkung mit den Phononen der Probe, die das thermische Bad darstellen. Bei Temperaturen unterhalb von 1 K kommt dafür nur der Ein-Phonon-Prozess in Frage. Für die Ein-Phonon-Relaxationsrate ergibt sich nach [Jae72]

$$T_1^{-1} = \frac{E^3}{2\pi\rho\hbar^4} \left(\frac{\gamma_l^2}{c_l^5} + \frac{2\gamma_t^2}{c_t^5} \right) \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 \coth \left(\frac{E}{2k_B T} \right), \quad (2.20)$$

mit der Dichte ρ , dem elastischen Deformationspotential γ und der Schallgeschwindigkeit c . Die Indizes l und t stehen für longitudinale bzw. transversale Phononen. Für Tunnelsysteme mit fester Energieaufspaltung E ist T_1 proportional zu $(\Delta_0/E)^{-2}$ und ist daher breit verteilt. Am schnellsten zerfallen die symmetrischen Tunnelsysteme mit $\Delta \rightarrow 0$. Man erwartet folglich für den T_1 -Zerfall einer Polarisation in einer Glasprobe keine einfache exponentielle Funktion sondern eine komplizierte Form, die sich aus Integration über die Verteilungsfunktion ergibt. Die Temperaturabhängigkeit ergibt sich aus der Zahl der zur Verfügung stehenden thermischen Phononen bei der Temperatur T . Für $E \leq k_B T$ gilt $\coth \left(\frac{E}{2k_B T} \right) \sim T$. Man erwartet also bei ausreichend hohen Temperaturen für T_1

$$T_1 \propto T^{-1}. \quad (2.21)$$

Die minimale longitudinale Relaxationszeit $T_{1,\min}$, die den exakt symmetrischen Tunnelsysteme zuzuschreiben ist, hat bei $T \approx 10$ mK Werte im Bereich von typischerweise mehreren 100 Mikrosekunden.

Die sogenannte transversale oder Spin-Spin-Relaxationszeit T_2 bestimmt den Zerfall der y -Komponente des Pseudospins. Sie setzt sich aus zwei Beiträgen zusammen

$$T_2^{-1} = T_1^{-1} + T_\phi^{-1}, \quad (2.22)$$

der longitudinalen Relaxationszeit T_1 und der sogenannten Phasenkohärenzzeit T_ϕ .

Da T_ϕ etwa zwei Größenordnungen kleiner ist als T_1 , dominiert sie T_2 . Wir werden daher im Folgenden $T_2 \approx T_\phi$ annehmen. Die Phasenkohärenzzeit kann man sich folgendermaßen vorstellen: ändert sich durch Wechselwirkung des Tunnelsystems mit seiner Umgebung seine Asymmetrieenergie (wie bereits beschrieben koppelt das Tunnelsystem über Δ) und folglich seine Energieaufspaltung, so ändert sich sprunghaft die Präzessionsfrequenz ω_d nach Gleichung (2.17). Dadurch verliert das Tunnelsystem seine Phasenbeziehung zu den übrigen angeregten Tunnelsystemen und trägt je nach Art der Messung nicht mehr voll zur Antwort der Tunnelsysteme auf ein elektrisches Feld bei.

Die Wechselwirkung des Tunnelsystems mit seiner Umgebung, die die Phasenkohärenzzeit bestimmt, muss noch näher erläutert werden. Im Standardtunnelmodell ist keine Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander vorgesehen. Es gibt eine Reihe auf das Standardtunnelmodell aufbauender Theorien, die verschiedene denkbare Wechselwirkungsmechanismen beschreiben. Darauf soll in Abschnitt 2.4 im Detail eingegangen werden.

2.3 Dielektrische Polarisationsechos

Sind die Kohärenzzeiten ausreichend lang, können an Ensembles von quantenmechanischen Zweiniveausystemen kohärente Phänomene beobachtet werden. Ein Beispiel ist das spontane Echo der Magnetisierung in der Kernspinresonanz. Analog können bei sehr tiefen Temperaturen auch kohärente Echos mithilfe von Tunnelsystemen erzeugt werden, wenn sie resonant durch ein eingestrahktes Wechselfeld angeregt werden. Die Energieaufspaltung des Subensembles von angeregten Tunnelsystemen $\hbar\omega_{TS}$ ist im Rahmen der Linienbreite des Felds konstant, d.h. $\omega_{TS} \approx \omega_{EF}$, ihre Asymmetrieenergien und Tunnelaufspaltungen sind aber weiterhin breit verteilt. Nutzt man zur Anregung Ultraschallpulse, erzeugt man sogenannte Phononenechos. Die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen dielektrischen Polarisationsechos werden mit elektrischen Feldern im Frequenzbereich $\omega_{EF} \approx 2\pi \cdot 890$ MHz erzeugt. Die Messgröße ist die dadurch verursachte makroskopische Polarisation der Glasprobe.

Erstmals wurde die Erzeugung eines spontanen, kohärenten Echos an amorphen Siliziumdioxidfilmen in [Gol77] berichtet. Kurz darauf konnte in [Gol79] gezeigt werden, dass nicht polare Verunreinigungen die spontane Polarisation hervorrufen, sondern die intrinsischen Tunnelsysteme selbst. Mittlerweile sind dielektrische Polarisationsechos eine etablierte Technik zur Untersuchung der hochfrequenten dielektrischen Eigenschaften von Gläsern. Je nach Fragestellung stehen verschiedene Anreigungssequenzen zur Verfügung. Generell können gepulste und getriebene Sequenzen unterschieden werden. Erstere verwenden kurze Pulse mit Pulslängen in der Größenordnung von wenigen 100 ns. Das Echo erscheint als spontane makroskopi-

sche Polarisation wenn das Anregungsfeld ausgeschaltet ist. Getriebene Echos, auch Rotationsechos genannt, werden mit langen Pulsen im Bereich von $10\ \mu\text{s}$ erzeugt. Das Echo tritt im Fall der Rotationsechos auf, während ein Feld eingeschaltet ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurden drei Echosequenztypen verwendet: Zwei gepulste Experimente, das spontane oder Zweipuls-Polarisationsecho und das stimulierte oder Dreipuls-Polarisationsecho, und das Pausen-Rotationsecho. Diese drei Echotypen sind aufgrund ihrer Entstehung auf unterschiedliche Relaxationsmechanismen empfindlich und eignen sich daher als unabhängige Messungen zur Untersuchung der Relaxationszeiten T_1 und T_2 .

Im Folgenden sollen die unterschiedlichen Echosequenzen beschrieben werden. Außerdem werden die Echoamplituden hergeleitet. Dazu muss jeweils der Erwartungswert des Polarisationsoperators

$$\langle P'' \rangle = \langle \Psi(t_{\text{Echo}}) | \mathbf{P}'' | \Psi(t_{\text{Echo}}) \rangle \quad (2.23)$$

mit dem Polarisationsoperator \mathbf{P}'' . Man erhält ihn, wenn man den Polarisationsoperator \mathbf{P}' nach (2.12) noch ins rotierende Koordinatensystem transformiert. Die Wellenfunktion Ψ des Tunnelsystems ist gegeben durch $\Psi(t) = c_1(t)\Psi_1 + c_2(t)\Psi_2$. Im Falle der Zwei- und Drei-Pulsechos werden wir dafür eine diagrammartige Herleitung für die zeitabhängigen Koeffizienten der Wellenfunktion einführen. Dazu benötigen wir die folgenden Operatoren:

1. Das elektrische Feld ist eingeschaltet. Der Pseudospin rotiert um die x -Achse und nimmt zur Zeit t_p nach Einschalten des Felds einen Winkel $\Theta = \frac{1}{2}\Omega_R t_p$ zur z -Achse ein. In dieser Zeit entwickelt sich die Wellenfunktion des Tunnelsystems gemäß dem Propagator (2.15). Da die Pulse als sehr kurz angesehen werden, kann in der Kleinwinkelnäherung, $\cos(\Theta) \approx 1, \sin(\Theta) \approx \Theta$, gearbeitet werden. Der Propagator (2.15) vereinfacht sich dann zu $\exp\left(-i\frac{\Omega_R t_p}{2}\sigma_x\right) \approx \hat{\mathbf{1}} - i\Theta\sigma_x$.
2. Das elektrische Feld ist ausgeschaltet. Da im Allgemeinen Tunnelsysteme mit einer breiten Verteilung von Energieaufspaltungen $E = \hbar\omega_{\text{TS}}$ angeregt wurden, dephasieren die Pseudospins in der x - y -Ebene und sammeln die Phase ϕ auf. Der zugehörige Propagator ist (2.18).
3. Außerdem unterliegt das System T_1 -Prozessen, was über den Exponentialterm $e^{-\frac{t}{T_1}}$ berücksichtigt wird.

2.3.1 Zweipuls-Echos

In Abbildung 2.10 ist die Pulssequenz des Zweipuls-Polarisationsechos skizziert. Aufgetragen ist der Betrag der Leistung des eingestrahlten Wechselfelds (schwarz) und

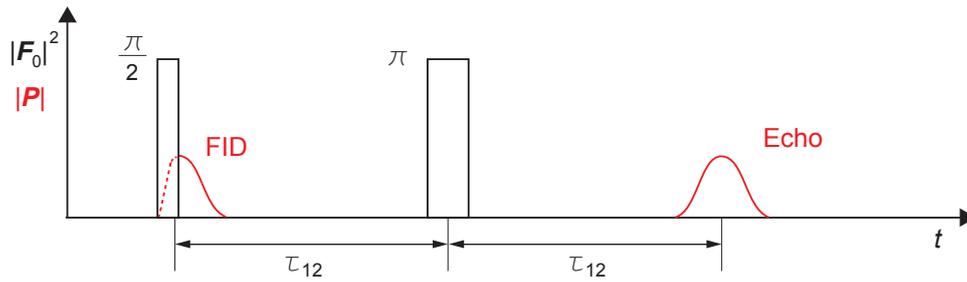


Abb. 2.10: Skizze der Pulssequenz für die Messung von Zweipuls-Polarisationsechos. Die Linien zeigen die Einhüllende der Hochfrequenzpulse und des Echosignals.

der Betrag der Polarisation der Glasprobe (rot) in Abhängigkeit der Messzeit. Das elektrische Feld mit einer Frequenz von etwa 1 GHz wird für zwei kurze Pulse der Länge t_p und $2t_p$, mit $t_p \approx 300$ ns, im Abstand von τ_{12} eingeschaltet. Nach dem ersten Puls beobachtet man eine Polarisation der Probe, die jedoch schnell zerfällt. Sie wird als *Free Induction Decay* (FID) bezeichnet. Das Echo erscheint zur Zeit $t = 2\tau_{12}$.

Das Zustandekommen des spontanen Echos lässt sich anhand der Serie von Bloch-Kugeln in Abbildung 2.11 erläutern. Ist die Temperatur ausreichend klein im Ver-

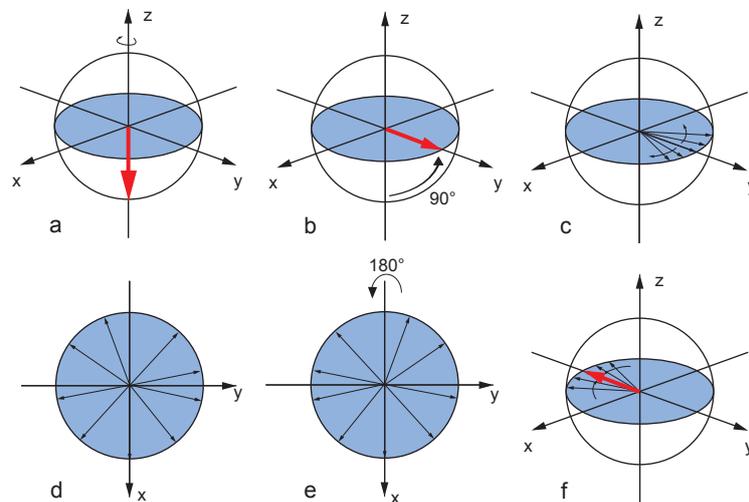


Abb. 2.11: Schematische Darstellung der Entstehung eines Zweipuls-Polarisationsechos mit Hilfe von Bloch-Kugeln. In Abbildungen **d** und **e** wird nur die Projektion auf die x - y -Ebene gezeigt.

a: $t = 0$, Grundzustand. **b:** $t = t_p$, Ende des 1. Pulses. **c:** $t \geq t_p$ Free Induction Decay. **d:** $t \leq \tau_{12}$ Pseudospins sind statistisch in der x - y -Ebene verteilt. **e:** $t = \tau_{12}$, 2. Puls bewirkt Vorzeichenwechsel der Phasenwinkel. **f:** $t = 2\tau_{12}$, Echo.

gleich zur Energieaufspaltung der Tunnelsysteme, $k_B T \ll \hbar \omega_{TS}$, befinden sich zur Zeit $t = 0$ alle Tunnelsysteme im Grundzustand (Abb. 2.11a). Das elektrische Feld während des ersten Pulses führt zu einer Rotation des Pseudospinvektors um die x -Achse. Für $\Omega_R t_p = \frac{\pi}{2}$ zeigt der Pseudospinvektor nach Ende des Pulses entlang der y -Achse (Abb. 2.11b), was einer maximalen makroskopischen Polarisation entspricht. Im darauffolgenden Zeitintervall $[t_p, \tau_{12}]$ präzedieren die Pseudospinvektoren mit der Frequenz $\omega_d = \omega_{EF} - \omega_{TS}$ um die z -Achse (2.11c) und sammeln dabei die quantenmechanische Phase $\phi_1 = \omega_d \tau_{12}$ auf. Da aufgrund der Kürze des Pulses Tunnelsysteme mit einer breiten spektralen Verteilung von Energieaufspaltungen $\omega_{EF} - t_p^{-1} \leq \omega_{TS} \leq \omega_{EF} + t_p^{-1}$ angesprochen werden, existiert auch eine breite Verteilung von ω_d , so dass die makroskopische Polarisation rasch zerfällt (FID). Unmittelbar vor dem zweiten Puls zur Zeit $t = \tau_{12}$ präsentiert sich die Situation wie in Abbildung 2.11d angedeutet. Die Pseudospins sind über die gesamte x - y -Ebene verteilt. Der zweite Puls ist doppelt so lang wie der erste und führt daher zu einer Rotation der Pseudospins um 180° um die x -Achse und bewirkt damit einen Vorzeichenwechsel für alle Phasenwinkel ϕ_1 , siehe 2.11d \rightarrow e. Nach Ende des zweiten Pulses können die Tunnelsysteme wieder frei präzedieren, wobei sie eine Phase $\phi_2 = \omega_d(t - \tau_{12})$ aufsammeln. Zur Zeit $t = 2\tau_{12}$ ist $\phi_1 = \phi_2$. Alle Pseudospinvektoren zeigen nun wieder entlang der y -Achse, aber mit umgekehrtem Vorzeichen (Abb. 2.11f). Die daraus entstehende makroskopische Polarisation nennt man spontantes Echo.

Eine zweite Möglichkeit zum besseren Verständnis der Entstehung von dielektrischen Zweipuls-Polarisationsechos ist die Pfaddiagrammdarstellung nach Parshin [Par04]. In Abbildung 2.12 ist ein solches Pfaddiagramm zu sehen. Es zeigt die zeitliche Entwicklung von zwei Termen der Gesamtwellenfunktion eines Tunnelsystems mit Energieaufspaltung E während der Zweipuls-Echosequenz. Die dicken durchgezogenen und gestrichelten Linien symbolisieren dabei jeweils einen Term der Gesamtwellenfunktion. Es sind nur die Pfade derjenigen Terme dargestellt, die zur Zeit $2\tau_{12}$

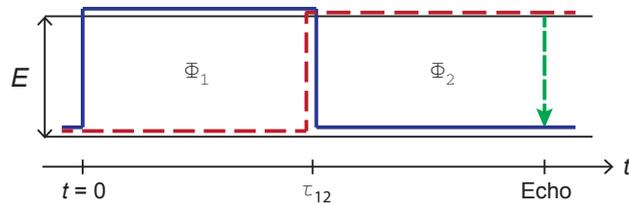


Abb. 2.12: Pfaddiagramm zur Erklärung der Entstehung des Zweipuls-Polarisationsechos anhand eines Tunnelsystems der Energieaufspaltung E . Die dicken durchgezogenen und gestrichelten Linien repräsentieren jeweils einen Beitrag zur Gesamtwellenfunktion mit verschiedenen zeitlichen Entwicklungen.

zum Echo beitragen. Der Gesamtzustand des Tunnelsystems ist dann die quantenmechanische Überlagerung aller möglichen Pfade. Zur Zeit $t < 0$ befindet sich das Tunnelsystem im Grundzustand. Durch die Pulse zu den Zeiten $t = 0$ und $t = \tau_{12}$ werden die Zustände jeweils gemischt, d.h. Übergänge zwischen den Energieniveaus induziert. Zwischen den Pulsen bleibt das Tunnelsystem in seinem Zustand und auf den verschiedenen Pfaden wird jeweils die Phase gesammelt, die der Fläche unter dem Pfad entspricht. Zur Zeit $t = 2\tau_{12}$ haben beide gezeigten Pfade unabhängig von der Energieaufspaltung des betrachteten Tunnelsystems, dieselbe Phase eingesammelt, das spontane Echo entsteht.

Nun soll die Echoamplitude berechnet werden. Dies wurde anderswo [Baz08] schon ausführlich gezeigt. Wir wollen hier nur die Entwicklung der Wellenfunktion $\begin{pmatrix} c_1(t) \\ c_2(t) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \Psi_1 \\ \Psi_2 \end{pmatrix}$ mit der Zeit schematisch darstellen. Wir gehen ohne Beschränkung der Allgemeinheit davon aus, dass sich das Tunnelsystem zu Beginn der Sequenz im Grundzustand befindet, d.h. $T \rightarrow 0$. Bei endlichen Temperaturen muss die resultierende Amplitude mit dem Faktor $\tanh(\frac{E}{2k_B T})$ für die Reduktion der Besetzungszahl multipliziert werden. Der Nullpunkt des Potentials befindet sich in der Mitte zwischen den Energieniveaus der Tunnelsysteme. Es werden die Abkürzungen $\Theta = \frac{1}{2}\Omega_R t_p$, $\phi_1 = \omega_d \tau_{12}$ und $\phi_2 = \omega_d(t - \tau_{12})$ benutzt.

$$\begin{array}{ccc}
t = 0 & & \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \\
\downarrow \frac{\pi}{2}\text{-Puls} & & \downarrow \\
t = t_p & & \begin{pmatrix} 1 \\ -i\Theta \end{pmatrix} \\
\downarrow \tau_{12} & & \downarrow \\
t = \tau_{12} & & \begin{pmatrix} e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} \\ -i\Theta e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \end{pmatrix} \\
\downarrow \pi\text{-Puls} & & \downarrow \\
t = \tau_{12} + 2t_p & & \begin{pmatrix} e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} - 2\Theta^2 e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \\ -i\Theta \left(2e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} + e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \right) \end{pmatrix} \\
\downarrow & & \downarrow \\
t > \tau_{12} + 2t_p & & \begin{pmatrix} e^{-\frac{1}{2}i(\phi_1+\phi_2)} - 2\Theta^2 e^{-\frac{1}{2}i(\phi_2-\phi_1)} e^{-\tau_{12}/T_1} \\ -i\Theta \left(2e^{\frac{1}{2}i(\phi_2-\phi_1)} e^{-(t-\tau_{12})/T_1} + e^{+\frac{1}{2}i(\phi_1+\phi_2)} e^{-t/T_1} \right) \end{pmatrix}
\end{array}$$

Aus den zuletzt gefundenen Koeffizienten der Wellenfunktion erhält man die Polarisation eines Tunnelsystems zur Zeit $t > \tau_{12}$. Vernachlässigt man alle Terme deren Phasen zur Zeit $2\tau_{12}$ nicht verschwinden, ergibt sich:

$$\begin{aligned} P_{2p}(t > \tau_{12}) &= \frac{\Delta_0}{E} [c_1^* c_2 + c_2^* c_1] \\ &\propto \frac{\Delta_0}{E} \Theta^3 e^{-t/T_1} [e^{-i\omega_d(t-2\tau_{12})} - e^{i\omega_d(t-2\tau_{12})}] . \end{aligned} \quad (2.24)$$

Die rechte Seite dieses Ausdrucks enthält neben der Phase, die erwartungsgemäß zur Zeit $t = 2\tau_{12}$ verschwindet den T_1 -Relaxationsterm und die maximale Amplitude des Echos

$$A_{0,2p}(t = 2\tau_{12}) \propto \frac{\Delta_0}{E} (\Omega_R t_p)^3 \propto \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^4 . \quad (2.25)$$

Der Einfluss der T_1 -Relaxation ist in (2.24) bereits berücksichtigt. Im Experiment beobachtet man jedoch einen deutlich schnelleren Zerfall. Ursache dafür sind T_2 -Prozesse, die in der Herleitung bisher nicht berücksichtigt wurden, aber in Kapitel 2.4 aufgegriffen werden. Aufgrund seiner Entstehung ist das Zweipuls-Echo besonders empfindlich auf T_2 -Prozesse, die die Energieaufspaltung des Tunnelsystems variieren. Dadurch kann das Tunnelsystem vor und nach dem zweiten Puls nicht die gleiche Phase aufsammeln und nicht mehr voll zur Polarisation beitragen. Da T_1 -Prozesse viel langsamer ablaufen, spielen sie erst bei sehr großen Pulsabständen eine Rolle.

2.3.2 Dreipuls-Echos

Die Pulssequenz für stimulierte oder Dreipuls-Polarisationsechos ist in Abbildung 2.13 schematisch dargestellt. Aufgetragen ist der Betrag der eingestrahlenen Mikrowellenleistung (schwarz) und der Betrag der Polarisation der Probe (rot) gegen die Zeit. Die Tunnelsysteme werden drei Pulsen der gleichen Länge t_p und Frequenz ω_{EF} zu den Zeiten $t = 0, \tau_{12}$ und τ_{13} ausgesetzt. Dieses Schema entspricht der Pulssequenz für Zweipuls-Echos, bei der der zweite Puls in zwei Teile der Länge t_p aufgespalten wird, deren Abstand τ_{23} üblicherweise so gewählt wird dass $\tau_{23} \gg \tau_{12}$. Das Echo tritt zur Zeit $t = \tau_{23} + 2\tau_{12} = \tau_{13} + \tau_{12}$ auf.

Auch die Entstehung von Dreipuls-Polarisationsechos soll kurz anhand der Bloch-Kugeln beschrieben werden, die in Abbildung 2.14 gezeigt sind. Wie man Abbildungen 2.14a bis c entnehmen kann, ist sie bis zur Zeit $t = \tau_{12}$ identisch zu der von Zweipuls-Polarisationsechos. Allerdings wird für stimulierte Echos im Allgemeinen ein sehr kurzer Pulsabstand τ_{12} gewählt, um eine Reduzierung der Echoamplitude

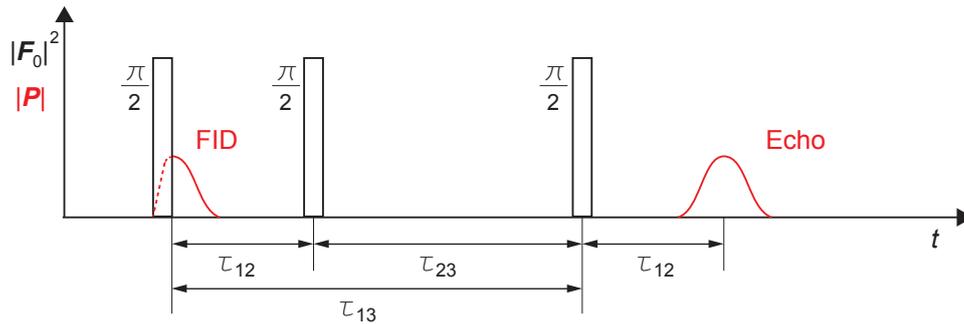


Abb. 2.13: Skizze der Pulssequenz für die Messung von Dreipuls-Polarisationsechos. Die Linien zeigen die Einhüllende der Hochfrequenzpulse und des Echosignals.

durch T_2 -Prozesse zu vermeiden. Der zweite Puls hat wie der erste die Länge t_p und dreht das Ensemble von Pseudospinvektoren um 90° in die x - z -Ebene (Abb. 2.14d). In der Zeit $\tau_{12} < t < \tau_{13}$ befinden sich die Tunnelsysteme in einem Zustand mit großer z -Komponente. Da kein Feld anliegt, findet eine Präzessionsbewegung der Pseudospinvektoren um die z -Achse statt. Verblüffenderweise wird jedoch die Phaseninformation, die zur Entstehung des Echos notwendig ist, während dieser Zeit zwischengespeichert, wie man in der Pfaddarstellung weiter unten besser verstehen kann. Zwischen dem zweiten und dritten Puls unterliegen die Tunnelsysteme daher quasi nur T_1 -Prozessen. Der dritte Puls, siehe Abb. 2.14e, dreht das Ensemble wieder auf die x - y -Ebene, wo sie erneut frei präzedieren können. Phasengleichheit wird zur

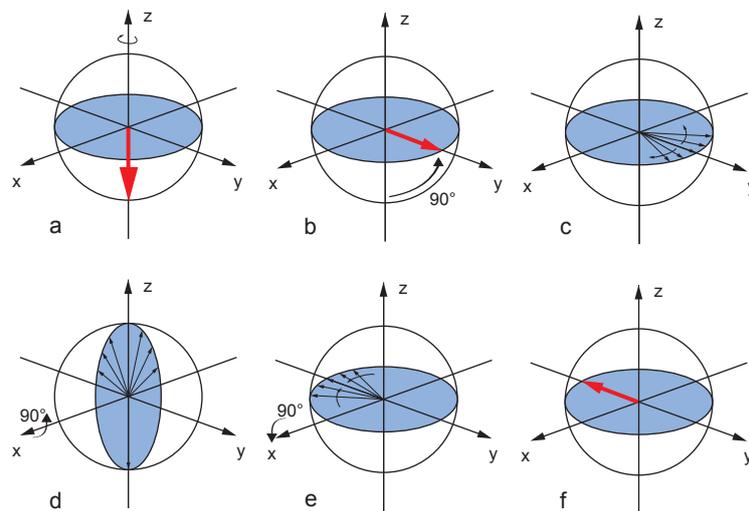


Abb. 2.14: Schematische Darstellung der Entstehung eines Dreipuls-Polarisationsechos. **a:** $t = 0$, Grundzustand. **b:** $t = t_p$, Ende des 1. Pulses. **c:** $t_p < t \leq \tau_{12}$. **d:** $t = \tau_{12}$, Ende des 2. Pulses. **e:** $t = \tau_{13}$, Ende des 3. Pulses. **f:** $t = \tau_{12} + \tau_{13}$, Echo.

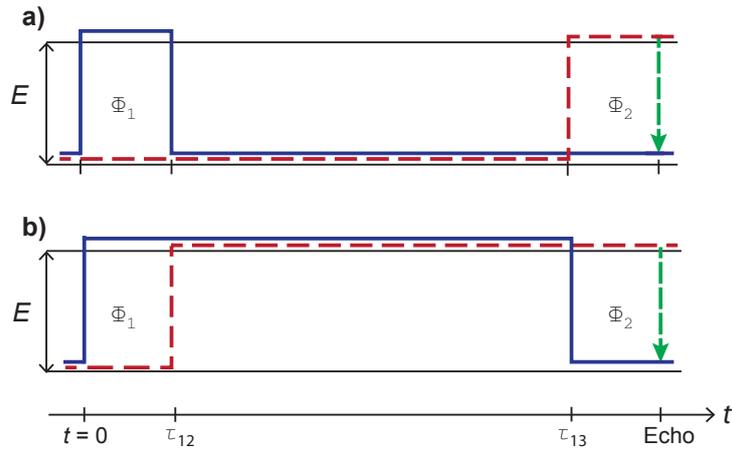


Abb. 2.15: Pfaddiagramm zur Erklärung der Entstehung des Dreipuls-Polarisationsechos in einem Tunnelsystem der Energieaufspaltung E . Die dicken durchgezogenen und gestrichelten Linien repräsentieren jeweils einen Beitrag zur Gesamtwellenfunktion mit verschiedenen zeitlichen Entwicklungen.

Zeit $t = \tau_{13} + \tau_{12}$ erreicht (2.14f).

Auch hier kann ein Pfaddiagramm hilfreich sein. In Abbildung 2.15 ist es für Dreipuls-Polarisationsechos dargestellt. Bei drei Pulsen gibt es natürlich eine Vielzahl an möglichen zeitlichen Entwicklungen. Es wurden nur die beiden Pfadpaare gezeigt, die zur Zeit $\tau_{12} + \tau_{13}$ ein Echo hervorrufen. Zur Zeit $t < 0$ befindet sich das Tunnelsystem im Grundzustand. Die Pulse sorgen dafür, dass die Zustände gemischt werden, d.h. ein Teil eines Pfades kann in den anderen Zustand übergehen. Zwischen dem ersten und zweiten Puls sammelt jeweils der durch die durchgezogene Linie dargestellte Pfad eine Phase Φ_1 in Relation mit dem gestrichelten Pfad auf. Der zweite Puls induziert Übergänge so, dass sich wieder beide Pfade eines Paares im selben Zustand befinden. In Abbildung 2.15 **b** befinden sie sich im angeregten Zustand, was in der Bloch-Kugel dem Zustand entspricht, in dem der Pseudospinvektor senkrecht nach oben zeigt. Während der Zeit zwischen dem zweiten und dritten Puls sammeln also beide Pfade dieselbe Phase auf. Da dieser Beitrag zur Wellenfunktion das gleiche Vorzeichen für beide Pfade hat, verschwindet er bei der Erwartungswertbildung. Vor dem dritten Puls wird die Phase also, wie bereits oben erwähnt, „zwischengespeichert“, indem die Phasendifferenz der Pfade konstant Φ_1 bleibt. Der dritte Puls sorgt wieder für eine Trennung der Pfade. Nach dem dritten Puls sammelt nun der gestrichelte Pfad die Phase Φ_2 im Verhältnis zum durchgezogenen Pfad. Zur Zeit $\tau_{12} + \tau_{13}$ wird $\Phi_1 = \Phi_2$, das Echo entsteht.

Um die Amplitude des stimulierten Echos zu berechnen, muss auch hier der Erwartungswert des Polarisationsoperators ermittelt werden. Für die detaillierte Herleitung

kann auf [Sch12] verwiesen werden. Wir werden hier wieder lediglich schematisch den Verlauf der Wellenfunktion aufführen, die auch hier als Vektor $(c_1(t), c_2(t))$ in der Basis (Ψ_1, Ψ_2) dargestellt wird.

$$\begin{array}{ccc}
t = 0 & & \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \\
\downarrow \frac{\pi}{2}\text{-Puls} & & \downarrow \\
t = t_p & & \begin{pmatrix} 1 \\ -i\Theta \end{pmatrix} \\
\downarrow \tau_{12} & & \downarrow \\
t = \tau_{12} & & \begin{pmatrix} e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} \\ -i\Theta e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \end{pmatrix} \\
\downarrow 2. \frac{\pi}{2}\text{-Puls} & & \downarrow \\
t = \tau_{12} + t_p & & \begin{pmatrix} e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} - \Theta^2 e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \\ -i\Theta \left(e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} + e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \right) \end{pmatrix} \\
\downarrow \tau_{23} & & \downarrow \\
t = \tau_{13} & & \begin{pmatrix} \left(e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} - \Theta^2 e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \right) (1 - e^{-\tau_{23}/T_1}) \\ -i\Theta \left(e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} + e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} \right) e^{-\tau_{23}/T_1} \end{pmatrix} \\
\downarrow 3. \frac{\pi}{2}\text{-Puls} & & \downarrow \\
t = \tau_{13} + t_p & & \begin{pmatrix} -\Theta^2 e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} (1 - 2e^{-\tau_{23}/T_1}) \\ -i\Theta e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} (1 - 2e^{-\tau_{23}/T_1}) \end{pmatrix} \\
\downarrow \tau_{12} & & \downarrow \\
t > \tau_{13} & & \begin{pmatrix} -\Theta^2 e^{+\frac{1}{2}i\phi_1} e^{-\tau_{12}/T_1} (1 - 2e^{-\tau_{23}/T_1}) e^{-\frac{1}{2}i\phi_2} \\ -i\Theta e^{-\frac{1}{2}i\phi_1} (1 - 2e^{-\tau_{23}/T_1}) e^{+\frac{1}{2}i\phi_2} e^{-\tau_{12}/T_1} \end{pmatrix}
\end{array}$$

Ab dem dritten Puls wurden die Terme vernachlässigt, die nicht zum Echo beitragen.

Aus den Koeffizienten der Wellenfunktion zur Zeit $t > \tau_{13}$ erhält man die Polarisation

$$P_{3p}(t > \tau_{13}) \approx \left(c_1^* \frac{\Delta_0}{E} c_2 + c_2^* \frac{\Delta_0}{E} c_1 \right) \propto \frac{\Delta_0}{E} \Theta^3 e^{-\frac{\tau_{12}}{T_1}} \left(1 - 2e^{-\frac{\tau_{23}}{T_1}} \right)^2 \left[e^{i\omega_d(t-t_{12}-\tau_{13})} - e^{-i\omega_d(t-t_{12}-\tau_{13})} \right] \quad (2.26)$$

Sie enthält wie im Falle der Zweipuls-Polarisationsechos Amplitudenterme, Relaxationsterme und Phasenterme. Die maximale Echoamplitude erhält man für $t = \tau_{12} + \tau_{13}$. Lässt man die Relaxationsterme in (2.26) außer acht, findet man die maximale Amplitude des Dreipulsechos

$$A_{0,3p}(t = t_{12} + \tau_{13}) \propto \frac{\Delta_0}{E} (\Omega_R t_p)^3 \propto \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^4, \quad (2.27)$$

den gleichen Ausdruck wie für die Zweipuls-Echos.

Für den Zerfall der Dreipuls-Polarisationsechos ist naiv betrachtet nur der T_1 -Zerfall maßgeblich. Man findet aber experimentell, dass die Form des Dreipuls-Echo-Zerfalls stark von der Länge des Pulsabstands τ_{12} abhängt, was für einen reinen T_1 -Zerfall nicht der Fall sein dürfte. Die Erklärung findet sich in der spektralen Verteilung der durch die ersten beiden Pulse angeregten Tunnelsysteme. Das Frequenzspektrum eines Doppelpulses ist ein feiner Frequenzkamm, wie in Abbildung 2.16 für zwei Pulsabstände τ_{12} dargestellt. Durch T_2 -Prozesse wird dieser Frequenzkamm verschmiert, was für eine zusätzliche Dekohärenz sorgt. Der Zerfall des stimulierten Echos wird daher für kleine τ_{23} noch immer von T_2 -Prozessen dominiert. Da aber viel längere Messzeiten erreichbar sind als beim Zweipuls-Polarisationsecho erhofft man sich trotzdem wichtige Hinweise auf die longitudinale Relaxation.

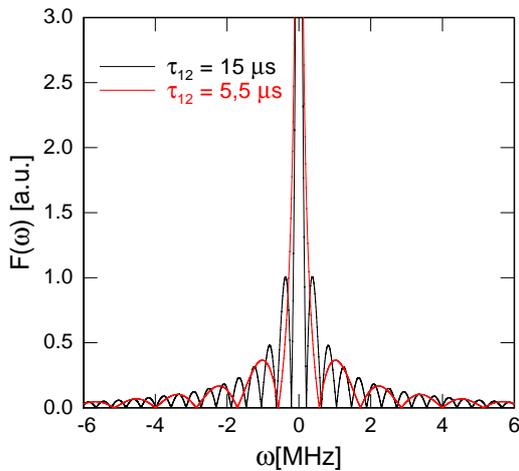


Abb. 2.16:

Fouriertransformation der beiden ersten Pulse einer Dreipuls-Echo-Sequenz für $t_p = 300$ ns und zwei verschiedene Pulsabstände τ_{12} . Der Frequenzkamm wird für längere Pulsabstände feiner.

2.3.3 Rotationsechos

Bei der Erzeugung von Rotationsechos werden im Gegensatz zu den bisher gezeigten Sequenzen lange Pulse verwendet. Der hauptsächliche Unterschied besteht darin, dass das Echo auftritt, während das elektrische Feld angeschaltet ist, also während die Tunnelsysteme getrieben werden. Für die Berechnung der Echoamplitude kann daher nicht die oben eingeführte Diagrammschreibweise verwendet werden, sondern es müssen die Blochgleichungen (2.19) für die verwendete Pulssequenz explizit gelöst werden.

Zunächst soll aber die Entstehung des sogenannten Pausen-Rotationsechos prinzipiell erklärt werden. Der Verlauf des elektrischen Felds und der Einhüllenden des Polarisationssignals der Probe ist in 2.17 abgebildet. Zunächst werden die Tunnelsysteme durch einen ersten Puls der Länge $t_1 \approx 10 \mu\text{s}$ in Phase getrieben. Danach wird das Feld für eine variable Zeit τ_{12} abgeschaltet. Es folgt ein zweiter langer Puls. Das Echo erscheint in Form eines stark gedämpften sinusartigen Signals während des zweiten Pulses. Als Zeitpunkt des Echos wird der Nulldurchgang bei $t = \tau_{12} + 2t_1$ definiert.

Die Entstehung des Rotationsechos kann man sich über die Bloch-Kugel-Darstellung veranschaulichen. Zur Zeit $t = 0$ befinde sich das Ensemble von Tunnelsystemen für $\hbar\omega_{\text{EF}} \gg k_{\text{B}}T$ wieder nahe dem Grundzustand (Abb. 2.18a). Durch das elektrische Feld werden die Pseudospins zur Nutation um die x -Achse mit der Rabi-Frequenz Ω_{R} gezwungen. Da diese nach Gleichung 2.16 einer breiten Verteilung unterliegt, können die resonanten Tunnelsysteme zur Zeit t_1 alle möglichen Winkel $\Theta = \frac{1}{2}\Omega_{\text{R}}t_1$ zur z -Achse einnehmen. In Abbildung 2.18b sind vier mögliche Stellungen des Pseudospinvektors zur Zeit t_1 eingezeichnet. Jeder der nummerierten Pseudospinvektoren beinhaltet viele Tunnelsysteme unterschiedlicher Energieaufspaltung

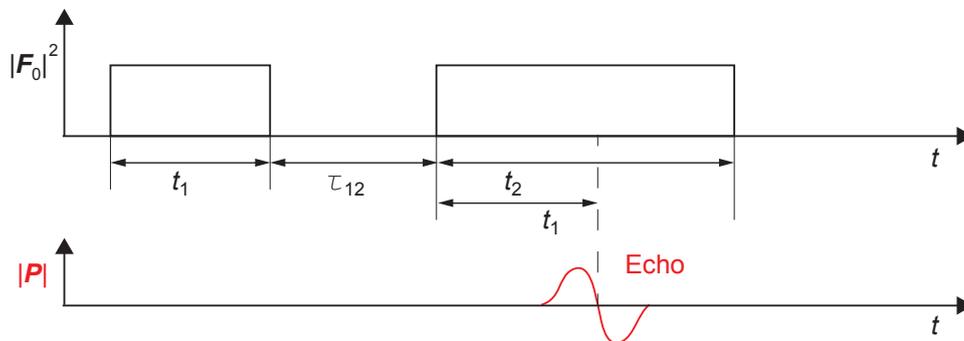


Abb. 2.17: Skizze der Pulssequenz für die Messung von Pausenrotationsechos. Die Linien zeigen die Einhüllende der Hochfrequenzpulse und des Echosignals.

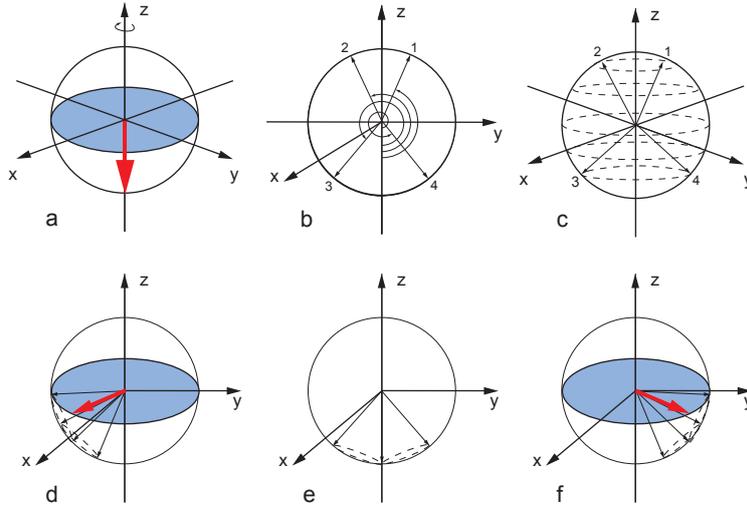


Abb. 2.18: Schematische Darstellung der Entstehung eines Pausenrotationsechos mit Hilfe der Bloch-Kugel.

a: $t = 0$, Grundzustand. **b:** $t = t_1$, Stellungen von 4 exemplarischen Pseudospins nach dem 1. Puls. **c:** $t = t_1 + \tau_{12}$. **d:** $t \leq 2t_1 + \tau_{12}$, makroskopische Polarisation. **e:** $t = 2t_1 + \tau_{12}$, Nulldurchgang. **f:** $t \geq 2t_1 + \tau_{12}$, makroskopische Polarisation.

E (d.h. mit unterschiedlichen ω_d , die aufgrund ihres spezifischen Werts für $\frac{\Delta_0}{E}$ die gleiche Rabi-Frequenz haben. Die Spinpaare 1 und 2 bzw. 3 und 4 wurden dabei so gewählt, dass sie jeweils den gleichen Winkel zur z -Achse aufweisen. Während der Pause präzedieren die Pseudospins um die z -Achse, so dass vor dem Wiedereinschalten des elektrischen Felds alle Pseudospins mit gleichem Ω_R aber unterschiedlichem ω_d auf Kegeln um die z -Achse verteilt sind 2.18c. Diese Kegel werden nun vom elektrischen Feld wieder um die x -Achse rotiert. In Abbildung 2.18e ist der Zustand zur Zeit $t_{\text{Echo}} = \tau_{12} + 2t_1$ skizziert, wenn alle Pseudospins erneut den Winkel Θ von ihrer Position zu Beginn des zweiten Pulses zurückgelegt haben. Zur besseren Übersichtlichkeit sind nur die Beiträge der Spins 1 und 2 eingezeichnet. Wie man erkennt, überlagern sich zu diesem Zeitpunkt alle Beiträge zur Polarisation destruktiv. Allerdings haben alle kurz vor (Abb. 2.18d) und kurz nach (Abb. 2.18f) diesem Zeitpunkt eine y -Komponente mit gleicher Phasenlage, sodass eine makroskopische Polarisation mit einem Nulldurchgang zur Zeit $t_{\text{Echo}} = \tau_{12} + 2t_1$ beobachtet wird, die als Rotationsecho bezeichnet wird.

