

INAUGURAL-DISSERTATION

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlich-Mathematischen

Gesamtfakultät

der

Ruprecht-Karls-Universität

Heidelberg

vorgelegt von

**Dipl.-Phys. Astrid Netsch**

aus Forchheim/Oberfranken

Tag der mündlichen Prüfung: 07.11.2007



Suche nach einem neuartigen, auf  
wechselwirkenden atomaren Tunnelsystemen  
basierenden Wärmediffusionsprozess in  
Gläsern bei ultratiefen Temperaturen

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



Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Einfluss einer Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen in Gläsern auf den Wärmetransport untersucht. Hierzu wurde ein Experiment zur Wärmeleitfähigkeitsmessung mit sehr kleinen Wärmeströmen entwickelt. Die Messmethode ist berührungsfrei, so dass parasitäre Wärmeeinträge minimiert werden können. Untersucht wurden zwei unterschiedlich poröse Glasproben, die Löcher auf einem hexagonalen Gitter besitzen. Diese Einschränkung der Geometrie dient zur Reduktion des phononischen Beitrags zur Wärmeleitfähigkeit. Dies ist notwendig, da der phononische Beitrag in Messungen an Vollmaterial dominant ist und in diesen kein Wärmetransport aufgrund wechselwirkender Tunnelsysteme beobachtet werden kann. Zur Bestimmung der Basistemperatur wurde ein neuartiges Rauschthermometer entwickelt. Dabei wird das Rauschen eines metallischen Leiters induktiv ausgelesen. Ein Vergleich mit der PLTS-2000 zeigte, dass dieses Thermometer sehr gut mit dieser übereinstimmt und das Potenzial hat als Primärthermometer weiterentwickelt zu werden. Die Wärmeleitfähigkeit beider Proben wurde bis 20 mK gemessen. Bei höheren Temperaturen kann die Temperaturabhängigkeit durch die Streuung an Oberflächen beschrieben werden. Unterhalb von etwa 50 mK flacht der Verlauf der Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den kleinen Löchern ab. Dies liefert Hinweise auf einen Beitrag wechselwirkender Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit.

## Search for a Heat Diffusion Process in Glasses at Ultra-Low Temperatures Carried by Interacting Atomic Tunneling Systems

Within the scope of this work the influence of interacting tunnelling systems in glasses on thermal transport was investigated. Therefore an experimental setup was designed for the use of very low heat fluxes. The measuring technique is contact-free to minimize parasitic heating. Two different glass samples with holes on an triangular lattice were studied. The holes reduce the mean free path and therefore the phononic thermal transport. This is necessary because in measurements of the thermal conductivity in bulk glasses the phononic contribution is dominant and therefore no contribution of interacting tunnelling systems in this investigations was found. For measuring the base temperature a noise thermometer was developed which is inductively coupled to the read-out electronics. The new thermometer was compared to the PLTS-2000 and it turned out to work very well and having the capability for primary thermometry. The thermal conductivity was measured down to 20 mK. At higher temperatures the temperature dependence of both samples can be described with scattering processes at surfaces. At temperatures below 50 mK the sample with the smaller holes shows a weaker dependence. This indicates a possible contribution of interacting tunneling systems to the thermal conductivity.



# Inhaltsverzeichnis

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einleitung</b>  | <b>1</b>  |
| <b>2</b> | <b>Rauschthermometrie</b>  | <b>3</b>  |
| 2.1      | Grundlagen . . . . .   | 3         |
| 2.1.1    | Thermisches Johnson–Rauschen . . . . .                                 | 3         |
| 2.1.2    | Fluktuations–Dissipations–Theorem . . . . .                            | 4         |
| 2.2      | Historisches zur Entwicklung von Rauschthermometern . . . . .          | 5         |
| 2.3      | Induktiv ausgelesenes Rauschthermometer . . . . .                      | 7         |
| 2.3.1    | Aufbau und Elektronik . . . . .  | 8         |
| 2.3.2    | Theoretische Beschreibung . . . . .                                    | 9         |
| 2.3.2.1  | Rauschamplitude im dc–Fall . . . . .                                   | 10        |
| 2.3.2.2  | Frequenzverlauf des Rauschsignals . . . . .                            | 13        |
| 2.3.3    | Repräsentation der PLTS-2000 . . . . .                                 | 17        |
| 2.3.4    | Charakterisierung des Rauschthermometers . . . . .                     | 20        |
| 2.3.4.1  | Rauschspektren bei unterschiedlichen Temperaturen . . . . .            | 22        |
| 2.3.4.2  | Vergleich mit der Simulation . . . . .                                 | 24        |
| 2.3.4.3  | Externe Störungen . . . . .  | 25        |
| 2.3.4.4  | Vergleich zwischen Rauschthermometer und Fixpunktthermometer . . . . . | 25        |
| 2.3.4.5  | Messzeit und Genauigkeit . . . . .                                     | 27        |
| 2.3.4.6  | Vergleich zweier Rauschquellen Au und Cu . . . . .                     | 28        |
| 2.3.5    | Weitere Entwicklungen . . . . .  | 30        |
| <b>3</b> | <b>Wärmeleitfähigkeitsexperiment</b>                                   | <b>33</b> |
| 3.1      | Thermometrie mit paramagnetischen Sensoren . . . . .                   | 33        |
| 3.1.1    | Prinzip . . . . .  | 34        |
| 3.1.2    | Eigenschaften des paramagnetischen Sensormaterials . . . . .           | 35        |
| 3.2      | Wärmeleitungsmessung bei tiefen Temperaturen . . . . .                 | 38        |
| 3.2.1    | Messprinzip . . . . .  | 39        |
| 3.2.2    | Versuchsaufbau . . . . .   | 40        |
| 3.2.3    | Durchführung des Experimentes . . . . .                                | 45        |
| 3.2.4    | Thermometrie . . . . .   | 47        |
| 3.2.4.1  | Suszeptibilitätsthermometer . . . . .                                  | 47        |
| 3.2.4.2  | Kohlethermometer . . . . .   | 48        |
| 3.3      | Thermische Eigenschaften von Gläsern . . . . .                         | 50        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 3.3.1    | Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit . . . . .                    | 51         |
| 3.3.1.1  | Wärmekapazität . . . . .   | 51         |
| 3.3.1.2  | Wärmeleitfähigkeit . . . . .                                       | 52         |
| 3.3.2    | Standardtunnelmodell . . . . .                                     | 54         |
| 3.3.2.1  | Doppelmuldenpotenzial . . . . .                                    | 54         |
| 3.3.2.2  | Tunnelsysteme in Gläsern . . . . .                                 | 57         |
| 3.3.2.3  | Streuung von Phononen an Tunnelsystemen . . . . .                  | 58         |
| 3.3.3    | Vorhersagen des Standardtunnelmodells . . . . .                    | 60         |
| 3.3.3.1  | Wärmekapazität . . . . .   | 60         |
| 3.3.3.2  | Wärmeleitfähigkeit . . . . .                                       | 62         |
| 3.3.4    | Weiterführende Modellvorstellungen . . . . .                       | 63         |
| 3.3.4.1  | Grenzen des Standardtunnelmodells . . . . .                        | 63         |
| 3.3.4.2  | Theoretische Modelle . . . . .                                     | 65         |
| 3.3.4.3  | Nicht-phononischer Transportkanal für Wärme . . . . .              | 66         |
| 3.3.5    | Besonderheiten der Wärmeleitfähigkeit poröser Glasproben . . . . . | 70         |
| 3.4      | Messergebnisse und Diskussion . . . . .                            | 72         |
| 3.4.1    | Eigenschaften der Proben . . . . .                                 | 72         |
| 3.4.2    | Kalibration der Thermometer . . . . .                              | 73         |
| 3.4.3    | Wärmeleitfähigkeit . . . . .                                       | 77         |
| 3.4.4    | Grenzflächen-Widerstand . . . . .                                  | 78         |
| 3.4.5    | Heizleistung . . . . .   | 79         |
| 3.4.6    | Parasitäre Wärmeeinträge . . . . .                                 | 80         |
| 3.4.7    | Vergleich beider Proben . . . . .                                  | 84         |
| <b>4</b> | <b>Zusammenfassung und Ausblick</b>                                | <b>93</b>  |
| <b>A</b> | <b>Anhang</b>  | <b>97</b>  |
| A.1      | Technisches . . . . .  | 97         |
| A.2      | dc-SQUID-Magnetometer . . . . .                                    | 98         |
| A.2.1    | dc-SQUID . . . . .   | 98         |
| A.2.2    | Flux-locked-loop-Elektronik . . . . .                              | 100        |
| A.2.3    | Flusstransformator gekoppelte dc-SQUIDs . . . . .                  | 101        |
| A.2.4    | Rauschen . . . . .   | 103        |
|          | <b>Literaturverzeichnis</b>  | <b>105</b> |
|          | <b>Danksagung</b>  | <b>111</b> |

# 1. Einleitung

Glas ist ein uralter Werkstoff, den sich die Menschen schon seit jeher zu Nutze machen. Natürliches Glas entsteht, wenn Gestein durch den Einfluss hoher Temperaturen, wie sie bei Vulkanausbrüchen (Obsidian), Meteoriteneinschlägen (Tektit, Impaktglas) oder Blitzeinschlägen herrschen, schmilzt, schnell wieder abkühlt und erstarrt. Bereits in der Steinzeit wurden Schneidwerkzeuge aus Obsidian verwendet. Die ersten von Menschenhand gefertigten Gläser werden auf den Zeitraum um 3500 v. Chr. datiert. In Mesopotamien finden sich aus diesem und dem folgenden Jahrtausend vor allem Vasen und Töpfe aus Glas. Ungefähr um 1500 v. Chr. entwickelten die Ägypter erste Techniken zur Herstellung von hohlen Glaskörpern. Ein weiterer Durchbruch fand in der Zeit um Christi Geburt statt: Syrische Handwerker setzten zum ersten Mal die Technik des Glasblasens ein. Auf diese Weise erhöhte sich die Vielfalt der möglichen Glasformen enorm. Mit dem Aufstieg des römischen Reiches fand die Glasherstellung in Europa weite Verbreitung. Im Mittelalter um 1100 n. Chr. entstanden die ersten Fenstergläser. Diese waren zunächst noch eine luxuriöse Ausstattung für Kirchen und Paläste. Im weiteren Verlauf der Jahrhunderte konnten die Herstellungsverfahren von Gläsern für die unterschiedlichsten Zwecke immer weiter verbessert und verfeinert werden [GlassOnline]. Heutzutage kommen Gläser in sehr vielen Bereichen zum Einsatz: im Alltag als Trink- oder Fenstergläser, in der Medizin als High-Tech-Brillengläser, zur Herstellung optischer Instrumente, in der Forschung in einer großen Vielfalt als Laborgläser oder als Substratmaterial für Dünnschichtsolarzellen und Flachbildschirme, um nur einige wenige zu nennen.

Obwohl der Werkstoff Glas nun schon so lange hergestellt und verarbeitet wird, ist er dennoch noch nicht vollständig erforscht. Früh war bekannt, dass Glas zu den amorphen Festkörpern zählt; also im Gegensatz zu Kristallen strukturell ungeordnet ist. Dennoch ging man lange davon aus, dass Gläser keine wesentlich anderen thermischen Eigenschaften als Kristalle besitzen. In den 70er Jahren des vorherigen Jahrhunderts rückten im Zuge der Untersuchungen von Festkörpern bei tiefen Temperaturen auch die Gläser in den Blickpunkt der Forscher. Zunächst überraschend zeigten beispielsweise die thermischen Eigenschaften eine völlig andere Temperaturabhängigkeit als die der Kristalle. Bald wurde klar, dass die Unordnung in der atomaren Struktur der Gläser für solche und andere Besonderheiten verantwortlich sein musste. Zur Beschreibung der Tieftemperatureigenschaften von Gläsern wurde das so genannte Standardtunnelmodell entwickelt, dessen Grundlage die Existenz von Tunnelsystemen in Gläsern ist. Dabei handelt es sich um Doppelmuldenpotenziale, deren Potenzialwall gerade so hoch ist, dass bei tiefen Temperaturen die Teilchen im Potenzial die Barriere nur noch durch Tunneln überwinden können.

Viele Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen konnten sehr erfolgreich im Rahmen des Standardtunnelmodells beschrieben werden. Dennoch konnten einige experi-

mentelle Ergebnisse nicht erklärt werden und so blieben einige Fragen bis heute offen. Zu diesen gehört die Frage nach der Relevanz einer möglichen Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander. Im Standardtunnelmodell wird eine solche Wechselwirkung nicht berücksichtigt. In der Vergangenheit mehrten sich jedoch experimentelle Hinweise darauf, dass eine solche Wechselwirkung eine Rolle spielt. Eine Konsequenz der Wechselwirkung ist, dass man einen Wärmetransport über gekoppelte Tunnelsysteme erwartet. Theoretische Arbeiten zeigen, dass der absolute Beitrag eines solchen Transports im Vergleich zum Beitrag der Phononen sehr klein ist. Dies ist mit den bisherigen Messungen der Wärmeleitfähigkeit von Gläsern vereinbar, die nicht im Widerspruch zu den Vorhersagen des Standardtunnelmodells standen, und ergaben, dass die Wärmeleitfähigkeit in Gläsern ebenso wie in Kristallen phononisch ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue Idee verfolgt: Kann man mit porösen Gläsern, die regelmäßig angeordnete Löcher besitzen und auf diese Weise zusätzliche Streuzentren für die Phononen enthalten, die Wärmeleitfähigkeit soweit verringern, dass ein zusätzlicher Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit aufgrund der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen sichtbar wird?

Um dieser Fragestellung nachzugehen, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein spezieller experimenteller Aufbau zur Messung der Wärmeleitfähigkeit entwickelt. Da aufgrund der Löcher in der Probe, der Absolutwert der Wärmeleitfähigkeit reduziert ist, müssen im Experiment sehr kleine Heizleistungen verwendet werden. Dies wiederum führt zu einer größeren Empfindlichkeit des Aufbaus gegenüber parasitären Wärmeeinträgen. Um diese so gering wie möglich zu halten, wurde eine berührungsfreie Messmethode eingesetzt, bei der sowohl der Heizer als auch die Auslese der Thermometer keinen direkten Kontakt zur Probe haben. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Messergebnisse von zwei Glasproben vorgestellt, die sich hinsichtlich der Lochgröße und damit der Porosität unterscheiden.

Zur Messung der Badtemperatur wurde ein neuartiges Rauschthermometer entwickelt. Als Messgröße dient dabei das thermische Rauschen eines Widerstands, das auch als Johnson-Rauschen bekannt ist und direkt mit der Temperatur verknüpft ist. Die Besonderheit dieses Thermometers ist dabei folgende: Es handelt sich um ein berührungsfreies Design, mit dem das Rauschen induktiv ausgelesen wird. Die Diskussion des Aufbaus und die Charakterisierung des Thermometers werden ausführlich erfolgen, da es sich um ein äußerst erfolgreiches Konzept handelt, das auch weiterhin beispielsweise von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt weiterverfolgt werden wird.

Die Arbeit gliedert sich in folgende Abschnitte: Kapitel 2 beschäftigt sich mit dem Aufbau und der Charakterisierung des Rauschthermometers, das im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde. In Kapitel 3 wird das Wärmeleitfähigkeitsexperiment vorgestellt. In den Abschnitten 3.1 und 3.2.2 werden die Besonderheiten der Thermometrie in diesem Experiment und die Messtechnik beschrieben. Im weiteren Verlauf (Abschnitt 3.3) werden die für diese Arbeit relevanten Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen zusammengefasst. Im darauffolgenden Abschnitt 3.4 werden die Ergebnisse der Wärmeleitfähigkeitsmessung diskutiert. In Kapitel 4 schließt die Arbeit mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse einem Ausblick in die Zukunft.

## 2. Rauschthermometrie

Die Thermometrie bei tiefen Temperaturen ist ein sehr umfangreiches Gebiet. Deshalb wird im Rahmen dieser Arbeit aus Gründen der Übersichtlichkeit nur auf die Gruppe der so genannten Rauschthermometer eingegangen werden. Die Vor- und Nachteile und die Einsatzmöglichkeiten verschiedener anderer Thermometrieprinzipien werden in der Literatur detailliert diskutiert. Der interessierte Leser sei hierzu an die einschlägigen Lehrbücher [Enss2005] oder [Pobell2007] und Übersichtsartikel wie [Childs2000], [Pekola2004] oder [Schuster1994] verwiesen.

Das den Rauschthermometern zugrunde liegende Konzept nutzt aus, dass das thermische Rauschen von Widerständen, das auch als Johnson–Rauschen bekannt ist, nur von der Temperatur und dem Widerstand des betrachteten Leiters abhängt. In diesem Kapitel werden im ersten Unterkapitel die physikalischen Grundlagen des thermischen Rauschens in Widerständen vorgestellt. Anschließend wird in Abschnitt 2.2 ein kurzer Überblick über die Entwicklung der Rauschthermometrie bis zum Jahr 2001 gegeben. Der Aufbau und die Eigenschaften des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Rauschthermometers werden im Anschluss ausführlich dargestellt.

### 2.1 Grundlagen

#### 2.1.1 Thermisches Johnson–Rauschen

Im Jahr 1928 publizierte J. B. Johnson einen Artikel [Johnson1928], in dem er Messungen des elektrischen Rauschens von Widerständen vorstellte. Dabei wurden die Auswirkungen der statistischen Fluktuationen von elektrischen Ladungen in Leitern auf das Potential, das zwischen den Enden des Leiters anliegt, untersucht. Zur gleichen Zeit veröffentlichte H. Nyquist die Ergebnisse eines Gedankenexperimentes [Nyquist1928]. In diesem analysierte er den Leistungsübertrag zwischen zwei Widerständen  $R_1$  und  $R_2$ , die durch zwei ideale Leitungen verbunden sind und sich auf zwei verschiedenen Temperaturen  $T_1$  und  $T_2$  befinden. Die Ergebnisse, die beide Autoren für die Varianz des Spannungsrauschens pro Frequenzintervall  $\Delta f$  erhielten, stimmen überein. Als Ausdruck für die spektrale Leistungsdichte  $S_U$  ergibt sich:

$$S_U = \frac{\langle U^2 \rangle}{\Delta f} = 4k_B T R \quad . \quad (2.1)$$

Dabei ist  $k_B$  die Boltzmann-Konstante,  $T$  die Temperatur und  $R$  der Widerstand des Leiters. Das thermische Rauschen besitzt ein weißes Spektrum. Bemerkenswert ist, dass das Rauschen offensichtlich nur vom Wert des ohmschen Widerstands abhängig ist und unabhängig von der Art des Materials und der Form und Beschaffenheit des Leiters. Eine analoge Formulierung gilt für die spektrale Leistungsdichte des Stromrauschens, wenn der

Widerstand durch einen idealen Leiter kurzgeschlossen ist:

$$S_I = \frac{\langle I^2 \rangle}{\Delta f} = \frac{4k_B T}{R} \quad . \quad (2.2)$$

Noch heute sind grundlegende Untersuchungen zu den Theorien von Nyquist von Interesse wie ein 2006 erschienener Artikel zeigt, in dem mit Erfolg eine praktische Realisierung von Nyquists Gedankenexperiment untersucht wurde [Callegaro2006].

### 2.1.2 Fluktuations–Dissipations–Theorem

Die physikalische Grundlage für die Ergebnisse von Johnson und Nyquist ist das so genannte Fluktuations–Dissipations–Theorem. Dieses verknüpft die Eigenschaften der Gleichgewichtsfluktuationen mit den Parametern irreversibler Prozesse.

Im allgemeinen Fall linearer, dissipativer Systeme<sup>1</sup> definiert man eine Impedanz  $Z(\omega)$  als das Verhältnis der äußeren treibenden Kraft  $V$  und der damit assoziierten Antwortfunktion  $\dot{Q}$  des Systems

$$V = Z(\omega)\dot{Q} \quad . \quad (2.3)$$

Die Proportionalitätskonstante zwischen Leistung und dem Quadrat der Störungsamplitude ist auf einfache Weise mit dieser Impedanz verknüpft. Die Leistung ist  $P = V\dot{Q}\text{Re}(Z)/|Z|$ . Als anschauliches Beispiel soll hier der Ausdruck für eine elektronische Schaltung mit der komplexen Impedanz  $Z = R + iX$  genannt werden. In diesem Fall gilt:  $\bar{P} = \bar{U}^2 R/|Z|^2$ , wobei  $U$  die elektrische Spannung ist. Ausgehend von einer harmonisch treibenden Kraft  $V = V_0 \sin(\omega t)$ , ergibt sich die mittlere Leistung  $\bar{P}$  zu

$$\bar{P} = \frac{1}{2} V_0^2 \text{Re}(Z(\omega))/|Z(\omega)|^2 \quad . \quad (2.4)$$

Ist ein System im thermodynamischen Gleichgewicht ohne eine angelegte Kraft  $V$ , dann unterliegt das System spontanen Fluktuationen, die mit einer spontan fluktuierenden Kraft assoziiert werden können. In dieser Betrachtung übernehmen die spontanen Fluktuationen die Rolle der Antwortfunktion  $\dot{Q}$  des Systems. Eine Ableitung mit störungstheoretischen Methoden [Callen1951] ergibt, dass der Mittelwert der spontan fluktuierenden Kraft  $\langle V^2 \rangle$

$$\langle V^2 \rangle = (2/\pi) \int_0^\infty \text{Re}(Z(\omega)) E(\omega, T) d\omega \quad (2.5)$$

mit

$$E(\omega, T) = \frac{1}{2} \hbar \omega + \hbar \omega [\exp(\hbar \omega / k_B T) - 1]^{-1} \quad (2.6)$$

ist. Dabei ist  $E(\omega, T)$  der Ausdruck für die mittlere Energie eines harmonischen Oszillators der Frequenz  $\omega$  bei der Temperatur  $T$  und  $\hbar$  das Plancksche Wirkungsquantum. In

<sup>1</sup>Ein System heißt dissipativ, wenn es fähig ist, Energie aufzunehmen, solange es einer in der Zeit periodischen Störung ausgesetzt wird. Man nennt es linear, wenn die Leistungsdissipation quadratisch von der Größe der Störung abhängt.

[Weber1956] konnte gezeigt werden, dass Gleichung 2.5, das so genannte Fluktuations–Dissipations–Theorem, für alle linear dissipativen Systeme exakt gilt. Im Limes hoher Temperaturen nimmt  $E(\omega, T)$  den Wert

$$E(\omega, T) \cong k_B T, (k_B T \gg \hbar \omega) \quad (2.7)$$

an. In diesem Grenzfall nimmt die Varianz des Rauschens der verallgemeinerten treibenden Kraft  $V$  die Form

$$\langle V^2 \rangle \cong (2/\pi) k_B T \int_0^\infty R(\omega) d\omega \quad (2.8)$$

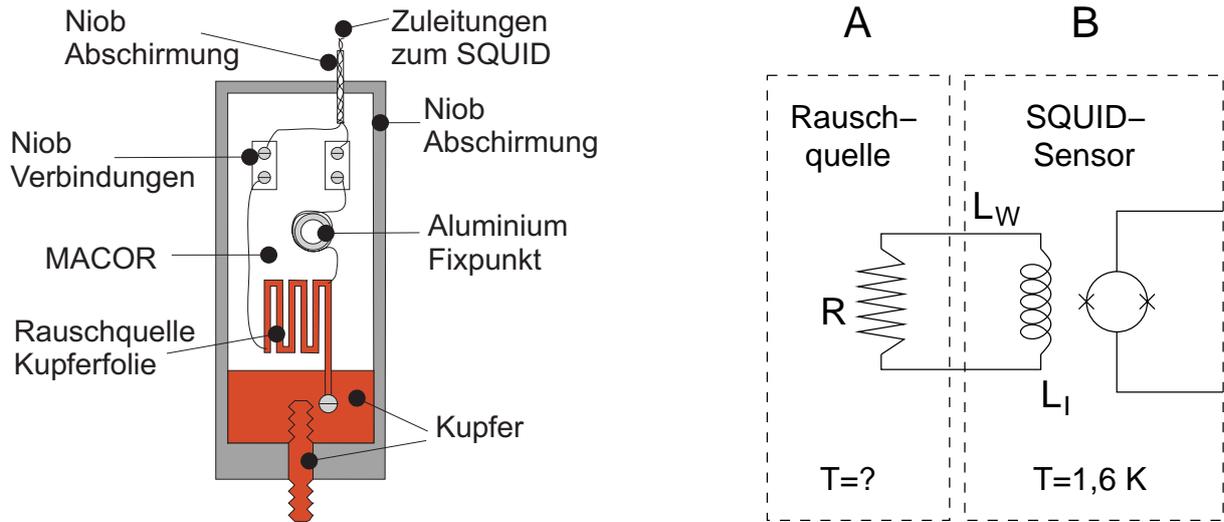
an. Die Anwendung auf den elektrischen Fall ist offensichtlich. Gleichung 2.5 ist identisch mit der Formulierung von Nyquist für das Johnson–Rauschen, wenn man die Kraft  $V$  mit der elektrischen Spannung gleich setzt. Der Vorteil dieser allgemeinen Beschreibung ist, dass damit auch andere Systeme behandelt werden können wie zum Beispiel die Brownsche Bewegung oder Druckfluktuationen in Gasen.

## 2.2 Historisches zur Entwicklung von Rauschthermometern

Wie bereits erwähnt nutzt man bei dem Bau von Rauschthermometern aus, dass das thermische Spannungs- bzw. Stromrauschen nur von der Temperatur und dem Widerstand des betrachteten Leiters abhängt (siehe Gleichungen 2.1 und 2.2). Diese relativ einfachen Gesetzmäßigkeiten machen Rauschthermometrie sehr attraktiv, da es im Prinzip möglich ist, Primärthermometer auf der Basis des thermischen Rauschens zu entwickeln. Die Entwicklung von Rauschthermometern für die Bestimmung von Temperaturen unterhalb von 100 mK verlief lange Zeit jedoch eher schleppend, da es keine Verstärker gab, die selbst so rauscharm waren, dass das thermische Rauschen unbeeinflusst gemessen werden konnte. Erst mit der Entwicklung der so genannten SQUIDs<sup>2</sup> standen erstmals geeignete Verstärker zur Verfügung. Zunächst wurden rf-SQUIDs eingesetzt. Mit dieser Technik konnten bereits beachtliche Erfolge erzielt werden (zum Beispiel [Schuster1990], [Soulen1994] und [Bremer1994]). Ein großer Nachteil blieben dennoch die langen Messzeiten. Um eine Temperaturinformation mit einer Unsicherheit von einem Prozent zu erreichen, betrug die Messzeit immerhin etwa eine Stunde. Daher war diese Thermometriemethode lange Zeit nicht für den alltäglichen Einsatz im Labor geeignet. Einen Überblick über den Stand der Entwicklungen auf dem Gebiet der Johnson–Rauschthermometer im Jahr 1996 findet man in [White1996].

Im Jahr 2001 stellten Lusher *et al.* ein neuartiges Rauschthermometer vor, das das Stromrauschen als Temperaturinformation benutzt [Lusher2001]. Eine Skizze des Auf-

<sup>2</sup>Aus dem Englischen: **S**uperconducting **Q**uantum **I**nterference **D**evice. Ein SQUID besteht aus einer supraleitenden Leiterschleife, die durch eine dünne Isolationsschicht unterbrochen ist. Durch diesen so genannten Josephson–Kontakt können die Cooper–Paare tunneln. Ein SQUID wird rf-SQUID genannt, wenn es einen solchen Kontakt, und dc-SQUID wenn es zwei Kontakte gibt. Weitere Erläuterungen finden sich im Anhang A.2.



**Abb. 2.1:** Rauschthermometeraufbau nach [Lusher2001]. *Links:* Die Rauschquelle (eine Kupferfolie) ist auf einem Träger aus MACOR aufgebracht und elektrisch mit der Masse des Kupferhalters verbunden. Zusätzlich ist ein Fixpunktthermometer aus Aluminium eingebaut. Die Verbindungen zur Einkoppelspule  $L_I$  des dc-SQUIDs bestehen aus supraleitenden Niob-Drähten. Der komplette Aufbau ist in einem Niobgehäuse untergebracht, um externe Störungen abzuschirmen (nicht dargestellt). *Rechts:* Schematische Darstellung der Kopplung zwischen Rauschquelle  $R$  und dem dc-SQUID.

baus ist im linken Teil der Abbildung 2.1 zu sehen. Die Rauschquelle besteht aus einer Kupferfolie mit  $25\ \mu\text{m}$  Dicke und der Reinheit 99,9%. Um Einflüsse auf die Rauschquelle durch umgebendes Metall, das ebenfalls thermisches Rauschen aufweist, zu unterdrücken, ist die Kupferfolie auf MACOR<sup>3</sup>, einer Keramik, aufgebracht. Die Kupferfolie ist über supraleitende Niob-Drähte mit der Einkoppelspule  $L_I$  des dc-SQUIDs verbunden (schematische Darstellung im rechten Teil der Abbildung 2.1). Es entsteht ein geschlossener Stromkreis. Auf diese Weise führt das Stromrauschen in der Kupferfolie zu einem Flussrauschen in der Einkoppelspule. Dieses wiederum wird von einem dc-SQUID<sup>4</sup> detektiert, das hier durch geeignete elektronische Beschaltung als linearer Fluss-Spannungs-Wandler eingesetzt wird. Der komplette Aufbau ist in einem Niobgehäuse untergebracht, um externe Störungen abzuschirmen. Zusätzlich ist ein Fixpunktthermometer aus Aluminium eingebaut. Da dc-SQUIDs eine sehr gute Energieempfindlichkeit besitzen, kann ein relativ großer Widerstand (im  $\text{m}\Omega$ -Bereich) als Rauschquelle verwendet werden. Dies wiederum führte zu einem wichtigen Fortschritt: Aufgrund der Tatsache, dass ein größerer Widerstand zu einer höheren Abschneidefrequenz ( $\omega_0 = R/L$ ) führt, konnten die Mittelungszeiten bei der Messung des Spektrums des thermischen Rauschens stark verkürzt

<sup>3</sup>MACOR ist ein weißer, porzellanartig aussehender Werkstoff der Fa. Corning. Es handelt sich dabei um eine spanend bearbeitbare Glaskeramik.

<sup>4</sup>Die genaue Funktionsweise der auch im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten dc-SQUIDs (SQUIDs mit zwei Josephson-Kontakten) wird im Anhang A.2 im Detail beschrieben.

werden. Um die Temperatur bis auf ein Prozent Unsicherheit bestimmen zu können, beträgt die Messzeit mit diesem Aufbau etwa 10s. Problematisch ist bei diesem Aufbau, wie grundsätzlich bei jeder Art der Rauschthermometrie bei tiefen Temperaturen, dass bereits kleine parasitäre Wärmeeinträge in die Rauschquelle dazu führen, dass die Temperatur der Elektronen  $T_E$  signifikant höher ist als die der Phononen  $T_{Ph}$ . Die Elektronen in einem Metall werden kalt, indem sie ihre Energie mit einer bestimmten Rate an die Phononen übertragen. Bei sehr tiefen Temperaturen ist die Elektron–Phonon–Kopplung sehr schwach und die Rate ist gegeben durch:

$$P = \Sigma\Omega(T_E^5 - T_{Ph}^5) \quad . \quad (2.9)$$

Dabei ist  $\Omega$  das Volumen des Metalls. Der Parameter  $\Sigma$  kann experimentell bestimmt werden [Roukes1985, Wellstood1994]. Eine ausführliche Darstellung dieser Überlegungen findet man in [Wellstood1994]. Bei dem eben diskutierten Aufbau eines Rauschthermometers soll dieses Problem signifikant reduziert werden, indem die Kupferfolie zusätzlich mit dem Kupferhalter des Thermometers elektrisch verbunden wird. Mit dieser Maßnahme soll sicher gestellt werden, dass die Elektronen im Widerstand durch Elektronenleitung zum Bad thermalisieren können.

Um Probleme dieser Art besser zu vermeiden, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Rauschthermometer entwickelt, dessen Rauschen induktiv aufgenommen und mit einem dc-SQUID verstärkt wird. Durch die induktive Kopplung gibt es keinen elektrischen Kontakt zwischen den Komponenten der Elektronik bei höheren Temperaturen und der Rauschquelle selbst. Dadurch können parasitäre Wärmeeinträge sehr klein gehalten werden. Weiterhin erlaubt die induktive Auslesung einen Aufbau des Temperatursensors aus Vollmaterial. Aufgrund dessen kann die im letzten Abschnitt diskutierte thermische Ankopplung sehr einfach und sehr effizient erfolgen. Der Aufbau und die Eigenschaften dieses Thermometers werden nun in den folgenden Abschnitten dieses Kapitels vorgestellt und diskutiert.

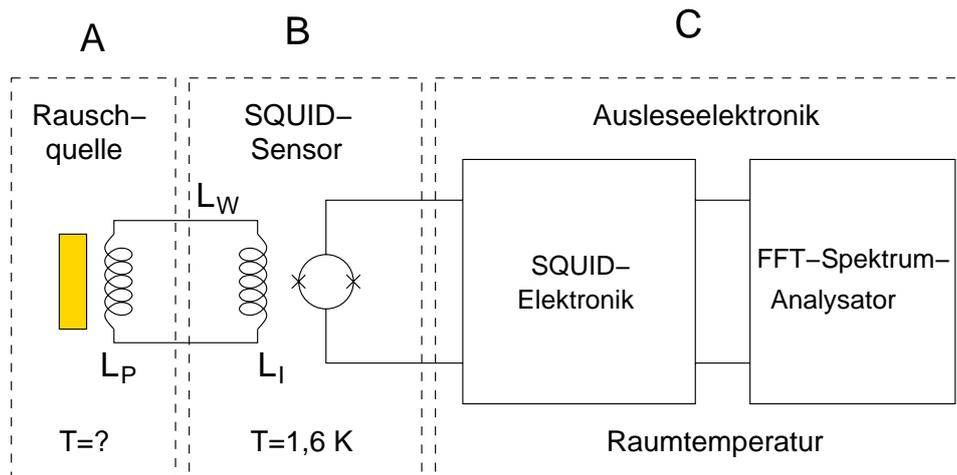
### 2.3 Induktiv ausgelesenes Rauschthermometer

Die thermische Bewegung der Elektronen in einem Metall zeigt sich nicht nur als Strom- oder Spannungsrauschen. Betrachtet man den magnetischen Fluss, so äußert sich das thermische Rauschen auch in einem Rauschen des magnetischen Flusses, verursacht durch die sich ungerichtet bewegenden Elektronen. Dieser Effekt wird in der Literatur auch magnetisches Johnson–Rauschen genannt. Im folgenden Abschnitt soll nun das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Rauschthermometer vorgestellt werden. Wesentlicher Unterschied zu dem im letzten Abschnitt vorgestellten Aufbau von Lusher *et al.* ([Lusher2001]) besteht in der induktiven Detektion des Rauschsignals. Für den Nachweis des magnetischen Flussrauschens wird ein dc-SQUID eingesetzt. Dieser neuartige Ansatz bietet einige Vorteile: Zum einen gibt es keinen elektrischen Kontakt zwischen den Zuleitungen und der Rauschquelle und somit können keine heißen Elektronen in den Widerstand eingetragen werden, zum

anderen erlaubt der induktive Aufbau die Verwendung von Vollmaterial als Rauschquelle anstelle einer mikrostrukturierten Probe. Deswegen ist der Aufbau kompakter, thermisch robuster und einfacher in der Realisierung.

### 2.3.1 Aufbau und Elektronik

Im folgenden Abschnitt wird der Aufbau und die Funktionsweise eines solchen Thermometers diskutiert.

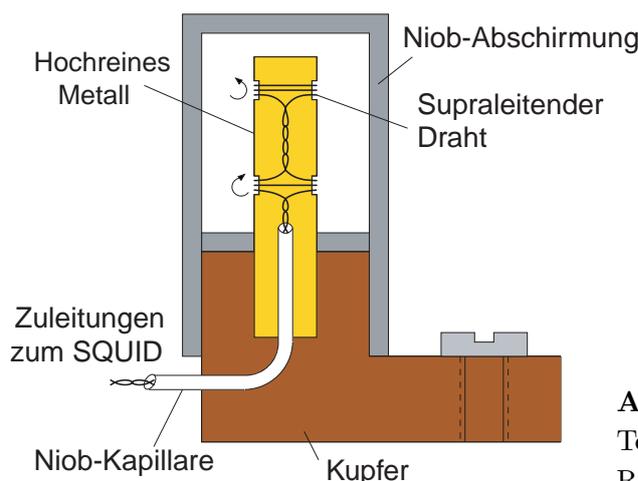


**Abb. 2.2:** Verschaltung und Ausleseelektronik des Rauschthermometers. Die Induktivitäten der Einkoppelspule, der Detektionsspule und der Drähte sind mit  $L_P$ ,  $L_I$  und  $L_W$  bezeichnet.

Abbildung 2.2 zeigt die elektronische Verschaltung und die Ausleseelektronik des Rauschthermometers. Die einzelnen Komponenten Temperatursensor, dc-SQUID und Ausleseelektronik befinden sich bei drei verschiedenen Temperaturen. Im Bild links ist die metallische Rauschquelle zu sehen, deren temperaturabhängiges Stromrauschen zu magnetischem Johnson-Rauschen führt und somit ein Flussrauschen in der Detektionsspule  $L_P$ . Diese wiederum bildet zusammen mit der Einkoppelspule des dc-SQUIDs einen supraleitenden Flusstransformator. Das in die Detektionsspule induktiv eingekoppelte magnetische Johnson-Rauschen wird so über den Flusstransformator in das dc-SQUID eingekoppelt. Dieses fungiert als linearer Fluss-Spannungs-Wandler und gleichzeitig als rauscharmer Verstärker. Das dc-SQUID ist am 1K-Topf eines Verdünnungskryostaten (siehe Anhang A.1) angebracht und wird bei einer konstanten Temperatur von 1,6 K betrieben. Dabei handelt es sich um ein kommerziell erhältliches dc-SQUID<sup>5</sup>. Die genauen Spezifikationen sind im Anhang in der Tabelle A.1 (SQUID vom Typ 2) angegeben. Die zugehörige Ausleseelektronik befindet sich ebenso wie der FFT-Spektrum-Analysator<sup>6</sup>, mit dem das Rauschen gemessen wird, bei Raumtemperatur.

<sup>5</sup>SQUID und Elektronik werden von der Fa. Tristan Technologies vertrieben. Entwickelt wurde das SQUID von der Fa. Quantum Design; die Elektronik stammt von der Fa. Conductus.

<sup>6</sup>Stanford Research SR770 Spectrum Analyzer



**Abb. 2.3:** Schematische Darstellung des Temperatursensors des induktiv ausgelesenen Rauschthermometers

Abbildung 2.3 zeigt eine schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus des Temperatursensors aus Abbildung 2.2, Bereich A. Zunächst soll die Rauschquelle selbst betrachtet werden. Diese ist in dem dargestellten Aufbau<sup>7</sup> ein aus Gold bestehender Zylinder mit einer Reinheit von 99,999 % und einem Restwiderstandsverhältnis  $RRR$  von etwa 117. Das Gold muss eine hohe Reinheit besitzen, um zu gewährleisten, dass der Widerstand bei tiefen Temperaturen keine Temperaturabhängigkeit zeigt [Koshenevisan1979]. Befinden sich beispielsweise magnetische Verunreinigungen in der Probe, so kommt es bei tiefen Temperaturen zum so genannten Kondo-Effekt. Dieser führt dazu, dass Metalle wie Gold oder Kupfer zu tiefen Temperaturen hin zunächst ein Widerstandsminimum aufweisen und bei weiter abnehmender Temperatur einen Wiederanstieg des Widerstandes zeigen [Kondo1966]. Solche Einflüsse zu vermeiden ist essentiell, wenn man eine zusätzliche Messung des spezifischen Widerstands der Rauschquelle vermeiden möchte. Der freistehende Teil des Goldzylinders ist 6 mm lang und besitzt einen Durchmesser von 2 mm. In den Zylinder sind entlang des Umfangs in die Mantelfläche zwei Nuten gefräst. In diese Nuten ist eine gradiometrisch aufgebaute Spule aus Niob-Draht mit je 17 Windungen pro Nut gewickelt, in die das magnetische Rauschen induktiv einkoppelt. Diese Spule mit der Induktivität  $L_P$  bildet, wie bereits in Zusammenhang mit Abbildung 2.2 beschrieben, zusammen mit der Einkoppelspule des SQUIDs einen supraleitenden Flusstransformator. Der Goldzylinder selbst ist in einem Kupferhalter befestigt und zur Abschirmung externer Magnetfelder von einer Niobhülse umgeben. Das Thermometer kann mit einer Schraube an der Experimentierplattform des Kryostaten montiert werden, um deren Temperatur zu bestimmen.

### 2.3.2 Theoretische Beschreibung

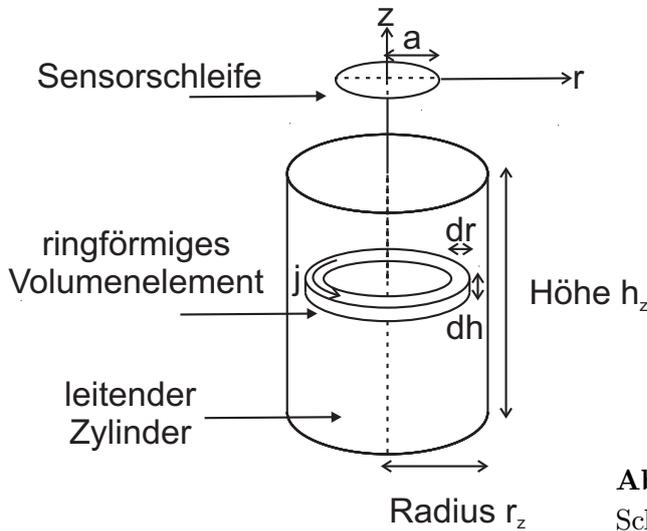
In diesem Abschnitt werden die Amplitude und der Frequenzverlauf des magnetischen Johnson-Rauschens, des im letzten Abschnitt beschriebenen Aufbaus, mit analytischen

<sup>7</sup>Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein weiterer Aufbau mit einer Rauschquelle aus Kupfer (Reinheit 99,999%,  $RRR=1000$ ) untersucht. Dabei sind Halter und Rauschquelle aus einem Stück.

und numerischen Methoden abgeleitet. Im Anschluss daran werden die berechneten Spektren mit den Messungen verglichen.

Im ersten Schritt sollen der Imaginärteil der komplexen Impedanz und die Frequenzabhängigkeit des Widerstandes der zylinderförmigen Rauschquelle vernachlässigt werden. Das bedeutet, dass die Rauschquelle einen Widerstand  $R$  hat, der zunächst als unabhängig von der Frequenz  $\omega$  der rauschenden Ströme angenommen wird. Mit diesen Annahmen kann nun näherungsweise die Amplitude des magnetischen Johnson-Rauschens hergeleitet werden (nach [Uzunbajakau2003]). Anschließend soll in Simulationsrechnungen unter Berücksichtigung der Frequenzabhängigkeit der Induktivität  $L$  und des Widerstandes  $R$  der Frequenzverlauf des Rauschens berechnet werden.

### 2.3.2.1 Rauschamplitude im dc-Fall



**Abb. 2.4:** Skizze der Anordnung der leitenden Scheibe und der Sensorschleife.

Als Ausgangspunkt der Diskussion wird zunächst die in Abbildung 2.4 skizzierte Geometrie betrachtet. In dieser vereinfachten Geometrie wird ein Zylinder aus leitendem Material, zu dem koaxial eine ringförmige Sensorschleife liegt, betrachtet. Der Zylinder besitzt die Leitfähigkeit  $\sigma$ , den Radius  $r_z$  und die Höhe  $h_z$ . Dabei soll die Schleife mit dem Radius  $a$  in der  $xy$ -Ebene ( $z = 0$ ) liegen. Aufgrund der axialsymmetrischen Geometrie des vorliegenden Problems leisten nur die tangentialen Komponenten der Ströme, die durch die thermischen Bewegung der Elektronen in dem Zylinder entstehen, einen Beitrag zum magnetischen Fluss in der Sensorschleife. Ein dem Problem angepasstes Volumenelement des Zylinders für die folgenden Berechnungen ist ein ringförmiges Element mit Radius  $r$ , Breite  $dr$  und Höhe  $dh$ . Für das mittlere Stromrauschen in einem solchen Element gilt:

$$dS_I = \frac{4k_B T}{dR} \quad , \quad (2.10)$$

dabei ist  $dR$  der Widerstand des Volumenelements

$$dR = \frac{2\pi r}{\sigma dr dh} \quad . \quad (2.11)$$

Aus Gleichung 2.10 und 2.11 folgt für den Beitrag des betrachteten Volumenelementes zum Stromrauschen

$$dS_I = 4k_B T \sigma \frac{drdh}{2\pi r} \quad . \quad (2.12)$$

Das Rauschen des magnetischen Flusses in der Sensorschleife  $dS_\Phi$  ist mit dem Stromrauschen  $dS_I$  in dem Zylinder durch die Gegeninduktivität  $M$  verknüpft:

$$dS_\Phi = M^2 dS_I \quad . \quad (2.13)$$

In Lehrbüchern der Elektrodynamik, wie zum Beispiel [Jackson2002], findet man für die Gegeninduktivität  $M$  zwischen zwei coaxialen Schleifen mit den Radien  $r$  und  $a$ , die sich im Abstand  $z$  befinden, folgenden Ausdruck:

$$M = \frac{2\mu_0 \sqrt{ra}}{k} \left[ \left(1 - \frac{k^2}{2}\right) K(k) - E(k) \right] \quad (2.14)$$

mit

$$k^2 = \frac{4ra}{z^2 + (r+a)^2} \quad . \quad (2.15)$$

$K(k)$  und  $E(k)$  sind komplette elliptische Integrale der ersten und zweiten Art und sind durch

$$K(k) = \int_0^{\pi/2} \frac{1}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \Theta}} d\Theta \quad (2.16)$$

und

$$E(k) = \int_0^{\pi/2} \sqrt{1 - k^2 \sin^2 \Theta} d\Theta \quad (2.17)$$

gegeben. Für die spektrale Leistungsdichte des magnetischen Flussrauschens in der Schleife, das durch das Stromrauschen in dem betrachteten ringförmigen Volumenelement verursacht wird, folgt aus Gleichung 2.12 und Gleichung 2.13:

$$dS_\Phi = \frac{4k_B T \sigma}{2\pi} \frac{M^2}{r} drdh \quad (2.18)$$

Für das gesamte magnetische Flussrauschen, das ein solcher Zylinder erzeugt, erhält man

$$S_\Phi = \frac{4k_B T \sigma}{2\pi} \int_0^{hz} dh \int_0^{rz} \left(\frac{2}{k}\right)^2 \left[ \left(1 - \frac{k^2}{2}\right) K(k) - E(k) \right]^2 dr \quad . \quad (2.19)$$

Gleichung 2.19 kann für alle zylinderförmigen Leiter und Schleifen, solange sie coaxial sind, numerisch gelöst werden.

