

**Einfluss der Leitungselektronen auf
die Dynamik atomarer Tunnelsysteme
in ungeordneten Festkörpern**

Relaxationsprozesse in metallischen Gläsern und
ungeordneten dünnen Aluminiumoxid-Schichten

Arnold Seiler

Arnold Seiler

Einfluss der Leitungselektronen auf die Dynamik atomarer Tunnelsysteme in ungeordneten Festkörpern

Relaxationsprozesse in metallischen Gläsern und
ungeordneten dünnen Aluminiumoxid-Schichten

Experimental Condensed Matter Physics
Band 22

Herausgeber

Physikalisches Institut

Prof. Dr. David Hunger

Prof. Dr. Alexey Ustinov

Prof. Dr. Georg Weiß

Prof. Dr. Wolfgang Wernsdorfer

Prof. Dr. Wulf Wulfhekel

Eine Übersicht aller bisher in dieser Schriftenreihe erschienenen
Bände finden Sie am Ende des Buchs.

Einfluss der Leitungselektronen auf die Dynamik atomarer Tunnelsysteme in ungeordneten Festkörpern

Relaxationsprozesse in metallischen Gläsern und
ungeordneten dünnen Aluminiumoxid-Schichten

von
Arnold Seiler

Dissertation, Karlsruher Institut für Technologie
KIT-Fakultät für Physik

Tag der mündlichen Prüfung: 22. Juni 2018
Referenten: Prof. Dr. Georg Weiß, Prof. Dr. Alexander Shnirman

Impressum



Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
KIT Scientific Publishing
Straße am Forum 2
D-76131 Karlsruhe

KIT Scientific Publishing is a registered trademark
of Karlsruhe Institute of Technology.

Reprint using the book cover is not allowed.

www.ksp.kit.edu



*This document – excluding the cover, pictures and graphs – is licensed
under a Creative Commons Attribution-Share Alike 4.0 International License
(CC BY-SA 4.0): <https://creativecommons.org/licenses/by-sa/4.0/deed.en>*



*The cover page is licensed under a Creative Commons
Attribution-No Derivatives 4.0 International License (CC BY-ND 4.0):
<https://creativecommons.org/licenses/by-nd/4.0/deed.en>*

Print on Demand 2019 – Gedruckt auf FSC-zertifiziertem Papier

ISSN 2191-9925

ISBN 978-3-7315-0870-0

DOI 10.5445/KSP/1000087939

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Amorphe Festkörper	3
2.1	Atomare Tunnelsysteme	5
2.1.1	Kopplung an externe Felder	6
2.1.2	Suszeptibilität eines Ensembles	7
2.1.2.1	Transversale Suszeptibilität	8
2.1.2.2	Longitudinale Suszeptibilität	10
2.2	Relaxationsraten der Tunnelsysteme	11
2.2.1	Linienbreite und Relaxationsrate	15
2.2.1.1	Dephasierungsprozesse	15
2.3	Standard-Tunnelmodell	17
2.3.1	Verteilung der Tunnelsysteme	18
2.3.2	Schallgeschwindigkeit und Permittivität	19
2.3.2.1	Akustische Suszeptibilität	19
2.3.2.2	Dielektrische Suszeptibilität	21
2.3.3	Suszeptibilität eines Glases	22
2.3.4	Numerische Methoden	23
2.3.4.1	Integrationsgrenzen	24
2.3.4.2	Konstante Linienbreite	27
2.3.4.3	Metallische Gläser	31
2.3.4.4	Metallische Gläser – schnelle Relaxation	33
2.3.4.5	Relaxationsraten aus der Messung	36
3	Experimentelle Methoden	39
3.1	Metallisches Glas	40
3.1.1	Herstellung des metallischen Glases	40
3.1.2	Vibrating Reed	40
3.1.2.1	Messprinzip	41
3.1.2.2	Messung der Resonanzfrequenz und der Güte	42

3.1.2.3	Geometrie und Simulation der Moden	43
3.1.2.4	Messung der Biegeschwingung	45
3.1.3	Ultraschall	47
3.1.3.1	Phasensensitive Schallgeschwindigkeitsmessung	47
3.1.3.2	Ultraschall-Dämpfung	51
3.2	Ungeordnetes Aluminium-Oxid	51
3.2.1	Herstellung der Plattenkondensatoren	52
3.2.2	Messung der Kapazitäten	54
3.2.2.1	Kapazität und Verlust	55
4	Messungen an ungeordneten Materialien	57
4.1	Akustische Eigenschaften des metallischen Glases	57
4.1.1	Supraleitender Zustand	58
4.1.2	Kopplungsstärken in Zr-basierten metallischen Gläsern . .	60
4.1.3	Normalleitender Zustand	63
4.1.4	Dichte der TS	68
4.1.4.1	Transversaler Ultraschall – Energieabhängigkeit der Zustandsdichte	69
4.1.5	Zusammenfassung Ultraschall in metallischen Gläsern . .	72
4.2	Dielektrische Eigenschaften des AlO_x	73
4.2.1	Mikrostruktur des Aluminiumoxid	74
4.2.2	Kapazitätsmessung	75
4.2.2.1	Frequenzabhängigkeit	76
4.2.2.2	Kapazitätsmessung im Magnetfeld	79
4.2.2.3	Nichtlineare Polarisierung	82
4.2.3	Zusammenfassung dielektrische Messungen	84
5	Zusammenfassung	85
	Abstract	87
	Literatur	89

1 Einleitung

Gläser sind in der Menschheitsgeschichte bereits seit der Steinzeit ein wichtiger Rohstoff. Damals wurden aus natürlich entstandenen Gläsern Werkzeuge wie Klingen hergestellt. Im Lauf der Zeit konnten immer mehr künstliche Gläser für die verschiedensten Anwendungen hergestellt werden. Die bekanntesten Vertreter, die Silikatgläser, die durch ihre optische Transparenz für Fenster verwendet werden, repräsentieren nur einen kleinen Bruchteil dessen, was moderne Gläser zu leisten vermögen. Trotz dieser Präsenz im Alltag bleibt das Verständnis der mikroskopischen Struktur und die daraus folgenden makroskopischen Eigenschaften hinter dem kristallinen Materialien zurück. Ein Grund für diese Diskrepanz ist die fehlende Fernordnung der Atome, welche in Kristallen viele mathematischen Methoden zur Beschreibung erst ermöglicht. Dabei ist es gerade diese Unordnung, die einigen Gläsern ihre außergewöhnlichen Eigenschaften verleihen. Metallische Gläser sind ein Vertreter moderner Gläser, denen das Potential zugesagt wird, bekannte Anwendungen anderer Metalle zu revolutionieren.

Seit ZELLER und POHL vor 40 Jahren in der spezifischen Wärme auch außergewöhnlichen Eigenschaften bei tiefen Temperaturen entdeckten, sind weitere Besonderheiten der Schallgeschwindigkeit und Permittivität hinzu gekommen. Erstaunlicherweise lassen sich viele dieser Eigenschaften unabhängig von der Zusammensetzung des Glases durch eine einfache Annahme erklären: Durch die Unordnung existieren Atome oder Gruppen von Atomen, die auch bei tiefsten Temperaturen mehrere energetisch günstige Positionen einnehmen können – die Tunnelsysteme.

Mit der Entwicklung „künstlicher Atome“ aus supraleitenden Schaltkreisen, den Qubits, sind diese Tunnelsysteme zu einer Störquelle geworden. Da sie mit den elektrischen Feldern der Qubits und Resonatoren einerseits, mit der Deformation durch Phononen und durch Anregung von Leitungselektronen andererseits wechselwirken, stellen sie einen wichtigen Verlustmechanismus der sonst stark von der Umgebung entkoppelten Schaltkreise dar.

In dieser Arbeit wird zum einen die Wechselwirkung der Tunnelsysteme mit Leitungselektronen in supraleitenden metallischen Gläsern untersucht, die es erlauben, diese Wechselwirkung durch ein starkes Magnetfeld ein- und auszuschalten indem die Supraleitung unterdrückt wird. Zum anderen werden dünne dielektrische Schichten aus ungeordnetem Aluminiumoxid in Plattenkondensatoren untersucht, da das Materialsystem aus Aluminium und seinem Oxid ein wichtiger Baustein für die Herstellung der supraleitenden Schaltkreise ist.

2 Amorphe Festkörper

Mit der Entwicklung des mikroskopischen Verständnisses von kristallinen Festkörpern ging man lange davon aus, dass ungeordnete Materialien sich bei tiefen Temperaturen in einigen Aspekten nicht wesentlich anders verhalten sollten. Mit der Messung der spezifischen Wärme von ZELLER und POHL an Gläsern, die bei tiefen Temperaturen um Größenordnungen über einem chemisch identischen aber kristallinen Material liegt [76], änderte sich diese Erwartung drastisch. Das Bild des ungeordneten Materials wie in Abb. 2.1, das bereits deutlich früher von ZACHARIASEN vorgeschlagen wurde [73], führte durch ANDERSON und unabhängig durch PHILLIPS zur Entwicklung des Tunnelmodells, mit dem die Tieftemperatureigenschaften erklärt werden können [5, 59].

Wie im Kristall bilden die chemischen Bindungen der Atome den Ausgangspunkt für die Betrachtung eines ungeordneten oder amorphen Festkörpers. Im Kristall wird der energetisch günstigste Zustand realisiert, der die Fernordnung der Atome vorgibt. Amorphe Festkörper erreichen diesen Zustand nicht, wenn sie zu schnell aus der Schmelze abgekühlt werden. Die Abkühlraten reichen hier von wenigen Kelvin pro Minute bei Oxidgläsern wie Kalk-Natron-Glas (Fensterglas) bis $10^6 - 10^8$ K/s bei Gold-Silizium-Legierungen [44]. Elementare Metalle bilden nur unter extremen Bedingungen, wie sie beim abschreckenden Kondensieren bei tiefen Temperaturen herrschen, eine amorphe Struktur und kristallisieren bereits bei $10 - 15$ K [18].

Durch die Unordnung in der Struktur existieren für einige Atome oder Gruppen von Atomen mehrere energetisch günstige Konfigurationen, wie in Abb. 2.1 angedeutet. Diese Freiheitsgrade beeinflussen insbesondere die Tieftemperatureigenschaften, die im Folgenden anhand des Tunnelmodells vorgestellt werden. Die Grundzüge des Tunnelmodells werden hier lediglich als kurze Übersicht wiedergegeben. Einen guten Einstieg bietet das Buch *Tieftemperaturphysik* von C. ENSS und S. HUNKLINGER [30], detaillierte Diskussionen sind in [32, 40, 60, 63] zu finden.

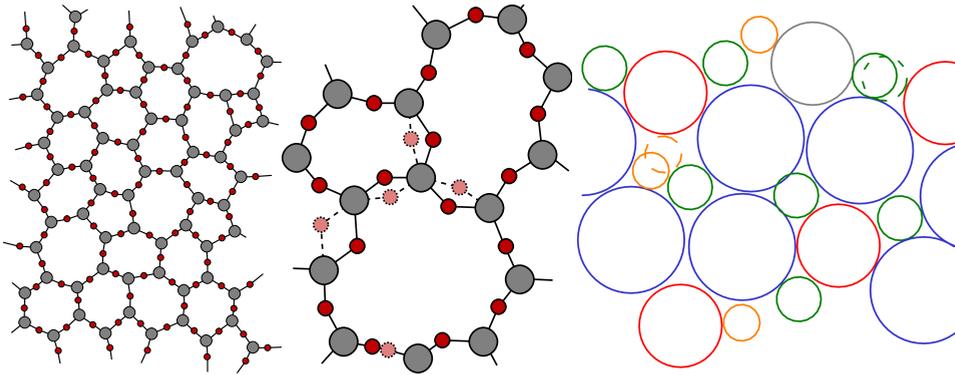


Abbildung 2.1: 2D-Projektion der Modellvorstellung der atomaren Anordnung in einem amorphen Festkörper [73]. **Links:** Die dargestellte Struktur folgt amorphem Siliziumoxid (Si_2O_3), wie es in dünnen Filmen mit Rasterkraftmikroskopie gemessen wurde [17]. Die Nahordnung des Kristalls, die durch die chemischen Bindungen gegeben ist, bleibt erhalten. Durch Variation der Bindungswinkel geht jedoch die Fernordnung verloren. **Mitte:** Durch die ungeordnete Struktur stehen einigen Atome oder Gruppen von Atomen verschiedene energetisch ähnliche Konfigurationen zur Verfügung. **Rechts:** Ein metallisches Glas kann als dichte Packung harter Kugeln angesehen werden, in der ebenfalls Atome mit mehreren möglichen Konfigurationen auftreten [50].

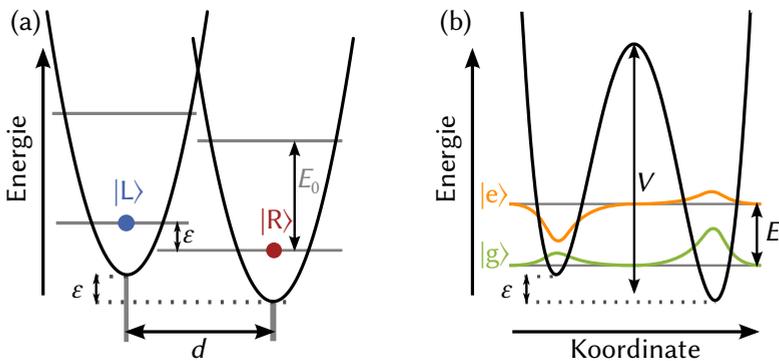


Abbildung 2.2: Zwei ähnliche Positionen eines Atoms oder einer Gruppe von Atomen entsprechen einem Teilchen im Doppelmuldenpotential. **Links:** Der Überlapp der lokalisierten Wellenfunktionen führt zu einem gekoppelten Zustand, der sich über beide Mulden erstreckt (**rechts**) (nach [56]).

2.1 Atomare Tunnelsysteme

In amorphen Festkörpern existieren Atome, die in mehreren Konfigurationen energetisch günstige Lagen haben. Diese Potentiallandschaft lässt sich im einfachsten Fall durch zwei harmonische Potentiale modellieren, die jeweils den Grundzustand $E_0 = 1/2 \hbar \omega_H$ besitzen und den Abstand d zueinander einnehmen (siehe Abb. 2.2a). Durch den Überlapp der Grundzustands-Wellenfunktion der beiden Mulden bildet sich eine gemeinsame Wellenfunktion, deren Grund- und angeregter Zustand auch im Fall einer symmetrischen Konfiguration durch die Tunnelenergie Δ getrennt sind (Abb. 2.2b). Diese Tunnelenergie lässt sich mit Hilfe der WKB-Methode¹ aus dem Abstand d , der Masse des tunnelnden Teilchens m und der Höhe der Potentialbarriere V berechnen: $\Delta = \hbar \omega_H e^{-\lambda}$ mit dem Tunnelparameter² $\lambda = d/2\hbar \cdot \sqrt{2mV}$. Für energetisch verschobene Einzelpotentiale erhält man mit der Verschiebung der beiden Mulden, der Asymmetrieenergie³ ε , für ein Teilchen in der Ortsbasis der beiden Mulden links $|L\rangle$ und rechts $|R\rangle$ den Hamiltonoperator

$$\mathcal{H}_0^{\text{LR}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \varepsilon & -\Delta \\ -\Delta & -\varepsilon \end{pmatrix} = \frac{1}{2} (\varepsilon \sigma_z^{\text{LR}} - \Delta \sigma_x^{\text{LR}}) \quad (2.1)$$

wobei $\sigma_{z/x}^{\text{LR}}$ die Pauli-Matrizen in der Ortsbasis des TS bezeichnen.