Für die Entstehung des Rotationsechos ist lediglich der Winkel Θ des Pseudospinvektors zur z -Achse, die zum Ende des ersten Pulses eingenommen wird, ausschlaggebend. Die Präzessionsfrequenz ω_d während und nach dem Puls spielt keine Rolle. Zudem sind die Pulse etwa zwei Größenordnungen länger als bei Zwei- und Dreipuls-Polarisationsechos, so dass die spektrale Verteilung der beteiligten Tunnelsysteme

viel schmalbandiger ist. Wir erwarten daher, dass T_2 -Prozesse keine wesentliche Rolle beim Zerfall des Rotationsechos spielen.

Nun soll die Amplitude des Rotationsechos berechnet werden. Für $\Omega_R \gg T_1, T_2$ sind die Lösungen der Blochgleichungen nach [Won80] gegeben durch

$$\begin{aligned} S_x(t) = & S_x(0) \frac{1}{\Omega^2} [\Omega_R^2 e^{-\alpha t} + \omega_d^2 e^{-\beta t} \cos(\Omega t)] - S_y(0) \frac{\omega_d}{\Omega} e^{-\beta t} \sin(\Omega t) \\ & + S_z(0) \frac{\Omega_R \omega_d}{\Omega^2} [e^{-\beta t} \cos(\Omega t) - e^{-\alpha t}] + S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R \omega_d}{T_1 \alpha \Omega^2} [e^{-\alpha t} - 1] \end{aligned} \quad (2.28a)$$

$$\begin{aligned} S_y(t) = & S_x(0) \frac{\omega_d}{\Omega} e^{-\beta t} \sin(\Omega t) + S_y(0) e^{-\beta t} \cos(\Omega t) + S_z(0) \frac{\Omega_R}{\Omega} e^{-\beta t} \sin(\Omega t) \\ & + S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R}{T_1 \Omega^2} \left[\frac{1}{\alpha T_2} + e^{-\alpha t} \left(1 - \frac{1}{\alpha T_2} \right) - e^{-\beta t} \cos(\Omega t) \right] \end{aligned} \quad (2.28b)$$

$$\begin{aligned} S_z(t) = & S_x(0) \frac{\Omega_R \omega_d}{\Omega^2} [e^{-\beta t} \cos(\Omega t) - e^{-\alpha t}] - S_y(0) \frac{\Omega_R}{\Omega} e^{-\beta t} \sin(\Omega t) \\ & + S_z(0) \frac{1}{\Omega^2} [\omega_d^2 e^{-\alpha t} + \Omega_R^2 e^{-\beta t} \cos(\Omega t)] \\ & + S_z^{\text{th}} \frac{1}{T_1 \Omega^2} \left[\frac{\omega_d^2}{\alpha} (1 - e^{-\alpha t}) + \frac{\Omega_R^2}{\Omega} e^{-\beta t} \sin(\Omega t) \right], \end{aligned} \quad (2.28c)$$

mit den Abkürzungen

$$\begin{aligned} \alpha &= \frac{1}{\Omega^2} \left[\frac{\omega_d^2}{T_1} + \frac{\Omega_R^2}{T_2} \right] \\ \beta &= \frac{1}{\Omega^2} \left[\frac{\omega_d^2}{T_2} + \frac{\Omega_R^2}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) \right]. \end{aligned}$$

Die Differenzfrequenz $\omega_d = \omega_{\text{EF}} - \omega_{\text{TS}}$ wurde bereits in der Diskussion der gepulsten Echos eingeführt. Die Größe $\Omega = \sqrt{\omega_d^2 + \Omega_R^2}$ steht für eine effektive Rabi-Frequenz.

Um die Polarisation in der Probe zur Zeit des Echos zu berechnen, müssen nun die Lösungen der Blochgleichungen auf die verwendete Pulssequenz angewandt werden. Man nehme an, das Tunnelsystem befinde sich zum Zeitpunkt $t = 0$ im thermischen Gleichgewicht nahe dem Grundzustand. Dann erhält man

$$\begin{aligned} S_x(0) &= S_y(0) = 0 \\ S_z(0) &= S_z^{\text{th}} \approx 1 \end{aligned} \quad (2.29)$$

vor Beginn des ersten Pulses. Durch Einschalten des elektrischen Feldes wird das Tunnelsystem angeregt, der Pseudospin führt eine Nutationsbewegung um die x -Achse durch, bis das Feld nach der Pulsdauer t_1 wieder abgeschaltet wird. Der Zustand des TS zur Zeit $t = t_1$ kann aus den Bewegungsgleichungen 2.28 mit den Anfangsbedingungen 2.29 ermittelt werden:

$$\begin{aligned}
S_x(t_1) &= S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R \omega_d}{\Omega^2} \left(e^{-\beta t_1} \cos(\Omega t_1) - e^{-\alpha t_1} + \frac{1}{T_1 \alpha} [e^{-\alpha t_1} - 1] \right) \\
S_y(t_1) &= S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R}{\Omega} \left(e^{-\beta t_1} \sin(\Omega t_1) + \frac{1}{T_1 \Omega} \left[\frac{1}{\alpha T_2} + e^{-\alpha t_1} \left(1 - \frac{1}{\alpha T_2} \right) - e^{-\beta t_1} \cos(\Omega t_1) \right] \right) \\
S_z(t_1) &= S_z^{\text{th}} \frac{1}{\Omega^2} \left(\omega_d^2 e^{-\alpha t_1} + \Omega_R^2 e^{-\beta t_1} \cos(\Omega t_1) + \frac{1}{T_1} \left[\frac{\omega_d^2}{\alpha} (1 - e^{-\alpha t_1}) + \frac{\Omega_R^2}{\Omega} e^{-\beta t_1} \sin(\Omega t_1) \right] \right)
\end{aligned} \tag{2.30}$$

Für die zeitliche Entwicklung des TS-Zustands während der anschließenden Pause der Länge τ_{12} können ebenfalls die Bewegungsgleichungen 2.28 herangezogen werden. Die Anfangsbedingungen sind durch die eben erhaltenen Werte $S_i(t_1)$ gegeben. Desweiteren gilt, da das Feld $\mathbf{F} = 0$ ist, $\Omega_R = 0$, daraus folgt $\Omega = \omega_d$, $\alpha = T_1^{-1}$, $\beta = T_2^{-1}$. Man erhält für den Zeitpunkt $t = t_1 + \tau_{12}$

$$\begin{aligned}
S_x(t_1 + \tau_{12}) &= S_x(t_1) e^{-\tau_{12}/T_2} \cos(\omega_d \tau_{12}) - S_y(t_1) e^{-\tau_{12}/T_2} \sin(\omega_d \tau_{12}) \\
S_y(t_1 + \tau_{12}) &= S_x(t_1) e^{-\tau_{12}/T_2} \sin(\omega_d \tau_{12}) + S_y(t_1) e^{-\tau_{12}/T_2} \cos(\omega_d \tau_{12}) \\
S_z(t_1 + \tau_{12}) &= S_z(t_1) e^{-\tau_{12}/T_1} + S_z^{\text{th}} (1 - e^{-\tau_{12}/T_1}) .
\end{aligned} \tag{2.31}$$

Dieses Ergebnis wirkt trivial: Die Horizontalkomponente beschreibt die Präzessionsbewegung des Pseudospins mit ω_d um die z -Achse und unterliegt währenddessen T_2 -Prozessen. In der Vertikalkomponente des Pseudospins wird über T_1 -Prozesse der angeregte Zustand entvölkert und der Zustand des thermischen Gleichgewicht S_z^{th} besetzt.

Zur Zeit $t = t_1 + \tau_{12}$ wird der zweite Puls eingeschaltet. Das Echo tritt um den Zeitpunkt $t_{\text{Echo}} = 2t_1 + \tau_{12}$ auf, wobei die Polarisation zur Zeit t_{Echo} einen Nulldurchgang hat und ihre Extremwerte kurz vorher und kurz danach erreicht. Die Bewegungsgleichungen $S_i(t > t_1 + \tau_{12})$ ergeben sich nach den Gleichungen 2.28 mit den Anfangsbedingungen $S_i(0) = S_i(t_1 + \tau_{12})$ und $t = t - t_1 - \tau_{12}$. Die Ausdrücke, die sich daraus für $S_i(t > t_1 + \tau_{12})$ ergeben, sind sehr lang und werden deshalb nicht vollständig gezeigt. Die Terme enthalten neben Exponentialfunktionen und zeitunabhängigen Beiträgen die Faktoren $\cos(\Omega t_1)$, $\sin(\Omega t_1)$, $\cos(\Omega(t - t_1 - \tau_{12}))$ und

$\sin(\Omega(t - t_1 - \tau_{12}))$ in verschiedenen Kombinationen. Mithilfe der Additionstheoreme

$$\begin{aligned} 2 \sin(x) \cos(y) &= \sin(x - y) + \sin(x + y) \\ 2 \cos(x) \cos(y) &= \cos(x - y) + \cos(x + y) \\ 2 \sin(x) \sin(y) &= \cos(x - y) - \cos(x + y) \end{aligned} \quad (2.32)$$

erkennt man, dass nur Terme, in denen die Beiträge $\sin(\Omega(t - t_1 - \tau_{12})) \cos(\Omega t_1)$ bzw. $\cos(\Omega(t - t_1 - \tau_{12})) \sin(\Omega t_1)$ enthalten ist, zum Echo beitragen. Berücksichtigt man nur diese Terme, ergibt sich für die Horizontalkomponenten des Pseudospins

$$\begin{aligned} S_x(t > t_1 + \tau_{12}) &= -S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R^3 \omega_d}{2\Omega^5 T_1} e^{-\tau_{12}/T_1} e^{-\beta(t-\tau_{12})} \sin(\Omega(t - 2t_1 - \tau_{12})) \\ &\quad + S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R \omega_d}{2\Omega^3 T_1} e^{-\tau_{12}/T_2} e^{-\beta(t-\tau_{12})} \cos(\omega_d \tau_{12}) \sin(\Omega(t - 2t_1 - \tau_{12})) \end{aligned} \quad (2.33a)$$

$$\begin{aligned} S_y(t > t_1 + \tau_{12}) &= S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R^3}{2\Omega^3} e^{-\tau_{12}/T_1} e^{-\beta(t-\tau_{12})} \sin(\Omega(t - 2t_1 - \tau_{12})) \\ &\quad + S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R^3}{2\Omega^3} e^{-\tau_{12}/T_2} e^{-\beta(t-\tau_{12})} \cos(\omega_d \tau_{12}) \sin(\Omega(t - 2t_1 - \tau_{12})) \\ &\quad + S_z^{\text{th}} \frac{\Omega_R \omega_d}{2\Omega^3 T_1} e^{-\tau_{12}/T_2} e^{-\beta(t-\tau_{12})} \sin(\omega_d \tau_{12}) \sin(\Omega(t - 2t_1 - \tau_{12})) . \end{aligned} \quad (2.33b)$$

Die x -Komponente des Pseudospins $S_x(t > t_1 + \tau_{12})$ enthält (bis auf den ω_d -Anteil in Ω) nur ungerade Funktionen in ω_d und wird folglich bei Integration über ω_d verschwinden.

Bisher haben wir lediglich die zeitliche Entwicklung der Horizontalkomponenten des Pseudospinvektors hergeleitet. Um die tatsächliche Polarisation einer Glasprobe um den Zeitpunkt t_{Echo} zu ermitteln, muss zunächst der Erwartungswert des Polarisationsoperators ermittelt werden. Dieser beträgt nach [Bai85]

$$P_R(t) \propto \mu'(S_x(t) + iS_y(t)) = \frac{\Delta_0}{E} p \cos \vartheta (S_x(t) + iS_y(t)) \quad (2.34)$$

mit dem induzierten Dipolmoment μ' aus (2.13).

Um der Unordnung und den breit verteilten Größen im Glas Rechnung zu tragen muss nun über drei Parameter integriert werden:

- Wegen der statistischen Orientierung der Tunnelsysteme im Glas muss über den Winkel ϑ gemittelt werden. Da \mathbf{p} mit gleicher Wahrscheinlichkeit auf alle

Punkte einer Kugeloberfläche zeigen kann, gehorcht ϑ der Verteilung $G(\vartheta) = \frac{1}{2} \sin(\vartheta)$.

- Aufgrund der endlichen Länge des anregenden Pulses werden Tunnelsysteme mit einer Verteilung von Energieaufspaltungen $\hbar\omega_{\text{TS}}$ angeregt. Daher muss über ω_d integriert werden. Das Integral über $S_x(t)$ verschwindet bei dieser Integration.
- Abschließend muss noch über die Verteilung der Parameter des Tunnelmodells, also über Δ_0/E oder Δ/E , integriert werden. Die Verteilung $P(\Delta_0/E, E)$ entnimmt man Gleichung 2.8a.

Daraus ergibt sich für die Polarisation des Glases mit $q = \frac{\Delta}{E}$

$$P_R(t) = \int_0^1 dq \int_0^\pi \frac{1}{2} \sin \vartheta d\vartheta \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_d \bar{P} p \cos \vartheta \frac{1}{\sqrt{1-q^2}} S_y(t) \quad (2.35)$$

Um die experimentellen Ergebnisse der verschiedenen Polarisationssechotypen korrekt vorher zu sagen, fehlt nun noch die Behandlung der bereits mehrfach erwähnten phasenzerstörenden Prozesse, die die transversale Relaxations- oder Phasenkohärenzzeit T_2 bestimmt. Wir nehmen an, dass sie in der Hauptsache von Wechselwirkungen zwischen Tunnelsystemen hervorgerufen werden. Im folgenden Abschnitt werden diese Wechselwirkungen und ihr Einfluss auf die Echoamplitude behandelt.

2.4 Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen

Der erste Nachweis der Wechselwirkung zwischen Zweiniveausystemen in Gläsern wurde 1975 durch Arnold und Hunklinger erbracht [Arn75]. In akustischen Sättigungsmessungen wiesen sie nach, dass die experimentell ermittelte Linienbreite der angeregten Zweiniveausysteme etwa zwei Größenordnungen über der aus der spektralen Breite des Ultraschallpulses erwarteten Linienbreite lag. Diese Verbreiterung wurde durch die Änderung der Energieaufspaltung der Zweiniveausysteme durch lokale Veränderungen des elastischen Felds erklärt, die wiederum durch Anregung oder Relaxation benachbarter Tunnelsysteme, hierzu zählen insbesondere auch alle nicht resonanten, also nicht direkt zum Messsignal beitragenden Tunnelsysteme, verursacht wird. Es handelt sich hierbei also um eine von den Gitterverzerrungen getragene Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen, die als elastische Dipol-Dipol-Wechselwirkung beschrieben werden kann.

Der einfachste denkbare Wechselwirkungskanal ist die aus der Kernspinresonanz bekannte Spindiffusion, bei der durch den Zustandswechsel eines Zweiniveausystems

ein benachbartes resonantes Zweiniveausystem über Austausch eines virtuellen Phonons direkt angeregt bzw. abgeregt wird. Dieser auch als *Flip-Flop-Prozess* bezeichnete Relaxationsmechanismus kann mit einem Wechselwirkungsoperator der Form $K_{ij}S_x^iS_x^j$ beschrieben werden, wobei S_x den Spinoperator und K_{ij} eine Kopplungskonstante bezeichnet. In Gläsern ist dieser Wechselwirkungskanal jedoch extrem unwahrscheinlich, wie man für Zwei- und Dreipulsechos leicht abschätzen kann. Die spektrale Breite Δf eines 100 ns langen Mikrowellenpulses beträgt etwa 10^6 Hz. Multipliziert man dies mit der quasikonstanten Zustandsdichte $D \approx 10^{20} \text{ cm}^{-3} \text{ eV}^{-1}$ erhält man in diesem Energiefenster nur etwa $4 \cdot 10^{11}$ Tunnelsysteme pro cm^3 . Im Vergleich dazu steht die Gesamtzahl von 10^{17} bis 10^{18} Tunnelsystemen pro Kubikzentimeter mit $0 < E/k_B < 1 \text{ K}$ [Ens05]. Der mittlere Abstand zwischen zwei resonanten Tunnelsystemen liegt folglich bei etwa $0,7 \mu\text{m}$. Dies ist im Vergleich zu atomaren Abständen so groß, dass Flip-Flop-Prozesse aufgrund der r^3 -Abhängigkeit der Dipol-Dipol-Wechselwirkung unterdrückt sind.

Der dominante Wechselwirkungsprozess, den wir auch zur Modellierung der T_2 -artigen Zerfälle von Zwei- und Dreipulsechos heranziehen werden, ist die longitudinale Wechselwirkung durch die z -Komponenten der Spinoperatoren in (2.36). Eine gute theoretische Beschreibung solcher Prozesse liefert die sogenannte spektrale Diffusion, die in [KA62] für Spinechos entwickelt und von Black und Halperin [BH77] auf Zwei- und Dreipulsechos in Gläsern angewandt wurde.

2.4.1 Spektrale Diffusion

In einem einfachen Bild teilt man die Tunnelsysteme in einer Glasprobe während eines Echoexperiments in zwei Gruppen auf. Die Gruppe A beinhaltet die resonanten Tunnelsysteme, also alle, deren Energieaufspaltung zur Zeit $t = 0$ innerhalb der natürlichen Linienbreite die Energieaufspaltung $E = \hbar\omega_0 \approx \hbar\omega_{\text{EF}}$ aufweisen. Zur Gruppe B zählen Tunnelsysteme mit allen anderen Energieaufspaltungen. Diese Gruppe ist, wie aus der obigen Abschätzung hervorgeht, um mehrere Größenordnungen größer. Jedes A-Tunnelsystem ist folglich von B-Systemen umgeben. Erfährt eines der benachbarten B-Systeme einen thermisch angeregten oder spontanen Übergang zwischen seinen Energieniveaus, ändert sich das elastische Feld am Ort des A-Systems. Da die Kopplung an elastische Felder hauptsächlich über die Diagonalelemente des Hamilton-Operators (2.2) geschieht, führt eine Änderung des elastischen Felds zu einer Änderung der Asymmetrieenergie Δ des betroffenen A-Systems und damit zu einer Änderung der Energieaufspaltung E . Dadurch verliert das Tunnelsystem seine Phasenkohärenz im Bezug auf die anderen ursprünglich kohärent angeregten A-Tunnelsysteme, und kann nicht mehr zum Echo beitragen. Da die Wahrscheinlichkeit von Übergängen bei den B-Systemen mit der Zeit wächst, führt diese Diffusion der Energieaufspaltungen der A-Systeme zu einem Zerfall der Echoamplitude mit

steigendem Pulsabstand.

Wie in vorangegangenen Abschnitten ziehen wir auch zur Beschreibung der Wechselwirkung Spinformalismen heran. Mithilfe des Spinoperators S_z kann die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den Spins i und j durch den Operator [BH77]

$$\mathcal{H}'_{\text{WW}} = \sum_{i>j} J_{ij} S_z^i S_z^j \quad (2.36)$$

angenähert werden. Die Stärke der Kopplung

$$J_{ij} = C_{ij} \left(\frac{\Delta}{E} \right)_i \left(\frac{\Delta}{E} \right)_j \frac{1}{r_{ij}^3} \quad (2.37)$$

ist von den Asymmetrieenergien $\Delta_{i,j}$, die die Kopplung an Phononen reflektieren, und den Abstand r_{ij} der beteiligten Tunnelsysteme bestimmt. Die Konstante C_{ij} ist materialabhängig und vermutlich auch abhängig von der mikroskopischen Natur der Tunnelsysteme, und enthält das Deformationspotential an den Orten i und j .

In der Basis (Ψ_1, Ψ_2) ist der effektive Hamilton-Operator für das (A-) Tunnelsystem i unter Einbeziehung der spektralen Diffusion durch

$$\mathcal{H}'_{\text{eff}} = E^i S_z^i + \sum_{j \neq i} J_{ij} S_z^i S_z^j = E'_{\text{eff}} S_z^i \quad (2.38)$$

gegeben. Der mit j indizierte Spinoperator beschreibt den Zustand des benachbarten B-Systems. Wäre der Wert von S_z^j zeitunabhängig, würde der Wechselwirkungsterm nur zu einer statischen Verschiebung der Asymmetrieenergie und somit der Energieaufspaltung des Tunnelsystems i führen. Da in einem Glas eine breite Verteilung von Energieaufspaltungen existiert, kann man annehmen, dass eine solche statische Verschiebung bereits in der Definition von E^i enthalten ist. Man kann daher ohne Beschränkung der Allgemeinheit annehmen, dass die Besetzungszahldifferenz der benachbarten B-Systeme abhängig von der Zeit sind, d.h. $\partial S_z^j(t)/\partial t \neq 0$. Die aus (2.38) resultierende Energieaufspaltung entfernt sich mit der Zeit vom ursprünglichen Wert $\hbar\omega_0$. Die Wahrscheinlichkeit, dass sie zur Zeit t den Wert $\hbar\omega$ annimmt, wird durch den Diffusionskern

$$D(\omega, t) d\omega = \frac{\Delta\omega(t)}{\pi(\omega - \omega_0)^2 + [\Delta\omega(t)]^2} d\omega \quad (2.39)$$

wiedergegeben. Er hat die Form einer Lorentzverteilung. Die Diffusionsbreite $\Delta\omega$

ergibt sich aus der Kopplungsstärke und erfüllt nach [KA62] die Beziehung

$$\Delta\omega(t) \propto \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| \right\rangle_A \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} n_f(t) \right| \right\rangle_B . \quad (2.40)$$

Der mit A indizierte Faktor ist der Mittelwert der Summe über alle A-Systeme. Der zweite Faktor ist über alle B-Systeme gemittelt. Durch die Summenbildung geht die Abstandsabhängigkeit r_{ij}^{-3} aus (2.37) in eine mittlere Dichte $n_f(t)$ der B-Zweiniveausysteme, die in der Zeit t eine ungerade Anzahl von Energieübergängen durchlaufen haben, über. Unter der Annahme, dass diese Übergänge nur auf Ein-Phonon-Prozesse zurück zu führen sind, ergibt sich für den Anteil der B-Systeme mit festem E und Δ_0 an $n_f(t)$ nach [BH77]

$$dn_f(E, \Delta_0, t) = \frac{1}{2} n(E, \Delta_0) \operatorname{sech}^2 \left(\frac{E}{2k_B T} \right) (1 - e^{-t/T_1(E, \Delta_0)}) dE d\Delta_0 . \quad (2.41)$$

Die Größe $n(E, \Delta_0)$ bezeichnet die Dichte der oben spezifizierten B-Systeme. Der Faktor $\operatorname{sech}^2 \left(\frac{E}{2k_B T} \right)$ wichtet thermische Tunnelsysteme und unterdrückt den Beitrag solcher B-Systeme, die aufgrund ihrer großen Energieaufspaltung im Grundzustand eingefroren sind. Integriert man $n_f(E, \Delta_0, t)$ über E und Δ_0 unter Berücksichtigung der Verteilung (2.8a) dieser Parameter im Standardtunnelmodell erhält man für die Diffusionsbreite im Grenzwert großer Zeiten

$$\Delta\omega(t \rightarrow \infty, T) \propto \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| \right\rangle_A T . \quad (2.42)$$

Für den experimentell zugänglichen Bereich, wenn die Dauer der Messung geringer ist als die minimale longitudinale Relaxationszeit der B-Systeme² $T_{1,\min}^B$, ergibt sich

$$\Delta\omega(t, T) \propto \Delta\omega(t \rightarrow \infty, T) T^3 t \propto \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| \right\rangle_A T^4 t . \quad (2.43)$$

Daraus folgt, dass das Spektrum der angeregten Tunnelsysteme monoton mit der Zeit breiter wird. Die starke Temperaturabhängigkeit ergibt sich aus der steigenden Anzahl thermischer Phononen mit steigender Temperatur.

Aus den bisher erhaltenen Ergebnissen soll nun die Zeitabhängigkeit der Echoamplitude $A(t_{\text{Echo}})$ berechnet werden. Dazu definieren wir eine Funktion $s(t)$, die das Vorzeichen der in einem Zeitintervall $[t, t + dt]$ zusätzlich akkumulierten Phase angibt. Je nach präpariertem Zustand während der Echosequenz nimmt $s(t)$ die Werte

²Die minimale longitudinale Relaxationszeit $T_{1,\min}^B$ erhält man aus Gleichung (2.20) mit $\Delta_0 = E$.

-1 , 0 und $+1$ ein. Nach [KA62] ist der relative Beitrag eines A-Zweiniveausystems zum Echo gegeben durch

$$W(t_{\text{Echo}}) = \left\langle \exp \left[i \int_0^{t_{\text{Echo}}} s(t') \omega(t') dt' \right] \right\rangle \quad (2.44)$$

Die Mittelung erfolgt hier über alle A-Systeme und alle möglichen Zeitentwicklungen, die $\omega(t)$ während der Echosequenz durchlaufen haben kann. Zur Ermittlung der Echoamplitude muss über alle Tunnelsysteme der Gruppe A integriert werden. Da E durch die Messfrequenz festgelegt ist genügt eine Integration über $\frac{\Delta}{E}$, und man erhält

$$A(t_{\text{Echo}}) = \int_0^1 d\frac{\Delta}{E} A_0(t_{\text{Echo}}) W\left(\frac{\Delta}{E}, t_{\text{Echo}}\right) P\left(\frac{\Delta}{E}, E\right). \quad (2.45)$$

Hier ist $A_0(t_{\text{Echo}})$ die Amplitude der oszillierenden Polarisation des Tunnelsystems zur Zeit des Echos, die in Gleichung (2.25) für Zweipuls-Echos und in Gleichung (2.27) für Dreipuls-Echos hergeleitet wurde. Der zeitliche Verlauf des durch die spektrale Diffusion gegebenen Faktors $W\left(\frac{\Delta}{E}, t_{\text{Echo}}\right)$ wird in den folgenden Unterabschnitten für die verschiedenen Echotypen diskutiert. Schließlich muss für das Integral über $\frac{\Delta}{E}$ noch die Verteilung $P\left(\frac{\Delta}{E}, E\right)$ der Parameter der Tunnelsysteme (s. Gleichung (2.8a)) berücksichtigt werden.

Zweipuls-Echos

Für eine Zweipuls-Echosequenz ist die Funktion $s(t)$ gegeben durch

$$\begin{aligned} s(t') &= 1, & \text{für } 0 < t' < \tau_{12} \\ s(t') &= -1, & \text{für } \tau_{12} < t' < 2\tau_{12} \end{aligned} \quad (2.46)$$

Setzt man dies in Gleichung (2.44) ein, verschwindet der Exponent von $W(t)$ zur Zeit τ_{12} für zeitunabhängige $\omega(t)$ und man erhält die maximale Echoamplitude. Führt man die Mittelung über alle A-Systeme und Zeitentwicklungen der benachbarten B-Systeme durch, erhält man für den Fall $\tau_{12} \ll T_{1,\text{min}}^{\text{B}}$ nach [KA62] und [BH77]

$$W_{2\text{p}}(2\tau_{12}) = \exp \left[-m'(T) \tau_{12}^2 \right] \quad (2.47)$$

mit

$$m'(T) = \lim_{t \rightarrow 0} t^{-1} \Delta \omega(t, T) = m(T) \frac{\Delta}{E} \propto T^4 \frac{\Delta}{E} \quad (2.48)$$

Die rechte Seite ergibt sich aus Gleichung (2.43). Man sieht sofort, dass der Beitrag von sehr asymmetrischen Tunnelsystemen mit $\Delta \approx E$ zur Echoamplitude besonders schnell zerfällt, während sehr symmetrische Tunnelsysteme praktisch unbeeinflusst von der spektralen Diffusion sind. Dieser Zusammenhang hat insbesondere Konsequenzen für die Form der Echozerfallskurven in Anwesenheit nuklearer Quadrupolmomente und die Form des Echos bei großen Eingangsleistungen und wird in späteren Kapiteln weiter ausgeführt. Den Parameter m werden wir in der Berechnung der Zweipuls-Echoamplitude als Fitparameter verwenden.

Da in dieser Arbeit Echomessungen mit sehr langen Pulsabständen diskutiert werden, ist das eben gezeigte Kurzzeitlimit nicht immer ausreichend. In [Hu74] wurden noch Näherungen für zwei weitere Regimes hergeleitet. Im Übergangsbereich $\tau_{12} \gg T_{1,\min}^B$ gilt

$$W_{2p}(2\tau_{12}) = \exp \left[-\pi^{-\frac{1}{3}} m_2(T) \frac{\Delta}{E} T_{1,\min}^B(T) \tau_{12} \right] \quad (2.49)$$

als untere Grenze für die Echoamplitude. Wird der Pulsabstand viel größer als die längste Relaxationszeit der B-Systeme, $\tau_{12} \gg T_{1,\max}^B$, findet man

$$W_{2p}(2\tau_{12}) = \exp \left[-m_2(T) \frac{\Delta}{E} \sqrt{8\pi^{-1} [T_{1,\min}^B(T)]^3 \tau_{12}} \right] \quad (2.50)$$

Dieser Zeitbereich ist bei den in dieser Arbeit gezeigten Experimenten nicht zugänglich.

Dreipuls-Echos

Für die Dreipuls-Echosequenz ist die Funktion $s(t)$ durch

$$\begin{aligned} s(t') &= 1, & \text{für } 0 < t < \tau_{12} \\ s(t') &= 0, & \text{für } \tau_{12} < t < \tau_{13} \\ s(t') &= -1, & \text{für } \tau_{13} < t < \tau_{12} + \tau_{13} \end{aligned} \quad (2.51)$$

gegeben. In den Intervallen $0 < t < \tau_{12}$ und $\tau_{13} < t < \tau_{12} + \tau_{13}$ wird Phase akkumuliert und die spektrale Diffusion wirkt analog zum Zweipulsecho. Im mittleren Zeitintervall zwischen dem zweiten und dritten Puls sorgt die spektrale Diffusion für

eine statische Verbreiterung des Spektrums der Energieaufspaltungen der angeregten Tunnelsysteme. Daraus resultiert ein zusätzlicher Beitrag zum Zerfall der Echoamplitude.

Aus der Fouriertransformation des Diffusionskerns (2.39) erhält man für den Beitrag der spektralen Diffusion zur Echoamplitude im Limes kleiner τ_{12} [Mim68]

$$W_{3p}(\tau_{12}, \tau_{13}) = W_{2p}(2\tau_{12}) \cdot \exp[-\tau_{12} \Delta\omega(\tau_{13} - \tau_{12}, T)] . \quad (2.52)$$

In einem Dreipuls-Echo-Experiment wird der Pulsabstand τ_{12} konstant gehalten, sodass der Faktor $W_{2p}(2\tau_{12})$ nur eine konstante Reduktion der Echoamplitude hervorruft, aber nicht die Form des Zerfalls beeinflusst. Aus den Grenzwerten von $\Delta\omega$, die in Gleichungen (2.42) und (2.43) angegeben wurden, schließen wir, dass W_{3p} für ein festes Δ/E für kleine τ_{13} exponentiell zerfällt und für sehr große t_{13} konstant wird. Der Zerfall der Echoamplitude wird dann nur noch von der T_1 -Relaxation der A-Systeme bestimmt.

Im Limes kurzer Zeiten $\tau_{12}, \tau_{13} \ll T_{1,\min}^B$, findet man nach [KA62], [Hu74]

$$W_{3p}(\tau_{12} + \tau_{13}) = \exp[-m(T)\tau_{12}\tau_{13}] = \exp[-m(T)\tau_{12}^2] \exp[-m(T)\tau_{12}(\tau_{13} - \tau_{12})] \quad (2.53)$$

Die Stärke des Zerfalls ist auch hier durch den Parameter $m(T)$ aus Gleichung (2.48) gegeben. Auf der rechten Seite von Gleichung (2.47) kann man leicht das Kurzzeitlimit des Zweipuls-Echozerfalls (2.47) und den Beitrag der statischen Linienverbreiterung im Intervall $\tau_{12} < t < \tau_{13}$ unterscheiden.

2.4.2 Kollektive Anregungen

Zu Beginn der Diskussion der Wechselwirkungen zwischen Tunnelsysteme wurde erläutert, warum die resonante Wechselwirkung zwischen zwei Tunnelsystemen keinen relevanten Beitrag zur Dekohärenz der Tunnelsysteme leistet. In [Bur98] wird jedoch ein Mechanismus diskutiert, der solchen Flip-Flop-Konfigurationen dennoch eine Bedeutung bei tiefen Temperaturen zukommen lassen könnte. Es werden Paare von Tunnelsystemen betrachtet, die wiederum untereinander wechselwirken. Diese Anregungen liefern einen Beitrag zur Phasenkohärenzzeit und zur Relaxationszeit mit jeweils einer linearen Temperaturabhängigkeit. Dies soll im folgenden beschrieben werden. Wir folgen dabei der Argumentation in [Bur98a].

Burin et al. betrachten ein Paar aus zwei gekoppelten Tunnelsystemen mit den Energieaufspaltungen $E_1^2 = \Delta_1^2 + \Delta_{0,1}^2$ bzw. $E_2^2 = \Delta_2^2 + \Delta_{0,2}^2$. Die größte Rolle spielen dabei nach [Bur98a] thermische Tunnelsysteme mit $E, \Delta, \Delta_0 \sim k_B T$, da sie am

stärksten an phononassistierten Wechselwirkungen beteiligt sind. Die Kopplung zwischen den Tunnelsystemen sei J_{12} und analog zu (2.37) definiert. Wie in (2.56) gezeigt werden wird, spielen Paare mit $|J_{12}| \ll k_B T$, dabei die größte Rolle. Das Paar befindet sich in einer Flip-Flop-Konfiguration³, d.h. ist Tunnelsystem 1 im angeregten Zustand, muss Tunnelsystem 2 im Grundzustand sein und umgekehrt. Die Energieaufspaltung zwischen den Flip-Flop-Zuständen beträgt dann $E_P = |E_1 - E_2|$. Es soll darauf hingewiesen werden, dass, obwohl sich das Paar aus thermischen Tunnelsystemen zusammensetzt, die Energieaufspaltung der Flip-Flop-Zustände trotzdem einen Wert $\ll k_B T$ einnehmen kann. Das Flip-Flop-System kann nun als neuartiges Zweiniveausystem verstanden werden, das wie ein einfaches Tunnelsystem mit dem Hamilton-Operator (2.2) beschrieben wird. Dabei sind

$$\begin{aligned} \Delta_P &\approx E_1 - E_2 \\ \Delta_{0P} &= \frac{1}{2} J_{12} \frac{\Delta_{0,1} \Delta_{0,2}}{E_1 E_2} \end{aligned} \quad (2.54)$$

die Definitionen der Asymmetrie und Übergangsamplitude des Paarsystems. Die Übergangsamplitude Δ_{0P} ist dabei wegen Gleichung (2.37) proportional zu R_{12}^{-3} . Eine kohärente Kopplung zwischen den Tunnelsystemen des Paares ist nur möglich, wenn die Periodendauer einer kohärenten Oszillation länger ist als die Lebensdauer der unabhängigen Tunnelsysteme, d.h. $\Delta_{0P} > \hbar T_1^{-1}(\Delta_0, E)$. Daraus ergibt sich ein maximaler Abstand zwischen zwei an einem Flip-Flop-Paar beteiligten Tunnelsystemen

$$R_c \sim \lambda_{\text{th}} = \frac{\hbar c}{k_B T} \propto \Theta_D / T \quad (2.55)$$

mit der Wellenlänge der thermischen Phononen λ_{th} , der Schallgeschwindigkeit c und der Debyetemperatur Θ_D . Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Tunnelsystem innerhalb der Kugel mit Radius R_c einen Flip-Flop Partner findet, ist $\bar{P} U_0 \approx 10^{-3} \ll 1$. Dabei ist \bar{P} die Dichte der Tunnelsysteme nach (2.7) und $U_0 = \langle |C_{ij} \left(\frac{\Delta}{E}\right)_i \left(\frac{\Delta}{E}\right)_j | \rangle$ die mittlere Kopplungsstärke zwischen zwei Tunnelsystemen. Daraus folgt, dass jedes Tunnelsystem maximal an einem Flip-Flop-Paar beteiligt ist.

Nun kann die Verteilung der Parameter Δ_{0P} und Δ_P hergeleitet werden. Sie ist von 0 verschieden für $U_0 R_c^{-3} < \Delta_{0P} < k_B T$ und beträgt

$$P^{(2)}(\Delta_P, \Delta_{0P}) \approx \frac{\pi^3}{12} (\bar{P} k_B T) (\bar{P} U_0) \frac{1}{\Delta_{0P}^2} . \quad (2.56)$$

³Das System aus zwei gekoppelten Tunnelsystemen besitzt außer den Flip-Flop-Zuständen noch zwei weitere Zustände, die den Konfigurationen $|\uparrow\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\downarrow\rangle$ entsprechen. Diese sind jedoch energetisch weit von den Flip-Flop-Zuständen entfernt und schwach gekoppelt.

Diese Verteilungsfunktion ist unabhängig von der Energieaufspaltung des Flip-Flop-Paars und hat eine Singularität für kleine Tunnelamplituden, die stärker ist als diejenige der aus dem Standardtunnelmodell bekannte Verteilung (2.8a). Für $\Delta_{0P} < k_B T (\bar{P}U_0)$ wird die Dichte der resonanten Paaranregungen größer als die der unabhängigen Tunnelsysteme. Daraus folgt, dass bei ausreichend tiefen Temperaturen die dominanten niederenergetischen Anregungen im Glas durch die Flip-Flop-Paare gegeben sind.

Die resonante Wechselwirkung zwischen einzelnen Tunnelsystemen, wie beispielsweise zu Beginn dieses Kapitels beschrieben, ist schwach und kann wegen der geringen Dichte resonanter Paare und des endlichen Radius (2.55) der Wechselwirkung keine delokalisierten Anregungen, d.h. keine diffusive Ausbreitung der Anregung, hervorrufen. Die Flip-Flop-Paare können jedoch aufgrund ihrer höheren Dichte bei kleinen Energien wiederum untereinander wechselwirken und so die Delokalisierung erreichen.

Man betrachte dazu zwei resonante Paare mit $\Delta_P < \Delta_{0P}$, deren Übergangsamplitude in der Größenordnung der Tunnelamplitude der einzelnen an den Paaren beteiligten Tunnelsysteme liegt: $\Delta_0 - \frac{1}{2}\Delta_0 < \Delta_{0P} < \Delta_0 + \frac{1}{2}\Delta_0$. Zur Herleitung der Wechselwirkung zwischen den Paaren werden diese als effektive Zweiniveausysteme betrachtet, sodass alle bisher hergeleiteten Gleichungen anwendbar sind. Die Dichte der Flip-Flop-Paare ist dann durch

$$R_*^{-3} \approx (\bar{P}k_B T)(\bar{P}U_0) \quad (2.57)$$

und ihre Kopplung pro Energieintervall $\Delta_0 - \frac{1}{2}\Delta_0 < \Delta_{0P} < \Delta_0 + \frac{1}{2}\Delta_0$ durch

$$\Delta_* \approx U_0 R_*^{-3} \approx k_B T (\bar{P}U_0)^2 \quad (2.58)$$

gegeben. Letzteres folgt aus der zweiten Zeile von (2.54) mit den Bedingungen für die Resonanz $\Delta_{0P}/E \sim 1$ und $U_{12} = U_0/R^3$ für $R < R_c$. Gilt nun $\Delta_{0P} \leq \Delta_*$, kann sich unter diesen Bedingungen ein kohärenter Cluster aus resonanten Paaren bilden. Da außerdem $R_* < R_c$ gelten muss, ergibt sich eine kritische Temperatur, oberhalb derer keine Clusterbildung möglich ist. Aus (2.55) und (2.58) folgt

$$T_c \approx \frac{\bar{P}U_0}{k_B} \sqrt{\frac{c^3 \hbar^3}{U_0}}. \quad (2.59)$$

Man kann diese Temperatur als Übergangstemperatur zwischen einem Regime, das von individuellen Tunnelsystemen nach dem Standardtunnelmodell bestimmt wird, in das Regime der wechselwirkenden resonanten Paare interpretieren.

Dekohärenz durch Paaranregungen

Die Cluster aus resonanten Paaren können nun zur Dephasierung aller durch ein elektrisches Feld angeregten Tunnelsysteme führen. Die Argumentation ist dieselbe wie in der spektralen Diffusion, d.h. Übergänge innerhalb des Clusters sowie das Aufbrechen und Formen von resonanten Paaren ändert die elastischen Felder am Ort jedes beliebigen (A-)Tunnelsystems und damit dessen Phaseninformation. Allerdings wird die Zeitskala dieses Effekts nun nicht durch die Kopplung an Phononen, sondern durch die Kopplungsenergie Δ_* zwischen den Paaren gegeben. Die Rate, mit der Tunnelsysteme außer Phase geraten, ergibt sich zu

$$\frac{1}{T_2^{(P)}} \approx \frac{\Delta_*}{\hbar} \sim \frac{1}{\hbar} (\overline{PU}_0)^2 k_B T = bT \quad \text{mit} \quad b \approx 10^6 \text{ s}^{-1} \text{K}^{-1} \quad (2.60)$$

mit einer linearen Temperaturabhängigkeit.

Relaxation durch Paaranregungen

Die Wechselwirkung zwischen resonanten Paaren kann auch einen Beitrag zur Relaxation der Tunnelsysteme liefern. Dabei können die Übergänge zwischen den Tunnelniveaus bei ausreichend tiefen Temperaturen mit einer größeren Rate stimuliert werden, als über die Wechselwirkung mit Phononen. Während der im vorherigen Abschnitt diskutierten Dekohärenzzeit $T_2^{(P)}$ finden Übergänge zwischen den Paarniveaus statt, die zu einer Veränderung der lokalen Verzerrungsfelder an der Stelle der Tunnelsysteme führt. Dadurch gehen die Resonanzbedingungen für bestimmte Paare verloren, so dass die Bindungen innerhalb des Clusters aufgebrochen werden. Die beteiligten Tunnelsysteme können dadurch zu Übergängen zwischen ihren Energieniveaus stimuliert werden. Die breite Energieverteilung der Paaranregungszustände sorgt dafür, dass gleichzeitig neue Paare gebildet werden können. Die Gesamtdichte der an gekoppelten Anregungen beteiligten Tunnelsysteme bleibt also erhalten. Die Zahl der Zweiniveausysteme, die durch seit Beginn der Messung ihren Zustand geändert haben, nimmt mit der Zeit zu. Wenn Tunnelsysteme am resonanten Cluster beteiligt sind, ist die Wahrscheinlichkeit einer solchen Zustandsänderung durch die Kopplung an viele andere Tunnelsysteme größer, als wenn es nur an Phononen koppeln würde.

Für thermische Tunnelsysteme, d.h. $\Delta \approx \Delta_0 \approx k_B T$, und nicht-thermische resonante Tunnelsysteme mit $\Delta_0 \approx E$ und $E < k_B T$, die an Paaren beteiligt sind, erhält

man für die Relaxationsrate nach [Bur98]

$$\frac{1}{T_{1,\text{th}}^{(\text{P})}} \approx 10 \frac{k_{\text{B}}T}{\hbar} (\overline{P}U_0)^3 . \quad (2.61)$$

Diese Relaxationsrate wird bei tiefen Temperaturen größer als die durch Wechselwirkung mit Phononen verursachte Relaxationsrate T_1^{-1} , die nach Gleichung (2.20) für thermische Tunnelsysteme eine Proportionalität $\propto T^3$ aufweist. Für nicht-resonante Tunnelsysteme mit $\Delta_0 < E < k_{\text{B}}T$, erhöht sich die Relaxationszeit im Vergleich zu (2.61) um einen Faktor $\left(\frac{E}{\Delta_0}\right)^2$, man findet nach Burin [Bur98]

$$T_1^{(\text{P})}(E, \Delta_0) \approx T_{1,\text{th}}^{\text{P}} \left(\frac{E}{\Delta_0}\right)^2 , \quad (2.62)$$

ebenfalls mit einer linearen Temperaturabhängigkeit.