Um die Abhängigkeiten deutlicher herauszuarbeiten und die numerische Lösung zu vereinfachen, wollen wir an dieser Stelle zu reduzierten Längenskalen übergehen. Als charakteristische Längenskala in diesem Problem soll der Radius der Sensorschleife  $a$  gewählt

werden. Alle Größen lassen sich nun folgendermaßen auf den Schleifenradius normieren:  $\hat{r} = r/a$ ,  $\hat{h} = h/a$  und  $\hat{a} = 1$ . Mit dieser Skalierung ergibt sich für Gleichung 2.19

$$S_{\Phi} = \frac{\mu_0^2 4k_B T \sigma a^3}{2\pi} \int_0^{\hat{h}_Z} d\hat{h} \int_0^{\hat{r}_Z} \left(\frac{2}{k}\right)^2 \left[ \left(1 - \frac{k^2}{2}\right) K(k) - E(k) \right]^2 d\hat{r} \quad (2.20)$$

mit  $\hat{h}_Z = h_Z/a$  und  $\hat{r}_Z = r_Z/a$ . Um die Diskussion der Ergebnisse einer numerischen Berechnung von  $S_{\Phi}$  zu erleichtern, kann außerdem eine reduzierte, dimensionslose Leistungsdichte

$$s_{\Phi} = \frac{S_{\Phi}}{\mu_0^2 4k_B T \sigma a^3} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\hat{h}_Z} d\hat{h} \int_0^{\hat{r}_Z} \left(\frac{2}{k}\right)^2 \left[ \left(1 - \frac{k^2}{2}\right) K(k) - E(k) \right]^2 d\hat{r} \quad (2.21)$$

eingeführt werden. Die zur Diskussion notwendige Ableitung ist

$$\frac{ds_{\Phi}}{d\hat{h}} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\hat{r}_Z} \left(\frac{2}{k}\right)^2 \left[ \left(1 - \frac{k^2}{2}\right) K(k) - E(k) \right]^2 d\hat{r} \quad (2.22)$$

Für eine Schleife, die eng um einen leitenden Zylinder gewickelt ist, kann man annehmen, dass  $a = r_Z$  gilt. Daraus ergibt sich als Lösung für das reduzierte Flussrauschen in einem unendlich langen Zylinder

$$s_{\Phi} = \int_{-\infty}^{\infty} d\hat{h} \frac{ds_{\Phi}}{d\hat{h}} = \frac{1}{4\pi} \quad (2.23)$$

Es ergibt sich für das Flussrauschen der vollständige Ausdruck

$$S_{\Phi} = \mu_0^2 4k_B T \sigma r_Z^3 \frac{1}{4\pi} \quad (2.24)$$

Die Gleichungen 2.23 und 2.24 lassen sich durch die Einführung eines Geometriefaktors

$$G = \int_0^{\hat{h}_Z} d\hat{h} \frac{ds_{\Phi}}{d\hat{h}} \quad (2.25)$$

auf beliebige koaxiale Geometrien verallgemeinern. Für das magnetische Flussrauschen gilt dann

$$S_{\Phi} = \mu_0^2 4k_B T \sigma a^3 G \quad (2.26)$$

Dabei hängt der Geometriefaktor lediglich von der relativen Geometrie der vorliegenden Problemstellung und nicht von der Temperatur ab. Ausdruck 2.26 macht deutlich, dass, sobald der temperaturunabhängige Geometriefaktor  $G$  einmal bekannt ist, die Rauschamplitude für jede beliebige Temperatur berechnet werden kann.

### 2.3.2.2 Frequenzverlauf des Rauschsignals

Im weiteren Verlauf soll nun die Frequenzabhängigkeit des magnetischen Rauschens diskutiert werden. Bis zu diesem Punkt wurde angenommen, dass das Johnson–Rauschen weißes Rauschen ist und somit keine Frequenzabhängigkeit aufweist. Da aber der metallische Leiter neben dem Widerstand  $R$  auch eine Induktivität  $L$  besitzt ( $Z = R + i\omega L$ ), verhält sich das System wie ein Tiefpass mit der Abschneidefrequenz  $\omega_0 = R/L$ . Daraus ergibt sich für die Frequenzabhängigkeit des magnetischen Johnson–Rauschens

$$S_{\Phi} = 4k_{\text{B}}T\sigma \frac{1}{1 + (f/f_0)^2} \quad . \quad (2.27)$$

Dieser Effekt ist in der Literatur auch als so genannter Skin–Effekt beschrieben: Bei hohen Frequenzen trägt nur noch die äußere Schicht des Materials die Ströme. Eine Konsequenz daraus ist, dass das magnetische Feld im Material exponentiell abfällt. Bei der so genannten Skin–Tiefe  $\delta = 1/\sqrt{\pi f \mu \sigma}$  beträgt die Amplitude des magnetischen Feldes nur noch  $1/e$  des Wertes an der Oberfläche des Materials. Dabei ist  $\mu$  die Permeabilität des Materials. Die hier betrachteten Frequenzen und Materialdicken liegen in einem Bereich, in dem dieser Effekt bereits deutlich zum Tragen kommt. Der Skin–Effekt führt dazu, dass der Widerstand  $R = R(\omega)$  und die Induktivität  $L = L(\omega)$  jeweils eine Frequenzabhängigkeit zeigen und das Rauschspektrum nicht quadratisch abfällt, sondern flacher:

$$S_{\Phi} = 4k_{\text{B}}T\sigma \frac{1}{(1 + (f/f_0)^{\alpha})^{\beta}} \quad , \quad (2.28)$$

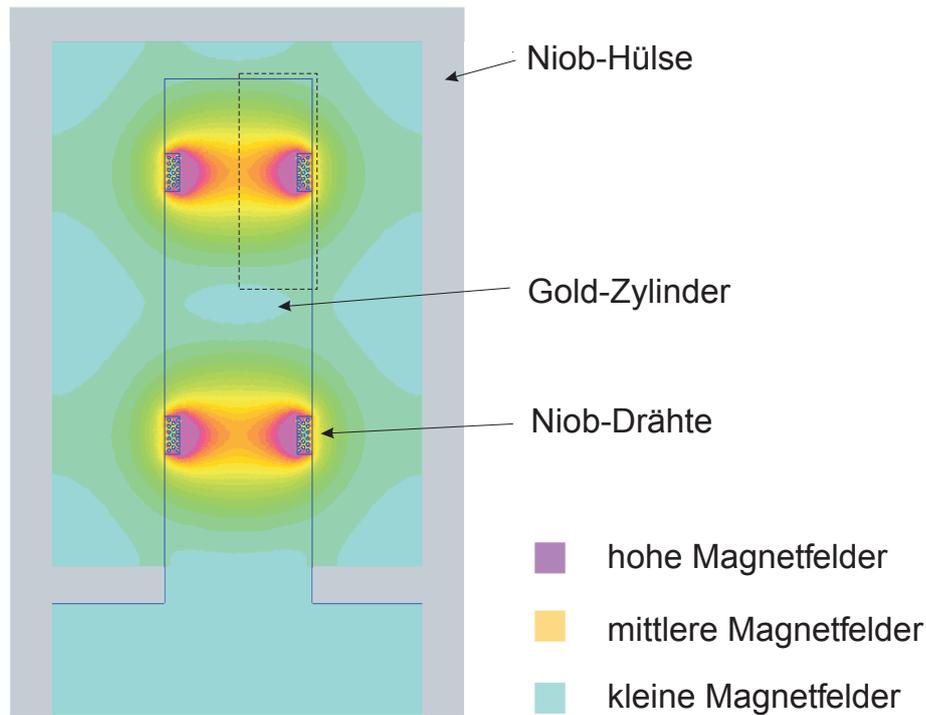
Der genauen Werte von  $\alpha$  und  $\beta$  sind von der Geometrie der Probe abhängig.

Der Frequenzverlauf des magnetischen Flussrauschens ist nicht analytisch berechenbar. Daher muss das Problem mit numerischen Methoden in Angriff genommen werden. Im nächsten Abschnitt werden Simulationen, die auf der Anwendung der Methode der finiten Elemente beruhen, vorgestellt. Dazu wurde das frei erhältliche Programmpaket FEMM<sup>8</sup> benutzt. Die Methode der finiten Elemente wird im Rahmen dieser Arbeit nicht diskutiert; eine ausführliche Darstellung findet man zum Beispiel in [Goering1993].

Die hier diskutierte Problemstellung ist nicht so ohne weiteres auf das hier verwendete FEMM–Programm übertragbar. Hierzu muss das Problem zunächst umgekehrt werden. Im Normalfall erzeugt das thermische Rauschen der Elektronen im Goldzylinder ein magnetisches Flussrauschen, das induktiv in die Detektionsspule einkoppelt. In dieser wiederum wird dadurch ein Stromrauschen induziert, das Flusserhaltung innerhalb des Flusstransformators garantiert. Ein Problem dieser Art kann nicht mit dem vorliegenden Programm gelöst werden. Ein möglicher Ansatz ist jedoch, Strom bei verschiedenen Frequenzen durch die Detektionsspule zu treiben und die Verteilung der Wirbelstromdichte in der Rauschquelle zu berechnen. Dies sind dann jeweils die Ströme, die im Rauschspektrum zu einer bestimmten Frequenz beitragen.

<sup>8</sup>FEMM: Finite Element Method Magnetics (v4.0) von David Meeker, <http://femm.berlios.de> .

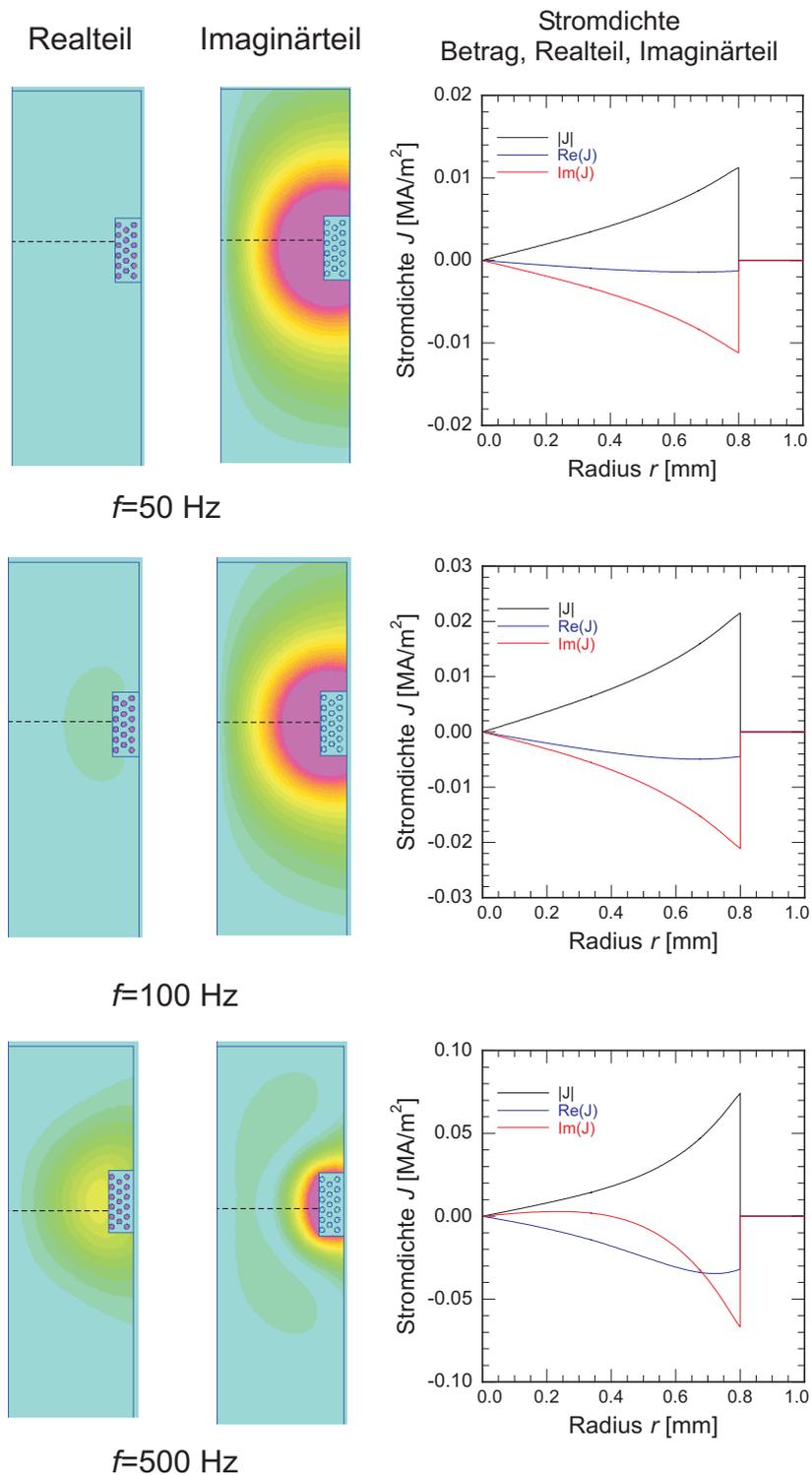
In Abbildung 2.5 ist ein Querschnitt durch das Rauschthermometer gezeigt, in dem zunächst der Betrag des Magnetfeldes für einen Gleichstrom in den Niob-Spulen dargestellt ist. Die Rauschquelle besteht aus Gold mit einem Restwiderstandverhältnis von  $RRR = 117$ . Mit grauer Farbe ist die Abschirmung aus Niob gekennzeichnet. Es ist gut zu erkennen, dass die Magnetfelder der beiden Teile der gradiometrischen Detektionsspule sich nicht wesentlich überlappen und am Rand der Nuten maximal sind.



**Abb. 2.5:** Ergebnis der FEMM-Berechnung, die die B-Feld-Verteilung bei  $f = 0$  zeigt. In Grau ist die Abschirmung aus Niob dargestellt.

Für Frequenzen  $f \neq 0$  kann man die Verteilung der Wirbelströme darstellen. In Abbildung 2.6 ist nur der gestrichelt markierte Bereich aus Abbildung 2.5 für verschiedene Frequenzen gezeigt. Zu beachten ist, dass die Farbskala des Imaginärteils selbst skaliert wurde, um die Effekte besser sichtbar zu machen. Es wurde folgende Skalierung verwendet:  $\text{Max}_{\text{Skala}}(f) = \frac{f}{5 \text{ Hz}} * \text{Max}_{\text{Skala}}(5 \text{ Hz})$ . Die Skala, in der der Realteil dargestellt ist, ist in allen Darstellungen dieselbe. Die zugehörigen Graphen zeigen den Verlauf von Betrag, Realteil und Imaginärteil der Stromdichte auf der gestrichelt eingezeichneten Mittellinie. Man erkennt deutlich, dass die Wirbelstromverteilung mit zunehmender Frequenz am Rand der Nut dichter wird. Die Ströme werden aus dem Inneren der Probe an den Rand gedrängt. Wie zu erwarten war, tragen so bei hohen Frequenzen vor allem Kreisströme am Rand der Rauschquelle zum Flussrauschen bei (Skin-Effekt).

Aus diesen Simulationen können nun die Induktivitäten der Detektionsspule und des Verlustes für die Berechnung von Amplitude und Frequenzverlauf des Rauschens bestimmt werden. Dazu kann das Integral  $\int \mathbf{A} \cdot \mathbf{J} dV$  bestimmt werden, aus dem sich die komplexe

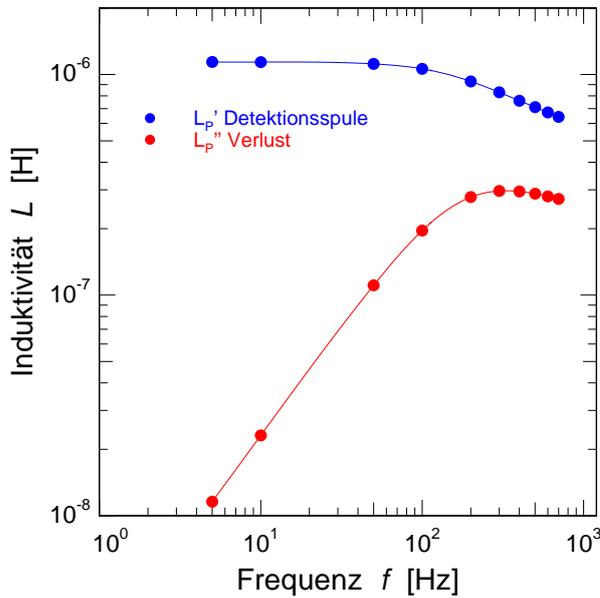


**Abb. 2.6:** Ergebnisse der FEMM-Berechnungen, die die Verteilung der Wirbelstromdichte in und außer Phase bei verschiedenen Frequenzen zeigen. Die zugehörigen Graphen zeigen den Verlauf von Betrag, Realteil und Imaginärteil der Stromdichte auf der gestrichelt gezeichneten Mittellinie. Die Bedeutung der Farbskalen wird im Text erläutert.

Induktivität wie folgt berechnet:

$$L = \frac{\int \mathbf{A} \cdot \mathbf{J} dV}{I_0^2} \quad . \quad (2.29)$$

Mit  $I_0$  ist die Amplitude des Wechselstroms bezeichnet, der in der Simulation in der Spule fließt. Dieser kann beliebig gewählt werden. Aus der komplexen Induktivität, die man durch diese Integration erhält, können nun die Induktivität der Detektionsspule  $L'_p$  (Realteil) und der Verlust  $L''_p$  (Imaginärteil) bestimmt werden. In Abbildung 2.7 sind die Ergebnisse dargestellt.



**Abb. 2.7:** Dargestellt sind die Induktivität der Detektionsspule  $L'_p$  und der Verlust  $L''_p$ , wie sie aus der Simulation berechnet wurden. Die rote und die blaue Linie sind Führungslinien, um den Verlauf besser erkennen zu können.

Auffällig ist, dass die Induktivität der Detektionsspule mit zunehmender Frequenz abnimmt, während der Verlust ein Maximum durchläuft und mit zunehmender Frequenz dann ebenfalls wieder abfällt. Für das quadrierte magnetische Flussrauschen im SQUID gilt (aus Gleichung 2.13):

$$S_\Phi = M^2 S_I = \frac{M^2 S_U}{|Z(\omega)|^2} = \frac{2 k_B T M^2 R(\omega)}{\pi |Z(\omega)|^2} \quad . \quad (2.30)$$

Dabei sind  $R(\omega)$  und  $Z(\omega)$  durch

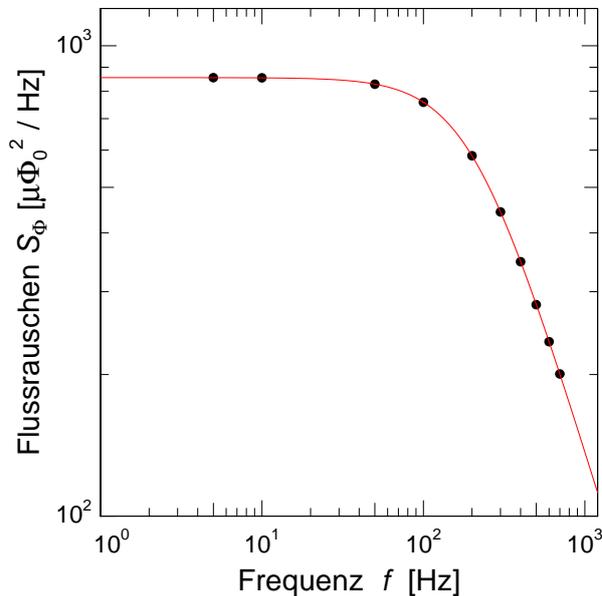
$$R(\omega) = \omega L''_p(\omega) \quad (2.31)$$

und

$$Z(\omega) = \omega L_V(\omega) + i\omega(L_I + L_W + L'_p(\omega)) \quad (2.32)$$

gegeben. Dabei wird die Induktivität der Einkoppelspule mit  $L_I$  und die der Drähte mit  $L_W$  bezeichnet. In Abbildung 2.8 ist das magnetische Flussrauschen  $S_\Phi$  für  $T = 15,4$  mK

dargestellt<sup>9</sup>. Das Rauschen hat bis etwa 100 Hz einen konstanten Wert. Dieser Bereich wird im weiteren Verlauf der Arbeit als Plateau bezeichnet. Zu höheren Frequenzen hin fällt das Rauschen ab, wie es qualitativ einem Tiefpassverhalten entspricht.



**Abb. 2.8:** Gezeigt ist das Ergebnis der Simulationen für das magnetische Flussrauschen im SQUID, wenn sich der Temperatursensor bei 15,4 mK befindet.

Vergleiche mit gemessenen Spektren werden in Abschnitt 2.3.4 diskutiert. Zunächst wird aber kurz auf die Darstellung der Temperaturskala PLTS-2000, die als Referenz für die Messungen diente, eingegangen.

### 2.3.3 Repräsentation der PLTS-2000

Bevor die Eigenschaften des induktiv ausgelesenen Rauschthermometers diskutiert werden können, ist es wichtig, die Temperaturreferenz zu kennen, bezüglich der im folgenden beispielsweise die Temperaturabhängigkeit des Rauschens diskutiert wird. Die momentan gültige Temperaturskala für Temperaturen zwischen 1 K und 0,9 mK ist die so genannte PLTS-2000 (**P**rovisional **L**ow **T**emperature **S**cale 2000), die im Jahr 2000 verabschiedet wurde. Grundlage für diese Temperaturskala ist die Bestimmung des Schmelzdruckes von  $^3\text{He}$ . Diese Eigenschaft wurde als Basis ausgewählt, da sie mit hoher Sensitivität und Zuverlässigkeit über einen weiten Temperaturbereich (mehr als drei Dekaden!) gemessen werden kann. Der Verlauf des Schmelzdruckes von  $^3\text{He}$  in Abhängigkeit von der Temperatur kann mathematisch mit einem Polynom beschrieben werden. Eine Übersicht über die Entwicklung und Diskussionspunkte der PLTS-2000 findet man in [Rusby2002].

Neben der Definition der Temperaturskala an sich, beschäftigen sich Tieftemperaturphysiker weltweit auch mit der Frage, wie diese Skala an den Endbenutzer weitergegeben werden kann. Da die Thermometrie, die direkt mit einem  $^3\text{He}$ -Schmelzdruckkurven-

<sup>9</sup>Die Temperatur von 15,4 mK scheint zunächst willkürlich gewählt. Es handelt sich dabei jedoch um die Temperatur des niedrigsten Fixpunkt des als Referenzthermometer gewählten supraleitenden Fixpunktthermometers. Dieses wird in Abschnitt 2.3.3 näher beschrieben.

Thermometer durchgeführt wird, technisch nicht einfach zu realisieren ist, ist man auf der Suche nach weiteren Thermometrie-konzepten, die in diesem Zusammenhang von Vorteil sein können. Vielversprechende Kandidaten sind dabei Rauschthermometer, Coulomb-Blockade-Thermometer, Pt- und  $^3\text{He}$ -NMR-Thermometer, CMN-Thermometer, Thermometer basierend auf dem Zweiten Schall in  $^4\text{He}$  und supraleitende Fixpunktthermometer [Rusby2003].

Für die Messungen, die im Rahmen dieser Arbeit stattgefunden haben, wurde ein supraleitendes Fixpunktthermometer als Repräsentant der PLTS-2000 eingesetzt. Dabei handelt es sich um eine Neuentwicklung einer niederländischen Kollaboration. Berichte über die Fortschritte in der Entwicklung dieses Thermometers findet man zum Beispiel in [Bosch2003, Bosch2005, Bosch2006, Schöttl2005]. Das Thermometer mit der Kennzeichnung SRD1000 (**S**uperconducting **R**eference **D**evice) wird von der Firma HDL (**H**ightech **D**evelopment **L**eiden)<sup>10</sup>, vertrieben. In den hier diskutierten Messungen wurde der Prototyp SRD1000-006 verwendet. Im nächsten Abschnitt werden die Eigenschaften dieses Thermometers kurz vorgestellt.

Ein supraleitendes Fixpunktthermometer basiert auf der genauen Messung der Sprungtemperatur von Supraleitern. Dabei wird die magnetische Suszeptibilität als Messgröße verwendet. Mit dieser Methode können Probleme, die aufgrund von elektrischem Kontakt und mechanischer Spannungen zwischen den Zuleitungsdrähten und der Probe entstehen können, umgangen werden. Um die Sprungtemperatur magnetisch zu bestimmen, wird die Änderung der Gegeninduktivität zwischen der so genannten Primärspule, die die Proben enthält, und einer Sekundärspule beim supraleitenden Übergang bestimmt [Enss2005]. Dazu wird eine von HDL entwickelte Messbrücke (MIDS-10) verwendet, die eine Einheit zur Vorverstärkung enthält, um den Strom ( $50\ \mu\text{A}$  bei  $976,5\ \text{Hz}$ ) durch die Primärspule zu treiben und die Spannung über der Sekundärspule (das Messsignal) zu verstärken und auszugeben.

Abbildung 2.9 zeigt Fotografien der einzelnen Teile, aus denen der SRD1000-Temperatursensor aufgebaut ist. Der Sensor besteht aus planaren Transformatoren (a1), mit denen die supraleitenden Übergänge detektiert werden. Die supraleitenden Materialien werden direkt auf den Detektorspulen angebracht (a2). Dieser Teil ist auf einem Halter aus sauerstofffreiem Kupfer (b1), der mit Gold beschichtet ist, aufgebracht (b2). Der Aufbau befindet sich in einer Abschirmung aus Cryoperm<sup>11</sup> (c). In Abbildung 2.10 ist eine Schnittzeichnung des vollständigen Temperatursensors gezeigt. Die Gesamtlänge des Sensors beträgt 63 mm. An dem zylinderförmigen Teil, der die supraleitenden Materialien mit Sekundär- und Primärspule enthält, ist ein Fuß montiert, der es erlaubt den Temperatursensor im Kryostaten zu montieren.

Das hier vorgestellte Fixpunktthermometer enthält zehn Fixpunkte im Temperaturbe-

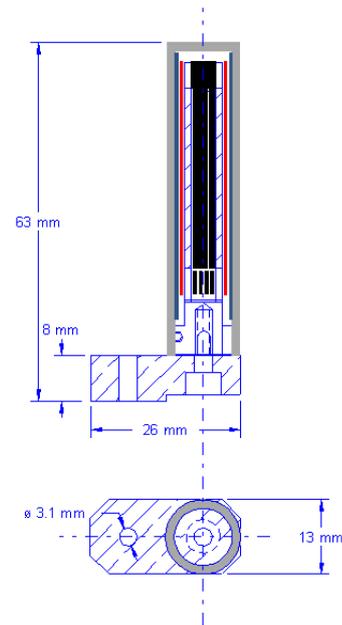
---

<sup>10</sup>HDL Hightech Development Leiden, P.O. Box 691, 2300 Leiden, Niederlande, <http://www.xs4all.nl/~hdleiden>

<sup>11</sup>Cryoperm ist eine weichmagnetische Nickel-Eisen-Legierung, die ihr Permeabilitätsmaximum bei tiefen Temperaturen hat. Daher ist diese Legierung besonders zum Einsatz als Abschirmung bei tiefen Temperaturen geeignet.



**Abb. 2.9:** Fotografien der einzelnen Teile, aus denen das Fixpunktthermometer SRD1000 besteht. (a1) Planare Induktivität, (a2) Supraleitende Metalle auf den Detektorspulen, (b1) Träger aus mit Gold beschichtetem Kupfer, (b2) Träger mit den montierten Detektorspulen, (c) Abschirmung aus Cryoperm. Mit freundlicher Genehmigung von W. Bosch, HDL.



**Abb. 2.10:** Schnittzeichnung mit den Dimensionen des Fixpunktthermometers SRD1000. Der vollständige Temperatursensor ist 63 mm hoch und besitzt einen Fuß, der zur Montage im Kryostaten dient. Mit freundlicher Genehmigung von W. Bosch, HDL.

reich zwischen 15,4 mK und 1 K. In Tabelle 2.1 sind die Materialien und die zugehörigen Sprungtemperaturen für das SRD1000-006 aufgelistet. Zusätzlich ist die Breite  $W_C$  der jeweiligen Sprünge angegeben und der Unterschied in der gemessenen Spannung  $\Delta V$  vor und nach dem Sprung. In der letzten Spalte sind die Rohmaterialien der einzelnen Fixpunkte angegeben.

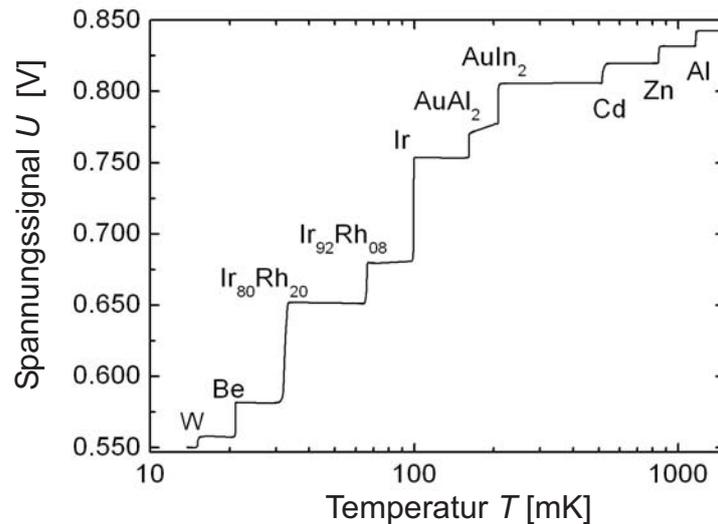
In Abbildung 2.11 ist der typische Verlauf der Spannung am Ausgang der Messbrücke gezeigt, wie er sich mit der Temperatur ändert. Die supraleitenden Übergänge der einzelnen Materialien mit ihren unterschiedlichen Höhen sind deutlich zu erkennen. Aufgrund der logarithmischen Skala sind die Breiten der Übergänge kaum zu erkennen.

In den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen war das Fixpunktthermometer ebenso wie alle anderen Thermometer, die im Folgenden erwähnt werden, an der Experimentierplattform eines Verdünnungskryostaten montiert.

<sup>12</sup>Die Schreibweise 5N5 bezeichnet ein Material, das eine Reinheit von 99,9995 % besitzt.

| Material                          | $T_C$ [mK] | $W_C$ [mK] | $\Delta V$ [mV] | Rohmaterial                           |
|-----------------------------------|------------|------------|-----------------|---------------------------------------|
| Al                                | 1175,8     | 2,7        | 31,0            | 5N5 <sup>12</sup> Folie               |
| Zn                                | 850,8      | 7,7        | 15,1            | Schmelze: 6N Granulat                 |
| Cd                                | 530,7      | 14,0       | 12,4            | Schmelze: 6N Granulat                 |
| AuIn <sub>2</sub>                 | 208,4      | 3,0        | 35,0            | Schmelze: 5N4 Au Pulver, 6N In Pulver |
| AuAl <sub>2</sub>                 | 145,3      | 0,4        | 28,2            | Schmelze: 5N4 Au Pulver, 5N Al Pulver |
| Ir                                | 98,9       | 0,5        | 44,7            | Schmelze: 4N5 Ir Pulver               |
| Ir <sub>92</sub> Rh <sub>08</sub> | 65,56      | 0,5        | 29,5            | Schmelze: 4N5 Ir, 4N8 Rh Pulver       |
| Ir <sub>80</sub> Rh <sub>20</sub> | 31,6       | 0,7        | 66,9            | Schmelze: 4N5 Ir, 4N8 Rh Pulver       |
| Be                                | 21,0       | 0,4        | 30,1            | 2N8 Folie                             |
| W                                 | 15,4       | 0,1        | 8,4             | 4N Einkristall                        |

**Tab. 2.1:** Überblick über die Eigenschaften der Fixpunkte im SDR006. Angegeben sind die Sprungtemperatur  $T_C$  in mK, die Breite des Fixpunktes  $W_C$  in mK und die Spannungsdifferenz  $\Delta V$  vor und nach dem Sprung in mV. In der letzten Spalte sind die Rohmaterialien, die zur Erzeugung der jeweiligen Fixpunkte verwendet wurden, aufgelistet.



**Abb. 2.11:** Die Spannung am Ausgang ist über der Temperatur dargestellt. Man erkennt deutlich die steilen Spannungsabfälle, wenn ein Material im Fixpunktthermometer den supraleitenden Übergang durchläuft. Mit freundlicher Genehmigung von W. Bosch, HDL.

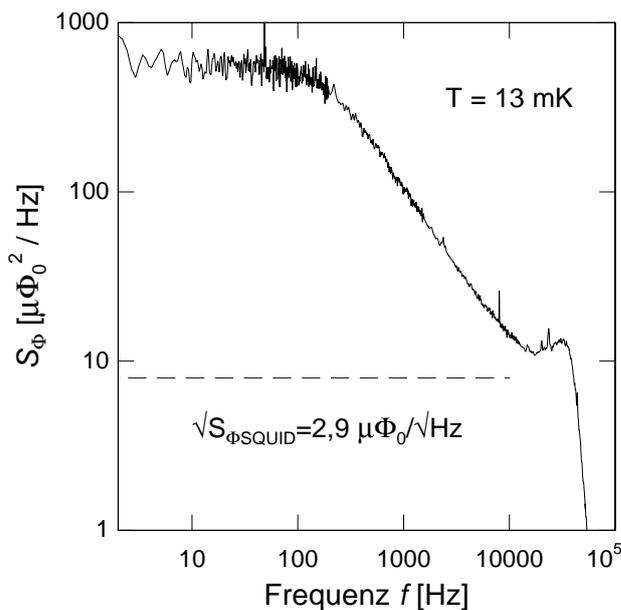
### 2.3.4 Charakterisierung des Rauschthermometers

In diesem und den folgenden Abschnitten werden die Eigenschaften des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten induktiv ausgelesenen Rauschthermometers vorgestellt und diskutiert. Zunächst beschränkt sich die Diskussion auf das Verhalten eines Rauschthermometers mit einem Goldzylinder als Rauschquelle. Anhand dieses Thermometers werden sowohl die Analysemethoden als auch die grundsätzliche Charakterisierung behandelt werden. Im

Anschluss daran sollen die hierbei erzielten Ergebnisse mit den Ergebnissen eines analog aufgebauten Rauschthermometers mit einem Kupferzylinder als Rauschquelle verglichen werden.

Beginnen soll dieser Abschnitt mit der Diskussion eines Rauschspektrums, das typisch für die gemessenen Spektren im Bereich tiefer Temperaturen ist. In Abbildung 2.12 ist ein solches Spektrum abgebildet, das bei  $T = 13 \text{ mK}$  über den maximal möglichen Frequenzbereich des Spektrum–Analysators bis  $100 \text{ kHz}$  aufgenommen wurde. Um eine bessere Auflösung zu erzielen, wurde das Spektrum aus fünf einzelnen Messungen in verschiedenen Frequenzbereichen zusammengesetzt. Anhand dieses exemplarischen Spektrums sollen im Hinblick auf die weitere Diskussion die charakteristischen Eigenschaften solcher Spektren herausgearbeitet werden. Das gemessene Rauschspektrum setzt sich immer aus einem Beitrag des für die Messung verwendeten SQUIDs und dem eigentlich interessierenden Beitrag der Rauschquelle zusammen:  $S_{\Phi_{\text{gesamt}}} = S_{\Phi} + S_{\Phi, \text{SQUID}}$ . Der weiße Rauschbeitrag des SQUIDs liegt bei  $\sqrt{S_{\Phi, \text{SQUID}}} = 2,9 \mu\Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ . Mit  $S_{\Phi}$  wird in Anlehnung an die theoretische Behandlung des Thermometers nur der Beitrag der Rauschquelle bezeichnet.

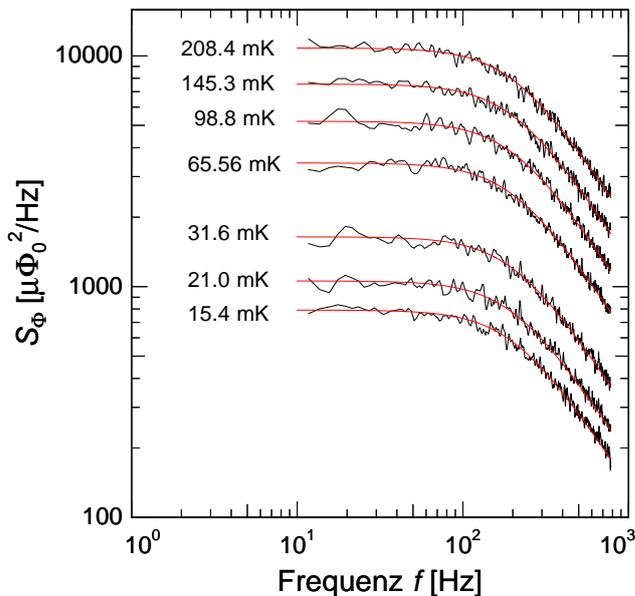
Der Wert des Rauschens im Plateau bei niedrigen Frequenzen bleibt bis etwa  $100 \text{ Hz}$  konstant und knickt im weiteren Verlauf ab. Bei  $10 \text{ kHz}$  ist das Niveau des Rauschbeitrages der Rauschquelle auf das des SQUID–Rauschens abgesunken und der dominante Beitrag zum Rauschen bei noch höheren Frequenzen ist der des SQUIDs. Die Überhöhung, welche bei etwa  $20 \text{ kHz}$  ihr Maximum hat, entsteht durch die hier verwendete Kombination von Rückkoppelwiderstand und -kapazität (vergleiche hierzu Anhang A.2) bei der Einstellung des Arbeitsbereichs des SQUIDs. Das scharfe Abknicken des Rauschens im weiteren Verlauf ist durch die maximale Bandbreite der SQUID–Elektronik von  $37 \text{ kHz}$  bestimmt.



**Abb. 2.12:** Rauschspektrum bei  $T = 13 \text{ mK}$  mit maximal möglicher Bandbreite bis  $100 \text{ kHz}$  aufgenommen. Die Auftragung erfolgt doppelt–logarithmisch.

Da für alle folgenden Betrachtungen nur der Beitrag der Rauschquelle entscheidend ist, müssen alle Spektren um den Untergrund, der durch das SQUID verursacht wird, korrigiert werden. Dazu wird das Rauschen des SQUIDs vom Gesamtrauschen abgezogen. Alle im Folgenden gezeigten Spektren sind bereits in dieser Weise korrigiert. Diese Betrachtung zeigt die Grenzen dieses Thermometrieprinzips: Wenn der Rauschbeitrag der Rauschquelle nicht mehr unterscheidbar von dem Untergrundrauschen des SQUIDs ist, kann die Temperatur nicht mehr bestimmt werden. Dies legt die Definition der so genannten Rauschtemperatur des Thermometers nahe. Diese ist definiert als die Temperatur  $T_N$ , bei der das thermische magnetische Flussrauschen gleich dem SQUID-Rauschen ist. In dem hier diskutierten Aufbau beträgt die Rauschtemperatur  $T_N \approx 200 \mu\text{K}$ . Diese kann weiter reduziert werden, in dem man dc-SQUIDs einsetzt, die ein niedrigeres Rauschen aufweisen. Allerdings lässt sich damit das Rauschen nicht unbegrenzt erniedrigen, da SQUIDs mit einem niedrigeren Rauschen meist kleinere Eingangsinduktivitäten haben und somit nicht mehr mit dem hier diskutierten Aufbau kompatibel sind. Verbesserungen können auch erreicht werden mit Aufbauten, die eine bessere Kopplung zwischen Einkoppelspule und SQUID besitzen. Ein anderer Ansatz, die Messungen zu tieferen Temperaturen auszudehnen, ist, Materialien mit einer höheren Leitfähigkeit als Rauschquelle zu verwenden. Dies führt dazu, dass das Plateau höher liegt, und damit die Temperatur bei der der Rauschbeitrag der Rauschquelle und der des SQUIDs gleich sind, zu tieferen Temperaturen hin verschoben wird.

### 2.3.4.1 Rauschspektren bei unterschiedlichen Temperaturen



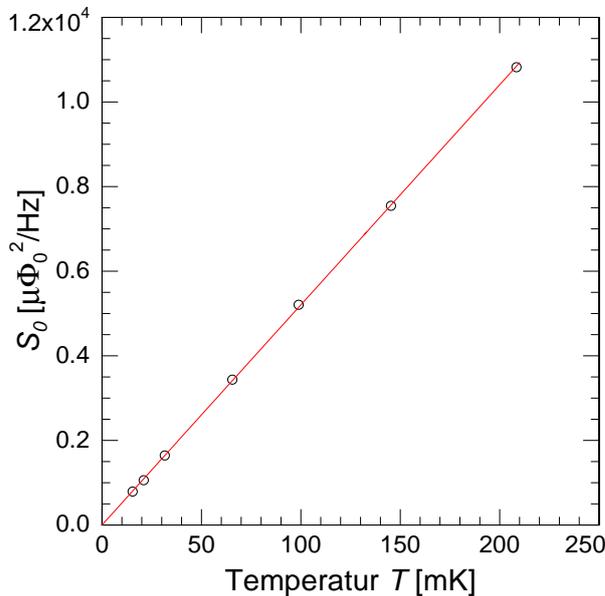
**Abb. 2.13:** Rauschspektren, die bei verschiedenen Temperaturen aufgenommen wurden. Die angegebene Temperaturen sind die nominalen Sprungtemperaturen des Fixpunktthermometers SRD1000-006.

In diesem Abschnitt werden Rauschspektren bei verschiedenen Temperaturen diskutiert. In Abbildung 2.13 ist das Rauschen in  $\mu\Phi_0^2/\text{Hz}$  gegenüber der Frequenz aufgetragen.

Die Rauschspektren wurden im Frequenzbereich zwischen 10 und 780 Hz aufgenommen, da dieser Ausschnitt die für die Analyse erforderlichen Informationen bereits enthält. Die angegebenen Temperaturen entsprechen den Sprungtemperaturen des in Abschnitt 2.3.3 diskutierten Fixpunktthermometers. Für die Messungen wurde die Temperatur der Experimentierplattform und damit die Temperatur des Rauschthermometers mit einem Kohlethermometer in dem Temperaturbereich des supraleitenden Übergangs des jeweiligen Fixpunktes stabilisiert. In Abbildung 2.13 sind die auf diese Weise erhaltenen Rauschspektren bei sieben verschiedenen Temperaturen gezeigt. Die durchgezogene rote Linie zeigt einen Verlauf der Gestalt (vergleiche Gleichung 2.28):

$$S_{\Phi}(f, T) = \frac{S_0(T)}{\left(1 + \left(\frac{f}{f_0}\right)^{\alpha}\right)^{\beta}} \quad (2.33)$$

Die Parameter  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $f_0$  ergeben sich aus der Anpassung von Gleichung 2.33 an die gemessenen Daten zu  $\alpha = 2,32$ ,  $\beta = 0,47$  und  $f_0 = 203$  Hz und sind für alle Temperaturen gleich. Aus der Tatsache, dass sich die Form des Frequenzverlaufes mit der Temperatur nicht ändert, lässt sich ableiten, dass sich der Widerstand des Goldes im hier betrachteten Temperaturbereich nicht merkbar ändert und somit aufgrunddessen keine systematischen Fehler entstehen. Der einzige temperaturabhängige Parameter ist der Plateauwert  $S_0(T) = \frac{4k_{\text{B}}T}{R}$ . Dieser muss linear von der Temperatur abhängen.

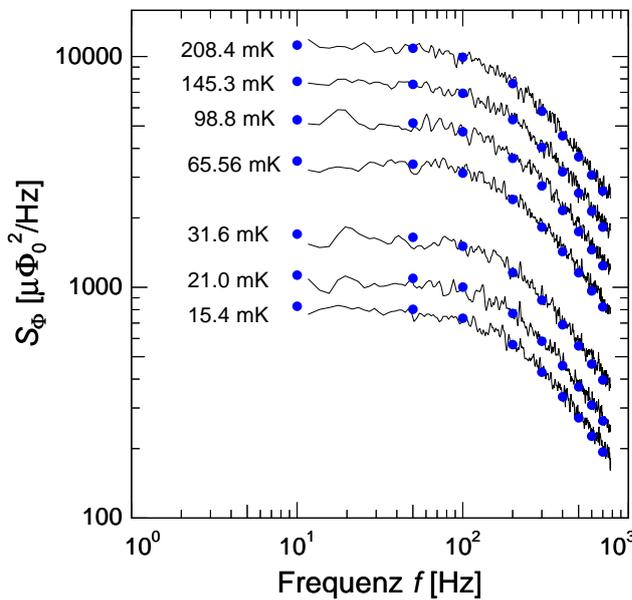


**Abb. 2.14:** Auftragung des Plateauwertes  $S_0(T)$  gegenüber der Temperatur. Die rote Linie zeigt eine lineare Regression an.

Trägt man nun die Plateauwerte der Rauschspektren gegenüber der Temperatur auf, so erhält man den in Abbildung 2.14 gezeigten Verlauf. Die eingezeichnete lineare Regression bestätigt den erwarteten linearen Zusammenhang. Dieses Verhalten wird in der weiteren Diskussion eingehender untersucht werden.

### 2.3.4.2 Vergleich mit der Simulation

Bevor nun die weitere Auswertung diskutiert wird, werden die Ergebnisse der Simulationen aus Abschnitt 2.3.2 mit den Messungen aus dem letzten Abschnitt verglichen. In Abbildung 2.15 sind die Messergebnisse aus dem vorherigen Abschnitt nochmals dargestellt. Die eingezeichneten blauen Punkte entsprechen den zu den jeweiligen Temperaturen gehörigen Simulationsergebnissen. Ein Vergleich von Messung und Simulation zeigt eine gute Übereinstimmung. Das gemessene Flussrauschen stimmt innerhalb von 5 % mit der theoretischen Beschreibung überein und ist dementsprechend sehr gut verstanden. Die Restunsicherheit kommt daher, dass die Induktivitäten der Drähte zwischen Einkoppel- und Detektionsspule nicht genau genug bekannt sind.



**Abb. 2.15:** Vergleich der Rauschspektren bei verschiedenen Temperaturen mit den Ergebnissen der Simulationen (blaue Punkte). Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung.

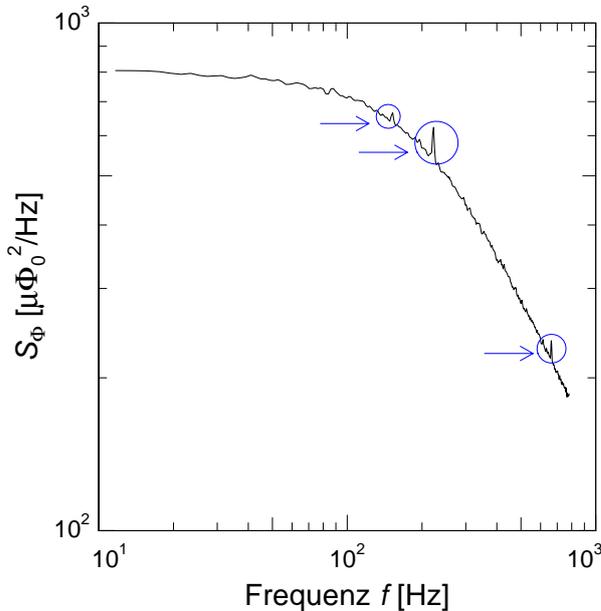
Will man die Genauigkeit des Rauschthermometers weiter verbessern, ist eine 1–Punkt–Kalibration des Rauschthermometers notwendig. Das heißt, das Thermometer kann bei einer beliebigen Temperatur durch Vergleich mit einem geeichten Thermometer kalibriert werden. Dabei wird bei einer bekannten Referenztemperatur  $T_{\text{ref}}$  der zugehörige Plateauwert  $S_0(T_{\text{ref}})$  ermittelt. Ebenso kann aber auch das gesamte Spektrum  $S_\Phi(T_{\text{ref}})$  verwendet werden. Der Zusammenhang zwischen beliebigen Temperaturen  $T$  und dem jeweiligen Plateauwert  $S_0(T)$  oder Spektrum  $S_\Phi(T_{\text{ref}})$  kann in folgender Weise ermittelt werden:

$$T = T_{\text{ref}} \frac{S_0(T)}{S_0(T_{\text{ref}})} = T_{\text{ref}} \frac{S_\Phi(T)}{S_\Phi(T_{\text{ref}})} \quad . \quad (2.34)$$

Diese Art der 1–Punkt–Kalibration ist nur möglich, da sich die Form des Frequenzverlaufes mit der Temperatur nicht ändert. Wäre dies der Fall, wäre das ein Hinweis darauf, dass der Widerstand  $R$  der Rauschquelle eine Tempertaurabhängigkeit besitzt:  $R(T) \neq \text{const.}$ . Damit müsste eine Kalibration über den gesamten Tempertaurbereich erfolgen.