Diagonalisieren des Hamiltonoperators zu $\mathcal{H}_0^{\text{ge}} = E/2 \cdot \sigma_z^{\text{ge}}$ liefert die Energieaufspaltung eines Tunnelsystems (TS) $E = \sqrt{\varepsilon^2 + \Delta^2}$ (Abb. 2.2c), wobei σ_z^{ge} die diagonale Pauli-Matrix in der Energiebasis mit dem Grund- $|g\rangle$ und angeregten Zustand $|e\rangle$ des TS ist. Die tunnelnden Atome bilden in diesem einfachsten Fall Zwei-Zustand-Systeme, die analog zu einem Spin im Magnetfeld behandelt werden können. Ursprünglich vorgeschlagen, um die Wärmekapazität amorpher Festkörper zu beschreiben [5, 59], werden wir später sehen, dass dieses Tunnelmodell auch Vorhersagen für die dielektrischen und mechanischen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen liefert.

¹ Benannt nach G. WENTZEL, H. A. KRAMERS und L. BRILLOUIN.

² Anschaulich ist die Tunnelenergie der Überlapp der Wellenfunktionen $\Delta \propto \langle L|R\rangle$, weshalb auch der Abstand im Exponenten steht.

³ Um eine Verwechslung der Asymmetrieenergie ε mit der Permittivität ϵ zu vermeiden, werden für den griechischen Buchstaben Epsilon die Symbole *varepsilon* und *epsilon* verwendet.

2.1.1 Kopplung an externe Felder

Der Einfluss eines äußeren Feldes auf ein TS wird als longitudinale Kopplung in der Ortsbasis σ_z^{LR} modelliert. Anschaulich entspricht dies bei einem elektrischem Feld \vec{E} der Bewegung des Ladungsschwerpunktes, was einer Änderung des Dipolmoments \vec{p} entspricht. In einem mechanischen Feld koppelt die Verzerrung (*strain*) \vec{S} ebenfalls an den Ort des TS, das dadurch die Lage seines Schwerpunktes ändern kann. Im Bild des Doppelmuldenpotentials entspricht dies einer „vertikalen“, energetischen Verschiebung der beiden Mulden gegeneinander, was eine Änderung der Asymmetrieenergie $\delta\varepsilon = \vec{\gamma} \cdot \vec{S}$ bewirkt. Da die Ausrichtung der Tunnelsysteme zufällig ist und amorphe Festkörper isotrop sind, kann die tensorielle Natur der Deformation \vec{S} und des Deformationspotentials des Tunnelsystems $\vec{\gamma}$ räumlich gemittelt werden. Besitzt ein Tunnelsystem ein permanentes elektrisches Dipolmoment \vec{p} , so wird seine Asymmetrieenergie entsprechend $\delta\varepsilon = \vec{p} \cdot \vec{E}$ zusätzlich durch ein elektrisches Feld \vec{E} beeinflusst⁴. Diese Kopplungen lassen sich als Störung behandeln, wobei der Hamiltonoperator

$$\mathcal{H}_{\text{int}}^{\text{LR}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta\varepsilon & 0 \\ 0 & -\delta\varepsilon \end{pmatrix} = \frac{1}{2} (\vec{p} \cdot \vec{E} + \vec{\gamma} \cdot \vec{S}) \sigma_z^{\text{LR}} \quad (2.2)$$

zum ungestörten Fall $\mathcal{H}_0^{\text{LR}}$ addiert wird. Der Übergang in die Energiebasis des ungestörten Systems führt auf eine Form, die analog zu einem Spin im Magnetfeld behandelt werden kann:

$$\mathcal{H}_{\text{int}}^{\text{ge}} = \frac{1}{2E} \begin{pmatrix} \varepsilon & -\Delta \\ -\Delta & -\varepsilon \end{pmatrix} (\vec{p} \cdot \vec{E} + \vec{\gamma} \cdot \vec{S}) = \frac{1}{2} (D\sigma_z^{\text{ge}} - M\sigma_x^{\text{ge}}) X. \quad (2.3)$$

Die Orientierung der TS im äußeren Feld X ist in der Regel unbekannt, sie wird in der Form eines effektiven Dipolmoments $pE = \vec{p} \cdot \vec{E}$ und dem effektiven Deformationspotential $\gamma S = \vec{\gamma} \cdot \vec{S}$ berücksichtigt und in die Matrixelemente⁵ D und M absorbiert. Das Feld X kann jeweils mit dem äußeren Feld $|\vec{E}|$ oder $|\vec{S}|$ identifiziert

⁴ Der Ursprung des Orts kann für das Dipolmoment $\vec{p} = q\langle\vec{r}\rangle = q(\langle L|\vec{r}|L\rangle + \langle L|\vec{r}|R\rangle + \langle R|\vec{r}|L\rangle + \langle R|\vec{r}|R\rangle)$ so gewählt werden, dass die Außerdiagonalen verschwinden. Anschaulich gesprochen ändert sich der Schwerpunkt des Überlapps von $|L\rangle$ und $|R\rangle$ nicht, sondern liegt immer in der Mitte. Wechselt das Teilchen von $|L\rangle$ nach $|R\rangle$, so ändert sich auch sein Schwerpunkt und damit das Dipolmoment.

⁵ D wie diagonal- und M wie Übergangs-Matrixelement. Wegen $D^2 + M^2 = p^2$ bzw. γ^2 können D und M als $\cos(\Theta)$ und $\sin(\Theta)$ geschrieben werden, worauf hier jedoch verzichtet wird um den Beitrag symmetrischer und asymmetrischer TS zu verdeutlichen.

werden, so dass in einem elektrischen Feld $D = p\varepsilon/E$ und $M = p\Delta/E$ bzw. in einem elastischen Feld $D = \gamma\varepsilon/E$ und $M = \gamma\Delta/E$ wird.

2.1.2 Suszeptibilität eines Ensembles

Die TS beeinflussen durch ihre Kopplung an äußere Felder die Eigenschaften des Festkörpers maßgeblich. In dieser Arbeit wird zum einen der Einfluss eines elektrischen Feldes \vec{E} auf das Dipolmoment \vec{p} der TS untersucht, was eine Polarisation \vec{P} der TS und damit des Festkörpers erzeugt. Zum anderen wird der Einfluss einer Verzerrung \vec{S} auf die TS betrachtet, die eine Deformation der TS bewirkt, deren Kopplung durch das Deformationspotential γ beschrieben wird. In beiden Fällen wird die Antwort des Festkörpers auf ein äußeres Feld gesucht, die im Rahmen der Theorie der linearen Antwort als verallgemeinerte Suszeptibilität χ durch den KUBO-Formalismus berechnet werden kann [66]. Ebenso kann die Analogie zu der Magnetisierung eines Festkörpers durch die enthaltenen Spins im Magnetfeld benutzt und die Lösungen der BLOCH-Gleichungen [15] übertragen werden. Die verallgemeinerte Suszeptibilität setzt sich dabei aus einem Beitrag des Materials χ_{Wirt} und dem Beitrag der TS χ_{TS} zusammen. Da nur der Beitrag der TS sich bei tiefen Temperaturen ändert, kann er von dem Beitrag des umgebenden Materials getrennt werden, in dem die Änderung der Suszeptibilität $\delta\chi = \chi(T) - \chi(T_0) = \delta\chi_{\text{TS}}(T)$ betrachtet wird.

Um die Suszeptibilität für beide Fälle in der selben Notation darstellen zu können, wird hier die Umrechnung der verallgemeinerten Suszeptibilität in messbare Größen vorgestellt. Die untersuchten Materialien enthalten nicht nur ein Ensemble von TS, sondern der Tunnelparameter λ und die Asymmetrieenergie ε der TS sind breit verteilt. Nach der Integration ergeben sich noch einmal ähnliche Vorfaktoren zwischen den gemessenen Größen und der Suszeptibilität, diese Umrechnungen werden in Kap. 2.3.2 detailliert erläutert.

In einem elektrischen Feld ist die Polarisation $\vec{P} = \varepsilon_0\chi\vec{E}$ durch die dielektrische Suszeptibilität⁶ gegeben. In der linearen Antwort beschreibt die verallgemeinerte Suszeptibilität die Änderung der Polarisation \vec{P} , daher unterscheidet sie sich von der dielektrischen Suszeptibilität um den Faktor ε_0 .

⁶ Die elektrische Flussdichte im Material ist die Summe aus dem (äußeren) elektrischen Feld und der Polarisation $\vec{D} = \varepsilon_0\vec{E} + \vec{P} = \varepsilon_0(1 + \chi)\vec{E}$. Im Fall der linearen Antwort ist die Polarisation eine lineare Funktion des elektrischen Feldes, deren Proportionalitätskonstante die Suszeptibilität χ ist.

Für eine mechanische Verzerrung lässt sich aus der verallgemeinerten Suszeptibilität die Schallgeschwindigkeitsänderung des Materials berechnen, die durch $\rho\chi = v^{-2} = k^2/\omega^2$ mit der Suszeptibilität verknüpft ist [7]. Dabei enthält die Wellenzahl $k = k' + ik'' = k' + i\alpha/2$ die Abnahme der Amplitude k'' bzw. der Intensität α [30]. Kleine Änderungen des Realteils der Suszeptibilität ergeben die Schallgeschwindigkeitsänderung $\delta v/v = \delta\chi'/2\rho v^2$, die nur noch den Beitrag $\delta\chi_{\text{TS}}(T)$ der TS enthält. Der Verlust je Wellenlänge $Q^{-1} = \chi''/\rho v^2$ folgt dem Imaginärteil der Suszeptibilität.

Die Herleitung der verallgemeinerten Suszeptibilität wird hier nicht weiter ausgeführt, sie folgt im Wesentlichen dem Aufsatz *Ultrasonic properties of Glasses at low temperatures* von HUNKLINGER und ARNOLD [40]. Die verallgemeinerte Suszeptibilität, welche die dielektrische und die akustische Antwort beschreibt, wird aufgeteilt in einen *transversalen* oder resonanten Beitrag χ_{res} , der aus der Kopplung $M\sigma_x^{\text{ge}}$ folgt und einem *longitudinalen* oder Relaxationsbeitrag χ_{rel} , der durch die Relaxation der TS zu dem modulierten thermischen Gleichgewicht durch $D\sigma_z^{\text{ge}}$ entsteht.

2.1.2.1 Transversale Suszeptibilität

Für die *transversale* bzw. resonante Suszeptibilität eines Ensembles aus N identischen TS findet man, aufgeteilt in den Realteil und den Imaginärteil

$$\chi'_{\text{res}} = -NM^2 \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right) \frac{1}{\hbar} \left(\frac{(\omega - \omega_0)\tau_2^2}{1 + (\omega - \omega_0)^2\tau_2^2} - \frac{(\omega + \omega_0)\tau_2^2}{1 + (\omega + \omega_0)^2\tau_2^2} \right) \quad (2.4)$$

$$\chi''_{\text{res}} = NM^2 \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right) \frac{1}{\hbar} \left(\frac{\tau_2}{1 + (\omega - \omega_0)^2\tau_2^2} - \frac{\tau_2}{1 + (\omega + \omega_0)^2\tau_2^2} \right). \quad (2.5)$$

Wie in Abb. 2.3 dargestellt ist, nimmt die Frequenzabhängigkeit der Suszeptibilität die gleiche Form an, die auch ein LORENTZ-Oszillator zeigt. Ist die Anregungsfrequenz nahe der Resonanz $\omega \approx \omega_0$ und die Linienbreite τ_2^{-1} klein, so kann der letzte Term mit $\omega + \omega_0$ gegenüber $\omega - \omega_0$ vernachlässigt werden, was auf eine typische Resonanzkurve führt, wie sie in Abb. 2.3 nahe $\omega = \omega_0$ zu sehen ist. Diese Form ist auch häufig in der Literatur zu finden [38, 58]. Für niedrige Frequenzen liefern beide Teile den gleichen Beitrag, daher nimmt der Realteil in Abb. 2.3 für

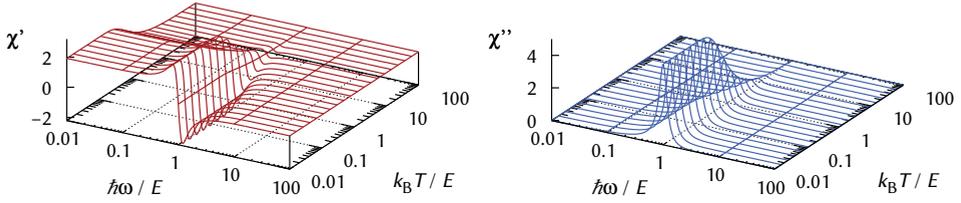


Abbildung 2.3: Realteil (**links**) und Imaginärteil (**rechts**) der transversalen Suszeptibilität eines Zwei-Niveau-Systems in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz ω und der Temperatur T normiert auf die Energieaufspaltung des Systems E .

$\omega \ll \omega_0$ den Wert 2 an. Dies wird im folgenden Abschnitt als niederfrequente Näherung behandelt.

Im Gegensatz zum harmonischen Oszillator, der dem LORENTZ-Modell der Permittivität zu Grunde liegt, können die beiden Zustände des Zwei-Niveau-System thermisch gleichbesetzt werden. Daher verschwindet der Beitrag zur transversalen Suszeptibilität bei hohen Temperaturen entsprechend der Besetzungszahldifferenz $\tanh(E/2k_B T)$, wie es in Abb. 2.3 nach hinten dargestellt ist.

Berücksichtigt man die Linienbreite in der transversalen Suszeptibilität in Gl. 2.4 und 2.5, so ist in Abb. 2.4 zu erkennen, dass für ein TS mit Energieaufspaltung E der Beitrag sowohl zum Real- als auch zum Imaginärteil der für große Linienbreiten $\tau_2^{-1} \gtrsim E/h$ verschwindet.