Die linearen Temperaturabhängigkeiten der T_1 -Relaxationszeiten wurde qualitativ in vielen akustischen und dielektrischen Messungen, z.B. [Nat98], [Ens90] [Cla00]. Der in [Bur98] hergeleitete Vorfaktor $\approx 10 \frac{k_{\text{B}}}{\hbar} (\overline{P}U_0)^3$ ist aber etwa drei Größenordnungen zu klein, um die Experimente quantitativ zu beschreiben [Cla00].

2.5 Kerneffekte

In Abschnitt 2.1.2 wurde bereits kurz auf die Magnetfeldeffekte hingewiesen, die in Gläsern auftreten, deren Konsituenten nukleare Quadrupol- oder Dipolmomente tragen. In diesen Materialien treten in Zerfallsmessungen der Zweipuls-Polarisationsechoamplitude Quantenschwebungen auf, die auf eine durch die Kernmomente verursachte Feinstrukturaufspaltung der Tunnelniveaus zurück zu führen sind (s. z.B. [Fis05], [Baz08]).

Im Rahmen dieser Arbeit wurden keine Quantenschwebungen direkt beobachtet. Die in BK7 enthaltenen Atomkerne tragen jedoch zum Teil Kernmomente, so dass ihr möglicher Einfluss auf die Zerfallkurve zumindest kurz erklärt werden soll. Für ausführliche experimentelle und theoretische Beschreibungen soll auf [Baz08], [Wue04] und [Par04] verwiesen werden.

Atomkerne mit einem Kernspin $I \geq 1$ tragen elektrische Kernquadrupolmomente, die mit dem lokalen Feldgradienten $\nabla \mathbf{F}$ wechselwirken. Enthält die Tunnelbewegung einen Rotationsbeitrag, ändert sich die Ausrichtung des Feldgradienten beim Übergang von einer in die andere Tunnelmulde. Die räumliche Orientierung des Kernspins bleibt hingegen erhalten, da die Relaxationsrate T_1^{-1} bei tiefen Temperaturen von

$T \leq 20$ mK viele Größenordnungen unter der Tunnelfrequenz $\omega_{\text{TS}} \approx \omega_{\text{EF}}$ der untersuchten Tunnelsysteme liegen. An die Tunnelbewegung ist folglich ein Übergang zwischen den Zuständen der Kernquadrupolwechselwirkung gekoppelt. Die beiden Tunnelzustände werden daher in $2I + 1$ Feinstrukturturniveaus aufgespalten. Gilt $I = 1$ sind die Übergangswahrscheinlichkeiten nur zwischen zwei der drei Kernniveaus endlich. Wir werden daher im Falle des Quadrupoleffekts Vierniveausysteme betrachten, die aus zwei identischen Dupletts mit je einer Feinaufspaltung E_{Q} bestehen. Zwischen den beiden Dupletts besteht die Energieaufspaltung $E = \hbar\omega_{\text{TS}}$.

Wir betrachten nun den Effekt der Feinstrukturaufspaltung auf das Zweipuls-Polarisationsecho. Ist $E_{\text{Q}} \ll k_{\text{B}}T \ll E$, können wir annehmen, dass die Feinstrukturturniveaus mit gleicher Wahrscheinlichkeit besetzt werden, wenn sich das Tunnelsystem im Grundzustand befindet. Beim Übergang in den gemischten Zustand während der Hochfrequenzpulse sind dann auch Übergänge zwischen den Kernzuständen möglich. Daraus folgt, dass zwischen den beiden Pulsen eines Echoexperiments bzw. zwischen zweitem Puls und Echo auch Beiträge zur Phase $\varphi = \frac{E}{\hbar}\tau_{12} \pm \Delta\varphi$ mit $\Delta\varphi = \frac{E_{\text{Q}}}{\hbar}\tau_{12}$ auftreten, die sich zur Zeit $t_{\text{Echo}} = 2\tau_{12}$ nicht aufheben, es sei denn $\Delta\varphi\tau_{12}$ ist gerade ein Vielfaches von 2π . Die Echoamplitude wird um diese Anteile reduziert. Daraus ergibt sich eine Oszillation der zeitabhängigen Echoamplitude mit $\omega_{\text{Q}} = E_{\text{Q}}/\hbar$.

Die Zweipuls-Echoamplitude an dem durch die Quadrupolaufspaltung erzeugten effektiven Vierniveausystem ist bei N Kernen mit Quadrupolmoment pro Tunnelleinheit durch

$$A(t = 2\tau_{12}) \propto \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^4 \left[1 - A_{\text{mod}} \sin^4\left(\frac{E_{\text{Q}}\tau_{12}}{2}\right)\right]^N. \quad (2.63)$$

gegeben. Der Faktor $\left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^4$ entspricht der Echoamplitude in einem reinen Zweizustandssystem und gibt die maximal erreichbare Echoamplitude an. Sie unterliegt einer Modulation der durch die Kernquadrupolaufspaltung gegebenen Frequenz $\frac{E_{\text{Q}}}{2\hbar}$. Die Größe des Effekts beschreibt die sogenannten Modulationsamplitude

$$A_{\text{mod}} = \frac{16}{3} \left(\frac{\Delta}{E} \sin \theta_{\text{T}}\right)^2, \quad (2.64)$$

die den Winkel θ_{T} enthält, um den das Molekül beim Tunneln zwischen den beiden Mulden rotiert. Für die Betrachtungen in dieser Arbeit ist insbesondere die Proportionalität der Modulationsamplitude zur Asymmetrieenergie Δ von Interesse. Dieser Zusammenhang führt dazu, dass die Tunnelsysteme, die nach Gleichung (2.48) am stärksten von der spektralen Diffusion betroffen sind, am meisten zu der beobachteten Quantenschwebung beitragen. In [Baz08] wurde bereits gezeigt, dass die Quantenschwebung in unterschiedlich deuterierten Glycerinproben schneller verschwindet

als die Echoamplitude. Außerdem gab es starke qualitative Hinweise darauf, dass der Zerfall der Modulationsamplitude durch die spektrale Diffusion erklärbar ist.

Die Hyperfeinaufspaltung durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen nuklearen magnetischen Dipolmomenten rufen einen ähnlichen Effekt hervor, wenn auch auf einer kleinern Energieskala. Er wird als Kerndipoleffekt bezeichnet. Aufgrund der Richtungsabhängigkeit der Dipol-Dipol-Wechselwirkung werden Übergänge zwischen den Hyperfeinniveaus induziert, wenn sich durch die Tunnelbewegung der Winkel zwischen einem Kernspin und der Verbindungsachse zu einem Nachbarspin ändert. Dies ist zum Beispiel bei der Rotation eines starren Moleküls der Fall. Da die Dipol-Wechselwirkung langreichweitig ist, müssen hier alle Spins auf und in der Umgebung des Tunnelteilchens mit einbezogen werden. Dies führt zu einer Vielzahl von Energieaufspaltungen E_D^i . Die daraus resultierenden Quantenschwebungen überlagern sich. Der Dipoleffekt lässt sich daher nur bedingt analytisch auswerten und eignet sich nicht zur Untersuchung der Wechselwirkungen in Gläsern.

Liegen, wie auch in BK7 gegeben, verschiedene Quadrupolaufspaltungen vor, überlagern sich die verschiedenen Schwebungsfrequenzen so, dass sie nicht mehr eindeutig unterscheidbar sind. Man erwartet in diesem Fall einen schnelleren Zerfall der Echoamplitude bei kurzen Pulsabständen, der durch die größte Schwebungsfrequenz bestimmt wird. Bei größeren Pulsabständen wäre die Echoamplitude insgesamt im Vergleich zum maximal möglichen Wert der Echoamplitude bei diesem Pulsabstand reduziert.

Setzt man eine Glasprobe einem ausreichend großen statischen Magnetfeld aus, verschwinden die Kernquadrupoleffekte. Die Zeeman-Wechselwirkung der Kernspins mit dem Magnetfeld sorgt dafür, dass sich Kernniveaus, deren Kernspin-Zustände unterschiedlichen Parallelkomponenten zum Magnetfeld besitzen, aufspalten. Da die räumliche Orientierung des Magnetfelds zwischen den Mulden des Tunnelsystems nicht variiert, treten dann keine Übergänge zwischen den Kernniveaus beim Tunnelvorgang auf. Dies gilt nicht notwendigerweise für den Multi-Dipoleffekt [Fic07]. Im Falle von drei oder mehr wechselwirkenden Kerndipolen treten nicht-entartete Kernniveaus mit gleicher Parallelkomponente des Kernspin-Zustands zum Magnetfeld auf. Die Energieaufspaltung zwischen diesen Kernniveaus wird durch das Magnetfeld nicht verändert. Zwischen ihnen ist auch in hohen Magnetfeldern noch eine Quantenschwebung möglich.

3. Experimentelle Methoden

Der Einfluss von Tunnelsystemen auf die dielektrischen Größen kommt erst bei Temperaturen unterhalb von 1 K zum Tragen. Die Phasenkohärenzzeiten der Tunnelsysteme sind gar erst im Temperaturbereich unter 150 mK ausreichend lang für die Messung von Polarisationsechos. Daher wurden alle Experimente in einem Verdünnungskryostaten durchgeführt. Im ersten Abschnitt dieses Kapitels wird zunächst kurz auf die Erzeugung und Messung von tiefen Temperaturen eingegangen. Für eine ausführliche Beschreibung sei auf die einschlägige Literatur verwiesen, z.B. [Ens05]. Im zweiten Abschnitt werden die Methoden und Herausforderungen der Messung von Polarisationsechos erörtert. Dazu gehören einerseits der Probenhalter und andererseits die Hochfrequenzschaltung selbst. Abschließend sollen noch die Eigenschaften der verwendeten Proben diskutiert werden.

3.1 Erzeugung und Messung tiefer Temperaturen

3.1.1 Verdünnungskryostat

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Messungen bei Temperaturen von 7,5 mK bis 100 mK durchgeführt. Da die Mittelungszeiten bei Echomessungen bis zu mehreren Stunden betragen, war es elementar wichtig, dass die Temperatur über sehr lange Zeiten stabil gehalten werden konnte. Diese Anforderungen werden am besten von einem Verdünnungskryostaten erfüllt. Auf seine Funktionsweise soll im folgenden eingegangen werden.

Der Verdünnungskryostat besteht aus einem geschlossenen Kreislauf, in dem Helium über mehrere Kühlstufen in die Kammer mit der tiefsten Temperatur, die sogenannte Mischkammer, einkondensiert wird. Dazu wird eine Mischung aus ^3He und ^4He verwendet. Diese hat bei Temperaturen unterhalb von 1 K eine interessante Eigenschaft: die ^3He -Atome können bis zu einer bestimmten maximalen Konzentration im ^4He gelöst werden. Diese beträgt bei $T \rightarrow 0$ und Normaldruck etwa 6,5%. Überschreitet die Gesamtkonzentration an ^3He diesen Wert, scheidet sich das überschüssige ^3He als reine oder „konzentrierte“ Phase auf der gemischten oder „verdünnten“ Phase ab. Die ^3He -Atome haben in der reinen Phase eine niedrigere Entropie als in der ^4He -reichen Phase. Wird also ^3He aus der konzentrierten in die verdünnte Phase „verdampft“, muss dem Gemisch Energie in Form von Wärme aus der Umgebung zugeführt werden, um den Entropieanstieg auszugleichen. Sie beträgt $\Delta Q = T\Delta S = -84 \text{ J K}^{-2} \text{ T}^2$ pro Mol ^3He .

In Abbildung 3.1 ist der Teil eines Verdünnungskryostaten, der sich im Vakuumtopf befindet, dargestellt. Die linke Seite zeigt die 3D-Skizze eines kommerziellen Kryostaten. Auf der rechten Seite befindet sich ein Schema, das die räumliche Verteilung der beiden Mischungen (konzentriert und verdünnt) innerhalb des Kryostaten verdeutlicht. Die ^4He -reiche, verdünnte Phase ist gelb, die konzentrierte ^3He -Phase grün dargestellt.

Wie man sieht, wird die Menge und Zusammensetzung des $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Gemischs so eingestellt, dass sich die Phasengrenze in der Mischkammer ausbildet. Der Übergang der ^3He -Atome aus der ^3He -reichen in die ^4He -reiche Phase wird realisiert, indem am sogenannten Verdampfer gepumpt wird. Dieser ist über ein Rohr mit dem unteren Teil der Mischkammer verbunden, in dem sich die schwerere, ^4He -reiche, gemischte Phase befindetet. Da ^3He einen höheren Dampfdruck aufweist als ^4He , verdampfen zuerst die ^3He -Atome, wenn der Druck über der Flüssigkeit reduziert wird. Um den energetisch günstigsten Zustand mit der maximalen Konzentration an gelöstem ^3He zu erhalten, fließen ^3He -Atome aus der konzentrierten Phase in die verdünnte nach. Wie bereits oben für den ^3He -Verdampfer beschrieben, wird das abgepumpte ^3He aus dem Kryostaten, durch eine Stickstoff- und eine Heliumkühlfalle und anschlie-

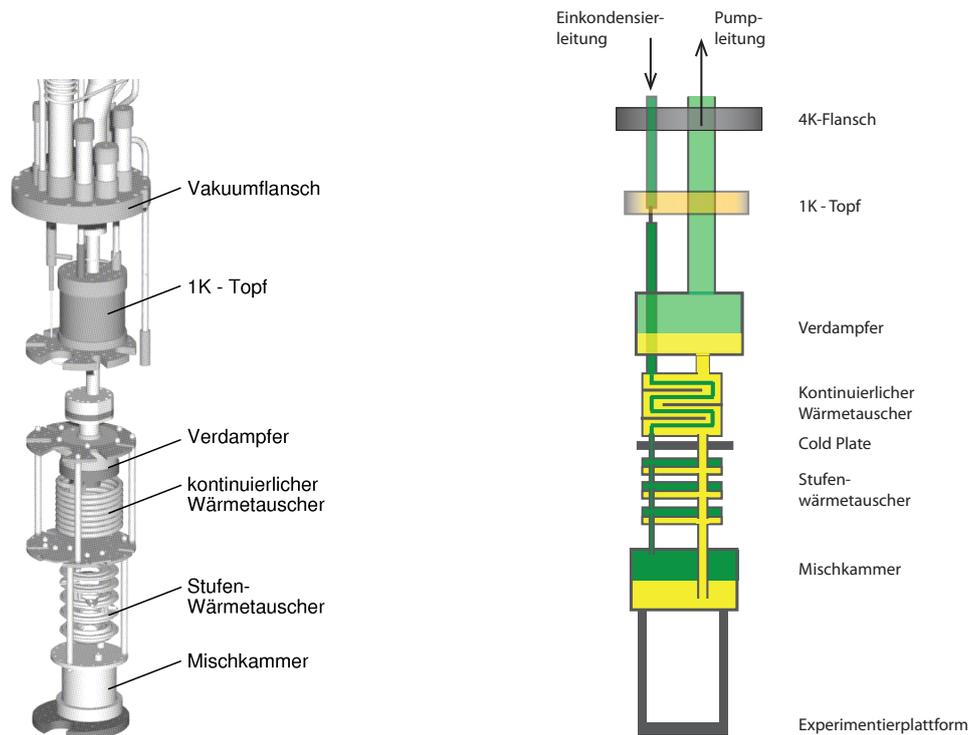


Abb. 3.1: 3D-Skizze eines kommerziellen Verdünnungskryostaten (links) und ein schematischer Schnitt (rechts). Die verdünnte, ^4He -reiche Phase ist gelb, die konzentrierte, ^3He -reiche Phase grün dargestellt.

ßend durchs ein Heliumbad geleitet, wo es auf 4 K vorgekühlt wird. Anschließend wird es durch den sogenannten 1 K-Topf geleitet. Dies ist ein mit ^4He aus dem Heliumbad gefülltes Gefäß, an dem gepumpt wird. Durch den Verlust der latenten Wärme werden dadurch Temperaturen von etwa 1,5 K erreicht. Hinter dem 1K-Topf befindet sich eine Flussimpedanz, die dafür sorgt, dass das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Gemisch kondensiert. Anschließend gelangt es zurück in die Mischkammer. Um den Wärmeeintrag in die Mischkammer zusätzlich zu verringern wird es noch am Verdampfer und in zwei Gegenstromwärmetauschern vorgekühlt. Bei optimalen Verhältnissen bestimmt die Qualität der Wärmetauscher bestimmt die minimal erreichbare Temperatur des Kryostaten.

Mit dem verwendeten Verdünnungskryostaten können Temperaturen bis etwa 6 mK erreicht werden. Durch Heizen an der Mischkammer kann der Kryostat auf höhere Temperaturen eingeregelt und über lange Zeit stabil gehalten werden. Dafür sind neben einer intelligenten, computerbasierten Temperaturregelung geeignete Thermometer nötig. Damit befasst sich der folgende Abschnitt.

3.1.2 Thermometrie

Diese Arbeit beschäftigt sich hauptsächlich mit der Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeiten in Gläsern. Die exakte und reproduzierbare Bestimmung der Temperatur ist daher für die Interpretation der Daten äußerst wichtig. Deshalb sollen hier kurz ein paar Möglichkeiten der Thermometrie in der Tieftemperaturphysik vorgestellt werden. Grundsätzlich unterscheidet man zwischen Primär- und Sekundärthermometern. Mit ersteren kann man theoretisch die Temperatur direkt messen, für letztere ist eine Kalibration gegen ein Primärthermometer immer notwendig. Im Rahmen dieser Arbeit wurden hauptsächlich ein Kohle- und ein Suszeptibilitätsthermometer verwendet.

Widerstandsthermometer

Widerstandsthermometer beruhen auf der Temperaturabhängigkeit des ohmschen Widerstands aller Materialien. Je nach Wahl des Materials, dessen Widerstand gemessen wird, können verschiedene Temperaturbereiche abgedeckt werden:

- **Platin:** Besonders gängig sind die sogenannten Pt100-Thermometer. Ihr Widerstand beträgt 100Ω bei 0°C und nimmt linear mit der Temperatur ab. Pt100-Thermometer werden oberhalb von 50 K beim Abkühlen des Kryostaten eingesetzt.

- **Kohlewiderstände:** Auch bestimmte Kohlewiderstände aus der Elektronik können bei $T \leq 1$ K als Thermometer verwendet werden. Ihr Widerstand steigt für $T \rightarrow 0$ stark an. Die genaue Form der Widerstands-Temperatur-Kurve hängt aber vom Hersteller ab und muss ausgemessen werden. Das im Verlauf dieser Arbeit verwendete Kohlethermometer hat bei Raumtemperatur einen Widerstand 800Ω von und bei 10 mK den Widerstand $150 \text{ k}\Omega$. Da der Widerstand so groß wird, muss der Messstrom bei niedrigen Temperaturen sehr klein gewählt werden, um ein Heizen des Widerstands und damit eine fehlerhafte Temperatureauslesung zu vermeiden. Deshalb rauscht die Temperaturmessung bei tiefsten Temperaturen sehr stark, was sich auch auf die Stabilität der Temperaturregelung auswirkt. Es ist daher günstiger, bei Temperaturen unterhalb von etwa 15 mK ein Suszeptibilitätsthermometer einzusetzen.

Suszeptibilitätsthermometer

Die magnetische Suszeptibilität paramagnetischer Materialien gehorcht dem Curie-Weiss-Gesetz $\chi = C/(T - T_c)$, mit der Curie-Temperatur T_c . Diese Abhängigkeit wird in sogenannten Suszeptibilitätsthermometern ausgenutzt. Sie sorgt dafür, dass die relative Genauigkeit der Temperaturmessung zu tiefen Temperaturen steigt - Suszeptibilitätsthermometer eignen sich daher besonders gut zur rauscharmen Temperaturregelung des Kryostaten bei Temperaturen unter 20 mK. Um die absolute Temperatur zu bestimmen, müssen die Konstante C und die Curie-Temperatur bei jedem Abkühlen durch Vergleich mit einem Primärthermometer gemessen werden. Prinzipiell können für Suszeptibilitätsthermometer zwei Arten von paramagnetischen Materialien verwendet werden. Im Fall des verwendeten Thermometers wurde Gold mit einigen 100 ppm des paramagnetischen Metalls Erbium dotiert, Die Suszeptibilität wird gemessen, indem das paramagnetische Material in ein Spulenpaar eingebracht wird. Die Primärspule erzeugt ein Magnetfeld, sodass der Paramagnet magnetisiert wird. Ändert sich die Temperatur, ändert sich auch die Magnetisierung. Dies führt zu einer Änderung der Induktivität der Sekundärspule. Dies kann mit einer Widerstandsmessbrücke (LR700) gemessen werden. Um magnetische Störfelder zu vermeiden, wird das Thermometer durch eine supraleitende Hülse abgeschirmt.

Die verwendeten Thermometer befinden sich in gutem thermischen Kontakt zur Mischkammer und zeigen folglich deren Temperatur an. Für sinnvolle Messungen muss man davon ausgehen können, dass die am Thermometer angezeigte Temperatur auch der der zu messenden Glasprobe entspricht. Die Probe muss daher thermisch so gut wie möglich an den Kryostaten angekoppelt sein. Parasitäres Heizen, etwa durch das angelegte elektromagnetische Wechselfeld oder breitbandiges Rauschen der elektronischen Komponenten, gilt es zu vermeiden. Diese und weitere Techniken bei der Erzeugung dielektrischer Polarisationsechos werden im Folgenden erläutert.

3.2 Erzeugung von Polarisationsechos

Die Entstehung von Polarisationsechos wurde bereits in Kapitel 2.3 theoretisch behandelt. Dort wurde gezeigt, dass in einem Glas, das einer Serie von hochfrequenten elektromagnetischen Pulsen ausgesetzt wird, kohärente Echos hervorgerufen werden können. Um dies in die Realität umzusetzen, braucht man eine störungsarme, stabile Elektronik bei Raumtemperatur, die die Anregungspulse erzeugt und das Echo verstärkt und anzeigt. Außerdem benötigt man einen Probenhalter bei tiefen Temperaturen, in dem ein homogenes elektrisches Wechselfeld herrscht, der die Einkopplung und Detektion von Hochfrequenzsignalen erlaubt und der gleichzeitig eine optimale thermische Ankopplung der Probe ans Wärmebad gewährleistet. Dafür wird ein koaxialer Mikrowellenresonator eingesetzt.

3.2.1 Elektronischer Aufbau

Eine Skizze des elektronischen Aufbaus für Echomessungen ist in Abbildung 3.2 zu sehen. In der dargestellten Form wird der Aufbau für Rotationsechos verwendet. Die Schaltung für Zwei- und Dreipuls-Polarisationsechos ist fast identisch; lediglich der mit „Kompensationszweig“ markierte Abschnitt wird für sie nicht benötigt. Für Rotationsechos ist er deswegen wesentlich, weil hier das Echosignal während des Hochfrequenzpulses auftritt. Dieser ist aber so groß, dass die Verstärker sättigen können, was die Auslesung des Echosignals verhindert. Mithilfe der Kompensationsschaltung können die Pulse vor der Verstärkung von dem detektierten Signal wieder abgezogen werden.

Das Hochfrequenzsignal wird von dem Signalgenerator Rohde&Schwarz SMH erzeugt und zunächst mit einem 3dB-Teiler aufgespalten. Der eine Teil wird über einen Phasenschieber an den Local Oscillator Eingang des Hochfrequenzmischers angeschlossen. Darauf wird später noch eingegangen. Im Sendezweig wird zunächst mit zwei Schaltern in Serie die gewünschte Pulsfolge erzeugt. Die Schalter haben im geschlossenen Zustand zusammen eine Leckrate von ≤ -80 dB. Zwischen ihnen befindet sich ein festes 5 dB-Dämpfungsglied, um eine Fehlanpassung der Impedanz zu vermeiden, die zu einer erhöhten Leckrate führen kann. Die Schalter werden über einen Puls-/Delaygenerator der Bauform Stanford Research Systems DG535 gesteuert, an dem Pulslängen, -abstände und die Repetitionsrate eingestellt werden können. Anschließend wird das Signal an einem variablen Dämpfungsglied gedämpft, bevor es an einem Hybridkoppler in ein Anregungs- und ein Kompensationssignal geteilt wird. Das Anregungssignal gelangt nun über semirigide Kabel in den Kryostaten. Dort werden sowohl Innen- als auch Außenleiter auf den verschiedenen Temperaturstufen thermisch angekoppelt. Außerdem sind die Kabel unterhalb des 1K-Topfs supraleitend,

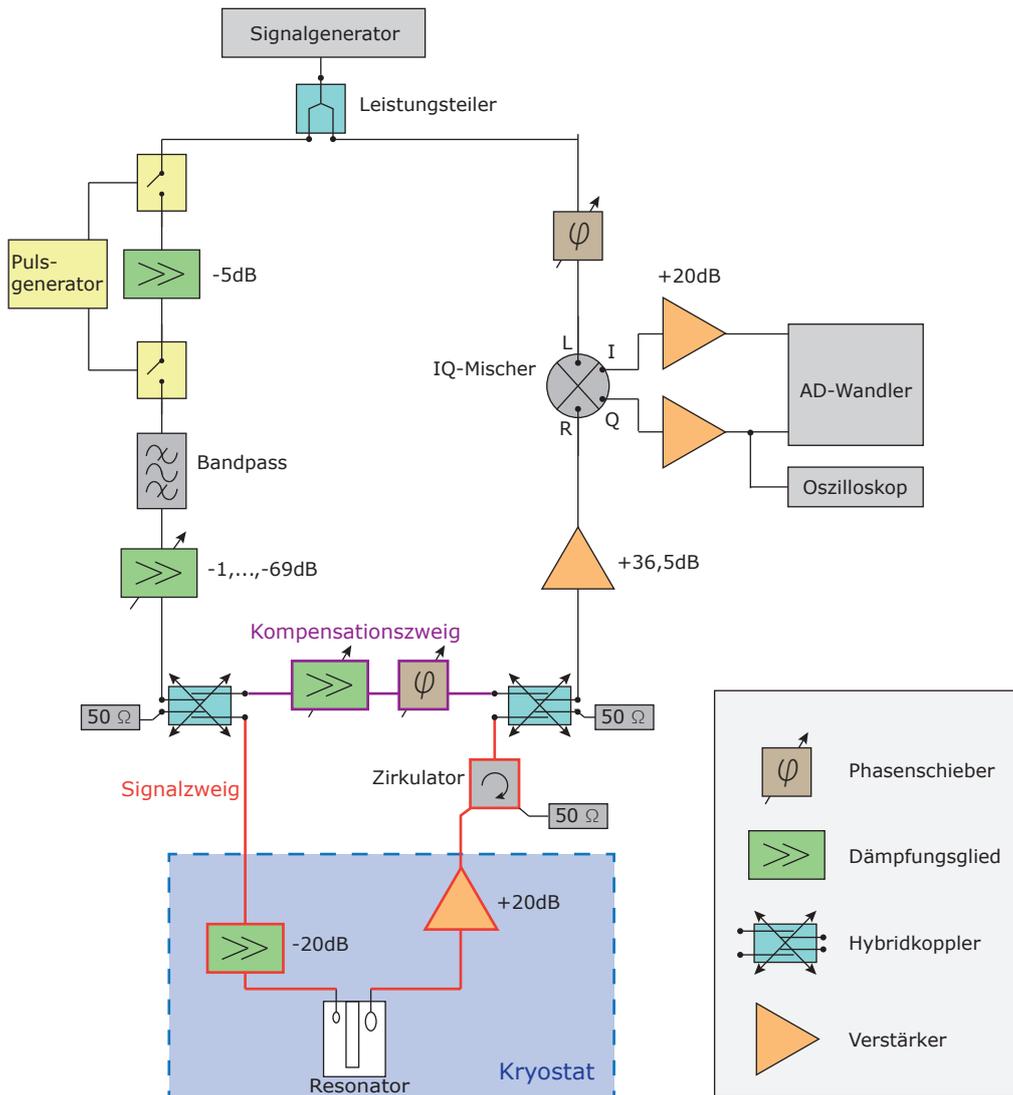


Abb. 3.2: Elektronischer Aufbau für Rotationsechomessungen. Zwei- und Dreipuls-Polarisationsechos können mit demselben Aufbau gemessen werden. Man entfernt dafür lediglich den Kompensationszweig.

um die Wärmeleitung zwischen den Temperaturstufen zu vermeiden. Thermisch zwischen den Wärmetauschern verankert befindet sich noch ein 20 dB-Dämpfungsglied, das thermisches Rauschen von Widerständen mit einer höheren Rauschtemperatur abfangen soll. Der Einsatz dieses Dämpfungsglieds verlängerte den möglichen Messbereich bei Zweipuls-Echomessungen etwa um einen Faktor 2. Auf der Experimentierplattform befindet sich der Mikrowellenresonator, der als Probenhalter dient. Seine Funktion wird im nächsten Abschnitt noch erläutert. Zur Vorverstärkung des aus-

gekoppelten Signals wird dient ein dank seiner Temperatur rauscharmer Tieftemperaturverstärker im Heliumbad. Es handelt sich hierbei um einen HEMT (High Electron Mobility Transistor) - Verstärker der Bauart Kuhne electronics LNA-1020 A-COOL. Er verstärkt das Signal je nach Einstellung der Versorgungsspannung um 15-20 dB. Anschließend wird das Signal mit dem Kompensationssignal überlagert. Der Zirkulator zwischen Koppler und Kryostat sorgt dafür, dass eventuell rückwärts in den Kryostaten gekoppelte Ströme im $50\ \Omega$ -Widerstand absorbiert werden. Das kompensierte Signal wird nun über einen weiteren Hochfrequenzverstärker auf den Mischer geleitet, der den Hochfrequenzanteil herausmischt, und die Einhüllende von Pulsen und Echo über einen Videoverstärker an das Oszilloskop weiterleitet. Für die Rotationsechos wurde ein IQ-Mischer (MITeq IR0502LC1Q) verwendet. Dies vereinfacht die Kompensation wesentlich, weil man durch das gleichzeitige Auslesen beider Kanäle sicherstellen kann, dass alle Phasenanteile korrekt kompensiert sind. Ist dies geschehen, kann durch Einstellen der Phase am Local Oscillator das Echosignal in einem der beiden Kanäle (in Abbildung 3.2 der Q-Kanal) maximiert werden. Nur dieser Kanal wurde während der Messungen vom Oszilloskop ausgelesen¹. Für die meisten Zwei- und Dreipuls-Echomessungen wurde ein regulärer Mischer (MITeq, DM0052LA2) verwendet, da keine Kompensation der Pulse vorgenommen wurde. Auch hier wurde die Phase am Local Oscillator so eingestellt, dass das Echo maximal war.

Um die Messung magnetfeldabhängiger Daten zu ermöglichen, wurde der Resonator in einer Magnetspule platziert. Dieser besteht aus einem Edelstahlhohlzylinder, der mit Niob-Titan-Draht umwickelt ist. Dadurch konnten Magnetfelder bis etwa 230 mT erreicht werden. Die Ströme wurden mit dem Keithley 2420 3A SourceMeter in die Magnetspule eingespeist.

Die Parameter von Pulsgenerator, Stromquelle und Oszilloskop sowie die Mischkammertemperatur können von einem Computerprogramm eingestellt und ausgelesen werden. Die meisten Messungen erfolgen daher vollautomatisch.

3.2.2 Probenhalter: Mikrowellenresonator

Um sicher zu stellen, dass die Energieaufspaltung der resonant angeregten Tunnelsysteme in der gleichen Größenordnung ist wie die Umgebungstemperatur, müssen ausreichend große Anregungsfrequenzen verwendet werden. Die Experimente in der vorliegenden Arbeit wurden bei Frequenzen im Bereich von 1 GHz durchgeführt. In diesem Frequenzbereich ist es nicht mehr möglich, einen Schwingkreis aus diskreten Spulen und Kondensatoren zu betreiben. Es müssten sehr kleine Induktivitäts-

¹In Zukunft soll aber eine Software entstehen, die beide Kanäle gleichzeitig aufzeichnet, so dass beispielsweise eine zeitliche Drift der Phase korrigiert werden kann.

ten L und Kapazitäten C verwendet werden, um die notwendige Resonanzfrequenz $\omega_R = 1/\sqrt{LC}$ zu erreichen, so dass erstens die Leitungsimpedanzen relevant werden und zweitens die Strukturen zu klein werden um eine makroskopische Probe darin zu platzieren. In der Hochfrequenztechnik werden daher Resonatoren aus geschickt dimensionierten Leitungsabschnitten genutzt. Belastet man diese mit einer Kapazität, kann man lokal große und homogene elektrische Felder erzeugen.

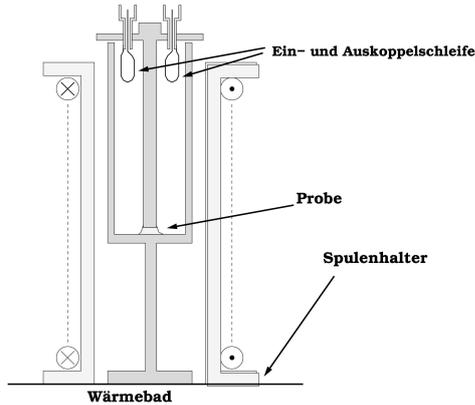


Abb. 3.3: Skizze des verwendeten Mikrowellenresonators.

In Abbildung 3.3 ist der verwendete Mikrowellenresonator skizziert. Es handelt sich um einen sogenannten Topfkreisresonator (englisch *reentrant cavity*). Er besteht aus einer auf beiden Seiten kurzgeschlossenen, zylindrischen, koaxialen Hohlraumleitung, deren Innenleiter kurz vor der unteren Kurzschlussplatte unterbrochen wird. Die Induktivität wird durch die Koaxialleitung gebildet. Ihre Länge ist etwas geringer als $\lambda/4$, wenn λ die zur Resonanzfrequenz korrespondierende Wellenlänge ist. Der Spalt zwischen dem Innenleiter und der Bodenplatte stellt die Kapazität dar. Hier herrscht ein homogenes elektrisches Wechselfeld in der Größenordnung von einigen V/m. Die Glasprobe wird in dem Spalt platziert. Die Änderung ihrer Permittivität ϵ äußert sich in einer Änderung der Resonanzfrequenz:

$$\frac{\delta\omega_R}{\omega_R} = -\frac{f}{2} \frac{\delta\epsilon}{\epsilon}. \quad (3.1)$$

Dabei bezeichnet f den Füllfaktor. Er liegt bei allen in dieser Arbeit gezeigten Messungen in der Nähe von 1. In Abbildung 3.4 ist eine Resonanzkurve des mit Glyzerin befüllten Resonators bei $T = 90$ K zu sehen. Die Resonanzfrequenz lag in der gezeigten Messung bei $f_{\text{res}} = 1203$ MHz. Die Güte $Q \approx f_{\text{res}}/\Delta f_{\text{FWHM}} \approx 171$ des Resonators ist recht klein. Sie liegt bei den Messungen gewöhnlich zwischen 100 und 200. Eine geringe Güte ist nötig, um die Einschwingzeit $\tau = Q/\omega$ des Resonators möglichst klein zu halten, da die Pulse bei Zwei- und Dreipuls-Echos nur wenige 100 ns lang sind. Für die Messungen an BK7 wurde ein baugleicher Resonator verwendet, bei dem allerdings die Spaltbreite etwas geringer gewählt wurde. Hier war mit der gemessenen Probe $f_{\text{res}} \approx 890$ MHz und $Q \approx 110$.

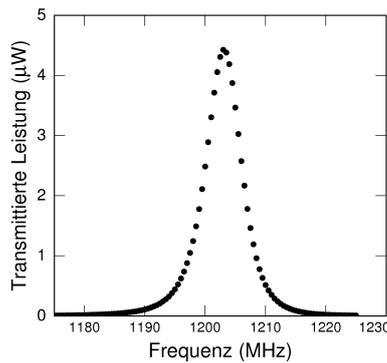


Abb. 3.4: Die Resonanzkurve des mit Glyzerin befüllten Mikrowellenresonators bei $T = 90$ K. Die Resonanzfrequenz liegt bei 1203 MHz, die Güte bei 171.

Die Einkopplung und Detektion der Hochfrequenzsignale erfolgt induktiv über zwei Koppelschleifen. Sie werden in einem Bereich platziert, in dem ein hohes magnetisches Feld herrscht. Die Stärke der Kopplung lässt sich über die von der Schleife eingeschlossene Fläche (projiziert auf die Normalenebene zu den magnetischen Feldlinien) regulieren, also entweder durch eine Verringerung des Schleifendurchmessers oder durch das Verdrehen der Schleife relativ zum Feld. Beide Methoden wurden eingesetzt. Generell wird die Einkopplung schwach gewählt, um das Einkoppeln von Rauschen aus dem Sendezweig zu verringern. Um kein Signal zu verlieren, wird die Auskopplung stark gewählt. Es ist also theoretisch möglich, dass Rauschen aus dem Detektionszweig „rückwärts“ eingekoppelt wird. Auf dieses Problem soll im Abschnitt 4.1.2 weiter eingegangen werden.

Der Resonator besteht aus Kupfer und ist fest mit der Mischkammer verschraubt, um einen guten Wärmekontakt zwischen Mischkammer und Probe herzustellen. Zudem ist er vergoldet. Dadurch wird die Bildung einer schlecht leitenden Oxidschicht auf der Metalloberfläche verhindert. Dies ist notwendig, um übermäßige Dissipation durch die Feldströme zu vermeiden, die zu lokaler Erwärmung führen könnte. Der aus der Abbildung 3.3 ersichtliche lange Fuß des Resonators dient lediglich dazu, die Probe in der Mitte des Magneten zu platzieren, wo das Magnetfeld maximal und homogen ist. Der Fuß schmal, um Dissipation durch Wirbelströme zu minimieren.

Mit dem nun besprochenen Aufbau aus Resonator und Hochfrequenzschaltung können Zwei- und Dreipulsechos sowie Rotationsechos gemessen werden. In Abbildung 3.5 sind die dadurch erhaltenen Spannungssignale am Oszilloskop für eine Dreipuls-Echomessung (links) und eine Rotationsechomessung (rechts) dargestellt. Im Falle des Dreipuls-Echos kann man die drei gleich langen Pulse, das Zweipuls-Echo nach dem zweiten Puls und das Dreipulsecho unmittelbar nach dem dritten Puls unterscheiden. Außerdem zeigen sich noch mehrere Tochterechos, die durch unterschiedliche Kombinationen von Polarisationsignalen hervorgerufen werden. Das maximale Spannungssignal der Pulse liegt in diesem Fall bei etwa 1,8 V und damit au-

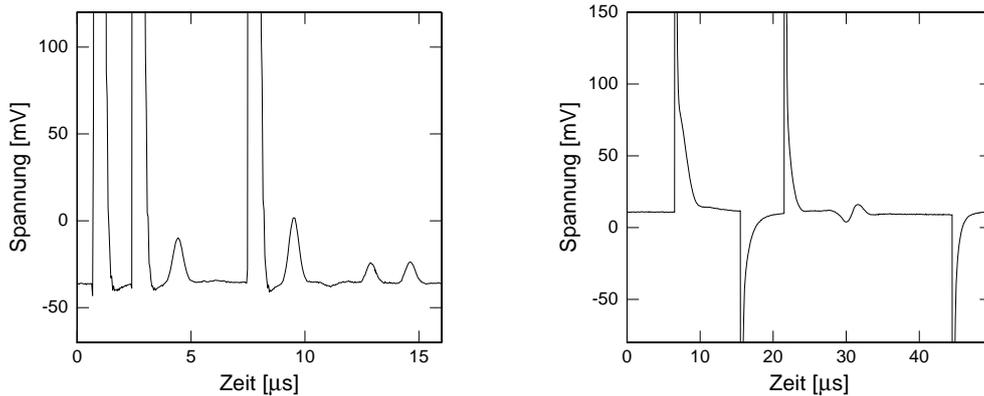


Abb. 3.5: Spannungssignale am Oszilloskop. *Links:* Dreipuls-Echomessung mit Pulsen. Man erkennt das Zweipuls- und Dreipuls-Echo sowie weitere Tochterechos. Die Höhe der Pulse beträgt etwa 1,8 V. Sie wurden daher abgeschnitten. *Rechts:* Rotationsechomessung. Die Pulse sind kompensiert. Die steilen Flanken entstehen, da das Kompensationssignal rechteckiger ist als das detektierte Signal.

ßerhalb des dargestellten Bereichs. Es ist aber klar zu erkennen, dass die Pulse nicht rechteckig sind und bei kurzen Pulsabständen einen nicht-horizontalen Untergrund an der Stelle der Echos hervorrufen, der vor der Analyse der Echoamplitude korrigiert werden muss. Diese Tatsache wird noch deutlicher, wenn die Pulse kompensiert werden, wie es in der Rotationsechomessung (rechts) der Fall ist. Da das Kompensationssignal nahezu rechteckig ist, treten bei der Addition mit dem gerundeten Signal des Resonators scharfe Spitzen zu den Zeiten auf, zu denen das elektrische Feld geschaltet wird. Die Abweichung von der Rechteckform des Detektionssignals liegt einerseits in den endlichen Einschwingzeiten des Resonators begründet, kann aber auch durch Transientensignale, die durch den Schaltvorgang entstehen, verursacht werden. Die bei den Rotationsechomessungen kurzzeitig auftretenden großen Spannungen können die Videoverstärker sättigen und so das Signal stören. Daher wurden keine zu kurzen Zeiten für die Länge des ersten Pulses gewählt. Trotzdem mussten auch bei der Analyse der Rotationsechomessungen die Untergründe sehr sorgfältig korrigiert werden. Darauf wird in Kapitel 4.1.1 eingegangen. Zunächst sollen noch die verwendeten Proben kurz charakterisiert werden.

3.3 Probe: BK7

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Messungen an dem optischen Glas BK7 durchgeführt. BK7 ist der Handelsname eines besonders reinen Borosilikatglases, das hauptsächlich für optische Linsen verwendet wird. Seine exakte Zusammen-

Verbindung	SiO ₂	Na ₂ O	B ₂ O	K ₂ O	BaO	Al ₂ O ₃
Anteil	74,8%	10,2%	9,9%	4,7%	0,76%	0,03%

Tab. 3.1: Zusammensetzung des Borsilikatglases BK7 [Lud03]. Angegeben sind die molaren Anteile in Prozent.

setzung kann Tabelle 3.1 entnommen werden. Darin sind die molaren Anteile der verschiedenen Moleküle in Prozent aufgeführt. BK7 besteht zu etwa drei Vierteln aus Siliziumdioxid (SiO₂) und zu ca. 10% aus Boroxid (B₂O). Neben diesen beiden Hauptbestandteilen enthält es noch Aluminiumoxid, Alkali- und Erdalkalioxide. Die wichtigsten optischen und mechanischen Eigenschaften von BK7 sind in Tabelle 3.2 aufgeführt.