### 2.3.4.3 Externe Störungen

Um im Detail herauszuarbeiten, mit welcher Präzision der lineare Zusammenhang zwischen dem gemessenen Rauschen der Rauschquelle und der Temperatur erfüllt ist, müssen die Daten genauer analysiert werden. Dazu werden in einem ersten Schritt alle Frequenzbereiche ermittelt, die einen systematisch zu großen Rauschbeitrag aufweisen. Dabei handelt es sich um Beiträge durch externe Störungen wie zum Beispiel Vielfache der Netzfrequenz von 50 Hz, die zu diskreten Linien im Spektrum führen. In Abbildung 2.16 ist ein sehr stark gemittelt Spektrum bei einer Temperatur von 15,4 mK gezeigt. Man erkennt deutlich die Frequenzbereiche (blau markiert), in denen externe Störungen eine Rolle spielen. Im weiteren Verlauf werden diese Frequenzbereiche in der Auswertung nicht berücksichtigt. Zudem werden die Spektren erst ab 50 Hz ausgewertet, da unterhalb Störungen durch Vibrationen, das  $1/f$ -Rauschen des SQUIDs oder das Rauschen anderer elektronischer Komponenten des Aufbaus, eine Rolle spielen können.



**Abb. 2.16:** Das stark gemittelte Spektrum bei einer Temperatur von 15,4 mK zeigt deutlich die Frequenzbereiche, in denen externe Störungen zum Rauschen beitragen.

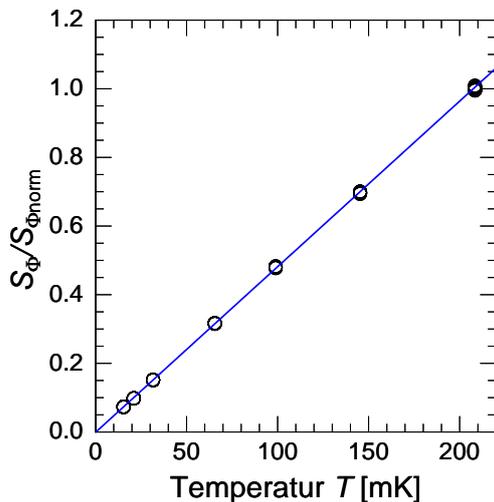
### 2.3.4.4 Vergleich zwischen Rauschthermometer und Fixpunktthermometer

In einem weiteren Schritt werden bei einer im Prinzip beliebigen Temperatur (hier 208,4 mK) mehrere Spektren  $S_{\Phi}(T)$  aufgenommen und gemittelt. Auch hier wurden von allen Spektren zunächst das weiße Flussrauschen des SQUIDs abgezogen. Auf diese Weise entsteht ein so genanntes Normspektrum  $S_{\Phi\text{norm}}$ . Alle Spektren bei anderen Temperaturen werden dann durch das Normspektrum geteilt. Der Quotient  $S_{\Phi}(T)/S_{\Phi\text{norm}}(T = 208 \text{ mK})$  sollte linear von der Temperatur abhängen. In Abbildung 2.17 ist der eben diskutierte Quotient gegenüber der Temperatur aufgetragen. Dabei wurden bei allen Temperaturen 15 Einzelspektren gemessen. Diese bestehen jeweils aus einer Mittelung über  $N$  unabhängigen

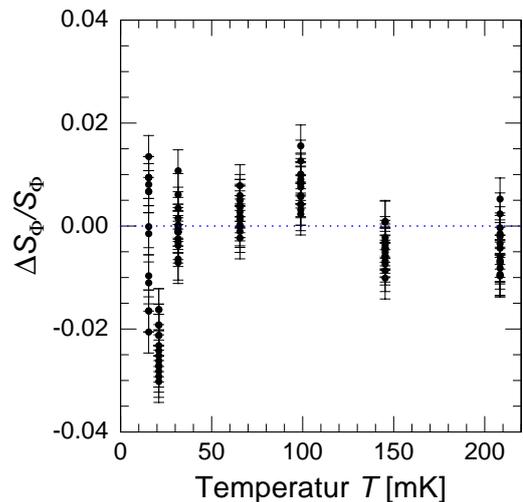
Messungen. Die aus diesen Spektren ermittelten Datenpunkte liegen in der Auftragung in Abbildung 2.17 so gut übereinander, dass die Einzelmessungen kaum unterscheidbar sind. Die eingezeichnete blaue Linie stellt eine gewichtete lineare Regression dar, die alle Datenpunkte außer denjenigen bei 21 mK berücksichtigt. In der zugehörigen Abbildung 2.18 sind die Abweichungen der einzelnen Datenpunkte von der Regression eingezeichnet. Die Fehlerbalken entsprechen den erwarteten statistischen Unsicherheiten der Einzelmessungen. Diese sind für jeden Datenpunkt gleich, da alle Spektren unter gleichen Bedingungen gemessen wurden. In diesem Fall berechnet sich die relative Unsicherheit der Einzelmessung folgendermaßen:

$$\frac{\Delta S_\Phi}{S_\Phi} = \frac{1}{\sqrt{NM}} \quad . \quad (2.35)$$

Dabei bezeichnet  $N$  wie bereits erwähnt die Anzahl der unabhängigen Messungen über die für eine Einzelmessung gemittelt wurde. In dieser Messreihe war  $N = 185$ . Die Anzahl der Frequenzkanäle, die ein Spektrum enthält, ist  $M = 325$ . Daraus ergibt sich für den Fehler der Einzelmessung  $\frac{\Delta S_\Phi}{S_\Phi} = 0,4\%$ . Dieser Auftragung kann man entnehmen, dass sich die Abweichung der einzelnen Messpunkte vom linearen Verhalten im Rahmen von etwa 1% bewegt. Einzig die Spektren, die bei 21 mK aufgenommen wurden, aber nicht in der Regression berücksichtigt wurden, zeigen eine größere Abweichung. Diese kann darauf zurückgeführt werden, dass möglicherweise der Fixpunkt bei 21 mK selbst Abweichungen zeigt, da die reproduzierbare Herstellung von Fixpunkten bei dieser Temperatur kein triviales Problem darstellt. Die Datenpunkte bei  $T = 15,4$  mK streuen stärker als die bei anderen Temperaturen. Dies liegt daran, dass dieser Fixpunkt sehr steil und der Sprung



**Abb. 2.17:** Auswertung des Goldthermometers gegenüber dem Fixpunktthermometer.



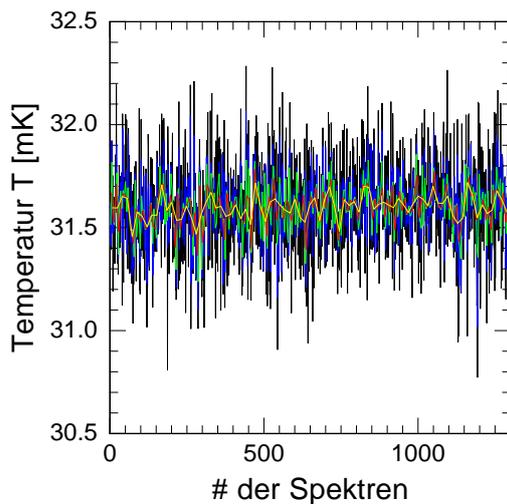
**Abb. 2.18:** Abweichungen der einzelnen Spektren von der gewichteten linearen Regression. Der Fehlerbalken bezeichnet den Fehler der Einzelmessung.

sehr klein ist, so dass es nicht durchgehend in der Messung möglich war, die Temperaturregelung so zu steuern, dass die Temperatur permanent mittig im Fixpunkt lag. Die bereits diskutierte Schwankungsbreite der Datenpunkte von maximal 1 % gegenüber dem theoretischem Verhalten zeigt, dass es sich bei dem im Rahmen dieser Arbeit entwickeltem Thermometer um ein sehr gut verstandenes und vielversprechendes Thermometer handelt.

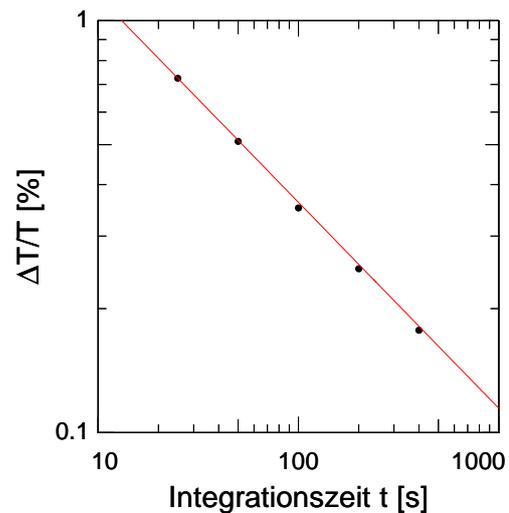
### 2.3.4.5 Messzeit und Genauigkeit

Eine wichtige Kenngröße für ein Rauschthermometer ist die Messzeit, die benötigt wird, um eine Temperatur mit einer bestimmten vorgegebenen Ungenauigkeit von zum Beispiel 1 % zu bestimmen. Dies ist essentiell, da die Messzeit die Flexibilität und Verwendbarkeit des Thermometers bei der Arbeit im Labor maßgeblich beeinflusst. Zur genaueren Charakterisierung wurde folgende Messreihe durchgeführt: Bei einer Temperatur  $T = 31,6$  mK wurden 1300 Spektren aufgenommen. Dabei betrug die Messdauer für ein Spektrum je 25 s. In Abbildung 2.19 ist die Temperatur gezeigt, die von dem Rauschthermometer ermittelt wurde. In schwarz sind die Ergebnisse der ursprünglichen Messung abgebildet. In blau, grün, rot und gelb sind Mittelungen über je 2, 4, 8 und 16 Messungen dargestellt. In der Abbildung 2.20 ist die Standardabweichung der jeweiligen Mittelungen über der zugehörigen Messzeit aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Genauigkeit wie erwartet für statistisch unabhängige Messungen mit  $\sqrt{t}$  der Messzeit zunimmt, was die Übereinstimmung der Daten mit dem Verlauf der roten Linie bestätigt. Für den Quotienten  $\Delta T/T$  gilt:

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{1}{\sqrt{\Delta f t}} \quad (2.36)$$



**Abb. 2.19:** Statistische Messung bei  $T = 31,6$  mK.



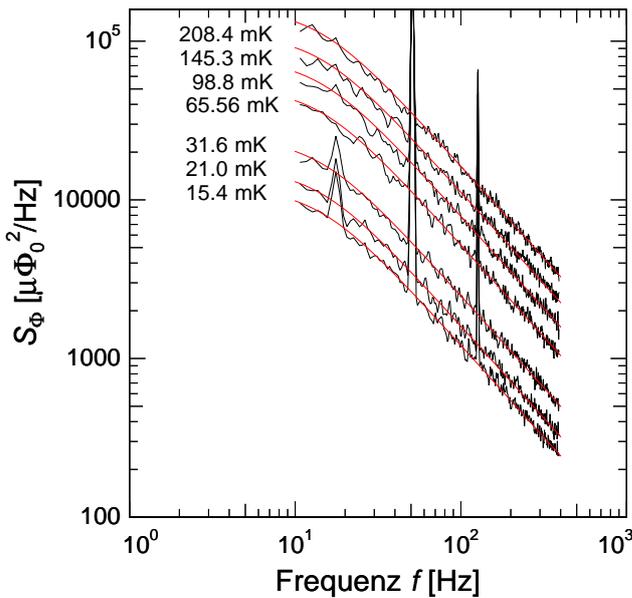
**Abb. 2.20:** Standardabweichung.

Dabei ist  $\Delta f$  die verwendete Bandbreite und  $t$  die Messzeit. Desweiteren kann man der Grafik entnehmen, dass die Messzeit, die man benötigt, um eine Genauigkeit von 1% zu erreichen, etwa 14 s beträgt. Damit sind die Messzeiten so kurz, dass dieses Thermometer für den Einsatz im Labor gut geeignet ist.

### 2.3.4.6 Vergleich zweier Rauschquellen Au und Cu

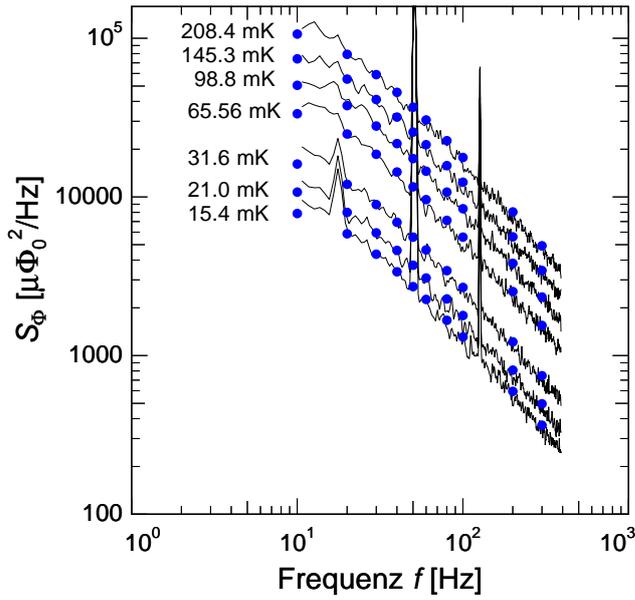
Für eine weitere Charakterisierung des Rauschthermometers und zum Ausschluss möglicher systematischer Fehler, die das Fixpunktthermometer aufweisen könnte, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein weiteres Rauschthermometer aufgebaut. Ein Vergleich der beiden Rauschthermometer ist dann unabhängig von der absoluten Temperatur; die Thermometer sollten sich zueinander proportional verhalten.

Das zweite Rauschthermometer besitzt einen Kupferzylinder als Rauschquelle. Dieses Design hat den Vorteil, dass Halter und Rauschquelle aus einem Stück gefertigt werden können. Die Spektren des Kupferthermometers zeigen qualitativ das gleiche Verhalten wie die des Thermometers, dessen Rauschquelle aus Gold besteht.



**Abb. 2.21:** Rauschspektren, die bei verschiedenen Temperaturen aufgenommen wurden. Die angegebene Temperaturen sind die nominalen Sprungtemperaturen des Fixpunktthermometers SRD1000.

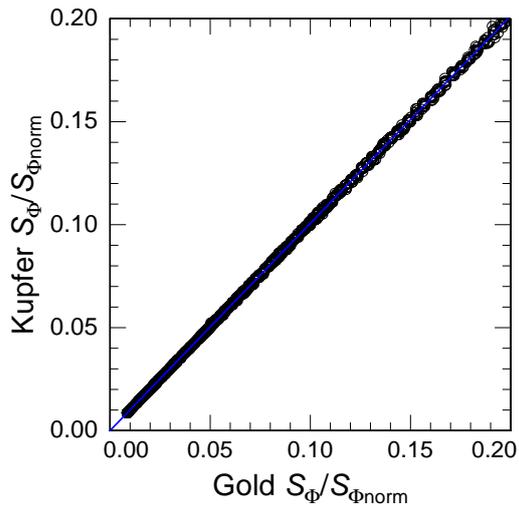
In Abbildung 2.21 sind Rauschspektren des Thermometers mit der Kupferquelle gezeigt. Die roten Linien sind Anpassungen nach Gleichung 2.33. Die Parameter ergeben sich zu  $f_0 = 14$  Hz,  $\alpha = 2,32$  und  $\beta = 0,5$ . Wie erwartet sind die geometrieabhängigen Parameter  $\alpha$  und  $\beta$  sehr ähnlich zu den Parametern des Rauschthermometers mit der Rauschquelle aus Gold, da in beiden Fällen nahezu die gleiche Geometrie verwendet wurde. Der Plateauwert liegt höher als beim Goldthermometer, was an der deutlich größeren Leitfähigkeit der Kupferrauschquelle ( $RRR \cong 1000$ ) liegt. Aus dem selben Grund ist die Abschneidfrequenz  $f_0$  deutlich kleiner. Der Plateauwert ist in dieser Darstellung nicht gut erkennbar, da er außerhalb des gemessenen Frequenzbereiches liegt. Die in dieser Mess-



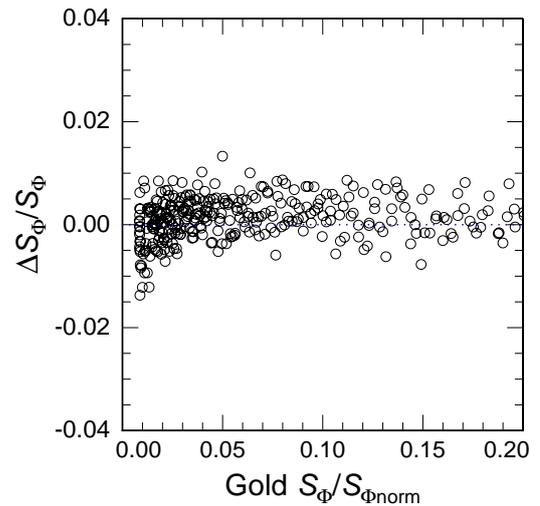
**Abb. 2.22:** Vergleich der Rauschspektren des Thermometers mit der Kupferauschquelle bei verschiedenen Temperaturen mit den Ergebnissen der Simulationen (blaue Punkte).

reihe deutlich sichtbaren Linien in den Frequenzbereichen um 20 Hz, 50 Hz und 120 Hz im Rauschspektrum wurden bei der weiteren Datenverarbeitung aus den Spektren entfernt.

Ein Vergleich zwischen Simulationen für die Frequenzabhängigkeit der Spektren und den eben gezeigten Messdaten ist in Abbildung 2.22 aufgetragen. Die Simulationen wurden mit der gleichen Vorgehensweise, die in Abschnitt 2.3.2.ausführlich vorgestellt wurde, durchgeführt. Auch die Messdaten des Rauschthermometers mit der Rauschquelle aus Kupfer lassen sich sehr gut mit den Simulationsrechnungen beschreiben.



**Abb. 2.23:** Vergleich der beiden Rauschthermometer in einem eingeschränkten Temperaturbereich.

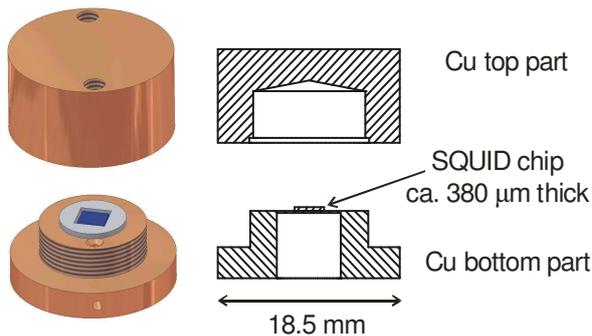


**Abb. 2.24:** Abweichung der Thermometer in diesem Temperaturbereich.

In Abbildung 2.23 ist ein Ausschnitt einer Messreihe dargestellt, bei der die Temperatur von 10 mK auf etwa 500 mK erhöht wurde. Die Spektren beider Rauschthermometer wurden jeweils auf das Normspektrum bei  $T = 500$  mK normiert. Gezeigt ist nur der interessierende Ausschnitt für tiefe Temperaturen bis zu  $T = 200$  mK. Es ergibt sich ein nahezu perfekter linearer Zusammenhang. Die Abweichungen von der linearen Regression sind in Abbildung 2.24 dargestellt. Wie die Grafik zeigt, weichen beide Thermometer um etwa ein Prozent voneinander ab. Dies ist eine leicht bessere Übereinstimmung der beiden Rauschthermometer als mit dem Fixpunktthermometer.

### 2.3.5 Weitere Entwicklungen

Im vorangegangenen Abschnitt konnte gezeigt werden, dass es im Rahmen dieser Arbeit gelungen ist, ein kompaktes Rauschthermometer aufzubauen, mit dem die Temperatur schnell und zuverlässig gemessen werden kann. Mit Hilfe von Simulationen konnten auf einem Niveau von 5 % die Amplitude und der Frequenzverlauf des magnetischen Johnson-Rauschens berechnet werden. Einzige Unsicherheit dabei ist die eingeschränkt bekannte Induktivität der Drähte des Flusstransformators.



**Abb. 2.25:** In Zusammenarbeit mit der PTB entwickeltes Rauschthermometer [Engert2007].

Unter dem Namen Magnetfeld-Fluktuations-Thermometer wird an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) in Berlin ein Design entwickelt, das auf den Einsatz eines Flusstransformators verzichtet. Ein speziell für diesen Zweck entwickeltes dc-SQUID wird an der Rauschquelle selbst befestigt. Das magnetische Johnson-Rauschen koppelt so direkt in die SQUID-Schleife ein. Abschätzungen zeigten, dass ein solcher Aufbau möglich ist, ohne dass der Betrieb eines SQUIDs auf der Rauschquelle diese beeinträchtigt. Besonders berücksichtigt werden musste, dass ein SQUID im Betrieb immer von einem Biasstrom getrieben wird, der zu parasitären Wärmeeinträgen führen kann. Es konnte aber gezeigt werden, dass durch geschicktes Design des Thermometers diese Beiträge unterdrückt werden können. In Abbildung 2.25 ist das neue Design nach [Engert2007] schematisch dargestellt. Der Temperatursensor besteht aus zwei zylinderförmigen Teilen aus hochreinem Kupfer. Im unteren Teil sind das SQUID auf einer Platine und die Zuleitungen untergebracht. Der obere Teil dient als Verschlusskappe. Mit diesem Aufbau wird erreicht, dass das SQUID von allen Raumrichtungen von der Rauschquelle umgeben ist. Erste Tests zeigen, dass auch ein solcher Aufbau die Erwartungen voll erfüllt. Es bestehen

---

Pläne, einen Aufbau dieser Art so weit zu entwickeln, dass er kommerziell erhältlich sein kann.

Neben einer möglichen Kommerzialisierung besitzen Rauschthermometer der Art wie sie hier diskutiert wurden, auch viel Potenzial für metrologische Anwendungen. Rauschthermometer standen lange Zeit nicht im Fokus der Metrologen, da sie im Vergleich zu anderen Thermometrie Konzepten zu viele Nachteile (zum Beispiel zu lange Messzeiten) besaßen. Mit den hier vorgestellten Ergebnissen wurde erreicht, dass die Rauschthermometer wieder in das Blickfeld der Metrologen geraten sind. Durch weitere Verbesserungen des Aufbaus wie den eben erwähnten Verzicht auf den Flusstransformator kann man einen weiteren Schritt in Richtung Primärthermometrie gehen. Auch in diesem Bereich gibt es für die Zukunft Pläne bei der PTB.



### 3. Wärmeleitfähigkeitsexperiment

In den folgenden Kapiteln widmet sich die Arbeit einem zweiten Schwerpunkt, den thermischen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen und insbesondere der Wärmeleitfähigkeit. Schon in den siebziger Jahren des letzten Jahrhunderts war bekannt, dass sich Gläser bei tiefen Temperaturen anders verhalten als Kristalle. Dies konnte man auf die strukturelle Unordnung in Gläsern zurückführen. Im so genannten Standardtunnelmodell, eine phänomenologische Beschreibung von Gläsern bei tiefen Temperaturen, konnten die besonderen Eigenschaften auf die Existenz von Doppelmuldenpotenzialen zurückgeführt werden. Da der Potenzialwall dieser Potenziale für Atome oder Atomgruppen bei tiefen Temperaturen nur durch quantenmechanisches Tunneln überwunden werden kann, nennt man diese Systeme auch Tunnelsysteme. Im Rahmen des Standardtunnelmodells sind diese lokalisiert und wechselwirken nicht miteinander. Es gibt jedoch auch Messergebnisse, die nicht mit dem Standardtunnelmodell erklärt werden können. Als Ursache dafür scheint sich heraus zu kristallisieren, dass die Tunnelsysteme miteinander wechselwirken.

Im Rahmen dieser Vorstellung wurden theoretische Modelle entwickelt, die einen Beitrag der wechselwirkenden Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit vorhersagen. Dieser soll im Vergleich zum phononischen Beitrag sehr klein sein. Daher konnte er bisher an Messungen an Vollmaterial noch nicht gefunden werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden nun Glasproben untersucht, die regelmäßig angeordnete Löcher enthalten. Diese Löcher dienen als zusätzliche Streuzentren für Phononen. Auf diese Weise kann der Beitrag der Phononen zur Wärmeleitfähigkeit signifikant reduziert werden, in der Hoffnung, dass sich ein Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit aufgrund der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen zeigt.

Im Folgenden wird zunächst das Thermometrieprinzip vorgestellt, das auf der Messung der Magnetisierungsänderung paramagnetischer Sensoren beruht. Im Rahmen dessen werden die Eigenschaften des hier verwendeten Sensormaterials Au:Er erläutert. Anschließend wird auf das allgemeine Prinzip von Wärmeleitfähigkeitsmessungen eingegangen und der im Rahmen dieser Arbeit verwendete Aufbau diskutiert.

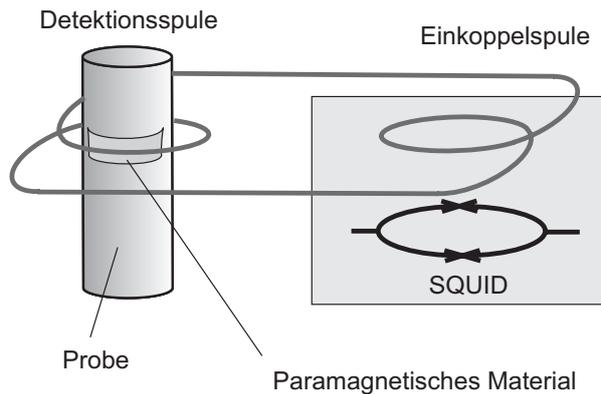
Eine kurze Einführung in die Physik der Gläser bei tiefen Temperaturen, soweit sie für das Verständnis der Daten relevant ist, findet man in Abschnitt 3.3. Abschließend werden die Ergebnisse dieser Messungen dargestellt. Aus den Ergebnissen lassen sich sowohl Rückschlüsse auf die Eigenschaften der Probe als auch auf die Sensitivität des Thermometers ziehen.

#### 3.1 Thermometrie mit paramagnetischen Sensoren

Grundlage des im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Thermometrieprinzips ist, anders als im ersten Abschnitt beschrieben, nicht das thermische Rauschen eines Metalls, sondern

die Magnetisierungsänderung einer paramagnetischen, metallischen Legierung. Dieses Material wird an der Probe befestigt, und die Magnetisierungsänderung kann berührungsfrei mit einem dc-SQUID gemessen werden. Somit profitiert auch dieses Thermometrieprinzip von allen Vorteilen einer berührungsfreien Auslesung. Es handelt sich bei diesem Thermometrieprinzip um ein so genanntes semi-invasives Konzept<sup>1</sup>.

### 3.1.1 Prinzip



**Abb. 3.1:** Schematische Darstellung des Messprinzips eines Thermometers, bei dem Magnetisierungsänderung eines paramagnetischen Materials mit einem dc-SQUID detektiert wird.

In Abbildung 3.1 ist das Prinzip eines solchen Thermometers gezeigt. Der Aufbau besteht aus einem paramagnetischen Temperatursensor, der an der Probe angebracht ist. Der Sensor selbst befindet sich in einem schwachen Magnetfeld. Ändert sich die Temperatur der Probe, so führt dies zu einer Änderung der Temperatur des gut thermisch angekoppelten paramagnetischen Materials. Dadurch ändert sich die Magnetisierung des Temperatursensors. Diese Magnetisierungsänderungen im paramagnetischen Material werden von einer Detektionsspule induktiv und damit berührungsfrei aufgenommen. Die Detektionsspule ist Teil eines supraleitenden Flusstransformators, mit dessen Hilfe die Flussänderungen in der Detektionsspule an die Einkoppelspule eines dc-SQUIDs weitergegeben werden. Demnach ruft die durch die Temperaturänderung hervorgerufenen Magnetisierungsänderung eine Flussänderung im SQUID hervor, die auf diese Weise als Messgröße für die Temperatur verwendet werden kann.

Da die Experimente bei tiefen Temperaturen durchgeführt werden, ist es nicht einfach ein Material zu finden, das bei Temperaturen im Bereich zwischen 5 mK und etwa 200 mK seine Magnetisierung noch ausreichend ändert, um eine Temperaturinformation zu liefern.

<sup>1</sup>Einteilung der verschiedenen Thermometrieconzepte nach [Childs2000] in  
**invasive** Thermometer: Der Temperatursensor hat direkten Kontakt zum Objekt (z. B. ein Thermoelement in einem Gasstrom).  
**semi-invasive** Thermometer: Das Objekt wird in einer bestimmten Art und Weise behandelt, um die Temperatur ohne Berührung zu messen (z.B. Oberflächenbeschichtungen, deren Farben sich mit der Temperatur ändern).  
**nicht-invasive** Thermometer: Die Temperatur des Objektes wird ohne Berührung gemessen (z. B. Infrarot-Thermographie).

Detaillierte Untersuchungen (siehe [Fleischmann2003]) ergaben, dass eine verdünnte Legierung der Seltenen Erde Erbium in Gold (Au:Er) diese Anforderungen sehr gut erfüllt. Das Sensormaterial Au:Er bietet gegenüber anderen in Frage kommenden magnetischen Legierungen einige Vorteile: Es ist leicht zu verarbeiten und besitzt eine sehr gute Wärmeleitfähigkeit. Die Kopplung des Spinsystems an das Elektronensystem ist gut, so dass kurze Ansprechzeiten im Bereich weniger Mikrosekunden möglich sind. Die Korringa-Konstante für Au:Er beträgt  $k = 7 \cdot 10^{-9}$  Ks. Dies führt zu Spin-Elektron-Relaxationszeiten im Bereich von  $10^{-7}$  s bei einer Temperatur von 50 mK [Fleischmann2005]. Weiterhin ist die Wechselwirkung der magnetischen Momente untereinander nur gering ausgeprägt. Daher erfolgt der Übergang in den Spinglaszustand erst bei sehr tiefen Temperaturen.

Im folgenden Abschnitt soll eine kurze Zusammenfassung der Eigenschaften von Au:Er, die für die Durchführung der Experimente wichtig sind, gegeben werden.

### 3.1.2 Eigenschaften des paramagnetischen Sensormaterials

Die Magnetisierung  $M$  und die magnetische Suszeptibilität  $\chi$  eines paramagnetischen Materials bei einer Temperatur  $T$  in einem Magnetfeld der Stärke  $B$  können folgendermaßen ausgedrückt werden:

$$M(T) = \frac{\chi(T)}{\mu_0} B = NgJ\mu_B B_J(h), \quad \text{mit} \quad h = \frac{gJ\mu_B B}{k_B T} . \quad (3.1)$$

Hierbei ist  $\mu_0$  die Permeabilität des Vakuums,  $N$  die Anzahl der magnetischen Momente,  $g$  der Landé-Faktor,  $J$  der Gesamtdrehimpuls eines paramagnetischen Atoms,  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton und  $B_J$  die Brillouin Funktion, die folgendermaßen definiert ist:

$$B_J(h) = \frac{2J+1}{2J} \coth \frac{(2J+1)h}{2J} - \frac{1}{2J} \coth \frac{h}{2J} . \quad (3.2)$$

Bei dieser Herleitung wurden die Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten im Material nicht berücksichtigt. Eine Betrachtung der Wechselwirkungsmechanismen und deren Auswirkung auf die Magnetisierung findet im weiteren Verlauf statt. Für sehr tiefe Temperaturen oder hohe Felder gilt  $h \gg 1$  und somit werden Magnetisierung und Suszeptibilität konstant. Für  $h \ll 1$  dagegen ist die thermische Energie  $k_B T$  größer als die Energieaufspaltung  $gJ\mu_B B$ , die aufgrund des Magnetfeldes auftritt. Gleichung 3.1 geht dann in das bekannte Curie-Gesetz über:

$$M(T) = \frac{\chi(T)}{\mu_0} B = \frac{\lambda_C}{\mu_0} \frac{B}{T} , \quad (3.3)$$

dabei ist  $\lambda_C = NJ(J+1)\mu_0\mu_B^2 g^2 / 3k_B$  die so genannte Curie-Konstante. Aus diesen Überlegungen kann man schließen, dass paramagnetische Materialien für Temperaturen  $T \leq g\mu_B B$  als Thermometer verwendet werden können. Vorteilhaft für eine Temperaturmessung bei tiefen Temperaturen mit einem Magnetisierungsthermometer ist außerdem, dass dieses aufgrund des  $1/T$ -Verhaltens der Suszeptibilität mit sinkender Temperatur

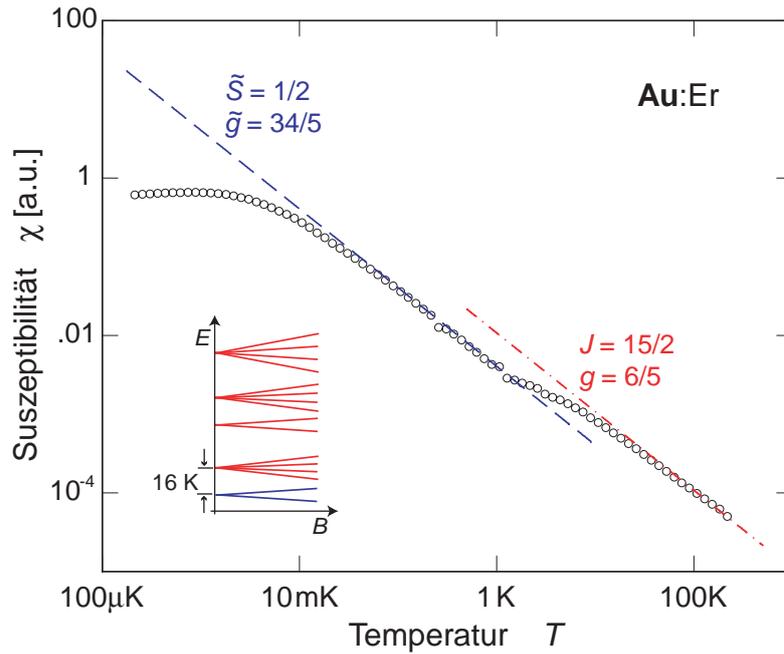
immer empfindlicher wird und somit eine verbesserte absolute Temperaturlösung erreicht werden kann.

Der im Rahmen dieser Arbeit verwendete paramagnetische Temperatursensor besteht aus einer verdünnten Legierung von Erbium in Gold (Au:Er). Die Legierung wird so erzeugt, dass die eingebrachten Erbium-Atome reguläre Gitterplätze der Goldmatrix mit fcc-Symmetrie besetzen. Die Erbium-Atome geben dabei drei Elektronen an das System der freien Elektronen des Wirtsmaterials Gold ab. Die entstehenden  $\text{Er}^{3+}$ -Ionen besitzen eine unvollständig gefüllte 4f-Schale. Diese Tatsache sorgt dafür, dass ein magnetisches Moment vorhanden ist und sich Erbium-Ionen in Gold paramagnetisch verhalten. Gold an sich besitzt eine magnetische Volumenssuszeptibilität  $\chi_{\text{Au}} = -3,45 \cdot 10^{-5}$  und ist damit diamagnetisch; die Legierung Au:Er verhält sich jedoch paramagnetisch.

Die Quantenzahl des Gesamtdrehimpulses  $J$  ergibt sich nach den Hund'schen Regeln zu  $J = 15/2$ ; der effektive Landé-Faktor beträgt dabei  $g = 6/5$ . Die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung kann mit diesen Parametern bei hohen Temperaturen oberhalb von 100 K gut beschrieben werden. Bei tieferen Temperaturen macht sich der Einfluss des Kristallfeldes bemerkbar und muss in die Betrachtung der Niveaus der  $\text{Er}^{3+}$ -Ionen einbezogen werden. Das Kristallfeld hebt die 16-fache Entartung des Grundzustands auf und es entsteht eine Gruppe von Multipletts. Betrachtet man das System bei Temperaturen unterhalb von 1 K (dies ist der Temperaturbereich, der tatsächlich in den Messungen relevant ist), dann ist von diesen Multipletts nur noch das  $\Gamma_7$ -Kramers-Doublett besetzt. Diese Tatsache ermöglicht es, das Verhalten der  $\text{Er}^{3+}$ -Ionen in Gold im Rahmen eines Zweiniveausystems zu betrachten. Dieses hat dann folgende Parameter: einen effektiven Spin  $\tilde{S} = 1/2$  und einen Landé-Faktor  $\tilde{g} = 34/5$ .

In Abbildung 3.2 ist die Temperaturabhängigkeit der magnetischen Suszeptibilität im Bereich zwischen 100  $\mu\text{K}$  und 300 K gezeigt [Fleischmann2003]. Die Messpunkte bei hohen Temperaturen ( $T > 100 \text{ K}$ ) folgen wie erwartet dem Curie-Gesetz für  $J = 15/2$  und  $g = 6/5$ . Unterhalb dieser Temperatur weichen die Daten zunehmend von der Hochtemperaturnäherung ab. Grund dafür ist die Abnahme der Besetzung der höherliegenden Zustände der Kristallfeld-Multipletts. Unterhalb einer Temperatur von etwa 1,5 K sind fast ausschließlich die beiden Energieniveaus des  $\Gamma_7$ -Kramers-Doubletts besetzt. Daher folgen die Datenpunkte in diesem Bereich der Curie-Geraden für  $\tilde{S} = 1/2$  und  $\tilde{g} = 34/5$ . Im Temperaturbereich unterhalb von 50 mK flacht die Suszeptibilität ab und erreicht nicht mehr die vom Curie-Gesetz vorhergesagten Werte. In diesem Verhalten äußert sich der zunehmende Einfluss der Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten. Bei einer Temperatur von etwa 0,9 mK lässt sich ein Maximum erahnen, dessen Ursache in dem Übergang in einen Spinglaszustand liegt. In dem für die Messungen im Rahmen dieser Arbeit relevanten Bereich der Suszeptibilität zwischen 10 mK und 500 mK zeigt diese ein paramagnetisches Verhalten. Aufgrund dessen sind Legierungen aus Au:Er sehr gut als paramagnetische Temperatursensoren in diesem Temperaturbereich geeignet.

Für eine quantitative Beschreibung sowohl der Magnetisierung  $M$  als auch der Wärmekapazität  $C$  der Au:Er-Legierung müssen in die Überlegungen die Wechselwirkungen



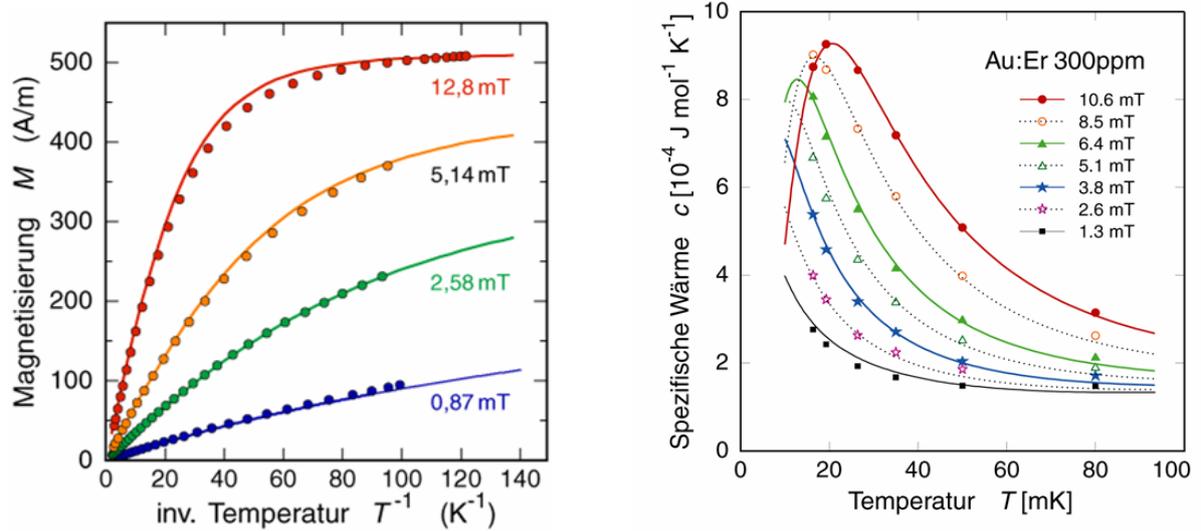
**Abb. 3.2:** Magnetische Suszeptibilität einer Au:Er (600 ppm) Probe als Funktion der Temperatur. Von den Messwerten wurde der diamagnetische Anteil der Goldmatrix subtrahiert. Zusätzlich eingezeichnet sind die Curie-Geraden für  $J = 15/2$ ,  $g = 6/5$  und  $\tilde{S} = 1/2$ ,  $\tilde{g} = 34/5$  [Fleischmann2003].

zwischen den magnetischen Momenten der  $\text{Er}^{3+}$ -Ionen mit einbezogen werden. Zu den Wechselwirkungsmechanismen zwischen magnetischen Momenten in Metallen gehören die Dipol-Dipol-Wechselwirkung und die indirekte Austausch-Wechselwirkung (auch RKKY-Wechselwirkung genannt<sup>2</sup>). Das Trägermaterial bestimmt die Stärke der RKKY-Wechselwirkung. Der Wechselwirkungsparameter  $\alpha$  gibt die Stärke in Einheiten der Stärke der Dipol-Dipol-Wechselwirkung an. Für Au:Er wurde für den Wechselwirkungsparameter der Wert  $\alpha = 5$  berechnet.

In Abbildung 3.3 sind die Magnetisierung als Funktion der inversen Temperatur und die Wärmekapazität als Funktion der Temperatur für verschiedene Magnetfelder dargestellt. Die untersuchte Au:Er-Legierung enthielt dabei einen Anteil von 300 ppm  $\text{Er}^{3+}$ -Ionen. Die durchgezogene Linie entspricht den theoretischen Berechnungen; die Datenpunkte entsprechen gemessenen Magnetisierungen. In die theoretischen Überlegungen wurden die beiden im vorigen Abschnitt vorgestellten Wechselwirkungen einbezogen. Die Berechnungen wurden in Rahmen einer Molekularfeldnäherung durchgeführt. Man erkennt, dass die experimentellen Daten durch die Berechnungen sehr gut beschrieben werden können. In

<sup>2</sup>Mit der nach den Physikern Rudermann, Kittel, Kasuya und Yosida benannten Wechselwirkung wird der indirekte Austausch zwischen lokalisierten magnetischen Momenten von Atomen in einem Metall bezeichnet. Es handelt sich dabei um eine indirekte Wechselwirkung, da die magnetischen Momente über die Spinpolarisation der Leitungselektronen koppeln.

den Experimenten, die in den nächsten Abschnitten diskutiert werden, wurden Au:Er-Legierungen mit 300 ppm und 600 ppm  $\text{Er}^{3+}$ -Ionen verwendet.



**Abb. 3.3:** Magnetisierung und Wärmekapazität eines 300 ppm Au:Er-Sensors in verschiedenen Magnetfeldern. Die durchgezogenen Linien entsprechen theoretischen Berechnungen für  $\alpha = 5$  [Enss2000].

Anzumerken ist, dass bei der Herstellung der Legierung mit dem Isotop  $^{166}\text{Er}$  angereichertes Erbium verwendet wurde, um den prozentualen Anteil von  $^{167}\text{Er}$  möglichst gering zu halten. Dieses in der natürlichen Isotopenzusammensetzung von Erbium vorkommende Isotop besitzt als einziges der Erbiumisotope einen von Null verschiedenen Kernspin ( $15/2$ ), der aufgrund der zusätzlichen Hyperfeinaufspaltung der Energieniveaus von circa  $k_{\text{B}} \cdot 150 \text{ mK}$  zu einem unerwünschten, nicht zu vernachlässigenden Beitrag zur spezifischen Wärme des Material im Temperaturbereich unter 50 mK führt. In gezeigten Daten und Simulationen wurde von einer angereicherten Au:Er-Legierung ausgegangen.

### 3.2 Wärmeleitungsmessung bei tiefen Temperaturen

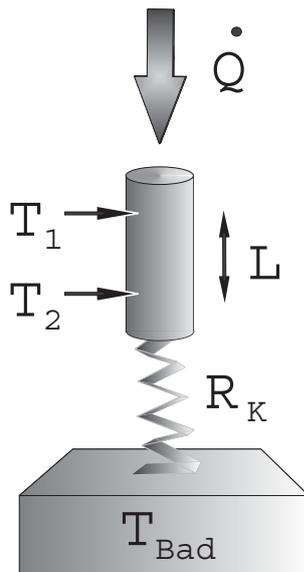
Im nächsten Abschnitt wird das Experiment zur Wärmeleitfähigkeitsmessung vorgestellt, bei dem die im vorangegangenen Kapitel beschriebenen Au:Er-Sensoren als Thermometer zum Einsatz kommen. Die Betrachtungen beschränken sich zunächst auf das Messprinzip, den Aufbau, die Messelektronik und die Durchführung des Experiments. Eine eingehendere Diskussion der Eigenschaften von Gläsern allgemein und der hier untersuchten Probe im besonderen findet im Abschnitt 3.3 statt.

### 3.2.1 Messprinzip

In Abbildung 3.4 ist eine schematische Darstellung des Prinzips einer Wärmeleitfähigkeitsmessung gezeigt. An einem Ende der Probe ist ein Heizer angebracht, während am anderen Ende die Probe an ein Wärmebad mit der konstanten Temperatur  $T_{\text{Bad}}$  angeschlossen ist. Dissipiert der Heizer eine konstante Leistung  $\dot{Q}$  in der Probe, so bildet sich nach einiger Zeit ein stabiler Temperaturgradient in der Probe aus. Dieser Gradient kann mit den Thermometern  $T_1$  und  $T_2$ , die im Abstand  $L$  an der Probe angebracht sind, gemessen werden. Unter der Voraussetzung, dass die Leistung des Heizers hinreichend klein ist und so die Temperaturdifferenz  $T_1 - T_2$  im infinitesimalen Bereich liegt, ergibt sich die Wärmeleitfähigkeit mit den Temperaturen  $T_1$  und  $T_2$ , die mit den beiden Thermometern gemessen werden, zu

$$\kappa = \frac{L}{A} \frac{\dot{Q}}{T_1 - T_2} \quad . \quad (3.4)$$

Dabei bezeichnet  $A$  den Querschnitt der Probe und  $L$  den Abstand zwischen den Thermometern. Der außerdem eingezeichnete thermische Widerstand  $R_K$  zwischen der Probe und dem Bad wird im nächsten Abschnitt diskutiert.



**Abb. 3.4:** Schematische Darstellung des Messprinzips der Wärmeleitfähigkeit [Neumann2003].

Für den Aufbau eines Experiments zur Messung der Wärmeleitfähigkeit von Gläsern müssen einige Anforderungen, die sich aus der Tatsache ergeben, dass die Messungen unterhalb von 100 mK durchgeführt werden, näher betrachtet werden. Ein wichtiger Punkt, der beachtet werden muss, ist, dass der thermische Kontakt zwischen Probe und Probenhalter (und damit der Badtemperatur) sehr gut ist, damit sich die Thermalisierungszeiten nicht unnötig verlängern. Zu beachten ist dabei, dass dieser thermische Kontakt nie ideal sein kann. Bei tiefen Temperaturen existiert in der Realität stattdessen ein Wärmeübergangswiderstand  $R_K$  an der Grenzfläche zwischen den beiden Materialien, der eine endliche Temperaturdifferenz zwischen den beiden Oberflächen hervorruft. Häufig

wird dieser Wärmeübergangswiderstand auch als Kapitza–Widerstand bezeichnet, obwohl dieser strenggenommen nur den Spezialfall des Wärmeübergangswiderstands an Grenzflächen zwischen einem Metall und flüssigem Helium beschreibt. Eine ausführliche Diskussion der Thematik der Grenzflächenwiderstände bei tiefen Temperaturen findet man in [Swartz1989]. Ist  $\dot{Q}$  die Wärmemenge pro Zeiteinheit, die durch die Grenzfläche tritt, dann ist die Temperaturdifferenz aufgrund des Wärmeübergangswiderstand  $R_K$  durch

$$\delta T = R_K \dot{Q} \quad (3.5)$$

gegeben. Von Vorteil wäre es, wenn man den Wärmeübergangswiderstand in die Auswertung der Messung nicht einbeziehen müsste. Dieser Gedanke führte dazu, dass zur Messung der Wärmeleitfähigkeit der oben vorgestellte Aufbau mit zwei Thermometern und einem Heizer gewählt wurde, und so die Badtemperatur nicht in die Auswertung eingeht.