Für niedrige Frequenzen ω liefern im Realteil von χ beide frequenzabhängigen Terme je einen Beitrag für ein TS mit Energieaufspaltung $\hbar\omega_0$

$$\frac{(\omega \pm \omega_0)\tau_2^2}{1 + (\omega \pm \omega_0)^2\tau_2^2} \xrightarrow{\omega \ll \omega_0} \frac{\pm\omega_0}{\tau_2^{-2} + \omega_0^2} \xrightarrow{\tau_2^{-1} \ll \omega_0} \pm \frac{1}{\omega_0} \quad (2.6)$$

wodurch die Frequenzabhängigkeit in Gl. 2.4 auf den Faktor $-2/E$ reduziert wird. Die Suszeptibilität enthält dann praktisch nur noch die Temperaturabhängigkeit:

$$\chi'_{\text{res}} \stackrel{\omega \rightarrow 0}{=} 2NM^2 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \frac{1}{E}. \quad (2.7)$$

Der Verlust verschwindet für niedrige Frequenzen vollständig, da beide Terme mit $\omega + \omega_0$ und $\omega - \omega_0$ nur von der Linienbreite τ_2^{-1} abhängen

$$\frac{\tau_2}{1 + (\omega \pm \omega_0)^2\tau_2^2} \xrightarrow{\omega \ll \omega_0} \frac{\tau_2}{1 + \omega_0^2\tau_2^2} \quad (2.8)$$

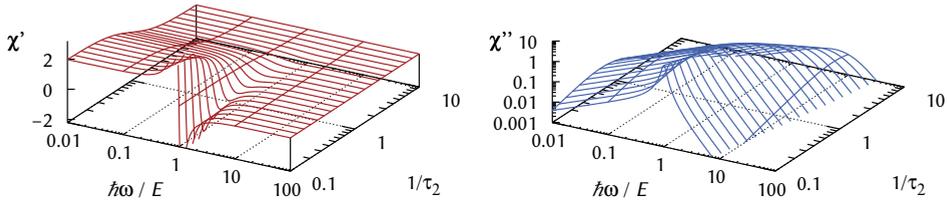


Abbildung 2.4: Transversalen Suszeptibilität in Abhängigkeit von der Linienbreite τ_2^{-1} , **links** der Realteil, **rechts** der Imaginärteil. Für große Linienbreiten, was großen Relaxationsraten entspricht, verschwindet der Beitrag durch den resonanten Prozess. Trotz konstanter Energieaufspaltung E sinkt die Resonanzfrequenz ω_0 mit zunehmender Linienbreite, was am Imaginärteil (**rechts**) durch die Verschiebung des Maximums zu höheren $\hbar\omega/E$ zu erkennen ist.

und sich für kleine Frequenzen gerade aufheben $\chi''_{\text{res}} \stackrel{\omega \rightarrow 0}{=} 0$. Der Beitrag der Tunnelsysteme zur transversalen Suszeptibilität ist somit für $\omega \ll \omega_0$ über einen weiten Bereich unabhängig von der Frequenz ω , mit der sie angeregt werden. Der Realteil der Suszeptibilität hängt lediglich von der Temperatur ab, welche die Besetzungszahldifferenz bestimmt.

2.1.2.2 Longitudinale Suszeptibilität

Die *longitudinale* Suszeptibilität, die eine Relaxation der TS hin zum thermischen Gleichgewicht beschreibt, folgt ebenfalls aus den BLOCH-Gleichungen. Dort wird ein phänomenologischer Ansatz für einen allgemeinen Relaxationsprozess angenommen, der die Relaxation der Polarisation \vec{P} in einem äußeren Feld hin zu dem stationären Gleichgewichtszustand \vec{P}_∞ , der nach unendlich langer Wartezeit erreicht wird, beschreibt [15, 30]:

$$-\frac{dP}{dt} = \frac{P - P_\infty}{\tau}. \quad (2.9)$$

Mit der Relaxationszeit-Näherung führt dies für ein äußeres Wechselfeld der Frequenz ω zu der Suszeptibilität, aufgeteilt in Real- und Imaginärteil:

$$\chi'_{\text{rel}} = -2ND^2 \frac{\partial}{\partial E} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \cdot \frac{1}{1 + (\omega\tau_1)^2} \quad (2.10)$$

$$\chi''_{\text{rel}} = -2ND^2 \frac{\partial}{\partial E} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \cdot \frac{\omega\tau_1}{1 + (\omega\tau_1)^2} \quad (2.11)$$

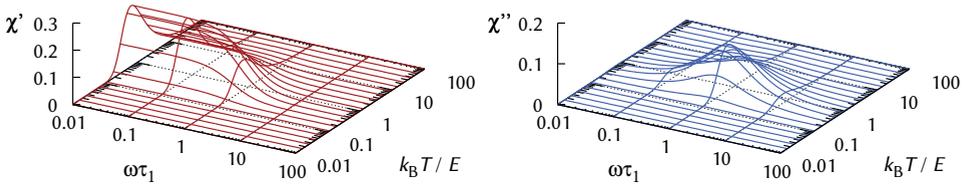


Abbildung 2.5: Longitudinale Suszeptibilität durch Relaxation: **Links** der Realteil, der die Polarisierbarkeit beschreibt und **rechts** der Imaginärteil, der zu Verlusten führt.

Für niedrige Frequenzen $\omega \ll \tau_1^{-1}$ kann die thermische Besetzung eines Ensembles von TS der Modulation der Energie E immer folgen. Bei $E \approx k_B T$ ist die Änderung der Besetzungszahldifferenz bei Variation der Energie $-\partial/\partial E \tanh(E/2k_B T)$ groß, daher hat das äußeren Feld durch Modulation der Energie E einen großen Einfluss auf die TS. In Abb. 2.5 ist dies am Anstieg des Realteils zum linken Rand erkennbar. Der Verlust bei diesem Prozess ist dann besonders groß, wenn die Rate der Umbesetzung τ_1^{-1} gerade der Modulationsfrequenz ω entspricht, was zu dem Maximum bei $\omega\tau_1^{-1} \approx k_B T/E \approx 1$ in Abb. 2.5 (rechts) führt.

2.2 Relaxationsraten der Tunnelsysteme

Die in den BLOCH-Gleichungen phänomenologisch angenommenen Relaxationszeiten lassen sich durch Modelle für die Kopplung der TS an ihre Umgebung beschreiben. Die Wechselwirkung mit Phononen und Elektronen ermöglicht es den TS, Energie mit der Umgebung auszutauschen und so in ein thermisches Gleichgewicht zu kommen. Da diese Energierelaxation die Lebensdauer τ_1 eines Zustands begrenzt, ist auch die Linienbreite der resonanten Übergänge endlich, wie es durch die Phasenkohärenzzeit τ_2 beschrieben wird. Die Kohärenzzeit kann durch zusätzlich, reine Dephasierungsprozesse deutlich kürzer sein: $\tau_2^{-1} = 1/2\tau_1^{-1} + \tau_\phi^{-1}$. Im Folgenden werden die für diese Arbeit wichtigsten Energie-Relaxationsprozesse vorgestellt.

Wechselwirkung mit Phononen Bei tiefen Temperaturen wird die Energie-Relaxation in dielektrischen Gläsern durch den Ein-Phonon-Prozess dominiert. Durch die Wechselwirkung mit einem äußeren Verzerrungsfeld in Gl. 2.2 koppelt die Deformation durch Phononen an die TS. Die Übergangsraten folgen aus der transversalen σ_x^{ge} -Kopplung der TS an die thermischen Phononen und liefern

mit Hilfe von FERMI's Goldener Regel und der Zustandsdichte⁷ $D(\omega) \propto \omega^2$ der Phononen [41]

$$\tau_{\text{Ph}}^{-1} = \left(\frac{\gamma_l^2}{\nu_l^5} + 2 \frac{\gamma_t^2}{\nu_t^5} \right) \left(\frac{\Delta}{E} \right)^2 \frac{E^3}{2\pi\rho\hbar^4} \coth \left(\frac{E}{2k_B T} \right). \quad (2.12)$$

Die Messgröße wird später die Variation der Suszeptibilität in Abhängigkeit von der Temperatur bei gegebener Anregungsfrequenz sein. Betrachtet man nicht nur ein Ensemble von TS mit wohldefinierter Energieaufspaltung E , sondern eine breite Verteilung, in der TS aller Energien vorkommen, stellt sich die Frage, welche Energie die Dynamik dominiert.

Im Fall der resonanten Absorption, beschrieben durch den Imaginärteil der transversalen Suszeptibilität (Gl. 2.5), ist die Energieaufspaltung der Tunnel-systeme durch die Anregung $E = \hbar\omega$ festgelegt. Somit ist nur eine schwache Temperaturabhängigkeit durch den Kotangens Hyperbolicus vorhanden, jedoch eine E^3 -Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz.

Der Realteil der transversalen Suszeptibilität (Gl. 2.4), der resonante Prozess, erhält seine Temperaturabhängigkeit durch die Anzahl der TS im Grundzustand, welche durch die thermischen Besetzungszahlen der TS gegeben ist. Die Energieaufspaltung E der TS, deren Besetzungszahl sich bei einer Variation der Temperatur ändert, ist gerade durch die thermische Energie $k_B T$ bestimmt. Daher folgt die Relaxationsrate dieser TS einer T^3 -Abhängigkeit.

Im Fall der longitudinalen Suszeptibilität (Gl. 2.10) spielen nur TS eine Rolle, bei denen durch Modulation der Energieaufspaltung eine Umbesetzung des thermischen Gleichgewichts stattfinden kann, daher ist $E \approx k_B T$. Für diese TS findet man daher ebenfalls eine T^3 -Abhängigkeit der Energie-Relaxationsrate.

Bei Temperaturen oberhalb etwa 1 K kann zudem Relaxation durch Mehrphononenprozesse wie den Raman-Prozess stattfinden, die eine stärkere Temperaturabhängigkeit als T^3 liefern. Von dem Mehrphononen-Prozess findet dann ein Übergang zu thermisch aktiviertem Überwinden der Barriere statt, so dass die Rate exponentiell ansteigt und einem Arrhenius-Gesetz folgt [40]. Diese Prozesse werden hier nicht weiter diskutiert, da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf dem Bereich nahe und unterhalb T_C der verwendeten Materialien und damit unter ca. 2 K liegt.

⁷ Vereinfachend wird die Zustandsdichte nach dem DEBYE-Modell angenommen, was für kleine Energien meist eine gute Näherung ist.

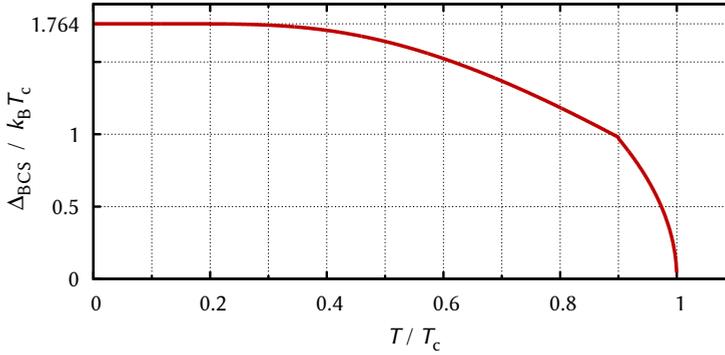


Abbildung 2.6: Verwendete Näherung der reduzierten temperaturabhängigen BCS-Energielücke [43, 69, 68].

Wechselwirkung mit Elektronen In metallischen Systemen bietet die Wechselwirkung mit Leitungselektronen einen weiteren wichtigen Relaxationskanal. Die Energie-Relaxationszeiten τ_1 von Tunnelsystemen in metallischen Gläsern liegen bei Temperaturen $T \lesssim 1$ K für Tunnelsysteme mit Energieaufspaltung $E/h \approx 1$ GHz in der Größenordnung von 1 ns [14], d.h. die Linienbreite $h\tau_2^{-1}$ entspricht etwa der Energieaufspaltung.

Die Energie-Relaxationsrate der TS durch Wechselwirkung mit Elektronen nach BLACK und GOLDING ist [36, 14]

$$\tau_{\text{El}}^{-1} = W_{\text{El}}^2 \cdot \frac{\pi}{4\hbar} \cdot \left(\frac{\Delta}{E}\right)^2 \cdot E \cdot \coth\left(\frac{E}{2k_B T}\right). \quad (2.13)$$

In der Näherung $E \ll k_B T$ wird $\coth(1/x) \approx x$ und damit vereinfacht sich die Relaxationsrate durch Elektronen zu $\tau_{\text{El}}^{-1} = W_{\text{El}}^2 \cdot \pi/2\hbar \cdot k_B T$. BLACK und FULDE nennen für die maximale Kopplung eine Größenordnung $W_{\text{El}} \cdot \Delta/E \approx 0,2$ für die „schnellsten“, symmetrischen TS.

Wird das Metall supraleitend, friert der Prozess unterhalb der Sprungtemperatur des Phasenübergangs T_C aus, bei tiefen Temperaturen bleibt nur die phononische Energie-Relaxationsrate übrig. In dem Temperaturintervall zwischen etwa $T_C/2$ und T_C können TS mit Energieaufspaltung $E \ll 2\Delta_{\text{BCS}}$ durch thermisch aktivierte Quasiteilchen relaxieren [14, 20]

$$\tau_{\text{qp}}^{-1} = W_{\text{El}}^2 \cdot \frac{\pi}{2\hbar} \cdot \left(\frac{\Delta}{E}\right)^2 E \cdot \coth\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right) \cdot \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{\Delta_{\text{BCS}}(T)}{k_{\text{B}}T}\right)} \quad (2.14)$$

die mit der Näherung für kleine Energien $E \ll k_{\text{B}}T$ sich zu

$$\tau_{\text{qp}}^{-1} = W_{\text{El}}^2 \cdot \frac{2\pi}{\hbar} \cdot \left(\frac{\Delta}{E}\right)^2 k_{\text{B}}T \cdot \left(1 + \exp\left(\frac{\Delta_{\text{BCS}}(T)}{k_{\text{B}}T}\right)\right)^{-1} \quad (2.15)$$

reduziert. In der numerischen Integration der Suszeptibilität wird nur Gl. 2.14 verwendet, da sie oberhalb T_{C} identisch zu Gl. 2.13 ist und über den gesamten Temperaturbereich verwendet werden kann. Die Anzahl der thermisch aktivierten Quasiteilchen hängt von der temperaturabhängigen Energielücke des Supraleiters

$$\Delta_{\text{BCS}}(T) = \begin{cases} \left(1 - 3,33 \sqrt{\frac{T}{T_{\text{BCS}}}} \cdot \exp\left(-1,764 \frac{T_{\text{BCS}}}{T}\right)\right) \cdot 1,764 \cdot k_{\text{B}} T_{\text{BCS}} & T < 0,9 \cdot T_{\text{BCS}} \\ 3,07 \cdot k_{\text{B}} T_{\text{BCS}} \cdot \sqrt{1 - \frac{T}{T_{\text{BCS}}}} & T \geq 0,9 \cdot T_{\text{BCS}} \end{cases} \quad (2.16)$$

ab (siehe Abb. 2.6) [43, 69, 68]. Diese analytische Näherung der Energielücke Δ_{BCS} unterschätzt die Energielücke zwischen $0,5 \cdot T_{\text{BCS}}$ und $0,8 \cdot T_{\text{BCS}}$ um etwa 5% gegenüber der numerisch berechneten Energielücke der BCS-Theorie. Da die Energielücke in diesem Bereich ohnehin stark von der Temperatur abhängt, wirkt sich dieser Unterschied praktisch nicht auf das Ergebnis der Integration über die flache TS-Zustandsdichte in Kap. 2.3 aus.