Für die Untersuchung bei tiefen Temperaturen ist BK7 besonders gut geeignet, da es einen sehr geringen thermischen Ausdehnungskoeffizienten hat. Außerdem enthält es praktisch keine Blasen oder Einschlüsse, die die Signalstärke reduzieren könnten. Für die Untersuchung der spektralen Diffusion wurde die Probe vor allem deshalb gewählt, weil viele ihrer Eigenschaften, wie etwa die dielektrische Funktion, aber auch akustische Eigenschaften schon ausführlich gemessen und dokumentiert sind. Darüber hinaus sind die Dipolmomente der Tunnelsysteme in BK7 sehr groß [Ens96], was zu großen Echoamplituden führt. So konnten Zerfallskurven bis zu sehr langen Pulsabständen und relativ hohen Temperaturen gemessen werden. Die verwendete Probe ist ein rundes Scheibchen von 0,4 mm Dicke und 1 cm Durchmesser.

Parameter	Wert	
Thermodynamische Eigenschaften ¹		
Glasübergangstemperatur	T_G	557 C
Dichte	ρ	2,51 g/cm ³
Wärmeausdehnungskoeffizient	α	$\approx 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
Dielektrische Eigenschaften ²		
Permittivität	ϵ	5,6
	Pp^2	$1,28 \cdot 10^{-13} \text{ C}^2 \text{ J}^{-1} \text{ m}^{-1}$
Elastische Eigenschaften ³		
elastische Kopplungskonstanten	γ_l	0.87 eV
	γ_t	0.64 eV
Schallgeschwindigkeit	v_l	6000 ms ⁻¹
	v_t	3800 ms ⁻¹

Tab. 3.2: Zusammenstellung der wichtigsten Eigenschaften von BK7. Quellen: ¹[Sch96], ²[Woh01], ³[Hun76].

4. Daten und Diskussion

Im Verlauf dieser Arbeit konnten Zerfälle der Echoamplitude von Zweipuls- und Dreipuls-Polarisationsechos sowie von Pausenrotationsechos bis hin zu bislang unerreichten Pulsabständen gemessen werden. Die Echoamplitude konnte in den Zerfallsmessungen noch bei Amplituden aufgelöst werden, die bis zu fünf Größenordnungen kleiner als die Ausgangsamplitude waren. Im Folgenden werden die Ergebnisse von Messungen an dem Borsilikatglas BK7 mit drei unterschiedlichen Pulssequenzen diskutiert. Zunächst wird auf die Verfahren bei der Datenauswertung und die Genauigkeit der Messungen eingegangen.

4.1 Datenauswertung

Wir werden in diesem Abschnitt hauptsächlich die Dreipuls- und Pausenrotationsechos behandeln. Für Details über die Auswertung der Zweipulsechos wird auf [Fas10] verwiesen. Die Verfahren der Dreipuls-Echomessungen sind aber auf den Fall der Zweipulsechos übertragbar.

4.1.1 Auswertung der Echoamplitude

Als Echoamplitude muss eine Größe definiert werden, die einerseits proportional zu den in Kapitel 2 berechneten Polarisationsamplituden ist und sich andererseits möglichst unempfindlich auf Rauschen des detektierten Signals zeigt. Die zweite Voraussetzung ist durch die Heranziehung des Maximalwerts der gemessenen Polarisation allein nicht gegeben. Stattdessen wird für die durch kurze Pulse erzeugten Zwei- und Dreipuls-Echos die sogenannte integrierte Echoamplitude und für Rotationsechos die Amplitude der Fouriertransformierten ermittelt.

Gepulste Echos

In Abbildung 4.1 ist eine Serie von Dreipuls-Echos mit unterschiedlichen τ_{23} und gleichem τ_{12} gezeigt. Die integrierte Echoamplitude wird bestimmt, indem die vom Oszilloskop gemessenen Spannungswerte im Bereich des Echos, d.h. in dem mit (1) bezeichneten Zeitintervall, aufsummiert und mit der Digitalisierungszeit, d.h. der Zeitspanne zwischen zwei vom Oszilloskop angezeigten Punkten, multipliziert werden. Dadurch wird eine zusätzliche Mittelung über das dem Echosignal überlagerten

Rauschen durchgeführt. Um ein verlässliches Ergebnis zu erhalten muss sichergestellt sein, dass der Untergrund im ganzen betrachteten Zeitintervall konstant den Wert Null besitzt. Dies lässt sich oft durch eine einfache Offsetkorrektur bewerkstelligen. Der Offset wird aus dem Mittel über die Spannungswerte außerhalb des Bereichs des Echos, d.h. im Bereich (2), berechnet. Eine aufwändigere Untergrundkorrektur ist dann notwendig, wenn das Echo so kurz nach dem letzten Puls auftritt, dass die Auswirkungen des Pulses, d.h. das Ausschwingen des Resonators, durch Free Induction Decay verursachte Polarisationsignale oder Schalttransienten, noch nicht abgeklungen sind (siehe auch Abbildung 3.5, Kapitel 3.2). Dies ist der Fall für $\tau_{12} < 15 \mu\text{s}$.

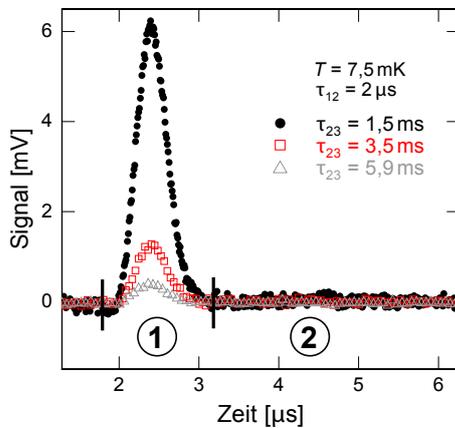
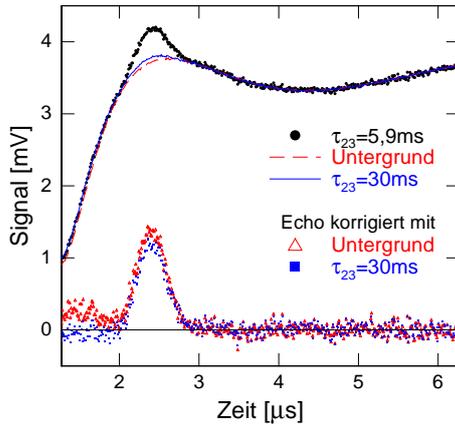


Abb. 4.1:

Dreipulsechos mit $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$ und verschiedenen τ_{23} bei $T = 7,5 \text{ mK}$. Die Zahl der Mittelungen stieg dabei von 2000 bei $\tau_{23} = 1,5 \text{ ms}$ auf 20000 bei $\tau_{23} = 5,9 \text{ ms}$. Im mit (1) bezeichneten Bereich wird das Echo integriert. Im mit (2) bezeichneten Abschnitt werden der Offset und das elektronische Rauschen bestimmt.

In Zweipuls-Echomessungen wird für alle Echos mit $\tau_{12} < 20 \mu\text{s}$ ein separater Untergrund gemessen. Das Echo tritt in der Zeitspanne $[\tau_{12} - 0,5 \mu\text{s}, \tau_{12} + 0,5 \mu\text{s}]$ nach dem zweiten Puls auf. Um den Untergrund zu ermitteln, wird der Pulsabstand erhöht, um das Echosignal zu langen Zeiten hin zu verschieben, und das Messsignal im selben Zeitintervall nach dem zweiten Puls aufgezeichnet, in dem bei kurzem Pulsabstand das Echo auftreten würde. Für größere Pulsabstände wird kein Untergrund abgezogen, da der Untergrund hinreichend konstant ist und das Abziehen eines gemessenen und damit natürlich ebenfalls verrauschten Untergrunds das Gesamttrauschen nur vergrößern würde.

Bei Dreipuls-Polarisationsecho-Messungen mit festem τ_{12} bleibt der Abstand zwischen dem dritten Puls und dem Echo konstant, so dass es genügen sollte, nur einen Untergrund für alle Echos einer Zerfallsmessung zu messen. Es zeigte sich jedoch in den Experimenten, dass sich das Messsignal zur Zeit des Echos nicht aus einer einfachen Summe aus einem Echo und einem Untergrund, sondern vom dritten Puls abhängt, zusammensetzt. In Abbildung 4.2 ist dies für ein Echo mit $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$ gezeigt. Auf der Abszisse ist die seit Beginn des dritten Pulses verstrichene Zeit und auf der Ordinate das Spannungssignal am Oszilloskop aufgetragen. Die schwarzen Punk-

**Abb. 4.2:**

Dreipuls-Echomessung mit $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$ bei $T = 7,5 \text{ mK}$. Gezeigt werden ein Echo bei $\tau_{23} = 5,9 \text{ ms}$, ein Untergrund mit $\tau_{12} = 102 \mu\text{s}$ und ein als Untergrund verwendetes Echo mit $\tau_{23} = 30 \text{ ms}$ und $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$. Beide Untergründe wurden vom Echo abgezogen und ebenfalls aufgetragen. Diese Daten wurden zur besseren Erkennbarkeit jeweils mit einem Faktor 3 multipliziert.

te zeigen das unkorrigierte Messsignal, also das Echo auf dem Untergrund. Eine Untergrundmessung, bei der der Pulsabstand τ_{12} auf $100 \mu\text{s}$ erhöht wurde, ist durch die rote gestrichelte Linie gezeigt. Die Abweichung bei kurzen Zeiten wird deutlich, wenn man den Untergrund vom Messsignal mit Echo abzieht (dargestellt durch rote Dreiecke). Um dennoch einen verlässlichen Untergrund bestimmen zu können, wurde eine Echomessung mit einem extrem großen Pulsabstand τ_{23} durchgeführt, bei dem kein Echo mehr messbar ist. Der verwendete Pulsabstand betrug bei tiefsten Temperaturen 30 ms . Ein solcher Untergrund ist in Abbildung 4.2 als durchgezogene blaue Linie eingezeichnet. Seine Form stimmt mit dem Untergrund in der Echomessung gut überein. Das so korrigierte Echo, mit blauen Quadraten dargestellt, weist einen flachen verbleibenden Untergrund auf. Augenscheinlich ist die Form des FID nach dem dritten Puls abhängig vom Pulsabstand zwischen den ersten beiden Pulsen.

Rotationsechos

Im Fall der Pausenrotationsechos wird das Maximum der Fouriertransformierten des Echosignals als Echoamplitude definiert. Bevor die Fouriertransformation durchgeführt wird, muss auch hier ein Untergrund abgezogen werden. Wie in den vorangegangenen Kapiteln erläutert, erscheint das Rotationsecho, während das elektrische Hochfrequenzfeld angeschaltet ist, und wird darum mit einer Kompensationsschaltung, wie in Kapitel 3.2.1 erklärt, gemessen. Da das elektrische Feld in Resonator und Glas den Schaltvorgängen nicht instantan folgt, entstehen kurzzeitig nicht-kompensierte Messsignale zu Beginn und am Ende der Pulse. Die Form dieser Signale variiert mit der Längen des ersten Pulses und der Pause. Ihre Auswirkungen sind über mehrere Mikrosekunden nach dem Schalten des Felds messbar. Um diese Untergründe zu korrigieren, wurde zu jedem Pausenrotationsecho eine Hintergrundmessung durchgeführt. Dazu wurde die Länge des ersten Pulses t_1 so erhöht, dass das Echo

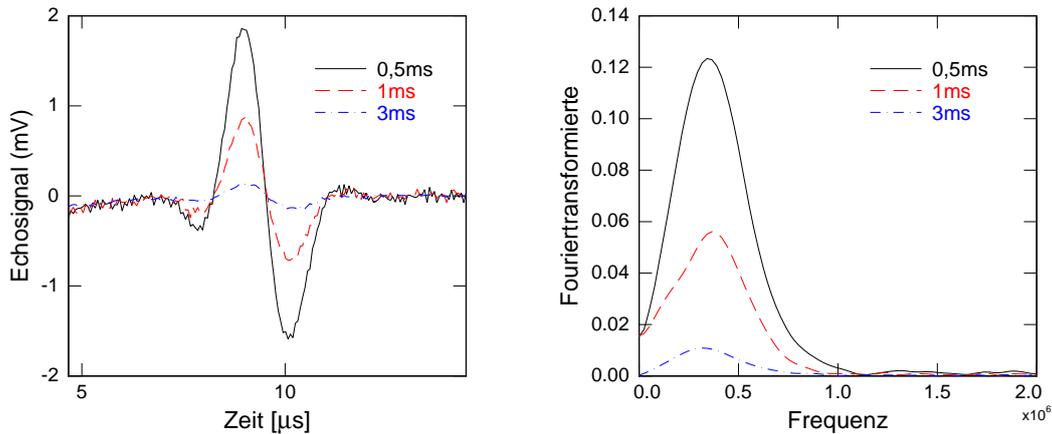


Abb. 4.3: Rotationsechos bei drei verschiedenen Pausenlängen (links) und das daraus ermittelte Fourierspektrum (rechts).

gerade nicht mehr im aufgenommenen Zeitfenster zu sehen war und das Messsignal in demjenigen Zeitfenster digitalisiert, in dem in der zugehörigen Echomessung das Echo auftreten würde. Auch nach dieser Korrektur ist der Untergrund im allgemeinen noch nicht horizontal. Deswegen wurde durch Abziehen eines Polynoms ersten oder zweiten Grades, das an die Bereiche außerhalb des Echosignals angepasst wurde, noch eine weitere Korrektur vorgenommen. Dabei wurde darauf geachtet, dass das Echo nicht zu asymmetrisch wurde.

Nach Abschluss aller Korrekturen wurde eine Fast-Fourier-Transformation der Datenpunkte vorgenommen. In Abbildung 4.3 sind links Rotationsechos bei drei verschiedenen Pausenlängen und rechts die daraus ermittelten Fourierspektren gezeigt.

4.1.2 Rauschen und Störeinflüsse

Statistisches Rauschen

Beiträge zum statistischen Rauschen einer Hochfrequenzschaltung kommen von allen elektronischen Komponenten. Idealerweise wird es im hier betrachteten Aufbau von der Rauschleistung des gekühlten HEMT-Verstärkers bestimmt. Zu Beginn jedes Messlaufs wurden Stabilitätsmessungen durchgeführt. Daraus kann die Schwankungsbreite der Echoamplitude unter gleichbleibenden experimentellen Bedingungen ermittelt werden. In Abbildung 4.4 ist das Ergebnis einer Stabilitätsmessung gezeigt. Die für jeden Messpunkt über 1000 Einzelechos gemittelte und integrierte Dreipuls-Echoamplitude ist als Funktion der Messzeit dargestellt. Die gemessenen Echoamplituden streuen um einen Mittelwert von $3,56 \cdot 10^{-10}$ Vs mit einer Standardabweichung

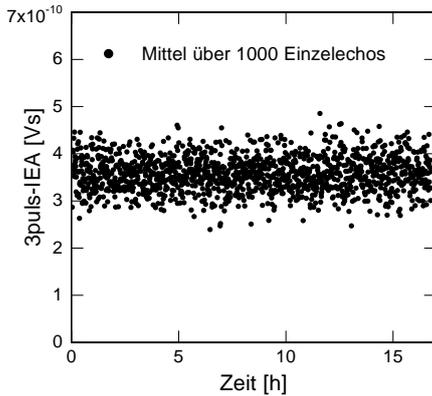


Abb. 4.4: Aus 1000 Einzelechos gemittelten Dreipuls-Echoamplitude bei gleichbleibenden experimentellen Bedingungen in Abhängigkeit der Zeit nach Beginn der Messung. Die Pulsabstände betragen $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ und $\tau_{13} = 135 \mu\text{s}$, die Temperatur war $T = 10 \text{ mK}$.

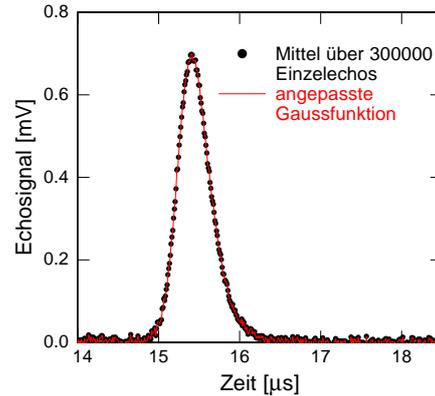


Abb. 4.5: Gemitteltes Echo, das aus 300000 Einzelechos entstanden ist. Die zugrunde liegenden Daten sind identisch mit den in Abbildung 4.4 gezeigten Echoamplituden. Die Form des Echos kann durch eine Gaußkurve angepasst werden.

von $0,37 \cdot 10^{-10} \text{ Vs}$, d.h. mit einem relativen Fehler von etwa 10%. Die Größe des elektronischen Rauschens in einer Echomessung kann man aus der Standardabweichung der Spannungswerte im in Abbildung 4.1 spezifizierten Offsetbereich (2) bzw. bei Rotationsechos aus den flachen Bereichen außerhalb des Echos bestimmen. Aus dem Bereich (2) von aus $N = 1000$ Einzelechos gemittelten Echosignalen konnte die 1σ -Breite des elektronischen Rauschens zu 10^{-4} V bestimmt werden. Dieser und alle im Folgenden angegebenen Spannungs- und Rauschspannungswerte wurden bei einem Eingangswiderstand von 50Ω gemessen oder darauf umgerechnet.

Um zu überprüfen, dass die Ursache für das so festgestellte Spannungsrauschen tatsächlich statistischer Natur ist, kann man unterschiedliche Zahlen von Messsignalen mitteln und die aus diesen Signalen entnommene Standardabweichung σ des Spannungsrauschens gegen die Zahl der Mittelungen auftragen. Dies ist in Abbildung 4.6 für eine Stabilitätsmessung mit Dreipuls-Echos (links) und für Stabilitätsmessungen mit Rotationsechos (rechts) gezeigt. Wenn keine phasenstabilen Beiträge zum Rauschen vorhanden sind, sinkt die Standardabweichung proportional zur Wurzel der Mittelungszahl N . In der in der rechten Abbildung mit Dreiecken dargestellten Messung trat ein starkes, mit den Pulsen phasenstarrs Störsignal auf, das bei $N > 1000$ das Rauschen dominierte und die Messung kleiner Echos unmöglich machte. Verursacht wurde das Störsignal durch von den TTL-Spannungssignalen der Pulsgeneratoren, die im Netzwerk der Koaxialleitung und in den GPIB-Verbindungen zu anderen Geräten und dem PC mehrfach reflektiert wurden und stehende Wellen

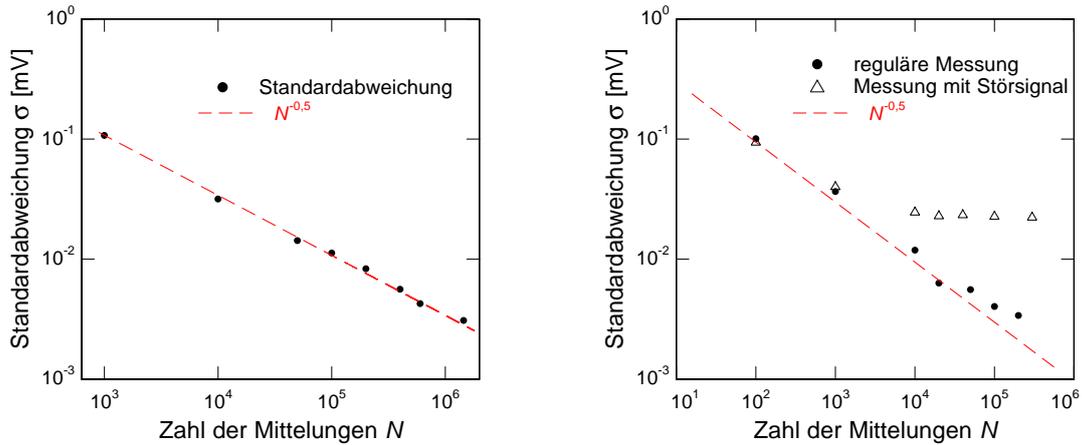


Abb. 4.6: Standardabweichung der Daten im Bereich (2) in einer Dreipulsechomessung (links) und zwei Rotationsechomessungen (rechts) in Abhängigkeit von der Zahl der Mittelungen. Zum Vergleich ist der theoretische Verlauf $\sigma \propto N^{-0,5}$ mit aufgetragen.

verursachten. Der Aufbau wurde daraufhin durch die Wahl kleinerer Signalpegel und die Optimierung der Kabellängen, insbesondere sehr langer GPIB-Kabel am Pulsgenerator, so verbessert, dass das Signal das statistische Rauschen nicht mehr überlagerte und $\sigma \propto 1/\sqrt{N}$ wieder bis zu den maximalen Mittelungszahlen nahezu erfüllt war. Ist dies der Fall, kann man aus dem oben angegebenen Wert von σ für 1000 gemittelte Echos die Breite des Spannungsrauschens für ein Einzelecho berechnen, $10^{-4} \cdot \sqrt{1000} \text{ V} \approx 3 \text{ mV}$.

Nun soll dieser Wert mit dem aus dem breitbandigen elektronischen Rauschen des Hochfrequenzaufbaus erwarteten Spannungsrauschens verglichen werden. Mit Hilfe eines Spektrumanalysators wurde das weiße Spannungsrauschen am Ausgang der Verstärkerkette bestimmt. Dafür wurde das Ausgangssignal des Videoverstärkers an den Eingang des Spektrumanalysators angeschlossen. Alle Komponenten waren angeschaltet, lediglich das Ausgangssignal des Signalgenerators wurde auf Null gesetzt. Es ergab sich $S_U = 0,5 \cdot 10^{-6} \frac{\text{V}_{\text{rms}}}{\sqrt{\text{Hz}}}$. Da der Tiefpass im Eingang des Oszilloskops eine Bandbreite von 30 MHz hat folgt aus diesem Wert auch direkt die oben angegebene Standardabweichung des Rauschens von 3 mV. Bei einem Widerstand von 50Ω entspricht das gemessene Spannungsrauschen einer Rauschleistung von $S_P = -113 \text{ dBm Hz}^{-1}$. Mit einer Gesamtverstärkung von etwa 71,5 dB (ca 15 dB durch den kalten HEMT-Verstärker, 36,5 dB durch den Raumtemperatur-HEMT-Verstärker und 20 dB durch den Videoverstärker) entspricht dies einer Rauschleistung von $S_P = -184,5 \text{ dBm Hz}^{-1}$ bezogen auf den Eingang des kalten HEMT-Verstärkers. Dies wiederum stimmt überein mit einer Rauschtemperatur des kalten HEMT-Verstärkers von 7 K. Das Rauschen des ersten Verstärkers wird folglich durch die

nachfolgenden elektronischen Bauteile nicht degeneriert.

Um den Einfluss des weißen Rauschens auf die Echoamplitude zu ermitteln, kann man sich vorstellen, dass jedes Echosignal $S_j(t)$ durch eine rauschfreie Musterfunktion M beschrieben wird, der ein breitbandiges Rauschsignal $n_j(t)$ überlagert ist:

$$S_j(t) = A_j M(t) + n_j(t) . \quad (4.1)$$

Dabei ist A_j die Amplitude des Signals, also die Messgröße. Möchte man nun eine Fitfunktion $F_j(t)$ konstruieren, mit deren Hilfe die Amplitude ermittelt werden soll, nutzt man dieselbe Musterfunktion und eine Fitamplitude A_{Fj}

$$F_j(t) = A_{Fj} M(t) + o_j \quad (4.2)$$

mit einem zusätzlichen Offset o_j . Diesen werden wir im folgenden ignorieren, weil für die Auswertung der Echoamplitude nur die Amplitude von Belang ist. Um nun diejenige Fitfunktion $F_j(t)$ mit den optimalen Werten für A_{Fj} und o_j zu ermitteln, die die beste Übereinstimmung mit dem gemessenen Signal $S_j(t)$ liefert, muss die Summe der Abweichungsquadrate $\chi^2 = \sum_{i=1}^n (S_{ji} - F_{ji})^2$ minimiert werden, wobei n die Zahl der Messpunkte entlang des Signals angibt. Aus dieser Bedingung folgt für die Amplitude

$$A_{Fj} = \frac{\langle S_{ji} M_i \rangle - \langle S_{ji} \rangle \langle M_i \rangle}{\langle M_i^2 \rangle - \langle M_i \rangle^2} \quad (4.3)$$

Unter Anwesenheit eines weißen Rauschens kann der Fehler, der der Amplitude A_{Fj} anhaftet, folgendermaßen berechnet werden [Fle03]

$$(\Delta A_{Fj})^2 = \frac{S_U}{\int_0^\infty \tilde{F}^2(f) df} . \quad (4.4)$$

Hier bezeichnet $\tilde{F}(f)$ den Realteil der Fouriertransformierten der Funktion $F_j(t)$. Um mit dieser Formel die statistische Schwankung der Echoamplitude ermitteln zu können, muss zunächst die Musterfunktion des Echosignals gefunden werden. In Abbildung 4.5 ist ein typisches Echo dargestellt, das aus 300 Echos der im vorangehenden Abschnitt diskutierten und in Abbildung 4.4 gezeigten Stabilitätsmessung gemittelt wurde. Wie man sieht, kann es gut durch eine Gaussfunktion mit Amplitude U_0 und Breite b angepasst werden, deren Maximum zum Zeitpunkt t_c auftritt:

$$\begin{aligned} U(t - t_c) &= U_0 F(t) = U_0 e^{-(t-t_c)^2/(2b^2)} \\ \tilde{F}(f) &= 2\sqrt{2\pi} b e^{-\frac{1}{2}(2\pi b)^2 f^2} \end{aligned} \quad (4.5)$$

Das in Abbildung 4.5 gezeigte Echo konnte mit $t_c = 15,44 \mu\text{s}$, $U_0 = 0,68 \text{ mV}$ und $b = 0,204 \mu\text{s}$ angepasst werden. Unter Zuhilfenahme von Gleichung (4.4) ergibt sich der Fehler zu

$$(\Delta U_0)^2 = \frac{(10^{-6} \text{ V})^2 / \text{Hz}}{\int_0^\infty 8\pi b^2 e^{-(2\pi b)^2 f^2} df} = (1,18 \text{ mV})^2 . \quad (4.6)$$

Dieser Wert gibt den absoluten Fehler für die Amplitude eines einzelnen Echos an. Er ist etwa einen Faktor 3 kleiner als der aus dem Bereich (2) von gemessenen Echos bestimmten Wert der Standardabweichung der einzelnen Spannungsmesswerte von 3 mV. Dies ist ein Zeichen dafür, dass die Bandbreite des Signals am Eingang des Oszilloskops stark reduziert und nur noch etwa 10 Mal größer ist als die Bandbreite der im Echo enthaltenen Frequenzen.

Vergleicht man nun den gefundenen Wert für ΔU_0 mit der Amplitude U_0 des Echos aus Abbildung 4.5, so übertrifft die Unsicherheit ΔU_0 den Absolutwert der Amplitude um etwa das Doppelte. Um die Amplitude dieses Echos mit der notwendigen Genauigkeit zu messen, müssen also viele Echos gemittelt werden. Bei 1000 Mittlungen reduziert sich ΔU_0 um einen Faktor $\sqrt{1000}$ auf 0,037 mV. Daraus folgt ein relativer Fehler von $\Delta U_0 / U_0 = 5,4\%$.

Um ein gutes Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu gewährleisten wurde zu größeren Temperaturen und Pulsabständen hin die Zahl der Mittelungen erhöht. Dabei wurde darauf geachtet, dass das Verhältnis $\Delta U_0 / U_0$ nie größer wurde als 20%. Die Zahl der gemittelten Echos variierte im Verlauf einer Messung von 100 bis hin zu mehreren Millionen. Je nach verwendeter Wiederholrate der Echosequenz führte dies zu Messzeiten von bis zu 7 h pro Messpunkt. Die Gesamtdauer einer Zerfallsmessung konnte im Extremfall bis zu 48 h betragen.

Systematische Fehler

In den hier diskutierten Messungen können insbesondere zwei Gruppen von systematischen Fehlern auftreten: Entweder bewirkt ein Fehler eine nicht-statistische Streuung der gemessenen Echoamplituden oder er wirkt auf die Relaxationsmechanismen und verändert damit die Form der gemessenen Zerfallskurve. Da insbesondere Zwei- und Dreipulsechos zu bisher noch unerreichten Pulsabständen gemessen wurden, kann über zweiteres nur spekuliert werden. Zunächst wollen wir aber diskutieren, welche nicht statistischen Prozesse auftreten können.

In über mehrere Stunden durchgeführten Stabilitätsmessungen konnte beobachtet werden, dass die Echoamplitude langsamen Schwankungen unterliegt. Es treten hierbei Änderungen der integrierten Echoamplitude um bis zu 7% in 10 h in beide

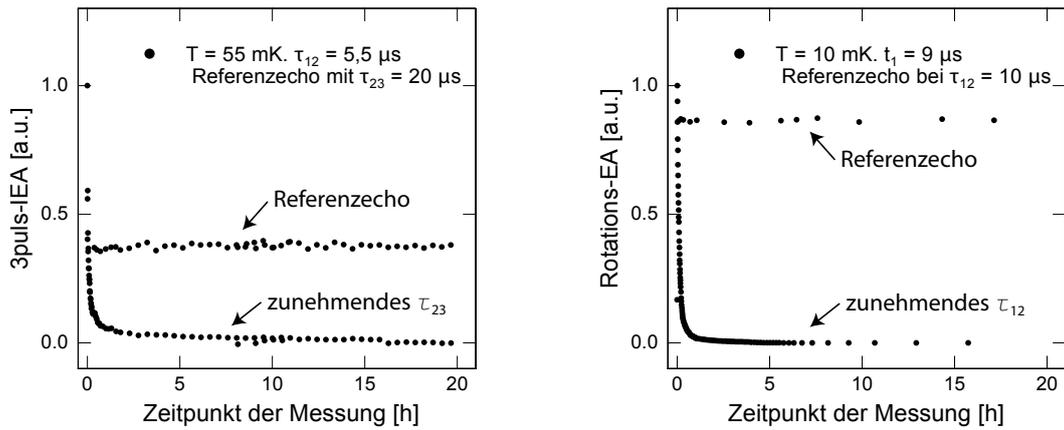


Abb. 4.7: Gemessene Dreipuls-Echo- (links) und Pausenrotationsecho-Amplituden (rechts) in Abhängigkeit vom Zeitpunkt der Messung. Man sieht, dass die Amplituden der Referenzechos über die Zeit nur wenig variieren.

Richtungen auf. Die Ursachen für diese Drift sind nicht endgültig geklärt. Sie können beispielsweise von einer langsamen Temperaturänderung im Glas, von veränderten Dämpfungswerten der Kabel bei sinkendem Helium-Füllstand oder einer Instabilität der Raumtemperaturelektronik herrühren. Um solche Drifts ausschließen zu können, wurde während langer Zerfallsmessungen in regelmäßigen Abständen ein sogenanntes Referenzecho aufgenommen. Es handelte sich dabei um ein relativ großes, bei kurzen Pulsabständen gemessenes Echo, das mit wenigen Mittelungen gemessen werden kann. In Abbildung 4.7 sind die Amplituden der regulär mit zunehmendem Pulsabstand gemessenen Echos und der Referenzechos einer Dreipuls-Echomessung (links) und einer Rotationsechomessung (rechts) in Abhängigkeit vom Zeitpunkt der Messung dargestellt. Die Variation der Referenzechoamplituden ist in beiden Fällen klein. Desweiteren wurde in manchen Messungen beobachtet, dass es auch zur Reduktion der Amplitude von einzelnen oder wenigen Echos kommen kann. Die Ursache dafür könnten kurzzeitige Temperaturschwankungen sein, wie die Energiedeposition eines Myons in der Probe, die durch den Mischkammerheizer nicht direkt ausgeglichen werden können. In einer Zerfallsmessung äußert sich ein solcher Fehler durch eine instantane Reduktion der Echoamplitude und eine Erholung über die Dauer von wenigen Messpunkten. Insbesondere bei Messungen in der Nähe der Basistemperatur und bei Zweipuls-Echomessungen, die eine steilere Temperaturabhängigkeit aufweisen als Dreipuls- und Rotationsechos, konnten solche Störungen beobachtet werden. Ein weiterer Grund für eine Reduktion der Echoamplitude sind mechanische Oszillationen. In [Fic07] wurde hergeleitet, dass bei der Messung eines Zweipuls-Echos mit $\tau_{12} = 5 \mu\text{s}$ bereits absolute Verzerrungen der Probe um 10^{-3} \AA genügen, um die Echoamplitude merklich zu reduzieren. Mechanische Oszillationen können über den

Resonatorstempel auf das Glas übertragen werden und beispielsweise von den Pumpen des Heliumkreislaufs, von den Vibrationen des 1K-Topfs im geöffneten Zustand oder von durch Körperschall übertragenen Geräuschen in der Umgebung des Labors verursacht werden. Wird das Glas durch die Vibrationen nicht aufgewärmt, äußert sich eine Störung durch Vibrationen als plötzliche Reduktion der Echoamplitude und sprunghafte Erholung auf den ursprünglichen Wert. Um solche Effekte zu vermeiden, wird der 1K-Topf nach Möglichkeit in einem Modus betrieben, in dem er nur je nach Messlauf alle 3 bis 12 Stunden für etwa 30 Minuten geöffnet und sonst geschlossen ist. Die Aufnahme von Echoamplituden wurde in der Zeit der Öffnung pausiert. Es gab aber auch einen Messlauf, in dem der 1K-Topf kontinuierlich betrieben werden musste. In einem späteren Vergleich der Zerfallskurven aus diesem Messlauf mit später aufgenommenen Kurven konnten keine Unterschiede in den Zerfallscharakteristika ausgemacht werden.

Für eine systematische Änderung der Relaxationszeiten gibt es mehrere denkbare Szenarien. Sie sollen nun stichpunktartig aufgeführt werden. Die dazugehörigen Daten werden teilweise im nächsten Unterabschnitt gezeigt.

- Die gemessenen Relaxationszeiten könnten kürzer als erwartet sein, wenn durch die Einkopplung des elektrischen Felds während der Pulse die Temperatur des Glases über die der Mischkammer angehoben wird. Diese Möglichkeit besteht insbesondere bei tiefen Temperaturen. Um eine Entkopplung des Glases von der Mischkammer zu vermeiden wurde die Wiederholrate der Pulssequenz so eingestellt, dass auch eine Erhöhung der Wiederholrate noch keinen Effekt auf die Form der Zerfallskurve hatte. Die verwendeten Wiederholraten betragen bei 7,5 mK bei Dreipuls-Echomessungen 15 Hz und bei Rotationsechomessungen bei 10 mK etwa 10 Hz.
- Ist die Leistung des elektrischen Wechselfelds zu hoch, könnte dies möglicherweise zu einem sogenannten Phonon-Bottleneck führen. Darunter versteht man, dass durch das Einstrahlen des elektrischen Felds die Zahl der Phononen mit einer Frequenz gleich der des elektrischen Felds überhöht ist. Dies ist insbesondere für Rotationsechos denkbar, da hier die elektrischen Felder über relativ lange Zeiten gesendet werden. Daher wurde bei einer Temperatur von 10 mK eine Rotationsechomessung mit einer um 6 dB reduzierten Leistung bei sonst gleichen Einstellungen durchgeführt. Es konnte kein Unterschied im qualitativen Verlauf des Echozerfalls zu anderen Messungen bei 10 mK festgestellt werden. Die gemessene effektive Rabi-Frequenz reduzierte sich jedoch erwartungsgemäß um einen Faktor ≈ 2 .
- Es ist denkbar, dass in den Resonator elastische oder elektromagnetische Felder eingekoppelt werden, die einen zusätzlichen Beitrag zur Dekohärenz der Tun-

nelsysteme leisten, oder zusätzliche T_1 -Prozesse induzieren und so das Echo schneller zerfallen lassen. Auf der Signalseite wird versucht, durch eine schwache Kopplung in den Resonator und ein 20 dB-Dämpfungsglied auf Höhe der Cold-Plate bei etwa 50 mK die Einkopplung zusätzlicher Rauschbeiträge gering zu halten. Auf der Detektionsseite wird jedoch stark an den Resonator gekoppelt und es ist kein weiteres Dämpfungsglied vorhanden. Es ist also denkbar, dass thermisches Rauschen vom Tieftemperaturverstärker zurück in den Resonator gekoppelt wird. Um diese Situation zu imitieren wurde in einer Messung das Rauschen eines 50 Ω -Widerstands bei Raumtemperatur mit zwei Hochfrequenzverstärkern verstärkt und ungepulst zu dem regulären gepulsten Anregungssignal addiert. Das auf dem Oszilloskopschirm beobachtete Rauschen nahm dadurch deutlich zu. Es konnte jedoch bis zu den längsten hier betrachteten Pulsabständen kein Unterschied in den gemessenen Zerfallskurven festgestellt werden.

- Die Magnetfeldabhängigkeit der Echoamplitude konnte auch für BK7 nachgewiesen werden [Lud03]. Man kann allerdings aufgrund der großen Zahl an in BK7 enthaltenen Elementen bzw. Isotopen und der damit einhergehenden Vielzahl an Modulationsfrequenzen keine Quantenschwebung des Zerfalls über mehrere Perioden hinweg beobachten. Es ist aber davon auszugehen, dass die Echoamplitude für kurze Pulsabstände, wo asymmetrische Tunnelsysteme noch beitragen, insgesamt reduziert ist. Da außerdem die Modulation für asymmetrische Tunnelsysteme besonders groß ist kann man vermuten, dass im Nullfeld die Verteilung der am Zerfall beteiligten Tunnelsysteme nicht der vom Standardtunnelmodell vorgegebenen entspricht. Dies hätte einen Einfluss auf die Form der Zerfallskurve insbesondere bei kurzen Zeiten. Daher wurden Zwei- und Dreipuls-Echomessungen an BK7 im Nullfeld und bei einem Magnetfeld von 200 mT durchgeführt. Überraschenderweise stimmten die gemessenen Zerfallskurven jedoch für Zweipuls-Echos bei kurzen Zeiten im Rahmen der Messgenauigkeit überein. Bei Dreipulsechos wurden leichte Abweichungen beobachtet, wie wir im nächsten Abschnitt zeigen.

4.1.3 Reproduzierbarkeit der Messung

In Abbildung 4.8 werden die gemessenen Zerfallskurven $A(\tau_{13})$ von Dreipuls-Polarisationsechos mit einem Pulsabstand von $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ bei einer Temperatur von 15 mK miteinander verglichen. Sie wurden in drei unterschiedlichen Messzyklen zwischen Dezember 2011 und Juni 2012 aufgenommen. Zwischen März und Juni wurde der Resonator im Kryostat umgesetzt und anschließend neue Leitungen und ein anderes 20 dB-Dämpfungsglied verwendet. Die Absolutwerte der Echoamplituden bei

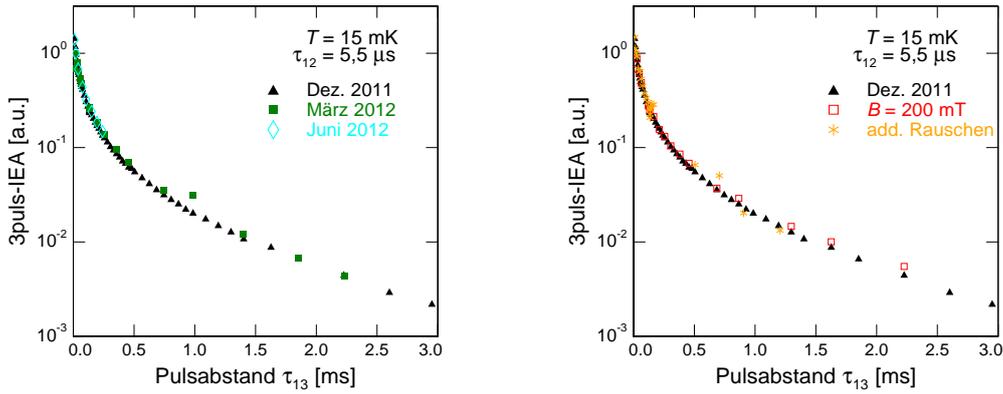


Abb. 4.8: Vergleich des Zerfalls von Dreipuls-Polarisationsechos mit $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ bei $T = 15 \text{ mK}$ aus drei unterschiedlichen Messzyklen zwischen Dezember 2011 und Juni 2012 (links). Rechts wird der Zerfall in einem Magnetfeld mit $B = 200 \text{ mT}$ und im Falle von zusätzlich eingekoppeltem Rauschen (siehe auch vorheriger Abschnitt) mit dem Zerfall unter Normalbedingungen verglichen. Alle Datensätze wurden auf ein Echo bei $\tau_{13} = 21,5 \mu\text{s}$ skaliert.

gleichem τ_{13} unterscheiden sich zum Teil deutlich. Deshalb wurden alle Amplituden mit konstanten Faktoren aufeinander skaliert. Trotz der unterschiedlichen Bedingungen in den verschiedenen Messzyklen erkennt man keine Unterschiede im qualitativen Verlauf der Zerfallskurven. Außerdem zeigt Abbildung 4.8 eine Zerfallskurve $A(\tau_{13})$, die unter sonst gleichen Bedingungen, aber in einem Magnetfeld von 200 mT aufgenommen wurde. Sie stimmt bei kurzen Zeiten gut mit den übrigen Kurven überein, liegt aber bei Pulsabständen τ_{13} länger als 0,5 ms etwas über den Nullfeld-Daten. Die mit Sternen dargestellten Messpunkte stammen aus der oben beschriebenen Messung, bei der das verstärkte Rauschen eines Widerstands bei Raumtemperatur zu der Anregungssequenz addiert wurde. Die Daten streuen relativ stark, decken sich aber ansonsten im Rahmen der Messgenauigkeit mit den regulär aufgenommenen. Auf diese Messung wird bei der Beschreibung der Dreipuls-Echomessungen in Abschnitt 4.3 noch einmal Bezug genommen.

Insgesamt kann man sagen, dass bei kurzen Zeiten eine hervorragende Übereinstimmung dieser unter verschiedensten Bedingungen durchgeführten Messungen vorliegt. Bei größeren Zeiten streuen die Datenpunkte stärker, was darauf zurückzuführen ist, dass das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis abnimmt.

4.2 Zweipuls-Echomessungen

Die in dieser Arbeit gezeigten Zerfälle der Zweipuls-Polarisationsechoamplitude von BK7 in Abhängigkeit des Pulsabstands τ_{12} wurden in Zusammenarbeit mit Paul Faßl und Martin Schwarze im Rahmen ihrer Bachelorarbeiten gemessen [Fas10], [Sch10]. In Abbildung 4.9 sind sie für alle gemessenen Temperaturen auf zwei Zeitskalen aufgetragen. Bemerkenswert sind zunächst die erreichten maximalen Pulsabstände, bei denen noch ein kohärentes Echo aufgelöst werden konnte. Bei der tiefsten Temperatur von $T = 7,5$ mK erstreckte sich die Messung zu Pulsabständen τ_{12} von über 1 ms, Zeiten, die bereits vergleichbar mit der Energierelaxationszeit T_1 sind. Es ist damit möglich, zwei Regimes der spektralen Diffusion und die T_1 -Relaxation zu beobachten. Die Echoamplitude verringert sich über den Verlauf einer Messung um bis zu fünf Größenordnungen.