Um die Temperatur der Probe mit ausreichender Genauigkeit zu messen, muss der parasitäre Wärmeeintrag durch die Thermometer in die Probe gering sein, damit die Temperaturinformation nicht verfälscht wird. Die verwendeten Thermometer müssen zudem auch noch unterhalb von 50 mK eine ausreichende Temperaturauflösung besitzen. Die in Abschnitt 3.1 besprochenen Magnetisierungsthermometer können diese beide Anforderungen erfüllen. In der praktischen Realisierung wird die Magnetisierungsänderung induktiv von der Detektionsspule eines supraleitenden Flusstransformators aufgenommen, so dass die Verbindung zum dc-SQUID kontaktfrei erfolgt. Dies führt zu einer erheblichen Reduktion der parasitären Wärmeeinträge.

Auch für den Heizer gilt, dass möglichst keine parasitären Wärmeeinträge in die Probe zugelassen werden sollten. Daher ist sicherzustellen, dass der Aufbau des Heizers so erfolgt, dass diese Anforderung erfüllt werden kann. Auch hier werden berührungsfreie Konzepte favorisiert. Eine eingehende Betrachtung des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten berührungsfreien Heizers findet im nächsten Abschnitt statt.

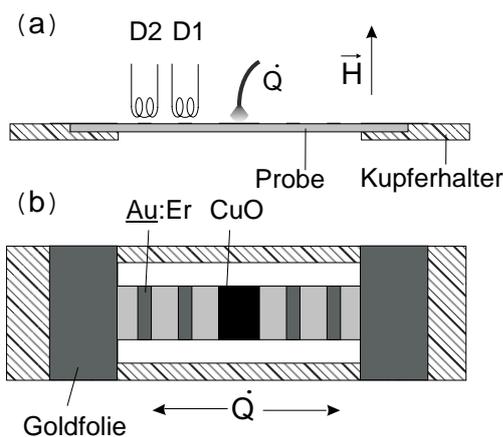
### 3.2.2 Versuchsaufbau

Im Folgenden wird der experimentelle Aufbau im Detail beschrieben. Dazu wird zunächst ein Überblick über das Gesamtkonzept gegeben. Im Anschluss daran werden die einzelnen Komponenten wie Heizer, Detektionsspule, Feldspule und Messelektronik genauer vorgestellt. Im letzten Abschnitt wird die Durchführung des Experiments beschrieben.

## Übersicht

In Abbildung 3.5 ist der Aufbau des Wärmeleitfähigkeitsexperiments für zwei Ansichten gezeigt. Die Geometrie des Aufbaus ist durch die planare Form der Glasproben vorgegeben. Das genaue Aussehen der Proben wird in Abschnitt 3.4.1 beschrieben. Teilbild a zeigt eine Seitenansicht des Probenhalters, während in Teilbild b eine Ansicht von

oben zu sehen ist. In Teilbild b erkennt man in der Mitte die rechteckige Probe, die links und rechts in einem Kupferhalter mit einem tieftemperaturtauglichen Spulenlack<sup>3</sup> eingeklebt ist. An den beiden Enden der Glasprobe ist eine dünne Goldfolie auf der Glasprobe aufgeklebt (ebenfalls mit dem Spulenlack), um die Thermalisierung der Probe zu unterstützen. Betrachtet man die Probe genauer, so sieht man, dass auf der linken und auf der rechten Seite je zwei dünne Streifen aus Au:Er-Folie angebracht sind, die als Temperatursensoren dienen. Befestigt wurden diese mit einem Epoxidharzkleber<sup>4</sup>. In der Mitte der Probe wurde ein dünner Film aus CuO auf die Glasprobe aufgedampft, der als Lichtabsorber dient. Die Kombination aus einem Absorber und einer Lichtquelle dient als berührungsfreier Heizer. Mehr zum Aufbau des Heizers findet man in diesem Kapitel im Unterabschnitt 'Heizer'. Vom Heizer aus breitet sich die Wärme in beide Richtungen der Probe aus. Um eine gleichmäßige Ausbreitung zu gewährleisten, wurden zu beiden Seiten des Absorbers jeweils zwei Au:Er-Folien angebracht. Damit ist der Aufbau symmetrisch gegenüber der Wärmeausbreitung. Nur die im Bild links zu sehenden werden jedoch als Thermometer verwendet. In Teilbild a sind zusätzlich die beiden Detektionsspulen D1 und D2 angedeutet, die das Magnetisierungssignal der Au:Er-Sensoren aufnehmen. Das genaue Design dieser Spulen wird im nächsten Unterabschnitt vorgestellt. Zusätzlich ist die Richtung des externen Magnetfeldes  $\vec{H}$  angegeben, in dem sich die Au:Er-Sensoren befinden. Zur Erzeugung dieses Feldes dient ein Helmholtzspulenpaar, in dessen Mitte sich der Aufbau befindet. Dieses Spulenpaar ist in der Zeichnung nicht dargestellt. Der genaue Vorgang der Felderzeugung wird im Unterabschnitt 'Feldspule' beschrieben. Der gesamte Aufbau mit Probe und Helmholtzspulenpaar befindet sich in einer Box aus Kupfer, die zur Abschirmung externer magnetischer Störungen von einer Bleifolie umgeben ist. Der Probenhalter aus Abbildung 3.5 hat eine Länge von etwa 35 mm und eine Breite von 15 mm. Das Experiment ist an der Experimentierplattform eines Verdünnungskryostaten befestigt.



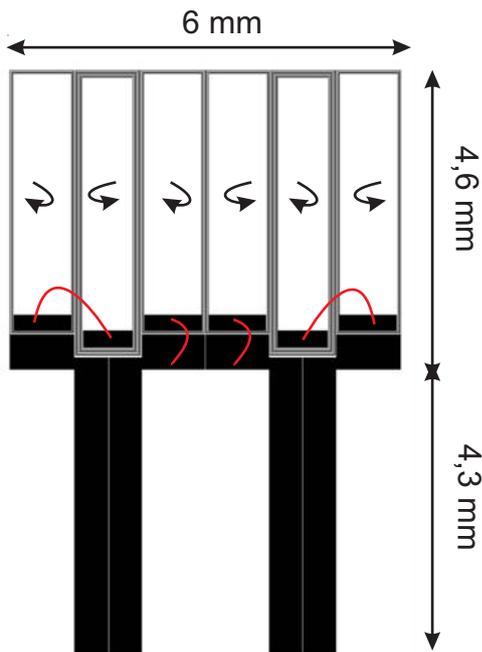
**Abb. 3.5:** Aufbau des Wärmeleitfähigkeitsexperiments gezeigt in einer Seitenansicht und einer Draufsicht [Hao2004b].

<sup>3</sup>Der Spulenlack trägt die Bezeichnung GE Varnish 7031.

<sup>4</sup>Stycast 1266, Hersteller: Emerson and Cuming, 46 Manning Road, Billerica MA, USA.

## Detektionsspule

Die flache Geometrie der Probe und die Größe der Au:Er-Streifen geben die Randbedingungen für die Form und das Aussehen der Detektionsspulen, mit denen die Magnetisierungsänderung der Au:Er-Sensoren aufgenommen werden soll, vor. Um die Magnetisierungsänderung optimal einkoppeln zu können, wurden planare Spulen entwickelt, deren eingeschlossene Fläche den Außenmaßen der Au:Er-Streifen entspricht. In Abbildung 3.6 sind die beiden Detektionsspulen maßstabsgetreu dargestellt.



**Abb. 3.6:** Darstellung der beiden gradiometrischen Detektionsspulen. Die roten Linien stellen Niob-Bonddrähte, die Pfeile geben die Orientierungssinn der einzelnen Spulenteile an.

Der Aufbau der Spulen entspricht so genannten Gradiometern 2. Ordnung. Eine solche Anordnung von Spulen dient dazu, räumlich homogene und lineare Magnetfeldänderungen aus der Umgebung so zu unterdrücken, dass diese das Signal der Au:Er-Sensoren nicht beeinflussen. In diesem Fall besteht ein Gradiometer aus einer inneren und zwei äußeren Spulen. Der Windungssinn der äußeren Spulen ist gegensinnig zu der inneren Spule. Die Pfeile in Abbildung 3.6 geben die unterschiedlichen Windungssinne der Spulen an. Unterhalb der jeweils inneren Spulen befinden sich die Au:Er-Sensoren. Die beiden Sensoren haben zueinander einen Abstand Mitte zu Mitte von 3 mm. Dieser Abstand gewährleistet, dass das Übersprechen zwischen den Thermometern gering bleibt.

Hergestellt wurden die Spulen im institutseigenen Reinraum. Dazu wurde mit Hilfe von Kathodenzerstäubung und fotolithographischen Prozessen ein Niobfilm mit der Dicke 300 nm auf ein Saphirsubstrat mit der Dicke 0,5 mm strukturiert. Die Breite der Bahnen der Spulen beträgt  $10 \mu\text{m}$ . Die äußeren Spulen besitzen je drei Windungen, die inneren Spulen je sechs Windungen. Die effektive Fläche der inneren Spulen beträgt circa  $22,5 \text{ mm}^2$ , die der äußeren Spulen zusammen ebenfalls  $22,5 \text{ mm}^2$ . Da es aufgrund der unterschiedlichen Windungssinne der einzelnen Spulen nicht möglich ist, in einem einla-

gigen Strukturierungsprozess alle Spulen aus einem durchgängigen Streifen herzustellen, müssen an den Kreuzungspunkten so genannte Bondverbindungen gesetzt werden. Das heißt, diese Stellen werden mittels einer Ultraschallschweißtechnik mit Aluminiumdrähten verbunden. In Abbildung 3.6 sind diese als rote Linien dargestellt. An den vier Enden der lang ausgezogenen Bahnen werden ebenfalls solche Bondverbindungen gesetzt, die die Detektionsspulen mit den Einkoppelspulen der dc-SQUIDs verbinden und so den supra-leitenden Flusstransformator komplettieren. Zur Vermeidung zusätzlicher parasitärer Induktivitäten, die das Signal verkleinern würden, wurden diese Bahnen dabei relativ breit gewählt. Das Substrat mit den Detektionsspulen wird so im Aufbau angebracht, dass der Abstand zwischen den Detektionsspulen und den Au:Er-Streifen nur circa  $250\ \mu\text{m}$  beträgt, um ein möglichst gutes Einkoppeln des Signals in die Spule zu gewährleisten.

### Feldspule

Zur Erzeugung des externen homogenen Magnetfeldes wird wie bereits beschrieben ein Helmholtzspulenpaar verwendet. Dieses besteht aus zwei Aluminiumringen, auf die supraleitender NbTi-Draht gewickelt ist. Um ein Feld zu erzeugen, wird ein Strom von etwa  $70\ \text{mA}$  an die Spulen angelegt. Anschließend werden die Aluminiumringe über ihre Sprungtemperatur  $T_c = 1,17\ \text{K}$  geheizt, so dass das Feld in das Innere der Aluminiumringe eindringen kann. Nach dem Abkühlen unter die Sprungtemperatur ist das Feld in den Aluminiumringen eingefroren und die externe Stromquelle kann langsam abgestellt werden. Die hier verwendeten Ströme erzeugen im homogenen Bereich ein Magnetfeld von etwa  $10\ \text{Gauss}$ .

### Heizer

In diesem Abschnitt werden die Details des Heizverfahren beschrieben. Die Probe wird optisch mit dem Licht einer Leuchtdiode, deren Intensitätsmaximum bei Raumtemperatur bei einer Wellenlänge von  $623\ \text{nm}$  liegt, geheizt. Diese ist am  $1\ \text{K}$ -Topf befestigt. An die Leuchtdiode ist eine Glasfaser angekoppelt, mit der das Licht von dort direkt auf die schwarze Absorptionsfläche aus CuO auf der Glasprobe geleitet wird. Am Ende der Glasfaser ist eine Vorrichtung angebracht, mit der diese von außen an der Kupferbox, die das Experiment umgibt, verschraubt werden kann.

Die emittierte Lichtleistung der Leuchtdiode besitzt eine nichtlineare Abhängigkeit vom Betriebsstrom. Daher wird die Lichtleistung nicht über den Betriebsstrom geregelt, sondern es hat sich als sinnvoll erwiesen, die Leuchtdioden statt dessen gepulst zu betreiben. Diese Vorgehensweise erlaubt es zusätzlich, die Heizleistung über einen großen dynamischen Bereich hinweg zu kontrollieren. Pro Puls wird immer der gleiche Betriebsstrom an der Leuchtdiode angelegt. Die Heizleistung wird gesteuert, indem man die Pulsrate verändert. Die Pulse haben im Experiment Repetitionsraten  $\nu_{\text{rep}}$  im Bereich von etwa  $1\ \text{Hz}$  bis  $1000\ \text{Hz}$ . Mit dieser Vorgehensweise erreicht man, dass die im zeitlichen Mittel

emittierte Lichtleistung nicht abhängig vom Betriebsstrom ist, sondern proportional zur Repetitionsrate. Dieses Verfahren macht es möglich, Heizleistungen im Bereich zwischen  $10 \text{ fW}$  und  $100 \mu\text{W}$  kontrolliert an die Probe abzugeben. Damit diese Methode erfolgreich angewendet werden kann, muss im Experiment gewährleistet sein, dass die thermische Relaxationszeit der Glasprobe länger ist als der zeitliche Abstand zwischen zwei Pulsen.

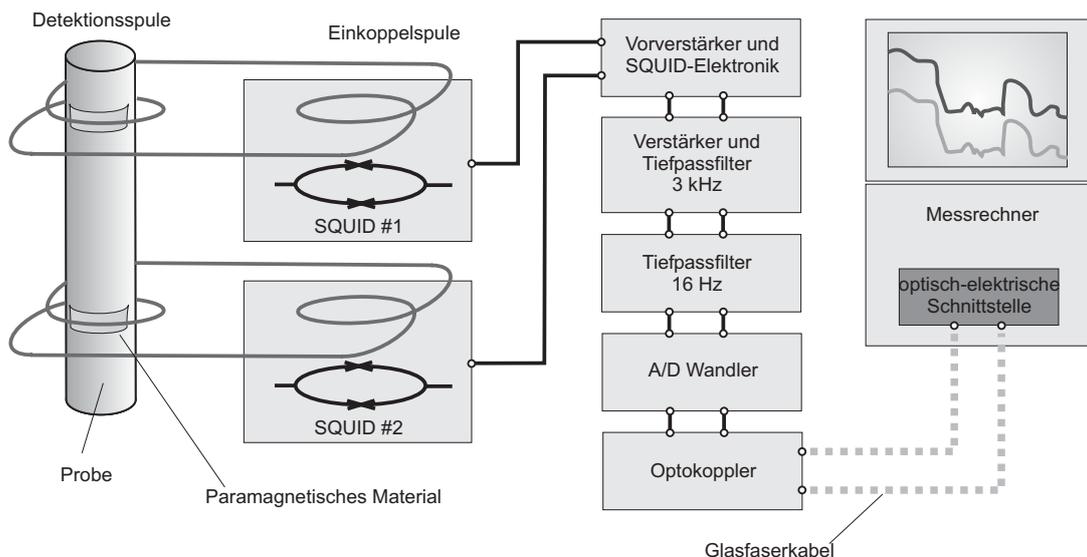
Betrieben wird die Leuchtdiode mit einem Signalgenerator<sup>5</sup>, der eine hohe Signalstabilität sowohl hinsichtlich der Amplitude als auch der Frequenz besitzt. Die Leuchtdiode ist über einen Widerstand ( $500 \Omega$ ) mit dem Ausgangssignal des Signalgenerators verbunden, so dass an dieser bei jedem Puls der gleiche Strom angelegt wird. Damit sichergestellt werden kann, dass in den Messphasen, in denen die Probe nicht geheizt werden soll, keine parasitären Ströme durch den Signalgenerator durch die Leuchtdiode fließen, kann das Ausgangssignal des Signalgenerators zusätzlich durch ein Relais unterbrochen werden.

Der Absolutwert der Leistung, die in der Probe dissipiert wird, ist zunächst nicht bekannt, da der Kopplungsfaktor zwischen der Leuchtdiode und der Glasfaser, der Leistungsverlust innerhalb der Glasfaser und der Anteil an reflektiertem Licht am Absorber nicht bekannt sind. Die Änderung der Heizleistung ist aber aufgrund der sehr genauen Steuerung der Repetitionsraten sehr genau bekannt.

## Messelektronik

Abbildung 3.7 zeigt eine schematische Darstellung der elektronischen Verschaltung der Thermometrie. Links in der Abbildung ist die Probe zu sehen, an der die Au:Er-Sensoren in Form von dünnen Streifen angebracht sind. Die für die Magnetisierungsmessung der

<sup>5</sup>Signalgenerator DS345 der Firma Stanford Research Systems.



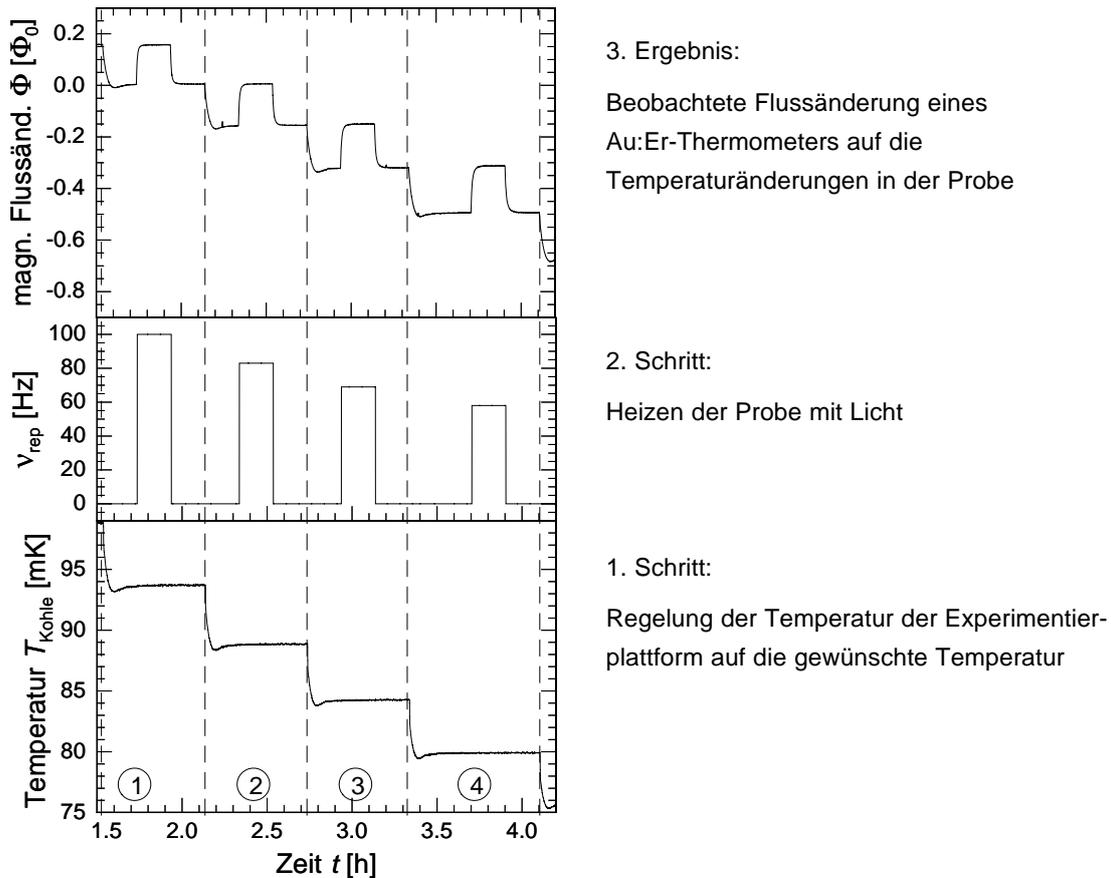
**Abb. 3.7:** Verschaltung und Ausleseelektronik der Au:Er-Thermometer in der Wärmeleitfähigkeitsmessung [Neumann2003].

paramagnetischen Au:Er-Sensoren verwendete Detektionsspulen sind, wie im Anhang A.2 ausführlich beschrieben, Teil eines supraleitenden Flusstransformators, der zusammen mit der Einkoppelspule des dc-SQUIDs gebildet wird. Die beiden für dieses Experiment eingesetzten dc-SQUIDs sind vom Typ 1 der in Tabelle A.1 aufgelisteten SQUIDs. Mit der SQUID-Elektronik betreibt man die dc-SQUIDs im Flux-Locked-Loop-Modus. Der genaue Aufbau einer solchen Schaltung wird im Anhang A.2.2 diskutiert. Ergebnis dieser Beschaltung der dc-SQUIDs ist eine Linearisierung der Fluss-Spannungs-Kennlinie. Auf diese Weise wird erreicht, dass SQUIDs als rauscharme, lineare Fluss-Spannungswandler eingesetzt werden können. Dieser Elektronik schließen sich zwei Tiefpassfilter und ein Analog-Digital-Wandler an. Das Signal wird über einen Optokoppler in ein optisches Signal umgewandelt und über ein Glasfaserkabel zum Messrechner geleitet, der die erhaltenen Daten weiter verarbeitet. Die Tiefpassfilter sind notwendig, um Störsignale zu unterdrücken. Die Umwandlung in ein optisches Signal hat sich als nützlich erwiesen, um die Einkopplung von Signalen des Messrechners, wie zum Beispiel Vielfache der Netzfrequenz von 50 Hz, in die Messapparatur zu verhindern.

### 3.2.3 Durchführung des Experimentes

Im Folgenden wird die Durchführung einer Messung der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit beschrieben. In Abbildung 3.8 ist ein Ausschnitt der experimentellen Standardroutine mit vier Messzyklen dargestellt. In jedem dieser Messzyklen wird bei einer bestimmten Badtemperatur die zugehörige Wärmeleitfähigkeit bestimmt. In der unteren Grafik ist die Temperatur  $T$  der Experimentierplattform (Badtemperatur) in Abhängigkeit der Zeit aufgetragen. Diese wird meist stufenförmig geändert und je nach Länge des Messzyklus für eine halbe Stunde bis hin zu mehreren Tagen konstant gehalten. In der mittleren Auftragung ist die Repetitionsrate  $\nu_{\text{rep}}$ , mit der die Leuchtdiode betrieben wird, aufgetragen. Die Heizleistung proportional zur Repetitionsrate, und demnach ist die Höhe der Repetitionsrate ein Maß für die Heizleistung. Während eines typischen Messzyklus gibt es eine Heizperiode. Die obere Abbildung zeigt den Verlauf der magnetischen Flussänderung in einem der beiden SQUIDs. Diese ist ein Maß für die Magnetisierungsänderung des entsprechenden Au:Er-Sensors. Demnach spiegelt die magnetische Flussänderung den Temperaturverlauf in der Probe an der Stelle des betrachteten Au:Er-Sensors wieder. Man kann deutlich die Korrelationen des Signals, sowohl mit den Änderungen der Temperatur der Experimentierplattform als auch mit den Heizperioden der Leuchtdiode, erkennen. Ein positive Änderung des magnetischen Flusses bedeutet hier einen Temperaturanstieg, eine negative Änderung einen Temperaturabfall. Dieser Zusammenhang ergibt sich aus der Polung des Magnetfeldes, das mit den Helmholtzspulen erzeugt wird und könnte genauso umgekehrt sein. Da in der späteren Auswertung der Zusammenhang zwischen magnetischem Fluss und Temperatur bestimmt wird, fällt dies nicht ins Gewicht.

Während eines Messzyklus muss gewährleistet sein, dass die Probe nach dem Einstellen einer neuen Badtemperatur ausreichend Zeit zum Thermalisieren hat. Dass diese Bedin-



3. Ergebnis:

Beobachtete Flussänderung eines Au:Er-Thermometers auf die Temperaturänderungen in der Probe

2. Schritt:

Heizen der Probe mit Licht

1. Schritt:

Regelung der Temperatur der Experimentierplattform auf die gewünschte Temperatur

**Abb. 3.8:** Zeitlicher Verlauf einiger wichtiger Größen während der Durchführung von vier Messzyklen zur Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit. Im unteren Bild ist der Verlauf der Temperatur der Experimentierplattform dargestellt; die stufenförmige Erniedrigung der Temperatur ist deutlich erkennbar. Die Heizleistung beziehungsweise die Repetitionsrate, mit der die Leuchtdiode betrieben wird, ist im mittleren Bild aufgetragen. Im oberen Bild sieht man den Einfluss sowohl der Änderung der Temperatur der Experimentierplattform als auch des Heizens der Probe auf den magnetischen Fluss im SQUID, der proportional zur Magnetisierung eines der Au:Er-Sensoren auf der Glasprobe ist.

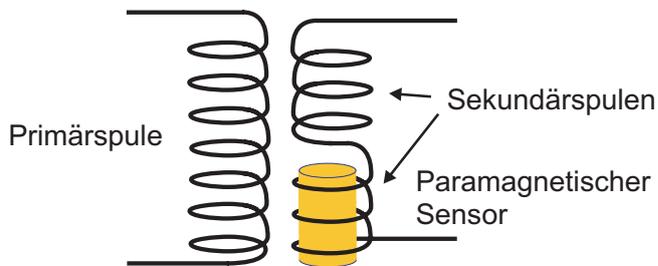
gung erfüllt ist, ist daran erkennbar, dass sich das Signal des SQUIDs nicht mehr ändert. Im Anschluss daran wird die Leuchtdiode eingeschaltet und die Heizleistung wird entsprechend der Repetitionsrate in der Probe deponiert. Die Dauer der Heizphase muss so gewählt werden, dass sich in der Probe ein stabiler Temperaturgradient ausbilden kann. Das Erreichen dieser Bedingung ist in Abbildung 3.8 daran zu erkennen, dass die Magnetisierung der Au:Er-Sensoren nach dem Anstieg in ein konstantes Plateau übergeht. Sobald dies der Fall ist, wird die Heizphase beendet und die Probe thermalisiert zur Badtemperatur zurück. Ist dies geschehen, wird ein neuer Messzyklus bei einer anderen Temperatur begonnen.

### 3.2.4 Thermometrie

In diesem Abschnitt werden die Thermometer eingeführt, die zur Messung und Regelung der Temperatur der Experimentierplattform eingesetzt werden. Es handelt sich dabei um ein Suszeptibilitätsthermometer und ein Kohlethermometer. Ersteres wird vor allem zur Regelung der Temperatur eingesetzt, letzteres dient zur Messung der Temperatur.

#### 3.2.4.1 Suszeptibilitätsthermometer

Das Suszeptibilitätsthermometer, das aufgrund seiner hohen Stabilität zur Regelung der Temperatur des Kryostaten verwendet wird, ist eine Variante des bereits beschriebenen Magnetisierungsthermometers mit Au:Er als paramagnetischem Temperatursensor. Der wesentliche Unterschied ist, dass die Magnetisierungsänderung, beziehungsweise die Suszeptibilitätsänderung nicht mit einem SQUID detektiert wird, sondern über die Messung der Gegeninduktivität zweier Spulen, wobei sich in einer der Au:Er-Sensor befindet. In Abbildung 3.9 ist der Aufbau der Spulenordnung schematisch dargestellt. Das Thermometer besteht aus einer Primärspule und zwei Sekundärspulen, die in der Zeichnung zur besseren Übersicht nebeneinander dargestellt sind. In einer der beiden Sekundärspulen befindet sich ein Au:Er-Sensor; in der anderen Sekundärspule, deren Windungssinn gegenläufig ist, eine unmagnetische Keramik (nicht dargestellt). Die Primärspule ist um diese Anordnung gewickelt. Zur Messung der Gegeninduktivität wird eine Gegeninduktivitätsmessbrücke<sup>6</sup> verwendet. Der Au:Er-Sensor, der für dieses Thermometer verwendet wird, hat eine Erbiumkonzentration von 1700 ppm. Weitere Details zum Aufbau und Ausleselektronik des Thermometers sind in [Horst1999] beschrieben.

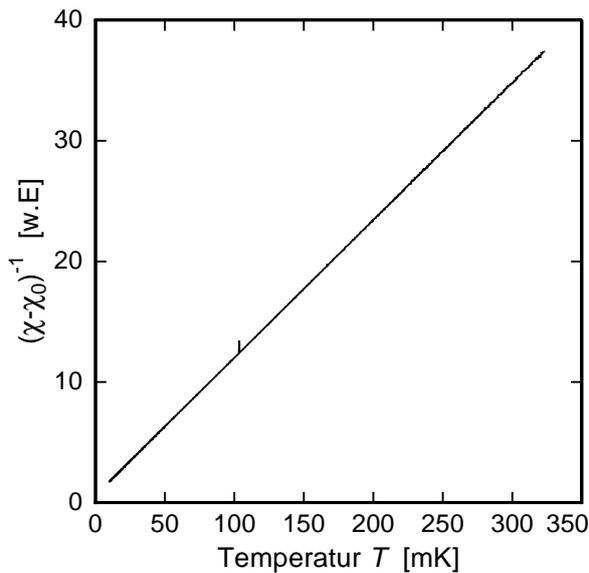


**Abb. 3.9:** Schematische Darstellung des Suszeptibilitätsthermometers mit Primärspule, zwei Sekundärspulen und dem Au:Er-Sensor.

In Abbildung 3.10 ist die Temperaturabhängigkeit der inversen Suszeptibilität des Au:Er-Sensors dargestellt. Diese folgt wie erwartet einem Curie-Weiss-Gesetz. Unterhalb von 10 mK treten Abweichungen auf, so dass in diesem Bereich das Suszeptibilitätsthermometer durch den Vergleich mit einem weiteren Thermometer kalibriert werden muss. Da das Suszeptibilitätsthermometer eine hohe Empfindlichkeit und sehr kleine Temperaturschwankungen aufweist, eignet es sich besonders zur Regelung der Temperatur im Bereich unter 100 mK.

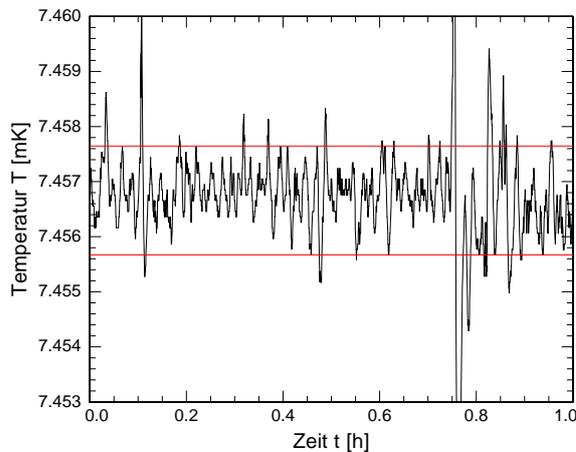
Für die Wärmeleitfähigkeitsmessung ist es wichtig, dass die Temperatur der Experimentierplattform auch über längere Zeiträume hinweg stabil gehalten werden kann.

<sup>6</sup>LR-700 AC Gegeninduktivitätsmessbrücke, Linear Research Inc., San Diego, California.



**Abb. 3.10:** Inverse Suszeptibilität des Au:Er-Sensors in Abhängigkeit der Temperatur.

Abbildung 3.11 zeigt exemplarisch einen Ausschnitt aus einem Datensatz, bei dem die Temperatur mit dem Suszeptibilitätsthermometer auf 7,45 mK geregelt wurde. Die Standardabweichung beträgt etwa  $1 \mu\text{K}$  und ist durch die roten Linien angedeutet.



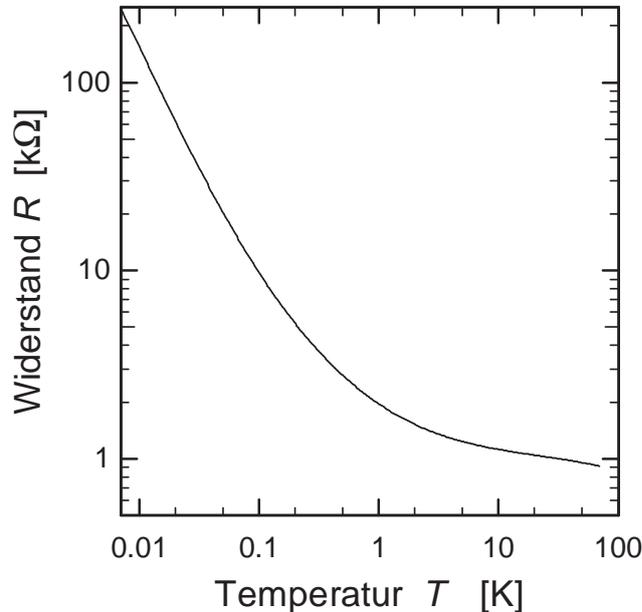
**Abb. 3.11:** Stabilisierung der Temperatur bei 7,45 mK. Die rote Linie kennzeichnet die Standardabweichung.

Da die Regelparameter für die Temperatursteuerung temperaturabhängig sind, stellt die Temperaturregelung über einen weiten Temperaturbereich wie ihn das Wärmeleitfähigkeitsexperiment erfordert eine Herausforderung dar. Die Standardabweichung kann daher auch größere Werte annehmen. Werte bis zu  $40 \mu\text{K}$ , wie sie beobachtet wurden, stellen jedoch keine Störung für die Wärmeleitfähigkeitsmessung dar [Wolf2005].

### 3.2.4.2 Kohlethermometer

Zur Messung der Temperatur wurde ein so genanntes Kohlethermometer eingesetzt. Dies gehört zur Gruppe der Widerstandsthermometer, bei denen die Temperaturabhängigkeit

des elektrischen Widerstands als Temperaturinformation verwendet wird. Im Falle eines Kohlethermometers wird ein Kohlewiderstand als Temperatursensor eingesetzt. In Abbildung 3.12 ist die Temperaturabhängigkeit des hier verwendeten Kohlewiderstands gezeigt. Es handelt sich um ein Material mit negativem Temperaturkoeffizienten, das heißt der elektrische Widerstand nimmt mit sinkender Temperatur zu.

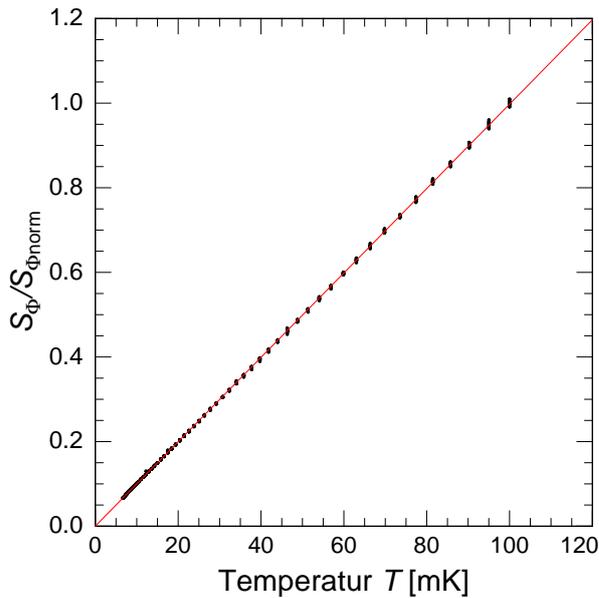


**Abb. 3.12:** Temperaturabhängigkeit des Kohlewiderstands.

Das hier verwendete Kohlethermometer wurde in der Arbeitsgruppe von K. Neumaier am Walther–Meißner–Institut in München hergestellt. Kalibriert war das Thermometer im Bereich zwischen 18 mK und 4 K. Später konnte die Kalibration bis zu 5 mK hinunter erweitert werden [Weiss1995]. Eine Überprüfung der Kalibration mit einem  $^{60}\text{Co}$ -Kernspिनorientierungsthermometer ergab eine Übereinstimmung der Temperaturen bei 5 mK bis auf 5 % [Fleischmann1998].

Zur nochmaligen Überprüfung der Kalibration des Kohlethermometers wurde dieses im Rahmen dieser Arbeit mit dem Rauschthermometer aus Kapitel 2 verglichen. Abbildung 3.13 zeigt das auf 100 mK normierte Rauschen des Rauschthermometers in Abhängigkeit der Temperatur des Kohlethermometers. Die eingezeichnete rote Gerade zeigt, dass der Zusammenhang wie erwartet linear ist. Die Übereinstimmung liegt bei tiefen Temperaturen im Bereich von etwa 2%. Die Ergebnisse dieser Messung zeigen, dass die bisherige Kalibration des Kohlethermometers weiterverwendet werden kann.

Bevor nun die weitere Auswertung der Daten vorgestellt wird, wird zunächst die Probe an sich näher beleuchtet. Bis zu diesem Zeitpunkt haben die Eigenschaften der Probe noch keine Rolle gespielt; für die Analyse und Interpretation der Daten sind diese jedoch essentiell. Aufgrund dessen werden im nächsten Kapitel die Motivation für die Messung der Wärmeleitfähigkeit an porösen Glasproben diskutiert und die thermischen Eigenschaften von Gläsern und insbesondere porösen Gläsern besprochen. Im Anschluss daran werden die Messungen analysiert und die Ergebnisse vorgestellt und diskutiert.



**Abb. 3.13:** Vergleich der Kalibration des Kohlethermometers mit dem Rauschthermometer.

### 3.3 Thermische Eigenschaften von Gläsern

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Experiment zur Messung der Wärmeleitfähigkeit von Gläsern bei tiefen Temperaturen entwickelt. In den nächsten Unterkapiteln werden dazu die besonderen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen vorgestellt, die die Untersuchung von Gläsern in diesem Temperaturbereich so interessant machen. Der Fokus liegt dabei auf den thermischen Eigenschaften von Gläsern; weitere Eigenschaften wie die akustischen oder die dielektrischen werden nur kurz gestreift. Das Kapitel beginnt mit einer phänomenologischen Beschreibung der thermischen Eigenschaften. Anschließend wird das so genannte Standardtunnelmodell, mit dem die Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen beschrieben werden können, erläutert. In einem weiteren Abschnitt werden experimentelle Ergebnisse und daraus erwachsende Erkenntnisse diskutiert, die nicht mehr im Rahmen dieses Modells erklärt werden können und die Erweiterungen des Standardtunnelmodells erfordern. Die Konsequenzen dieser Erweiterungen für die thermischen Eigenschaften und insbesondere die Wärmeleitfähigkeit werden dargestellt.

Die thermischen Eigenschaften kristalliner Dielektrika bei Temperaturen unterhalb von 1 K können sehr gut mit dem so genannten Debye-Modell beschrieben werden. Mit diesem von Peter Debye im Jahr 1912 entwickelten Modell kann der Beitrag der Gitterschwingungen —der so genannten Phononen— zur spezifischen Wärme berechnet werden [Debye1912]. Der Kristall wird dabei als homogenes, isotropes und elastisches Kontinuum angesehen, in dem die Phononen mit konstanten longitudinalen und transversalen Schallgeschwindigkeiten propagieren. Da in das Debye-Modell keine Informationen über die mikroskopische Natur des Festkörpers eingehen, gibt es zunächst keinen Grund, es nicht auch auf amorphe Substanzen anzuwenden. Dies sollte insbesondere bei tiefen Temperaturen gelten, da die dominante Wellenlänge der Phononen bei Temperaturen unterhalb

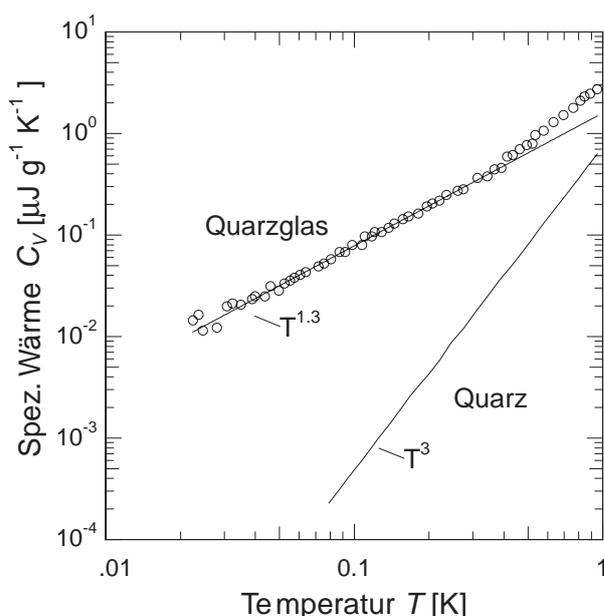
von 1 K etwa  $1000 \text{ \AA}$  beträgt und so sehr viel größer als die Skala der Unordnung in einem amorphen Festkörper ist.

Im Jahr 1971 brachten Untersuchungen der Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit von Gläsern bei tiefen Temperaturen Überraschendes ans Licht: Die thermischen Eigenschaften von Gläsern unterscheiden sich in diesem Temperaturbereich signifikant von denen der Kristalle [Zeller1971]. Diese Abweichungen werden in der Literatur auch als thermische Anomalien bezeichnet.

### 3.3.1 Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit

In den folgenden Unterkapiteln werden die Unterschiede der thermischen Eigenschaften von amorphen Substanzen und Kristallen beschrieben. Als Modellsubstanz dient dabei  $\text{SiO}_2$ , da dieses sowohl in kristallinen als auch amorphen Modifikationen stabil ist.

#### 3.3.1.1 Wärmekapazität



**Abb. 3.14:** Spezifische Wärme von Quarzkristall und amorphem Quarz unter 1 K. Im ganzen Temperaturbereich ist die spezifische Wärme des Quarzglases größer als die des Kristalls und zeigt eine nahezu lineare Temperaturabhängigkeit [Lasjaunias1975].

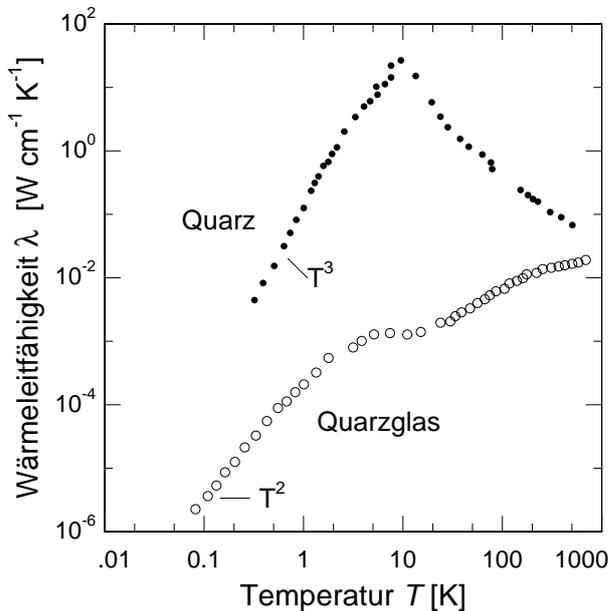
In Abbildung 3.14 ist die spezifische Wärme von  $\text{SiO}_2$  in einer kristallinen und einer amorphen Modifikation gezeigt. Die spezifische Wärme von Quarzkristall zeigt eine  $T^3$ -Abhängigkeit, die das Debye-Modell auch richtig vorhersagt. Dagegen kann das Verhalten der Gläser, deren spezifische Wärme eine nahezu lineare Temperaturabhängigkeit aufweist, nicht mit dem Debye-Modell erklärt werden. An dem Beispiel in Abbildung 3.14 kann man gut erkennen, dass der Absolutwert der spezifischen Wärme des Quarzglases höher liegt als der der kristallinen Modifikation. Bei 25 mK beträgt die Abweichung bereits etwa drei Größenordnungen. Aus diesem Verhalten kann man ableiten, dass Gläser im Gegensatz zu Kristallen zusätzlich niederenergetische Anregungen enthalten. Man kann die

spezifische Wärme des Glases  $C_{\text{tot}}$  als Summe aus dem Beitrag der Phononen  $C_{\text{ph}}$  und dem Beitrag der niederenergetischen Anregungen  $C_{\text{extra}}$  ausdrücken:  $C_{\text{tot}} = C_{\text{ph}} + C_{\text{extra}}$ . Aus den Daten ergibt sich folgende Temperaturabhängigkeit für den zusätzlichen Beitrag zur spezifischen Wärme  $C_{\text{extra}}$ :

$$C_{\text{extra}} = a_1 T^{1+\alpha} + a_3 T^3 \quad . \quad (3.6)$$

Das heißt,  $C_{\text{extra}}$  setzt sich aus einem quasi linearen Beitrag und einem weiteren kubischen Beitrag zusammen. Der Parameter  $\alpha$  liegt normalerweise zwischen 0,1 und 0,3.

### 3.3.1.2 Wärmeleitfähigkeit



**Abb. 3.15:** Wärmeleitfähigkeit eines Quarzkristalls und amorphem Quarz. Die Wärmeleitfähigkeit des Quarzglases liegt im ganzen Temperaturbereich unter der des Kristalls und weist eine andere Temperaturabhängigkeit auf [Zeller1971].

In Abbildung 3.15 ist die Wärmeleitfähigkeit einer kristallinen und amorphen Modifikation von  $\text{SiO}_2$  in Abhängigkeit der Temperatur dargestellt. Auch hier wird sofort deutlich, dass zwischen den beiden Modifikationen große Unterschiede im Temperaturverhalten bestehen. Zunächst wird der Verlauf der Wärmeleitfähigkeit von Kristallen diskutiert.

In der Debyeschen Theorie transportieren Phononen die Wärme in dielektrischen Kristallen. Diese streuen entweder untereinander oder an Defekten im Kristall. Ähnlich wie die Beschreibung von Streuprozessen im Rahmen der kinetischen Gastheorie kann man diese Prozesse im Rahmen des so genannten Phononengases beschreiben. Man erhält für die Wärmeleitfähigkeit folgenden Ausdruck:

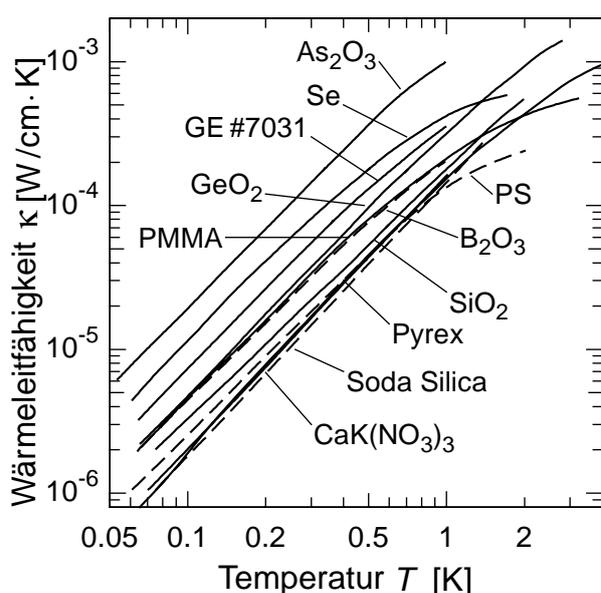
$$\kappa_{\text{ph}} = \frac{1}{3} C_{\text{ph}} v l \quad , \quad (3.7)$$

wobei  $C_{\text{ph}}$  die spezifische Wärme und  $v$  die mittlere Schallgeschwindigkeit ist. Die mittlere freie Weglänge  $l$  ist durch Streuprozesse bestimmt. Bei höheren Temperaturen ist der

die Wärmeleitfähigkeit begrenzende Streuprozess der so genannte Umklappprozess. Dabei handelt es sich um einen 3-Phononen-Streuprozess, bei dem der Wellenvektor des erzeugten, dritten Phonons außerhalb der 1. Brillouin-Zone liegt. Damit die Impulserhaltung gewährleistet ist, wird ein reziproker Gittervektor addiert. Die Dominanz dieses Prozesses bei hohen Temperaturen erklärt sich dadurch, dass die Wellenvektoren der dominanten Phononen so groß sind, dass viele Stöße Phononen erzeugen, deren Wellenvektoren außerhalb der 1. Brillouin-Zone liegen. Die Rate dieser Prozesse nimmt mit sinkender Temperatur ab, weshalb die mittlere freie Weglänge zunimmt. Daraus ergibt sich, dass die Wärmeleitfähigkeit mit sinkender Temperatur zunächst ansteigt. Bei etwa 10 K erreicht die mittlere freie Weglänge ein Maximum. Ab dieser Temperatur und darunter ist die mittlere freie Weglänge konstant, da sie nun von Streuprozessen an der Oberfläche begrenzt wird. Diesen Bereich, in dem die mittlere freie Weglänge konstant ist, weil sie durch die Probengeometrie eingeschränkt wird, nennt man Casimir-Bereich. Die Wärmeleitfähigkeit nimmt unterhalb des Maximums mit  $T^3$  entsprechend dem Temperaturverhalten der spezifischen Wärme ab, da die Schallgeschwindigkeit in diesem Temperaturbereich ebenfalls nahezu konstant ist.