Durch unterdrücken der Supraleitung mit Hilfe eines starken Magnetfeldes kann die Wechselwirkung des normalleitenden Zustandes hergestellt werden, was in den Experimenten ausgenutzt wird.

Die Eigenschaften für $T \lesssim T_{\text{C}}$ werden jedoch von Tunnelsystemen mit Energieaufspaltung $E \approx k_{\text{B}}T$ bestimmt, insbesondere für den Relaxationsprozess spielen auch TS mit größeren Energieaufspaltungen eine Rolle. Die obige Näherung bildet somit nur eine Untergrenze für die Relaxationsrate. Sehr nahe bei T_{C} können TS mit $E \gtrsim 2\Delta_{\text{BCS}}$ durch Paarbrechung der COOPER-Paare im Supraleiter wesentlich effizienter relaxieren. Diese Effekte wird hier nicht weiter berücksichtigt, da er nur knapp unterhalb T_{C} eine Rolle spielt und nur für eine kleine Anzahl TS in diesem Bereich wichtig ist. Die Berechnung der Relaxationsrate durch Paarbrechung ist

mit einem weiteren Mehrfach-Integral über TS- und Elektron-Energien möglich, was die Rechenzeit der Numerik deutlich erhöhen würde und in dieser Form nicht praktikabel ist. Berechnungen von BLACK und FULDE zeigen weiterhin [14], dass die erwartete Suszeptibilität unter Berücksichtigung der Relaxationsrate von TS mit $E > 0$ ein ähnliches Verhalten zeigt, wie die später in dieser Arbeit gefundenen Verläufe für kleinere TS-Elektron-Kopplungsstärken.

2.2.1 Linienbreite und Relaxationsrate

Nimmt man keine weitere, reine Dephasierung an, so ist die Linienbreite τ_2^{-1} durch die Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} begrenzt. Tatsächlich ist die Linienbreite durch reine Dephasierungsprozesse jedoch häufig deutlich größer [35, 71, 65, 49, 56]. Diese Dephasierung kann den Beitrag der transversalen Suszeptibilität reduzieren, wie in Kap. 2.1.2.1 besprochen wurde.

2.2.1.1 Dephasierungsprozesse

In verschiedenen Messungen findet man, dass die Rate der Dephasierung τ_2^{-1} von TS etwa eine Größenordnung größer ist, als ihre Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} . In dielektrischen Gläsern erlauben Echo-Experimente, τ_1 und τ_2 eines Ensembles von TS getrennt zu bestimmen. Für Suprasil W finden GOLDING und GRÄBNER für TS mit $E = h \cdot 680$ MHz bei $T = 20$ mK die transversale Relaxationsrate $\tau_2^{-1} = 71$ kHz und die longitudinale Rate $\tau_1^{-1} = 5$ kHz [35].

Bei Messungen an einzelnen TS konnten LISENFELD et. al [49] für asymmetrische TS mit $E \approx 7$ GHz bei $T \approx 35$ mK eine Dephasierungsrate der Form $\tau_\phi^{-1} = A \cdot (\varepsilon/E)^2 + B \cdot (\varepsilon/E)$ mit $A \approx B \approx 10$ MHz identifizieren. Die Dephasierung liegt ebenfalls etwa eine Größenordnung über der gefundenen Energierelaxation von $\tau_1^{-1} \approx 1$ MHz. Die lineare Abhängigkeit von der Asymmetrie dominiert dabei die Dephasierung der sog. RAMSEY-Echos, die durch Variation der Energieaufspaltung des untersuchten TS auf einer langsamen Zeitskala gestört werden. Werden solche langsamen Fluktuationen bei sog. SPIN-Echos kompensiert, ist die Dephasierung durch eine Rate mit quadratischer Abhängigkeit von der Asymmetrie dominiert.

In den Messungen in dieser Arbeit spielen die langsamen Fluktuationen der Energieaufspaltung keine Rolle, da es – anders als bei den Messungen an einzelnen TS – nicht auf die Zeitentwicklung ihrer Phase über mehrere Einzelmessungen hinweg ankommt, die bei RAMSEY-Echos die Dephasierung dominieren.

Daher wird für die numerische Berechnung eine reine Dephasierung proportional zum Quadrat der Asymmetrie $(\varepsilon/E)^2$ angenommen. Alle bisher bekannten Messungen der Phasenrelaxation lassen keine zuverlässige Aussage über eine mögliche Energieabhängigkeit der Dephasierung zu. Theoretische Arbeiten sagen für die Dephasierung voraus, dass sie durch die spektrale Dichte bei Energie 0 bestimmt ist [55, 54]. In metallischen Gläsern ist naheliegend, dass Elektronen die Phasenrelaxation verursachen, ähnlich wie sie die Energierelaxationsraten erzeugen. Bereits das Modell von BLACK zur Beschreibung der Energierelaxation liefert einen Ansatz für die Dephasierung durch die Kopplung der TS an Elektronen [13]. Die Dephasierung wird im einfachsten Fall durch thermisch aktivierte Quasiteilchen vermittelt

$$\tau_\phi^{-1} = \frac{\pi}{\hbar} W_{\phi, \text{El}}^2 \left(\frac{\varepsilon}{E} \right)^2 \cdot k_B T^* \cdot \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{\Delta_{\text{BCS}}(T)}{k_B T}\right)} \quad (2.17)$$

und stirbt im supraleitenden Zustand aus. Im normalleitenden Zustand wird sie für asymmetrische TS bei tiefen Temperaturen proportional zu einer effektiven Temperatur T^* der Fluktuationen

$$\tau_\phi^{-1} = \frac{\pi}{2\hbar} W_{\phi, \text{El}}^2 \left(\frac{\varepsilon}{E} \right)^2 \cdot k_B T^* . \quad (2.18)$$

Die Konstante $W_{\phi, \text{El}}^2$ ist, wie die Wechselwirkungsstärke der Energierelaxation W_{El}^2 , ein Resultat der Kopplung der Elektronen an die Asymmetrieenergie in der Ortsbasis der TS σ_z^{LR} , die durch den Wechsel in die Energiebasis in eine longitudinale und eine transversale Kopplung transformiert wird [13]. Nimmt man für die spektrale Dichte der Elektronen ein ohmsches Verhalten an und damit $T^* = T$, so nimmt auch die reine Dephasierung $\tau_\phi^{-1} \propto T$ zu tiefen Temperaturen ab. Die Dephasierung wirkt dann nur wie eine erhöhte Energierelaxationsrate und reduziert den Beitrag der transversalen Suszeptibilität über den gesamten Temperaturbereich gleichmäßig und unabhängig von der Frequenz des äußeren Feldes. Die Messung der Schallgeschwindigkeitsänderung zeigt jedoch eine Frequenzabhängigkeit des Realteils der Suszeptibilität, die mit $\tau_\phi^{-1} \propto T$ nicht kompatibel ist. In den Gleichungen 2.17 und 2.18 wird an dieser Stelle daher für die Temperatur T^* eine effektive Temperatur von $T^* = 1 \text{ K}$ gewählt, womit die gemessene Schallgeschwindigkeitsänderung beschrieben werden kann. Grundsätzlich kann eine schwache Temperatur- oder Energieabhängigkeit vorhanden sein. Für $\tau_\phi^{-1} \propto T^\alpha$ mit $0 \leq \alpha \ll 1$ kann der Verlauf der Schallgeschwindigkeit im

normalleitenden Fall in ähnlicher Weise reproduziert werden, wie es im Vergleich mit den gemessenen Daten in Kap. 4.1.3 für $\alpha = 0$ gezeigt wird. Andere Messungen der Dephasierung einzelner TS in Abhängigkeit der Quasiteildichte [12] legen ebenfalls keine oder nur eine schwache Abnahme der Dephasierungsrate zu kleinen Energien nahe [74, 75].

Kleine Dephasierungsraten, wie sie durch den Ein-Phonon-Prozess bei tiefen Temperaturen durch einen analogen Mechanismus erzeugt werden, können an einem TS-Ensemble mit der Puls-Echo Methode [65, 71] gemessen werden. Die genannten Möglichkeiten, mit einem Qubit die Dynamik einzelner TS präzise zu bestimmen, liefern wichtige Hinweise auf die mikroskopische Umgebung der TS, bleibt jedoch ebenfalls auf moderate Dephasierung beschränkt, da das Qubit resonant mit dem TS in Wechselwirkung treten muss.

Bei kleinen und großen Dephasierungsraten ist eine kombinierte Bestimmung der Energie- und Phasenrelaxationsraten möglich, indem die kritische Intensität gemessen wird, ab der die resonante Absorption gesättigt ist. Diese Sättigung tritt auf, wenn die Amplitude des äußeren Feldes nicht mehr klein ist. Die kritische Intensität

$$I_C = \frac{\hbar^2 \rho v^3}{8\gamma^2} \frac{1}{\tau_1 \tau_2} \quad (2.19)$$

hängt dabei sowohl von der Energie- als auch von der Phasenrelaxationszeit ab [40]. Ist die reine Dephasierung vernachlässigbar, so geht die Energierelaxation quadratisch in die kritische Intensität ein, da dann $\tau_2 = 1/2\tau_1$ [56].

2.3 Standard-Tunnelmodell

In einem ungeordneten Festkörper wie z.B. einem Glas sind die mikroskopischen Eigenschaften der TS meist durch rasches abkühlen entstanden und damit zufällig gestreut. Daher gibt es nicht ein Ensemble von identischen TS, sondern eine breite Verteilung.

Im Standard-Tunnelmodell wird die Anzahldichte P der TS pro Volumen und Energie über dem Tunnelparameter λ und der Asymmetrieenergie ε als gleich verteilt angenommen: $P(\varepsilon, \lambda) d\varepsilon d\lambda = P_0 d\varepsilon d\lambda$. Um die makroskopischen Eigenschaften eines ungeordneten Materials zu erhalten, muss die Suszeptibilität über die Verteilung der TS integriert werden, worauf in diesem Abschnitt eingegangen wird. Das beschriebene Verhalten ist somit eine Vorhersage des Standard-Tunnelmodells für das Verhalten der Schallgeschwindigkeit und der Permittivität.

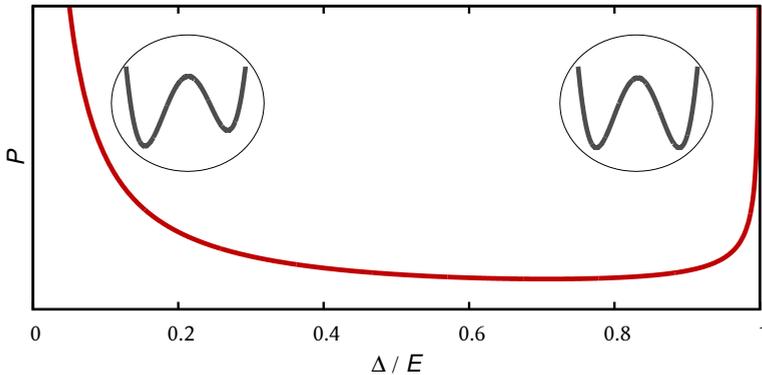


Abbildung 2.7: Dichte der Tunnelsysteme als Funktion der Asymmetrie Δ/E . Rechts die symmetrischen TS, bei denen die Asymmetrie $\varepsilon = 0$ wird. Links die TS, deren Tunnelenergie $\Delta = 0$ wird und mit dem Überlapp auch die Übergangsraten verschwinden.

Die Kopplungsstärken zwischen TS und ihrer Umgebung können in den meisten Fällen separat bestimmt werden, so dass lediglich die Anzahldichte P_0 der TS an das jeweilige Material angepasst werden kann.

2.3.1 Verteilung der Tunnelsysteme

Die makroskopischen Eigenschaften, die durch die TS verursacht werden, lassen sich durch Integration der berechneten Suszeptibilität über die Verteilung der TS ermitteln. Dazu ist es hilfreich, die konstante Verteilung in λ und ε als eine Funktion der Energieaufspaltung E und der Tunnelenergie Δ zu schreiben. Diese Verteilung gemäß Gl. 2.20, die in Abb. 2.7 dargestellt ist, erlaubt eine anschaulichere Diskussion der Dynamik der TS:

$$P(E, \Delta) dE d\Delta = \frac{P_0 E}{\Delta \sqrt{E^2 - \Delta^2}} dE d\Delta \quad (2.20)$$

Die Verteilungsfunktion divergiert für $\Delta/E \rightarrow 1$ wie $1/\sqrt{x}$, ist jedoch integrierbar, was einer endlichen Anzahl symmetrischer TS bei gegebener Energieaufspaltung entspricht.

Für $\Delta/E \rightarrow 0$ divergiert die Funktion wie $1/x$ und ist nicht integrierbar. Dennoch ist die Anzahl der experimentell relevanten TS endlich, da sie bei gegebener Energieaufspaltung E mit zunehmender Asymmetrie ε/E beliebig langsam werden,

was in Heat-Release- [32, Kap. 2.5] und Hole-Burning- [32, Kap. 6.5] Experimenten auch gefunden wird. Für asymmetrische TS weisen die Experimente auf die Existenz von Relaxationsraten auf der Zeitskala von Wochen hin, noch langsamere Raten sind experimentell kaum zugänglich.

2.3.2 Schallgeschwindigkeit und Permittivität

Bisher wurde der Einfluss von Tunnelsystemen auf die verallgemeinerte Suszeptibilität analysiert, tatsächlich gemessen werden jedoch die Änderung der Schallgeschwindigkeit und die Kapazität. Neben dem Dipolmoment p bei der Kopplung an elektrische Felder und dem Deformationspotential γ bei elastischer Verzerrung liefert die Umrechnung der verallgemeinerten Suszeptibilität in die Messgrößen weitere Vorfaktoren. Zur kompakten Darstellung der Ergebnisse werden diese Konstanten als C zusammengefasst. Die Suszeptibilität eines Ensembles erzeugt durch die breite Verteilung der TS eine Änderung der Messgrößen, die logarithmisch von der Temperatur abhängt. Die Konstante C , die unter anderem von der Dichte der TS und der Kopplungsstärke abhängt, kann mit dieser logarithmischen Steigung identifiziert werden. Welchen Wert die Steigung in den verschiedenen Temperaturbereichen durch die longitudinale und transversale Suszeptibilität annimmt, wird im folgenden Kapitel ausführlich erläutert.