Nun sollen die gemessenen Zerfallskurven selbst diskutiert werden. Wir erwarten, dass die Zweipuls-Polarisationsechoamplitude für $\tau_{12} < T_1$ einen nahezu reinen T_2 -Zerfall nach dem in Kapitel 2.4.1 hergeleiteten Konzept der spektralen Diffusion aufweist. Wie auf dem linken Diagramm von 4.9 zu erkennen, nimmt die Echoamplitude zunächst schnell mit dem Pulsabstand ab. Die Rate des Zerfalls steigt wie erwartet deutlich mit steigenden Temperaturen. Bei größeren Pulsabständen verlangsamt sich die Abnahme der Echoamplitude und ihre Temperaturabhängigkeit ist schwächer. Die rechte Abbildung von 4.9 zeigt die Verläufe der Echoamplitude bei den verschiedenen Temperaturen noch einmal im Zeitbereich bis $\tau_{12} = 50$ μ s. Da bei tiefen Temperaturen nur wenige Messdaten in diesem Bereich vorliegen, sind Linien zur

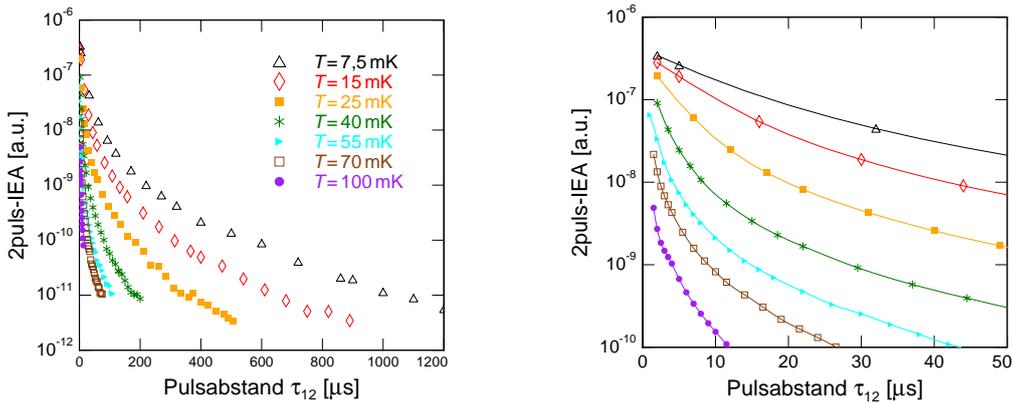


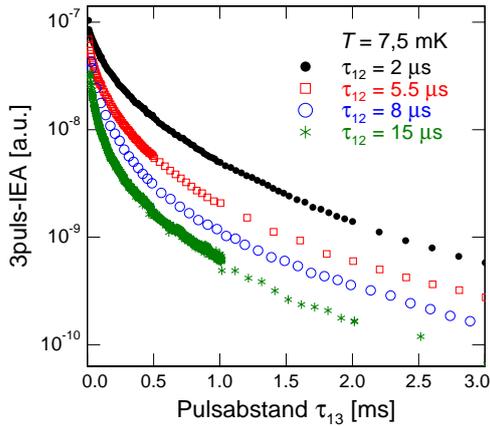
Abb. 4.9: Zerfall der Zweipuls-Polarisationsechoamplitude in Abhängigkeit vom Pulsabstand τ_{12} bei Temperaturen zwischen 7,5 mK und 100 mK auf zwei verschiedenen Zeitskalen [Fas10], [Sch10]. Die Legende in der linken Abbildung gilt für beide Diagramme. Die durchgezogenen Linien verbinden die Messdaten.

besseren Lesbarkeit des Datenverlaufs eingezeichnet. Die beim kleinsten Pulsabstand gemessene Echoamplitude sinkt bei den betrachteten Temperaturen bereits über 2 Größenordnungen. Die Ursache ist einerseits die thermische Besetzungszahldifferenz, die über den Faktor $\tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right)$ die Echoamplitude bei endlichen Temperaturen reduziert. Außerdem kann wegen der Länge der Pulse nicht bis zu beliebig kurzen Pulsabständen gemessen werden. Die Situation einer totalen Kohärenz kann deshalb nicht erreicht werden. Die mit der Temperatur steigenden Zerfallsraten sind hier auch für hohe Temperaturen zu erkennen. Die aufgrund der $\exp(-\tau_{12}^2)$ -Abhängigkeit der Dekohärenz erwartete gaußförmige Rundung bei kürzesten Pulsabständen ist wenig ausgeprägt, kann aber erahnt werden.

4.3 Dreipuls-Echomessungen

In diesem Abschnitt sollen die Daten aus den durchgeführten Dreipuls-Polarisationsechomessungen an BK7 vorgestellt und qualitativ diskutiert werden. In allen Messungen wurde bei einem festen ersten Pulsabstand τ_{12} der Zerfall der Echoamplitude mit wachsendem zweiten Pulsabstand τ_{23} und somit wachsendem Pulsabstand τ_{13} bei sechs verschiedenen Temperaturen zwischen $T = 7,5$ mK und 70 mK betrachtet. Um bis zu möglichst langen Pulsabständen τ_{13} ein kohärentes Echo messen zu können, sollte ein kurzer erster Pulsabstand gewählt werden. Andererseits spielen gerade bei kurzen ersten Pulsabständen τ_{12} die durch den letzten Puls verursachten Untergrundsignale eine große Rolle und können die Messgenauigkeit, besonders von kleinen Echoamplituden, erheblich einschränken. Daher wurden drei Werte für τ_{12} gewählt: $\tau_{12} = 2$ μs erfüllt die Bedingung der kurzen Pulsabstände. Die Korrektur des Hintergrunds war jedoch so schwierig, dass nur bei $T \leq 40$ mK sinnvoll gemessen werden konnte. Der Pulsabstand $\tau_{12} = 5,5$ μs wurde so gewählt, dass er sowohl möglichst kurz war, als auch das Echo an einer nahezu linear ansteigenden Flanke des Untergrundsignals auftrat, die bei Bedarf verhältnismäßig einfach zu korrigieren wäre. Eine dritte Messreihe wurde mit $\tau_{12} = 15$ μs durchgeführt, dem kleinsten Pulsabstand, bei dem keinerlei Hintergrundkorrektur mehr nötig war. Hier waren allerdings keine sehr langen Pulsabstände τ_{13} mehr erreichbar. Zudem ist die charakteristische Phasenkohärenzzeit aus der spektralen Diffusion so klein, dass im Verlauf der Messung selbst für kurze τ_{13} schon während des ersten Pulsabstands τ_{12} ein Großteil der Diffusionsprozesse stattgefunden haben. Das Verhalten der Echoamplitude bei großen τ_{13} kann aber dennoch Aufschluss über die Wechselwirkungen der Tunnel-systeme untereinander und mit Phononen sowie über die Verteilung der Parameter des Standardtunnelmodells geben.

Anhand von Abbildung 4.10 kann der Einfluss des ersten Pulsabstands auf den Verlauf der Zerfallskurve diskutiert werden. Aufgetragen sind die Echoamplituden

**Abb. 4.10:**

Verlauf der Dreipuls-Echoamplitude in Abhängigkeit von τ_{13} bei $T = 7,5$ mK für vier verschiedene erste Pulsabstände τ_{12} . Je größer τ_{12} , desto steiler verläuft die Kurve bei kurzen τ_{13} .

bei einer Temperatur von $T = 7,5$ mK für vier verschiedene erste Pulsabstände τ_{12} in Abhängigkeit von τ_{13} . Dabei ist darauf zu achten, dass der minimal erreichbare Wert für τ_{13} etwa $\tau_{13,\text{min}} \approx \tau_{12} + 1 \mu\text{s}$ beträgt und die Kurven daher auch bei unterschiedlichen Werten von τ_{13} beginnen. Zunächst wird deutlich, dass die Echoamplitude bei $\tau_{13,\text{min}}$ für steigende τ_{12} sinkt. Extrapoliert man den Verlauf der Kurven jedoch jeweils zu $\tau_{13} = 0$, so würde man für alle in etwa die gleiche Echoamplitude A_0 erhalten. Allerdings verläuft die Zerfallskurve für kleine τ_{13} steiler, je größer der erste Pulsabstand τ_{12} gewählt wird. Die Ursache ist der Einfluss der spektralen Diffusion. Wie bereits in Abschnitt 2.3.2 beschrieben, wird durch die ersten beiden Pulse eine Verteilung von Tunnelsystemen angeregt, die einem Frequenzkamm gleicht, analog zum Beugungsbild eines Doppelspaltes (s. Abbildung 2.16). Der Abstand zwischen zwei Maxima des Spektrums beträgt etwa τ_{12}^{-1} , d.h. der Kamm wird feiner, wenn der Abstand der Pulse steigt. Wenn die Tunnelsysteme zwischen dem zweiten und dritten Puls „in der z -Komponente zwischengespeichert“ werden, wird ihre Phaseninformation in ihrer Position innerhalb des Frequenzspektrums gespeichert. Durch die spektrale Diffusion und die damit einhergehenden Verschiebungen der Energieaufspaltungen der angeregten Tunnelsysteme wird der Frequenzkamm verwischt, so dass die Phaseninformation verloren geht und die betroffenen Tunnelsysteme nicht mehr zum Echo beitragen können. Je feiner der Kamm, desto größer ist der relative Effekt. Daher zerfallen Dreipuls-Echos mit großem erstem Pulsabstand τ_{12} bei kleinen Pulsabständen τ_{13} schneller. Wird der Einfluss der spektralen Diffusion nach einigen $100 \mu\text{s}$ jedoch klein gegen T_1 -Relaxationsprozesse, verlaufen die in Abbildung 4.10 gezeigten Zerfallskurven in der logarithmischen Darstellung jedoch wieder parallel.

In den Abbildungen 4.11, 4.12 und 4.13 sind die Zerfallskurven bei den drei betrachteten Pulsabständen τ_{12} und sechs verschiedenen Temperaturen dargestellt. Abbildung 4.11 zeigt Zerfallskurven für den ersten Pulsabstand $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$, wie vorher bei den Zweipuls-Echos, auf zwei Zeitskalen. Zunächst soll auch hier darauf hingewie-

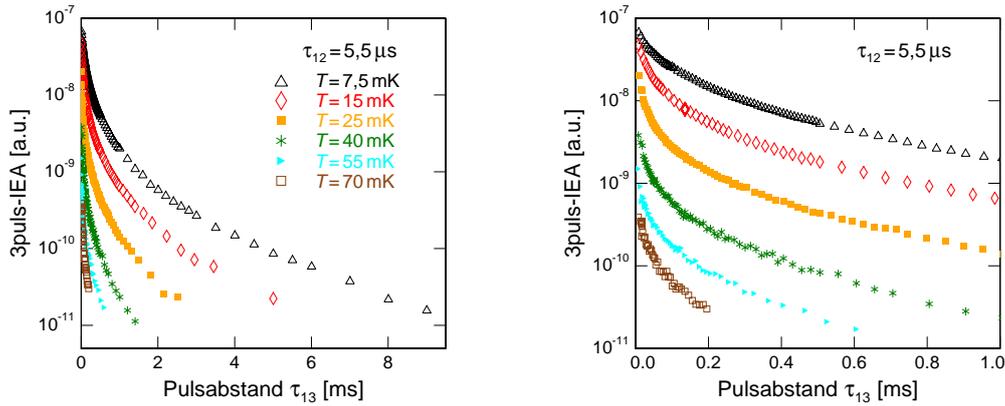


Abb. 4.11: Verlauf der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ in Abhängigkeit vom Pulsabstand τ_{13} bei Temperaturen zwischen $7,5 \text{ mK}$ und 70 mK auf zwei verschiedenen Zeitskalen. Die Legende in der linken Abbildung gilt für beide Diagramme.

sen werden, welche lange Pulsabstände τ_{13} mit dem hier verwendeten Aufbau erreicht werden können. Die längsten hier betrachteten Pulsabstände bei der tiefsten Temperatur von $T = 7,5 \text{ mK}$ betragen $\tau_{13} = 14,9 \text{ ms}$ bei einem ersten Pulsabstand von $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$, $\tau_{13} = 9 \text{ ms}$ bei $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ und $\tau_{13} = 7,6 \text{ ms}$ bei $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$. Die Echoamplitude konnte dabei über etwas mehr als vier Größenordnungen verfolgt werden. Dies ist ein etwas kleinerer Bereich als bei den Zweipuls-Polarisationsechos erreicht. Man sollte aber bedenken, dass, wie oben beschrieben, zu Beginn der Messung bei

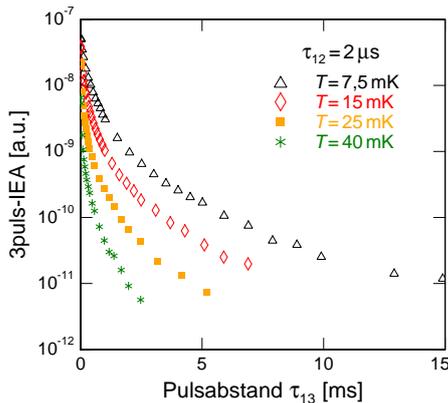


Abb. 4.12: Verlauf der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$ in Abhängigkeit vom Pulsabstand τ_{13} bei Temperaturen zwischen $7,5 \text{ mK}$ und 40 mK .

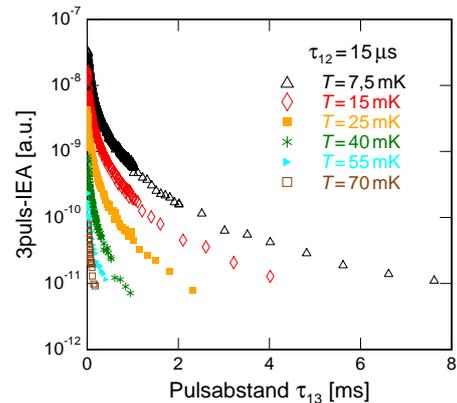


Abb. 4.13: Verlauf der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ in Abhängigkeit vom Pulsabstand τ_{13} bei Temperaturen zwischen $7,5 \text{ mK}$ und 70 mK .

$\tau_{13,\min}$ bereits ein Teil der Echoamplitude durch spektrale Diffusion zerfallen ist. Dies ist auch daran erkennbar, dass die Echoamplitude zur Zeit $\tau_{13,\min}$ beim Erwärmen der Probe von 7,5 mK auf 70 mK um nahezu drei Größenordnungen abnimmt. Im gleichen Temperaturbereich wird die Zweipuls-Echoamplitude im Limes kurzer Pulsabstände $\tau_{12} \rightarrow 0$ nur etwa eine Größenordnung kleiner, hauptsächlich wegen der temperaturabhängigen Besetzungszahldifferenz.

Die Form des Zerfalls der Dreipuls-Echoamplitude entspricht auf den ersten Blick den Erwartungen: Die Echoamplitude fällt zunächst schnell, dann immer langsamer. Für sehr große τ_{13} folgt sie in der logarithmischen Auftragung nahezu einer Geraden. Steigt die Temperatur, werden die charakteristischen Zerfallszeiten kürzer. Betrachtet man jedoch die rechte Seite von Abbildung 4.11, fällt auf, dass, obwohl die Absolutwerte der Echoamplitude mit steigender Temperatur fallen, der Verlauf der Zerfallskurven parallel erscheint. Das gleiche gilt auch für den Zerfall der Echoamplituden mit anderen ersten Pulsabständen τ_{12} , wie in Abbildung 4.12 und 4.13 gezeigt. In Abbildung 4.14 werden noch einmal die Zerfallskurven der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ gezeigt. Für diese Darstellung wurden alle bei einer Temperatur aufgenommenen Amplituden durch Multiplikation mit einem konstanten Faktor so skaliert, dass sie für das kleinste gemessene τ_{13} mit der Echoamplitude bei 15 mK

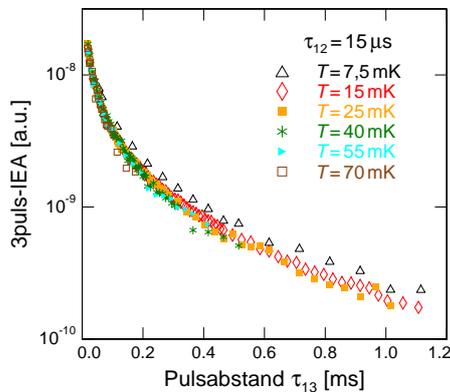


Abb. 4.14:

Verlauf der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ in Abhängigkeit vom Pulsabstand τ_{13} . Die Kurven bei allen Temperaturen ungleich 15 mK wurden durch Multiplikation mit einem numerischen Faktor auf eine Echoamplitude bei einem zweiten Pulsabstand von $\tau_{23} = 4 \mu\text{s}$ skaliert.

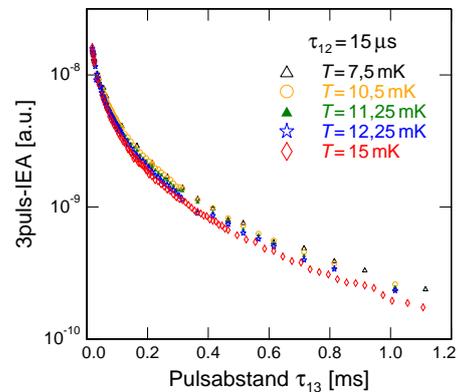


Abb. 4.15:

Verlauf der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ in Abhängigkeit vom Pulsabstand τ_{13} bei Temperaturen zwischen 7,5 mK und 15 mK. Die Kurven bei allen Temperaturen ungleich 15 mK wurden durch Multiplikation mit einem numerischen Faktor auf die Echoamplitude bei kleinen bei einem zweiten Pulsabstand von $\tau_{23} = 4 \mu\text{s}$ skaliert.

übereinstimmen. Eine Skalierung entlang der Zeitachse wurde nicht vorgenommen. Wie man sieht, wird der Zerfall der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ bei allen betrachteten Temperaturen größer oder gleich 15 mK durch die gleiche funktionale Abhängigkeit von τ_{13} beschrieben und erscheint daher temperaturunabhängig. Lediglich der bei 7,5 mK gemessene Datensatz weist zumindest für kurze τ_{13} einen anderen qualitativen Verlauf auf. Abbildung 4.15 zeigt Echozerfallskurven bei Temperaturen zwischen 7,5 mK und 15 mK. Auch hier wurden die Daten für kleine τ_{13} auf die 15 mK-Kurve skaliert. Man erkennt einen kontinuierlichen Übergang, in dem die Steigung bei sehr kurzen τ_{13} so lange zunimmt, bis sie bei $T \approx 15 \text{ mK}$ einen nahezu konstanten Wert erreicht. Untersucht man die Temperaturabhängigkeit des Echozerfalls bei den anderen Werten des ersten Pulsabstands τ_{12} , findet man ein analoges Verhalten. Allerdings sind, je kleiner τ_{12} gewählt wird, die Unterschiede bei kurzen Pulsabständen τ_{13} ausgeprägter und bis zu höheren Temperaturen hin sichtbar. Daraus, und aus der deutlichen Reduktion des Absolutwerts der Echoamplitude mit steigender Temperatur, kann man schließen, dass die spektrale Diffusion, die bei kleinen τ_{13} den Zerfall maßgeblich bestimmt, eine eindeutige Temperaturabhängigkeit besitzt. Dies bedeutet wiederum, dass auch die Probe bis weit unterhalb von 15 mK nicht thermisch von der Experimentierplattform an der Mischkammer abkoppelt¹.

Geht man davon aus, dass der Einfluss der spektralen Diffusion vernachlässigbar wird, wenn die Temperaturunabhängigkeit des qualitativen Verlaufs des Echozerfalls auftritt, und keine zusätzlichen Wechselwirkungsmechanismen greifen, müsste deren Ursache in der T_1 -Relaxation zu finden sein. Ein dominanter Relaxationsbeitrag mit einer temperaturunabhängigen Rate wäre beispielsweise denkbar, wenn durch dauerhaft eingekoppelte Vibrationen oder elektromagnetisches Rauschen Tunnelsysteme zu resonanten Übergängen stimuliert würden. Vibrationen treten nur dann kontinuierlich auf, wenn entweder der 1K-Topf im kontinuierlichen Modus betrieben wird oder Vibrationen von den Pumpen des Kryostaten auf die Glasprobe übertragen werden. Ersteres kann ausgeschlossen werden, da zwischen Messungen mit und ohne kontinuierlich betriebenen 1K-Topf keine Unterschiede in der Zerfallscharakteristik erkennbar waren. Die Pumpen des Heliumkreislaufs und des 1K-Topfs sind entlang der Rohrleitungen weit über 5 m vom Kryostaten entfernt und über einen mechanischen „Tiefpass“ vom Kryostaten entkoppelt. Zwischen dem Heliumbad und der Rückleitung, in der im Vergleich zu den Pumpleitungen das Gas einen höheren Druck hat, und an die viele Pumpen angeschlossen sind, ist zusätzlich ein Schalldämpfer eingebaut, um über das Heliumgas übertragene akustische Signale herauszufiltern. Auch die Pumpen können daher als Quelle der temperaturunabhängigen Relaxationsrate ausgeschlossen werden.

¹Der Unterschied im Echozerfall zwischen $T \approx 7,5 \text{ mK}$ und $10,5 \text{ mK}$ in Abbildung 4.15 ist jedoch so klein im Vergleich mit den folgenden Temperaturschritten, dass nicht ausgeschlossen werden kann, dass die Probertemperatur in der gezeigten Messung etwas oberhalb von 7,5 mK lag.

Die Möglichkeit der stimulierten Relaxation durch elektromagnetisches Rauschen wirkt zunächst durchaus plausibel. Wie bereits in Kapitel 3.2.1 angemerkt, ist der Resonator auf der Detektionsseite stark an den Tieftemperaturverstärker gekoppelt. Dessen Rauschleistung ist von der Mischkammertemperatur unabhängig. Auch das Rauschen der auf $50\ \Omega$ angepassten Elektronik bei Raumtemperatur auf der Sendeseite kann über die Kabel in den Kryostaten eingekoppelt werden. Hier soll kurz abgeschätzt werden, ob die durch das Rauschen eines $50\ \Omega$ -Widerstands möglicherweise verursachten elektrischen Felder ausreichend groß sind, um eine Relaxationszeit unterhalb der hier für BK7 gemessenen zu verursachen. Wir wissen aus Rotationséchomessungen, dass eine Rabifrequenz von ca. 300 kHz durch die Einkopplung eines Hochfrequenzfelds mit einer Leistung von $-21,5\ \text{dBm}$ am Kryostatenkopf bzw. $-44,5\ \text{dBm}$ am Eingang des Resonators verursacht wird. Hier wurden alle Dämpfungsglieder und Kabeldämpfungen einbezogen, nicht aber die Einkoppelverluste in den Resonator. Da die Rabifrequenz nach Gleichung (2.16) direkt proportional zum elektrischen Feld am Ort der Probe und dieses wiederum proportional zur Wurzel der eingekoppelten Leistung ist, kann man - als Extremfall - auf einfache Weise abschätzen, welche Rabifrequenz durch ein cw-Signal mit einer Leistung, die der Rauschleistung eines $50\ \Omega$ -Widerstands bei Raumtemperatur oder der Temperatur des kalten Verstärkers entspricht, verursacht wird. Daraus kann man dann ein Gefühl für die Zeitskala entwickeln, mit der eingekoppeltes Rauschen im Resonator zu T_1 -artigen Effekten führen kann, wenn man dieses Rauschen als kohärent annehmen würde.

Betrachten wir zunächst einen $50\ \Omega$ -Widerstand bei Raumtemperatur. Seine Rauschleistung beträgt $S_P = 4k_B T = 1,6 \cdot 10^{-20} \frac{\text{W}}{\text{Hz}}$. Da der Resonator nur eine Bandbreite von etwa 20 MHz hat, beträgt die absolute Leistung etwa $S_P \cdot 20\ \text{MHz} = 3,2 \cdot 10^{-13}\ \text{W}$. Dies ist die Leistung am letzten Punkt des Messaufbaus vor dem Übergang in den Kryostaten. Danach durchläuft das elektromagnetische Feld die gleichen Kabel und Dämpfungsglieder wie das Hochfrequenzsignal in einer Echomessung, beispielsweise auch in einer Rotationsechomessung, bei der die Rabifrequenz bestimmt werden kann. Aus dem Vergleich mit der Hochfrequenzleistung von $-21,5\ \text{dBm} = 7\ \mu\text{W}$ erhält man für die Rabifrequenz $\Omega_{R,290\text{K}} = \frac{\sqrt{3,2 \cdot 10^{-13}\ \text{W}}}{\sqrt{7 \cdot 10^{-6}\ \text{W}}} \cdot 300\ \text{kHz} = 64\ \text{Hz}$. Dies entspricht einer Periodendauer von etwa 15,6 ms.

Gehen wir nun zum interessanteren Fall des Tieftemperaturverstärkers über. Er befindet sich je nach Heliumstand im flüssigen Helium oder in kaltem Heliumgas. Wir haben sein Rauschen in Abschnitt 4.1.2 als thermisches Rauschen eines $50\ \Omega$ -Widerstands bei 7 K abgeschätzt, das einen Wert von $3,9 \cdot 10^{-22}\ \text{W/Hz}$ hat. Das heißt, mit 20 MHz Bandbreite sendet der Tieftemperaturverstärker eine elektrische Leistung von $7,7 \cdot 10^{-15}\ \text{W}$ zum Resonator. Diesen Wert vergleichen wir nun mit dem am Resonator eingekoppelten Hochfrequenzfeld mit der oben angegebenen Leistung $-44,5\ \text{dBm} = 3,55 \cdot 10^{-8}\ \text{W}$. Daraus ergibt sich $\Omega_{R,7\text{K}} = \frac{\sqrt{7,7 \cdot 10^{-15}\ \text{W}}}{\sqrt{3,55 \cdot 10^{-8}\ \text{W}}} \cdot 300\ \text{kHz} =$

140 Hz. Daraus ergibt sich eine Periodendauer von etwa 7 ms, die noch recht nah an den hier beobachteten T_1 -Zeiten liegt. Darüber hinaus wurde der Unterschied in der Kopplungsstärke in dieser Abschätzung vernachlässigt. Andererseits wird bei dem eben gezeigten Vorgehen implizit ein „kohärentes“ Rauschsignal angenommen, das die Tunnelsysteme kontinuierlich treiben kann. Dies ist in der Realität sicherlich nicht der Fall, was den Effekt dieses statistisch treibenden Hochfrequenzfelds drastisch reduzieren sollte.

Da also der Effekt, den der Tieftemperaturverstärker möglicherweise auf die angeregten Tunnelsysteme hat, schwer abzuschätzen ist, wurde eine Messung durchgeführt, bei der das Rauschen eines $50\ \Omega$ -Widerstands bei Raumtemperatur mit zwei Verstärkern um 46 dB verstärkt und dem Hochfrequenzsignal überlagert wurde. Das auf dem Oszilloskop beobachtete elektronische Rauschen auf der Detektionsseite wurde dadurch um einen Faktor 2 bis 3 erhöht. In dieser Messung konnte, wie Abbildung 4.8 belegt, kein Unterschied zum Zerfall des Echos unter Normalbedingungen festgestellt werden. Wir können also davon ausgehen, dass das aus dem Tieftemperaturverstärker rückwärts eingekoppelte Rauschsignal nicht in der Lage ist, den beobachteten temperaturunabhängigen Echozerfall zu erklären. Dennoch ist die aus dem thermischen Rauschen hergeleitete Relaxationszeit nicht so groß, dass sie nicht bei noch tieferen Temperaturen einen Effekt haben könnte, wie sie in Kürze bei Echoexperimenten in einem neu in Betrieb genommenen Kernentmagnetisierungskryostaten geplant sind. Deswegen soll in zukünftigen Messungen ein Hochfrequenzisolator in die Detektionsleitung zwischen Resonator und Tieftemperaturverstärker eingebaut werden, der „rückwärts“ eine Dämpfung von etwa 20 dB besitzt.

Ist also die intrinsische T_1 -Relaxation der Tunnelsysteme in BK7 temperaturunabhängig? Da sie in erster Linie durch Wechselwirkung der Tunnelsysteme mit Phononen hervorgerufen wird, deren temperaturabhängige Zustandsdichte in allen Gläsern hinreichend belegt ist, scheint dies höchst zweifelhaft. Insbesondere wurde beim Zerfall der Pausenrotationsechoamplitude in BK7, der maßgeblich durch T_1 -Prozesse bestimmt sein soll, mit dem gleichen Tieftemperaaturaufbau die Temperaturabhängigkeit der Relaxation bis hinunter zu 10 mK nachgewiesen. Darauf wird im folgenden Abschnitt noch näher eingegangen. Angesichts der gerade geführten Diskussion kann jedoch auch ein Artefakt durch Erwärmung, Vibrationen oder elektromagnetisches Rauschen ausgeschlossen werden. Alle diese Faktoren würden den Zerfall der Echoamplitude beschleunigen. Bei genauem Hinsehen (s. Abschnitt 4.5.2), scheint der Verlauf des Zerfalls Dreipuls-Echoamplitude im durch T_1 -Relaxationen dominierten Limes langer Pulsabstände jedoch langsamer zu verlaufen als erwartet. Zu diesem Zeitpunkt gehen wir davon aus, dass die scheinbare Temperaturunabhängigkeit des Zerfalls der Dreipuls-Echoamplitude bei mittleren und großen Pulsabständen τ_{13} durch eine neue, bisher nicht berücksichtigte Eigenschaft der Tunnelsysteme hervorgerufen wird. Diese konnte in der Vergangenheit nicht bemerkt werden, weil es

noch nie möglich war, die Amplitude von Dreipuls-Echos über so viele Größenordnungen und bei derart lange Zeiten zu bestimmen. In Abschnitt 4.5 soll dies noch ausführlich diskutiert werden.

4.4 Pausenrotationsecho-Messungen

Nun sollen die Daten der Pausenrotationsechomessungen gezeigt werden. Es wurden Echos bei zwei verschiedenen ersten Pulslängen $t_1 = 9 \mu\text{s}$ und $14 \mu\text{s}$ durchgeführt. Die Länge des ersten Pulses muss so gewählt werden, dass sie größer ist als die im Experiment beobachtete inverse Rabifrequenz, die in den hier betrachteten Messungen bei etwa $1/300 \text{ kHz}$ lag. Außerdem müssen die Transientensignale zu Beginn des zweiten Pulses bedacht werden. Das Rotationsecho sollte von ihnen möglichst weit entfernt sein. Andererseits können sehr lange Pulse dafür sorgen, dass die Probe erwärmt wird. Die gewählten Pulslängen erfüllen die oben genannten Bedingungen und bleiben dabei so kurz wie möglich. Die Länge des zweiten Pulses, während dem das Rotationsechos auftritt, war normalerweise etwas mehr als doppelt so lang wie der erste Puls. Der Zerfall des Echos wurde in Abhängigkeit des Pulsabstands τ_{12} bei sechs verschiedenen Temperaturen zwischen 10 mK und 70 mK gemessen. Außerdem konnte aus den Echodaten der Verlauf der effektiven Rabifrequenz, also der Frequenz, bei der das Maximum der Fouriertransformierten auftrat, extrahiert werden.

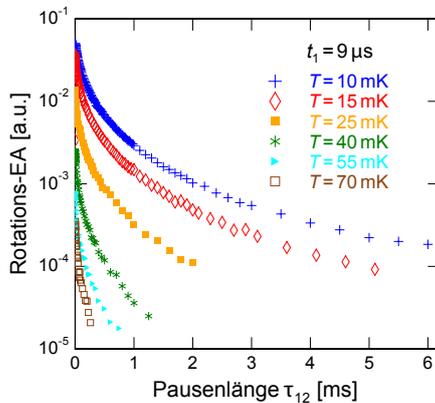


Abb. 4.16: Verlauf der Amplitude des Pausenrotationsechos in Abhängigkeit von der Pausenlänge τ_{12} , bei einer Länge des ersten Pulses von $t_1 = 9 \mu\text{s}$ bei Temperaturen zwischen 10 mK und 70 mK . Die Daten bei $T = 10 \text{ mK}$ wurden mit einem Faktor 3 multipliziert.

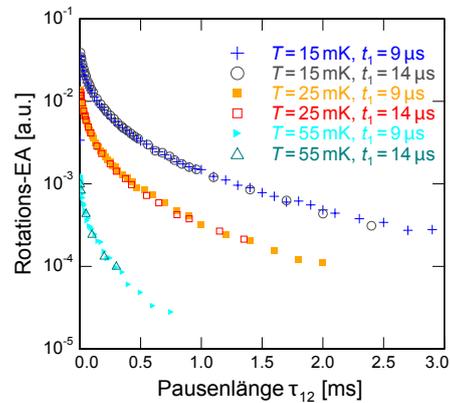


Abb. 4.17: Vergleich des Verlaufs der Amplituden von Pausenrotationsechos in Abhängigkeit von der Pausenlänge τ_{12} , bei Längen des ersten Pulses von $t_1 = 9 \mu\text{s}$ und $t_1 = 14 \mu\text{s}$. Die Werte der Echoamplituden mit $t_1 = 14 \mu\text{s}$ wurden jeweils mit einem konstanten Faktor multipliziert.

Abbildung 4.16 zeigt die mit $t_1 = 9 \mu\text{s}$ gemessenen Zerfallskurven. Bei der tiefsten Temperatur von $T = 10 \text{ mK}$ konnten Rotationsechos bis zu einer Pausenlänge von etwa 6 ms aufgenommen werden. Die Variation der gemessenen Echoamplituden über alle Pulsabstände und Temperaturen hinweg beträgt etwa drei Größenordnungen. Die Kurven fallen zunächst rasch mit steigendem Pulsabstand und flachen dann ab. Allerdings ist die Steigung bei kleinen Zeiten nicht so groß wie bei einer vergleichbaren Dreipuls-Echomessung (vergl. Abbildung 4.13). Dies ist bereits ein starker Hinweis darauf, dass die Pausenrotationsechos mit der deutlich langsameren T_1 -Relaxation zerfallen. Allerdings unterscheiden sich bei unterschiedlichen Temperaturen die Echoamplituden im Limes kurzer Pausenlängen $\tau_{12} \rightarrow 0$ stärker voneinander, als durch den Faktor $\tanh(\frac{E}{2k_B T})$ gegeben. Ursache dafür könnte sein, dass bereits während der Pulse T_1 -Prozesse auftreten, die dafür sorgen, dass selbst anfänglich nicht alle Tunnelsysteme zur Echoamplitude beitragen können.

Wenn die Annahme stimmt, dass Pausenrotationsechos von der spektralen Diffusion nicht beeinflusst werden, sollte der Zerfall bei der gleichen Temperatur und unterschiedlichen Pulslängen t_1 die gleiche Form aufweisen. In Abbildung 4.17 wurden die Zerfallskurven von Messungen mit $t_1 = 9 \mu\text{s}$ und $t_1 = 14 \mu\text{s}$ bei drei verschiedenen Temperaturen übereinander gelegt. Die absolute Echoamplitude der Messungen mit verschiedenen t_1 unterscheidet sich natürlich, weshalb alle Echoamplituden der $14 \mu\text{s}$ mit einem konstanten Faktor multipliziert wurden, um sie mit den $9 \mu\text{s}$ -Daten in Deckung zu bringen. Wie man deutlich sieht, ist der zeitliche Verlauf der Echoamplitude für beide Pulslängen t_1 identisch. Für die nicht in der Abbildung gezeigten Temperaturen wurde die Gültigkeit dieser Annahme ebenfalls bestätigt.

Nun soll noch untersucht werden, ob die Pausenrotationsechoamplituden tatsächlich bei allen Temperaturen derselben vergleichsweise einfachen funktionalen Abhängigkeit vom Pulsabstand $A \propto \exp(-k\tau_{12})$ mit der Rate k gehorchen. Dafür wurden die gemessenen Kurven entlang der Zeitachse mit einem Faktor f so gestreckt, dass sie alle mit der 10 mK -Kurve in Deckung liegen. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.18 dargestellt. Tatsächlich liegen alle Kurven im Rahmen der Messgenauigkeit übereinander. Die Abhängigkeit der verwendeten Skalierungsfaktoren f von der Temperatur kann einen ersten Hinweis auf die Temperaturabhängigkeit der Rate k liefern. Abbildung 4.19 zeigt die Werte für f in Abhängigkeit von der Temperatur. Zusätzlich wurde der nach Gleichung (2.20) für die Rate der T_1 -Relaxation erwartete $\coth(\frac{E}{2k_B T})$ -Verlauf (durchgezogene Linie) eingezeichnet. Offensichtlich folgt die Rate diesem Verlauf nicht. Die Ursache dafür kann sein, dass die Abhängigkeit der Echoamplitude von τ_{12} komplizierter ist, als angenommen. Stattdessen scheint die Rate zu tiefen Temperaturen hin einem Potenzgesetz mit $T^{0,66}$ zu folgen. Letzteres ist als gestrichelte Linie in Abbildung 4.19 eingezeichnet.

In früheren Arbeiten zu Pausenrotationsechos [Bai85] wurde die minimale Relaxa-

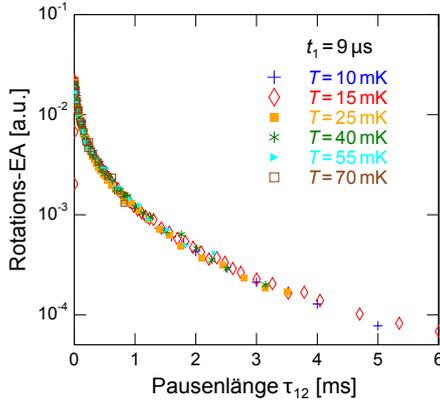


Abb. 4.18: Der Zerfall der Pausenrotationsechoamplitude kann bei allen untersuchten Temperaturen durch eine Masterkurve beschrieben werden. Die Daten mit $t_1 = 9 \mu\text{s}$ bei Temperaturen oberhalb von 10 mK wurden durch eine Streckung mit je einem Faktor entlang der τ_{12} -Achse und der Amplitudenachse auf die 10 mK-Kurve gelegt.

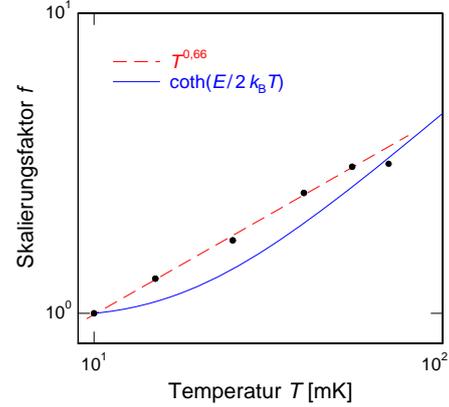
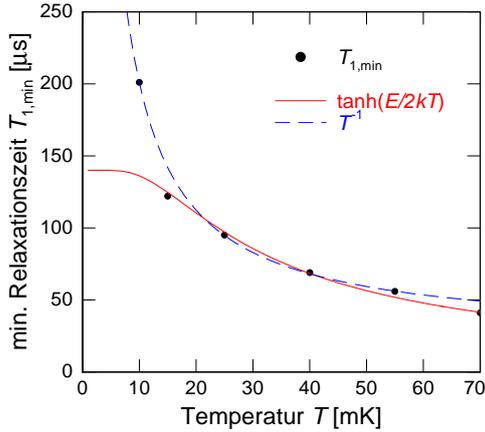


Abb. 4.19: Der Faktor, mit dem die Zerfallskurven der Rotationsechoamplitude bei $T > 10 \text{ mK}$ entlang der Zeitskala auf die Kurve bei 10 mK gestreckt wurde, ist in Abhängigkeit der Temperatur. Zusätzlich sind der Verlauf des erwarteten $\coth(\frac{E}{2k_B T})$ (durchgezogene Linie) und der Verlauf einer $T^{0,66}$ -Funktion (gestrichelt) eingezeichnet.

tionszeit $T_{1,\min}$ aus dem Zerfall bei sehr kurzen Pulsabständen, dem sogenannten anfänglichen Zerfall oder *initial decay* ermittelt. Diese Technik ist legitim, wenn man annimmt, dass die Zerfallskurve eine Summe von Exponentialfunktionen $\exp(-\tau_{12}/T_1)$ mit einer Verteilung von Relaxationszeiten T_1 ist. Die Asymptote am Beginn der Zerfallskurve entspricht dann der Exponentialfunktion mit dem kleinsten auftretenden T_1 . In [Bai85] konnte daraus für das Glas Suprasil I oberhalb von 20 mK eine Temperaturabhängigkeit $T_1 \propto \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right)$ und für kleinere Temperaturen $T_1 \propto T^{-1}$ gefunden werden. In Suprasil W genügte T_1 bei kleinen Temperaturen ebenfalls dem linearen Abfall mit der Temperatur, ging aber für hohe Temperaturen in eine steilere Temperaturabhängigkeit über. Die aus den hier gezeigten Daten durch eine analoge Auswertung ermittelten Werte für $T_{1,\min}$ für Temperaturen zwischen 10 mK und 70 mK können Tabelle 4.1 entnommen werden. Es sei darauf hingewiesen, dass insbesondere bei hohen Temperaturen das Anpassen der Asymptoten mit einem hohen Fehler von ca. 20 % behaftet sein kann. Der Verlauf der so ermittelten Werte für die minimale Relaxationszeit $T_{1,\min}$ in Abhängigkeit von der Temperatur ist in Abbildung 4.20 dargestellt. Zum Vergleich wurden noch Funktionen mit der Proportionalität $T_1 \propto \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right)$ und $T_1 \propto T^{-1}$ eingezeichnet. Man sieht, dass beide Funktionen nur einen Teil der Messdaten gut beschreiben können.

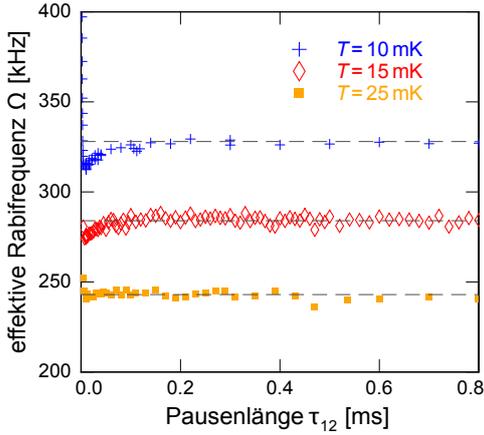
**Abb. 4.20:**

Aus dem anfänglichen Zerfall der Rotationsechos ermittelte minimale Relaxationszeit $T_{1,\min}$. Zum Vergleich sind die Funktionen $T_1 \propto \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right)$ (durchgezogene Linie) und $T_1 \propto T^{-1}$ (gestrichelte Linie) mit eingezeichnet.