Die Wärmeleitfähigkeit von Quarzglas unterscheidet sich sehr von der der kristallinen Modifikation. Im dargestellten Temperaturbereich liegt der Absolutwert der Wärmeleitfähigkeit des Quarzglases immer unterhalb dem des Quarzkristalls und es zeigt sich kein Maximum. Man erkennt ein Plateau in der Wärmeleitfähigkeit im Temperaturbereich um 10 K. Unterhalb dieses Plateaus fällt die Wärmeleitfähigkeit mit  $T^2$  ab. Die Tatsache, dass die Wärmeleitfähigkeit von Gläsern geringer ist als die der Kristalle legt den Schluss nahe, dass in Gläsern zusätzliche Streuzentren vorhanden sind, die in Kristallen nicht existieren. Diese Streuzentren begrenzen die mittlere freie Weglänge im gesamten Temperaturbereich und damit die Wärmeleitfähigkeit.

Mit der Natur dieser experimentell gefundenen niederenergetischen Anregungen und



**Abb. 3.16:** Vergleich der Wärmeleitfähigkeit verschiedener amorpher Materialien. Alle Daten mit Ausnahme von Pyrex stammen aus [Stephens1973]. Die Wärmeleitfähigkeit von Pyrex findet man in [Zeller1971].

lokalisierten Streuzentren beschäftigt sich Abschnitt 3.3.2.

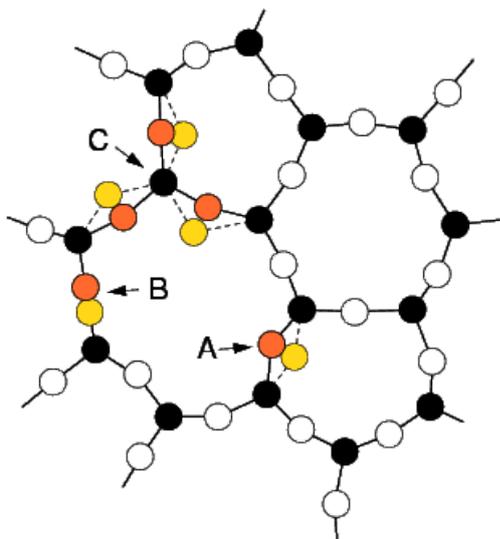
Messungen der Wärmeleitfähigkeit von unterschiedlichen Gläsern brachten eine weitere überraschende Eigenschaft zum Vorschein. In Abbildung 3.16 sind die Wärmeleitfähigkeiten  $\kappa$  verschiedenster amorpher Materialien aufgetragen (nach [Stephens1973]). Auffällig ist, dass diese im Temperaturbereich unter 1 K alle innerhalb einer Größenordnung liegen und das, obwohl die chemischen Zusammensetzungen der gezeigten Substanzen sehr unterschiedlich sind. Diese Tatsache wird in der Literatur als Universalität der Gläser beschrieben. Eine umfangreiche Zusammenstellung aller Daten zum Thema Universalität der Wärmeleitfähigkeit in Gläsern findet man in [Pohl2002].

### 3.3.2 Standardtunnelmodell

Es gibt heute noch keine mikroskopische Theorie, die die besonderen Eigenschaften der Gläser bei tiefen Temperaturen vollständig erklären kann. Im Jahr 1972 wurde von Anderson, Halperin und Varma [Anderson1972] und unabhängig davon von Phillips [Phillips1972] ein phänomenologisches Modell für Gläser vorgeschlagen. Sowohl die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Gläsern als auch die Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazität werden von diesem Modell richtig angegeben. Im nächsten Unterkapitel wird eine kurze Einführung in dieses Modell, das heute als Standardtunnelmodell bekannt ist, gegeben.

#### 3.3.2.1 Doppelmuldenpotenzial

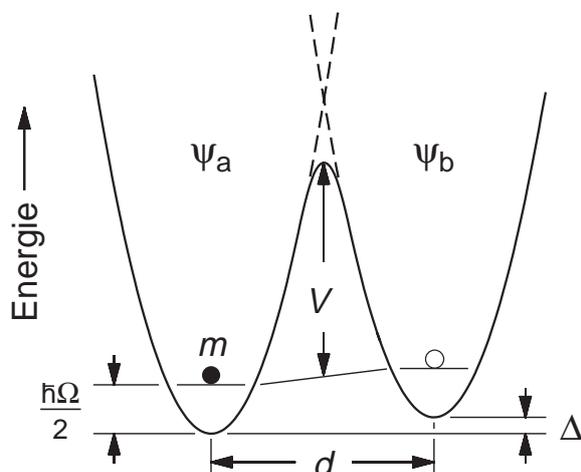
Der grundsätzliche Unterschied zwischen Gläsern und Kristallen liegt in der Struktur. Amorphen Festkörpern fehlt die Fernordnung, die Kristalle besitzen.



**Abb. 3.17:** Schematische, zweidimensionale Darstellung einer amorphen Struktur von  $\text{SiO}_2$ . Die schwarzen Punkte stellen die Siliziumatome, die weißen die Sauerstoffatome dar. Mit A, B und C sind Stellen gekennzeichnet, an denen einzelnen Atomen mehrere Gleichgewichtspositionen zur Verfügung stehen. Nach [Enss2005].

In Abbildung 3.17 ist eine schematische, zweidimensionale Darstellung einer amorphen Struktur von  $\text{SiO}_2$  gezeigt. Der Grundbestandteil, ein Siliziumatom (schwarz), an das je drei Sauerstoffatome (weiß) gebunden sind, ist derselbe, aus dem auch kristalliner Quarz

aufgebaut ist. Die Anzahl der Atome pro ringförmiger Struktur und damit auch die Bindungswinkel sind jedoch von Ring zu Ring verschieden. Aufgrund dieser ungeordneten Struktur sind für einige Atome mehrere Gleichgewichtspositionen möglich. In Abbildung 3.17 sind mit A, B und C Stellen im Gitter gekennzeichnet, an denen Sauerstoffatome zwei beinahe äquivalente Potenzialminima besetzen können. Eine Potenzialbarriere trennt die beiden Minima. Bei hohen Temperaturen können die Atome durch thermische Anregung die Potenzialbarriere zwischen den Mulden überwinden. Bei tiefen Temperaturen, wenn die thermische Energie kleiner ist als die Potenzialbarriere, ist der Wechsel zwischen den Gleichgewichtspositionen nur noch durch quantenmechanische Tunnelprozesse möglich. An dieser Stelle soll angemerkt werden, dass das eben dargestellte Modell die Prozesse vereinfacht wiedergibt, da die Einheiten, die sich bewegen können auch Atomgruppen sein könnten.



**Abb. 3.18:** Skizze eines Doppelmuldenpotenzials, in dem sich das tunnelnden Teilchen der Masse  $m$  befindet. Die Energie des Grundzustandes von jeder Mulde ist  $\hbar\Omega/2$ . Die Asymmetrieenergie wird mit  $\Delta$  bezeichnet;  $d$  ist der Abstand zwischen den beiden Mulden, und  $V$  ist die Höhe der Potenzialbarriere [Enss2005].

Natürlich gibt es in Gläsern auch lokale Potentiale mit mehr als zwei energetisch fast äquivalenten Gleichgewichtslagen. Diese sind aber im Vergleich zu Doppelmulden statistisch sehr unwahrscheinlich. Ein so genanntes Tunnelsystem lässt sich formal als Teilchen der Masse  $m$  beschreiben, welches sich in einem Doppelmuldenpotenzial bewegt. Ein solches Doppelmuldenpotenzial ist in Abbildung 3.18 dargestellt. Ein Potenzial dieser Art, das durch die umgebenden Atome gebildet wird, nimmt vom tunnelnden Teilchen wahr. Das Potenzial ist gegenüber einer generalisierten Koordinate aufgetragen. Diese kann Translationen oder Rotationen im  $3N$ -dimensionalen Konfigurationsraum widerspiegeln. Der Abstand der beiden Minima ist mit  $d$  bezeichnet, die Höhe der Barriere mit  $V$ . Die Energie des Grundzustandes jeder einzelnen Mulde beträgt  $\hbar\Omega/2$ ; Die Größen  $\Psi_a$  und  $\Psi_b$  bezeichnen die Wellenfunktionen der beiden Grundzustände der Einzelmulden. Die Größe  $\Delta$  ist die so genannte Asymmetrieenergie des Doppelmuldenpotenzials, die aus der unterschiedlichen Muldentiefe resultiert und meist einen endlichen Wert annimmt.

Im Temperaturbereich unter 1 K sind nur die Grundzustände in den beiden Potenzialhälften besetzt, da die ersten angeregten Energieniveaus überhalb von etwa 10 K liegen. Wie bereits erwähnt sind bei diesen Temperaturen thermisch aktivierte Prozesse, die zum

Wechseln des Teilchens zwischen den Mulden führen, sehr unwahrscheinlich. Der dominante Prozess bei diesen Temperaturen ist quantenmechanisches Tunneln. Im Folgenden werden die Eigenzustände der Gesamtwellenfunktion und die zugehörigen Eigenwerte hergeleitet werden.

Der Hamiltonoperator hat folgende Form

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dx^2} + V(x) \quad . \quad (3.8)$$

Dabei ist  $x$  die generalisierte Koordinate. Die genaue Form des Potentials  $V(x)$  in Gläsern ist nicht bekannt. Eine passende Beschreibung von Gläsern kann mit Hilfe der Summe aus zwei benachbarten harmonischen Potentialen erfolgen [Phillips1981]. Die Wellenfunktionen im Grundzustand  $\Psi_a$  und  $\Psi_b$  hängen von dem Potential  $V(x)$  ab und können einfach berechnet werden, wenn  $V(x)$  nicht zu komplex ist. Die Gesamtwellenfunktion  $\Psi$  des Teilchens im Doppelmuldenpotential kann als lineare Superposition von  $\Psi_a$  und  $\Psi_b$  dargestellt werden:

$$\Psi = a\Psi_a + b\Psi_b \quad , \quad (3.9)$$

dabei sind  $a$  und  $b$  reelle Zahlen, die berechnet werden müssen. Die Energie eines solchen Systems ergibt sich zu

$$E = \frac{\int \Psi^* H \Psi d^3x}{\int \Psi^* \Psi d^3x} = \frac{a^2 H_{aa} + b^2 H_{bb} + 2ab H_{ab}}{a^2 + b^2 + 2abS} \quad , \quad (3.10)$$

mit  $H_{ii} = \int \Psi_i^* H \Psi_i d^3x$ , dem Austauschintegral  $H_{ij} = \int \Psi_i^* H \Psi_j d^3x$  und dem Überlappintegral  $S = \int \Psi_a^* \Psi_b d^3x$ . Zur Berechnung des Grundzustandes findet das so genannte Rayleigh–Ritzsche Variationsverfahren Anwendung, bei dem ausgenutzt wird, dass im Grundzustand  $\Psi$  die Energie  $E$  ihr Minimum hat:  $\delta E / \delta \Psi = 0$ . Bildet man die Ableitungen  $\partial E / \partial a$  und  $\partial E / \partial b$ , hat die Energie  $E$  ihr Minimum für:

$$(H_{aa} - E)(H_{bb} - E) - (H_{ab} - ES)^2 = 0 \quad . \quad (3.11)$$

Nimmt man nun an, dass das Überlappintegral  $S$  sehr klein ist, das heißt zum Beispiel, die Potentialmulden sind ausreichend weit voneinander entfernt, so kann man  $S$  vernachlässigen. Wird der Energienullpunkt in die Mitte der beiden Grundzustände gelegt, ergibt sich  $H_{aa} = (\hbar\Omega + \Delta)/2$  und  $H_{bb} = (\hbar\Omega - \Delta)/2$ . Der Grundzustand spaltet in zwei Energieniveaus auf

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} \left( \hbar\Omega \pm \sqrt{\Delta^2 + 4H_{ab}^2} \right) \quad (3.12)$$

und die Energiedifferenz zwischen den beiden Niveaus beträgt

$$E = E_+ - E_- = \sqrt{\Delta^2 + 4H_{ab}^2} \quad . \quad (3.13)$$

Der Wert des Austauschintegrals  $H_{ab}$  hängt unter anderem davon ab, welche Form man für die Potenzialbarriere annimmt. Man berechnet  $H_{ab}$  mit Hilfe der Störungstheorie 1. Ordnung und erhält

$$H_{ab} = -\Delta_0/2 \quad \text{mit} \quad \Delta_0 = \hbar\Omega e^{-\lambda} \quad . \quad (3.14)$$

Die Größe  $\Delta_0$  bezeichnet man als Tunnelaufspaltung und die Größe  $\lambda$  als Tunnelparameter, der im Wesentlichen durch die Masse  $m$  des tunnelnden Teilchens und das Potenzial  $V(x)$  gegeben ist. Berechnet man den Tunnelparameter mit Hilfe der so genannten WKB-Methode<sup>7</sup>, so erhält man näherungsweise

$$\lambda \approx \frac{d}{2\hbar} \sqrt{2mV} \quad . \quad (3.15)$$

Für die Energiedifferenz der beiden Grundzustände ergibt sich dann nach Gleichung 3.13

$$E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2} \quad . \quad (3.16)$$

Der Gesamthamiltonian in der Basis  $\{\Psi_a, \Psi_b\}$  lautet

$$H_0 = \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \quad . \quad (3.17)$$

Da die Teilchen Tunnelbewegungen ausführen, ist die eigentlich orthogonale Darstellung die Energiedarstellung. Diese erhält man durch Diagonalisieren des Hamilton-Operators:

$$H_0 = \begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix} \quad . \quad (3.18)$$

### 3.3.2.2 Tunnelsysteme in Gläsern

Im weiteren Verlauf werden die Eigenschaften von Tunnelsystemen und Doppelmuldenpotenzialen in Gläsern diskutiert. In diesen existiert eine Vielzahl von Tunnelsystemen, die sich hinsichtlich ihrer Form und ihrer Tunneleigenschaften unterscheiden. Eine wichtige Annahme, die im Standardtunnelmodell gemacht wird, ist, dass der Tunnelparameter  $\lambda$  und die Asymmetrieenergie  $\Delta$  voneinander unabhängig sind und alle Werte, die diese annehmen können, gleichwahrscheinlich sind. Die Verteilung der Parameter nimmt folgende Form an:

$$P(\Delta, \lambda) d\Delta d\lambda = \bar{P} d\Delta d\lambda \quad , \quad (3.19)$$

dabei ist  $\bar{P}$  eine Konstante. Für die weitere Diskussion ist es vorteilhaft, Gleichung 3.19 als Funktion der Energiedifferenz  $E$  auszudrücken:

$$P(E, \lambda) dE d\lambda = \bar{P} \frac{E dE d\lambda}{\sqrt{E^2 - (\hbar\Omega e^{-\lambda})^2}} \quad . \quad (3.20)$$

Integriert man in Gleichung 3.20 über alle Tunnelparameter  $\lambda$ , so erhält man die Zustandsdichte  $D(E)$  der Tunnelsysteme:

$$D_{\text{TS}}(E) = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} P(E, \lambda) d\lambda = \bar{P} \ln \frac{2E}{\Delta_{0,\min}} \quad . \quad (3.21)$$

<sup>7</sup>Die nach den Physikern Wentzel, Kramers und Brillouin benannte, quantenmechanische Näherung liefert eine Lösung der eindimensionalen, stationären Schrödingergleichung. Diese ist nur exakt, wenn die Änderung des Potenzials im Bereich einer Wellenlänge klein ist.

Der Wertebereich des Tunnelparameters  $\lambda$  besitzt eine obere und eine untere Grenze:  $\lambda_{\min} < \lambda < \lambda_{\max}$ . Die untere Grenze erklärt sich dadurch, dass nach Gleichung 3.16 die Energiedifferenz  $E$  der Grundzustände größer sein muss als Tunnelaufspaltung  $\Delta_0$ . Daraus ergibt sich  $\lambda_{\min} = \ln(\hbar\Omega/E)$ . Die obere Grenze  $\lambda_{\max} = \ln(\hbar\Omega/\Delta_{0,\min})$  muss eingeführt werden, damit die Gesamtanzahl der Zustände auf endliche Werte beschränkt bleibt und das Integral konvergiert. Nimmt man an, dass eine wohldefinierte Schwingungsfrequenz  $\Omega$  in den Potenzialmulden existiert, dann bedeutet  $\lambda_{\max}$ , dass es eine minimale Tunnelaufspaltung  $\Delta_{0,\min}$  gibt. Ob diese untere Grenze tatsächlich existiert und wenn ja, welchen Wert sie hat, konnte in Experimenten noch nicht festgestellt werden.

### 3.3.2.3 Streuung von Phononen an Tunnelsystemen

Da Streuprozesse zwischen Phononen und Tunnelsystemen einen erheblichen Einfluss auf die Wärmeleitfähigkeit von Gläsern haben, wird im Folgenden auf die Wechselwirkung zwischen mechanischen Verzerrungen und Tunnelsystemen eingegangen.

Wenn die Atome in der Umgebung eines Tunnelsystems durch äußere Einflüsse gestört werden, dann verändert sich damit das Potenzial des Tunnelsystems. Handelt es sich hierbei um kleine Störungen, dann ändern sich die Asymmetrieenergie  $\Delta$  und die Tunnelaufspaltung  $\Delta_0$  um  $\delta\Delta$  beziehungsweise  $\delta\Delta_0$ . Behandelt man das Problem im Rahmen der Störungstheorie 1. Ordnung, ergibt sich der Gesamthamiltonoperator, der auch die Störung enthält, zu

$$H' = H_0 + H_1 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} + \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta\Delta & -\delta\Delta_0 \\ -\delta\Delta_0 & -\delta\Delta \end{pmatrix} . \quad (3.22)$$

Die Änderung der Tunnelaufspaltung  $\delta\Delta_0$  kann vernachlässigt werden. Die Änderung der Asymmetrieenergie  $\delta\Delta$  kann folgendermaßen ausgedrückt werden:

$$\delta\Delta = 2\gamma\tilde{e} . \quad (3.23)$$

Dabei bezeichnet  $\gamma$  das Deformationspotenzial und  $\tilde{e}$  das Verzerrungsfeld. Der tensorielle Charakter der beiden Größen wird im weiteren Verlauf der Herleitung nicht berücksichtigt; beide Größen werden als Skalare behandelt. Berechnet man den Gesamthamiltonoperator des gestörten Systems in der Basis der Eigenzustände  $\{\Psi_+, \Psi_-\}$  in der Energiedarstellung, dann erhält man

$$H = H_0 + H_1 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix} + \frac{\gamma\tilde{e}}{E} \begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} . \quad (3.24)$$

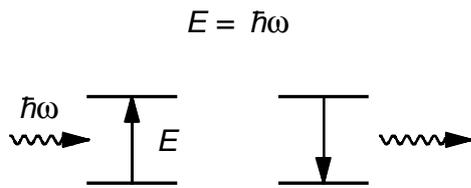
Eine ausführliche Behandlung dieser Problematik findet man in [Jäckle1976].

Im Bereich tiefer Temperaturen, wenn die thermische Energie der Phononen in den Bereich der Energieaufspaltung der Tunnelsysteme kommt, können die Tunnelsysteme durch Absorption oder Emission einzelner Phononen angeregt oder abgeregt werden. Dabei unterscheidet man zwei Prozesse, den so genannten Relaxationsprozess und die resonante Wechselwirkung, die beide im Folgenden besprochen werden.

Eine schematische Darstellung des Relaxationsprozesses oder Ein-Phonon-Prozesses ist in Abbildung 3.19 gezeigt. Dabei bringt ein Phonon das Tunnelsystem aus dem thermischen Gleichgewicht. Bei der Relaxation zurück ins Gleichgewicht wird entweder ein Phonon absorbiert oder emittiert. Mit Hilfe Fermis Goldener Regel, die die Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den beiden Niveaus beschreibt, kann die Relaxationsrate berechnet werden:

$$\tau_{\text{rel}}^{-1} = \left( \frac{\gamma_l^2}{v_l^5} + 2 \frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right) \left( \frac{\Delta_0}{E} \right)^2 \frac{E^3}{2\pi\rho\hbar^4} \coth \frac{E}{2k_B T} \quad . \quad (3.25)$$

In die Berechnung geht ein, dass ein longitudinaler und zwei transversale Phononenzweige existieren. Die Deformationspotenziale der unterschiedlichen Zweige werden mit  $\gamma_l$  und  $\gamma_t$  bezeichnet; die zugehörigen Schallgeschwindigkeiten mit  $v_l$  und  $v_t$ . Die Dichte des Materials ist mit  $\rho$  bezeichnet. Der Fakt, dass die Relaxationsrate proportional zum Faktor  $(\Delta_0/E)^2$  ist, bedeutet, dass diese für Tunnelsysteme, deren Asymmetrieenergie  $\Delta$  Null ist, maximal wird. Das heisst, je größer die Asymmetrieenergie ist, desto langsamer ist die Relaxation.

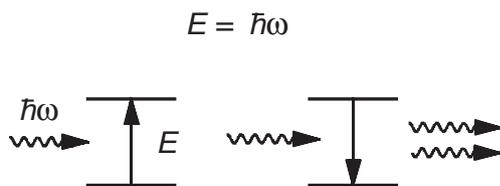


**Abb. 3.19:** Schematische Darstellung des Ein-Phonon-Prozesses. Ein thermisches Phonon wird absorbiert und das Tunnelsystem wird dadurch angeregt. Bei dem Übergang in den Grundzustand wird das Phonon wieder emittiert.

Die eben beschriebene Relaxationsprozess ist für Wärmeleitfähigkeitsmessungen an Gläsern von großer praktischer Bedeutung. Die Probe benötigt ausreichend Zeit, um ins thermische Gleichgewicht zu relaxieren, bevor eine Messung durchgeführt werden kann.

In Abbildung 3.20 ist eine schematische Darstellung eines resonanten Prozesses zwischen einem Phonon und einem Tunnelsystem gezeigt. Dabei wird ein Phonon, das die Energie  $E = \hbar\omega$  hat, von einem Tunnelsystem absorbiert und anschließend durch stimulierte Emission zusammen mit einem weiteren Phonon emittiert. Man erhält für die Absorptionswahrscheinlichkeit eines Phonons folgenden Zusammenhang

$$\tau_{\alpha,\text{res}}^{-1} = \frac{\gamma_\alpha^2 D_0}{\rho v_\alpha^2} \pi \omega \tanh \frac{\hbar\omega}{2k_B T} \quad . \quad (3.26)$$



**Abb. 3.20:** Schematische Darstellung der resonanten Wechselwirkung von Phononen und Tunnelsystemen. Zunächst wird das Tunnelsystem durch Absorption eines Phonons angeregt. Bei dem Übergang in den Grundzustand wird neben dem einfallenden Phonon zusätzlich ein stimulierte emittiert.

In dieser Gleichung wurde die Zustandsdichte  $D(E)$  mit einer Konstanten  $D_0$  angenähert. Dies ist möglich, da die Zustandsdichte nur eine schwache, logarithmische Energieabhängigkeit besitzt (siehe Gleichung 3.21). Der Index  $\alpha$  kennzeichnet die unterschiedlichen Polarisationen der Phononen. Da der Anteil der Tunnelsysteme, der sich im Grundzustand befindet und angeregt werden kann, mit abnehmender Temperatur zunimmt, steigt die Absorptionswahrscheinlichkeit mit abnehmender Temperatur.

### 3.3.3 Vorhersagen des Standardtunnelmodells

In diesem Unterkapitel werden die Vorhersagen des Standardtunnelmodells, wie sie sich für die spezifische Wärme und die Wärmeleitfähigkeit von Gläsern ableiten lassen, vorgestellt.

Da für diese Herleitungen die Besetzungszahl  $f_{\text{TS}}(E)$  der Tunnelsysteme benötigt wird, wird diese zunächst in einem Einschub berechnet. Die Zustandssumme eines kanonischen Ensembles lautet

$$Z(T) = \sum_r e^{-E_r/k_B T} \quad . \quad (3.27)$$

Für ein Ensemble, das aus identischen Zweiniveausystemen mit den Energieniveaus  $E_{\pm} = \pm \frac{1}{2}E$  besteht, ergibt sich die Zustandssumme zu

$$Z = e^{-E_+/k_B T} + e^{-E_-/k_B T} \quad . \quad (3.28)$$

Die Besetzungswahrscheinlichkeit der beiden Energieniveaus berechnet sich zu

$$p(E_{\pm}) = \frac{1}{Z} e^{-E_{\pm}/k_B T} \quad . \quad (3.29)$$

Aus diesem Zusammenhang folgt, dass die mittlere Besetzungszahl des angeregten Niveaus mit der Energie  $E_+ = E/2$

$$f_{\text{TS}}(E) = p\left(+\frac{1}{2}E\right) = \frac{1}{e^{E/k_B T} + 1} \quad (3.30)$$

ist. Daraus ergibt sich die durchschnittliche Besetzungszahldifferenz zu:

$$\Delta p = p(E_-) - p(E_+) = \frac{e^{E/2k_B T} - e^{-E/2k_B T}}{e^{E/2k_B T} + e^{-E/2k_B T}} = \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \quad . \quad (3.31)$$

Im weiteren Verlauf werden die Vorhersagen des Standardtunnelmodells für Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit von Gläsern bei tiefen Temperaturen hergeleitet.

#### 3.3.3.1 Wärmekapazität

Zusätzlich zu der Wärmekapazität der Phononen trägt auch die Wärmekapazität der Tunnelsysteme zu der Gesamtwärmekapazität eines Glases bei. Der Beitrag der Tunnelsysteme wird im Folgenden im Rahmen des Standardtunnelmodells abgeleitet.

Aus der Thermodynamik ist bekannt, dass die spezifische Wärme  $C_V$  eines kanonischen Ensembles bei konstantem Volumen allgemein durch die partielle Ableitung der inneren Energie  $U$  nach der Temperatur  $T$  definiert ist:

$$C_V = \frac{\partial U}{\partial T} \quad . \quad (3.32)$$

Die innere Energie der Tunnelsysteme ist gegeben durch

$$U_{\text{TS}} = \int_0^{\infty} E D_{\text{TS}}(E) f_{\text{TS}}(E) dE \quad , \quad (3.33)$$

dabei ist  $D_{\text{TS}}$  die Zustandsdichte der Tunnelsysteme aus Gleichung 3.21, die, wie bereits im vorherigen Abschnitt diskutiert wurde, aufgrund der schwach logarithmischen Energieabhängigkeit mit einer konstanten Zustandsdichte  $D_0$  angenähert werden kann. Die Besetzungszahl  $f_{\text{TS}}$  ist die eben eingeführte Besetzungszahl eines Zweiniveausystems. Setzt man diese Größen in Gleichung 3.33 ein und leitet den Ausdruck nach der Temperatur ab, so erhält man für die spezifische Wärme der Tunnelsysteme:

$$C_{\text{TS}}(T) = k_{\text{B}}^2 D_0 T \int_0^{\infty} \frac{x^2 e^x}{(e^x + 1)^2} dx \quad . \quad (3.34)$$

Dabei ist die Variable  $x = E/k_{\text{B}}T$ . Das Intergral hat den Wert  $\pi/6$ . Die spezifische Wärme der Tunnelsysteme besitzt also eine lineare Temperaturabhängigkeit:

$$C_{\text{TS}} = \frac{\pi}{6} k_{\text{B}}^2 D_0 T \quad . \quad (3.35)$$

Die Vorhersage des Standardtunnelmodells, dass die Tunnelsysteme einen linearen Beitrag zur spezifischen Wärme liefern, stimmt gut mit dem in Kapitel 3.3.1 besprochenen quasi linearen Anteil in  $C_{\text{extra}}$  (siehe Gleichung 3.6) überein.

Grundsätzlich ist bei der Interpretation von Wärmekapazitätsmessungen folgendes zu beachten: Zum Ergebnis einer Wärmekapazitätsmessung tragen nur diejenigen Tunnelsysteme bei, deren Relaxationszeit innerhalb des Messintervalls liegt. Auf diese Weise kommt es zu einer scheinbaren Zeitabhängigkeit der Wärmekapazität [Black1978]:

$$C_{\text{TS}}(T, t) \approx \frac{\pi^2}{12} k_{\text{B}}^2 T D_0 \ln(66, 24AT^3t), \quad \text{mit} \quad A = \frac{1}{2\pi\rho\hbar^4} \left( \frac{\gamma_l^2}{v_l^5} + 2\frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right) \quad . \quad (3.36)$$

Man erhält also zunächst eine logarithmische Zeitabhängigkeit der spezifischen Wärme. Es konnte jedoch gezeigt werden, dass eine Beschreibung von Wärmekapazitätsmessungen im Rahmen feldtheoretischer Betrachtungen eine nicht zeitabhängige spezifische Wärme liefert [Strehlow1999].

### 3.3.3.2 Wärmeleitfähigkeit

Der Wärmetransport in Gläsern wird auch bei Temperaturen unter 20 K von Phononen getragen [Zaitlin1975]. Daher kann man die Wärmeleitfähigkeit  $\kappa$  von Gläsern im Rahmen des Phononengases beschreiben (siehe Abschnitt 3.3.1). In Anlehnung an Gleichung 3.7 gilt für Phononen:

$$\kappa(T) = \frac{1}{3} \sum_{\alpha} \int_0^{\omega_D} C_{\alpha}(\omega) l_{\alpha}(\omega) v_{\alpha}(\omega) d\omega \quad . \quad (3.37)$$

Dabei ist  $\omega_D = k_B \Theta_D / \hbar$  die so genannte Debye–Frequenz eines Glases, die sich aus der Debye–Temperatur  $\Theta_D$  des jeweiligen Materials berechnet. Die Größe  $C_{\alpha}(\omega)$  ist die spektrale spezifische Wärme der Phononen mit der Polarisation  $\alpha$  und der Energie  $\hbar\omega$ . Die mittlere freie Weglänge dieser Phononen ist mit  $l_{\alpha}(\omega)$  und deren Schallgeschwindigkeit mit  $v_{\alpha}(\omega)$  bezeichnet.

Zur Bestimmung der spektralen spezifischen Wärme  $C_{\alpha}(\omega)$  nach Gleichung 3.32 und 3.33 setzt man die Debysche Näherung für die Zustandsdichte der Phononen ein

$$D_{\alpha,\text{ph}}(\omega) = \frac{\omega^2}{2\pi^2} \frac{1}{v_{\alpha}^3} \quad (3.38)$$

und nutzt weiter aus, dass auf die Verteilung der Phononen die Bose–Einstein–Statistik angewendet werden kann. Auf diese Weise erhält man für die spektrale, spezifische Wärme:

$$C_{\alpha}(\omega) = \hbar\omega D_{\alpha,\text{ph}}(\omega) \frac{df_{\text{ph}}(\omega)}{dT} = \frac{\omega^2}{2\pi^2} \frac{k_B}{v_{\alpha}^3} \frac{x^2 e^x}{(e^x - 1)^2} \quad . \quad (3.39)$$

Mit Hilfe von Gleichung 3.26 kann man die mittlere freie Weglänge bestimmen und es ergibt sich:

$$l_{\alpha}^{-1}(\omega) = \frac{\tau_{\alpha,\text{res}}^{-1}}{v_{\alpha}} = \frac{\gamma_{\alpha}^2 D_0}{\rho v_{\alpha}^3} \pi \omega \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \quad . \quad (3.40)$$

Dabei kann man die Schallgeschwindigkeit  $v_{\alpha}$  als konstant ansetzen, da nach [Classen2000] bei tiefen Temperaturen  $\delta v_{\alpha}/v_{\alpha}$  kleiner als 1 % ist.

Zur Lösung des Integrals in Gleichung 3.37 wird die obere Grenze durch Unendlich ersetzt, da die Phononenenergie bei der Debye–Frequenz  $\hbar\omega_D$  bei tiefen Temperaturen viel größer als die thermische Energie  $k_B T$  ist. Auch wird wieder die bereits in letzten Abschnitt verwendete Substitution  $x = E/k_B T$  eingesetzt. Wenn man die Ergebnisse der Gleichungen 3.39 und 3.40 mit Gleichung 3.37 verknüpft, so ergibt sich für die Wärmeleitfähigkeit  $\kappa$  von Phononen in Gläsern:

$$\kappa(T) = \frac{\rho k_B^3 T^2}{6\pi^3 \hbar^2} \left( \frac{v_l}{D_0 \gamma_l^2} + 2 \frac{v_t}{D_0 \gamma_t^2} \right) \int_0^{\infty} \frac{x^3 e^x (e^x + 1)}{(e^x - 1)^3} dx \quad . \quad (3.41)$$

Für den Wert des Integrals erhält man  $\pi$  und für die Wärmeleitfähigkeit  $\kappa$  folgt daraus

$$\kappa(T) = \frac{\rho k_B^3 T^2}{6\pi^2 \hbar^2} \left( \frac{v_l}{D_0 \gamma_l^2} + 2 \frac{v_t}{D_0 \gamma_t^2} \right) \quad . \quad (3.42)$$

Die Wärmeleitfähigkeit von Phononen in Gläsern weist also eine quadratische Temperaturabhängigkeit auf. Dieses Verhalten entspricht dem in Abschnitt 3.3.1.2 vorgestellten und konnte experimentell bereits sehr gut bis 6 mK verifiziert werden [Zeller1971, Rosenberg2000, Hao2004].

### 3.3.4 Weiterführende Modellvorstellungen

Im Rahmen des Standardtunnelmodells können viele Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen erfolgreich beschrieben werden. Es gibt jedoch auch experimentelle Ergebnisse, die sich nicht im Rahmen des Standardtunnelmodells erklären lassen. Diese Tatsache macht es nötig, sowohl Ergänzungen zum Standardtunnelmodell zu entwickeln als auch neue Wege bei der Beschreibung von Gläsern zu gehen. Bis heute gibt es jedoch noch kein theoretisches Modell, das alle Eigenschaften von Gläsern beschreiben kann.

Eine Auswahl der wichtigsten Messergebnisse, die nicht im Rahmen des Standardtunnelmodells erklärt werden können, wird im nächsten Unterkapitel vorgestellt. Im Anschluss daran werden einige theoretische Modelle und Erweiterungen des Standardtunnelmodells diskutiert.

#### 3.3.4.1 Grenzen des Standardtunnelmodells

Die Tunnelsysteme tragen im Rahmen des Standardtunnelmodells elastische und elektrische Dipole, mit denen sie an die entsprechenden elastischen und elektrischen Felder koppeln können. Daher sind Messungen der elastischen und dielektrischen Eigenschaften gut geeignet, um die Dynamik von Tunnelsystemen zu studieren.

In Messungen der dielektrischen Konstanten von verschiedenen Gläsern wurde eine anderes Steigungsverhältnis (1:1) der Temperaturabhängigkeit der relativen Änderung  $\Delta\epsilon/\epsilon$  unter und über einer bestimmten Übergangstemperatur gefunden als das Standardtunnelmodell (2:1) vorhersagt [Enss1990]. Bei den Messungen aus [Salvino1994, Rogge1996] wurde ein großes elektrisches Feld angelegt und die Langzeitrelaxation der dielektrischen Konstanten gemessen. Dabei zeigte sich, dass die Zustandsdichte der Tunnelsysteme für  $\Delta = 0$  im Nullfeld zu niederenergetischen Anregungen hin abnimmt [Natelson1998]. Die Zustandsdichte weist eine so genannte Dippollücke auf.

In anderen Messungen der dielektrischen Konstanten gab es Hinweise auf kollektive Tunnelprozesse bei sehr tiefen Temperaturen [Strehlow1998]. Bei Experimenten mit der glasartigen Verbindung  $a\text{-BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  zeigten sich Effekte, die auf einen kontinuierlichen Phasenübergang bei 5,84 mK hinweisen. Weiterhin wurden unterhalb dieser Temperatur starke Magnetfeldabhängigkeiten der dielektrischen Konstanten gefunden [Strehlow2000]. Dies ist sehr überraschend, da die untersuchte glasartige Verbindung keine magnetischen Momente enthält. Verunreinigungen konnten als Ursache für diese Magnetfeldabhängigkeiten ausgeschlossen werden.

In Messungen der akustischen Eigenschaften mit Hilfe mechanischer Oszillatoren wurde eine schwächere Temperaturabhängigkeit der inneren Reibung gefunden als diejenige, die

man aufgrund des Standardtunnelmodells erwarten würde [Classen2000, Classen2002]. Die Tatsache, dass die gemessene innere Reibung in diesen Experimenten immer höher liegt als die theoretischen Erwartungen, macht deutlich, dass es bei tiefen Temperaturen Dämpfungsmechanismen geben muss, die nicht mit Ein-Phonon-Prozessen erklärbar sind.

Eine weitere Technik, die es erlaubt, die Dynamik von Tunnelsystemen bei tiefen Temperaturen zu studieren, ist die Messung von so genannten Zwei-Puls-Echos. Dabei handelt es sich um das elektrische Analogon zu spontanen Echos in Magnetresonanz-Experimenten (NMR-Experimenten). Bei solchen Experimenten beispielsweise an BK-7 oder  $\text{SiO}_2$  und Defektkristallen zeigte sich ein schnellerer Zerfall der spontanen Polarisationsechos als erwartet (zum Beispiel in [Golding1976, Bernard1978, Schickfus1978, Enss1996, Ludwig2000]). Dies bedeutet, dass es in Gläsern nicht bekannte, phasenerstörende Prozesse geben muss.

Einen genaueren Überblick über die Ergebnisse dieser Experimente findet man in [Enss2002].

Ein neuer Aspekt in der Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen wurde ebenfalls in den bereits erwähnten Zwei-Puls-Echoexperimenten in Gläsern gefunden. Dabei zeigte die Echoamplitude bei den Untersuchungen von dielektrischen Gläsern, die per se keine magnetischen Momente enthalten, eine starke Magnetfeldabhängigkeit [Ludwig2003]. Es konnte gezeigt werden, dass diese überraschende Magnetfeldabhängigkeit auf die Kernquadrupolmomente der Tunnelsysteme in den Gläsern zurückzuführen ist [Würger2002, Würger2004a, Parshin2004]. In Experimenten mit Gläsern, in denen gezielt die Konzentration der Kernquadrupolmomente durch Isotopenaustausch variiert wurde, konnte dieser Effekt genutzt werden, um die mikroskopische Natur der Tunnelsysteme zu studieren [Nagel2004].

Erste Hinweise darauf, dass Wechselwirkungen zwischen Tunnelsystemen bei tiefen Temperaturen eine wichtige Rolle spielen, gab es bereits 1975 in akustischen Lochbrennexperimenten [Arnold1975]. In diesen Experimenten fand man zusätzlich zur natürlichen Linienbreite eine starke Verbreiterung des angeregten Zustands. Dies führte man auf einen Prozess zurück, der in der Literatur als spektrale Diffusion zu finden ist [Black1977]. Tunnelsysteme, die eine Energieaufspaltung, die kleiner als  $2k_B T$  ist, besitzen, führen kontinuierlich thermisch aktivierte Übergänge zwischen den Energieniveaus aus. Dies führt dazu, dass die elektrischen und elastischen Feldern in deren Umgebung fluktuieren. Diese fluktuierenden Felder beeinflussen wiederum die Energieaufspaltungen der benachbarten Tunnelsysteme. Diese beginnen ihrerseits zu fluktuieren. Dieser Effekt führt insgesamt zu einer Linienverbreiterung. Die Energieaufspaltung eines Tunnelsystems ist also nicht wohldefiniert.

Alle diese Experimente weisen darauf hin, dass es bei tiefen Temperaturen Prozesse in Gläsern geben muss, die nicht mit dem Standardtunnelmodell erklärt werden können. Da der Ein-Phonon-Prozess, der bei Temperaturen unterhalb von 1 K dominant ist, zu tieferen Temperaturen nach und nach unterdrückt wird, könnten Wechselwirkungen zwischen den Tunnelsystemen an Bedeutung gewinnen. Wechselwirkungen dieser Art sind nicht im

Standardtunnelmodell berücksichtigt.

Auch bei höheren Temperaturen im Bereich einiger Kelvin sind manche Eigenschaften von Gläsern noch unverstanden. Die Wärmekapazität in Gläsern ist größer als die, die man von dem Debye–Modell erwartet. Trägt man  $C(T)/T^3$  gegenüber der Temperatur  $T$  auf, so erhält man ein charakteristisches Maximum, das nicht im Rahmen des Standardtunnelmodells erklärt werden kann. In der Wärmeleitfähigkeit zeigt sich gerade in diesem Temperaturbereich um etwa 10 K, in dem das Maximum auftritt, ein Plateau, das nicht im Rahmen einer konstanten Zustandsdichte in Gläsern erklärt werden kann. Untersucht man die Zustandsdichte der Gläser  $g(\omega)$  und trägt sie in der Form  $g(\omega)/\omega^2$  als Funktion von  $\omega$  auf, so erhält man ebenfalls ein zunächst nicht erklärbares Maximum in der Zustandsdichte, den so genannten Boson–Peak. Der Boson–Peak wurde in allen untersuchten Gläsern gefunden.

### 3.3.4.2 Theoretische Modelle

In diesem Abschnitt werden einige ausgewählte theoretische Modelle vorgestellt, im Rahmen derer versucht wird, die eben vorgestellten experimentellen Ergebnisse zu erklären. Die hier getroffene Auswahl stellt keinen Anspruch auf Vollständigkeit; in der Literatur findet man viele Ansätze, die sich mit dem Thema beschäftigen.

Ein Modell, mit dem die experimentellen Ergebnisse der Messungen der dielektrischen Konstanten und der inneren Reibung beschrieben werden können, ist das so genannte Dipollücken–Modell [Burin1995]. Darin wird angenommen, dass Paare von Tunnelsystemen resonant wechselwirken. Eines der beiden Tunnelsysteme befindet dabei sich im angeregten Zustand. Die Relaxationsrate dieses Prozesses wird unterhalb einer bestimmten Übergangstemperatur  $T^*$  größer als die Relaxationsrate des Ein–Phonon–Prozesses und damit bestimmt diese Paarwechselwirkung die dielektrischen und akustischen Eigenschaften der amorphen Festkörper in diesem Temperaturbereich. In der Literatur findet man eine Abschätzung der Übergangstemperatur zu  $T^* \cong 0,6 \text{ mK}$  für amorphes  $\text{SiO}_2$  [Classen2000].

Ein weiteres Modell, das entwickelt wurde, um die besonderen Eigenschaften der Gläser zu erklären, ist das so genannte Soft–Potential–Modell [Karpov1983]. In diesem Modell werden sowohl Doppelmuldenpotenzialen als auch weiche harmonische Einfachpotenziale („soft potentials“) in die Betrachtungen mit aufgenommen. Letztere spielen vor allem bei höheren Temperaturen ( $T > 1 \text{ K}$ ) eine tragende Rolle. Im Grenzfall für tiefe Temperaturen erhält man mit diesem Ansatz das Standardtunnelmodell. Im Rahmen dieses Modells kann man die universellen Eigenschaften der Gläser verstehen [Parshin1993, Parshin1994]. Die elastische Wechselwirkung zwischen den weichen Potenzialen führt zu einer Zustandsdichte der niederenergetischen Anregungen, die nicht von der Konzentration der Defekte in Gläsern abhängt. Daher spielt der jeweilige Typ des Glases keine Rolle für die Eigenschaften, die das Glas hat. Eine Erweiterung dieses Modells geht von quasi–lokalisierten Schwingungsmoden in Gläsern aus, die elastisch wechselwirken können [Gurevich2003]. Wird das System aufgrund der Wechselwirkung instabil, wird es durch die Anharmonie-

zität wieder stabilisiert. In diesem Modell wird der Verlauf der Zustandsdichte  $g(\omega)/\omega^2$  korrekt wiedergegeben.

Mit dem Ursprung des Boson–Peaks und der Erklärung des Plateaus in der Wärmeleitfähigkeit beschäftigt sich [Schirmacher2007]. Dieses Modell basiert auf der Vorstellung, dass die Unordnung in Gläsern zu mikroskopischen, zufälligen Fluktuationen der transversalen, elastischen Konstanten (dem Scher–Modul) führt. Die zusätzlichen Zustände in der Zustandsdichte haben in diesem Modell ihren Ursprung in einem Band von irregulären Schwingungszuständen, das durch die Unordnung entsteht. Mit wachsender Unordnung tritt dieses Band bei immer tieferen Frequenzen auf. Im Rahmen dieses Modells kann eine Theorie für die Energiediffusion entwickelt werden, die das Plateau in der Wärmeleitfähigkeit und dessen Verknüpfung mit der Zustandsdichte erklärt.

In [Kühn2003] wird ein Ansatz beschrieben, auf theoretischer Basis ein Modellglas zu bilden. In diesem Modell nimmt man für das Glas einen Hamiltonoperator  $H = \sum \frac{p_i^2}{2m} + U_{\text{int}}(u_i)$  an. Das Potenzial  $U_{\text{int}}$  besitzt die Form

$$U_{\text{int}} = \frac{1}{4} \sum J_{ij}(u_i - u_j)^2 + \frac{g}{2N} \sum (u_i - u_j)^4 \quad . \quad (3.43)$$

Dabei beschreiben die  $u_i$  die Abweichungen der Teilchenkoordinaten von Referenzpositionen. Der erste Term repräsentiert harmonische, gaußverteilte Zufallspotenziale. Diese Summe enthält Doppel- und Einzelmuldenpotenziale. Der zweite, anharmonische Term dient zur Stabilisierung des Systems. Im Gegensatz zum Standardtunnelmodell sind die Parameter Asymmetrieenergie  $\Delta$  und Tunnelparameter  $\lambda$  voneinander abhängig. Sie besitzen jedoch weiterhin eine breite Verteilung. Im Rahmen dieses Modells können sowohl die Tieftemperaturanomalien der Gläser als auch die Universalität ihrer Eigenschaften erklärt werden. Die Universalität ergibt sich als intrinsische Eigenschaft der Potenziallandschaft, die auf der Gaußverteilung der zufälligen Potenziale beruht. Dieses Modell hat jedoch nicht den Anspruch, eine mikroskopisch richtige Beschreibung von Gläsern zu liefern. Die Argumentation geht dahin, dass jedes Modell eines wechselwirkenden Vielteilchensystems, das eine Glasphase bildet und die Eigenschaften bei tiefen Temperaturen richtig reproduziert, benutzt werden kann, um Gläser zu beschreiben. Die mikroskopischen Details fallen dann nicht mehr ins Gewicht.