2.3.2.1 Akustische Suszeptibilität

Bisher wurde der Einfluss der TS in Form einer verallgemeinerten Suszeptibilität betrachtet. Sie entspricht der elastischen Nachgiebigkeit⁸, die aus der technischen Mechanik bekannt ist. Aus ihr lässt sich der Einfluss auf die Schallgeschwindigkeit ableiten [40, 30], deren Änderung

$$\frac{\delta v}{v} \approx -\frac{1}{2} \frac{1}{\rho v^2} \chi' \quad (2.21)$$

der halben Änderung des Realteils der Suszeptibilität entspricht. Der Beitrag der TS wird von dem konstanten Beitrag des umgebenden Materials getrennt, indem die Änderung der Schallgeschwindigkeit δv bezüglich der Geschwindigkeit bei einer gewählten Referenztemperatur $v = v(T_0)$ gemessen wird. Die verallgemeinerte Suszeptibilität enthält die Temperatur- und Frequenzabhängigkeit, die ein

⁸ In der technischen Mechanik als *elastic compliance* bekannt.

charakteristisches Verhalten für die gezeigte Verteilung der TS besitzt. Später werden wir sehen, dass es zweckmäßig ist, alle materialspezifischen Konstanten zusammen zu fassen. Neben der Dichte ρ und der Schallgeschwindigkeit v werden aus der Suszeptibilität eines Ensembles das Deformationspotential γ und die Anzahldichte der TS P_0 in der Konstanten $C_{\delta v}$ aufgenommen:

$$C_{\delta v} = -2 \cdot \left(\frac{1}{2} \frac{P_0 \gamma^2}{\rho v^2} \right) \quad (2.22)$$

Die Schallgeschwindigkeitsänderung $\delta v/v$ ist proportional zu $C_{\delta v}$, so wie die Permittivität proportional zu der weiter unten eingeführten Konstante C_ϵ ist – die Temperatur- und Frequenzabhängigkeit ist jedoch universell. Der Faktor -2 in der Definition von $C_{\delta v}$ in Gl. 2.22 kompensiert den konstanten Faktor in der Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit vom Realteil der Suszeptibilität und erleichtert den Vergleich mit der Absorption. Die Dämpfung pro Laufstrecke enthält die Frequenz des Schalls ω , da die Amplitude pro Wellenlänge abnimmt. Die Laufstreckendämpfung α lässt sich auch als mittlere freie Weglänge der beteiligten Phononen l^{-1} auffassen:

$$\alpha = l^{-1} = \frac{\omega}{\rho v^3} \chi'' \quad (2.23)$$

Eine bessere Vergleichbarkeit der Messungen bei verschiedenen Frequenzen erlaubt die frequenzunabhängige Dämpfung pro Wellenlänge, die der inversen Güte

$$Q^{-1} = \frac{\alpha v}{\omega} = \frac{1}{\rho v^2} \chi'' \quad (2.24)$$

entspricht.

Hier wird ersichtlich, dass die Vorfaktoren von Q^{-1} und $\delta v/v$ den gleichen Wert annehmen, wie in Gl. 2.22 eingeführt. Die Konstante $C_{\delta v}$ erscheint später in der Messung als Plateau-Wert der Dämpfung. Die logarithmische Steigung der Schallgeschwindigkeitsänderung $-C_{\delta v}/2$ unterscheidet sich um einen Faktor $-1/2$ von dem Plateau-Wert des Verlustes $C_{\delta v}$, das bedeutet dass ein Anstieg der Suszeptibilität zu einer Abnahme der Schallgeschwindigkeit führt [20]. Bei den dielektrischen Messungen werden wir im folgenden Abschnitt sehen, dass analog eine Konstante für den Real- wie für den Imaginärteil verwendet werden kann.

2.3.2.2 Dielektrische Suszeptibilität

Wie in Kap. 2.1.2 bereits angedeutet, beschreibt die verallgemeinerte Suszeptibilität die lineare Antwort der Polarisation \vec{P} auf ein elektrisches Feld. Um die dielektrische Suszeptibilität zu erhalten muss sie durch ϵ_0 dividiert werden:

$$\chi_{TS} = \chi / \epsilon_0.$$

Die TS sind in einem dielektrischen Material eingebettet, das in einem Kondensator einem elektrischen Feld ausgesetzt wird. Die temperaturabhängige Suszeptibilität der TS erhöht die konstante Suszeptibilität des Wirtsmaterials $\epsilon = 1 + \chi_{Wirt} + \chi_{TS}(T)$. Die Kapazitätsänderung des Kondensators

$$\frac{\delta\epsilon}{\epsilon_{Wirt}} = \frac{(1 + \chi_{Wirt} + \chi_{TS}(T)) - (1 + \chi_{Wirt} + \chi_{TS}(T_{ref}))}{1 + \chi_{Wirt} + \chi_{TS}(T_{ref})} = \frac{1}{\epsilon_{Wirt}} \delta\chi_{TS}(T) \quad (2.25)$$

folgt aus der Änderung der Permittivität ϵ_r und ist durch den temperaturabhängigen Beitrag der TS zur dielektrischen Suszeptibilität $\delta\chi_{TS}$ dominiert.

Die Änderung der gemessenen Permittivität $\delta\epsilon$ wird auf die Permittivität $\epsilon = \epsilon(T_0)$ bei einer Referenztemperatur T_0 normiert, die den Beitrag des Wirtsmediums ϵ_{Wirt} enthält, in dem die TS eingebettet sind. Der Verlust, der in Resonatoren in Form der inversen Güte Q^{-1} und in Kondensatoren als Verlusttangens $\tan(\delta)$ gemessen wird, ist

$$Q^{-1} = \tan(\delta) = \frac{\epsilon''}{\epsilon'} \approx \frac{1}{\epsilon_{Wirt}} \chi'' . \quad (2.26)$$

Da die Permittivität des Wirtsmediums unbekannt ist, da die TS nicht daraus entfernt werden können, wird ein Referenzwert $\epsilon_{Wirt} = \epsilon(T_0)$ bei einer Temperatur T_0 gewählt. Da die Änderung der Permittivität $\delta\epsilon \approx 10^{-4}$ klein gegenüber dem Absolutwert $\epsilon_{Wirt} \approx 6$ ist, wird im Verlusttangens ebenfalls die Permittivität des Wirtsmediums verwendet. Dieser Vorfaktor wird zusammen mit der Kopplungskonstanten der TS an das elektrische Feld p aus der verallgemeinerten Suszeptibilität in die Konstante

$$C_\epsilon = \frac{P_0 p^2}{\epsilon_0 \epsilon} \quad (2.27)$$

absorbiert [20], die wir später mit der logarithmischen Steigung der Änderung der Permittivität und dem Plateauwert des Verlusttangens identifizieren können. Vergleicht man den Realteil der akustischen und dielektrischen Messung, ist zu beachten, dass sie sich um den Faktor $-1/2$ unterscheiden - eine Erhöhung der Per-

mittivität durch die TS entspricht daher einer Abnahme der Schallgeschwindigkeit mit der halben Steigung.

2.3.3 Suszeptibilität eines Glases

Analytische Berechnung Die transversale Suszeptibilität in Gl. 2.4 lässt sich für den Fall einer konstanten, temperaturunabhängigen Linienbreite τ_2 für die dominierenden, symmetrischen TS mit $\Delta = E$ analytisch berechnen. Die Verteilung aus Gl. 2.20 reduziert sich damit auf $P(E \rightarrow \Delta) = P_0$, für den Realteil findet man durch Integration bis zu einer maximalen Energieaufspaltung E_{\max}

$$\frac{1}{C_{\text{dv}}} \frac{\delta v'_{l/t}}{v_{l/t}} = \frac{1}{C_\epsilon} \frac{\delta \epsilon}{\epsilon} = -\Re \Psi \left(\frac{1}{2} + \frac{\hbar \omega}{2\pi i k_B T} \right) - \ln \left(\frac{k_B T}{E_{\max}} \right) \quad (2.28)$$

wobei $\Re \Psi$ der Realteil der Digamma-Funktion ist [1, Kap. 6]. Mit sinkender Temperatur steigt die Besetzung des Grundzustands, da TS mit $E \gg k_B T$ nicht mehr thermisch in den angeregten Zustand gebracht werden. In dem Temperaturbereich $k_B T > \hbar \omega$ entsteht durch die breite Verteilung der TS eine logarithmischer Anstieg der Suszeptibilität, da mit abnehmender Temperatur immer mehr TS mit ihrer niederfrequenten Antwort zur Nachgiebigkeit beitragen. Diese logarithmische Steigung $-C$ ist ein Maß für die Anzahldichte und Kopplungsstärke der TS an das äußere Feld.

Unterschreitet die Temperatur $2,2 \cdot k_B T = \hbar \omega$, liefern die TS sowohl einen positiven als auch einen negativen Beitrag zur Suszeptibilität, da sie nahe ihrer Resonanzfrequenz angetrieben werden (siehe Abb. 2.3). Es entsteht ein Minimum der Suszeptibilität, das durch die Digamma-Funktion beschrieben wird.

Analog lässt sich aus Gl. 2.5 der Imaginärteil bzw. Verlust bei schwacher Anregung berechnen, für den man den geschlossenen Ausdruck

$$\frac{1}{C_{\text{dv}/\epsilon}} Q^{-1} = \pi \tanh \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right) \quad (2.29)$$

findet. Mit abnehmender Temperatur steigt der Verlust durch die resonante Absorption proportional zur Besetzungszahldifferenz, die durch den Tangens Hyperbolicus beschrieben ist. Bei tiefen Temperaturen nimmt die Absorption den Plateauwert πC an. Für Gl. 2.29 wird ein schwaches äußeres Feld angenommen, so dass die thermische Besetzungszahldifferenz gewährleistet ist. Ein starkes äußeres Feld kann durch ein Gleichgewicht von stimulierter Absorption und Emission

ebenfalls eine Gleichbesetzung erzeugen, wodurch das äußere Feld mit der Rate der spontanen Emission der TS abgeschwächt wird.

Relaxation Der Einfluss der Relaxation, der für ein Ensemble durch Gl. 2.10 und Gl. 2.11 beschrieben wird, lässt sich als Summe vieler TS nur abschnittsweise analytisch beschreiben. Bei sehr tiefen Temperaturen, wenn die Energie-Relaxationszeit τ_1 größer als die charakteristische Zeitskala der Messung $1/\omega$ ist, verschwinden sowohl der Real- als auch der Imaginärteil.

Im Bereich höherer Temperaturen entsteht im Realteil ein logarithmischer Anstieg, dessen Steigung C vom dominierenden Relaxationsprozess abhängt. Mit steigender Temperatur tragen immer mehr TS zur Suszeptibilität bei, da sie Relaxationsraten erreichen, die größer als die Messfrequenz sind. Durch den Ein-Phonon-Prozess (siehe Kap. 2.2) steigt die Relaxationsrate für TS mit einer Energieaufspaltung entsprechend der thermischen Energie mit $\tau_{\text{ph}}^{-1} \propto T^3$ an, wodurch die Suszeptibilität mit $3/2 \cdot C \cdot \ln(T/T_0)$ ansteigt. In normalleitenden Metallen dominiert bei tiefen Temperaturen die Wechselwirkung mit Elektronen, die eine Relaxationsrate thermischer TS von $\tau_{\text{el}}^{-1} \propto T$ liefert. Die Suszeptibilität steigt daher mit $1/2 \cdot C \cdot \ln(T/T_0)$ an. Die Zunahme der longitudinalen Suszeptibilität mit steigender Temperatur ist immer überlagert von der Abnahme der Suszeptibilität durch den transversale Suszeptibilität mit der Steigung $-1 \cdot C \cdot \ln(T/T_0)$.

Sobald die Relaxationsrate τ^{-1} der schnellsten TS deutlich größer als die Frequenz ω wird, steigt der Verlust auf den Plateauwert $\pi/2 \cdot C$, der unabhängig vom Relaxationsprozess ist. TS tragen nur dann zum Verlust bei, wenn ihre Relaxationsrate τ^{-1} vergleichbar mit der Messfrequenz ω ist. Die Summe vieler Beiträge, wie er in Gl. 2.10 und Abb. 2.5 für ein Ensemble dargestellt ist, bildet diese Plateau. Nimmt die Relaxationsrate mit steigender Temperatur zu, so bleibt Anzahl der TS, welche die Bedingung $\omega \approx \tau_1^{-1}$ erfüllen, durch ihre Breite Verteilung konstant.

2.3.4 Numerische Methoden

Die analytisch berechneten Lösungen aus Kap. 2.3.3 zeigen bereits, wie TS die Eigenschaften eines Festkörpers beeinflussen. In ihre Berechnung gehen jedoch vereinfachende Annahmen ein, die nicht immer erfüllt sind. So wird die Linienbreite τ_2^{-1} grundsätzlich als konstant und klein angenommen, die Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} kann nur als Polynom der Temperatur berücksichtigt werden und die Zustandsdichte kann ebenfalls nicht ohne weiteres variiert werden. Diese

Tabelle 2.1: Akustische Eigenschaften verschiedener Gläser (Daten von a-SiO₂ und BK7 aus [28], weitere Zusammenstellung in [8]). Das metallische Glas Zr-BMG aus Zr₅₉Ti₃Cu₂₀Ni₈Al₁₀ wird in dieser Arbeit untersucht. Die beiden rechten Spalten bezeichnen die logarithmische Steigung der Schallgeschwindigkeit $C_{\delta v}$, wobei C_l mit longitudinalen und C_t mit transversalen Ultraschall gemessen wurde.

Glas	ρ kg/m ³	v_l m/s	v_t m/s	γ_l eV	γ_t eV	P_0 10 ⁴⁵ /Jm ³	a MHz/K ³	C_l 10 ⁻⁴	C_t 10 ⁻⁴
a-SiO ₂	2200	5800	3800	1,04	0,65	0,8	49	3	2,7
BK7	2510	6200	3800	0,96	0,65	1,1	40	2,7	3,3
PMMA	1180	3150	1570	0,39	0,27	0,6	1162	2,0	3,9
Zr-BMG	6592	4741	2182	0,62	0,49	0,3	126	0,2	0,58

Beschränkungen lassen sich durch die numerische Berechnung der Suszeptibilität umgehen, die im Folgenden vorgestellt wird.

Die Kopplungsstärke, Temperatur und Frequenzskala ist für die Berechnung zunächst einheitenlos. Um einen Vergleich mit den Messdaten zu erleichtern, werden die absoluten Werte so eingestellt, dass die Temperatur einer Kelvin-Skala entspricht. Daraus ergibt sich die Einheit der Frequenz zu $1 \text{ K} \cdot k_B/h = 20,8 \text{ GHz}$. Die TS-Phonon-Kopplung wird mit $a = 96 \text{ MHz/K}^3$ so gewählt, dass für ein symmetrisches TS bei $T = 1 \text{ K}$ die Energie-Relaxationsrate $\tau_1^{-1} = 208 \text{ MHz}$ wird. Weiter unten, in den Abb. 2.9 bis 2.14, ist die Energie-Relaxationsrate der schnellsten TS mit $\Delta = E$ jeweils im oberen Teil dargestellt. Die Rate liegt in der Größenordnung gemessener Werte [71], wie sie mit dem Vorfaktor

$$a = \left(\frac{\gamma_l^2}{v_l^5} + 2 \frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right) \frac{1}{2\pi\rho\hbar^4} \quad (2.30)$$

der Ein-Phonon-Relaxationsrate in Tabelle 2.1 für einige gängige Materialien aufgeführt sind.