In Tabelle 4.1 sind auch theoretische Werte für $T_{1,\min}$ angegeben, die aus Gleichung (2.20) und den in Tabelle 3.2 gegebenen Materialkonstanten berechnet wurden. Wie man deutlich erkennt, liegen die gemessenen Werte für $T_{1,\min}$ etwa einen Faktor 2 - 3 unter den erwarteten. Eine Reduzierung der Relaxationszeit würde man erwarten, wenn ein zweiter Relaxationsmechanismus, wie beispielsweise die von Paaranregungen induzierte Relaxation auftritt (siehe Kapitel 2.4.2). Die Kehrwerte der einzelnen Relaxationszeiten addieren sich dann zum Kehrwert der gemessenen Relaxationszeit. Dies würde auch die Abweichung vom \coth -Verhalten bei tiefen Temperaturen erklären. Wie weiter unten beim Auswerten der Zwei- und Dreipuls-Echos gezeigt wird, erhält man jedoch auch in diesem Fall T_1 -Werte, die etwa einen Faktor 1,5 größer sind als die aus dem Rotationsechozerfall erhaltenen Werte (siehe Kapitel 4.5.3, insbesondere Abbildung 4.39). Eine mögliche Ursache für diese Diskrepanz wäre, dass die Temperatur der Glasprobe durch die Messung mit langen Pulsen systematisch über der Mischkammertemperatur liegt. Da die Unterschiede zwischen Mess- und Theoriewert jedoch zu hohen Temperaturen erhalten bleiben, während die Abhängigkeit von $T_{1,\min}$ von der Temperatur abflacht, müsste die Probe sogar bei hohen Temperaturen extrem überhitzt sein, was ausgeschlossen werden kann. Eine andere Ursache könnte sein, dass bei kurzen Pulsabständen doch noch ein Teil des Zerfalls durch T_2 -Prozesse verursacht wird. Dies wäre mit detaillierten Modellrechnungen zu klären.

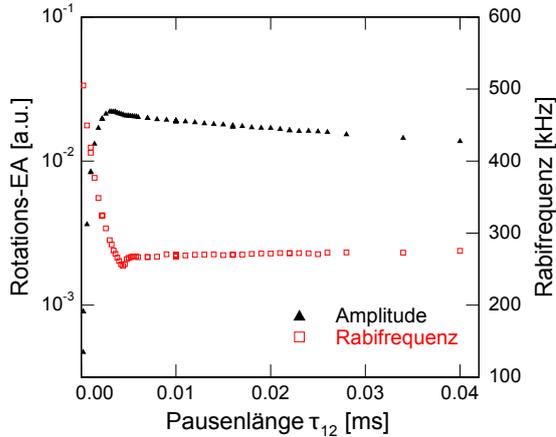
T [mK]	10	15	25	40	55	70
$T_{1,\min}$ [μ s]	201	122	95	69	56	41
T_1^{theo} [μ s]	319	292	227	160	121	97

Tab. 4.1: Aus dem anfänglichen Zerfall der Rotationsechoamplitude ermittelte minimale Relaxationszeiten bei den im Experiment verwendeten Temperaturen und die aus den Materialkonstanten berechneten minimalen Relaxationszeiten durch Ein-Phonon-Prozesse.

**Abb. 4.21:**

Effektive Rabifrequenz in Abhängigkeit von der Pausenlänge bei Temperaturen zwischen 10 mK und 25 mK. Die bei 10 mK aufgenommenen Daten wurden um 50 kHz zu höheren Frequenzen verschoben, um die Lesbarkeit zu verbessern.

Ein Hinweis auf den Einfluss von T_2 -Prozessen ergibt sich aus der Betrachtung der effektiven Rabifrequenz, die aus der Fouriertransformation der einzelnen Rotationsechos ermittelt werden kann. Die effektive Rabifrequenz $\Omega = \sqrt{\Omega_R^2 + \omega_d^2}$ ist die Frequenz, mit der die Tunnelsysteme in Anwesenheit eines elektrischen Wechselfelds zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand oszillieren. Dabei ist ω_d die Frequenz, um die die Energieaufspaltung des Tunnelsystems von der Energie $\hbar\omega_{\text{EF}}$ der treibenden Photonen verstimmt ist. Es mutet etwas seltsam an, dass weit von der Resonanz entfernte Tunnelsysteme eine größere Rabifrequenz besitzen als perfekt resonante. Dies ist die Folge eines verschränkten Zustands zwischen Photon und Tunnelsystem und analog zu äquivalenten Systemen, beispielsweise bei der Verschränkung von Photonen und mechanischen Oszillatoren. Wie man der in Gleichung (2.33) hergeleiteten Formel entnehmen kann, wird jedoch der Beitrag von Tunnelsystemen mit großer effektiver Rabifrequenz Ω zur Polarisation mit einem Faktor Ω_R^3/Ω^3 unterdrückt. Das Maximum der Fouriertransformierten entspricht also in guter Näherung der mittleren Rabifrequenz der Tunnelsysteme. Da die Rabifrequenz proportional zur Tunnelaufspaltung Δ_0 ist, bedeutet eine Änderung der Rabifrequenz bei gleichbleibendem elektrischen Feld, dass sich die Verteilung der Δ_0 der am Rotationsecho beteiligten Tunnelsysteme geändert hat. Wächst die Rabifrequenz, ist das ein Hinweis darauf, dass weniger asymmetrische Tunnelsysteme am Echo beteiligt sind; sinkt die Rabifrequenz, sind weniger symmetrische Tunnelsysteme beteiligt. Bei einem reinen T_1 -Zerfall würde man erwarten, dass die Rabifrequenz mit dem Pulsabstand abnimmt. Wie in Abbildung 4.21 zu sehen, ist bei kurzen Zeiten jedoch das Gegenteil der Fall. In der Abbildung sind die ermittelten Rabifrequenzen bei Temperaturen zwischen 10 mK und 25 mK in Abhängigkeit von der Pausenlänge aufgetragen. Die bei 10 mK aufgenommenen Werte wurden um 50 kHz zu höheren Frequenzen verschoben, um den Unterschied zu den bei 15 mK aufgenommenen Werten zu verdeutlichen. In beiden Fällen betrug die Rabifrequenz im Bereich des Pla-

**Abb. 4.22:**

Echoamplitude und effektive Rabifrequenz bei sehr kurzen Pulsabständen. Die Messung wurde bei 10 mK mit einer ersten Pulslänge $t_1 = 9 \mu\text{s}$ durchgeführt.

teaus etwa 280 kHz. Die Kurve bei 25 mK wurde bei einer etwas kleineren Leistung des treibenden Hochfrequenzfelds aufgenommen. Bei allen Temperaturen steigt die Rabifrequenz im Zeitraum bis etwa $100 \mu\text{s}$ an. Die Zeitkonstante des Anstiegs der Rabifrequenz und die Größe des Effekts nimmt dabei mit steigender Temperatur ab. Bei Temperaturen oberhalb von 25 mK konnte der Effekt nicht mehr aufgelöst werden. Ein Anstieg der Rabifrequenzen bei kurzen Zeiten mit einer temperaturabhängigen Rate ist ein Hinweis auf T_2 -Prozesse, die besonders asymmetrische Tunnelsysteme angreifen.

Der Vollständigkeit halber sollte erwähnt werden, dass bei sehr langen Pausenlängen, d.h. $\tau_{12} > 1 \text{ ms}$, häufig eine erneute Reduktion der Rabifrequenz beobachtet wurde. Diese ging jedoch einher mit einer großen Streuung der Werte für die Rabifrequenz. Außerdem werden bei großen Pulsabständen und kleinen Echos Effekte relevant, die aus der Unebenheit des Untergrunds entstehen. Dadurch können bei der Berechnung der Fast-Fourier-Transformation artefaktisch niederfrequente Beiträge mit Frequenzen in der Größenordnung 100 kHz entstehen², die zu einem Verschieben des Maximums führen. Dieser Effekt kann bei kleinen Pulsabständen jedoch nicht mit der beobachteten Ausprägung für die Änderung der Rabifrequenz verantwortlich sein.

Betrachtet man in Abbildung 4.21 den Bereich sehr kurzer Zeiten genau, kann man erkennen, dass die Rabifrequenz vor ihrem Anstieg einmal sehr steil abfällt. Um dies genauer zu zeigen, wurden in Abbildung 4.22 im Bereich extrem kurzer Pulsabstände die Amplitude und die Rabifrequenz der mit $t_1 = 9 \mu\text{s}$ bei 10 mK aufgenommenen Rotationsechos aufgetragen. Von $\tau_{12} = 0$ kommend steigt die Amplitude rasch an, führt bei etwa $3 \mu\text{s}$ eine kleine Oszillation durch und beginnt danach erst zu zerfallen. Die Rabifrequenz fällt von einem Wert in der Nähe von 500 kHz zunächst rasch ab, durchläuft ein Minimum bei etwa $4 \mu\text{s}$ bevor sie den vorher diskutierten Anstieg

²Diese Frequenz ergibt sich aus der Breite des digitalisierten Zeitfensters von ca. $10 \mu\text{s}$.

beginnt. Die Ursache für diese Effekte ist vermutlich, dass aufgrund der Kürze der Pause nicht alle Tunnelsysteme zum Rotationsecho beitragen können. Für die Entstehung des Rotationsechos ist wesentlich, dass sich die Pseudospinvektoren während der Pause gleichmäßig auf Kegeln um die z -Achse der Blochkugel verteilen können. Nur wenn dies der Fall ist, können alle Tunnelsysteme mit der gleichen effektiven Rabifrequenz optimal zum Echo beitragen. Die gemessene große Rabifrequenz und die kleine Amplitude ergeben sich daraus, dass nur sehr schnelle Tunnelsysteme, also Tunnelsysteme mit großem ω_d , die weit von der Resonanz entfernt sind, einen Beitrag leisten. Deren Beitrag zur Amplitude ist jedoch unterdrückt. Erst wenn die Pausenlänge größer wird als die Periodendauer der Rabisoszillationen, d.h. $\tau_{12} \geq \Omega_R^{-1}$, kann ein normales Rotationsecho entstehen.

4.5 Diskussion

In dieser Arbeit wurden verschiedene Echoexperimente durchgeführt, um Rückschlüsse auf die Relaxationszeiten von Tunnelsystemen in Gläsern zu ziehen, und festzustellen, ob die im Standardtunnelmodell angenommenen Verteilungsfunktionen die Realität beschreiben. Wie sich herausstellte (siehe Abschnitt 4.3), konnten keine verlässlichen Werte der T_1 -Relaxationszeit aus den Pausenrotationsechos gewonnen werden. Auch mit den Dreipuls-Echos konnte nicht direkt T_1 gemessen werden, da die scheinbare Temperaturunabhängigkeit der Zerfallscharakteristik den Effekt der T_1 -Relaxation überlagert. Die spektrale Diffusion hingegen, die die T_2 -Prozesse beschreiben soll, ist bei Zwei- und Dreipulsechos gut zu beobachten. In den folgenden Abschnitten sollen die Daten aus den Zwei- und Dreipuls-Echoexperimenten mit der Theorie verglichen werden. Dafür wurde die Echoamplitude unter Einbeziehung der T_1 -Relaxation, der spektralen Diffusion und der Verteilung der Asymmetrieenergie nach dem Standardtunnelmodell numerisch berechnet. Mit $q = \frac{\Delta}{E}$ ist die verwendete Funktion für die Echoamplitude gegeben durch:

$$A = A_0 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \int_0^1 dq (1 - q^2) e^{-(1-q^2)t_{\text{Echo}}/T_{1,\text{min}}(T)} W_{2P/3P} \quad (4.7)$$

Hier ist t_{Echo} die Zeit zwischen dem ersten Puls und dem Echo, d.h. $2\tau_{12}$ für Zweipuls- und $\tau_{12} + \tau_{13}$ für Dreipuls-Echos. Der Faktor $W_{2P/3P}$ steht für den Beitrag der spektralen Diffusion bei Zwei- bzw. Dreipulsechos und beträgt $W_{2P} = \exp(-q m(T) \tau_{12}^2)$ bzw. $W_{3P} = \exp(-q m(T) (\tau_{12} \tau_{13}))$ im Kurzzeitlimit $\tau_{12}, \tau_{13} \ll T_1$. Die Amplitude A_0 bezeichnet die hypothetische Echoamplitude, die man bei $T = 0$, $\tau_{12} = \tau_{13} = 0$ messen würde. Mit dem Faktor $\tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right)$ wird die Besetzungszahldifferenz der Tunnelsysteme zur Zeit $t = 0$ bei endlichen Temperaturen berücksichtigt. Bevor

Gleichung (4.7) integriert und auf die Echozerfälle angewandt wird, soll noch kurz diskutiert werden, wie sich die Verteilung der am Echo beteiligten Tunnelsysteme durch den Integranden von (4.7) im Laufe einer Zerfallsmessung ändert.

4.5.1 Verteilung der Tunnelsysteme bei gepulsten Echos

Obwohl sich die Anregungssequenzen von Zwei- und Dreipuls-Echos nur wenig unterscheiden, weisen sie sehr unterschiedliche Zerfallscharakteristika auf. Während der Zweipuls-Echozerfall stark von der spektralen Diffusion geprägt ist, sind beim Dreipuls-Echozerfall eher T_1 -Relaxationsprozesse relevant. Die Ursache dafür ist, dass zwischen dem zweiten und dritten Puls die Phaseninformation der Tunnelsysteme nicht verändert wird. In dieser Zeit können nur T_1 -Prozesse wirken. Bei Zweipuls-Echos hingegen ist nur die zwischen dem ersten und zweiten Puls bzw. zwischen dem zweiten Puls und dem Echo akkumulierte Phasen entscheidend dafür, ob ein Tunnelsystem zum Echo beitragen kann. Da die T_1 -Relaxationsraten nach (2.20) für symmetrische Tunnelsysteme besonders groß sind, während die spektrale Diffusion nach (2.47) und (2.48) für asymmetrische Tunnelsysteme am schnellsten ist, unterscheiden sich die an Zwei- bzw. Dreipuls-Echos beteiligten Tunnelsysteme in ihrer Verteilung.

Abbildung 4.23 zeigt den relativen Beitrag eines Tunnelsystems mit der Asymmetrieenergie Δ zur Amplitude von Zweipuls-Echos (links) bzw. Dreipuls-Echos (rechts) in Abhängigkeit von $\frac{\Delta}{E}$ für verschiedene Pulsabstände. Dafür wurde das Argument des Integrals (4.7) in Abhängigkeit von $\frac{\Delta}{E}$ berechnet. Für $W_{2P/3P}$ wurde das Kurz-

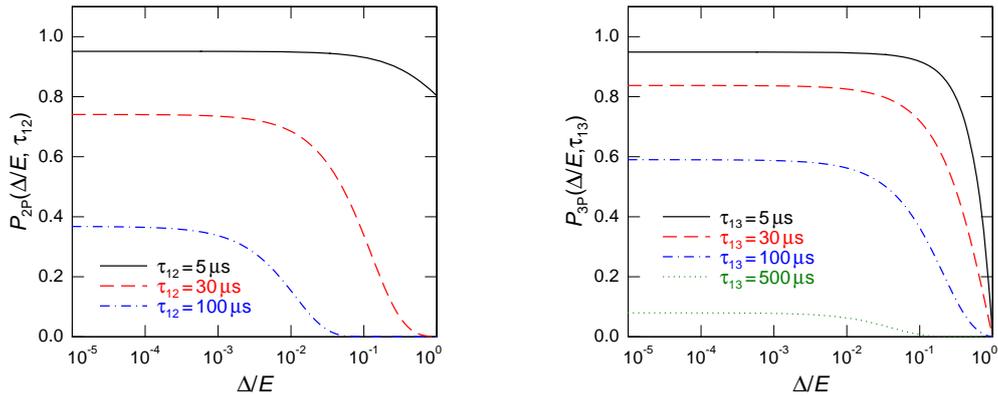


Abb. 4.23: Verteilung der an Zweipuls-Echos (links) und Dreipuls-Echos (rechts) beteiligten Tunnelsysteme in Abhängigkeit von $\frac{\Delta}{E}$ und verschiedenen Pulsabständen. In der Berechnung wurden das Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion und die T_1 -Relaxation berücksichtigt.

zeitlimit der spektralen Diffusion mit $m = 8,75 \cdot 10^9 \text{ s}^{-2}$ und für die Relaxationszeit $T_{1,\text{min}} = 200 \text{ } \mu\text{s}$ eingesetzt. Als erster Pulsabstand für die Dreipuls-Echos wurde $\tau_{12} = 5,5 \text{ } \mu\text{s}$ gewählt. Mit steigenden Pulsabständen kann man zwei Auswirkungen auf den relativen Beitrag der verschiedenen Tunnelsysteme unterscheiden:

1. Das Abschneiden der asymmetrischen Tunnelsysteme ($\frac{\Delta}{E} \approx 1$) verschiebt sich zu kleineren $\frac{\Delta}{E}$. Dies wird durch die spektrale Diffusion verursacht.
2. Das Plateau der symmetrischen Tunnelsysteme verschiebt sich nach unten. Dies ist auf die T_1 -Relaxation zurück zu führen.

Wie erwartet wird der Beitrag der asymmetrischen Tunnelsysteme bei Zweipuls-Echos deutlich schneller unterdrückt, während bei Dreipulsechos die Form der Verteilung nahezu erhalten bleibt und sich lediglich die Anzahl der Tunnelsysteme insgesamt ändert. Die Tatsache, dass unterschiedliche Tunnelsysteme zum Echo beitragen, lässt sich auch experimentell nachweisen. Da die Rabi-Frequenz Ω_R , mit der die Besetzungszahl der Tunnelsysteme während der Pulse oszilliert, proportional zu $\frac{\Delta_0}{E} = \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta}{E}\right)^2}$ ist, ist sie für symmetrische Tunnelsysteme größer. Da Echos üblicherweise im Limes sehr kurzer Pulse angeregt werden, macht sich die Verteilung der Rabi-Frequenzen bei den bisher gezeigten Messungen nicht bemerkbar. Werden jedoch die Pulse sehr lang, verändert sich die Form des Echos. Wir nennen dies meist „Überdrehen“, da die Pseudospinvektoren der Tunnelsysteme über den Winkel $\pi/2$ bzw. π hinaus gedreht werden. Sind insgesamt mehr symmetrische Tunnelsysteme am Echo beteiligt, sollte das Überdrehen deutlicher sein, da sie in der gleichen Zeit einen größeren Winkel überschreiten als asymmetrische. In Abbildung 4.24 sind mit Pulslängen von 790 ns ($\pi/2$ -Puls) und 1580 ns (π -Puls) angeregte Zweipuls-Echos bei den Pulsabständen 5 μs und 30 μs gezeigt. Das bei 5 μs aufgenommene Echo wurde mit einem willkürlichen Faktor so skaliert, dass seine Amplitude im Maximum mit der des bei 30 μs aufgenommenen Echos überein stimmte. Da bei kurzen Pulsabständen und sehr langen Pulsen Untergrundeffekte durch das Nachschwingen des zweiten Pulses auftreten, kann keine quantitative Analyse der Unterschiede durchgeführt werden. Man hat jedoch beim Vergleich der beiden Echos den Eindruck, dass das bei 30 μs aufgenommene Echo (schwarze Punkte), an dem mehr symmetrische Tunnelsysteme beteiligt sind, stärker verformt ist als das bei dem kürzeren Pulsabstand aufgenommene.

In 4.25 sind analog überdrehte Dreipuls-Echos mit einer Länge der anregenden Pulse von 700 ns und drei verschiedenen Pulsabständen τ_{13} abgebildet. Zunächst fällt auf, dass sie sich vom Verlauf her eher einem Rotationsecho annähern, während die überdrehten Zweipuls-Echos Schultern ausbilden. Auch hier machen Untergrundeffekte bei kurzen τ_{13} die Analyse schwierig. Man kann jedoch vermuten, dass der

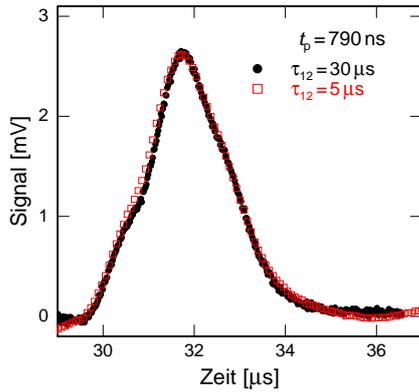


Abb. 4.24: Mit 790 ns und 1580 ns langen Pulsen aufgenommene Zweipuls-Echos bei zwei verschiedenen Pulsabständen τ_{12} .

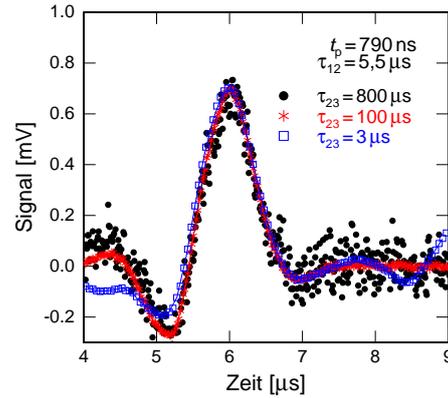


Abb. 4.25: Mit 700 ns langen Pulsen aufgenommene Dreipuls-Echos mit dem ersten Pulsabstand $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ und drei verschiedenen Pulsabständen τ_{13} .

Unterschwinger bei dem mit $\tau_{13} = 3 \mu\text{s}$ aufgenommenen Echo etwas weniger stark ausgeprägt ist. Auch dies könnte darin begründet liegen, dass sich die Verteilung bei derart kurzen Pulsabständen noch hauptsächlich durch die spektrale Diffusion bestimmt wird und noch ein größerer Anteil der Tunnelsysteme asymmetrisch sind. Da die Unterschiede in den hier gezeigten Messungen sehr subtil sind, man aber wegen der Untergrundeffekte nicht mit längeren Pulsen messen kann, sollten analoge Tests mit kurzen Pulsen bei einer deutlich erhöhten Leistung des eingestrahlten Wechselfelds durchgeführt werden.

4.5.2 Vergleich der Zerfallskurven mit theoretischen Berechnungen

Bevor die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Rechnungen diskutiert werden, sollen noch kurz die Vorarbeiten von [Fas10] zusammengefasst werden. Dort wurden die auch in dieser Arbeit diskutierten Zweipuls-Polarisationsechomessungen mit numerischen Berechnungen der spektralen Diffusion verglichen. Dabei wurde die T_1 -Relaxation zunächst nicht berücksichtigt. Eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Daten und Experiment wurde für das Kurzzeitlimit gefunden, wenn eine minimale Asymmetrieenergie $\Delta_{\min} \approx k_B \cdot 5,56 \mu\text{K}$ angenommen wurde. Die Einführung des Δ_{\min} sorgt dafür, dass das Zweipuls-Echo bei großen Pulsabständen schneller zerfällt, weil weniger dekohärenzstabile symmetrische Tunnelsysteme vorhanden sind. Bei höheren Temperaturen wurde zusätzlich das mittlere Regime der spektralen Diffusion (2.49) herangezogen, um den etwas langsamer verlaufenden Zerfall bei großen Pulsabständen zu erklären. Unter Einbeziehung einer Relaxationszeit $T_{1,\min} \approx 2 \text{ ms}$ konnten die Daten bei 7,5 mK ebenfalls gut beschrieben werden, wenn

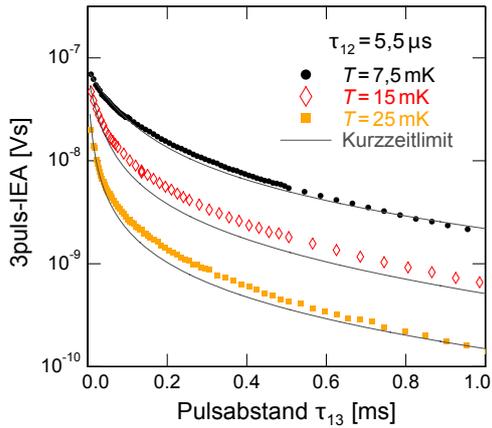
noch $\Delta_{\min} \approx k_B \cdot 2,57 \mu\text{K}$ angenommen wurde. Der Wert für $T_{1,\min}$ wurde dabei aus einer einzelnen Dreipuls-Echomessung bei 7 mK bis zu einem Pulsabstand von $\tau_{13} = 2 \text{ ms}$ ermittelt.

Nach Messung der Dreipuls- und Pausenrotationsechos wissen wir, dass die T_1 -Relaxationszeiten kürzer sein sollten als der bei [Fas10] gefundene Wert $T_{1,\min} \approx 2 \text{ ms}$. Außerdem überdeckt in dem Zeitbereich, aus dem in [Fas10] $T_{1,\min}$ ermittelt wurde, der noch unbekannte temperaturunabhängige Effekt die T_1 -Relaxation, weshalb die Anpassung einer berechneten Zerfallskurve der Form (4.7) an die Daten keinen echten Wert für $T_{1,\min}$ liefern kann, auch wenn die Übereinstimmung zwischen berechneter und gemessener Kurve gut ist. Aus diesen Gründen wollen wir nun versuchen, unter Einbeziehung aller Datensätze, der spektralen Diffusion und der T_1 -Relaxation einen einheitlichen Satz von Relaxationszeiten $T_{1,\min}$, $T_{2,\min}$ und, wenn nötig, Δ_{\min} zu finden, der die Daten vollständig beschreibt. Wir konzentrieren uns wegen der Probleme bei der Bestimmung von $T_{1,\min}$ dabei zunächst auf die Ermittlung der Dekohärenzzeiten $T_{2,\min}$. Da wegen des stärkeren Einflusses der T_1 -Relaxation ein hypothetisches Δ_{\min} in der Größenordnung einiger μK die Zerfallscharakteristik der Dreipuls-Echos nicht verändert, sollten die Werte für $T_{2,\min}$ zunächst aus den Dreipuls-Echomessungen ermittelt werden. Dafür wurde das Integral

$$A_{3\text{P}}(\tau_{13}) = A_0 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \int_0^1 dq (1 - q^2) e^{-(1-q^2)(\tau_{12}+\tau_{13})/T_{1,\min}} e^{-qm\tau_{12}\tau_{13}}, \quad (4.8)$$

das die spektrale Diffusion im Kurzzeitlimit $\tau_{12}, \tau_{13} \ll T_1$ und die Relaxation mit T_1 beinhaltet, numerisch gelöst. Die Amplitude A_0 , die für die hypothetische Echoamplitude bei $T = 0$ und $\tau_{13} = 0$ steht, wurde durch Vergleich der berechneten Kurven mit dem Datensatz mit $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ und $T = 7,5 \text{ mK}$ zu $A_0 = 11,5 \text{ Vs}$ bestimmt und für die anderen Temperaturen konstant gehalten. Anschließend wurden die Zerfallsparameter $m = T_{2,\min}^{-2}$ und $T_{1,\min}$ so angepasst, dass sie die Zerfallskurve möglichst gut wiedergaben. In Abbildung 4.26 ist das Ergebnis dieser Rechnungen für Temperaturen zwischen 7,5 mK und 25 mK und den ersten Pulsabstand $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ im Vergleich mit den Messdaten aufgetragen. Die verwendeten Werte für $T_{2,\min}$ und $T_{1,\min}$ waren:

- für $T = 7,5 \text{ mK}$: $T_{2,\min} = 12 \mu\text{s}$ und $T_{1,\min} = 3,33 \text{ ms}$,
- für $T = 15 \text{ mK}$: $T_{2,\min} = 6,7 \mu\text{s}$ und $T_{1,\min} = 2 \text{ ms}$,
- für $T = 25 \text{ mK}$: $T_{2,\min} = 3,9 \mu\text{s}$ und $T_{1,\min} = 2,5 \text{ ms}$.

**Abb. 4.26:**

Vergleich der Dreipuls-Echodaten mit $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ mit der Theorie für drei verschiedene Temperaturen. Hier wurde nur das Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion (2.53) verwendet. Die Theorie beschreibt bei $T \geq 25 \text{ mK}$ nur noch den ersten Datenpunkt.

Das Ergebnis der Berechnungen scheint zumindest für $T = 7,5 \text{ mK}$ recht gut mit den experimentellen Daten überein zu stimmen. Die Abweichung zwischen etwa 100 und $500 \mu\text{s}$ wird durch einen Sprung in den Daten verursacht, der möglicherweise auf eine 1K-Topf-Öffnung zurückzuführen ist. Die Theoriekurve verläuft in dem ganzen Bereich parallel zu den Daten. Bei höheren Temperaturen kann die Theorie die Daten jedoch nicht mehr beschreiben. Der durch die spektrale Diffusion verursachte Zerfall bei kleinen τ_{13} verläuft so steil, dass bei $T \geq 25 \text{ mK}$ nun noch der erste gemessene Punkt getroffen wird. Anschließend müsste ein unrealistisch großer Wert für $T_{1,\text{min}}$ gewählt werden, um die experimentellen Daten bei langen τ_{13} zu erklären. Dieser Wert liegt um etwa eine Größenordnung über den aus dem Ein-Phonon-Prozess (2.20) theoretisch berechneten Werten und weist darüber hinaus keine klare Temperaturabhängigkeit auf, sondern streut um einen Mittelwert von etwa $2,5 \text{ ms}$. Darin spiegelt sich erneut die bereits diskutierte Temperaturunabhängigkeit des Zerfalls bei großen τ_{13} . Die für $T_{2,\text{min}}$ erhaltenen Werte dagegen entsprechen sowohl in der Größenordnung als auch in ihrem Temperaturverlauf den Erwartungen. Die spektrale Diffusion im Kurzzeitlimit kann demnach die Reduktion der Echoamplitude im Limes kurzer Pulsabstände τ_{13} mit steigender Temperatur gut beschreiben. Allerdings ist insbesondere bei hohen Temperaturen die Dekohärenz durch die spektrale Diffusion zum großen Teil abgeschlossen, wenn die Zerfallskurven beginnen. Dazu betrachten wir die Zerfallskurve, die bei 25 mK aufgenommen wurde. Vergleicht man die aus dem Vergleich mit der Theorie ermittelte charakteristische Dekohärenzzeit $T_{2,\text{min}} = 3,9 \mu\text{s}$ mit der Zeit $\tau_{12} + \tau_{13,\text{min}} = 12 \mu\text{s}$, während derer die spektrale Diffusion angreift, so sind zu Beginn der Messung nur noch weniger als 10 % der mit dem ersten Puls angeregten Tunnelsysteme in Phase. Andererseits sollte die Bedingung $\tau_{13} \ll T_1 \approx 200 \mu\text{s} \cdot \left(\frac{E}{\Delta_0}\right)^2$ bei 25 mK noch gelten. Es gibt also zwei Möglichkeiten, warum die Übereinstimmung zwischen Kurzzeitlimit und Daten so unbefriedigend ist: entweder gelten die für das Kurzzeitlimit gemachten Näherungen nicht mehr,

oder es gibt einen weiteren Mechanismus im Glas, der die spektrale Diffusion für einen kleinen Teil der angeregten Tunnelsysteme unterdrückt.

Durch die Verallgemeinerung des Dekohärenzterms W_{3P} auf einen längeren Zeitbereich, $\tau_{13} \geq T_1$, soll nun festgestellt werden, ob eine bessere Übereinstimmung zwischen Daten und der Theorie möglich ist. Für die Zweipuls-Echos wurde die spektrale Diffusion in dem Regime $\tau_{12} > T_1$ bereits durch Black und Halperin hergeleitet, siehe dazu Gleichung (2.49). Um einen allgemeinen Ausdruck für die spektrale Diffusion zu finden, muss der Mittelwert über die Phasenentwicklungen der resonanten A-Tunnelsysteme in Wechselwirkung mit den thermisch aktiven Nachbarn gebildet werden:

$$\left\langle \exp \left(\frac{i}{\hbar} \int_0^{\tau_{12}} dt' (E(t') - E(\tau_{13} + t')) \right) \right\rangle. \quad (4.9)$$

Hier ist $E(t')$ die zeitabhängige Energieaufspaltung des Tunnelsystems. Führt man diese Mittelung durch, unter der Annahme, dass $\tau_{12} \ll \tau_{13}$ und $\tau_{12} \ll 1/T_{1,\min}^{\text{th}}$, wobei $T_{1,\min}^{\text{th}}$ die minimale Relaxationszeit der thermischen Tunnelsysteme ist, erhält man als Ergebnis [Bur12]

$$W_{2P,3P} = \exp(-q G(\tau_{12}, \tau_{13})) \quad \text{mit} \\ G(\tau_{12}, \tau_{13}) = \frac{2\pi^2}{3\hbar} \bar{P} U_0 k_B T \tau_{12} \int_0^1 \frac{dq_0}{q_0} \int_0^\infty \frac{du}{\cosh^2(u)} \left(1 - e^{-q_0^2 k_s(2u k_B T, T) \tau_{13}} \right) \quad (4.10)$$

Dabei ist U_0 der Mittelwert der Kopplungsstärke zwischen zwei Tunnelsystemen (s. Abschnitt 2.4.2), \bar{P} die als konstant angenommene Wahrscheinlichkeitsverteilung aus dem Standardtunnelmodell. Die Variable $q_0 = \frac{\Delta_0}{E}$ wird für die Integration über alle resonanten Tunnelsysteme herangezogen und $u = \frac{E'}{2k_B T}$ ist die auf die thermische Energie $k_B T$ normierte Energieaufspaltung der resonanten Tunnelsysteme. Die Rate k_s ist die maximale T_1 -Relaxationsrate nach Gleichung (2.20) für symmetrische Tunnelsysteme, d.h. $k_s(E, T) = T_{1,\min}^{-1}(E, T)$. Das Doppelintegral in (4.10) ist nicht analytisch lösbar. Nach [Bur12] findet man jedoch zwei Grenzwerte für Pulsabstände, die entweder deutlich oberhalb oder deutlich unterhalb der T_1 -Relaxationszeit der thermischen Tunnelsysteme liegen

$$G(\tau_{12}, \tau_{13}) \approx \begin{cases} m_0 \frac{\tau_{12} \tau_{13}}{T_{1,\min}^{\text{th}}} & \text{für } \tau_{13} < T_{1,\min}^{\text{th}} \\ m_0 \tau_{12} \ln \left(\frac{\tau_{13}}{T_{1,\min}^{\text{th}}(T)} \right) & \text{für } \tau_{13} > T_{1,\min}^{\text{th}} \end{cases} \quad (4.11)$$

mit

$$m_0 = \frac{\pi^2}{3\hbar} k_B T \bar{P} U_0 . \quad (4.12)$$

Für Zweipuls-Echos gelten diese Gleichungen ebenfalls, wenn anstatt τ_{13} der Pulsabstand τ_{12} eingesetzt wird. Den soeben gemachten Überlegungen folgend, wurden die Daten in einer zweiten Analyse mit einer Funktion

$$A_{3P}(\tau_{13}) = A_0 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \int_0^1 dq (1-q^2) e^{-(1-q^2)(\tau_{12}+\tau_{13})/T_{1,\min}} e^{-qm_0\tau_{12} \ln(1+n\tau_{13})} \quad (4.13)$$

verglichen. Der Parameter m_0 ist derselbe wie in (4.12). Für ihn erwarten wir die Temperaturabhängigkeit $m_0 \propto T$. Der Parameter n wird hauptsächlich durch die T_1 -Relaxationsrate thermischer Tunnelsysteme bestimmt und sollte $n \propto T^3$ genügen. Für sehr kleine τ_{13} kann der Logarithmus im Exponenten von (4.13) durch die Beziehung $\ln(1+x) \approx x$ angenähert werden. In diesem Fall verkürzt sich der Exponent zu $-qm_0\tau_{12} \ln(1+n\tau_{13}) \approx -qm_0\tau_{12}\tau_{13}$, was exakt dem Kurzzeitlimit analog (2.47) entspricht, mit $m(T) = T_{2,\min}^{-2} = m_0(T)n(T)$.

Das Ergebnis der Berechnungen ist am Beispiel der Kurven mit $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ bei den Temperaturen 7,5 mK und 15 mK in Abbildung 4.27 dargestellt. Es wurden mehrere berechnete Kurven eingezeichnet, die jeweils in einem bestimmten Bereich von τ_{13} zu

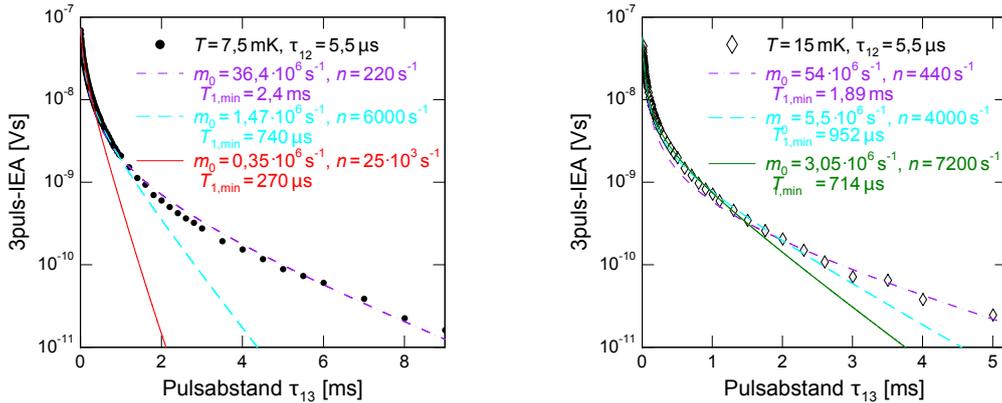


Abb. 4.27: Vergleich der Dreipuls-Echoamplitude mit $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ mit der um das Langzeitlimit erweiterten Theorie bei 7,5 mK und 15 mK. In verschiedenen Bereichen von τ_{13} sind völlig verschiedene Parameter m_0 , n und $T_{1,\min}$ nötig, um die Daten zu beschreiben. Das Produkt $m_0 n = m$ bleibt dabei konstant. Der Wert A_0 beträgt 12,1 Vs.

T [mK]	m_0 [10^6 s^{-1}]	n [10^3 s^{-1}]	m [10^9 s^{-2}]	$T_{2,\min}$ [μs]	$T_{1,\min}$ [μs]
7,5	0,31	28	8,75	10,3	242
15	0,63	37	23,56	6,5	199
25	1,4	62,6	87,6	3,4	147
40	2,78	130	361,5	1,7	100
55	4,6	266	1222	0,9	75
70	7	380	2660	0,6	60

Tab. 4.2: In den Modellrechnungen nach Gleichung (4.13) verwendete Fitparameter und daraus resultierende Relaxations- und Dekohärenzzeiten. Die effektive Dekohärenzzeit $T_{2,\min} = \sqrt{m^{-1}}$. Für $T_{1,\min}$ wurden Werte aus den in Kapitel 4.5.3 gefundenen Parametern berechnet.

einer besonders guten Übereinstimmung mit den Daten führen. Die verwendeten Fitparameter sind in der Abbildung angegeben. Für die Amplitude A_0 wurde der Wert $12,1 \cdot 10^{-8}$ Vs verwendet. Werden die Theoriekurven an verschiedenen τ_{13} -Bereiche angepasst, muss insbesondere der Wert für $T_{1,\min}$ verändert werden. Um die gemessenen Daten bei großen Pulsabständen τ_{13} in der Rechnung zu reproduzieren, waren $T_{1,\min}$ von etwa 2 ms nötig, während im Limit sehr kurze Zeiten $T_{1,\min}$ im Bereich weniger 100 μs lag. Das Produkt $m_0 n = 1/T_{2,\min}^2$ hingegen bleibt relativ konstant. Ein kleinerer Wert für den Fitparameter n kann eine größere T_1 -Relaxationsrate $T_{1,\min}$ bis zu einem gewissen Grad ausgleichen. Allerdings muss der Parameter m_0 dann so groß gewählt werden, dass die Theoriekurven bei mittleren τ_{13} deutlich unterhalb der Daten verlaufen. Dass der Fitparameter n und die Relaxationsrate $T_{1,\min}$ sich analog verhalten ist nach Gleichung (4.11) zu erwarten. Bis auf einen numerischen Faktor gibt n die minimale T_1 -Relaxationsrate thermischer Tunnelsysteme wieder, die sich nach (2.20) von der T_1 -Relaxationsrate der resonanten Systeme um einen temperaturabhängigen Faktor $f(E, T) = \frac{T_1^{\text{th}}}{T_1} = \frac{(E/k_B)^3 \coth(E/(2k_B T))}{T^3 \coth(1/2)}$ unterscheiden.

Um trotz dieser Freiheit eine verlässliche Aussage über die spektrale Diffusion bei Zwei- und Dreipuls-Echos treffen zu können, müssen Werte für $T_{1,\min}$ festgelegt werden. Da diese leider nicht den Pausenrotationsechos entnommen werden konnten, werden wir nun in der Argumentation vorgreifen müssen, und die $T_{1,\min}$ verwenden, die später in einer allgemeineren Theorie begründet werden. Dazu soll auf Abschnitt 4.5.3 verwiesen werden. Die verwendeten Werte für $T_{1,\min}$ können Tabelle 4.2 entnommen werden³. Wird $T_{1,\min}$ festgelegt, gibt es nur noch ein Paar (m_0, n) , das den Zerfall der Dreipuls-Polarisationsechos mit $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$ optimal beschreibt. Für die Amplitude zur Zeit $\tau_{13} = 0$ bei $T = 0$ ergab $A_0 = 12,1 \cdot 10^{-8}$ Vs die beste Überein-

³Die Wahl der Relaxationszeit $T_{1,\min}$ und ihrer Temperaturabhängigkeit hat einen Einfluss auf die Größe und Temperaturabhängigkeit der Fitparameter m_0 und n . Das Produkt $m_0 n = T_{2,\min}^{-2}$ bleibt jedoch in allen Fällen erhalten.