### 3.3.4.3 Nicht–phononischer Transportkanal für Wärme

Dieser Abschnitt wird sich näher mit den Auswirkungen der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen auf den Wärmetransport beschäftigen. Wärmetransport aufgrund einer Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen wurde erstmals bei Untersuchungen des Defektkristalls KBr:CN gefunden [Yu1985]. In diesem Kristall bilden die Zyanid–Ionen die Tunnelsysteme, die eine Tunnelaufspaltung im Bereich von 1 K und eine starke elastische Wechselwirkung haben. Die Konzentration der Defekte kann gezielt variiert werden und kann so gewählt werden, dass es für jedes Tunnelsystem ausreichend viele resonante Nachbarn gibt, die gemeinsam aufgrund eines neuen Mechanismus einen Kanal für Wärmetransport bilden können. Der Wärme wird dabei durch so genannte Flip–Flop–Prozesse

transportiert: Kehrt ein angeregtes Tunnelsystem in den Grundzustand zurück, so wird mit der dabei freiwerdenden Energie ein benachbartes Tunnelsystem in den angeregten Zustand versetzt. In einer genauen Betrachtung konnte ein numerischer Wert für den Wärmeleitfähigkeitskoeffizienten berechnet werden. Dieser stimmt sehr gut mit dem experimentellen Ergebnis überein. Dieser Ansatz kann jedoch nicht auf alle amorphen Festkörper übertragen werden, da in vielen Gläsern die Dichte der Tunnelsysteme sehr viel kleiner ist. Die Wahrscheinlichkeit, dass eine ausreichende Anzahl resonanter Nachbarn existiert, um einen Transportkanal aufzubauen, ist dann gering.

Im Rahmen des Dipollücken-Modells wird ebenfalls ein phononenloser Wärmetransportkanal in amorphen Festkörpern, der auf der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen beruht, vorhergesagt [Burin1989]. Die Temperaturabhängigkeit dieses Wärmetransportmechanismus ist  $\kappa_{\text{TS}} \propto T^{4/3}$ . Die Temperatur  $T^*$ , bei der der Beitrag dieses neuen Mechanismus in den Bereich der Größe der Wärmeleitfähigkeit durch Phononen in dielektrischen Gläsern kommt, liegt weit unter 1 mK [Kagan2000].

In einer Erweiterung des Dipollücken-Modells wurde die Wahrscheinlichkeit eines solchen Wärmetransportkanals aufgrund resonant wechselwirkender Tunnelsysteme untersucht [Würger2004b]. Nur unter der Voraussetzung, dass sich wenigstens ein makroskopischer Kanal aus resonanten Tunnelsystemen in der Probe bildet, kann Wärmetransport stattfinden. Da die Tunnelparameter breit verteilt sind, besitzt die Existenz eines solchen Transportkanals eine gewisse Wahrscheinlichkeit, die im folgenden nach [Würger2004b] hergeleitet wird. Die Wahrscheinlichkeit  $P(r)$  zu einem bestimmten Tunnelsystem mit der Energieaufspaltung  $E$  innerhalb einer Kugelschale mit Radius  $r$  und Dicke  $dr$  einen resonanten Partner mit der Energieaufspaltung  $E'$  zu finden, der der Bedingung  $|E - E'| \leq J$  genügt, ist gegeben durch

$$P(r)dr = 8\pi P_0 u \frac{dr}{r} \quad . \quad (3.44)$$

Die Konstante  $u$

$$u = \frac{\gamma^2}{\rho v^2} \quad (3.45)$$

hängt vom Deformationspotenzial  $\gamma$ , der Dichte  $\rho$  und der Schallgeschwindigkeit  $v$  ab. Die absolute Wahrscheinlichkeit innerhalb des Intervalls  $r_{\min} \leq r \leq r_{\max}$  erhält man durch Integration über  $r$

$$P = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} P(r)dr = 8\pi P_0 u \ln \frac{r_{\max}}{r_{\min}} \quad . \quad (3.46)$$

Da sowohl die Energieaufspaltung  $E$  als auch die Wechselwirkung  $J$  kleiner als die thermische Energie  $k_B T$  sind, ist die untere Grenze  $r_{\min}$  festgelegt. Die Wechselwirkung der elastischen Quadrupolmomente  $J_{ij}$  ist durch

$$J_{ij} = \frac{u}{r^3} \quad (3.47)$$

gegeben. Mit Hilfe von Gleichung 3.47 erhält man die Bedingung:

$$r_{\min} = \left( \frac{u}{k_{\text{B}}T} \right)^{1/3} . \quad (3.48)$$

Die obere Grenze  $r_{\max}$  ergibt sich aus der Tatsache, dass der hier besprochene Prozess schneller sein muss als die Relaxation des Ein-Phonon-Prozesses aus Gleichung 3.25. Wenn man für die Energieaufspaltung die thermische Energie  $k_{\text{B}}T$  ansetzt, so ergibt sich für die obere Grenze folgendes:

$$r_{\max} = \left( \frac{u\tau_{\text{rel}}}{\hbar} \right)^{1/3} . \quad (3.49)$$

Die Wahrscheinlichkeit, dass zwei resonante Tunnelsysteme ausreichend nahe sind, liegt bei einer Temperatur von 15 mK in der Größenordnung einiger Prozent. Daraus kann man folgern, dass Wärmetransport aufgrund makroskopischer Transportkanäle, die aus resonanten Tunnelsysteme bestehen, nicht möglich ist. Bezieht man in die Betrachtungen jedoch das Phänomen der spektralen Diffusion, die bereits im vorangegangenen Abschnitt eingeführt wurde, ein, so wird die strenge Resonanzbedingung aufgeweicht. Ein Tunnelsystem kann mit seinen vielen nicht-resonanten Nachbarn wechselwirken, denn die Bandbreite  $\hbar\Delta\omega$  kann um einiges breiter sein, als es die Resonanzbedingung erlaubt. Die Wahrscheinlichkeit, dass sich ein Transportkanal für Wärme öffnet, steigt an.

Abbildung 3.21 zeigt, wie sich ein solcher Transportkanal ausbilden kann. In den oberen drei Bildern sind zu unterschiedlichen Zeiten  $t_1$ ,  $t_2$  und  $t_3$  verschiedene resonante Tunnelsysteme gezeigt. Die Tunnelsysteme sind durch graue Punkte dargestellt und die schwarzen Linien deuten die resonanten Paare an. Im unteren Bild symbolisiert die durchgezogene schwarze Linie einen Transportkanal, wie er sich öffnen könnte.

Die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit, die durch diese eben diskutierten Prozesse entsteht, berechnet sich nun wie folgt:

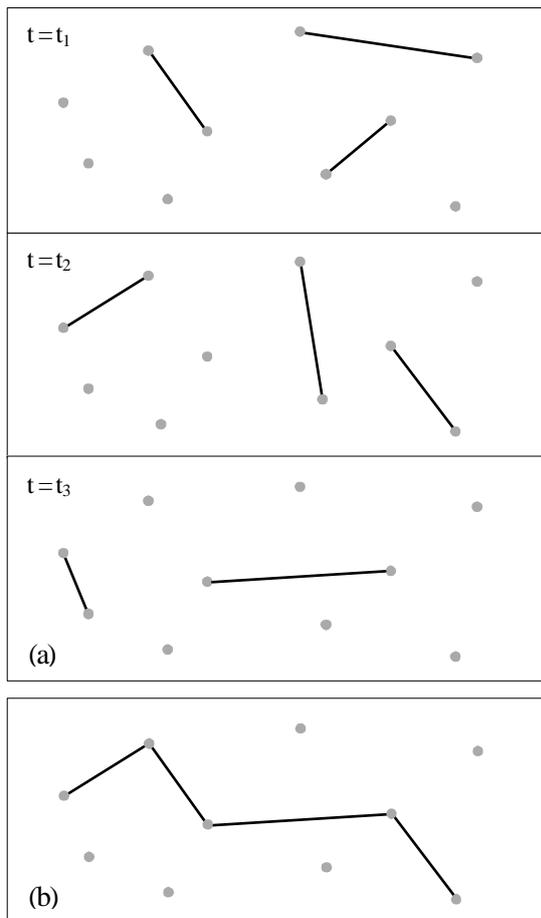
$$\kappa_{\text{TS}} = \frac{1}{2} C_{\text{TS}} \langle vr \rangle , \quad (3.50)$$

wobei  $C_{\text{TS}} = \frac{\pi^2}{3} k_{\text{B}}^2 P_0 T$  die spezifische Wärme der Tunnelsysteme ist. Die Wärme wird mit der Geschwindigkeit  $v = rJ/\hbar$  transportiert. Somit folgt für  $\langle vr \rangle = u/\hbar \langle r^{-1} \rangle$ . Wenn man über alle Transportwege, die durch resonante Tunelsysteme entstehen können, mittelt, so ergibt sich folgende Temperaturabhängigkeit deren Beitrags zur Wärmeleitfähigkeit:

$$\kappa_{\text{TS}} \propto T^{4/3} . \quad (3.51)$$

Im Prinzip setzt sich das Potenzgesetz zusammen aus der Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme ( $C \propto T$ ) und dem Langzeitlimit der spektralen Diffusion ( $\Delta\omega \propto T$ ) [Black1977]. Das Ergebnis stimmt mit dem aus dem Dipollücken-Modell überein [Burin1989].

Benutzt man die bekannten Kopplungskonstanten, so sollte die Wärmeleitfähigkeit  $\kappa_{\text{TS}}$ , die durch die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen zustande kommt, in der



**Abb. 3.21:** Bildung eines resonanten Clusters durch spektrale Diffusion. Teil (a): Die grauen Kreise kennzeichnen Tunnelsysteme. Die schwarzen Linien beschreiben resonante Paare, die bei drei verschiedenen Zeiten  $t_1$ ,  $t_2$  und  $t_3$  auftreten. Teil (b): Die durchgezogene Linie zeigt den resultierenden makroskopischen Transportkanal (nach [Würger2004b]).

Größenordnung von etwa  $10^{-10}$  W/Km liegen. Damit ist sie bei  $T = 10$  mK vier Größenordnungen kleiner als beispielsweise der gemessene Wert der Gesamtwärmeleitfähigkeit für BK-7 Glas von  $\kappa \approx 5 \cdot 10^{-6}$  W/Km [Rosenberg2000].

Die Grundidee im Rahmen dieser Arbeit war nun anhand von Messungen, den in verschiedenen Modellen vorhergesagten Transportkanal für Wärme, der durch die Wechselwirkung resonanter Tunnelsysteme entsteht, sichtbar zu machen. Messungen der Wärmeleitfähigkeit an Glasproben aus Vollmaterial konnten wie erwartet im zugänglichen Temperaturbereich bis hinunter zu 10 mK jedoch keine Abweichungen von der Vorhersagen des Standardtunnelmodells ( $\kappa \propto T^2$ ) feststellen. Um in diesem Temperaturbereich den vermuteten, zusätzlichen Transportkanal sichtbar zu machen, sind solche Glasproben also nicht geeignet, da der Beitrag zur Wärmeleitung durch Phononen dominant ist. Verwendet man im Gegensatz zu Proben aus Vollmaterial poröse Glasproben, so kann dieser Beitrag signifikant reduziert werden und der neue Transportkanal kann möglicherweise bereits bei Temperaturen oberhalb von 10 mK in den Messungen zu Tage treten. Im nächsten Abschnitt werden die thermischen Eigenschaften poröser Glasproben diskutiert.

### 3.3.5 Besonderheiten der Wärmeleitfähigkeit poröser Glasproben

Im Rahmen der Diskussion der Besonderheiten poröser Glasproben werden hier poröse Gläser wie Vycor<sup>8</sup> oder Aerogele<sup>9</sup> auf Silikatbasis nicht mit eingeschlossen, da deren Art von Porosität einerseits auf einer unregelmäßigen Struktur der Löcher basiert, andererseits die Größe der Löcher nicht im richtigen Bereich liegt, um eine eine signifikante Reduktion der phononischen Wärmeleitfähigkeit möglich zu machen. In Untersuchungen der thermischen Eigenschaften, der Schallgeschwindigkeit und der inneren Reibung verschiedener poröser Gläser (Vycor, Solgel und Aerogele mit unterschiedlichen Porositäten) konnte gezeigt werden, dass diese trotz der zum Teil sehr hohen Porosität ebenfalls das in den vorherigen Kapiteln ausführlich besprochene Verhalten, das typisch ist für Gläser, zeigen [Watson2003]. In diesen Gläsern traten keine Effekte auf, die darauf hindeuten, dass ein zusätzlicher Transportmechanismus in der Wärmeleitfähigkeit Wirkung zeigt.

Vielversprechendere Proben sind Gläser mit regelmäßig angeordneten, größeren Löchern, deren Wärmeleitfähigkeit bereits bis 100 mK untersucht wurde [Zaitlin1975]. Die Löcher in den Proben dienen als zusätzliche Streuzentren für Phononen. So kann der Beitrag der Phononen zur Wärmeleitfähigkeit minimiert werden. Eine Übersicht der Proben aus [Zaitlin1975] findet man in Tabelle 3.1.

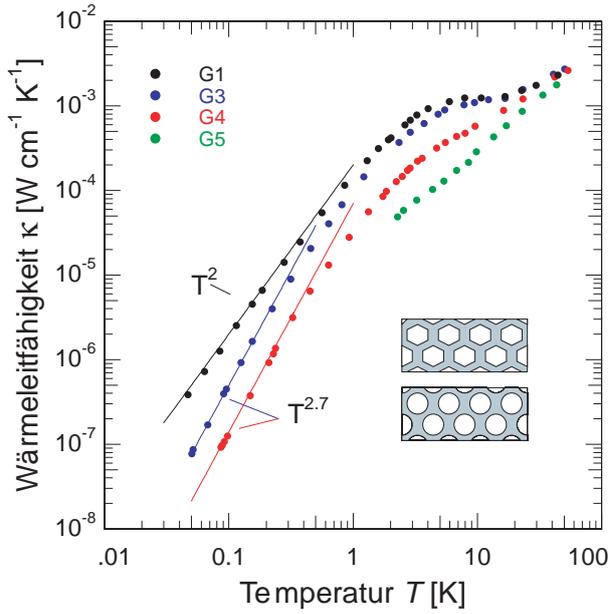
| Probe | Lochdurchmesser<br>$d$ [ $\mu\text{m}$ ] | Lochdichte<br>$n$ [ $10^{-2}\mu\text{m}$ ] | Porosität<br>$r$ | mittl. freie Weglänge<br>$l_L$ [ $\mu\text{m}$ ] | Dicke<br>$b$ [ $\mu\text{m}$ ] |
|-------|--|--|------------------|--|--------------------------------|
| G1    | 0  | 0  | 0                | ...  | 280                            |
| G3    | 21,9                                     | 0,157                                      | 0,590            | 21,8   | 265                            |
| G4    | 5,35                                     | 2,71                                       | 0,609            | 5,18   | 256                            |
| G5    | 2,11                                     | 16,2                                       | 0,565            | 2,20   | 237                            |

**Tab. 3.1:** Materialparameter der vermessenen Glasproben nach [Zaitlin1975]: Lochdurchmesser  $d$ , Lochdichte  $n$ , Porosität  $r$ , mittlere freie Weglänge aufgrund der Löcher  $l_L$ , Dicke der Probe  $b$ .

In Abbildung 3.22 ist die Wärmeleitfähigkeit der verschiedenen Proben gegenüber der Temperatur aufgetragen. Dabei zeigt die Glasprobe ohne Löcher das typische Verhalten für ein Glas: Ein Plateau bei etwa 10 K und darunter eine Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit  $\kappa \propto T^2$ . Zum besseren Vergleich mit den Wärmeleitfähigkeiten der porösen Glasproben wurden diese in einer Weise skaliert, in der das leere Volumen, das durch die Löcher entsteht, herausgerechnet wurde. Die Proben mit den Löchern, die eine hexagonale Anordnung besitzen, haben nicht nur einen reduzierten Absolutwert der Wärmeleitfähigkeit, sondern die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit folgt auch nicht mehr einer  $T^2$ -Abhängigkeit. Es zeigt sich stattdessen eine näherungsweise  $T^3$ -Abhängigkeit unterhalb des Plateaus. Je nachdem mit welchen Datenpunkten die

<sup>8</sup>Vycor ist ein Produkt der Firma Corning. In mehreren Produktionsschritten wird aus einem Alkaliborsilikat-Glas ein poröses Glas gewonnen, das im wesentlichen aus  $\text{SiO}_2$  besteht.

<sup>9</sup>Aerogele sind hochporöse Festkörper, bei denen die Porosität 95 % beträgt.



**Abb. 3.22:** Wärmeleitfähigkeit der Proben G1, G3, G4 und G5 nach [Zaitlin1975]. Die beiden Skizzen rechts unten zeigen die poröse Struktur für die Probe G3 (oben) und die Proben G4 und G5 (unten).

Anpassung erfolgt, ist das Verhalten auch beispielsweise mit einer  $T^{2,7}$ -Abhängigkeit verträglich. Die stärkere Abhängigkeit ist darauf zurückzuführen, dass durch die Löcher in der Probe eine Beschränkung der mittleren freien Weglänge  $l_L$  der Phononen entsteht. Für die geometrische mittlere freie Weglänge gilt:

$$l^{-1} = n \int_{-\pi}^{\pi} \sigma(\Theta)(1 - \cos \Theta) d\Theta \quad . \quad (3.52)$$

Dabei ist  $n$  die Lochdichte und  $\sigma(\Theta)$  der differentielle Streuquerschnitt. Nimmt man an, dass spiegelnde Reflexion der Phononen an den Löchern vorliegt und die Wellenlänge der Phononen viel kleiner ist als der Lochdurchmesser  $d$ , dann erhält man eine Näherungsformel für die mittlere freie Weglänge:

$$l = \frac{3}{4}nd = 0,59\frac{d}{r} \quad (3.53)$$

Die Porosität (Verhältnis von offener Fläche zur Gesamtfläche) wird mit  $r$  bezeichnet. Die in Tabelle 3.1 angegebenen Werte für  $l_L$  wurden nach dieser Näherungsformel berechnet.

Poröse Glasproben mit regelmäßig angeordneten Löchern besitzen sind also vorteilhaft für die im Rahmen dieser Arbeit geplante Messung: Aufgrund der Porosität ist der Absolutwert der Wärmeleitfähigkeit gegenüber Vollmaterial reduziert, so dass Transportmechanismen, die nicht auf Phononen beruhen, möglicherweise sichtbar werden. In diesem Zusammenhang ist der Vorteil der regelmäßigen Struktur der Löcher von Bedeutung. Durch die stärkere Temperaturabhängigkeit ( $T^3$  statt  $T^2$ ) reduziert sich die Wärmeleitfähigkeit zu tiefen Temperaturen hin schneller als es bei Vollmaterial der Fall ist. Durch diesen Effekt wird der Absolutwert noch schneller reduziert.

In den nächsten Abschnitten werden die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben genauer vorgestellt und im Anschluss daran die Messergebnisse der Wärmeleitfähigkeit unterhalb von 100 mK diskutiert.

### 3.4 Messergebnisse und Diskussion

Bevor mit der eigentlichen Diskussion der Messergebnisse begonnen wird, werden zunächst die Eigenschaften der für die Messungen verwendeten Proben vorgestellt.

#### 3.4.1 Eigenschaften der Proben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei Glasproben untersucht, die sich hinsichtlich der jeweiligen Lochgeometrie unterscheiden. Dabei handelt es sich um kommerziell erhältliche Proben<sup>10</sup>, die aus so genanntem Bleiglas<sup>11</sup> bestehen. Eine qualitative Untersuchung des Glases mittels Röntgenphotoelektronenspektroskopie (XPS) zeigte, dass beide Proben die gleiche Zusammensetzung aufweisen: Die Proben enthalten die Elemente Blei, Silizium, Barium, Cäsium, Mangan und Sauerstoff.

In Tabelle 3.2 sind die Materialparameter der Proben angegeben. Die angegebene mittlere freie Weglänge wurde nach Gleichung 3.53 berechnet. Die Löcher sind in einer hexagonalen Übergitterstruktur angeordnet. Probe #2 ist in ihren Maßen nahezu identisch zur Probe G4 aus den Messungen von Zaitlin, die im vorhergehenden Abschnitt besprochen worden. Dies ist besonders interessant, da es so für ähnliche Proben Messungen im Tieftemperaturbereich und Messungen für höhere Temperaturen gibt, die im Anschluss verglichen werden können.

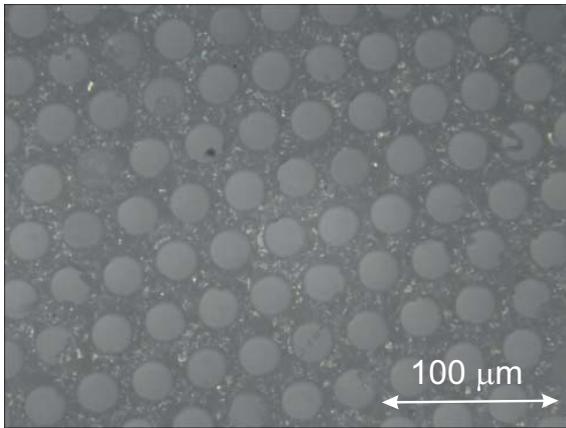
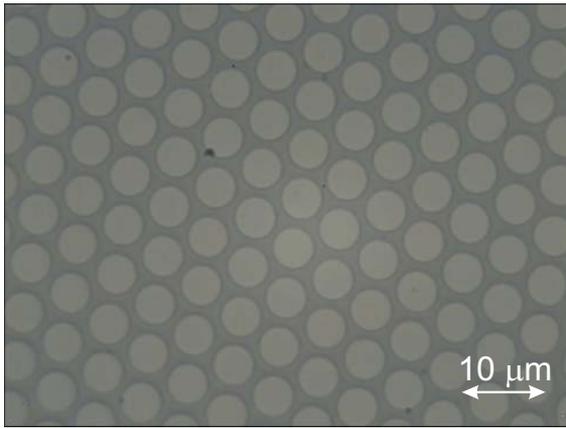
| Probe | Lochdurchmesser<br>$d$ [ $\mu\text{m}$ ] | Lochabstand<br>[ $\mu\text{m}$ ] | Porosität<br>$r$ | mittl. freie Weglänge<br>$l_L$ [ $\mu\text{m}$ ] | Dicke<br>$b$ [ $\mu\text{m}$ ] |
|-------|--|----------------------------------|------------------|--|--------------------------------|
| #1    | 5  | 1                                | 0,620            | 4,54   | 300                            |
| #2    | 25                                       | 7                                | 0,450            | 32,78  | 300                            |

**Tab. 3.2:** Materialparameter der vermessenen Glasproben: Lochdurchmesser  $d$ , Lochdichte  $n$ , Porosität  $r$ , mittlere freie Weglänge aufgrund der Löcher  $l_L$ , Dicke der Probe  $b$ .

In Abbildung 3.23 sind lichtmikroskopischen Aufnahmen der beiden Proben in unterschiedlichem Maßstab gezeigt. Man erkennt deutlich die Poren in hexagonaler Anordnung.

<sup>10</sup>Glaskapillarenarray, Vertrieb durch Laser2000 GmbH, Argelsrieder Feld 14, 82234 Weßling.

<sup>11</sup>Handelsübliche Gläser wie Trink- und Fenstergläser bestehen typischerweise aus drei Komponenten: Einem Netzwerkbildner (meist  $\text{SiO}_2$ ), der die Grundstruktur des Glases bestimmt; einem Netzwerkwandler (wie  $\text{K}_2\text{O}$  oder  $\text{Na}_2\text{O}$ ), der in das Grundgerüst eingebaut wird und die Bindung der Siliziumdioxidtetraeder verändert; und einem Stabilisator (beispielsweise  $\text{Ca}_2\text{O}$ ). Bleioxid kann sowohl als Netzwerkwandler als auch als Stabilisator dienen. Ersetzt man in einem gewöhnlichen Kalk-Natron-Glas die Calciumoxid-Komponente durch Bleioxid, so erhält man Bleiglas. Typische Bleigläser enthalten 18-35 mol%  $\text{PbO}$ .



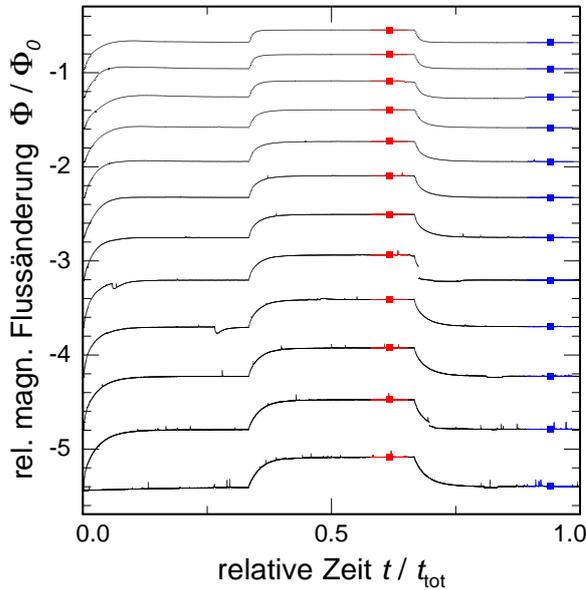
**Abb. 3.23:** Lichtmikroskopische Aufnahmen der beiden porösen Glasproben in unterschiedlicher Vergrößerung. Das obere Bild zeigt Probe #1, das untere Probe #2.

### 3.4.2 Kalibration der Thermometer

In den folgenden Abschnitten werden die Messdaten analysiert und die Ergebnisse vorgestellt. Alle im folgenden gezeigten Datensätze beziehen sich, soweit nicht anders gekennzeichnet, auf Messungen an der Glasprobe #1, der Probe mit den kleinen Löchern.

Der erste Schritt der Datenauswertung ist die Umrechnung der am Rückkoppelkreis der SQUID-Elektronik ausgelesenen Spannungen  $U_1$  und  $U_2$  in die entsprechenden magnetischen Flüsse in den beiden SQUID-Schleifen  $\Phi_1$  und  $\Phi_2$ . Der magnetische Fluss wird dabei in Einheiten des magnetischen Flussquants  $\Phi_0 = h/2e$  angegeben. Der Umrechnungsfaktor, die Spannung pro Flussquant, beträgt für SQUID 1 9,43 V und für SQUID 2 9,40 V. Abbildung 3.24 zeigt beispielhaft einen Ausschnitt des Signals eines der beiden SQUID-Magnetometer. Aufgetragen ist die relative magnetische Flussänderung  $\Phi/\Phi_0$  über der sogenannten relativen Zeit  $t$ . Diese Größe wird eingeführt, um die Messdaten bei verschiedenen Temperaturen besser vergleichen zu können. Da die Dauer eines Messzyklus  $t_{\text{tot}}$  sich zu tiefen Temperaturen hin deutlich verlängert (bei 100 mK dauert ein Messzyklus etwa eine Stunde, bei 20 mK dagegen bereits mehrere Tage), da die Glasprobe immer länger braucht, um in das thermische Gleichgewicht zu relaxieren, ist es sinnvoll, eine Darstellung zu finden, die diesen Effekt berücksichtigt. Dazu wird jeder einzelne Messzyklus auf

seine Gesamtlänge normiert:  $t/t_{\text{tot}}$ . Dieser Parameter wird im folgenden als relative Zeit bezeichnet. Diese Umrechnung führt dazu, dass alle Messzyklen als gleich lang erscheinen und so die Abläufe besser vergleichbar sind.



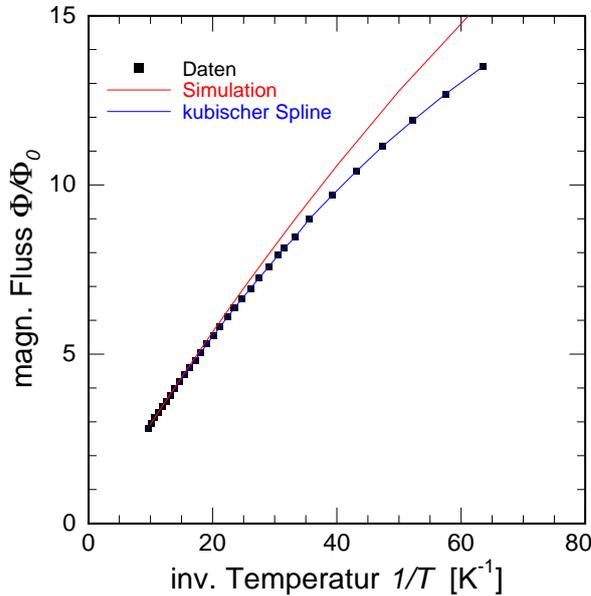
**Abb. 3.24:** Relative magnetische Flussänderung im SQUID aufgetragen gegenüber der relativen Zeit (Erklärung im Text). Die dargestellten Daten bewegen sich im Temperaturbereich zwischen 35 mK und 100 mK. Die Temperaturbereiche um die blauen Punkte werden zur Temperaturkalibration verwendet, die Temperaturbereiche um die roten Punkte repräsentieren den stabilen Zustand während der Heizperiode.

In der hier gezeigten Abbildung entspricht eine positive Änderung des magnetischen Flusses einer Erhöhung der Temperatur. Die dargestellten Messdaten überstreichen einen Temperaturbereich von 35 mK (unterer Bereich) bis 100 mK (oberer Bereich).

Um den magnetischen Fluss in absolute Temperatur umzurechnen, muss das SQUID-Signal kalibriert werden. Zur Erzeugung einer Kalibrationstabelle eignet sich folgende Vorgehensweise: Zunächst werden die Werte des magnetischen Flusses in den blau markierten Temperaturbereichen bestimmt und gemittelt, um statistisches Rauschen zu unterdrücken. In diesen Bereichen befindet sich die Glasprobe im thermischen Gleichgewicht mit der Experimentierplattform des Kryostaten und hat so dieselbe Temperatur; das heißt  $T_{\text{Au:Er}} = T_{\text{Exp}}$ . Auf diese Weise erhält man Datenpaare  $(\Phi, T)$ , aus denen eine Kalibrationstabelle erstellt werden kann. Passt man einen kubischen Spline an, erhält man eine kontinuierliche Kalibration. Mit Hilfe dieser Anpassung kann im Anschluss daran die Temperatur der Au:Er-Sensoren in den rot markierten Bereichen bestimmt werden. Diese Bereiche kennzeichnen den stabilen Zustand, den die Probe erreicht, wenn sich durch das Heizen der Probe ein stabiler Temperaturgradient in dieser aufgebaut hat. Eine genaue Temperaturinformation für diese Bereiche ist essentiell, da diese im weiteren Verlauf für die Auswertung der Wärmeleitfähigkeit der Glasprobe benötigt wird.

In Abbildung 3.25 ist eine typische Fluss-Temperatur-Kalibrationskurve gezeigt. Die Datenpunkte sind schwarz dargestellt und der erwähnte kubische Spline ist durch die blaue Linie angedeutet. Von den Daten wurde eine Konstante abgezogen, um die Bedingung  $1/T \rightarrow 0$  für  $\Phi/\Phi_0 \rightarrow 0$  zu erfüllen, die das Curie-Gesetz vorgibt. In der Auftragung des magnetischen Flusses gegenüber der inversen Temperatur ist das Curie-Verhalten bei

hohen Temperaturen (gerader Verlauf) deutlich zu erkennen.

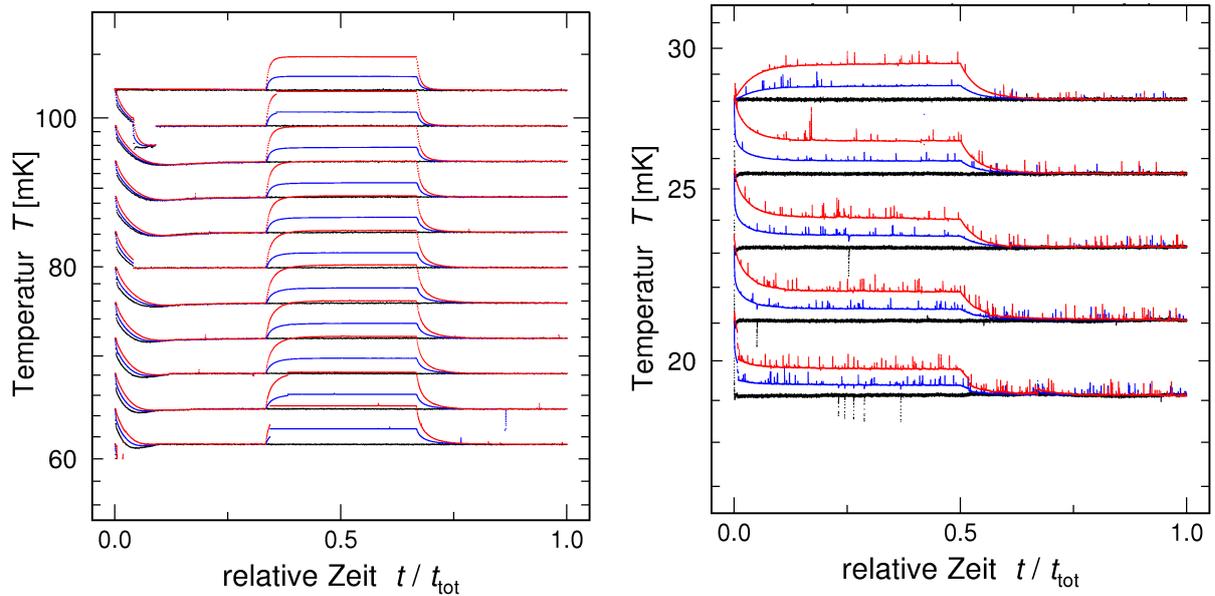


**Abb. 3.25:** Fluss-Temperatur-Kalibrationskurve. Die schwarzen Punkte repräsentieren die gemessenen Daten, die blaue Linie einen kubischen Spline. Die rote Linie zeigt den Verlauf der theoretisch erwarteten Kurve.

Die in Abbildung 3.25 eingetragene rote Linie entspricht dem Ergebnis einer Simulationsrechnung für den Zusammenhang zwischen Temperatur und Magnetisierungsänderung der paramagnetischen Au:Er-Sensoren. Zu tiefen Temperaturen weichen Simulation und Daten voneinander ab. Konsequenzen und Möglichkeiten, die sich daraus ergeben, werden in einem späteren Abschnitt diskutiert.

Eine Möglichkeit, die Thermometer zu kalibrieren ist nun eine Anpassung in Form eines Spline durchzuführen und die entstehende Kurve (in Abbildung 3.25 ist diese als blaue Linie eingezeichnet) als Kalibrationskurve zu verwenden.

Wendet man dieses Verfahren auf die Daten an, erhält man das in Abbildung 3.26 dargestellte Ergebnis. Die Auftragung erfolgt wieder gegenüber der relativen Zeit. Schwarz dargestellt ist die Temperatur der Experimentierplattform des Kryostaten, in rot ist der Temperaturverlauf des ersten Thermometers und in Blau der des zweiten Thermometers dargestellt. Dargestellt sind zwei Datensätze in den Temperaturbereichen zwischen 60 mK und 100 mK beziehungsweise 19 mK und 28 mK. Anhand dieser Darstellung lassen sich einige Details sehr gut diskutieren: Zunächst einmal bleibt die Temperatur der Experimentierplattform während der Heizphasen unbeeinflusst. Dies zeigt, dass die Heizleistung der LED tatsächlich nur in der Probe dissipiert wird und die Umgebung nicht beeinflusst wird. Die maximale Temperaturerhöhung in jedem Messzyklus beträgt etwa 5% der Basistemperatur des jeweiligen Zyklus. Aus der Tatsache, dass die prozentuale Erhöhung über den gesamten Temperaturbereich gleich ist, kann man schließen, dass die Heizleistung der LED in richtigem Maße zurückgestellt wurde. Da die Heizleistung über die Repetitionsrate der LED gesteuert wird, hat sich eine Verminderung der Repetitionsrate nach einem  $T^x$ -Gesetz bewährt.  $T$  ist dabei die Mischkammertemperatur. Der Exponent  $x$  wurde experimentell bestimmt und nimmt den Wert  $x = 3,6$  an [Wolf2005].



**Abb. 3.26:** Temperatur der beiden Thermometer auf der Glasprobe (rot und blau) und des Thermometers auf der Mischkammer (schwarz) aufgetragen gegenüber der relativen Zeit. *Links:* hohe Temperaturen, *Rechts:* tiefe Temperaturen

Ein ähnliche Vorgehensweise wurde auf die Dauer der Messzyklen angewendet. Im Temperaturbereich zwischen etwa 35 mK und 100 mK sehen die Messzyklen bei unterschiedlichen Temperaturen sehr ähnlich aus. Dies zeigt, dass auch die Verlängerung der Messzyklen zu tiefen Temperaturen hin in einem sinnvollen Maß geschehen ist, da alle Thermalisierungszeiten in der relativen Auftragung ähnlich sind. Auch hier gilt ein  $T^y$ -Gesetz, mit dem Exponenten  $y = 3,42$ , der wiederum experimentell bestimmt wurde. Die Messzyklen, die unterhalb von 35 mK gemessen wurden, haben ein anderes Aussehen, als die bei höheren Temperaturen. Hier wurde, um die gesamte Messzeit zu verkürzen, auf den ersten Teil des üblichen Messzyklus verzichtet. Die LED war also bereits in Betrieb während eine neue Temperaturstufe angefahren wurde.

Besonders deutlich tritt in Abbildung 3.26 zu Tage, dass eine Auflösung des Temperaturgradienten innerhalb der Probe tatsächlich möglich ist. Während der Heizphasen sind die unterschiedlichen Temperaturen der beiden Thermometer sehr gut sichtbar. Die Temperaturdifferenz zwischen den beiden paramagnetischen Sensoren beträgt etwa 2,5%. Die unterschiedliche Temperaturerhöhung der beiden Thermometer kann folgendermaßen beschrieben werden: Das Verhältnis der Differenz zwischen den Temperaturen der einzelnen Thermometer  $T_1$  und  $T_2$  und der der Experimentierplattform  $T_{\text{Exp}}$  muss dem Verhältnis der Abstände  $x_1$  und  $x_2$  der Thermometer zur thermischen Ankopplung der Probe an die Experimentierplattform entsprechen

$$\frac{T_1 - T_{\text{Exp}}}{T_2 - T_{\text{Exp}}} = \frac{x_1}{x_2} \cong 2 \quad , \quad (3.54)$$

mit  $x_1 = 6,5$  mm und  $x_2 = 3$  mm. Diese Verhältnis kann man auch in den Daten beobach-

ten. Die Erwärmung des Thermometers, das näher am Heizer ist, ist immer etwa doppelt so groß wie die des Thermometers, das weiter entfernt ist.

Bei den Messdaten, die bei tieferen Temperaturen aufgenommen wurden, wird eine Besonderheit sichtbar. In unregelmäßigen Abständen sind kleine Temperaturerhöhungen zu sehen. Die Natur dieser scheinbar spontanen Erwärmungen und ihr Einfluss auf die Ergebnisse der Messung werden in einem späteren Abschnitt genauer diskutiert.

### 3.4.3 Wärmeleitfähigkeit

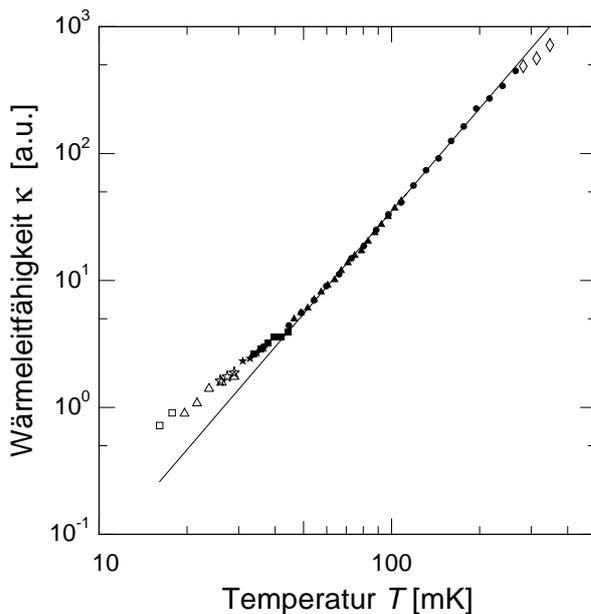
Wendet man Gleichung 3.4 mit einer kleinen Modifikation an, so kann die Wärmeleitfähigkeit  $\kappa$  folgendermaßen bestimmt werden:

$$\kappa(\bar{T}) = \frac{L}{A} \frac{\dot{Q}}{(T_1 - T_2)} \quad . \quad (3.55)$$

Die mittlere Temperatur  $\bar{T}$  ergibt sich durch  $\bar{T} = \frac{1}{2}(T_1 + T_2)$ . Da der Absolutwert der Heizleistung  $\dot{Q}$ , die in der Probe dissipiert wird, unbekannt ist, kann man diese nicht direkt angeben. Bekannt ist aber, dass  $\dot{Q}$  proportional zur Repetitionsrate  $\nu_{\text{rep}}$  ist. So lässt sich Gleichung 3.55 wie folgt umformen

$$\kappa(\bar{T}) = \alpha \frac{\nu_{\text{rep}}}{\Delta T}, \quad \text{mit } \alpha = \frac{\dot{Q}}{\nu_{\text{rep}}} \frac{L}{A} \quad . \quad (3.56)$$

Hier ist  $\Delta T = T_1 - T_2$ . Die Parameter  $\Delta T$  und  $\nu_{\text{rep}}$  können experimentell ermittelt werden. Zusammen mit Gleichung 3.56 kann die Temperaturabhängigkeit der relativen Änderung der Wärmeleitfähigkeit ausgewertet werden.

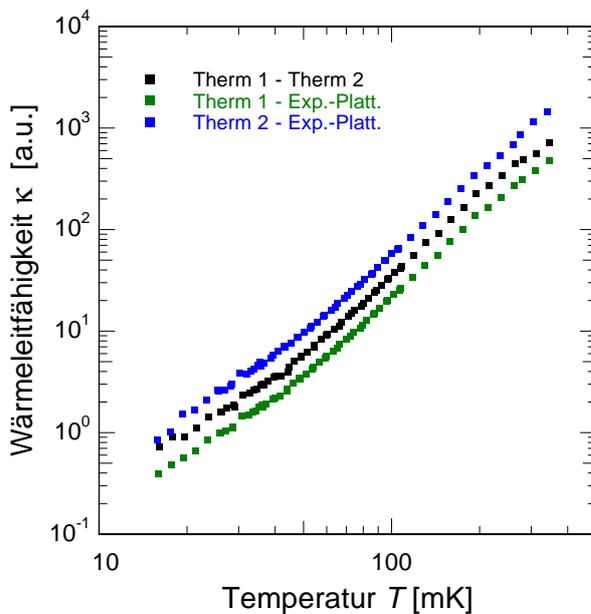


**Abb. 3.27:** Temperaturverlauf der Wärmeleitfähigkeit im Temperaturbereich zwischen 18 mK und 300 mK. Die unterschiedlichen Datensätze sind mit unterschiedlichen Symbolen gekennzeichnet.

In Abbildung 3.27 ist der Temperaturverlauf der Wärmeleitfähigkeit im Temperaturbereich zwischen 18 mK und 300 mK gezeigt. Die unterschiedlichen Symbole kennzeichnen unterschiedliche Datensätze. Im oberen Temperaturbereich zwischen 60 mK und 300 mK besitzt die Wärmeleitfähigkeit eine Temperaturabhängigkeit von etwa  $T^{2.7}$ , die die eingezeichnete Gerade andeutet. Unterhalb von circa 60 mK weicht der Verlauf der Wärmeleitfähigkeit von der angelegten Gerade ab und wird flacher.

### 3.4.4 Grenzflächen-Widerstand

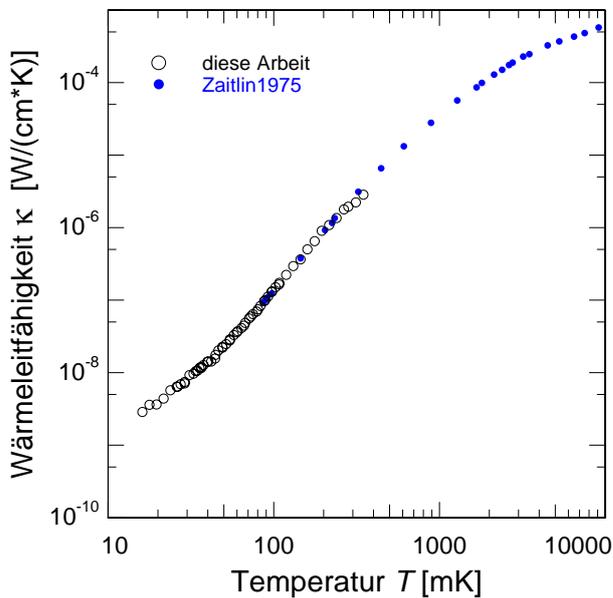
Bezieht man die Temperatur der Experimentierplattform in die Überlegungen mit ein, so kann man auch die Wärmeleitfähigkeit der Probe erhalten, in dem man zwischen jeweils einem Thermometer auf der Probe und dem Thermometer auf der Experimentierplattform auswertet. In Abbildung 3.28 ist das Ergebnis dieser Auswertung dargestellt. Die schwarzen Datenpunkte entsprechen den im vorangegangenen Abschnitt vorgestellten Daten. In blau und in grün sind die Ergebnisse einer Auswertung zwischen Thermometer 1 auf der Probe und der Experimentierplattform beziehungsweise zwischen Thermometer 2 und der Experimentierplattform dargestellt. An dem nahezu parallelen Verlauf der Kurven kann man ablesen, dass im Rahmen der hier relevanten Genauigkeit der Grenzflächen-Widerstand zwischen der Probe und dem Kupferhalter keine wesentliche Rolle spielt. Die unterschiedlichen Absolutwerte der Wärmeleitfähigkeit spiegeln wieder, dass die einzelnen Thermometer verschiedene Abstände zueinander haben.



**Abb. 3.28:** Wärmeleitfähigkeit der Probe ausgewertet zwischen Thermometer 1 und 2 (beide auf der Probe, schwarze Punkte), zwischen Thermometer 1 und der Temperatur der Experimentierplattform (grüne Punkte), bzw. Thermometer 2 und der Experimentierplattform (blaue Punkte).

### 3.4.5 Heizleistung

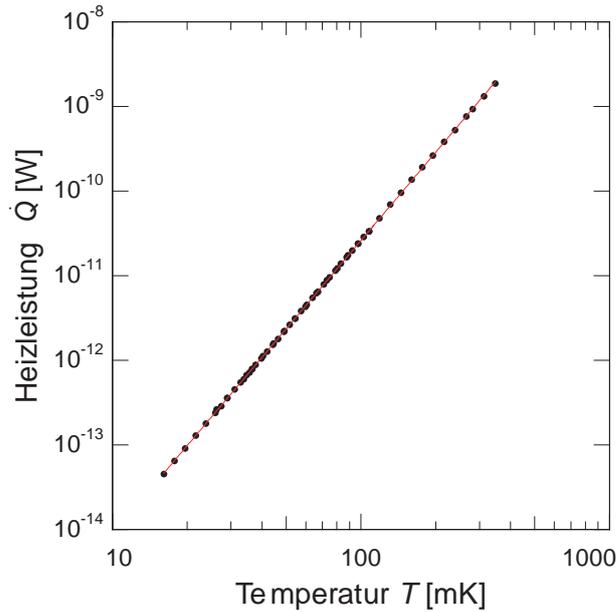
Im weiteren Verlauf konzentriert sich die Auswertung wieder auf die Wärmeleitfähigkeit wie sie in Abschnitt 3.4.3 bestimmt wurde. Bereits in Kapitel 3.3.5 wurden die Ergebnisse der Messung von Zaitlin *et al.* an porösen Glasproben vorgestellt. Die Probe G4 entspricht in den Dimension nahezu der hier verwendeten Probe. Vergleicht man nun die Ergebnisse von Zaitlin *et al.* mit den hier gemessenen Ergebnisse, indem man die Ergebnisse dieser Arbeit mit einem Offset versieht und sie anpasst, so erhält man den Verlauf aus Abbildung 3.29. Die Messergebnisse dieser Arbeit sind mit offenen Kreisen dargestellt, die Ergebnisse von Zaitlin *et al.* mit blauen Punkten. Wie man deutlich sieht, gibt es einen nahtlosen Übergang zwischen den Datensätzen bei etwa 100 mK.