2.3.4.1 Integrationsgrenzen

Die Integration über die Verteilung der TS erfordert die Wahl von Integrationsgrenzen, da die Verteilung für verschwindende Tunnelenergie $\Delta \rightarrow 0$ nicht integrierbar ist. Zu großen Energien wird ebenso eine Maximalenergie E_{\max} benötigt, sie taucht bereits in der analytisch berechneten resonanten Suszeptibilität auf. Für beide Grenzen kann durch physikalische Prozesse ein sinnvoller Wert gefunden werden, so dass die Wahl der Grenze keinen Einfluss mehr auf die berechneten Eigenschaften hat.

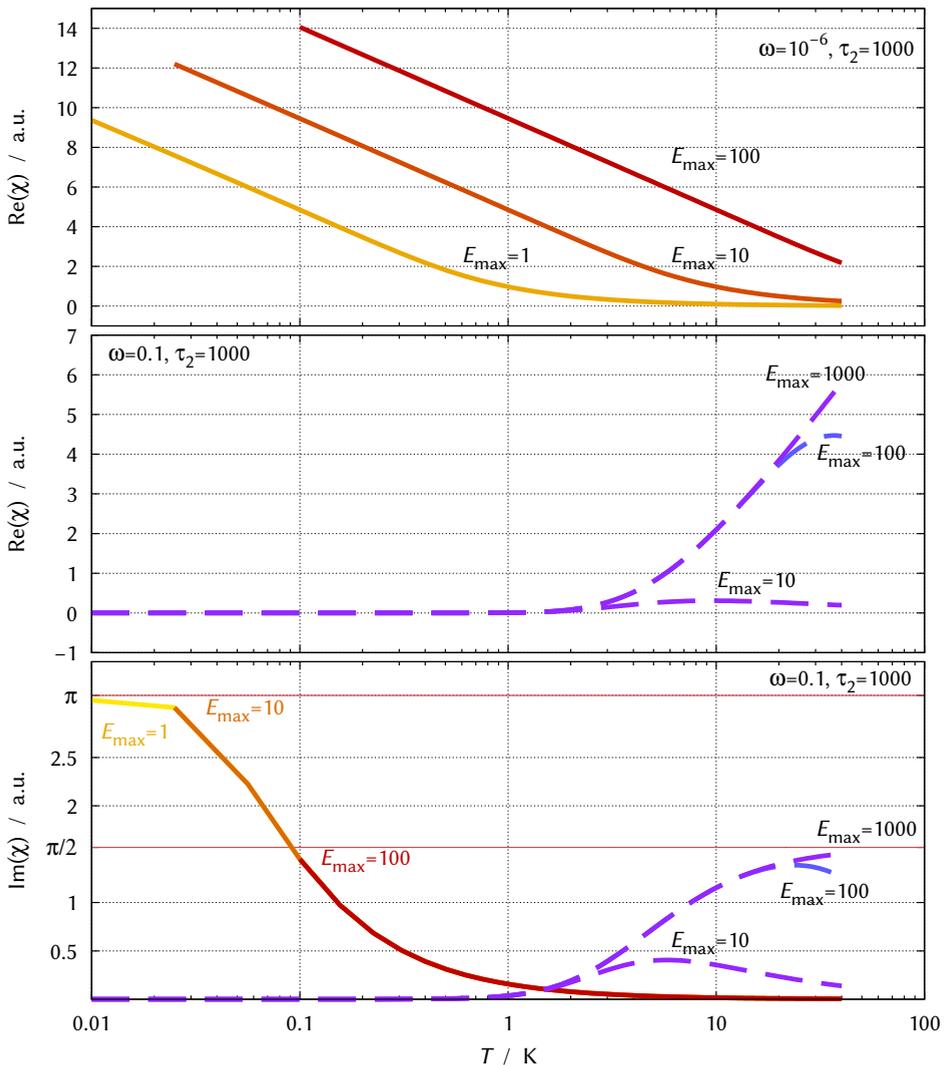


Abbildung 2.8: Der Einfluss der Wahl der Integrationsgrenzen auf die transversale und longitudinale Suszeptibilität im Standard-Tunnelmodell. **Oben** ist der Realteil der transversalen Suszeptibilität für eine feste Frequenz der Messung $\omega = 10^{-6} \cdot 20,8 \text{ GHz}$ jeweils integriert bis zu einer maximalen TS-Energieaufspaltung $E_{\text{max}}/k_{\text{B}} = 100, 10$ und 1 K von der oberen Kurve (rot) zur unteren (gelb). In der **Mitte** ist der Realteil der longitudinalen Suszeptibilität für die Frequenz $\omega = 0,1 \cdot 20,8 \text{ GHz}$ integriert bis $E_{\text{max}}/k_{\text{B}} = 10, 100$ und 1000 K . **Unten** ist im linken Bereich bei tiefen Temperaturen der Imaginärteil der transversalen Suszeptibilität dargestellt, bei der die Wahl der Integrationsgrenze $E_{\text{max}} = 100, 10$ bzw. 1 keinen Einfluss auf den Verlauf hat. Im rechten Bereich bei höheren Temperaturen ist der Anstieg des Imaginärteils der longitudinalen Suszeptibilität für $E_{\text{max}}/k_{\text{B}} = 10, 100$ und 1000 K dargestellt.

Für die transversale Suszeptibilität spielt die minimale Tunnelenergie praktisch keine Rolle, da symmetrische TS mit $\Delta = E$ den größten Beitrag liefern. Wählt man $\Delta_{\min}/E < 0,5$, so ist das Ergebnis unabhängig von der Wahl der Grenze - die TS mit $0,5 \ll \Delta/E \leq 1$ dominieren. Anders ist es bei der transversale Suszeptibilität für die maximale Energie: je größer sie gewählt wird, desto weiter hält die logarithmische Steigung zu hohen Temperaturen an, was eine Verschiebung des Absolutwertes zu immer größeren Suszeptibilitäten bewirkt (siehe die drei Kurven in Abb. 2.8 oben). Die in Kap. 2.2.1.1 beschriebene Dephasierung liefert jedoch eine Obergrenze für diesen Beitrag: die Relaxation durch Phononen erzeugt eine Linienbreite, die den Beitrag der TS zur transversalen Suszeptibilität unterdrückt, sobald $h\tau_2^{-1}$ größer als die thermische Energie $k_B T$ wird. Ist die Maximalenergie E_{\max} größer als dieser Schnittpunkt, so ist das Ergebnis unabhängig von der Wahl der Grenze. In Abb. 2.10 ist oben die Energie-Relaxationsrate aufgetragen, die bei $T \approx 10$ K die thermische Energie schneidet. Die Linienbreite $h\tau_2^{-1}$ wird daher etwa bei 20 K größer als die thermische Energie, so dass der Realteil der transversalen Suszeptibilität oberhalb 20 K flach wird (Abb. 2.10 mitte).

Der Imaginärteil der transversalen Suszeptibilität (Abb. 2.8 unten) ist hingegen sehr unempfindlich gegenüber der Wahl der Integrationsgrenzen. Der Verlust wird - wie der Realteil - von symmetrischen TS dominiert, deren Energieaufspaltung E vergleichbar mit der Energie des äußeren Feldes $\hbar\omega$ ist. Die Obergrenze, bis zu der TS berücksichtigt werden, muss daher nur größer als $\hbar\omega$ sein, was mit $E_{\max} = 1$ K = 20,8 GHz bereits für alle hier untersuchten Frequenzen der Fall ist. In Abb. 2.8 ist für große E_{\max} zu erkennen, dass die integrierte Suszeptibilität erst bei höheren Temperaturen beginnt. Dies scheint ein Problem der numerischen Integration zu sein, die bei kleinen Temperaturen T eine unzureichende Konvergenz für große E_{\max} zeigt.

Die longitudinale Suszeptibilität zeigt andere Anforderungen an die Integrationsgrenzen. Für $\Delta \rightarrow 0$ liefern asymmetrische TS immer einen Beitrag, der jedoch durch die Abnahme der Relaxationsrate mit zunehmendem Anteil der Asymmetrieenergie an der Energieaufspaltung $\varepsilon \lesssim E$ unterdrückt wird. Ist die Frequenz einer Messung größer 0, können TS mit großer Asymmetrie⁹ und damit kleiner Tunnelenergie $\Delta/E \rightarrow 0$ nicht mehr ins neue thermische Gleichgewicht relaxieren und liefern keinen Beitrag mehr. Diese „Frequenz“ kann bei Heat-Release Experimenten bis zu 100 h betragen.

⁹ Mit Asymmetrie wird hier das Verhältnis der Asymmetrieenergie zur Energieaufspaltung $\varepsilon/\sqrt{\Delta^2 + \varepsilon^2}$ bezeichnet.

Die größte berücksichtigte Energie E_{\max} bestimmt bei der longitudinalen Suszeptibilität den Beitrag bei höheren Temperaturen. Soll die Suszeptibilität bis zu einer gewünschten Temperatur T berechnet werden, muss E_{\max} entsprechend groß gewählt werden. In Abb. 2.8 ist in der Mitte der Realteil für verschiedene E_{\max} dargestellt. Die Abweichung vom erwarteten logarithmischen Anstieg zeigt, dass $E_{\max} \geq 100 \cdot k_B T$ gewählt werden muss, um sinnvolle Ergebnisse zu erhalten. Im unteren Teil von Abb. 2.8 ist der Imaginärteil der Suszeptibilität dargestellt, für den die Grenze E_{\max} ebenfalls hinreichend groß gewählt werden muss, um das erwartete Plateau von $\pi/2$ zu erreichen.

2.3.4.2 Konstante Linienbreite

Die bekannten analytischen Lösungen der integrierten Suszeptibilität werden als Test der numerischen Verfahren für feste Linienbreite τ_2^{-1} berechnet. Mit einer numerischen Integration ist es möglich, den bekannten Verlauf der Suszeptibilität, wie ihn das Standard-Tunnelmodell liefert, zu reproduzieren. Diese bekannte Vorhersage ist in Abb. 2.9 dargestellt. Wie bereits bei der analytischen Lösung des Tunnelmodells zeigt der Realteil der Suszeptibilität ein Maximum bei $2,2k_B T = \hbar\omega$, was bei der höchsten dargestellten Frequenz in Abb. 2.9 $\omega = 0,1 \cdot 20,8 \text{ GHz}$ bei $T = 0,1/2,2 \text{ K} = 45 \text{ mK}$ der Fall ist. Im Imaginärteil ist an dieser Stelle der Wendepunkt im Verlauf der resonanten Absorption. Der Realteil der Suszeptibilität zeigt für jede Frequenz zwei Regime mit je einer logarithmischen Steigung der Suszeptibilität: Von tiefen Temperaturen sinkt die Suszeptibilität mit der logarithmischen Steigung -2 , bis sie ein Minimum erreicht. Zu höheren Temperaturen steigt sie mit $+\log(T/T_0)$ an, was das typische Steigungsverhältnis $-2:1$ des Tunnelmodells ist. Der Imaginärteil in Abb. 2.9 nimmt bei tiefen Temperaturen $k_B T \ll \hbar\omega$ den Wert π an, bei hohen Temperaturen den Wert $\pi/2$, wenn die Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} die Frequenz ω , mit der das äußere Feld die Energieaufspaltung der TS moduliert, übersteigt: $\tau_1^{-1} \gg \omega$.

Neben dem Ein-Phonon-Prozess können weitere Relaxationsprozesse und ihr Einfluss auf die Linienbreite berücksichtigt werden. Ebenso ist eine vollständige Integration der Suszeptibilität für beliebige Verteilungen der Parameter der TS ist numerisch möglich. Im folgenden wird der Einfluss der Energie-Relaxationsrate auf Linienbreite $\tau_2^{-1} = 1/2\tau_1^{-1}$ berücksichtigt. Bei der Interpretation der Messdaten wird zusätzlich die in Kap. 2.2.1.1 vorgestellte Dephasierung berücksichtigt.

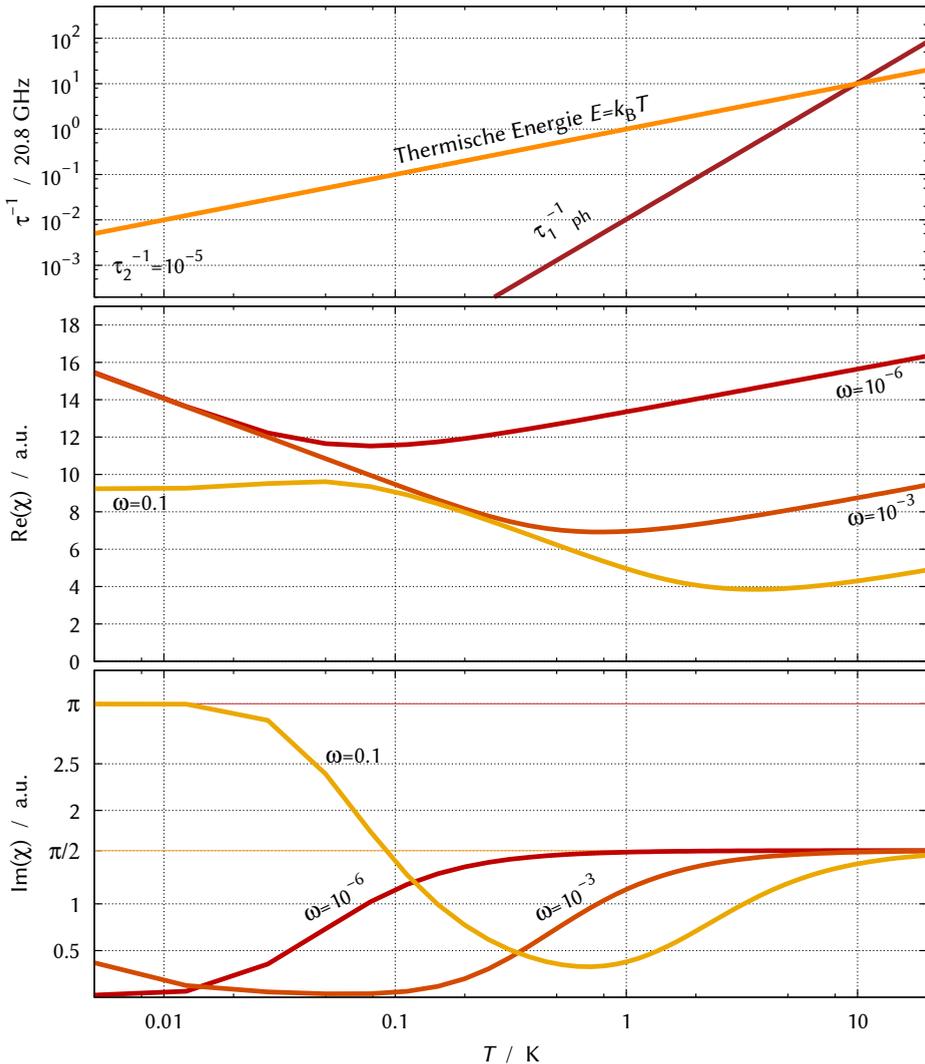


Abbildung 2.9: Die Suszeptibilität des Standard-Tunnelmodells für konstante Linienbreite $\tau_2^{-1} = 10^{-5} \cdot 20,8 \text{ GHz}$ in der transversalen Suszeptibilität und einer durch den Ein-Phonon-Prozess bestimmten Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} . **Oben** dargestellt ist die Energie-Relaxationsrate durch den Ein-Phonon-Prozess und die thermische Energie. **Mitte:** Für feste Frequenzen der Messung reproduziert die numerische Integration die bekannten, analytischen Lösungen mit einem Steigungsverhältnis -2:1 des Realteils der Suszeptibilität. Der Imaginärteil der Suszeptibilität **unten** zeigt bei tiefen Temperaturen ein Plateauwert der transversalen Suszeptibilität π und bei höheren Temperaturen ein Plateau durch die longitudinale Suszeptibilität von $\pi/2$.