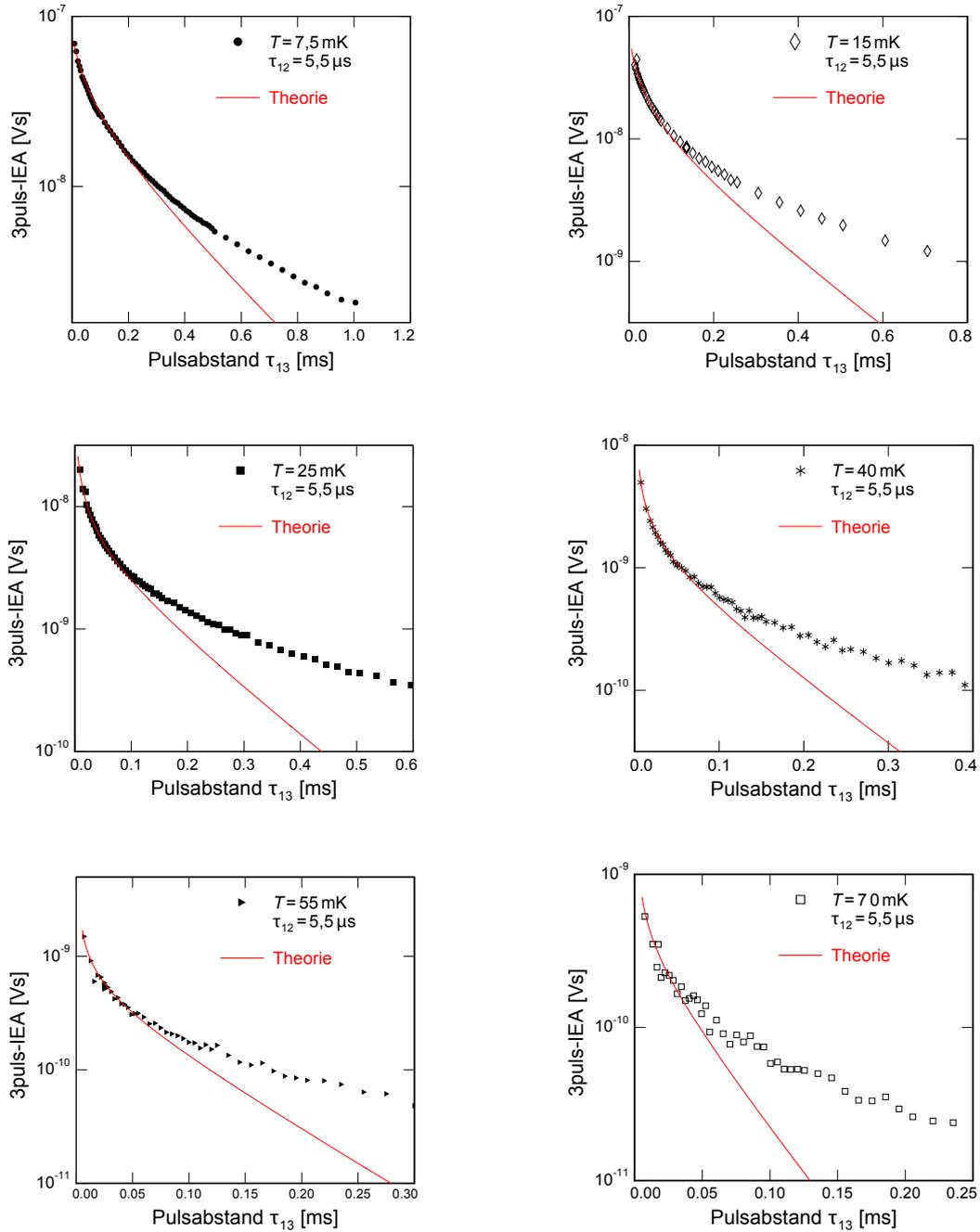


Abb. 4.28: Vergleich der gemessenen Dreipuls-Echozerfälle (Symbole) mit den über (4.13) berechneten Theoriekurven (durchgezogene Linien) bei sechs verschiedenen Temperaturen und einem ersten Pulsabstand von $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$. Die für m_0 , n und $T_{1,\text{min}}$ verwendeten Werte können Tabelle 4.2 entnommen werden. Die Amplitude für $T = 0, \tau_{13} = 0$ betrug $A_0 = 12,1 \cdot 10^{-8} \text{ Vs}$.

stimmung bei kleinen Zeiten. Alle verwendeten Parameter, die Phasenkohärenzzeit der asymmetrischen Tunnelsysteme $T_{2,\min} = (\sqrt{m_0 n})^{-1}$ und die Relaxationszeit sind in Tabelle 4.2 aufgeführt. Der Vergleich der Fitkurven mit den Messdaten ist in Abbildung 4.28 aufgetragen.

Wie man in Abbildung 4.28 sieht, kann die Theorie die Messdaten nun bis zu einem Pulsabstand von etwa $200 \mu\text{s}$ bei $7,5 \text{ mK}$ und immerhin $30 \mu\text{s}$ bei 70 mK beschreiben. Bei größeren Pulsabständen dominiert die T_1 -Relaxation den berechneten Zerfall. Diese ist mit den hier angenommenen Werten für $T_{1,\min}$, die bei kurzen Pulsen zu einer guten Übereinstimmung mit den Daten führen, bei längeren Pulsabständen sehr viel schneller als der im Experiment gefundene Zerfall. Eine mögliche Ursache ist, dass die gewählten Werte für T_1 noch immer zu klein sind. Doch selbst wenn die aus der Ein-Phonon-Relaxation berechneten Werte zugrunde gelegt würden, die in

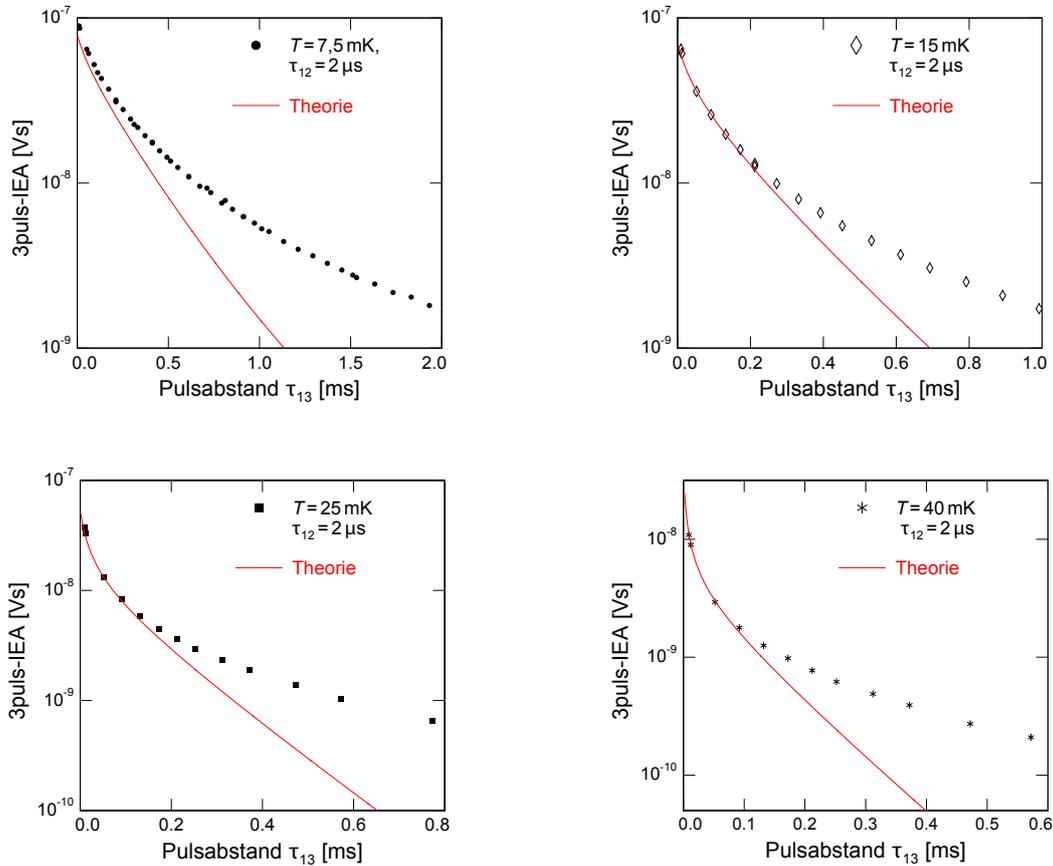


Abb. 4.29: Vergleich der gemessenen Dreipuls-Echozerfälle (Symbole) mit den über (4.13) berechneten Theoriekurven (durchgezogene Linien) bei sechs verschiedenen Temperaturen und einem ersten Pulsabstand von $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$. Die für m_0 , n und $T_{1,\min}$ verwendeten Werte können Tabelle 4.2 entnommen werden. Die Amplitude für $T = 0$, $\tau_{13} = 0$ betrug $A_0 = 12,1 \cdot 10^{-8} \text{ Vs}$.

Tabelle 4.1 angegeben sind, würden die Daten nur über einen unwesentlich längeren Zeitbereich gut beschrieben werden.

Auch für die Dreipuls-Echos mit einem ersten Pulsabstand von $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$ bzw. $15 \mu\text{s}$ wurde die Echoamplitude nach Gleichung (4.13) und den Parametern nach Tabelle 4.2 berechnet und mit den Daten verglichen. Das Ergebnis ist in den Abbildungen 4.30 und 4.29 dargestellt. Bei mittleren Temperaturen passen die berechneten Kurven genauso gut und bis zu etwa den gleichen Pulsabständen τ_{13} mit den Daten überein wie im Falle von $\tau_{12} = 5,5 \mu\text{s}$. Bei der Temperatur von $7,5 \text{ mK}$ sind größere Abweichungen zu sehen: Die berechnete Kurve für den ersten Pulsabstand $\tau_{12} = 2 \mu\text{s}$ liegt systematisch unterhalb der Messwerte, bei dem ersten Pulsabstand $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ ist es umgekehrt. Die Ursache ist möglicherweise eine weniger gute Temperaturstabilität nahe der Basistemperatur des Kryostaten. Man sollte auch im folgenden beachten, dass die für m_0, n und $T_{2,\text{min}}$ ermittelten Werte bei der Temperatur $T = 7,5 \text{ mK}$ eine größere Unsicherheit besitzen. Die Abweichung bei der Temperatur $T = 70 \text{ mK}$ und dem ersten Pulsabstand $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$ geht vermutlich darauf zurück, dass die Echoamplituden bei diesen hohen Temperaturen stärker streuen und eine größere Freiheit bei der Wahl der Dekohärenzzeit und Fitparameter erlauben. Der Wert von $m = T_{2,\text{min}}^{-2}$ bei $T = 70 \text{ mK}$ in Tabelle 4.2 könnte etwas zu klein gewählt sein.

Nun soll überprüft werden, ob auch der Zerfall der Zweipuls-Echoamplitude mit steigendem Pulsabstand τ_{12} mit den gleichen Parametern erklärbar ist. Dazu wurde das Integral

$$A_{2P}(\tau_{12}) = A_0 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \int_0^1 dq (1 - q^2) e^{-(1-q^2) \cdot 2\tau_{12}/T_{1,\text{min}}} e^{-qm_0\tau_{12} \ln(1+n\tau_{12})} \quad (4.14)$$

numerisch berechnet. Es beinhaltet die T_1 -Relaxation und die spektrale Diffusion, die über den gleichen logarithmischen Ansatz verwendet wird wie er in (4.11) für Dreipuls-Echos hergeleitet wurde. Für die Fitparameter m_0 und n und die minimale Relaxationszeit $T_{1,\text{min}}$ wurden die in Tabelle 4.2 aufgeführten Werte, d.h. dieselben Parametersätze wie für die Dreipuls-Echos, eingesetzt. Da die Daten in einer anderen Messreihe aufgenommen wurden, musste für A_0 ein neuer Wert ermittelt werden: $A_0 = 4,5 \cdot 10^{-7} \text{ Vs}$. Der Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Echozerfällen ist in Abbildung 4.31 dargestellt. Wie man erkennt ist die Übereinstimmung hervorragend. Der maximale Pulsabstand, für den noch eine gute Übereinstimmung gefunden wird, entspricht recht gut dem maximalen Pulsabstand τ_{13} , bei dem bei den Dreipuls-Echos noch eine gute Übereinstimmung gefunden wurde und liegt in der Größenordnung von $T_{1,\text{min}}$. Jedoch ist auch hier deutlich zu erkennen, dass bei größeren Zeiten die berechnete Echoamplitude schneller abnimmt als die gemessene.

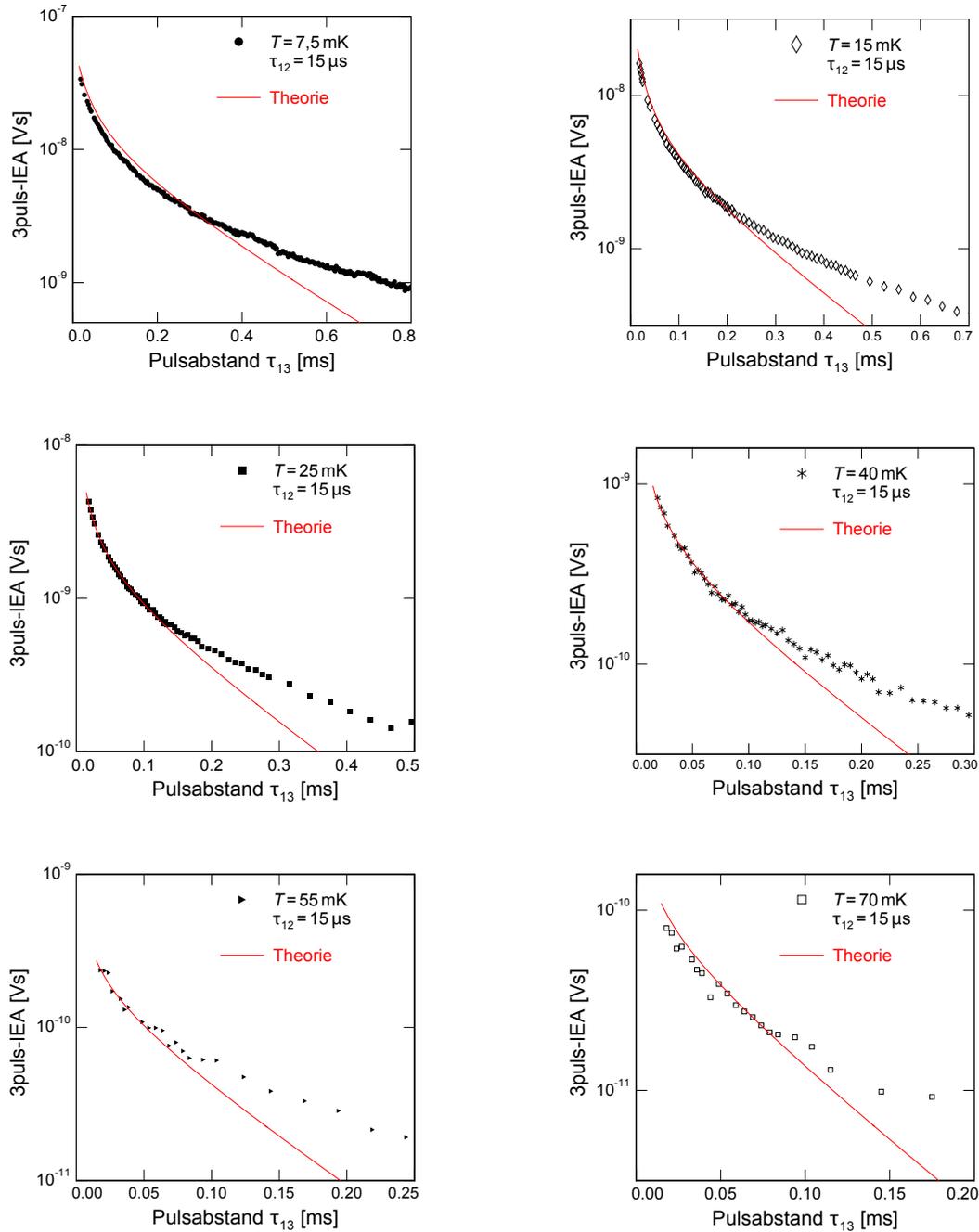


Abb. 4.30: Vergleich der gemessenen Dreipuls-Echozerfälle (Symbole) mit den über (4.13) berechneten Theoriekurven (durchgezogene Linien) bei sechs verschiedenen Temperaturen und einem ersten Pulsabstand von $\tau_{12} = 15 \mu\text{s}$. Die für m_0 , n und $T_{1,\text{min}}$ verwendeten Werte können Tabelle 4.2 entnommen werden. Die Amplitude für $T = 0$, $\tau_{13} = 0$ betrug $A_0 = 12,1 \cdot 10^{-8} \text{ Vs}$.

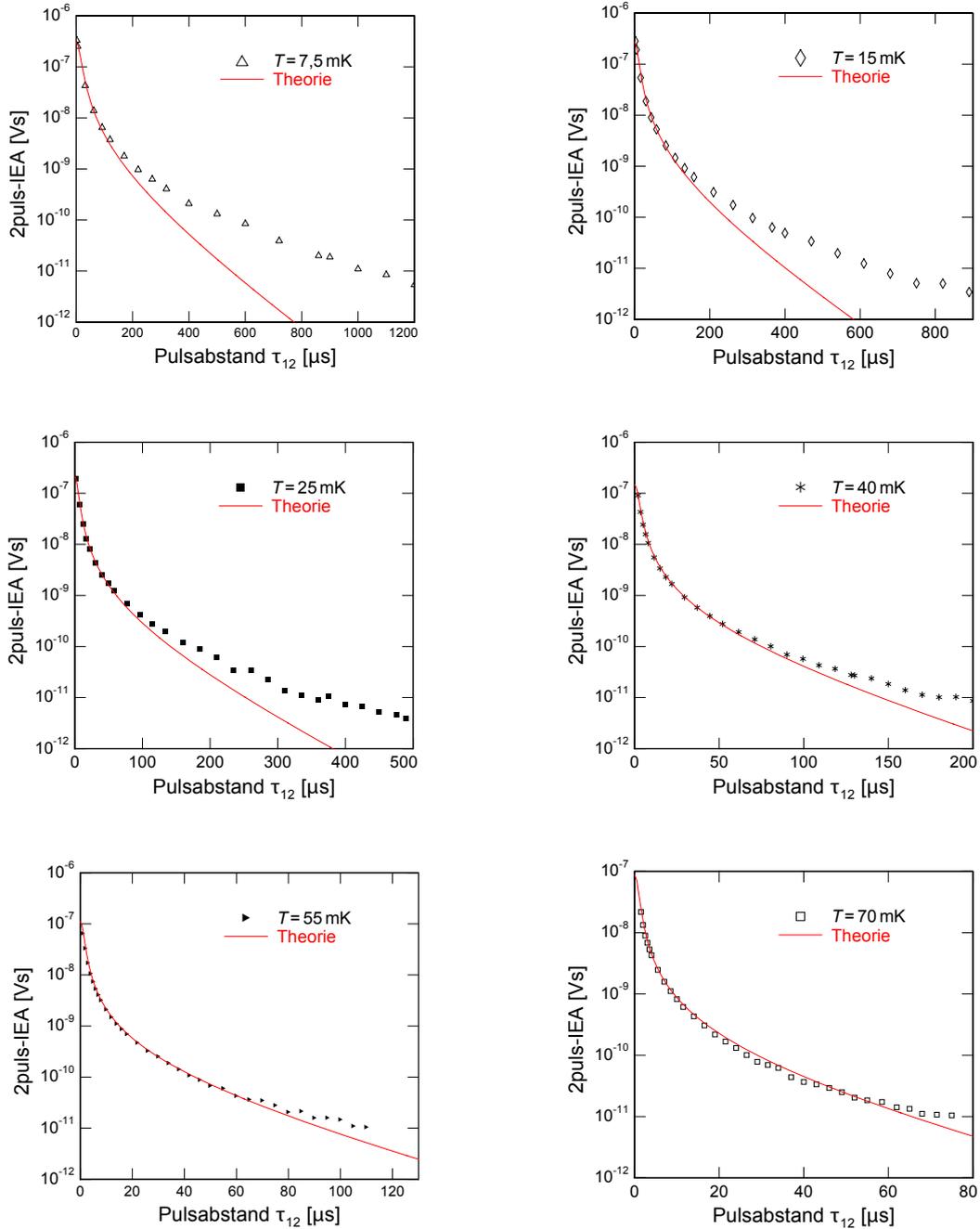


Abb. 4.31: Gemessene Zweipuls-Echozerfälle (Symbole) mit den über (4.13) berechnete Theoriekurven (durchgezogene Linien) bei sechs verschiedenen Temperaturen. Es wurden die gleichen Fitparameter verwendet, wie aus den Dreipuls-Echos ermittelt. Die für m_0 , n und $T_{1,\min}$ verwendeten Werte können Tabelle 4.2 entnommen werden. Die Amplitude für $T = 0, \tau_{12} = 0$ betrug $A_0 = 4,5 \cdot 10^{-7}$ Vs. Daten aus: [Fas10].

ne. Die Einführung eines Δ_{\min} ist folglich zunächst nicht sinnvoll, da es zu noch kleineren berechneten Echoamplituden bei großen Pulsabständen führen würde. Unter Einbeziehung aller Zwei- und Dreipuls-Echodaten und der bislang diskutierten theoretischen Berechnungen drängt sich die Schlussfolgerung auf, dass es unabhängig vom Typ der Polarisationsechos ein Subensemble von Tunnelsystemen gibt, das nicht oder kaum an Relaxations- und Dekohärenzprozessen teilnimmt und dadurch länger überlebt, als bisher angenommen.

Bevor jedoch die Eigenschaften dieser relaxations- und dekohärenzstabilen Tunnelsysteme diskutiert und ein Modell für diese vorgeschlagen wird, sollen noch die erhaltenen Werte für die Dekohärenzzeiten und ihre Temperaturabhängigkeit diskutiert werden. In Abbildung 4.32 ist die quadrierte Dekohärenzrate $T_{2,\min}^{-2} = m_0 n$ doppelt logarithmisch gegen die Temperatur aufgetragen. Dieser Wert beschreibt vor allem, um wieviel die Echoamplitude in Abhängigkeit von der Temperatur beim Pulsabstand $\tau_{13,\min}$ bereits abgenommen hat und entspricht exakt dem von Black und Halperin eingeführten Zerfallparameter m , der in Abschnitt 2.4.1 hergeleitet wurde. Wie dort besprochen erwartet man für $T_{2,\min}^{-2}$ eine Proportionalität zu T^4 . Zum besseren Vergleich wurde in Abbildung 4.32 eine Gerade mit Steigung 4 eingezeichnet. Wie man deutlich erkennt, folgen die Werte von $T_{2,\min}^{-2}$ bei $T \geq 40$ mK der erwarteten T^4 -Abhängigkeit. Für niedrige Temperaturen flacht die Temperaturabhängigkeit jedoch ab. Sollte dies der Temperaturbereich sein, in dem laut Burin et al [Bur98a] die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen in kollektive Anregungen übergeht, müsste die Temperaturabhängigkeit quadratisch werden, da sowohl $m_0(T) \propto T$ als auch $n(T) \propto T_{1,\min}^{\text{th}}(T) \propto T$. Wie man beim Vergleich mit der gestrichelten Linie in Abbildung 4.32 erkennt, ist dies durchaus möglich, aber nicht eindeutig feststellbar. Um sicher zu sein, dass ein quadratischer Verlauf mit der Temperatur vorliegt und nicht etwa ein Übergang zu einem noch flacheren Verhalten, müssten noch Daten bei tieferen Temperaturen gemessen werden. Dies ist mit dem Verdünnungskryostaten,

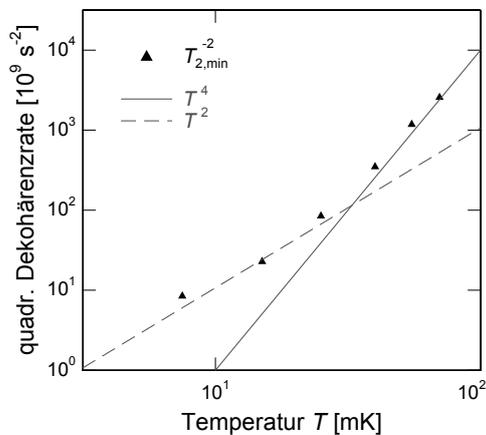


Abb. 4.32: Verlauf der quadrierten Dekohärenzrate $m = T_{2,\min}^{-2}$ in Abhängigkeit von der Temperatur. Bei großen Temperaturen folgt $m(T)$ dem erwarteten T^4 -Verlauf aus dem Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion. Bei tieferen Temperaturen geht $m(T)$ in einen möglicherweise quadratischen Verlauf über.

in dem die Messungen durchgeführt wurden, leider nicht möglich. Es wird aber in naher Zukunft ein Echoaufbau in einen Kernentmagnetisierungskryostaten mit Endtemperaturen von unter $50 \mu\text{K}$ eingebaut werden, mit dem diese Frage dann geklärt werden kann.

Der Übergang von der T^4 -Abhängigkeit zur quadratischen Temperaturabhängigkeit findet bei einer Temperatur von etwa $T = 33 \text{ mK}$ statt. In Abschnitt 2.4.2 wurde die kritische Temperatur T_c hergeleitet, unterhalb derer eine Clusterbildung der Paaranregungen möglich ist:

$$T_c \approx \frac{\bar{P}U_0}{k_B} \sqrt{\frac{c^3 \hbar^3}{U_0}} . \quad (4.15)$$

Dabei ist \bar{P} die als konstant angenommene Wahrscheinlichkeitsverteilung aus dem Standardtunnelmodell, U_0 die mittlere Kopplungsstärke zwischen zwei Tunnelsystemen, und c die Schallgeschwindigkeit. Den Wert von U_0 kann man folgendermaßen abschätzen: $U_0 \approx \frac{\gamma^2}{\rho c^2}$ [Bur98a] mit der Dichte ρ und der elastischen Kopplungskonstanten γ . Die Dichte \bar{P} berechnet man aus dem Produkt $\bar{P}p^2$, das aus Messungen der dielektrischen Funktion bekannt ist [Woh01] und einem Dipolmoment von $p \approx 2 \text{ Debye}$. Mit den Werten aus Tabelle 3.2 ergibt sich eine kritische Temperatur von

$$T_c = 28 \text{ mK} . \quad (4.16)$$

Dies stimmt in Anbetracht der Unsicherheiten bei der Bestimmung von U_0 und \bar{P} gut mit den gemessenen Daten überein.

In den Abbildungen 4.33 und 4.34 sind auch die Parameter m_0 und n in Abhängigkeit der Temperatur doppel-logarithmisch aufgetragen. Der Vorfaktor m_0 sollte eine relativ klare lineare Temperaturabhängigkeit aufweisen. Wie man sieht, verläuft er aber etwas steiler. Der von der Relaxationsrate der thermischen Tunnelsysteme abhängige Zerfallparameter n sollte bei hohen Temperaturen einem T^3 -Gesetz folgen, das aus der Relaxation nach dem Ein-Phononen-Prozess stammt, und könnte bei tiefen Temperaturen $T < 40 \text{ mK}$ in einen linearen Verlauf übergehen, wie er aus der Theorie der durch Paarwechselwirkungen verursachten Relaxation erwartet wird. Aus Abbildung 4.34 ist ersichtlich, dass der Verlauf von $n(T)$ im gesamten Temperaturbereich etwas zu flach ausfällt. Eine Ursache hierfür könnte sein, dass der Verlauf der Relaxationszeiten $T_{1,\text{min}}$, die in die Rechnungen eingesetzt wurden, nicht exakt richtig ist. Das würde dazu führen, dass man beim Anpassen der Fitkurve auch n nicht ganz richtig wählt. Da das Produkt $m_0 n$ starr festgelegt ist, würde dadurch auch m_0 beeinflusst. Eine weitere Möglichkeit ist, dass der analytische Ausdruck

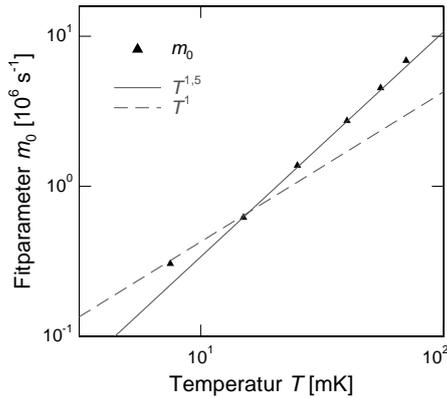


Abb. 4.33: Verlauf des Fitparameters m_0 in Abhängigkeit von der Temperatur. Der Verlauf ist etwas steiler als der erwartete $m_0 \propto T$.

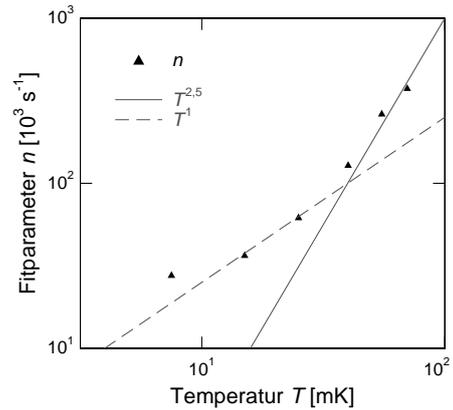


Abb. 4.34: Verlauf des Fitparameters n in Abhängigkeit von der Temperatur. Bei großen Temperaturen folgt $n(T)$ etwa einem T^2 -Verlauf. Bei tieferen Temperaturen geht n in einen möglicherweise linearen Verlauf über.

mit dem Logarithmus aus (4.13) und (4.14) noch keine perfekt vereinheitlichte Beschreibung des Echozerfalls im Limes kurzer, mittlerer und langer Pulsabstände ist, und den Übergang zwischen Kurz- und Langzeitlimit nicht gut beschreibt. Dadurch könnte die Temperaturabhängigkeit der Dekohärenzrate falsch auf die Faktoren m_0 und n verteilt werden. Insgesamt liegen die gefundenen Temperaturabhängigkeiten jedoch recht nah an den vorhergesagten.

4.5.3 Schwach wechselwirkende Tunnelsysteme

Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, dass die spektrale Diffusion und Relaxation durch Wechselwirkung mit Phononen bei kurzen Pulsabständen sowohl den Verlauf der Dreipuls- als auch der Zweipuls-Echoamplitude erklären kann. Die Temperaturabhängigkeiten der Dekohärenzzeiten können im Einklang mit der Theorie interpretiert werden. Bei allen Messungen fällt jedoch auf, dass bei langen Zeiten die Echos viel langsamer zerfallen als durch die Relaxationszeiten und die Verteilung der Tunnelsysteme nach dem Standardtunnelmodell zu erwarten wäre. Außerdem kann man bei Dreipuls-Echomessungen deutlich erkennen, dass der Zerfall bei mittleren und langen Pulsabständen scheinbar temperaturunabhängig verläuft. Eine mögliche Erklärung dieses Phänomens ist die Anwesenheit eines kleinen Subensembles von Tunnelsystemen, das wegen seiner schwachen Kopplung an Phononen nicht oder kaum an Dekohärenz- und Relaxationsprozessen teilnimmt. Hier soll nun gezeigt werden, dass in Anwesenheit eines solchen Subensembles der Zerfall der Zwei- und Dreipuls-

Echoamplituden mit steigendem Pulsabstand bei mittleren und langen Pulsabständen durch Potenzgesetze beschrieben werden kann, wodurch die scheinbare Temperaturunabhängigkeit zustande kommt. Dafür muss eine Verteilung der elastischen Kopplungskonstante γ in das Modell aufgenommen werden, die eine endliche Zahl von Tunnelsystemen mit $\gamma \rightarrow 0$ enthält. Im Folgenden sollen die Auswirkungen dieser Verteilung auf die Echoamplitude hergeleitet und diskutiert werden. Wir folgen dabei der in Zusammenarbeit mit A. Burin entwickelten und in [Bur12] vorgestellten Theorie.

Die elastische Kopplungskonstante γ der Tunnelsysteme, die die Kopplung an die Phononen bestimmt, ist eigentlich eine tensorielle Größe und enthält sowohl Anteile, die die Kopplung an longitudinale Phononen beschreiben, als auch solche, die die Kopplung an transverse Phononen beschreiben. Da longitudinale Phononen eine größere Schallgeschwindigkeit besitzen als transverse, skaliert der relative Beitrag des longitudinalen Anteils mit $\left(\frac{c_l}{c_t}\right)$. Sein Anteil an Relaxationsrate ist gar um einen Faktor $\left(\frac{c_l}{c_t}\right)^5 \ll 1$ kleiner als der des transversalen Beitrags. Daher kann der longitudinale Beitrag zur elastischen Kopplung im Folgenden zunächst vernachlässigt werden.

Die elastische Kopplungskonstante γ kommt in den bisher verwendeten Modellen, insbesondere der spektralen Diffusion, nur als gemittelter Wert vor. Sie geht in die Relaxationszeit T_1 in Gleichung (2.20) ein. Auch zur Beschreibung der spektralen Diffusion ist γ notwendig, da die Kopplung zwischen Tunnelsystemen über das lokale Verzerrungsfeld und damit über den Austausch virtueller Phononen vermittelt wird. Der Faktor $\gamma_i \gamma_j$ geht in die Konstante C_{ij} ein, die in Gleichung (2.37) die Stärke der Kopplung J_{ij} zwischen zwei Tunnelsystemen i und j bestimmt. Wir wollen γ nun explizit in die Betrachtungen mit aufnehmen. Darum wird die Wechselwirkung des Tunnelsystems i mit Tunnelsystemen in seiner Umgebung nun durch

$$\mathcal{H}'_{\text{WW}} = \sum_{i>j} q_i x_i J_{ij}^* S_z^i S_z^j \quad \text{mit} \quad x_i = \frac{|\hat{\gamma}_i|}{\gamma_0} \quad \text{und} \quad q_i = \left(\frac{\Delta}{E}\right)_i \quad (4.17)$$

beschrieben. Die Abkürzung x_i steht für die relative elastische Kopplungskonstante: $|\hat{\gamma}_i|$ ist der Erwartungswert des elastischen Kopplungstensors und γ_0 ist die elastische Kopplungskonstante eines „Standard“-Tunnelsystems, Für diese Standardsysteme ist also $x = 1$, für die schwach wechselwirkenden Tunnelsysteme gilt $x \rightarrow 0$. Die reduzierte Kopplungsenergie $J_{ij}^* = J_{ij}/q_i$ enthält nun noch die mittlere elastische Kopplung γ_0 und das Mittel über die Kopplungskonstanten und relativen Asymmetrien der mit j indizierten Nachbartunnelsysteme. Wie man Gleichung (4.17) entnimmt, geht x linear in die Exponenten der Dekohärenzterme ein. Analog zu (4.10) folgt für den

Beitrag der spektralen Diffusion zur Echoamplitude

$$W_{2P,3P} = \exp(-xq G(\tau_{12}, \tau_{13})) . \quad (4.18)$$

In die Relaxationszeit T_1 geht die elastische Kopplung nach Gleichung (2.20) quadratisch ein. Der Vorfaktor der T_1 -Relaxationsrate ist mit der mittleren elastischen Kopplung γ_0 und der relativen elastischen Kopplung x proportional zu $x^2 \cdot \frac{\gamma_0^2}{c^5}$. Für den Beitrag der T_1 -Relaxation der Tunnelsysteme zur Echoamplitude W_{T_1} gilt daher

$$W_{T_1} = \exp\left(- (1 - q^2)x^2 \frac{t_{\text{Echo}}}{T_{1,\text{min}}}\right) . \quad (4.19)$$

Nun muss die Verteilung von x motiviert werden. Da die Dekohärenz schon gut durch die bisherigen Theorien beschrieben wird, muss der größte Anteil der Tunnelsysteme eine elastische Kopplungskonstante nahe der Kopplungskonstanten der Standardsysteme γ_0 besitzen, lediglich ein sehr kleiner Bruchteil der Tunnelsysteme soll eine schwache Kopplung an Phononen aufweisen. Die Funktion für die Verteilung von x ergibt sich aus plausiblen Annahmen für den dreidimensionalen Deformationstensor des Tunnelsystems nach [Bur12] zu

$$F(x) = \frac{25\sqrt{10}}{3\sqrt{\pi}} x^4 e^{-\frac{5}{2}x^2} . \quad (4.20)$$

Diese Funktion ist für $x \approx 1$ eine Gauss-Verteilung und hat durch den x^4 -Anteil einen langsam gegen 0 gehenden Ausläufer für $x \rightarrow 0$. Sie ist in Abbildung 4.35 aufgetragen. Die eingesetzte Abbildung zeigt die gleiche Funktion in einer halblogarithmischen Auftragung für sehr kleine x .

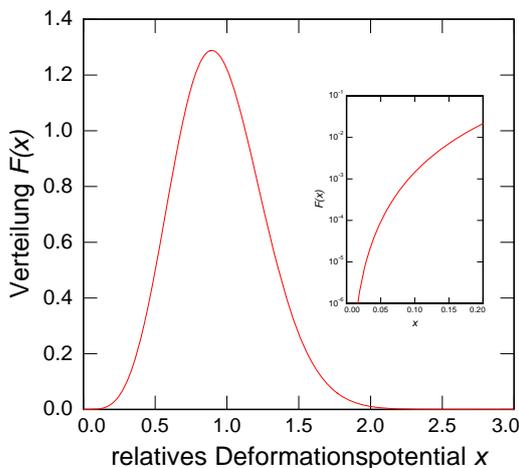


Abb. 4.35: Verlauf der Verteilung $F(x)$ der relativen Kopplungskonstanten x . Die eingesetzte Abbildung zeigt die Verteilung $F(x)$ noch einmal halblogarithmisch für sehr kleine Werte von x .

Die Echoamplitude berechnet sich mit diesen detaillierten Annahmen über die Kopplungskonstante γ zu

$$A_{2P,3P} \propto \int_0^\infty x^4 e^{-\frac{5}{2}x^2} dx \int_0^1 dq (1 - q^2) \exp(-x^2(1 - q^2)k_{\text{res}}(2\tau_{12} + \tau_{23})) \exp\left(-xq \frac{\alpha}{\hbar} k_B T \tau_{12} \frac{1}{\eta_{2P,3P}} \ln(1 + \eta_{2P,3P} k_T (\tau_{12} + \tau_{23}))\right). \quad (4.21)$$

Für Zweipulsechos ist $\tau_{23} = 0$. Dieser Ausdruck ist etwas komplizierter als die bisher verwendeten, weil die Gültigkeit der Theorien und Temperaturabhängigkeiten zur spektralen Diffusion und Relaxation vorausgesetzt und in die Formel aufgenommen sind. Die erste Exponentialfunktion im Integral über q beschreibt die Relaxation der resonanten Tunnelsysteme. Die Relaxationsrate der resonanten Tunnelsysteme $k_{\text{res}} = T_{1,\text{min}}^{-1}$ ist gegeben durch

$$k_{\text{res}} = A \left(\frac{E}{k_B}\right)^3 \coth\left(\frac{E}{2k_B T}\right) + BT \quad (4.22)$$

mit

$$\begin{aligned} A &\approx \frac{\gamma_0^2 k_B^3}{\rho c^5 \hbar^4} \\ B &\approx \frac{10k_B}{\hbar} (\overline{P}U_0)^3 \end{aligned} \quad (4.23)$$

Der erste Term in (4.22) gibt somit die Relaxation durch den Ein-Phonon-Prozess nach (2.20), und der zweite Term die Relaxation durch Paaranregungen nach (2.61) wieder.

Die letzte Exponentialfunktion in (4.21) beschreibt die spektrale Diffusion. Der logarithmische Ansatz wurde schon im vorangegangenen Abschnitt verwendet, um das Langzeitlimit zu berücksichtigen. In dem in Gleichung (4.11) als m_0 bezeichneten Vorfaktor vor dem Logarithmus wird hier die Abkürzung $\alpha = \frac{\pi^6}{24} \overline{P}U_0$ verwendet. Die Relaxationsrate der thermischen Tunnelsysteme $(T_{1,\text{min}}^{\text{th}})^{-1}$ wird hier als k_T bezeichnet und ist gegeben durch

$$k_T = AT^3 + \xi BT \quad (4.24)$$

Auch hier sind wieder Tunnelsystem-Phonon- und Tunnelsystem-Tunnelsystem-Wechselwirkungen berücksichtigt. Der freie Parameter $\xi \sim 1$ erlaubt, dass sich die Relaxationsraten der thermischen B-Systeme durch die verschiedenen Wechselwirkungstypen unterschiedlich auf die daraus resultierende Dekohärenz der A-Systeme

auswirkt. Der Übergang zwischen Kurz- und Langzeitlimit ist analytisch schwierig zu fassen. Im Prinzip zeichnet sich das Kurzzeitregime dadurch aus, dass die thermischen B-Tunnelsysteme nur einmal ihren Zustand ändern, während im Langzeitlimit mehrere Übergänge möglich sind. Um den Übergang korrekt zu beschreiben, müsste eine detaillierte Berechnung mithilfe des Telegraphenprozesses durchgeführt werden. Hier wurden stattdessen zwei weitere freie Parameter η_{2P} und η_{3P} für die Dekohärenz von Zwei- bzw. Dreipuls-Echos eingeführt, die jeweils in der Größenordnung 1 liegen sollten und .

Nun betrachten wir die Durchführung der Integration in (4.21). Bei sehr kurzen Pulsabständen τ_{12} bzw. τ_{13} kann man den Logarithmus mit $\ln(1+z) \approx z$ nähern und erhält das Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion

$$G = m\tau_{12}(\tau_{12} + \tau_{23}) = \frac{\alpha}{\hbar} k_B T k_T \tau_{12} (\tau_{12} + \tau_{23}) . \quad (4.25)$$

Zu diesen Zeiten tragen Tunnelsysteme mit allen q und allen x mit der Gewichtung gemäß ihrer jeweiligen Verteilungsfunktion bei.

Bei größeren Zeiten sind wegen der q -Abhängigkeit des Exponenten im Dekohärenzterm die asymmetrischen Tunnelsysteme fast alle außer Phase. Es tragen also nur noch symmetrische Tunnelsysteme mit sehr kleinem q zur Echoamplitude bei. Man kann daher in Gleichung (4.21) den Faktor $(1 - q^2)$ durch 1 ersetzen und das Integral nach q entwickeln. Für das Integral über x treten nun noch zwei Grenzwerte auf:

1. Im mittleren Zeitintervall, d.h. für Pulsabstände τ_{12} bzw. τ_{23} , die kleiner sind als die Relaxationszeiten der thermischen und resonanten Tunnelsysteme $\frac{1}{k_T}$ und $\frac{1}{k_{\text{res}}}$, wird das Echo durch symmetrische Standardsysteme bestimmt, also $q \ll 1$, $\hat{\gamma} \approx \gamma_0$, $x \approx 1$. Dann wird das Integral durch den Dekohärenzterm mit dem Exponenten $\propto qx$ bestimmt. Das Integral über x über diesen Term führt zu

$$A_{2P,3P} \propto \frac{1}{\tau_{12} \ln(1 + \eta_{2P,3P}(\tau_{12} + \tau_{23}))} \propto \begin{cases} \tau_{23}^{-1} & \text{für Dreipuls-Echos} \\ \tau_{12}^{-2} & \text{für Zweipuls-Echos} \end{cases} \quad (4.26)$$

Für die letzte Proportionalität wurde die Näherung $\ln(1+z) \approx z$ ausgenutzt, da τ_{12} und τ_{23} noch kleiner sind als die T_1 -Relaxationszeit der thermischen Tunnelsysteme $\frac{1}{k_T}$.

2. Bei noch längeren Zeiten, wenn die Pulsabstände τ_{12} bzw. τ_{23} größer sind als die Relaxationszeiten $\frac{1}{k_T}$ und $\frac{1}{k_{\text{res}}}$, werden die schwach wechselwirkenden Tunnelsysteme relevant, für die $q \ll 1$ und $x \ll 1$ gilt. Dann wird der Integrand

von (4.21) durch die Faktoren mit x^2 im Exponenten, d.h. den Relaxationsterm und die Verteilung über x bestimmt. Daraus folgt nach Integration über x

$$A_{2P,3P} \propto \frac{1}{\left(\frac{5}{2} + k_{\text{res}}(\tau_{12} + \tau_{23})\right)^2} \propto \tau_{23}^{-2} \quad (4.27)$$

Wie weiter oben begründet wurde die Wechselwirkung über longitudinale Phononen bisher vernachlässigt. Bei sehr langen Pulsabständen $\tau_{23} \gg \frac{1}{k_{\text{res}}}$ ist diese Näherung jedoch nicht mehr gültig. Das asymptotische Verhalten wird unter Berücksichtigung des Beitrags der longitudinalen Phononen bei sehr großen Pulsabständen noch etwas steiler und folgt dem Potenzgesetz $A_{3P} \propto \tau_{23}^{-2,5}$.