**Abb. 3.29:** Die Ergebnisse für die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit angepasst durch Multiplikation eines Faktors an die Daten von Zaitlin *et al.*. Die offenen Kreise sind die Ergebnisse, die im Rahmen dieser Arbeit entstanden, die blauen Punkte sind die Ergebnisse von Zaitlin *et al.*.

Die Anpassung des Datensatzes aus dieser Arbeit an die Daten von Zaitlin *et al.* bringt noch eine weitere Information: Da der Aufbau von Zaitlin *et al.* derart gestaltet war, dass es möglich war, die Wärmeleitfähigkeit absolut zu bestimmen, kann man jetzt auch die Absolutwerte der Wärmeleitfähigkeitsmessung, die im Rahmen dieser Arbeit stattfand, evaluieren. Aus diesen wiederum kann im Anschluss die Heizleistung, die verwendet wurde, berechnet werden.

In Abbildung 3.30 sind die Heizleistungen der einzelnen Messzyklen wie sie aus der Anpassung an die Daten von Zaitlin *et al.* berechnet wurden, aufgetragen. Es lassen sich zwei Dinge erkennen: Zunächst fällt die Heizleistung zu tiefen Temperaturen in der doppeltlogarithmischen Auftragung linear ab. Dies ist nicht überraschend; die Steigung entspricht exakt den Einstellungen im Experiment. Bemerkenswert sind die Absolutwerte der Heizleistung. Im Temperaturbereich zwischen 16 mK und 300 mK wurde die Heizleistung insgesamt um etwa sechs Größenordnungen variiert. Das heißt die Dissipation von Wärme durch Licht in der Probe ist eine sehr gut steuerbare und zuverlässige Technik,



**Abb. 3.30:** Heizleistung in Abhängigkeit der Temperatur. Die Daten wurden aus der Anpassung der Messergebnisse an die Daten von Zaitlin *et al.* gewonnen.

um Proben kontrolliert zu heizen. Die kleinste Heizleistung, die im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurde, liegt im Bereich von  $10^{-13}$  W.

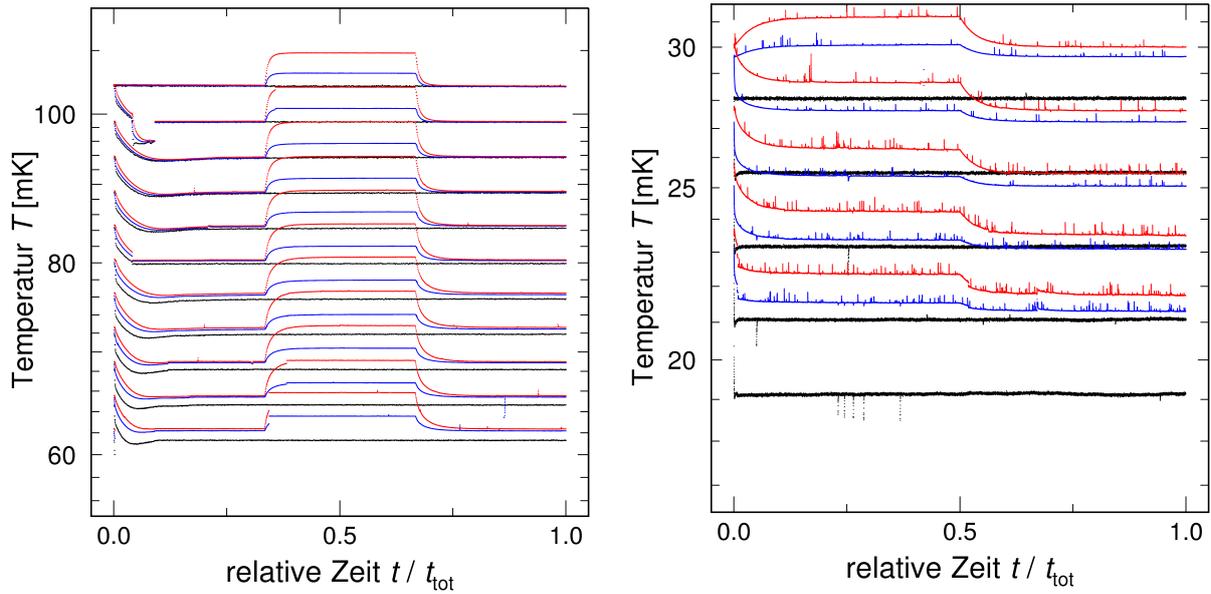
### 3.4.6 Parasitäre Wärmeeinträge

In diesem Abschnitt wird das Problem aus Abschnitt 3.4.2, die Abweichung zwischen Temperaturabhängigkeit der gemessenen Magnetisierung der Au:Er-Thermometer und der Simulation, näher diskutiert. Die geschieht sowohl im Hinblick auf mögliche Ursachen, als auch auf die Auswirkungen auf die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit.

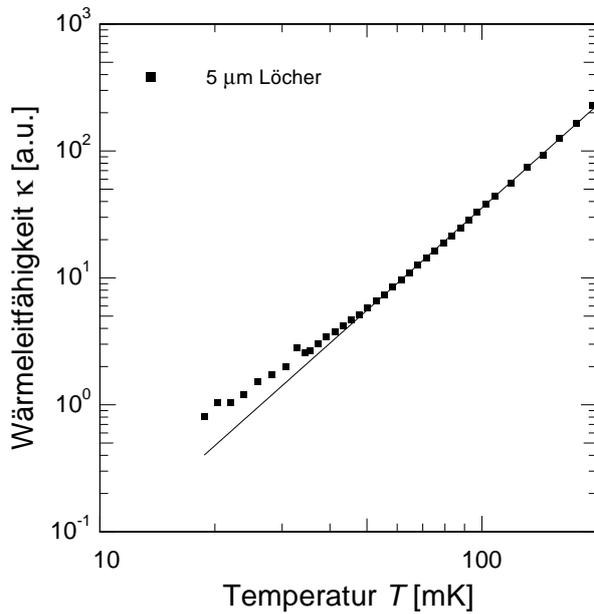
Eine alternative Möglichkeit, die Thermometer zu kalibrieren, besteht darin, anstelle des kubischen Splines durch die Messdaten die Ergebnisse der Simulation zu verwenden. In Kapitel 3.1.2 wurde gezeigt, dass mit Rechnungen dieser Art das experimentell bestimmte Verhalten von Au:Er sehr gut beschrieben werden kann.

In der nachfolgenden Abbildung 3.31 werden die Auswirkungen dieses Verfahrens deutlich: Betrachtet man zunächst die Auftragung von Temperatur der Au:Er-Thermometer gegenüber der relativen Zeit, so treten die ersten Auffälligkeiten auf. Bereits bei Temperaturen unterhalb von 80 mK sieht man sehr deutlich, dass die Temperaturen der Au:Er-Thermometer vor und nach der Heizphase nicht mehr mit denjenigen der Experimentierplattform übereinstimmen. Bei tiefsten Temperaturen beträgt der Unterschied bereits etwa zwei bis drei Millikelvin; die Abweichung liegt also bei etwa 15%. Es zeigt sich auch, dass in der Probe nun ständig ein Temperaturgradient herrscht, da auch in Phasen des Messzyklus, in denen nicht geheizt wird, die Au:Er-Thermometer unterschiedliche Temperaturen anzeigen. Bei der Auswertung der Wärmeleitfähigkeit wurde dieser Temperaturgradient berücksichtigt.

In Abbildung 3.32 ist das Ergebnis der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit



**Abb. 3.31:** Temperatur der Au:Er-Thermometer aufgetragen gegenüber der relative Zeit. Zur Umrechnung von magnetischem Fluss in Temperatur wurde die Simulationsrechnung verwendet. *Links:* hohe Temperaturen, *Rechts:* tiefe Temperaturen

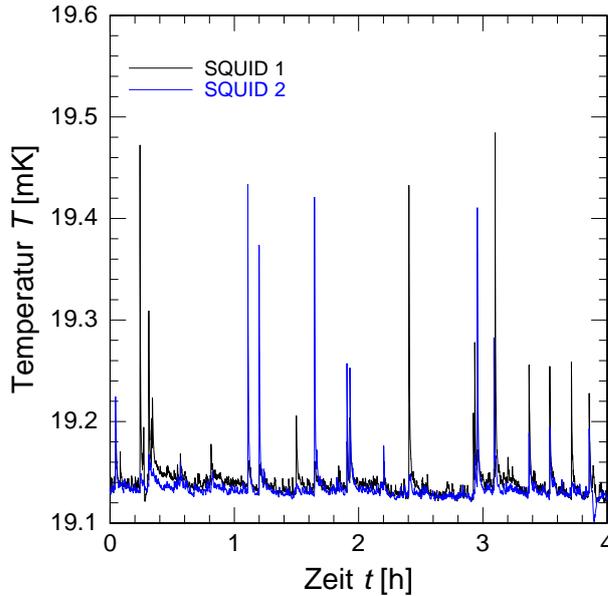


**Abb. 3.32:** Ergebnis der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit mit der Simulation als Kalibration der Thermometer.

für die Kalibration durch die Simulation gezeigt. In dieser Auswertung folgt die Wärmeleitfähigkeit bei hohen Temperaturen einem Potenzgesetz mit einer Potenz von 2,7; Bei etwa 40 mK beginnt der Verlauf abzuflachen.

Wenn man die Annahme macht, dass die Temperaturkalibration durch die Simulation Ergebnisse liefert, die näher an der Wirklichkeit liegen, kann man sich fragen, welche Effekte zu den unterschiedlichen Kalibrationen führen. Betrachtet man die Daten in Ab-

bildung 3.31 unterhalb von etwa 40 mK genauer, so fällt auf, dass sich kleine Erhebungen bemerkbar machen. In Abbildung 3.33 ist ein Ausschnitt dargestellt, der das Signal der beiden Au:Er-Thermometer im Vergleich über vier Stunden zeigt. Sehr deutlich zu sehen sind die Spitzen, die zum Teil eine Höhe von etwa 0,4 mK erreichen können. In den meisten Fällen sind die Spitzen in beiden Thermometern gleichzeitig zu sehen, so dass es sich um Effekte handelt, die nicht nur die Thermometer betreffen, sondern auch die Probe.



**Abb. 3.33:** Signal der beiden Au:Er-Thermometer bei tiefen Temperaturen über vier Stunden im Vergleich. In schwarz ist das Signal des Thermometers 1 und in blau das Signal des Thermometers 2 dargestellt.

Geht man davon aus, dass es sich bei den Spitzen um tatsächliche Wärmeeinträge handelt, so kann man die Energie abschätzen, die bei jeder Dissipation in die Probe eingetragen wird. Der Energieeintrag ist über  $\Delta E = C\Delta T$  mit der Wärmekapazität  $C$  und der Temperaturdifferenz  $\Delta T$  verknüpft. Die Gesamtwärmekapazität des Systems aus Glasprobe und Au:Er-Sensoren wird durch die Wärmekapazität der Au:Er-Sensoren dominiert. Diese ergibt sich zu  $C_{\text{Au:Er}} = 4,2,7 \cdot 10^{-9} \frac{\text{J}}{\text{K}} \approx 1 \cdot 10^{-8} \frac{\text{J}}{\text{K}}$ . Im Vergleich dazu ergibt sich die Wärmekapazität des Glases zu  $3,2 \cdot 10^{-10} \frac{\text{J}}{\text{K}}$ . Mit einer Gesamtwärmekapazität  $C = 10 \text{ nJ/K}$  und einer Temperaturdifferenz  $\Delta T = 0,4 \text{ mK}$  ergibt sich für eine obere Abschätzung der Energie pro Wärmedissipation  $\Delta E = 4 \cdot 10^{-12} \text{ J}$ . Bei im Mittel etwa vier bis fünf solchen Ereignissen pro Stunde ergibt sich die eingetragene Leistung zu  $\dot{Q} = 4,4 \text{ fW}$ . Dabei handelt es sich um eine untere Grenze, da nur die Ereignisse sichtbar werden, die direkt in oder sehr nah zu den Au:Er-Sensoren stattfinden. Die tatsächliche Anzahl der Ereignisse kann bis zu einem Faktor 10 höher sein, wenn man die Gesamtlänge der Probe in die Überlegungen einbezieht. Daraus ergibt sich ein Gesamtwärmeeintrag von 44 fW. Vergleicht man dies mit einer Abschätzung, in der berechnet wurde, welcher Energieeintrag pro Zeit notwendig ist, um die Temperatur der Probe bei 18 mK etwa um 2 mK gegenüber der Experimentierplattform zu erhöhen, so erhält man  $\dot{Q} = \frac{A}{L} \kappa \Delta T = \frac{0,4 \text{ cm} \cdot 0,03 \text{ cm}}{0,5 \text{ cm}} 1 \cdot 10^{-9} \frac{\text{W}}{\text{Kcm}} 2 \cdot 10^{-3} \text{ K} = 48 \text{ fW}$ . Die Temperaturerhöhung von etwa 2 mK ergibt sich aus Abschnitt 3.4.2. Dort wurde eine Abweichung zwischen der erwar-

teten Magnetisierung von Au:Er und der gemessenen diskutiert. Der oben abgeschätzte Wärmeeintrag würde zu der beobachteten Abweichung führen. Da diese Werte in der gleichen Größenordnung liegen, ist es durchaus vorstellbar, dass die parasitären Wärmeeinträge, die in den Daten zu sehen sind, für die gesamte Erwärmung der Probe gegenüber der Experimentierplattform sorgen.

Für die Natur dieser Ereignisse gibt es mehrere denkbare Erklärungsansätze: Es könnte sich um Myonen aus der kosmischen Höhenstrahlung, Umgebungsradioaktivität oder Frakturen beziehungsweise Mikrorisse handeln.

Für den Myonenfluss  $I$  aufgrund der kosmischen Höhenstrahlung auf Meereshöhe kann man folgende Näherungsformel annehmen:  $I = 1 \text{ cm}^{-2}\text{min}^{-1}$  [Yao2006]. Rechnet man den Fluss auf die horizontale Fläche des hier verwendeten Aufbaus um, so erhält man einen Myonenfluss von  $I = 4\text{-}5 \text{ h}^{-1}$ . Der Energieverlust  $\Delta E$  der Myonen durch Ionisation beträgt je nach Energie der einfallenden Myonen  $2,17 \text{ MeVg}^{-1}\text{cm}^2$  für  $E_\mu = 10 \text{ GeV}$  bis zu  $2,93 \text{ MeVg}^{-1}\text{cm}^2$  für  $E_\mu = 10000 \text{ GeV}$ . Für die Energie, die pro Durchgang eines Myons durch die Probe in dieser deponiert wird, ergibt sich folgende Näherung:

$$E = \Delta E \rho p l \quad . \quad (3.57)$$

Mit  $\rho$  ist die Dichte des Materials bezeichnet (für das hier verwendete Bleiglas gilt  $\rho = 4,4 \text{ g/cm}^3$ ), mit  $p$  der Prozentsatz, um den die Dichte reduziert werden muss, da das Material porös ist, und  $l$  bezeichnet in diesem Fall die Wegstrecke, die die Myonen im Material zurück legen können. Mit  $p = 0,38$  und  $l = 0,4 \text{ cm}$  ergibt sich für die in der Probe dissipierte Energie  $E$  ein durchschnittlicher Wert von  $E = 2,5 \cdot 10^{-13} \text{ J}$ . Ein solcher Energieeintrag würde in der Probe eine Temperaturerhöhung von etwa  $0,025 \text{ mK}$  hervorrufen. Dies zusammen genommen mit der Tatsache, dass die Rate der eintreffenden Myonen zu gering ist, lässt schließen, dass Myonen nicht für die auftretenden Temperaturerhöhungen und die globale Erwärmung der Probe verantwortlich sind.

In [Nazaretski2004b] wird der Einfluss der Umgebungsradioaktivität aus dem Labor auf einen Kryostaten zur Erzeugung von Temperaturen unterhalb von  $1 \text{ mK}$  beschrieben. Es konnten mehrere unterschiedliche Zerfälle in Baumaterialien nachgewiesen werden: Beim Zerfall von  $^{40}\text{K}$  wird  $\gamma$ -Strahlung mit der Energie  $1,46 \text{ MeV}$  emittiert; der Zerfall von  $^{228}\text{Ac}$  führt zu  $0,909 \text{ MeV}$  und  $0,967 \text{ MeV}$  und der Zerfall von  $^{214}\text{Bi}$  zu  $1,76 \text{ MeV}$   $\gamma$ -Strahlung. Außerdem wurden  $\gamma$ -Strahlung mit der Energie  $2,615 \text{ MeV}$  nachgewiesen, die auf den Zerfall von  $^{208}\text{Tl}$  zurückzuführen ist. Die Photonen können via dreier Effekte mit dem Material des Kryostaten wechselwirken: Photoeffekt (unterhalb von  $0,5 \text{ MeV}$ ), Compton-Streuung (bei etwa  $1 \text{ MeV}$ ) und Paarbildung (überhalb von  $1,02 \text{ MeV}$ ). Für die Energie, die die Photonen im Material dissipieren, ergibt sich:

$$E_{\text{abs}} = (1 - \exp(-(\mu/\rho)_{\text{tot,en,x}} \rho_x l_x)) E_\gamma \quad . \quad (3.58)$$

Dabei ist  $(\mu/\rho)_{\text{tot,en,x}}$  der Wirkungsquerschnitt der Energieabsorption des Elements (x) mit dem die Photonen der Energie  $E_\gamma$  wechselwirken. Mit  $\rho_x$  ist die Dichte des Materials und mit  $l_x$  die Wegstrecke, die das Photon im Material zurücklegt, bezeichnet. Da die

Photonen auf ihrem Weg durch den Kryostaten zum Experiment viele Materialschichten durchqueren müssen, ist eine Abschätzung des tatsächlichen Energieeintrags ins Experiment nicht trivial. Die Autoren geben einen Leistungseintrag von 13 pW in ihre Experimentierzelle an. Da in dem hier diskutierten Aufbau, die Probe wesentlich kleiner ist (vgl. [Nazaretski2004a]), ist der Energieeintrag entsprechend um einen Faktor 200 reduziert und liegt somit bei etwa 65 fW. Damit ist ein Einfluss der Umgebungsradioaktivität sehr wahrscheinlich.

Eine weiterer Effekt, der zu spontanen Temperaturerhöhungen führen kann, ist das Auftreten von Frakturen oder Mikrorissen bei tiefen Temperaturen. Effekte dieser Art konnten bereits in anderen Experimenten beobachtet werden [Åström2006]. Die Untersuchungen fanden im Rahmen des CRESST-Experiments<sup>12</sup> zur Erforschung der dunklen Materie statt. Durchgeführt wurden die Tests im Gran-Sasso-Labor (Italien), das tief unterirdisch liegt, um Einflüsse der Höhenstrahlung auf die Ergebnisse zu minimieren. Zu einer besseren Lagerung der Detektoren wurden Kügelchen aus Saphir verwendet. Man erhielt einige Tausend Ereignisse pro Stunde im Energiebereich zwischen 10 keV und 100 keV. Diese Ereignisrate war deutlich höher als die erwartete. Eine genaue Auswertung zeigte, dass die zeitliche Verteilung der Ereignisse keiner Poisson-Verteilung folgten. Mit dieser Information und der Tatsache, dass die Ergebnisse nicht mehr auftraten, nachdem die Saphir-Kügelchen durch Plastik ersetzt worden waren, wurde deutlich, dass die Ereignisse auf Frakturen in den Saphir-Kügelchen zurückzuführen sind. Ähnliche Prozesse können in dem hier diskutierten Experiment eine Rolle spielen. Da die Glasprobe in dem Probenhalter fixiert ist, besteht die Möglichkeit, dass es aufgrund von thermischen Verspannungen zu Rissen in der Probe kommen kann. Besonders anfällig für solche Prozesse sollten die dünnen Stege in der porösen Probe sein. Da der Aufbau der Experimente und die verwendeten Materialien in beiden Experimenten unterschiedlich sind, kann die Energieskala der Frakturen aus dem CRESST-Experiment nicht auf das hier diskutierte Experiment übertragen werden. Dennoch stellt die Möglichkeit des Auftretens von kleinen Rissen in der Probe einen interessanten Erklärungsansatz dar.

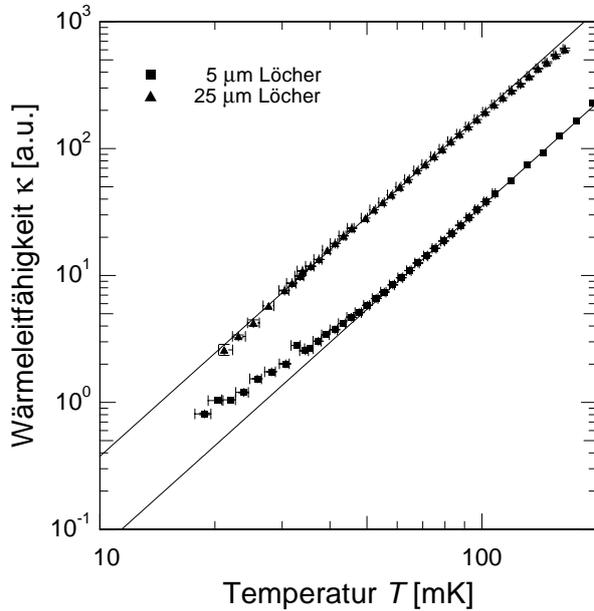
### 3.4.7 Vergleich beider Proben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Wärmeleitfähigkeiten von zwei Glasproben mit unterschiedlichen Lochgrößen untersucht (vergleiche Abschnitt 3.4.1). Die Ergebnisse der Probe mit den großen Löchern wurden in der gleichen Weise hinsichtlich der Proben temperatur korrigiert wie die der Probe mit den kleinen Löchern, da auch in diesem Fall die Probe aufgrund von zusätzlichen Wärmeeinträgen bei tiefen Temperaturen nicht vollständig thermalisieren konnte. In Abbildung 3.34 ist die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von der Temperatur für beide Proben dargestellt. Die Daten sind in willkürlichen Einheiten angegeben, da man den Absolutwert der Heizleistung nicht in beiden Fällen kennt und nur die Probe mit den kleinen Löchern mit Literaturdaten verglichen werden kann. Unter

---

<sup>12</sup>CRESST: Cryogenic Rare Event Search with Superconducting Thermometers

der Annahme, dass die durch Lichtabsorption im  $\text{CuO}_2$ -Film auf der Probe deponierte Heizleistung pro Strom durch die LED in beiden Experimenten identisch oder zumindest sehr ähnlich war, gilt die Skaleneinteilung der y-Achse tatsächlich für beide Proben und ein Vergleich der absoluten Wärmeleitfähigkeit ist zwischen den beiden Proben möglich.



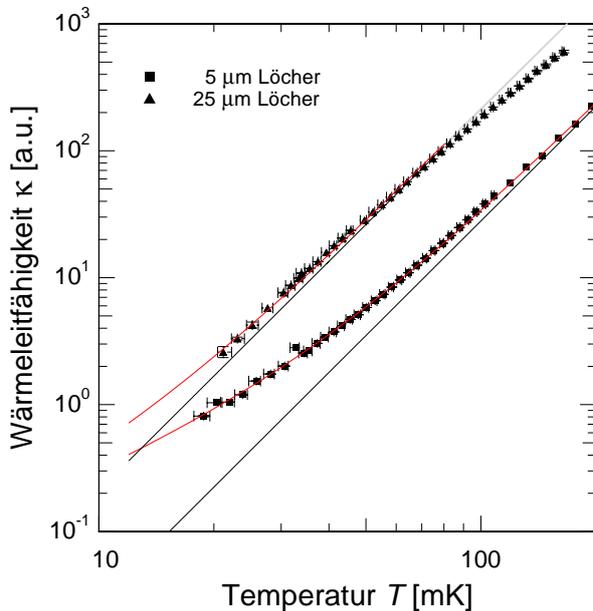
**Abb. 3.34:** Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit beider untersuchten Glasproben. In beiden Fällen kann das Verhalten durch ein  $T^{2,7}$ -Verhalten angenähert werden.

Die Absolutwerte der Wärmeleitfähigkeiten beider Proben unterscheiden sich um etwa ein Faktor fünf. Dies scheint plausibel, da die Geometrie der Probe mit den großen Löchern in ihren Dimensionen gegenüber der Probe mit den kleinen Löchern in etwa um einen Faktor fünf bis sieben gestreckt ist: Die Lochdurchmesser der Proben verhalten sich wie  $25\mu\text{m}/5\mu\text{m} = 5$ , das Verhältnis der Stegbreiten ergibt sich zu  $7\mu\text{m}/1\mu\text{m} = 7$ . Die Wärmeleitfähigkeiten der beiden Proben verlaufen bei hohen Temperaturen nahezu parallel und sind dabei mit einem Potenzgesetz der Form  $T^{2,7}$  beschreibbar. Die beiden eingezeichneten Geraden spiegeln diese Tatsache wieder. Bei Temperaturen unterhalb von 50 mK flacht der Verlauf der Probe mit den kleinen Löchern ab. Die Probe mit den großen Löchern hingegen zeigt bei tiefen Temperaturen keine Abweichung von dem zuvor beschriebenen Potenzgesetz. Bei hohen Temperaturen kann man eine kleine Abweichung zu einer schwächeren Temperaturabhängigkeit erkennen. Diese erklärt sich dadurch, dass an dieser Stelle bereits der Casimir-Bereich, in dem die freie Weglänge durch die geometrisch bedingeten Streuzentren limitiert ist, verlassen wird und ein Übergang zum  $T^2$ -Verhalten von Gläsern und letztlich zum Plateau stattfindet. Der Übergangstemperaturbereich sollte bei der Probe mit den großen Löchern gegenüber der Probe mit den kleinen Löchern um etwa einen Faktor fünf bis sieben zu tieferen Temperaturen hin verschoben sein und ist daher schon in diesem Temperaturbereich sichtbar. Die angegebenen Fehler für Temperatur und Wärmeleitfähigkeit ergeben sich aus einer Unsicherheit der Temperatur, die bei der Kalibration der Au:Er-Thermometer auftritt.

Zwei Ursachen sind für das unterschiedliche Verhalten der beiden Proben denkbar.

Zum einen könnte die unterschiedlich eingeschränkte Geometrie aufgrund der verschiedenen Lochdurchmesser eine Rolle spielen, zum anderen könnte das Abflachen der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den kleinen Löchern bedeuten, dass ein zusätzlicher Kanal für Wärmetransport mit schwächerer Temperaturabhängigkeit existiert. Dieser könnte auf wechselwirkende atomare Tunnelsysteme zurückzuführen sein. Im weiteren Verlauf werden diese beiden Möglichkeiten näher diskutiert.

Zunächst wird nun der mögliche Einfluss der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen auf die gemessene Wärmeleitfähigkeit näher beleuchtet. Wenn man die Annahme macht, dass das Abflachen der Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den kleinen Löchern zu tiefen Temperaturen hin einem Beitrag wechselwirkender Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit zuzuschreiben ist, kann man versuchen, den Kurvenverlauf durch folgendes Modell zu beschreiben. Bei hohen Temperaturen befindet man sich im Casimir-Bereich, das heißt die mittlere freie Weglänge wird durch die Löcher begrenzt und die Wärmeleitfähigkeit sollte eine  $T^3$ -Abhängigkeit besitzen. Die Tunnelsysteme tragen nach den Modellen aus [Würger2004b] und [Burin1989] mit einer Wärmeleitfähigkeit  $\kappa \propto T^{4/3}$  bei, die bei tiefen Temperaturen dominieren könnte. In einem ersten Ansatz kann man daher an die Daten der Probe mit den kleinen Löchern eine Funktion, die eine Überlagerung der beiden Abhängigkeiten beinhaltet, anpassen:  $\kappa = aT^3 + bT^{4/3}$ . In Abbildung 3.35 sind die Daten aus Abbildung 3.34 erneut aufgetragen. Die rote Kurve, die durch die Daten der Probe mit den kleinen Löchern geht, stellt die eben diskutierte Anpassung dar. Die schwarze Kurve stellt die  $T^3$ -Komponente dar.



**Abb. 3.35:** Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit beider untersuchten Glasproben. Die eingezeichneten Kurven werden im Text erläutert.

Es zeigt sich eine erstaunlich gute Übereinstimmung der Kurve mit den Daten. Der Vorfaktor  $b$  für den Beitrag der Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit ergibt sich zu  $b = 130 \text{ [a.u.] } \left(\frac{T}{K}\right)^{4/3}$ . Innerhalb dieser Interpretation der Daten hat die  $T^{4/3}$ -Komponente einen großen Einfluss bei der Beschreibung des Verlaufs der Daten. Dies erklärt, weshalb keine

reine  $T^3$ -Abhängigkeit beobachtet wurde, sondern eine schwächere Abhängigkeit. Bei hohen Temperaturen, wenn man den Casimir-Bereich verlässt, flacht die Wärmeleitfähigkeit dann zusätzlich ab, so dass  $T^3$  nicht beobachtet werden kann (vergleiche Abbildung 3.22, Daten aus [Zaitlin1975] für höhere Temperaturen).

Als logische Konsequenz muss im nächsten Auswertungsschritt untersucht werden, ob der  $bT^{4/3}$ -Beitrag auch die Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den großen Löchern beeinflusst. Die Überlegungen werden dadurch erschwert, da aufgrund der größeren Stegbreite dieser Probe der Casimir-Bereich erst bei tieferen Temperaturen beginnt. Abbildung 3.22 kann man entnehmen, dass der Casimir-Bereich für die Probe mit den kleineren Löchern bei etwa 400 mK beginnt und daraus abschätzen, dass der Übergang in den Casimir-Bereich für die Probe mit den größeren Löchern und den breiteren Stegen bei etwa fünf- bis siebenmal tieferen Temperaturen und somit etwa bei 60 mK stattfindet. Um zu prüfen, ob die Messdaten der Probe mit den großen Löchern auch verträglich mit dem oben diskutierten  $T^{4/3}$ -Beitrag sind, wurde ein Kurvenverlauf der Form  $\kappa = aT^3 + 130[\text{a.u.}] \left(\frac{T}{\text{K}}\right)^{4/3}$  angepasst. Dieser entspricht in Abbildung 3.35 der roten Kurve. Auch hier ist der zugehörige  $T^3$ -Anteil wieder separat dargestellt. Dieser Test besitzt gewisse Freiheiten in der Anpassung des  $T^3$ -Anteils, aber man kann dennoch gut erkennen, dass bei tiefen Temperaturen die angepasste Kurve die Daten innerhalb der Fehler gut beschreibt. Wie bereits erwähnt wird nicht erwartet, dass die Anpassung für Temperaturen  $T > 60$  mK mit einem  $T^3$ -Verlauf die Daten wiedergibt, da man sich dann nicht mehr im Casimir-Bereich befindet und der Kurvenverlauf sich dem Verhalten der Proben aus Vollmaterial annähert. Der Teil der Kurven, der oberhalb des Casimir-Bereichs liegt, ist daher nur angedeutet.

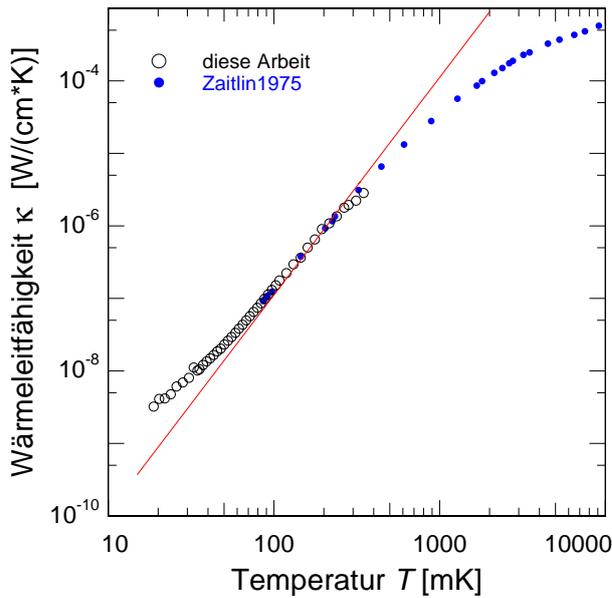
Zur weiteren Diskussion werden die Ergebnisse der eben vorgestellten Messungen mit den Aussagen der theoretischen Modelle aus [Würger2004b] und [Yu1985] verglichen. Dazu ist in Abbildung 3.36 die Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den kleinen Löchern noch einmal dargestellt. Hier wurde die Temperaturabhängigkeit wie in Abschnitt 3.4.6 korrigiert und die Daten entsprechend Abschnitt 3.4.5 an die Messdaten von Zaitlin *et al.* angepasst. Die rot eingezeichnete Gerade entspricht dem  $T^3$ -Verlauf, der im vorherigen Abschnitt für die Probe mit den kleinen Löchern ermittelt wurde. Für den Beitrag der Tunnelsysteme zu Wärmeleitfähigkeit ergibt sich

$$\kappa_{\text{TS}} \approx 5 \cdot 10^{-7} \frac{\text{W}}{\text{cmK}} \left(\frac{T}{\text{K}}\right)^{4/3} . \quad (3.59)$$

Der Auftragung kann man entnehmen, dass der Beitrag der Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit der Glasprobe bei 18 mK etwa im Bereich von  $1 \cdot 10^{-9} \text{ W/cmK}$  liegt.

Im folgenden Abschnitt werden Überlegungen diskutiert, inwiefern ein Beitrag dieser Größenordnung theoretischen Vorhersagen beziehungsweise existierenden Messdaten an dotierten Alkalihalogenidkristallen verträglich ist. In [Würger2004b] findet man für den Beitrag der Tunnelsysteme in Gläsern zur Wärmeleitfähigkeit folgenden Ausdruck

$$\kappa_{\text{TS}} = \frac{4\pi^3}{3} (P_0 u)^{7/3} \frac{k_{\text{B}}^2 T}{\hbar} \left(\frac{2\pi}{3} P_0 k_{\text{B}} T\right)^{1/3} . \quad (3.60)$$



**Abb. 3.36:** Anpassung der im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Wärmeleitfähigkeit an die Daten von Zaitlin *et al.*. Die rot eingezeichnete Gerade entspricht dem  $T^3$ -Verlauf.

Durch Einsetzen der relevanten Parameter für Tunnelsysteme, erhält man folgenden Ausdruck

$$\kappa_{\text{TS}} \approx 10^{-12} \frac{\text{W}}{\text{cmK}} \left( \frac{T}{\text{K}} \right)^{4/3} . \quad (3.61)$$

Vergleicht man diesen Vorfaktor mit dem Vorfaktor  $b$  aus Gleichung 3.59, so zeigt sich, dass der im Rahmen dieser Arbeit experimentell ermittelte Vorfaktor fünf Größenordnungen größer ist als der theoretisch vorhergesagte.

Gleichung 3.60 kann man so umformen, dass man die intrinsischen Parameter für Tunnelsysteme  $P_0$  und  $u$  in Abhängigkeit voneinander erhält:

$$P_0^{1/3} (P_0 u)^{7/3} = 9,2 \cdot 10^{12} \frac{\text{J}^{-1/3}}{\text{m}} . \quad (3.62)$$

Schätzt man nun  $u = \frac{\gamma^2}{\rho v^2}$  für die hier verwendete Probe mit  $\gamma = 1 \text{ eV}$ ,  $\rho = 4,4 \text{ g/cm}^3$  und  $v = 2400 \text{ m/s}$ , so erhält man  $u = 6,3 \text{ eV}\text{\AA}^3$ . Daraus kann man nun  $P_0$  abschätzen zu:  $P_0 \approx 5 \frac{1}{\text{eV}\text{\AA}^3}$ . Aus Messungen der spezifischen Wärme von amorphen Quarz (siehe Abbildung 3.14 in Kapitel 3.3) kann man  $P_0$  abschätzen, da folgender Zusammenhang gilt [Enss2005]:

$$C_V = \frac{\pi^2}{12} P_0 k_B^2 T \ln(4A t_0 T^3) . \quad (3.63)$$

$C_V$  steigt annähernd linear mit zunehmender Temperatur an, wobei der logarithmische Faktor eine zusätzliche schwache Temperaturabhängigkeit verursacht. Typische Werte für amorphen Quarz sind:  $t_0 = 10 \text{ s}$  und  $A = 10^8 \text{ s}^{-1} \text{K}^{-3}$ . Setzt man dies zusammen mit einer Wärmekapazität von  $0,01 \mu\text{Jg}^{-1} \text{K}^{-1}$  bei einer Temperatur von  $30 \text{ mK}$  in Gleichung 3.63 ein, so erhält man  $P_0 \approx 5 \cdot 10^{-6} 1/\text{eV}\text{\AA}^3$ . Das bedeutet, dass die obere Grenze in dieser Messung für  $P_0$  etwa sechs Größenordnungen zu hoch liegt.

Im Energiebereich unterhalb von  $E = k_B \cdot 1 \text{ K}$  gibt es in Gläsern etwa  $10^{17} - 10^{18}$  Tunnelsysteme pro  $\text{cm}^3$ . Daraus ergibt sich eine Konzentration von Tunnelsystemen in Gläsern von etwa 10 ppm bis 100 ppm [Enss2005]. Bestimmt man aus den Messdaten die Dichte der Tunnelsysteme, so erhält man etwa  $5 \cdot 10^{20}$  Tunnelsysteme pro  $\text{cm}^3$ . Dies entspricht etwa einer Konzentration von  $10^4$  ppm, die somit zwei Größenordnungen über dem typischen Wert für Gläser liegt, wenn in diesen Messungen Tunnelsysteme zum Wärmetransport beigetragen hätten. Ist der theoretisch abgeleitete Beitrag der Wärmeleitfähigkeit durch Tunnelsysteme in [Würger2004b] 3.60 korrekt und wurden in der Abschätzung für Gläser typische  $u$  verwendet, dann erscheint die Konzentration der Tunnelsysteme sehr groß zu sein, die den experimentell ermittelten Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit hervorrufen soll.

Man kann auch umgekehrt vorgehen und aus Gleichung 3.62 mit einem für Gläser typischen Wert für  $P_0$  die Größe  $u$  bestimmen und daraus über den Zusammenhang  $u = \frac{\gamma^2}{\rho v^2}$  das Deformationspotenzial  $\gamma$  berechnen. Als Ergebnis erhält man  $\gamma \approx 2640 \text{ eV}$ . Dieser Wert ist um einen Faktor 2000 größer als der für Gläser typische Wert, der im Rahmen von 1 eV liegt. Auch hier sind die Unstimmigkeiten so groß, dass es unwahrscheinlich scheint, dass das im Experiment beobachtete Abflachen der Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen mit dem theoretisch hergeleiteten Wert für die von Tunnelsystemen getragene Wärmeleitfähigkeit übereinstimmt.

Zum Abschluss werden die Ergebnisse dieser Arbeit mit den Ergebnissen von Messungen der Wärmeleitfähigkeit von Alkalihalogenidkristallen verglichen. Die Ergebnisse der Untersuchungen der Wärmeleitfähigkeit an unterschiedlich dotierten Defektkristallen KBr:KCn [Moy1984, DeYoreo1983], in denen die Zyanid-Moleküle die Tunnelsysteme bilden, können in [Yu1985] mit einem Modell, das wechselwirkende Tunnelsysteme berücksichtigt erklärt werden (siehe Abschnitt 3.3.4.3). Der Beitrag der wechselwirkenden Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit in KBr:KCn mit einer Konzentration  $x_{\text{CN}} = 0,25$  wird dabei für 100 mK zu  $\kappa \simeq 1 - 2 \cdot 10^{-5} \text{ W/cmK}$  angegeben. Für eine wesentlich geringere Konzentration von  $x_{\text{CN}} = 0,01$  ergibt sich in der Theorie für die Wärmeleitfähigkeit ein Beitrag  $\kappa \simeq 2 \cdot 10^{-5}$ , der in der gleichen Größenordnung wie der Messwert  $\kappa \propto 8 \cdot 10^{-6} \text{ W/cmK}$  liegt. Da die Wärmeleitfähigkeit in diesem Modell proportional zur Temperatur ist, müssen diese Zahlenwerte durch einen Faktor fünf geteilt werden, um mit den im Rahmen dieser Arbeit bei 20 mK gemessenen Daten vergleichbar zu werden. Der Vergleich zeigt, dass der gemessene Wert deutlich über dem hier beobachteten Beitrag der Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit  $\kappa \propto 2 \cdot 10^{-9} \text{ W/cmK}$  bei 18 mK. Daher unterstützt diese Beobachtung die Vorstellung, dass ein Beitrag der Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit in den hier durchgeführten Experimenten gefunden wurde.

Im weiteren Verlauf der Diskussion werden die Einflüsse der eingeschränkten Geometrie auf die Wärmeleitfähigkeit beschrieben. Die Löcher in den Proben dienen als zusätzlich Streuzentren für Phononen. Mit dieser Vorgehensweise kann der phononische Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit reduziert werden. Für den Fall, dass das Abflachen der Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den kleinen Löchern bei  $T = 50 \text{ mK}$  rein geometrischer Natur ist, müsste der Übergang zu einem Abflachen aufgrund geometrischer Effekte bei der

Probe mit den größeren Löchern bei einer um einen Faktor sieben reduzierten Temperatur stattfinden. Die Daten würden sich dann im Casimir-Bereich an ein  $T^3$ -Verhalten annähern, was ebenfalls mit den Daten unterhalb von 40 mK vereinbar ist und das Abflachen wäre erst bei etwa 7 mK zu beobachten.

Welche Ursachen könnte ein Abflachen der Wärmeleitfähigkeit aufgrund geometrischer Effekte haben? Die Löcher haben Einfluss auf die Bandstruktur der Dispersionsrelation der Phononen. Festkörper dieser Art, in die eine Übergitterstruktur in Form von regelmäßig angeordneten leeren oder einem anderen Material gefüllten Löchern eingebettet ist, werden in der Literatur als phononische Kristalle<sup>13</sup> bezeichnet. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben gehören zur Gruppe der zweidimensionalen phononischen Kristalle. Die Besonderheit dieser Festkörper liegt darin, dass die Materialien so kombiniert werden können, dass in der Bandstruktur Bandlücken auftreten, die auch über die gesamte Brillouin-Zone ausgedehnt sein können. Befindet man sich nun in einem Temperaturbereich, in dem die dominante Phononenwellenlänge an den Rand einer Bandlücke kommt, so könnte aufgrund der erhöhten Zustandsdichte der Phononen in diesem Bereich eine Änderung der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit auftreten. Die theoretische Beschreibung der Dispersionsrelation von Proben dieser Art erweist sich als komplexe Problematik, die Gegenstand aktueller sForschung ist. In [Gorishnyy2005] wurde die Bandstruktur einer Probe untersucht, die Ähnlichkeiten zu den hier verwendeten Proben aufweist, jedoch wurde keine Aussage über die Existenz einer Bandlücke gemacht. Eine ausführliche Zusammenfassung theoretischer und experimenteller Arbeiten auf dem Gebiet der phononischen Kristalle findet man in [Sigalas2005]. Wenn das in dem hier durchgeführten Experiment beobachtete Abflachen der Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den kleinen Löchern auf solche geometrische Effekte zurückzuführen wäre, dann würde man bei der Probe mit den größeren Löchern ebenfalls ein Abflachen erwarten, allerdings bei einer etwa um einen Faktor fünf bis sieben kleineren Temperatur. Dies würde einer Temperatur von etwa 7 mK entsprechen, die unterhalb des vermessenen Temperaturbereichs liegt. Effekte aufgrund der Geometrie würde man in jedem Fall dann erwarten, wenn die Temperatur so niedrig wird, dass die dominante Phononenwellenlänge länger als die Gitterkonstante der Übergitterstruktur wird. Die mittlere freie Weglänge nimmt dann zu tieferen Temperaturen hin wieder zu und dies überträgt sich auf die Wärmeleitfähigkeit. Ein solches Verhalten würde man unterhalb von 7 mK erwarten.

Auf der Basis der momentanen Datenlage kann nicht entschieden werden, ob das beobachtete Abflachen auf geometrische Effekte zurückzuführen ist oder ob sich ein Beitrag wechselwirkender Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit zeigt .

Zur weiteren Klärung der Ursachen für das beobachtete Verhalten der Wärmeleitfähig-

---

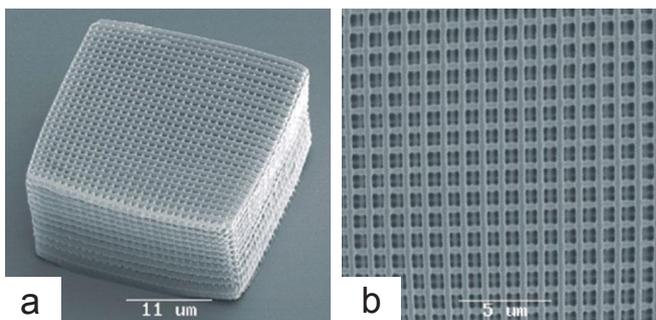
<sup>13</sup>Die Bezeichnung als phononische Kristalle wurde in Analogie zu den so genannten photonischen Kristallen gewählt. Bei letzteren werden im Allgemeinen zwei Materialien mit unterschiedlichen dielektrischen Eigenschaften in der Form kombiniert, dass eine regelmäßige Übergitterstruktur entsteht. Diese kann ein-, zwei- oder dreidimensional sein. Man nennt einen Festkörper phononischen Kristall, wenn Materialien mit unterschiedlichen akustischen Eigenschaften in dieser Weise zusammengesetzt werden.

keiten beider Proben sind für die Zukunft mehrere Wege denkbar. Wenn die parasitären Wärmeeinträge in die Probe reduziert werden könnten, so dass das Experiment bis etwa 5 mK durchführbar ist, würde sich aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit der Wärmefluss bis 5 mK noch einmal um etwa ein bis zwei Größenordnungen verringern. Sollte das Abflachen noch nicht auf Tunnelsysteme zurückzuführen sein, kann man den phononischen Fluss weiter reduzieren und kann so einen Beitrag sichtbar machen, der kleiner ist als hier beobachtet. Bei der Planung eines Experiments, mit dem die Wärmeleitfähigkeit bei noch tieferen Temperaturen gemessen werden soll, sollte darauf geachtet werden, dass die Zeitkonstanten durch geschickte Wahl der Geometrie und eine sehr kleine spezifische Wärme der Thermometer so kurz wie möglich gehalten werden, da die Relaxationszeiten zu tiefen Temperaturen hin rasant zunehmen.

Eine Möglichkeit zur Unterscheidung, ob geometrische Effekte oder Tunnelsysteme für das Abflachen der Wärmeleitfähigkeit verantwortlich sind, besteht darin die Probe mit den großen Löchern zu tieferen Temperaturen abzukühlen. Eine eindeutige Entscheidung wäre dann möglich. Ist die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit zu tieferen Temperaturen hin mit einem  $T^3$ -Verlauf verträglich, so handelt es sich um geometrische Effekte. Flacht die Wärmeleitfähigkeit ab und kann mit einer Überlagerung aus einem  $T^3$ - und einem  $T^{4/3}$ -Verhalten beschrieben werden, dann handelt es sich sehr wahrscheinlich um einen Beitrag der Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit, der das Abflachen verursacht.

Ein weiterer Ansatz zur Unterscheidung der beiden Erklärungsmöglichkeiten wäre die Untersuchung einer Probe mit noch kleineren Löchern. Bei dieser würde man ein Abflachen aufgrund geometrischer Effekte bei höheren Temperaturen erwarten als die hier untersuchte Probe mit den kleinen Löchern zeigt. Verläuft die Wärmeleitfähigkeit zu tieferen Temperaturen dann parallel zu dem Verlauf der Wärmeleitfähigkeit dieser Probe, dann wäre dies ein Argument für die Geometrie. Flacht die Kurve derart ab, dass die Wärmeleitfähigkeiten der beiden Proben aufeinander zulaufen, würde dies für einen Beitrag der Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit sprechen.