Einfluss der Linienbreite auf die transversale Suszeptibilität Bei der numerischen Integration ist man nicht auf die Annahme konstanter Linienbreiten τ_2^{-1} begrenzt, sondern kann die physikalischen Relaxationsprozesse und ihren Einfluss auf die Linienbreite berücksichtigen. Da die Mechanismen für die reine Dephasierung weitgehend unbekannt sind, wird in diesem Kapitel lediglich die Energielaxation τ_1^{-1} berücksichtigt, die von der Temperatur und der Energieaufspaltung abhängt. Diese begrenzt die Linienbreite $h\tau_2^{-1}$ durch $\tau_2^{-1} = 1/2 \cdot \tau_1^{-1}$. Die in Kap. 2.2.1.1 vorgestellten Dephasierungsprozesse werden später im direkten Vergleich mit den Messdaten in gezeigt.

Im Standard-Tunnelmodell hängt der Absolutwert der transversalen Suszeptibilität von der Wahl der Integrationsgrenze E_{\max} ab, wie in Abb. 2.8 weiter oben gezeigt ist. Je mehr TS berücksichtigt werden, desto größer wird ihr Beitrag zur Suszeptibilität. Dieser Beitrag konvergiert nicht, wenn man E_{\max} beliebig groß werden lässt. Sobald die temperaturabhängige Linienbreite der TS berücksichtigt wird, ergibt sich auch auf natürliche Weise eine entsprechende Obergrenze: wird die Linienbreite vergleichbar mit der Energieaufspaltung, so liefern die TS keinen Beitrag mehr zur transversalen Suszeptibilität. Dies ist zwischen 10 K und 100 K beinahe unabhängig von der Kopplungsstärke γ der TS an Phononen der Fall, da die Relaxationsrate mindestens mit T^3 , bei höheren Temperaturen mit Exponenten zwischen 5 und 7 skaliert. In Abb. 2.10 ist beispielhaft eine Ein-Phonon-Relaxationsrate über der Temperatur aufgetragen, bei der die Linienbreite $h\tau_2^{-1} = h \cdot 1/2\tau_{1,\text{Ph}}^{-1}$ die entsprechende thermische Energie $k_{\text{B}}T$ bei 12,6 K schneidet.

Die Wechselwirkung der TS mit den Elektronen kann in ähnlicher Weise den Beitrag der transversalen Suszeptibilität unterdrücken. In Abb. 2.11 nimmt der Realteil der Suszeptibilität mit steigender Temperatur mit der Steigung $-C/2 \cdot \log(T/T_0)$ ab, da sich die Beiträge der transversalen mit $-C$ und der longitudinalen Suszeptibilität $+C/2$ addieren. Sobald die TS-Elektron-Wechselwirkung die Linienbreite der TS mit $E \approx k_{\text{B}}T$ vergleichbar mit der thermischen Energie werden lässt, wird der Beitrag der transversalen Suszeptibilität reduziert. In Abb. 2.12 ist dies für $h\tau_2^{-1} \approx k_{\text{B}}T$ dargestellt, die Suszeptibilität zeigt nur noch eine Steigung von etwa $-C/4 \cdot \log(T/T_0)$. Wird die Kopplung sehr stark, kann der transversale Beitrag zur Suszeptibilität kleiner als der longitudinale werden und die Steigung kehrt sich um. In Abb. 2.13 steigt der Realteil Suszeptibilität im normalleitenden Zustand daher sogar leicht an.

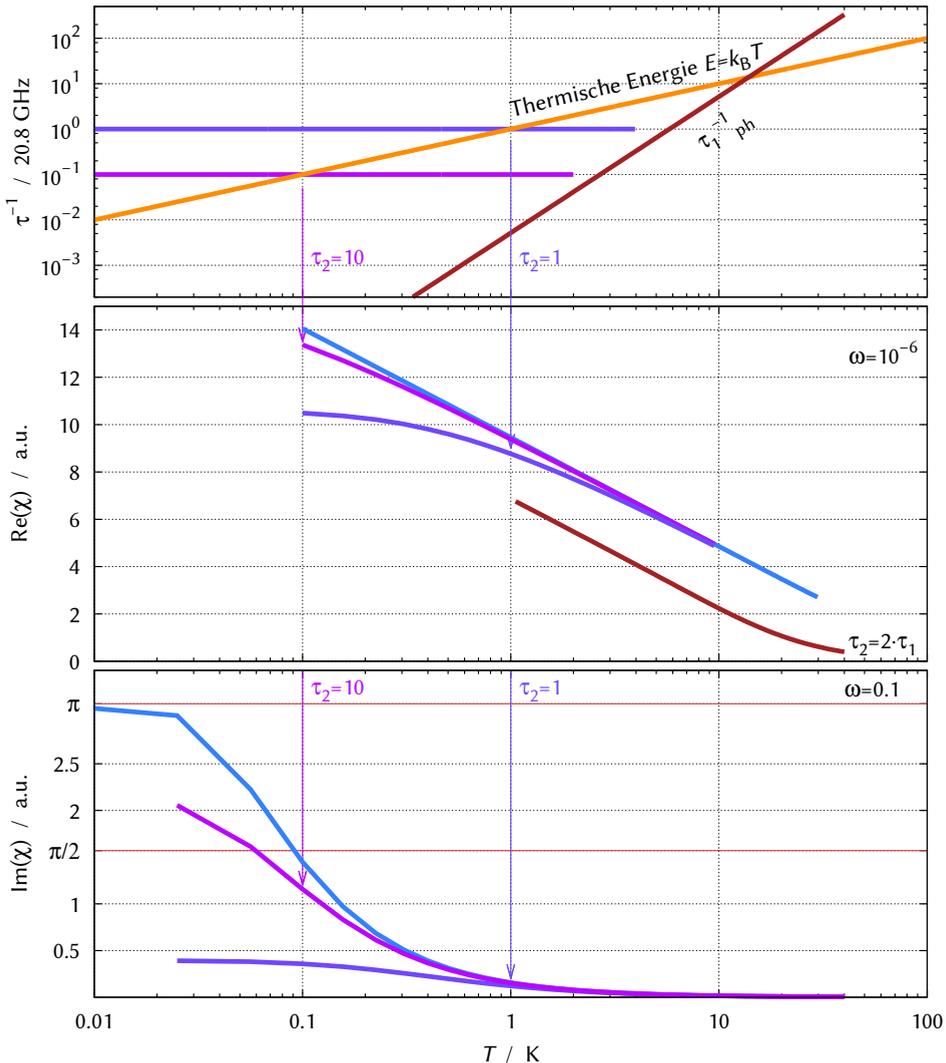


Abbildung 2.10: Der Einfluss der Wahl der Integrationsgrenzen und der konstanten Linienbreite auf den resonanten Anteil des Standard-Tunnelmodells. **Oben** die Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} , zwei gewählte Phasenrelaxationsraten τ_2^{-1} und die Energieaufspaltung thermischer TS. In der **Mitte** der transversalen Realteil der Suszeptibilität für eine feste Frequenz der Messung $\omega = 10^{-6} \cdot 20,8 \text{ GHz}$. Für kurze, konstante Phasenrelaxationszeiten τ_2 wird der resonante Prozess bei kleinen Energien abgeschnitten und die Suszeptibilität flach, da TS mit einer Energieaufspaltung kleiner der Linienbreite $E \leq h\tau_2^{-1}$ nicht mehr zur Suszeptibilität beitragen können. **Unten** ist der Imaginärteil der transversalen Suszeptibilität dargestellt, für kurze, konstante Phasenrelaxationszeiten τ_2 wird die resonante Absorption ebenfalls abgeschnitten.

Bei tiefen Temperaturen findet man in Abb. 2.11 für den Imaginärteil der Suszeptibilität den Plateauwert πC , wenn die Linienbreite viel kleiner als die Frequenz $\tau_2^{-1} \ll \omega$ und damit der Energieaufspaltung der dominierenden TS $E = \hbar\omega$ ist. Wird die Rate vergleichbar mit der Anregungsfrequenz, so wird das Plateau nicht erreicht, da TS durch ihre große Linienbreite keinen Beitrag liefern. Für eine sehr starke Kopplung der TS an die Elektronen ist dies in Abb. 2.13 unten im normalleitenden Zustand zu sehen.

2.3.4.3 Metallische Gläser

Die Kopplungskonstanten der Energie-Relaxationsraten sind in der numerischen Integration einheitenlos gehalten, da auch die Ergebnisse zunächst einheitenlos sind. Wie bereits bei der Wechselwirkung der TS mit Phononen erwähnt, wird die Energieskala durch die Wahl einer Größe, der Einheit für die Temperatur in Kelvin, festgelegt. Somit sind die Frequenzen in Einheiten von $1 \text{ K} \cdot k_B/h = 20,8 \text{ GHz}$ angegeben.

Für die Kopplungskonstante der Wechselwirkung zwischen TS und Elektronen wurde $W_{\text{El}}^2 = 0,16$ (vgl. [36]) und $W_{\text{El}}^2 = 0,016$ gewählt. Für die stärkere dieser beiden Kopplung wird in einem normalleitenden Metall die Linienbreite für symmetrische TS immer gerade etwas größer als ihre Energieaufspaltung. Übertragen auf das Matrixelement, das BLACK und FULDE angeben, entsprechen diese Werte $W_{\text{El}} = \rho_{\text{El}} V_{\perp} = 0,4$ bzw. $0,13$. Anschaulich hat ein TS mit der Energieaufspaltung $E = 1 \text{ K}$ bei $T = 1 \text{ K}$ einer Energie-Relaxationsrate von $35,4 \text{ GHz}$ (Abb. 2.12) bzw. $3,54 \text{ GHz}$ (Abb. 2.11).

Bei schwacher Kopplung sind im Realteil in der Suszeptibilität drei Bereiche zu beobachten (siehe Abb. 2.11). Bei hohen Temperaturen verhalten sich das isolierende und das metallische Material gleichartig, da die Phononen die Dynamik der TS dominieren. Unterhalb von ca. 5 K wird die Relaxationsrate durch die Wechselwirkung mit Elektronen dominiert. Die logarithmische Steigung der Suszeptibilität in Abb. 2.11(mitte) wechselt daher von $+1$ oberhalb 5 K zu -1 bei tieferen Temperaturen. Im normalleitenden Zustand bleibt die Steigung -1 bis zu der Temperatur, bei der die Oszillationsfrequenz ω des angelegten Feldes der Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} der schnellsten TS entspricht. In Abb. 2.11 ist dies für $\omega = 2,08 \text{ GHz}$ bei ca. $0,5 \text{ K}$ der Fall. Unterhalb verschwindet der Beitrag der longitudinalen Suszeptibilität durch die Relaxation, die Suszeptibilität des normalleitenden und isolierenden Zustandes treffen sich und verlaufen gemeinsam mit

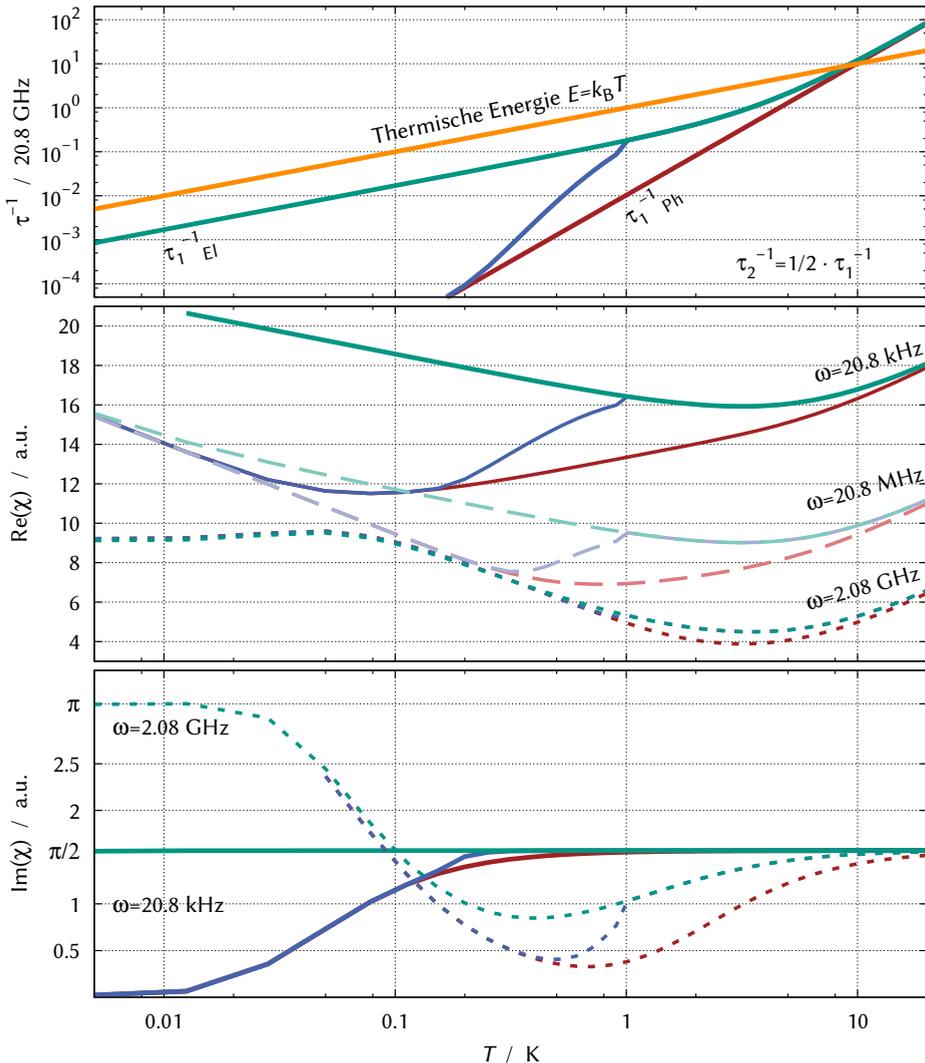


Abbildung 2.11: Relaxationsraten (oben) der schnellsten TS für ein Material im isolierenden (rot), normalleitenden (grün) und supraleitenden (blau) Zustand bei schwacher TS-Elektron Kopplung ($2\pi K_{\text{El}} = 0,1$). Der Realteil (mitte) und Imaginärteil (unten) der integrierten Suszeptibilität für eine niedrige und eine hohe Frequenz. Im Realteil treffen sich die Suszeptibilität im normalleitenden und supraleitenden bzw. isolierenden Zustand für 20,8 MHz bei 5 mK und laufen gemeinsam weiter zu tieferen Temperaturen. Bei 2,08 GHz ist dies bei 500 mK der Fall und daher kaum erkennbar, der Verlauf zu tieferen Temperaturen ist Deckungsgleich für alle drei Zustände des Materials.

der Steigung -2 weiter zu tiefen Temperaturen. Bei der Sprungtemperatur des Supraleiters $T_C = 1$ K wechselt die Suszeptibilität von dem Verhalten in einem Metall zu dem eines Isolators, da die TS nicht mehr mit den Elektronen wechselwirken können.