Die so hergeleiteten Formeln für die Echoamplitude der Zwei- und Dreipuls-Polarisationsechos können nun herangezogen werden, um die Relaxationszeiten zu bestimmen. Für den Vergleich mit den Daten wurde das vollständige Integral (4.21) numerisch gelöst und mit einer Monte-Carlo-Methode an alle Datensätze der Zwei- und Dreipuls-Echomessungen simultan angepasst, bis die beste Übereinstimmung mit allen Datensätzen gefunden war. Die zu variierenden Parameter waren dabei die Vorfaktoren der Relaxationsterme A und B , der Vorfaktor im Dekohärenzterm $\alpha \propto \overline{PU}_0$, sowie die freien Parameter ξ , η_{2P} und η_{3P} . Die aus der MonteCarlo-Anpassung gefundenen Werte sind in Tabelle 4.3 aufgeführt. Das Ergebnis im Vergleich mit den Daten ist in den Abbildungen 4.36, 4.37 und 4.38 aufgetragen. In Abbildung 4.36 sind zusätzlich noch zwei Geraden eingezeichnet, die das asymptotische Verhalten in den

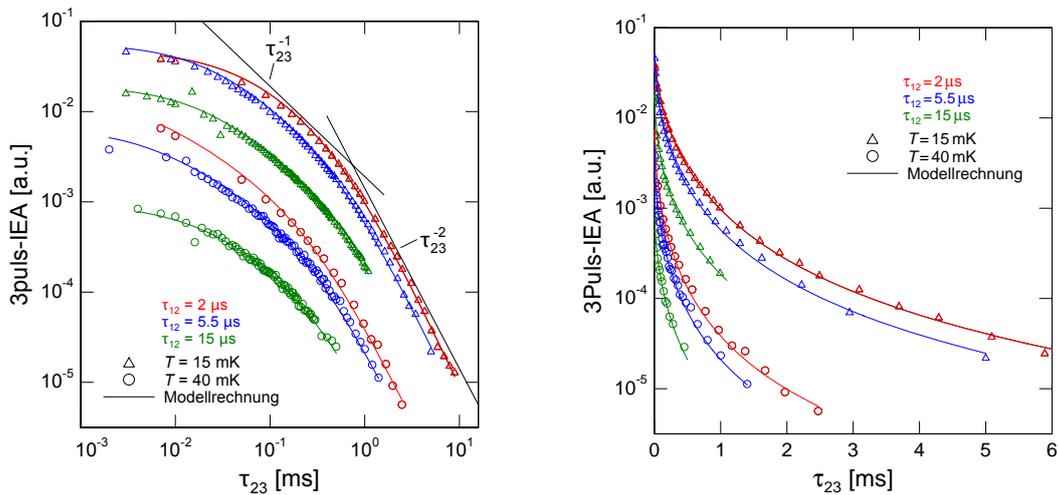


Abb. 4.36: Vergleich der Dreipuls-Echzerfälle mit der Theorie einschließlich der schwach wechselwirkenden Tunnelsysteme in der doppel- und halblogarithmischen Auftragung. Die Asymptoten für das Regime mittlerer und langer Zeiten sind mit eingezeichnet.

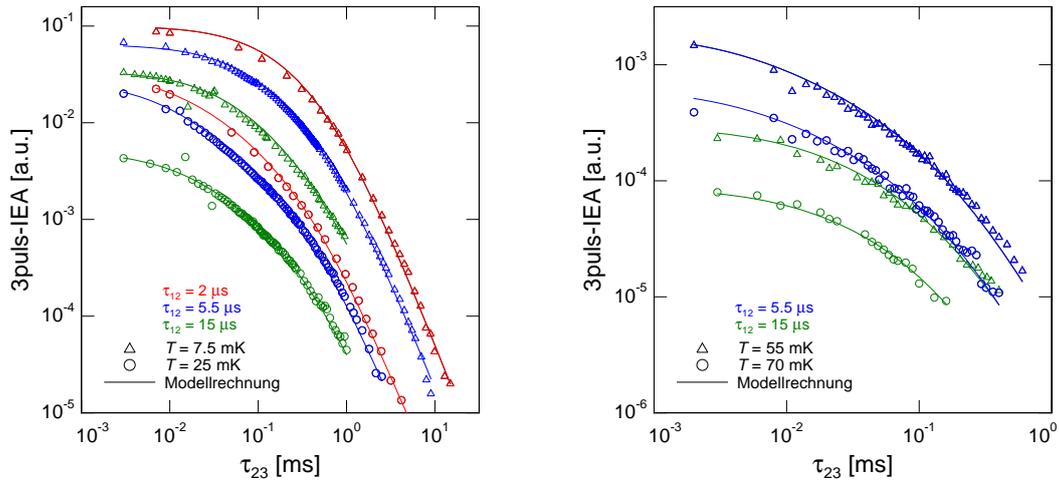


Abb. 4.37: Vergleich der Dreipuls-Echzerfälle mit der Theorie einschließlich der schwach wechselwirkenden Tunnelsysteme.

Bereichen mittlerer und langer Pulsabstände verdeutlichen. Die Übereinstimmung zwischen theoretisch und experimentell ermittelten Echoamplituden ist insbesondere bei den Dreipuls-Echos im gesamten Parameterbereich von Temperaturen und Pulsabständen beeindruckend gut. Bei den Zweipuls-Echos ist die Übereinstimmung zufriedenstellend. Es ergeben sich insbesondere bei kurzen Pulsabständen Differenzen. Dass die gemessenen Zweipuls-Echoamplituden etwas steiler zerfallen als der gaußförmige Erwartung kann an einem sehr schwachen Kernquadrupoleffekt liegen, der einen zusätzlichen Beitrag zur Dekohärenz bei kurzen Pulsabständen liefert. Ähnliche Abweichungen können auch am Modellsystem des Kernquadrupoleffekts, dem deuterierten Glycerin, bei in hohen Magnetfeldern gemessenen Zerfallskurven gefunden werden [Vog13]. Bei der hier gezeigten Theorie scheinen jedoch auch bei größeren Pulsabständen die theoretisch berechneten Zerfallskurven nicht alle Charakteristika der gemessenen Kurven zu beschreiben. Wenn man jedoch die Fülle unterschiedlichen Datensätze vergleicht, ist die insgesamt gefundene Übereinstimmung recht gut.

Wir betrachten nun die in Tabelle 4.3 aufgeführten Parameter und ihre Bedeutung für die Relaxations- und Dekohärenzzeiten. Die Parameter $\eta_{2P,3P}$ und ξ haben keine leicht interpretierbare physikalische Bedeutung. Die Parameter η_{2P} und η_{3P} wurden eingeführt, um den Übergang vom Kurzzeitlimit, in dem die thermischen

A [$s^{-1}K^{-3}$]	B [$s^{-1}K^{-1}$]	α	ξ	η_{2P}	η_{3P}
$4,66 \cdot 10^7$	$6,3 \cdot 10^4$	0,018	0,46	0,63	9,45

Tab. 4.3: Durch eine simultane MonteCarlo-Anpassung von Gleichung (4.21) an alle verfügbaren Datensätze gefundene Parameter.

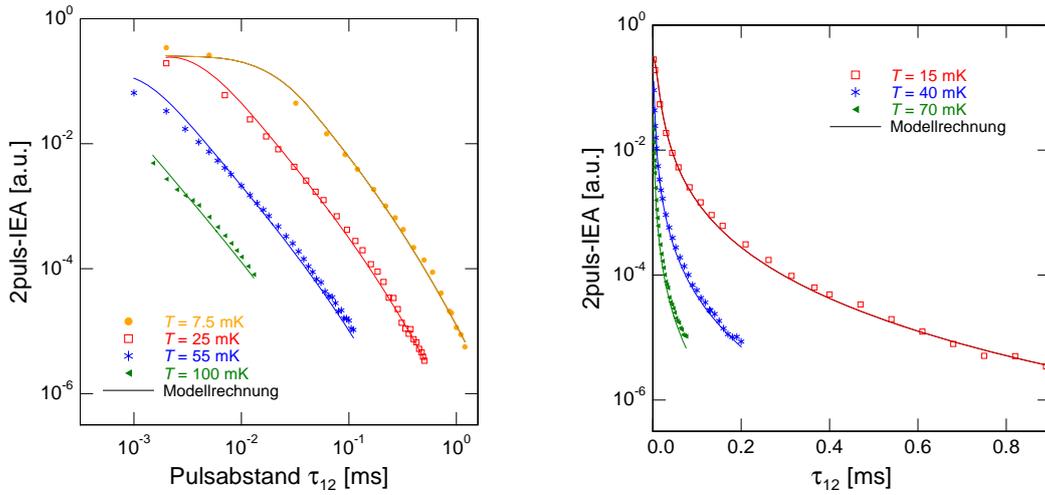


Abb. 4.38: Vergleich der Zweipuls-Echzerfälle mit der Theorie einschließlich der schwach wechselwirkenden Tunnelsysteme. Links sind die Kurven mit einer logarithmischen, recht mit einer linearen Amplitudenachse dargestellt.

B-Systeme nur einmal ihren Zustand ändern, ins Langzeitlimit, in dem mehrere Zustandsänderungen stattfinden, zu beschreiben. Die Größe ξ soll es ermöglichen, dass der Beitrag der durch Paaranregungen induzierten Relaxation der B-Systeme zur Dekohärenz resonanter A-Tunnelsysteme anders gewichtet ist als der Beitrag der durch Ein-Phonon-Prozesse verursachte Übergänge der B-Systeme. Die Werte für η_{2P} , η_{3P} und ξ sollten in der Größenordnung 1 liegen, was für η_{2P} und ξ gegeben ist. Der Wert für η_{3P} ist etwas größer als erwartet und deutlich größer als η_{2P} . Dies kann einerseits daran liegen, dass bei Zwei- und Dreipuls-Echos andere Verteilungen von Tunnelsystemen beteiligt sind und sich deshalb die Zerfallsmechanismen leicht unterscheiden. Eine Herleitung der Funktion $G(\tau_{12}, \tau_{13})$ mithilfe des Telegrafprozesses könnte diese Frage vielleicht beantworten.

Betrachten wir nun den Parameter $\alpha = \frac{\pi^6}{24} \overline{P}U_0$. Aus dem gefundenen Wert $\alpha = 0,018$ ergibt sich $\overline{P}U_0 = 0,44 \cdot 10^{-3}$. In der Herleitung der kritischen Temperatur hatten wir einen Wert $\overline{P}U_0 = 0,8 \cdot 10^{-3}$ aus Daten, die aus Messungen der niederfrequenten dielektrischen Konstante gewonnen wurden, abgeschätzt. In [Bur12] wird eine numerische Berechnung von U_0 unter Einbeziehung der Verteilung (4.20) durchgeführt, aus der sich etwa $\overline{P}U_0 = 0,5 \cdot 10^{-3}$ ergibt. All diese Werte stimmen bis auf einen Faktor kleiner 2 überein.

Zum Schluss betrachten wir die Vorfaktoren A und B zu den Beiträgen zur Relaxation. Diese bestimmen maßgeblich die Relaxations- und Dekohärenzzeiten. Man kann A , wenn man Gleichungen (2.20) und (4.22) vergleicht, wie folgt mit den aus früheren niederfrequenten dielektrischen Messungen gewonnenen Materialeigenschaften

ten von BK7 berechnen:

$$A = \frac{k_B}{2\pi\hbar^4\rho} \left(\frac{\gamma_l^2}{c_l^5} + \frac{2\gamma_t^2}{c_t^5} \right) \approx 3,9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}\text{K}^{-3} . \quad (4.28)$$

. Der hier gemessene Wert $4,66 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}\text{K}^{-3}$ liegt knapp 20 % über dieser Vorhersage. Dies ist möglicherweise eine Folge davon, dass es weitere Wechselwirkungsmechanismen gibt, die hier nicht berücksichtigt wurden, wie beispielsweise die elektrische Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den Tunnelsystemen.

Der Vorfaktor B vor dem linearen Beitrag zur Relaxation wurde theoretisch [Bur98a] zu

$$B_{\text{theo}} \approx 10 \frac{k_B}{\hbar} (\overline{PU}_0)^3 \approx 111 \text{ s}^{-1}\text{K}^{-1}$$

bestimmt. Dabei wurde der oben experimentell gefundene Wert $\overline{PU}_0 = 0,44 \cdot 10^{-3}$ verwendet. Der aus der MonteCarlo-Berechnung ermittelte Wert für B von $B = 6,4 \cdot 10^4$ ist etwa einen Faktor 600 größer als B_{theo} . Um B_{theo} zu erklären müsste $\overline{PU}_0 = 0,35 \cdot 10^{-2}$ sein, also einen Faktor 8 größer als experimentell bestimmt. Die Problematik, dass die Werte von B und \overline{PU}_0 nicht übereinstimmen, d.h. dass B in etwa drei Größenordnungen größer gemessen wird als aus \overline{PU}_0 erwartet, ist aus früheren niederfrequenten und akustischen Messungen bekannt. Beispielsweise fällt die innere Reibung eines Quarzglas-Oszillators bei $T < 40 \text{ mK}$ langsamer ab als mit dem im Standardtunnelmodell erwartete T^3 [Cla00]. Qualitativ können diese Ergebnisse mithilfe einer linear mit der Temperatur steigenden Relaxationsrate erklärt werden. Auch hier fehlt jedoch ein Vorfaktor 10^3 - 10^4 um die Daten quantitativ mit Paaranregungen zu beschreiben. Nach Aussage A. Burins gibt es erhebliche Unsicherheiten bei der theoretischen Herleitung des Vorfaktors B . Es ist daher möglich, dass ein großer numerischer Faktor fehlt. Eine Überprüfung der Theorie wäre daher wünschenswert. Es ist natürlich darüber hinaus denkbar, dass ein anderer Wechselwirkungsmechanismus bei tiefen Temperaturen einen ähnlichen, vielleicht auch linearen Beitrag zur Relaxationsrate liefert. Eine Möglichkeit wäre, dass ein solcher Mechanismus aufgrund der Wechselwirkungen von Kernmomenten auf dem tunnelnden Teilchen untereinander oder mit lokalen Feldern und Feldgradienten entsteht oder durch sie vermittelt wird.

In Abbildung 4.39 wurden die aus A und B berechneten T_1 -Relaxationszeiten der resonanten Tunnelsysteme (ausgefüllte Kreise) in Abhängigkeit der Temperatur zusammen mit den bei Pausenrotationsexos gefundenen Werten (Rauten) aufgetragen. Außerdem wurde zur Orientierung der ebenfalls aus dem experimentell bestimmten Vorfaktor der T_1 -Relaxationsrate A berechnete Beitrag der Ein-Phonon-Relaxation mit eingezeichnet (gestrichelte Linie). Wie man aus dem Vergleich zwi-

schen der Ein-Phonon- und der vollständig berechneten Relaxationszeit erkennt, reduziert der durch Paaranregungen verursachte Beitrag $(BT)^{-1}$ im gesamten Temperaturbereich die Relaxationszeiten. Die aus den Pausenrotationsechos gewonnenen Werte für $T_{1,\min}$ folgen einer ähnlichen Temperaturabhängigkeit, sind aber systematisch um etwa einen Faktor 2 kleiner. Die Ursache dieser Diskrepanz kann darin begründet liegen, dass die Werte für $T_{1,\min}$ auf sehr unterschiedliche Weise gewonnen wurden. Im Fall der Zwei- und Dreipuls-Echos wurde eine sehr detaillierte Theorie angewendet, die T_1 - und T_2 -Prozesse einschließt. Um die in Abbildung 4.39 gezeigten Werte von $T_{1,\min}$ zu ermitteln, wurde sozusagen der Effekt von T_2 aus den Daten herausgerechnet. Im Falle der Pausenrotationsechos wurde $T_{1,\min}$ unter der gängigen Annahme, dass T_2 -Prozesse keine Rolle spielen, direkt aus den Daten ermittelt. Es ist möglich, dass eine der Annahmen, entweder in der Theorie der Zwei- und Dreipuls-Echos oder in der Theorie der Pausenrotationsechos, nicht vollständig richtig ist. Hier sind noch weitere Analysen, insbesondere eine weitreichende theoretische Beschreibung der Form und des Zerfalls der Rotationsechos notwendig.

Die quadrierte minimale Dekohärenzrate $T_{2,\min}^{-2}$, die aus den in Tabelle 4.3 gegebenen Parametern nach (4.21) und (4.24) zu $T_{2,\min}^{-2} = \frac{\alpha}{\hbar} k_B T \tau_{12} (AT^3 + \xi BT)(\tau_{12} + \tau_{23})$ berechnet, ist in Abbildung 4.40 im Vergleich mit den aus den Fits des vorigen Abschnitts ermittelten Werten aufgetragen. Sie sind praktisch identisch. Aus einer

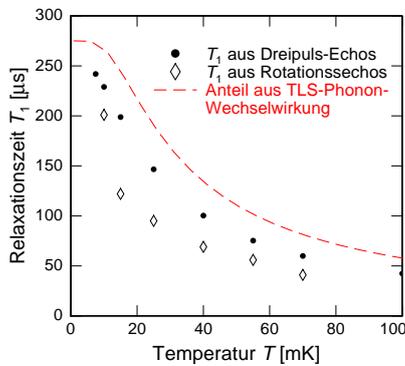


Abb. 4.39: Vergleich der aus den Zwei- und Dreipuls-Echos mit der Theorie der schwach wechselwirkenden Tunnelsysteme ermittelten Werte für $T_{1,\min}$ im Vergleich mit den bei Rotationsechos gefundenen Werten. Zum Vergleich ist noch der Anteil der Ein-Phonon-Prozesse an der Relaxationszeit durch eine gestrichelte Linie verdeutlicht. Er wurde aus dem experimentell ermittelten Parameter A berechnet.

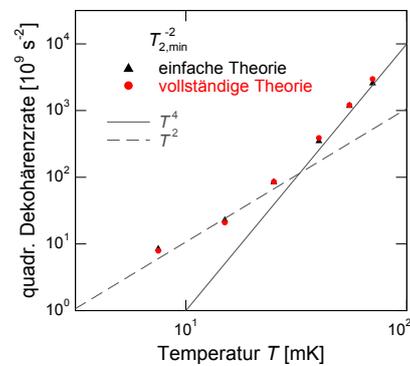


Abb. 4.40: Vergleich der minimalen quadrierten Dekohärenzrate. Die schwarzen Dreiecke wurden mit der einfachen Theorie mit logarithmischem Ansatz nach (4.13) aus den Daten ermittelt. Die roten ausgefüllten Kreise wurden aus den aus der vollständigen Theorie bestimmten Faktoren α , A und B mit (4.25) berechnet.

einfachen Anpassung des durch den logarithmischen Ansatz (4.13) erweiterten Kurzzeitlimits an die Messdaten kann man folglich schon viele Informationen über die Temperaturabhängigkeiten der Relaxationszeiten gewinnen. Allerdings sollten noch weitere Zerfallskurven bei tieferen Temperaturen aufgenommen werden, um die quadratische Temperaturabhängigkeit der quadrierten Dekohärenzrate bei tiefen Temperaturen zu überprüfen. Hier ist bereits ein Experiment in einem Kernentmagnetisierungskryostaten im Aufbau, das Echoexperimente bis zu etwa 1 mK erlauben sollte.

Abschließend kann man feststellen, dass sich der Zerfall der Zwei- und Dreipuls-Echoamplituden zwischen 7,5 und 70 mK hervorragend durch eine Theorie beschreiben lässt, in der die Relaxationsraten sich aus einem Ein-Phonon-Anteil, der bei thermischen Tunnelsystemen eine kubische Temperaturabhängigkeit, d.h. $T_{1,\min}^{-1} \propto T^3$, aufweist und bei resonanten Tunnelsystemen proportional zum Kotangenshyperbolicus $\coth\left(\frac{E}{2k_B T}\right)$ ist, und einem linear mit der Temperatur variierenden Beitrag zusammensetzen. Der lineare Beitrag kann qualitativ durch Paareregungen nach Burin verstanden werden, zur quantitativen Beschreibung fehlt hier jedoch der bereits erwähnte große numerische Faktor. Die Relaxation thermischer Tunnelsysteme führt zu spektraler Diffusion der resonant angeregten Tunnelsysteme. Um die Daten vollständig beschreiben zu können, muss darüber hinaus angenommen werden, dass ein Subensemble der Tunnelsysteme existiert, die wegen einer schwachen Kopplung an Phononen kaum an Relaxations- und Dekohärenzprozessen beteiligt sind. Unter Einbeziehung solcher Tunnelsysteme geht der Zerfall der Echoamplituden in Abhängigkeit vom Pulsabstand in ein Potenzgesetz über, was insbesondere bei Dreipuls-Echos deutlich in den Messdaten zu sehen ist. Die Annahme einer vom Standardtunnelmodell abweichenden Verteilungsfunktion der Asymmetrieenergien und Tunnelparameter ist hingegen nicht notwendig. Da zu den beobachteten Potenzgesetzen nach der vorgestellten Theorie praktisch nur noch sehr symmetrische Tunnelsysteme beitragen, ist insbesondere die Einführung eines Δ_{\min} nicht sinnvoll.

Die derzeit zwingend erscheinende Annahme der Existenz eines nahezu „relaxations- und dekohärenzfreie Subensembles“ der Tunnelsysteme ist eine Neuerung, die bisher noch nicht bei Berechnungen zu Glaseigenschaften eingesetzt wurde. Es wurde früher schon die Möglichkeit diskutiert, ob „anomale Tunnelsysteme“ mit eigenen Zustandsdichten und Kopplungstermen beispielsweise als Erklärung für die Diskrepanzen in den gemessenen Zustandsdichten in akustischen Sättigungsmessungen und Messungen der spezifischen Wärme verantwortlich sein könnten [BH77]. Die Bedingungen für diese anomalen Tunnelsysteme führten jedoch zu Widersprüchen. Ansonsten wurde bisher mit mittleren Werten für das Deformationspotential gerechnet. Ein interessanter Test wäre, wie sich eine Verteilung des Deformationspotentials auf die niederfrequent gemessene dielektrische Suszeptibilität auswirkt und ob da-

durch möglicherweise die Widersprüche zwischen Suszeptibilitätsmessungen und dem Standardtunnelmodell erklärt werden können.

Für Rotationsechos gibt es noch keine abgeschlossene theoretische Beschreibung. Dadurch ist leider auch nicht eindeutig nachweisbar, dass die Rundung, die der Zerfall der Rotationsechoamplitude bis zu größten Pulsabständen aufweist, anstatt - wie für einen T_1 -Zerfall zu erwarten - in einen nahezu exponentiellen Zerfall überzugehen, als Bestätigung der relaxations- und dekohärenzfreien Tunnelssysteme gewertet werden kann. Daher wäre eine unabhängige Messung, die die aus Zwei- und Dreipuls-Echomessungen bzw. Pausenrotationsechomessungen abgeleiteten Relaxationszeiten überprüft, wünschenswert. Dadurch könnte versucht werden, die Rotationsechodaten mit einem Satz bekannter Relaxations- und Dekohärenzzeiten zu beschreiben und so ihre Entstehung besser verstanden werden. Eine Möglichkeit ist die Messung der Sättigung der dielektrischen Absorption. Die kritische Intensität für die Sättigung J_c ist invers proportional zum Produkt der Relaxationszeiten $\frac{1}{T_1 T_2}$ [Sch77]. Hierzu wurden bereits Vorexperimente mit einem supraleitenden Mikrostreifenresonator, der auf einer BK7-Scheibe aufgebracht war, durchgeführt. Die Sättigung konnte beobachtet werden, jedoch gab es noch eine Vielzahl weiterer Effekte, die eine quantitative Analyse unmöglich machten. Ein supraleitender Topfkreisresonator, der wegen des herrschenden homogenen elektrischen Felds zu besser quantifizierbaren Ergebnissen führen sollte, ist bereits fertig gestellt und kann in Kürze zur Messung von $(T_1 T_2)$ herangezogen werden.

5. Zusammenfassung

Bei tiefen Temperaturen werden die thermischen, akustischen und dielektrischen Eigenschaften von Gläsern von atomaren Tunnelsystemen bestimmt. Eine gute theoretische Beschreibung vieler experimenteller Ergebnisse liefert das phänomenologische Standardtunnelmodell [And72], [Phi72]. Es kann jedoch keine Aussage über die mikroskopische Natur der individuellen Tunnelsysteme oder deren Wechselwirkungen treffen. Zwei Wechselwirkungskanäle von Tunnelsystemen sind bekannt: Einerseits gibt es die Wechselwirkung mit thermischen Phononen, die bei tiefen Temperaturen hauptsächlich über den Ein-Phonon-Prozess abläuft und zu Relaxationsprozessen führt [Jae72]. Zum anderen gibt es Wechselwirkungen zwischen den Tunnelsystemen selbst. Die elektrische Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen, die ein elektrisches Dipolmoment tragen, wird meist vernachlässigt. Die vom Verzerungsfeld übertragene Wechselwirkung zwischen individuellen Tunnelsystemen führt zur sogenannten spektralen Diffusion [BH77]. In diesem Szenario führen Anregungs- und Relaxationsprozesse thermischer Tunnelsysteme zu Änderungen der Energieaufspaltung resonanter Tunnelsysteme und so zu Dephasierung oder Dekohärenz. Die weiterführende Theorie von Burin [Bur98a] postuliert sogar Wechselwirkungen zwischen resonanten Paaren von Tunnelsystemen, die bei ausreichend tiefen Temperaturen $T \lesssim 20$ mK auftreten und bis hin zu kollektiven Anregungen ganzer Cluster von resonanten Paaren führen können. Messungen der dielektrischen Funktion von Strehlow [Str98] an dem Standardglas BAS weisen gar auf einen Phasenübergang mit einer kritischen Temperatur von 5,8 mK hin, der möglicherweise einen Übergang von Anregungen individueller wechselwirkender Tunnelsysteme hin zu kollektiven Anregungsmoden markiert.

Um ein besseres Verständnis für die mikroskopischen Eigenschaften von Tunnelsystemen in Gläsern zu gewinnen, ist es unerlässlich, auch ihre Wechselwirkungen besser zu verstehen. Ein etabliertes Werkzeug zur Untersuchung dieser Wechselwirkung ist die Messung des Zerfalls dielektrischer Polarisationsechos mit wachsendem Pulsabstand. Je nach Anregungssequenz sind entweder die spektrale Diffusion oder die Energierelaxation maßgeblich ursächlich für den Zerfall der Echoamplitude. Dadurch tragen bei größeren Pulsabständen auch unterschiedliche Verteilungen von Tunnelsystemen zum Echo bei. Die Messungen können daher als komplementäre Experimente zur Bestimmung der Relaxations- und Dekohärenzzeiten und deren Temperaturabhängigkeiten genutzt werden, wobei sie unter nahezu identischen experimentellen Bedingungen durchgeführt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Zerfall der Polarisationsechoamplitude von

Zwei- und Dreipulsechos sowie von Pausenrotationsechos mit wachsendem Pulsabstand bei Temperaturen zwischen 7,5 mK und 70 mK in dem Borsilikatglas BK7 experimentell und durch numerische Berechnungen untersucht. Aufgrund eines verbesserten experimentellen Aufbaus konnten bis zu noch nie erreichten Pulsabständen von 1,2 ms bei Zweipuls-Echos und 15 ms bei Dreipuls-Echos kohärente Echos aufgelöst werden, obwohl die Echoamplitude dabei um bis zu fünf Dekaden abnahm. Dadurch waren sowohl mehrere Regime der spektralen Diffusion als auch das durch T_1 -Relaxation dominierte Regime experimentell zugänglich. Durch den großen Zeitbereich, der in den Experimenten abgedeckt wurde, konnte ein neues Regime im Zerfall der Dreipuls-Polarisationsechoamplitude beobachtet werden. Er geht bei großen Zeiten asymptotisch in ein Potenzgesetz über, das die Temperaturabhängigkeit des Zerfalls im durch die T_1 -Relaxation dominierten Zeitbereich überlagert. Um eine unabhängige Bestimmung der Relaxationszeit T_1 zu ermöglichen, wurden Pausenrotationsechos bis zu Pausenlängen von 6 ms gemessen. Ihr Zerfall sollte nur durch T_1 -Relaxationsprozesse verursacht werden. Die aus dem anfänglichen Zerfall bestimmten Werte für T_1 liegen jedoch im gesamten Temperaturbereich unter den erwarteten Werten. Eine mögliche Ursache hierfür ist der Einfluss von Dekohärenzeffekten.

Numerische Berechnungen des Zerfalls der Zweipuls- und Dreipuls-Echoamplituden unter Einbeziehung der Energierelaxation und der spektralen Diffusion im Limes kurzer und mittlerer Pulsabstände konnten die Daten bis zu Pulsabständen in der Größenordnung der minimalen Relaxationszeit $T_{1,\min}(T)$ beschreiben. Dadurch werden die ersten zwei bis drei Dekaden des Amplitudenzerfalls abgedeckt. Die Zerfälle der Dreipuls-Echoamplitude bei drei verschiedenen ersten Pulsabständen und der Zweipuls-Echoamplitude konnten dabei mit einem einheitlichen Satz Relaxations- und Dekohärenzzeiten berechnet werden. Ein Abschneiden der Verteilung der Tunnelsysteme war weder für große noch für kleine Asymmetrieenergien sinnvoll. Die quadrierte maximale Dekohärenzrate $\left(\frac{1}{T_{2,\min}}\right)^2$ folgt für hohe Temperaturen dem nach der spektralen Diffusion erwarteten T^4 -Verlauf. Für $T < 40$ mK geht sie in eine T^α -Abhängigkeit, mit $\alpha \leq 2$ über. Eine T^2 -Abhängigkeit ist qualitativ konsistent mit einem Übergang zu den von Burin vorhergesagten Paaranregungen [Bur98],[Bur12]; es gibt jedoch, wie bereits in früheren Messungen beobachtet, eine große quantitative Abweichung. Für die theoretische Übergangstemperatur wurde $T = 28$ mK abgeschätzt, was nah an der experimentell beobachteten Übergangstemperatur von etwa 35 mK liegt. Um den Wert von α endgültig festzulegen und die Interpretation des Phasenübergangs in BAS als Übergang zwischen verschiedenen Wechselwirkungsregimen zu überprüfen, sollten Echoexperimente bei tieferen Temperaturen bis etwa 1 mK durchgeführt werden. Ein entsprechender Aufbau zum Einbau in einen neu in Betrieb genommenen Kernentmagnetisierungskryostaten ist bereits in Arbeit.

Bei Pulsabständen $\tau_{12}, \tau_{13} > T_1$ lag die gemessene Echoamplitude systematisch über der berechneten. Daraus folgern wir, dass ein kleines Subensemble der angeregten Tunnelsysteme langsamer zerfällt als nach den bisherigen Theorien angenommen, weil es aufgrund einer schwachen Kopplung an Phononen wenig oder gar nicht von Relaxations- und Dekohärenzprozessen betroffen ist. Solche dekohärenz- und relaxationsfreien Unterräume sind beispielsweise bei Qubits bekannt [Lid98],[Kwi00]. Die Echozerfälle wurden nun unter Einbeziehung einer Verteilung des Deformationspotentials γ berechnet, die einer kleinen Anzahl Tunnelsysteme sehr kleine Werte $\gamma \rightarrow 0$ erlaubt. Die Integration über die Verteilung über γ und über alle resonanten Tunnelsysteme ergibt für mittlere und lange Pulsabstände die beobachteten Potenzgesetze für den Zerfall der Echoamplitude. Aus einer MonteCarlo-Anpassung des theoretischen Modells an alle Zwei- und Dreipulsecho-Daten wurde ein Satz Parameter gefunden, der die Dekohärenz- und Relaxationszeiten in BK7 sowie das Produkt aus mittlerer Kopplungsstärke U_0 und der Dichte der Asymmetrieenergien pro Volumen- und Energieeinheit im Standardtunnelmodell \bar{P} wiedergibt. Die Werte sorgen für eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Daten und Theorie bei allen Pulsabständen und Temperaturen und stimmen gut mit früheren Messungen überein. Es wäre nun wünschenswert, die Existenz der relaxations- und dekohärenzstabilen Tunnelsysteme durch Messungen an anderen Gläsern zu bestätigen, zum Beispiel an BAS. Außerdem sollte ihr Einfluss auf andere Größen, wie beispielsweise die dielektrische Suszeptibilität, untersucht werden.

Durch Anwendung der vollständigen Theorie einschließlich der Verteilung über γ konnten auch Werte für die Relaxationszeit T_1 in BK7 gefunden werden, die um etwa einen Faktor 2 größer sind als die aus den Pausenrotationsechos ermittelten. Um die Ursachen dieser Diskrepanz zu klären, ist es nötig, eine geschlossene theoretische Beschreibung für den Zerfall der Pausenrotationsechoamplitude zu entwickeln. Darüber hinaus wäre eine unabhängige Messung wünschenswert, mit deren Hilfe die gefundenen Werte und Temperaturabhängigkeiten für die Relaxationszeiten bestätigt werden können. Ein möglicher Weg ist die Messung der Sättigung der resonanten Absorption. Dazu wurden bereits Vorexperimente an einem supraleitenden Mikrostreifen-Resonator durchgeführt. Diese konnten jedoch wegen der Vielzahl an auftretenden Effekten nicht quantitativ analysiert werden. Entsprechende Messungen mit einem supraleitenden Topfkreisresonator sind in Kürze geplant.

Literaturverzeichnis

- [And72] P. W. Anderson, B. I. Halperin, C. M. Varma, *Philos. Mag.* **25**, 1 (1972)
- [Arn75] W. Arnold, S. Hunklinger, *Solid State Communications* **17**, 883 (1975)
- [Bai85] G. Baier, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (1985)
- [Baz08] M. Bazrafshan, Dissertation, Universität Heidelberg (2008)
- [BH77] J. L. Black, B. I. Halperin, *Phys. Rev. B* **16** (1977), 2879
- [Blo46] F. Bloch, *Phys. Rev.* **70** (1946), 460
- [Bur98] A. L. Burin, Yu. Kagan, L. A. Maksimov, I. Ya. Polishchuk, *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998), 2945
- [Bur98a] A. L. Burin, D. Natelson, D. Osheroff, Yu. Kagan, Editor: P. Esquinazi, *Tunneling Systems in Amorphous and Crystalline Solids*, Springer-Verlag (1998), 223 ff.
- [Bur12] A. L. Burin, J. M. Leveritt III, G. Fickenscher et al, arXiv1208.2883v1 [cond-mat.dis-nn] (2012)
- [Cla00] J. Classen, T. Burkert, C. Enss, S. Hunklinger, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2176 (2000)
- [Ens90] C. Enss, C. Bechinger, M. v. Schickfuß, *Phonons* **89**, Editoren: S. Hunklinger, W. Ludwig, G. Weis, World Scientific, Singapore (1990)
- [Ens96] C. Enss, S. Ludwig, R. Weis, S. Hunklinger, *Czech. J. Phys.* **46** (1996), 2247
- [Ens05] C. Enss, S. Hunklinger, *Low-Temperature Physics*, Springer-Verlag (2005)
- [Fas10] Paul Faßl, Bachelorarbeit, Universität Heidelberg (2010)
- [Fic07] G. Fickenscher, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2007)
- [Fis05] C. Fischer, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2005)
- [Fle03] A. Fleischmann, Dissertation, Universität Heidelberg (2003)

- [Gol77] B. Golding, J. E. Gräbner, W.H. Haemmerle, Proceedings of the seventh international conference on amorphous and liquid superconductors, Editor: W. E. Spear, (1977), 367ff
- [Gol79] B. Golding, M. von Schickfus, S. Hunklinger, K. Dransfeld, Phys. Rev. Lett. **43**, 1817 (1979)
- [Hu74] P. Hu, S. R. Hartmann, Phys. Rev. B **9**, 1 (1974)
- [Hun76] S. Hunklinger, W. Arnold, Editoren: R. N. Thurston, W. P. Mason, Progress in Physical Acoustics **12**, Academic Press, New York, 155 (1976)
- [Hun77] S. Hunklinger, Adv. Solid State Physics **17**, 1 (1977)
- [Hun00] S. Hunklinger, C. Enss, Editor: P. Boolchand, World Scientific, Singapore (2000)
- [Jae72] J. Jäckle, Z. Physik **257**, 212 (1972)
- [KA62] J. R. Klauder, P. W. Anderson, Phys. Rev. **125**, 912 (1962)
- [Kwi00] P.G. Kwiat, A. J. Berglund, J. B. Altepeter, A. G. White, Science **290**, 498 (2000)
- [Lid98] D. A. Lidar, I. L. Chuang, K. B. Whaley, Phys. Rev. Lett. **81**, 2594 (1998)
- [Lud02] S. Ludwig, C. Enss, P. Strehlow, S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. **88**, 075501 (2002)
- [Lud03] S. Ludwig, P. Nagel, S. Hunklinger, C. Enss, J. Low Temp. Phys. **131**, 89 (2003)
- [Mim68] W. B. Mims, Phys. Rev. **168**, 370 (1968)
- [Nag04] P. Nagel, A. Fleischmann, C. Enss, S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. **92**, 24551 (2004)
- [Nat98] D. Natelson, D. Rosenberg, D. D. Osheroff, Phys. Rev. Lett. **80**, 4689 (1998)
- [Par04] D. Parshin, J. Low Temp. Phys. **137**, 233 (2004)
- [Phi72] W. A. Phillips, J. Low Temp. Phys. **7**, 351 (1972)
- [Phi81] W. A. Phillips, Editor: W. A. Phillips, Topics in Current Physics **24**, Springer-Verlag Heidelberg (1981), 7ff
- [Poh02] R. O. Pohl, Liu Xiao, E. Thompson, Rev. Mod. Phys. **74**, 991 (2002)

-
- [Sch96] Schott Glaswerke, Mainz, *Katalog optisches Glas*, (1996)
- [Sch77] M. von Schickfus, S. Hunklinger, K. Dransfeld, Phys. Rev. Lett. **43**, 1817 (1979)
- [Sch12] C. Schötz, Masterarbeit, Universität Heidelberg (2012)
- [Sch10] Martin Schwarze, Bachelorarbeit, Universität Heidelberg (2010)
- [Str98] P. Strehlow, C. Enss, S. Hunklinger, Physics Letters **64**, 1 (1977)
- [Vog13] D. Vogel, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, (voraussichtlich 2013)
- [Woh01] M. Wohlfahrt, Dissertation, Universität Heidelberg (2001), 68
- [Won80] N. C. Wong, S. S. Kano, R. G. Brewer, Phys. Rev. A **21**, 260 (1980)
- [Wue02] A. Würger, A. Fleischmann, C. Enss, Phys. Rev. Lett. **89**, 237601-1 (2002)
- [Wue04] A. Würger, J. Low Temp. Phys. **137**, 143 (2004)
- [Zel71] R. C. Zeller, R. O. Pohl, Phys. Rev. B **4**, 2029 (1971)
- [Zim81] J. Zimmermann, G. Weber, Phys. Lett. **86 A**, 32 (1981)

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Prof. Christian Enss, der mir die Möglichkeit gegeben hat, an diesem interessanten Thema zu arbeiten. Er hatte immer ein offenes Ohr für Fragen und Diskussionen. Ganz besonders beeindruckt hat mich auch sein Verständnis für verkürzte Arbeitszeiten, kurzfristige Ausfälle und alles weitere, das es mit sich bringt, wenn man versucht, eine experimentelle Doktorarbeit und die Versorgung eines Kleinkinds unter einen Hut zu bringen. Für die ungewöhnlich gute Unterstützung, die ich in dieser Hinsicht erfahren habe, ganz herzlichen Dank.

Andreas Fleischmann möchte ich für seine vielen Ideen und Vorschläge danken, ohne die diese Arbeit sicherlich ganz anders aussehen würde. Danke auch für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Bei Professor Alexander Burin von der Tulane University in New Orleans bedanke ich mich für die vielen interessanten Diskussionen, die Idee des „phase and decoherence free subset“ und für die Bereitstellung der theoretischen Daten.

Ein riesengroßes Dankeschön geht auch an Manfred von Schickfus. Er hat mich während der gesamten Dauer dieser Arbeit unterstützt, viele Ideen und Diskussionsansätze eingebracht und während meiner Babypause fleißig Sättigungsexperimente gemacht. Auch die Ordnung, die er in die Hochfrequenzkomponenten gebracht hat, ist von nicht zu unterschätzendem Wert.

Bei meinem Diplomanden Christian Schötz möchte ich mich für die Hilfe beim Aufnehmen der Dreipuls- und Rotationsexchodatens, den gemeinsamen Spaß im Labor und die Übernahme der Spätschichten bedanken.

Ein Dankeschön geht auch an Masoomeh Bazrafshan, die viele Jahre die gute Seele im 1. Labor war. Sie hat mich beim Wiedereinstieg in die Echomessungen hervorragend unterstützt und war immer eine gute Kollegin und Freundin. Danke auch fürs Babysitten.

Andreas Reiser, danke für den technischen Support, die schlechten Witze und das gruselige Süßwarenangebot.

Mein besonderer Dank geht auch an Daniel Rothfuss, Sebastian Kempf und vor allem Marius Hempel für viele kleinere und größere Hilfestellungen, die ich im einzelnen gar nicht aufzählen kann. Auch allen anderen aktuellen und ehemaligen Mitglieder

der Forschungsgruppen F3/F4/F5 danke für die schöne Zeit.

Für die zuverlässige Bereitstellung von flüssigem Helium und das Niobschweißen an einem leider bislang ungenutzten Resonator- danke, Rudi Eitel!

Für die Unterstützung bei Hard- und Softwareproblemen insbesondere an der alten Curie möchte ich mich bei den EDV-Zauberern des Kirchhoff-Instituts bedanken, allen voran Robert Weis, Thomas von Kiedrowski, Leszek Kattinger und Herrn Wittneben.

Ein herzliches Dankeschön an die elektronische Werkstatt, insbesondere an Herrn Weidner, für die Konfektionierung von Kabeln und alles andere.

Ebenfalls ein Dankeschön an alle Mitglieder der mechanischen Werkstatt unter der Leitung von Herrn Lamadé.

Bei Professor Douglas D. Osheroff von der Stanford University bedanke ich mich für die Gelegenheit, drei Monate Laborluft in Stanford zu schnuppern.

Der Heidelberg Graduate School of Fundamental Physics (HGSFP) danke ich für die finanzielle Unterstützung bei meinem Aufenthalt in Stanford, die Zeit, die sich Prof. Sandra Klevansky genommen hat, um mit mir mögliche Unterstützungsmodelle zu entwickeln, die die Vereinbarkeit von wissenschaftlicher Arbeit und Kind verbessern könnten, und die darauf folgende Bezahlung eines HiWi. Bei diesem, Ingo Noßke, möchte ich mich auch für seine LabView-Programmierung bedanken.

Rolf Bätzner hat sehr viel Energie und Planung in die Entwicklung einer Glove Box zum Schweißen von Niob gesteckt. Danke dafür.

Zum Schluss möchte ich mich noch bei meiner Familie bedanken, für die immerwährende Unterstützung in allen Lebenslagen... Natürlich an meine Eltern, die mir meine Ausbildung ermöglicht und stets an mich geglaubt haben, meine Geschwister und Freunde für ihre vielen aufmunternden Worte. Meiner Schwester vielen Dank fürs kurzfristig angesetzte Marcel-ersetzen. Mein ganz besonderer Dank geht an Marcel, der mir in den letzten Wochen den Rücken freigehalten und alle Frustrationen aufgefangen hat, und meine große kleine Antonia, die einfach alles schöner macht, und mich immer mit einem Lachen und einem Drücker empfängt, trotz aller Not- und Übergangslösungen.