Proben mit Löchern, die kleiner als sind, als die der hier vorgestellten Proben, könnten jedoch schwer kommerziell erhältlich sein. Die Forschung an phononischen und photonischen Kristallen bringt jedoch immer mehr interessante Proben hervor. Dies führt zu einem anderen Ansatz für weitere Messungen zur Untersuchung des Wärmetransports von Tunnelsystemen, bei dem die mittlere freie Weglänge für Phononen weiter verrin-



**Abb. 3.37:** Rasterelektronenmikroskop-Aufnahmen einer Holzhaufen-Struktur. Teilbild b zeigt einen vergrößerten Ausschnitt aus Teilbild a (aus [Houbertz2005]).

gert werden kann. Dies ist möglich, indem Proben untersucht werden, die weiter in der Geometrie eingeschränkt sind. Denkbar sind dabei auch dreidimensionale Gitter oder so genannte Holzhaufen-Strukturen. In Abbildung 3.37 ist eine solche Struktur dargestellt [Houbertz2005]. Diese wurde mittels Zwei-Photonen-Polymerisation hergestellt. Mit diesem Verfahren kann man Mikro- und Nanostrukturen herstellen, die eine Auflösung von 100 nm und eine sehr geringe Oberflächenrauigkeit besitzen. Trägermaterial ist ein Hybridpolymer.

Der Einsatz einer solchen Probe hat Potenzial, ist im Limes sehr kleiner Strukturen jedoch für die Messung nicht uneingeschränkt hilfreich. Werden die Strukturen zu klein, das heißt in diesem Fall, die Strukturgrößen liegen im Submikrometerbereich, dann flacht die Wärmeleitfähigkeit aufgrund geometrischer Effekte ab und man kann dies möglicherweise nicht von einem Beitrag der Tunnelsysteme diskriminieren.

## 4. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Experiment zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von porösen Gläsern aufgebaut. Zielsetzung war es, Messungen im Temperaturbereich unter 100 mK durchzuführen, um möglicherweise Wärmetransport aufgrund einer Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen nachzuweisen. Dieser Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit wurde in theoretischen Überlegungen vorhergesagt, konnte bisher experimentell jedoch nicht nachgewiesen werden. Messungen an Gläsern aus Vollmaterial bis 6 mK zeigten den im Rahmen des Standardtunnelmodells vorhergesagten Verlauf der Wärmeleitfähigkeit mit  $T^2$ . In der vorliegenden Arbeit wurde versucht, diesen neuen Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit sichtbar zu machen, indem spezielle Glasproben verwendet wurden. Diese enthalten eine regelmäßige Lochstruktur, die einerseits zur Reduktion des Absolutwertes der Wärmeleitfähigkeit dient, andererseits ist es mit solchen Proben möglich, die Wärmeleitfähigkeit durch Phononen zu reduzieren, da die Löcher als zusätzliche Streuzentren dienen. Für eine solche Glasprobe sollte die Wärmeleitfähigkeit zunächst ein  $T^3$ -Verhalten zeigen, solange kein weiterer Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit hinzu kommt.

Die Glasproben, die in dieser Arbeit untersucht wurden, enthalten Löcher, die hexagonal angeordnet sind. Es wurden zwei Proben mit unterschiedlich großen Löchern verwendet. Dabei hatte eine Probe Löcher mit  $5\ \mu\text{m}$  Durchmesser und somit eine Porosität von 62 %, die andere Probe Löcher mit  $25\ \mu\text{m}$  Durchmesser und eine Porosität von 45 %.

Da die Wärmeleitfähigkeit, die bestimmt werden soll, sehr klein ist, muss während der Messung mit sehr kleinen Heizleistungen gearbeitet werden. Bei Temperaturen von etwa 20 mK beträgt die Heizleistung nur noch etwa  $10^{-13}$  W, was sehr kleinen Wärmeflüssen entspricht. Dies bedeutet aber auch, dass das Experiment sehr empfindlich auf parasitäre Wärmeeinträge ist. Um diese zu minimieren, wurde eine berührungsfreie Messtechnik eingesetzt, bei der weder Heizer noch Thermometerauslese direkt mit der Probe verbunden sind. Verwendet wurde eine optische Heizmethode, bei der das Licht einer LED mit einer Glasfaser auf einen Absorber auf der Probe geleitet wird und diese so erwärmt. Zur Bestimmung der Temperatur wurden an zwei Stellen der Probe paramagnetische Au:Er-Sensoren angebracht, deren temperaturabhängige Magnetisierung induktiv mit dc-SQUIDs ausgelesen wurde.

Zur Messung der Basistemperatur wurde ein Thermometer entwickelt, das auf der Grundlage des thermischen Rauschens von Elektronen in einem Metalle aufbaut. Dieses so genannte Johnson-Rauschen ist linear von der Temperatur abhängig. Rauschthermometer können im Prinzip sowohl bei tiefen Temperaturen als auch bei hohen Temperaturen eingesetzt werden. Der Aufbau, der hier entwickelt und getestet wurde, ist speziell für den Einsatz bei Temperaturen unterhalb von 100 mK gedacht. Dabei werden die Magnetfeldfluktuationen, die das thermische Rauschen in einem hochreinen Metall

(Gold oder Kupfer) hervorruft, mit einem dc-SQUID gemessen. Die Besonderheit dieses Aufbaus gegenüber früheren Anordnungen ist die induktive Kopplung zwischen Metall und SQUID. Als Rauschquelle kann in einem solchen Aufbau ein massives Stück Metall verwendet werden. Ein wichtiger Effekt ist dabei, dass die Thermalisierung des Thermometers wesentlich besser gelingt, da es sich aufgrund der zu tiefen Temperaturen hin schwächer werdenden Elektron-Phonon-Kopplung auszahlt, wenn die Probe ein großes Volumen besitzt. Es stellte sich heraus, dass es sich dabei um ein äußerst erfolgreiches Konzept handelt, das daher im Rahm dieser Arbeit ausführlich vorgestellt wurde.

In der vorliegenden Arbeit wurde das Thermometer bis 6 mK getestet und es konnten keine Abweichungen des gemessenen Rauschen vom theoretisch erwarteten linearen Verhalten festgestellt werden. Das Thermometer hat daher das Potenzial bei noch tieferen Temperaturen eingesetzt zu werden, wie man sie beispielsweise in einem Kryostaten mit Kernentmagnetisierungsstufe erzeugen kann. Es konnte gezeigt werden, dass dieses Thermometer innerhalb von 14 s eine Temperaturinformation mit 1 % Genauigkeit liefert. Diese Zeit ist beachtlich und macht es tauglich für den Einsatz im Labor. Der Vergleich des Thermometers mit dem Fixpunktthermometer SRD1000-006 einer holländischen Kollaboration, das nach der PLTS-2000 kalibriert wurde, zeigte, dass das hier entwickelte Thermometer nur eine Ein-Punkt-Kalibration benötigt, um die exakte Temperatur wiederzugeben. Da das Thermometrieprinzip direkt auf ein physikalisches Gesetz zurückgreift (Nyquist-Formel), kann man durch eine weitere Charakterisierung der im Aufbau vorhandenen Induktivitäten den Charakter als Primärthermometer ausbauen.

Die Wärmeleitfähigkeit beider Proben wurde bis etwa 20 mK gemessen. Die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit kann bei hohen Temperaturen für beide Proben mit Streuprozessen an Oberflächen erklärt werden. Die Absolutwerte der Wärmeleitfähigkeiten unterscheiden sich entsprechend dem Verhältnis der Lochgrößen und Stegbreiten um einen Faktor fünf bis sieben. Unterhalb von 50 mK flacht die Wärmeleitfähigkeit der Probe mit den kleinen Löchern ab. Denkbare Ursachen für dieses Verhalten könnten Einflüsse der unterschiedlich eingeschränkten Geometrien oder tatsächlich ein Beitrag der wechselwirkenden Tunnelsysteme sein. Aus den Daten wurde nach dem Modell von [Würger2004b] eine obere Grenze für  $P_0$ , der Verteilung der Tunnelsysteme abgeschätzt, die mit dem Wert  $5 \frac{1}{\text{eV}\text{\AA}^3}$  etwa sechs Größenordnungen über dem typischen Wert von  $5 \cdot 10^{-6} 1/\text{eV}\text{\AA}^3$  liegt. Legt man das Modell von [Yu1985] zugrunde, mit dem die Wärmeleitfähigkeit von wechselwirkenden Tunnelsystemen im Defektkristall KBr:KCN beschrieben wird, so zeigen in diesem System die Tunnelsysteme einen etwa drei Größenordnungen größeren Wärmestrom als in den hier durchgeführten Experimenten. Dies bedeutet wiederum, dass das beobachtete Abflachen durchaus mit einem Beitrag wechselwirkender Tunnelsysteme zur Wärmeleitfähigkeit verträglich ist.

Um genauer unterscheiden zu können, welcher Effekt das unterschiedliche Verhalten der Proben verursacht, könnte in weiteren Experimenten, die Wärmeleitfähigkeit zu tieferen Temperaturen hin gemessen werden. Eine weitere Möglichkeit sich dem Problem zu nähern, besteht darin eine Probe zu verwenden, die noch kleinere Löcher besitzt, um die

Einflüsse der Geometrie zu studieren.

Die Weiterentwicklung des Rauschthermometers wird in Zukunft in Zusammenarbeit mit der Physikalisch-Technische Bundesanstalt in Berlin fortgeführt werden. Dort bestehen Pläne den im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Aufbau kompakter zu gestalten und schließlich ein verkäufliches Thermometer zu entwickeln.

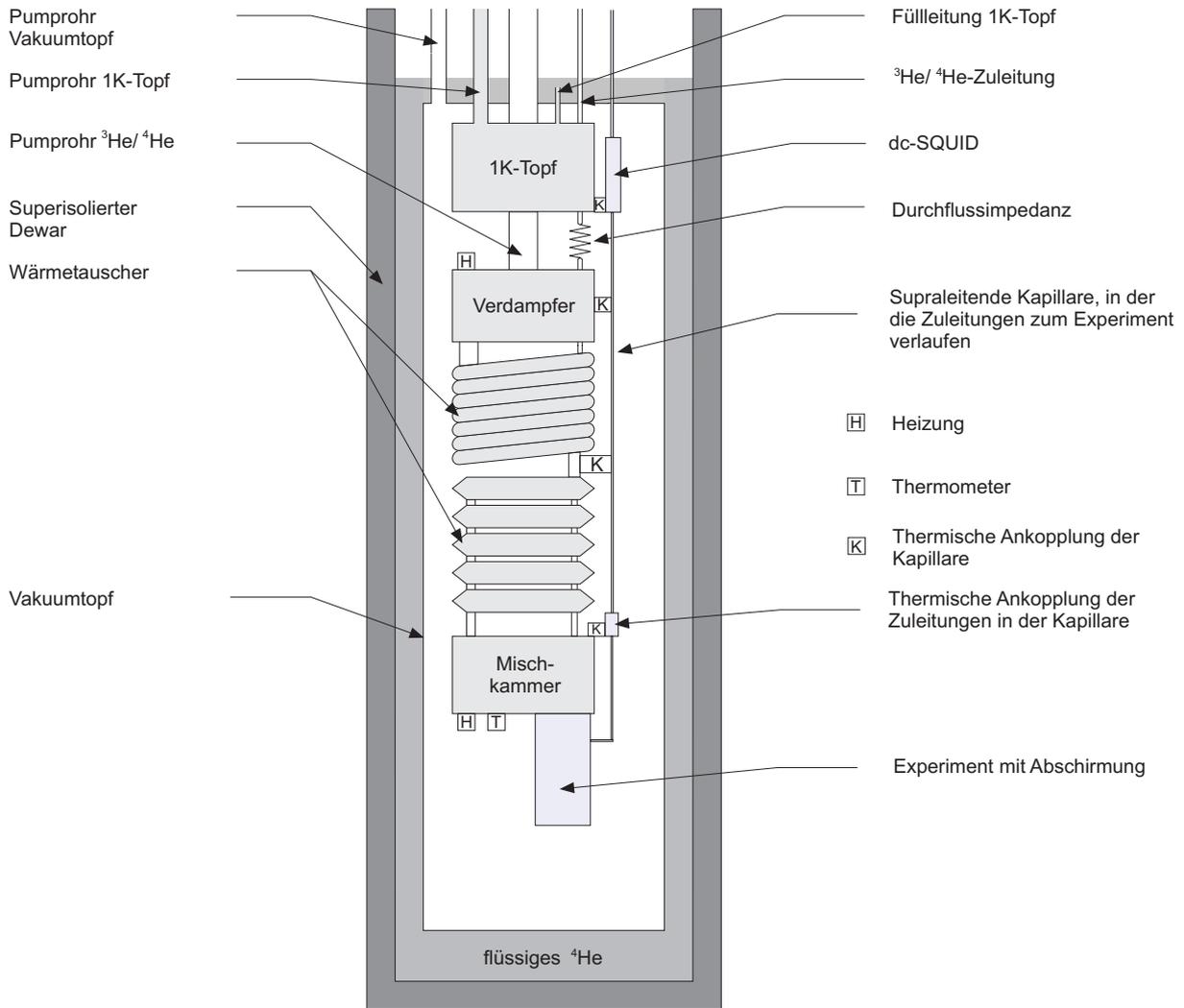


## A. Anhang

Da alle beschriebenen Experimente bei tiefen Temperaturen stattfinden, werden zunächst die wichtigsten technischen Punkte für das Experimentieren bei tiefen Temperaturen erläutert, wie sie für das Verständnis dieser Arbeit eine Rolle spielen. Im Anschluss daran werden Aufbau und Funktionsweise der so genannten dc-SQUID-Magnetometer vorgestellt, deren Eigenschaften wesentlich für die Experimente sind.

### A.1 Technisches

Alle Experimente, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, fanden in so genannten  $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten statt. Im Inneren eines solchen Kryostaten wird ein Temperaturgradient erzeugt, der von etwa 1,5 K (am so genannten 1K-Topf) bis etwa 5 mK an der kältesten Stelle, der Mischkammer, reicht. Dort ist eine Plattform angebracht, an der Experimente montiert werden können. Auf die Funktionsweise eines solchen Kryostaten soll hier nicht eingegangen werden. Übersichtliche Darstellungen findet man zum Beispiel in [Pobell2007] und [Enss2005]. Wie in Abbildung A.1 gezeigt ist, sind die für alle Experimente benötigten dc-SQUID-Magnetometer, die im nächsten Abschnitt diskutiert werden, thermisch am 1K-Topf angekoppelt. Die elektrischen Zuleitungen des Experiment bestehen aus supraleitenden Niob-Drähten, die zur Abschirmung in supraleitenden Kapillaren verlaufen. Diese Kapillaren sind an mehreren Stellen thermisch angekoppelt. Die Drähte selbst werden, bevor sie mit dem Experiment verbunden sind, auf der Mischkammer mit Klemmverbindungen thermisch abgefangen. Diese sind zur Abschirmung von einer Box aus Niob umgeben. Die zugehörigen Experimente finden auf der Experimentierplattform statt und sind ebenfalls abgeschirmt.



**Abb. A.1:** Schematische Darstellung des  $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten und der Versuchsanordnung.

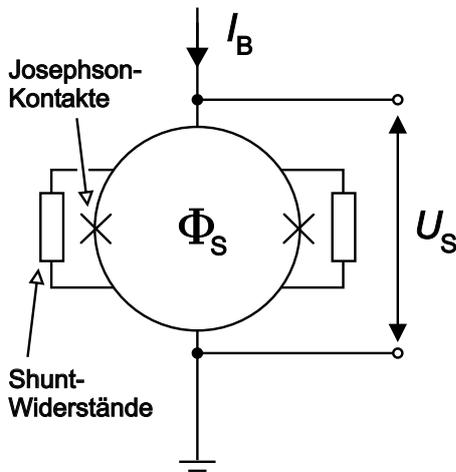
## A.2 dc-SQUID-Magnetometer

### A.2.1 dc-SQUID

Im Rahmen dieser Arbeit wurden so genannten dc-SQUID<sup>1</sup>-Magnetometer eingesetzt. Ein dc-SQUID ist ein supraleitendes Bauteil, mit dessen Hilfe es möglich ist, magnetischen Fluss auf ein Spannungssignal abzubilden. Wie in Abbildung A.2 skizziert, besteht ein dc-SQUID aus einer supraleitenden Schleife, die an zwei Stellen von so genannten Josephson-Kontakten unterbrochen ist (Kreuze in Abbildung A.2). Diese Kontakte bestehen aus dünnen Isolationsschichten und ermöglichen das Eindringen von äußerem magnetischen Fluss in das Innere der SQUID-Schleife. Wenn sich der magnetische Fluss

<sup>1</sup>Superconducting QUantum Interference Device

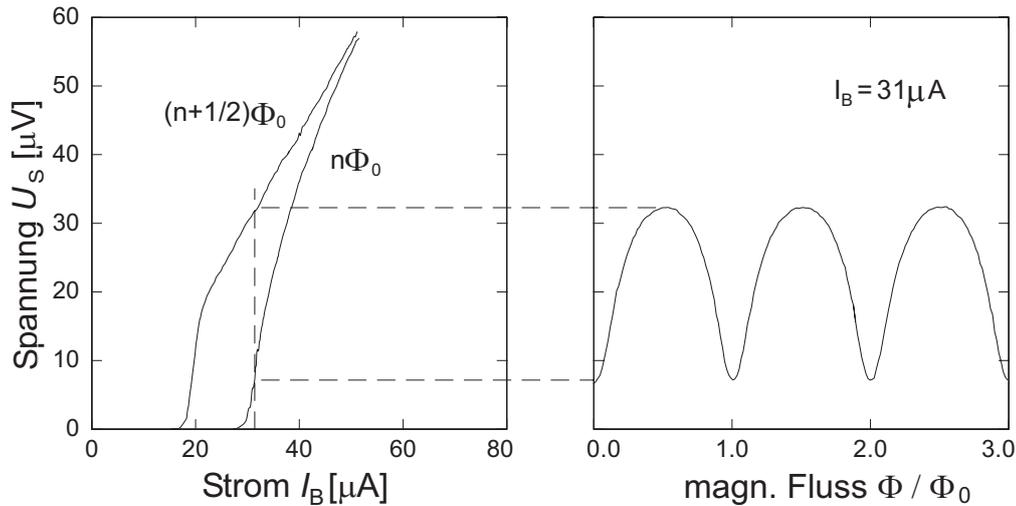
$\Phi$  in der SQUID-Schleife ändert, zieht dies eine Veränderung der Phasendifferenz der makroskopischen Wellenfunktion der Cooper-Paare zwischen den Josephson-Kontakten nach sich. Die Spannung  $U_S$ , die über dem SQUID abfällt, hängt nicht nur vom Biasstrom  $I_B$ , sondern auch vom magnetischen Fluss  $\Phi_S$  ab, der die von der Leiterschleife umschlossene Fläche durchsetzt. Auf diese Weise kann die Spannung  $U_S$  als Messgröße für magnetischen Fluss dienen, wenn der Biasstrom konstant ist. Parallel zu den Josephson-Kontakten sind Shunt-Widerstände angebracht, die das hysteretischen Verhaltens von SQUIDs unterdrücken.



**Abb. A.2:** Schematische Darstellung eines dc-SQUIDs mit Shunt-Widerständen (nach [Weinstock1996]).

In der linken Darstellung in Abbildung A.3 ist die über dem SQUID abfallende Spannung  $U_S$  in Abhängigkeit vom Biasstrom  $I_B$  für die beiden Extremfälle der magnetischen Flüsse  $\Phi_S = n\Phi_0$  und  $\Phi_S = (n + 1/2)\Phi_0$  in der SQUID-Schleife gezeigt. Dabei bezeichnet  $\Phi_0$  das so genannte Flussquant mit dem Wert  $\Phi_0 = h/2e = 2,07 \times 10^{-15} \text{ Tm}^2$ . Unterhalb des kritischen Stroms  $I_C$  fällt über dem SQUID keine Spannung ab, da sich das SQUID in supraleitendem Zustand befindet und die Cooper-Paare durch die Josephson-Kontakte tunneln können. Ist der Biasstrom größer als der kritische Strom  $I_C$ , beginnt das Tunneln von Quasiteilchen. Die Spannung  $U_S$ , die über dem SQUID abfällt, hat in diesem Bereich einen endlichen Wert. Dieser steigt zunächst steil in Abhängigkeit des Biasstroms  $I_B$  an, anschließend zeigt sich ein ohmsches Verhalten.

Betrieibt man das SQUID mit einem Biasstrom  $I_B$ , der etwas größer ist als der kritische Strom  $I_C$ , dann hängt die Spannung über dem SQUID besonders empfindlich vom magnetischen Fluss  $\Phi_S$  in der SQUID-Schleife ab. Der rechte Teil der Abbildung A.3 zeigt den periodisch oszillierenden Spannungsverlauf in Abhängigkeit des magnetischen Flusses. Diese Auftragung macht deutlich, dass ein SQUID, das ohne eine weitere äußere Beschaltung betrieben wird, zunächst ein stark nicht linearer Fluss-Spannungs-Wandler ist.

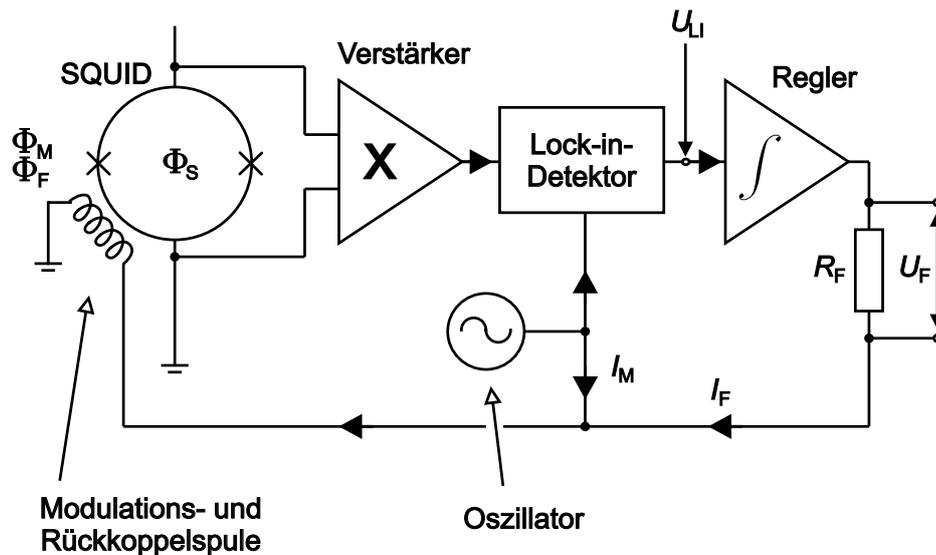


**Abb. A.3:** Links: Spannungs–Strom–Charakteristik eines dc-SQUIDs für  $\Phi_S = n\Phi_0$  und  $\Phi_S = (n + 1/2)\Phi_0$ . Rechts: Spannungs–Fluss–Charakteristik bei festem Biasstrom  $I_B > I_C$  (nach [Weinstock1996]).

### A.2.2 Flux–locked–loop–Elektronik

Damit man das SQUID als linearen Fluss–Spannungs–Wandler einsetzen kann, ist eine zusätzliche elektronische Verschaltung erforderlich. Dafür wird üblicherweise eine so genannte Flux–locked–loop–Schaltung, wie sie in Abbildung A.4 skizziert ist, verwendet. Ziel dieser Schaltung ist es, den magnetischen Fluss in der SQUID–Schleife extern so zu steuern, dass er konstant bleibt. Dazu wird über eine Spule (die Modulations- und Rückkoppelspule) zusätzlich magnetischer Fluss  $\Phi_F$  in das SQUID eingekoppelt, der Änderungen gerade kompensiert. Das Messsignal ist jetzt der Strom  $I_F$  in der Rückkoppelspule (bzw. der Spannungsabfall  $U_F$ , der über dem Rückkoppelwiderstand  $R_F$  abfällt), der benötigt wird, um den Fluss in der SQUID–Schleife konstant zu halten. Da bei dieser Vorgehensweise sowohl der Fluss im SQUID als auch der Biasstrom konstant bleiben, bedeutet, dass man an einem festen Punkt, dem so genannten Arbeitspunkt, in der Fluss–Spannungs–Kennlinie bleibt. Um dies zu erreichen wird, eine elektronische Regelung benötigt. Bei der hier verwendeten Elektronik dient die Ableitung der Spannung  $U_S$  als Regelgröße. In diesem Fall wird der Kompensationsfluss so nachgeregelt, dass der Arbeitspunkt einem lokalen Extremum der Fluss–Spannungs–Kennlinie entspricht. Auf diese Weise wird erreicht, dass der Kompensationsfluss linear mit dem zu messenden Fluss zusammen hängt. Andere elektronische Verschaltungen halten den Arbeitspunkt in der steilsten Stelle des Kennlinie fest. Ändert sich der Fluss in der Leiterschleife schneller, als der Regler die Flussänderung kompensieren kann, kann es vorkommen, dass ein anderes Maximum der Fluss–Spannungs–Kennlinie als Arbeitspunkt gewählt wird. In den Daten beobachtet man

<sup>2</sup>Englischer Ausdruck für den Vor- oder Betriebsstrom des SQUID.



**Abb. A.4:** Prinzipieller Aufbau einer Flux-Locked-loop-Elektronik zur Linearisierung der Spannungs-Fluss-Charakteristik eines dc-SQUIDs mit einer flussmodulierten Auslesetechnik.

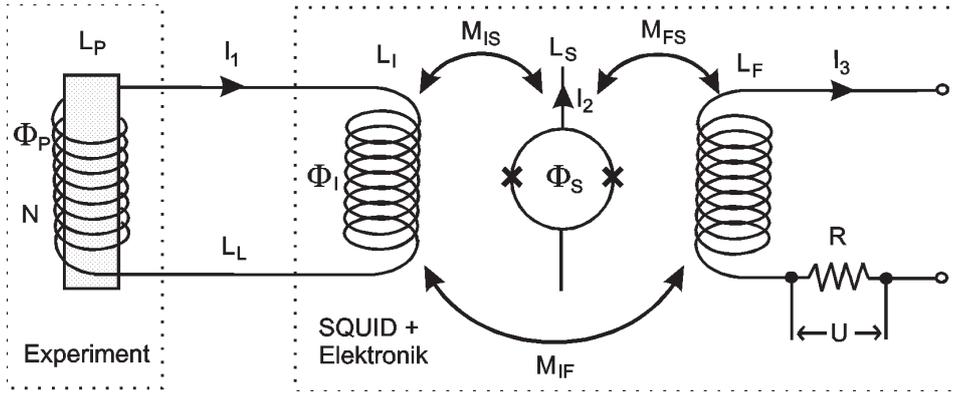
dann einen so genannten Flusssprung, das heißt eine spontane Flussänderung um ein ganzzahliges Vielfaches eines Flussquants. Diese Flusssprünge müssen im Nachhinein in den Daten korrigiert werden.

Die Ableitung von  $U_S$  wird bestimmt, indem mit einem Lock-In-Verfahren die SQUID-Antwort auf ein Modulationssignal  $I_M$  gemessen wird. Die Bandbreite der SQUID-Elektronik ist durch die Frequenz des Modulationsstromes nach oben begrenzt.

### A.2.3 Flusstransformator gekoppelte dc-SQUIDs

In Abbildung A.5 ist eine schematische Skizze der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Magnetometer dargestellt. Bei dieser speziellen Anordnung wird der zu messende Fluss über einen so genannten Flusstransformator in das dc-SQUID eingekoppelt. Als Flusstransformator bezeichnet man den aus Detektionsspule und Einkoppelspule bestehenden Stromkreis. Dabei sind die Detektions- und die Einkoppelspule durch supraleitende Drähte verbunden. Bei tiefen Temperaturen ist dieser Kreis vollständig supraleitend und der Fluss wird verlustfrei transformiert. Auf diese Weise ist es möglich Experimente durchzuführen, bei denen sich SQUID und Experiment nicht auf der gleichen Temperatur befinden oder räumlich im Kryostaten getrennt sind.

Um bei einer solchen Anordnung von dem Messsignal, das heißt der über dem Widerstand in dem Rückkoppelkreis abfallenden Spannung  $U$ , auf die im Experiment auftretende magnetische Flussänderung zu schließen, sind einige Umrechnungen notwendig. Eine charakteristische Größe für ein Magnetometer ist dabei die Spannung  $U_{\Phi_0}$ . Diese entspricht der Spannung  $\delta U = R\delta I_3$ , die durch einen Rückkoppelstrom  $\delta I_3$  erzeugt wird, der benötigt wird, um im SQUID eine Flussänderung von einem Flussquant  $\Phi_0$  zu kom-



**Abb. A.5:** Skizze eines dc-SQUIDs mit Flusstransformator: Flussänderungen, die in der Detektionsspule detektiert werden, werden über den Flusstransformator in das SQUID eingekoppelt. Die Messgröße ist  $\delta U$  im Rückkoppelkreis. Die in der Grafik verwendeten Abkürzungen bedeuten:

|          |                              |          |   |
|----------|------------------------------|----------|---|
| $\Phi_P$ | Fluss in der Detektionsspule | $M_{IS}$ | Gegeninduktivität zw. SQUID/Einkoppelspule  |
| $\Phi_I$ | Fluss in der Einkoppelspule  | $M_{FS}$ | Gegeninduktivität zw. SQUID/Rückkoppelspule |
| $\Phi_S$ | Fluss im SQUID               | $M_{IF}$ | Gegeninduktivität zw. Rück-/Einkoppelspule  |
| $L_P$    | Induktivität Einkoppelspule  | $I_1$    | Strom in der Einkoppelspule                 |
| $L_L$    | Induktivität Leitungen       | $I_2$    | Biasstrom des SQUIDs                        |
| $L_I$    | Induktivität Einkoppelspule  | $I_3$    | Strom im Rückkoppelkreis                    |
| $L_S$    | Induktivität SQUID           | $R$      | Widerstand des Rückkoppelkreises            |
| $L_F$    | Induktivität Rückkoppelspule | $U$      | abfallende Spannung                         |

pensieren. Die Spannungsänderung  $U_{\Phi_0}$  ergibt sich zu:

$$U_{\Phi_0} = U_{\Phi_0}^{\text{offen}} \frac{1}{1 - \frac{M_{IS}M_{IF}}{M_{FS}L_I} \frac{L_I}{L_P + L_L + L_I}} \quad (\text{A.1})$$

Der Wert  $U_{\Phi_0}^{\text{offen}}$  bezeichnet hierbei die Spannungsänderung, die einer Flussänderung um ein Flussquant entspricht, wenn der Einkoppelkreis nicht vollständig supraleitend ist. In [Fleischmann1998] findet man folgenden Ausdruck, der den Zusammenhang zwischen einer Flussänderung in der Detektionsspule um  $\delta\Phi_P$  und der daraus folgenden Spannungsänderung  $\delta U$  beschreibt:

$$\delta U = U_{\Phi_0}^{\text{offen}} \frac{\delta\Phi_P}{\Phi_0} \left( \frac{M_{IS}}{L_P + L_L + L_I \left(1 - \frac{M_{IS}M_{IF}}{M_{FS}L_I}\right)} \right) = U_{\Phi_0} \frac{M_{IS}}{L_P + L_L + L_I} \frac{\delta\Phi_P}{\Phi_0} \quad (\text{A.2})$$

Damit konnte gezeigt werden, dass die Spannungsänderung  $\delta U$  linear von der Flussänderung  $\delta\Phi_P$  abhängt. In Tabelle A.1 sind die Parameter der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten kommerziellen dc-SQUID-Magnetometer aufgeführt.

Die beiden SQUID-Systeme unterschieden sich dadurch, dass die SQUIDs vom Typ 2 so aufgebaut sind, dass die Kopplung zwischen Einkoppelspule und Rückkoppelspule nahezu Null ist. Dadurch wird die Spannung  $U_{\Phi_0} = U_{\Phi_0}^{\text{offen}}$  unabhängig davon, welche Induktivität die Detektionsspule des Flusstransformators hat. Für den Betrieb der SQUIDs macht dies keinen Unterschied.

|                                  | Typ 1  | Typ 2        |
|----------------------------------|--------|--------------|
| $L_I$                            | 620 nH | 1,88 $\mu$ H |
| $M_{IS}$                         | 10 nH  | 11 nH        |
| $\frac{M_{IS}M_{IF}}{M_{FS}L_I}$ | 0,922  | $\propto 0$  |

**Tab. A.1:** Technische Daten der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten kommerziellen dc-SQUID–Systeme.

Typ 1: pcSQUID PC-1000, STAR Cryoelectronics, Santa Fe, New Mexico

Typ 2: Low- $T_C$  dc SQUID Model SQD1165, Conductus, Inc., 969 W. Maude Avenue, Sunnyvale, CA 94086

#### A.2.4 Rauschen

Eine für die Messungen wichtige und charakteristische Eigenschaft von dc-SQUIDs ist das niedrige, intrinsische Flussrauschen. Das Rauschspektrum eines dc-SQUIDs setzt sich im Wesentlichen aus zwei Komponenten zusammen: Die eine Komponente bildet ein so genannte weiße Rauschen, das heißt das Flussrauschen besitzt eine konstante spektrale Leistungsdichte von etwa  $3 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ . Die andere Komponente ist ein zusätzlicher Beitrag in Form eines  $1/f$ –Spektrums, das vor allem bei tiefen Frequenzen wichtig wird. Verursacht wird das weiße Rauschen durch das Stromrauschen in den normalleitenden Shuntwiderständen, die parallel zu den Josephson–Kontakten angebracht sind. Wie schon weiter oben diskutiert handelt es sich hier um thermisches Johnson–Rauschen, das frequenzunabhängig ist. Die Ursachen des zusätzlichen  $1/f$ –Beitrag bei tiefen Frequenzen wurden in der Literatur schon häufig diskutiert. Für die Messungen, die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellt werden, ist dieser Beitrag jedoch nicht von Interesse, da die Rauschspektren bei Frequenzen ausgewertet werden, bei denen der  $1/f$ –Anteil bereits vernachlässigt werden kann.



## Literaturverzeichnis

- [Anderson1972] P. W. Anderson, B. I. Halperin, C. M. Varma, *Philos. Mag.* **25** (1972) 1.
- [Arnold1975] W. Arnold, S. Hunklinger, *Solid States Comm.* **17** (1975) 883.
- [Åström2006] J. Åström *et al.*, *Phys. Lett. A* **356** (2006) 262.
- [Bernard1978] L. Bernard *et al.*, *J. Phys. Paris* **39** (1978) 126.
- [Black1977] J. L. Black, B. I. Halperin, *Phys. Rev. B* **16** (1977) 2879.
- [Black1978] J. L. Black, *Phys. Rev. B* **17** (1978) 2740.
- [Bosch2003] W. A. Bosch *et al.*, *AIP Conference Proceedings* **684** (2003) 155.
- [Bosch2005] W. A. Bosch *et al.*, *J. Low Temp. Phys.* **138** (2005) 935.
- [Bosch2006] W. A. Bosch *et al.*, *AIP Conference Proceedings* **850** (2006) 1589.
- [Bremer1994] J. Bremer, A. L. Reesink, M. Durieux, *Physica B* **194** (1994) 813.
- [Burin1989] A. L. Burin, L. A. Maksimov, I. Ya. Polishchuk, *JETP Lett.* **49** (1989) 784.
- [Burin1995] A. L. Burin, *J. Low. Temp.* **100** (1995) 309.
- [Callegaro2006] L. Callegaro, M. Pisani, *Appl. Phys. Lett.* **89** (2006) 034105.
- [Callen1951] H. B. Callen, T. A. Welton, *Phys. Rev.* **83** (1951) 34.
- [Childs2000] P. R. N. Childs, J. R. Greenwood, C. A. Long, *Rev. Sci. Instr.* **71** (2000) 2959.
- [Classen2000] J. Classen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 2176.
- [Classen2002] J. Classen *et al.*, *Adv. in Solid State Phys.* **40** (2002) 279.
- [Debye1912] P. Debye, *Ann. d. Physik* **344** (1912) 789.
- [DeYoreo1983] J. J. DeYoreo *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **51** (1983) 1050.
- [Engert2007] J. Engert *et al.*, *Proceedings Tempmeko2007*, to be published.
- [Enss1990] C. Enss, C. Bechinger, M. v. Schickfus *Phonons 89*, Editor: S. Hunklinger, W. Ludwig, G. Weiss, World Scientific Publishing (1990) 474.

- [Enss1996] C. Enss *et al.*, Czech. J. Phys. **46** (1996) 3287.
- [Enss2000] C. Enss *et al.*, J. Low Temp. Phys. **121** (2000) 137.
- [Enss2002] C. Enss, Physica B **316-317** (2002) 12.
- [Enss2005] C. Enss, S. Hunklinger, *Low-Temperature Physics*, Springer-Verlag, Berlin (2005).
- [Fleischmann1998] A. Fleischmann, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (1998).
- [Fleischmann2003] A. Fleischmann, *Magnetische Mikrokalorimeter: Hochauflösende Röntgenspektroskopie mit energiedispersiven Detektoren*, Dissertation, Universität Heidelberg (2003).
- [Fleischmann2005] A. Fleischmann, C. Enss, G. M. Seidel *Metallic Magnetic Calorimeters* in Topics Appl. Phys. **99**, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2005) 168-174.
- [GlassOnline] GlassOnline, <http://www.glassonline.com/infoserv/history.html>, 10. 08. 2007.
- [Goering1993] H. Goering, H.-G. Roos, L. Tobiska, *Finite-Element-Methode*, Akademie-Verlag, Berlin (1993).
- [Golding1976] B. Golding, J. E. Graebner, Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 852.
- [Gorishnyy2005] T. Gorishnyy *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 115501.
- [Gurevich2003] V. L. Gurevich, D. A. Parshin, H. R. Schober, Phys. Rev. B **67** (2003) 094203.
- [Hao2004] H.-Y. Hao *et al.*, Rev. Sci. Instr. **75** (2004) 2718.
- [Hao2004b] H.-Y. Hao, A. Fleischmann, C. Enss, S. Hunklinger, phys. stat. sol. (c) **1** (2004) 2908.
- [Horst1999] K. Horst, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (1999).
- [Houbertz2005] R. Houbertz *et al.*, Phys. Unserer Zeit **6** (2005) 278.
- [Jäckle1976] J. Jäckle *et al.*, J. Non-Cryst. Solids **20** (1976) 365.
- [Jackson2002] J. D. Jackson, *Klassische Elektrodynamik*, Gryter, 3. Auflage (2002).
- [Johnson1928] J. B. Johnson, Phys. Rev. **32** (1928) 97.
- [Kagan2000] Yu. Kagan, L. A. Maksimov, I. Ya. Polishchuk, JETP Lett. **71** (2000) 69.

- [Karpov1983] V. G. Karpov, M. I. Klinger, F. N. Ignat'ev, Sov. Phys. JETP **57** (1983) 439.
- [Kondo1966] J. Kondo, Progr. Theoret. Phys. (Kyoto) **42** (1966) 37.
- [Koshenevisan1979] M. Koshenevisan *et al.*, Phys. Rev. B **19** (1979) 3873.
- [Kühn2003] R. Kühn, Europhys. Lett. **62** (2003) 313.
- [Lasjaunias1975] J. C. Lasjaunias *et al.*, Solid State Comm. **17** (1975) 1045.
- [Ludwig2000] S. Ludwig, C. Enss, S. Hunklinger, Physica B **284-288** (2000) 1139.
- [Ludwig2003] S. Ludwig *et al.*, J. Low Temp. Phys. **131** (2003) 89.
- [Lusher2001] C. P. Lusher *et al.*, Meas. Sci. Technol. **12** (2001) 1.
- [Moy1984] D. Moy, J. N. Dobbs, A. C. Anderson, Phys. Rev. B **29** (1984) 2160.
- [Nagel2004] P. Nagel *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92** (2004) 245511.
- [Natelson1998] D. Natelson, D. Rosenberg, D. D. Osheroff, Phys. Ref. Lett. **80** (1998) 4689.
- [Nazaretski2004a] E. Nazaretski *et al.*, J. Low Temp. Phys. **134** (2004) 407.
- [Nazaretski2004b] E. Nazaretski *et al.*, J. Low Temp. Phys. **137** (2004) 609.
- [Neumann2003] M. Neumann, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2003).
- [Nyquist1928] H. Nyquist, Phys. Rev. **32** (1928) 110.
- [Parshin1993] D. A. Parshin, Phys. Scr. **T49** (1993) 180.
- [Parshin1994] D. A. Parshin, Phys. Rev. B **49** (1994) 9400.
- [Parshin2004] D. Parshin, J. Low Temp. Phys. **137** (2004) 233.
- [Pekola2004] J. Pekola, J. Low Temp. Phys. **135** (2004) 723.
- [Phillips1972] W. A. Phillips, J. Low Temp. Phys. **7** (1972) 351.
- [Phillips1981] W. A. Phillips, *Topics in Current Physics, Vol. 24*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1981).
- [Pobell2007] F. Pobell *Matter and Methods at Low Temperatures*, Springer-Verlag, Berlin, 3. Auflage (2007).
- [Pohl2002] R. O. Pohl, X. Liu, E. Thompson, Rev. Mod. Phys. **74** (2002) 991.

- [Rogge1996] S. Rogge, D. Natelson, D. D. Osheroff, Phys. Rev. Lett. **76**, (1996) 3136.
- [Rosenberg2000] D. Rosenberg, D. Natelson, D. D. Osheroff, J. Low Temp. Phys. **120** (2000) 259.
- [Roukes1985] M. L. Roukes *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 422.
- [Rusby2002] R. L. Rusby *et al.*, J. Low. Temp. Phys. **126** (2002) 633.
- [Rusby2003] R. L. Rusby *et al.*, AIP Conference Proceedings **684** (2003) 89.
- [Salvino1994] D. J. Salvino *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 268.
- [Schickfus1978] M. v. Schickfus *et al.*, J. Phys. Paris **39** (1978) 959.
- [Schirmacher2007] W. Schirmacher, G. Ruocco, T. Scopigno, Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 025501.
- [Schöttl2005] S. Schöttl *et al.*, J. Low Temp. Phys. **138** (2005) 941.
- [Schuster1990] G. Schuster *et al.*, Physica B **165** (1990) 31.
- [Schuster1994] G. Schuster, D. Hechtfisher, B. Fellmuth, Rep. Prog. Phys. **57** (1994) 187.
- [Sigalas2005] M. Sigalas *et al.*, Z. Kristallogr. **220** (2005) 765.
- [Soulen1994] R. J. Soulen, W. E. Fogle, J. H. Colwell, J. Low Temp. Phys. **94** (1994) 385.
- [Stephens1973] R. B. Stephens, Phys. Rev. B **8** (1973) 2896.
- [Strehlow1998] P. Strehlow, C. Enss, S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 5361.
- [Strehlow1999] P. Strehlow, M. Meißner, Physica B **263-264** (1999) 273.
- [Strehlow2000] P. Strehlow *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 1938.
- [Swartz1989] E. T. Swartz, R. O. Pohl, Rev. Mod. Phys. **61** (1989) 407.
- [Tao1971] L. J. Tao *et al.*, Phys. Rev. B **4** (1971) 5.
- [Trachenko2002] K. Trachenko, M. T. Dove, V. Heine, Phys. Rev. B **65** (2002) 092201.
- [Uzunbajakau2003] S. Uzunbajakau *et al.*, IEEE Trans. Magn. **39** (2003) 2018.
- [Watson2003] S. K. Watson, R. O. Pohl, Phys. Rev. B **68** (2003) 104203.
- [Weber1956] J. Weber, Phys. Rev. **101** (1956) 1620.
- [Weinstock1996] H. Weinstock *SQUID Sensors: Fundamentals, Fabrication and Applications*, Kluwer Academic Publishers, Niederlande (1996).

- 
- [Weiss1995] R. Weiss, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (1995).
- [Wellstood1994] F. C. Wellstood, C. Urbina, J. Clarke, Phys. Rev. B **49** (1994) 5942.
- [White1996] D. R. White *et al.*, Metrologia **33** (1996) 325.
- [Wolf2005] S. Wolf, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2005).
- [Würger2002] A. Würger *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 237601.
- [Würger2004a] A. Würger, J. Low Temp. Phys. **137** (2004) 143.
- [Würger2004b] A. Würger, D. Bodea, Chem. Phys. **296** (2004) 301.
- [Yao2006] W.-M. Yao *et al.*, Journal of Physics G **33** (2006) 1.
- [Yu1985] C. C. Yu, Phys. Rev. B **32** (1985) 4220.
- [Zaitlin1975] M. P. Zaitlin, A. C. Anderson, Phys. Rev. B **12** (1975) 4475.
- [Zeller1971] R. C. Zeller, R. O. Pohl, Phys. Rev. B **4** (1971) 2029.



# Danksagung

Am Ende dieser Arbeit angekommen möchte ich allen danken, die direkt oder indirekt zum Gelingen dieser Arbeit wesentlich beigetragen haben. Mein Dank gilt

- Prof. C. Enss für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, die interessante Themenstellung und die Unterstützung bei allen Problemen,
- Prof. S. Hunklinger, in dessen Arbeitsgruppe ich meine Doktorarbeit beginnen durfte,
- Prof. H. Horner für die freundliche Übernahme des Zweitgutachtens dieser Arbeit,
- Dr. Andreas Fleischmann, der dem Projekt immer mit Rat und Tat zur Seite stand,
- Dr. Andreas Reiser, der das Helium nie versiegen ließ,
- Dr. Robert Weis, der meinen Rechner im letzten Moment zum Laufen brachte,
- Ralf Achenbach, der die kniffligsten Bonds setzen kann, und Thomas Wolf für die technische Unterstützung,
- Werner Lamadé und den Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt, für die kein Teil zu klein war,
- Nicole Plath für die Hilfe bei der Untersuchung der Proben,
- Dr. Hsin-Yi Hao und Michael Neumann, meinen Vorgängern auf dem Wärmeleitfähigkeitsprojekt, auf deren Arbeiten und Experimenten das Projekt aufbauen konnte,
- den „Urgesteinen“ Dr. Gernot Kasper und Dr. Manfred von Schickfus, von deren langjährigen Erfahrungen ich profitieren durfte,
- Sabine Wolf, meiner Diplomandin, mit der ich eine lustige Zeit im Labor und Büro erleben durfte,
- den Miniforschern Elena Hassinger, Borge Hemmerling, Sabine Wolf, Knut Wellnitz und Angela Halfar, die mit ihrer Forschung wichtige Beiträge für diese Arbeit lieferten,

- all meinen Kollegen, die mich in der Zeit meiner Promotion begleitet haben: Xuwei Cao, Talgat Daniyarow, Loredana Fleischmann, Christian Höhn, Sandra Jenewein, Sebastian Kempf, Stefan Lausberg, Lena Maerten, Andreas Pabinger, Mihai Petrovici, Christian Pies, Jan-Patrick Porst, Hannes Rotzinger, Sönke Schäfer und Richard Weldle für die Unterstützung bei Problemen und interessante Einsichten in den Lauf der Welt beim Feiern und beim gemeinsamen Mensaessen,
- den Parisfahrern Masoomeh Bazrafshan, Gudrun Fickenscher, Angela Halfar und Florian Klotz für ein paar lustige Tage auf der Phonons2007,
- den Ehemaligen Catherine Fischer, Daniel Haug, Marc Layer, Marek Bartkowiak, Markus Heitz, Markus Linck und Stefanie Riegel, die auch nach der Abgabe ihrer Arbeiten immer mit Interesse das Gedeihen des Projektes weiter verfolgt haben.

Meinem Freund Andreas gilt mein ganz besonderer Dank. Er stand mir immer zur Seite, ob es sich dabei um einen Mitternachtseinsatz im Labor handelte oder um den ganz normalen Wahnsinn. Er schaffte es immer, das Lachen wiederzubringen.

Zuletzt möchte ich meiner Familie danken, meinen Eltern und meiner Schwester, ohne deren Unterstützung weder das Studium noch die Promotion möglich gewesen wären. Vielen Dank Euch allen.