Im Imaginärteil der Suszeptibilität ist erkennbar, dass der Anteil der Relaxation im normalleitenden Zustand bis zu deutlich tieferen Temperaturen einen Beitrag liefert. Bei der niedrigen Frequenz $\omega = 20,8$ kHz bleibt die Relaxations-Absorption über den gesamten berechneten Temperaturbereich auf dem Plateauwert von $\pi/2$ (siehe Abb. 2.11 unten). Die resonante Absorption bei $\omega = 2,08$ GHz erreicht bei Temperaturen $T \ll \omega \cdot \hbar/k_B = 100$ mK den Plateauwert π , unabhängig vom normalleitenden oder supraleitenden Zustand.

2.3.4.4 Metallische Gläser – schnelle Relaxation

Eine starke Kopplung der TS an die Elektronen liefert Relaxationsraten und damit Linienbreiten, die vergleichbar mit der Energieaufspaltung sind. Da im Fall eines normalleitenden Metalls die Relaxationsrate τ_1^{-1} proportional zur Temperatur ist (siehe Gl. 2.13 und Abb. 2.12 oben), bleibt die Linienbreite $\tau_2^{-1} = 1/2\tau_1^{-1}$ immer vergleichbar mit der Energieaufspaltung der thermischen TS. Die symmetrischen TS, welche den resonanten Prozess dominieren, liefern so einen reduzierten Beitrag und es scheint, als sei die Zustandsdichte im normalleitenden Metall gegenüber dem supraleitenden reduziert. Dadurch kreuzen sich der Realteil der Suszeptibilität im normalleitenden und supraleitenden Zustand (siehe Abb. 2.12 mitte), anstatt wie bei schwächerer Kopplung aufeinander zu treffen und gemeinsam zu tieferen Temperaturen zu verlaufen.

Der Verlust zeigt bei der starken Kopplung an Elektronen in Abb. 2.12 und 2.13 im supraleitenden Zustand knapp unterhalb T_C einen flacheren Verlauf statt eines direkten Abknickens, da der Relaxationsanteil am Verlust auch knapp unterhalb T_C durch die starke Kopplung an thermisch aktivierte Quasiteilchen noch bestehen bleibt.

Wird die Kopplungsstärke der TS an die Elektronen noch weiter erhöht auf $K_{EI} = 0,8$, so wird durch die extrem große Linienbreite die Steigung des Realteils im normalleitenden Zustand umgekehrt, wie in Abb. 2.13 dargestellt ist.

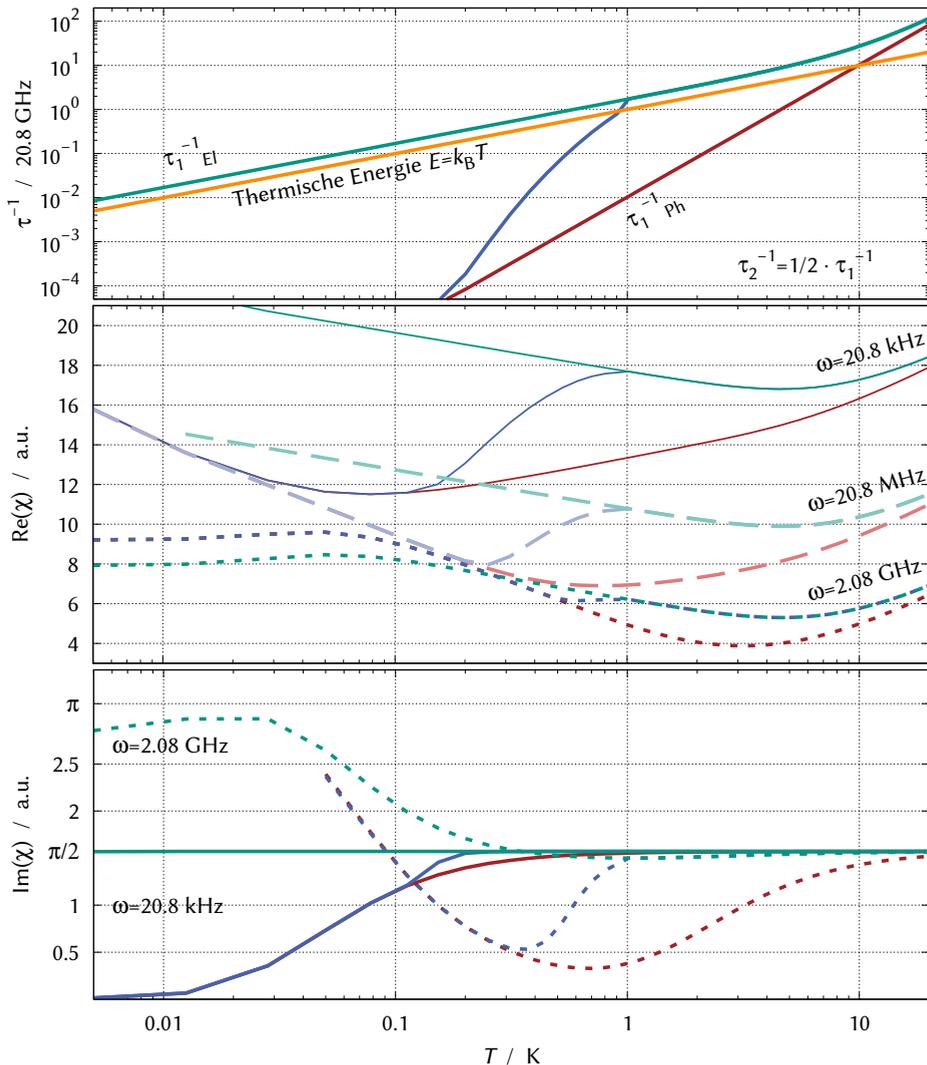


Abbildung 2.12: Relaxationsraten der schnellsten TS (**oben**) für ein Material im isolierenden (rot), normalleitenden (grün) und supraleitenden (blau) Zustand bei Zustand bei starker TS-Elektron Kopplung ($2\pi K_{EI} = 1$). Der Realteil (**mitte**) und Imaginärteil (**unten**) der integrierten Suszeptibilität für eine niedrige und eine hohe Frequenz. Der Realteil im normal- und supraleitenden Zustand kreuzt sich für $\omega = 2,08$ GHz bei ca. 250 mK, der normalleitende Verlauf bleibt flacher als der im supraleitenden Zustand.

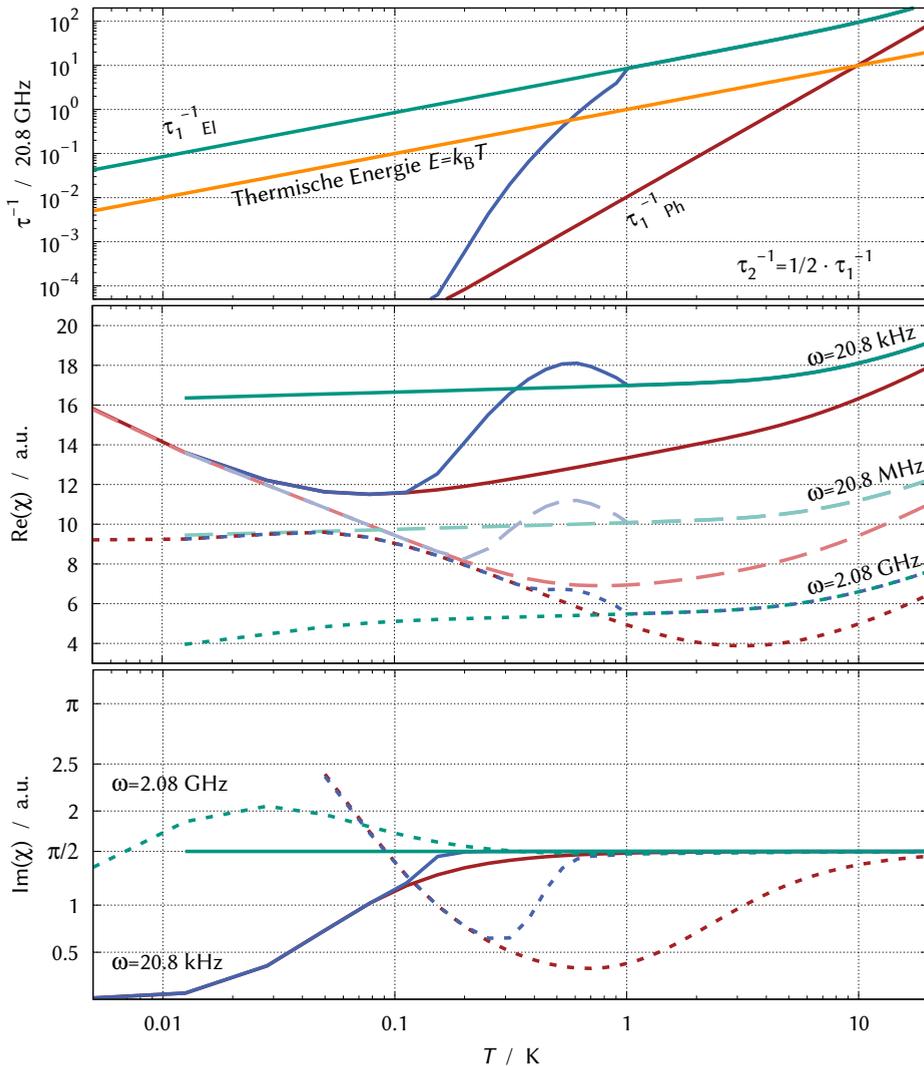


Abbildung 2.13: Integrierte Suszeptibilität für ein Material im isolierenden (rot), normalleitenden (grün) und supraleitenden (blau). Bei extremer TS-Elektron Kopplung ($2\pi W_{\text{El}}^2 = 5$) ist Linienbreite (**oben**) im normalleitenden Zustand deutlich größer als die thermische Energie. Direkt unterhalb T_C entsteht im Realteil (**mitte**) ein stark nicht-monotones Verhalten im supraleitenden Zustand, das aus der schnellen Zunahme des resonanten Prozesses unterhalb T_C resultiert. Erst bei etwas tieferen Temperaturen nimmt der Beitrag durch den Relaxationsprozess schneller ab, es entstehen zwei Kreuzungspunkte. Die Steigung des Realteils im normalleitenden Zustand ist gegenüber dem supraleitenden Zustand umgekehrt. Die resonante Absorption bzw. transversale Suszeptibilität (**unten**) ist im normalleitenden Zustand fast vollständig unterdrückt.

Der Beitrag durch die transversale Suszeptibilität ist dann immer kleiner als der Beitrag durch die longitudinale Suszeptibilität, so dass die Suszeptibilität mit zunehmender Temperatur steigt, da immer mehr TS durch den Relaxationsprozess beitragen während die thermische Gleichbesetzung kaum mehr einen Einfluss auf den resonanten Prozess hat. Der Verlust in Abb. 2.13 bleibt im normalleitenden Zustand über den gesamten Temperaturbereich auf dem Wert $\pi/2$ durch den Beitrag der longitudinalen Suszeptibilität, die transversale Suszeptibilität bei tiefen Temperaturen ist fast vollständig unterdrückt.

Zudem entsteht durch die Konkurrenz zwischen longitudinaler und transversaler Suszeptibilität ein nicht-monotones Verhalten unterhalb T_C , das zwei Kreuzungspunkte erzeugt. Ein ähnliches Bild des Realteils können KAGAN und PROKOF'EV durch eine Renormierung der Zustandsdichte der Tunnelsysteme erzeugen [42]. Bei sehr tiefen Temperaturen sollten sich das hier vorgestellte Modell und das Renormierungsmodell unterscheiden: Im normalleitenden Fall ändert sich bei der Renormierung die Steigung unterhalb der Temperatur, bei der die Relaxationsrate durch die Elektronen langsamer als die Frequenz des äußeren Feldes wird. Unterhalb $\tau_1^{-1} < \omega$ taucht bei der Renormierung die logarithmische Steigung der transversalen Suszeptibilität wieder auf. Im hier vorgestellten Fall bleibt die Steigung auch unterhalb $\tau_1^{-1} < \omega$ flacher, da der Beitrag der transversalen Suszeptibilität durch die Linienbreite bis zu tiefsten Temperaturen reduziert ist.

2.3.4.5 Relaxationsraten aus der Messung

Der Realteil der Suszeptibilität zeigt ein Minimum wenn der Beitrag durch den transversalen und den longitudinalen Anteil gerade gleich groß sind. Dieses Minimum der Suszeptibilität erlaubt es später, aus den gemessenen Daten zusammen mit der Messfrequenz die Relaxationsrate zu bestimmen. Bei der Temperatur, an der das Minimum auftritt, entspricht die Energie-Relaxationsrate etwa der Kreisfrequenz des äußeren Feldes.

Für dieses Minimum sind es einerseits die schnellsten und damit symmetrische TS, die bei steigender Temperatur durch Relaxation den ersten Beitrag zur longitudinalen Suszeptibilität liefern. Andererseits müssen sie bereits eine Asymmetrie besitzen, da sie sonst keinen Beitrag zur Suszeptibilität liefern. Für den Ein-Phonon-Relaxationsprozess findet man für diese Asymmetrie der dominierenden TS an der Stelle des Minimums $\Delta/E \approx 0,775$ [51, Gl. 2.59]. In Abb. 2.14 ist die Position des Minimums eingezeichnet, wie sie die numerische Integration für eine

gewählte Kopplungsstärke $K_{\text{Ph}} = 10^{-2} \cdot 20,8 \text{ GHz}$ liefert. Wird aus der Position des Minimums in der Suszeptibilität die Kopplungsstärke der TS an Phononen und Elektronen bestimmt, muss dieser Faktor berücksichtigt werden.

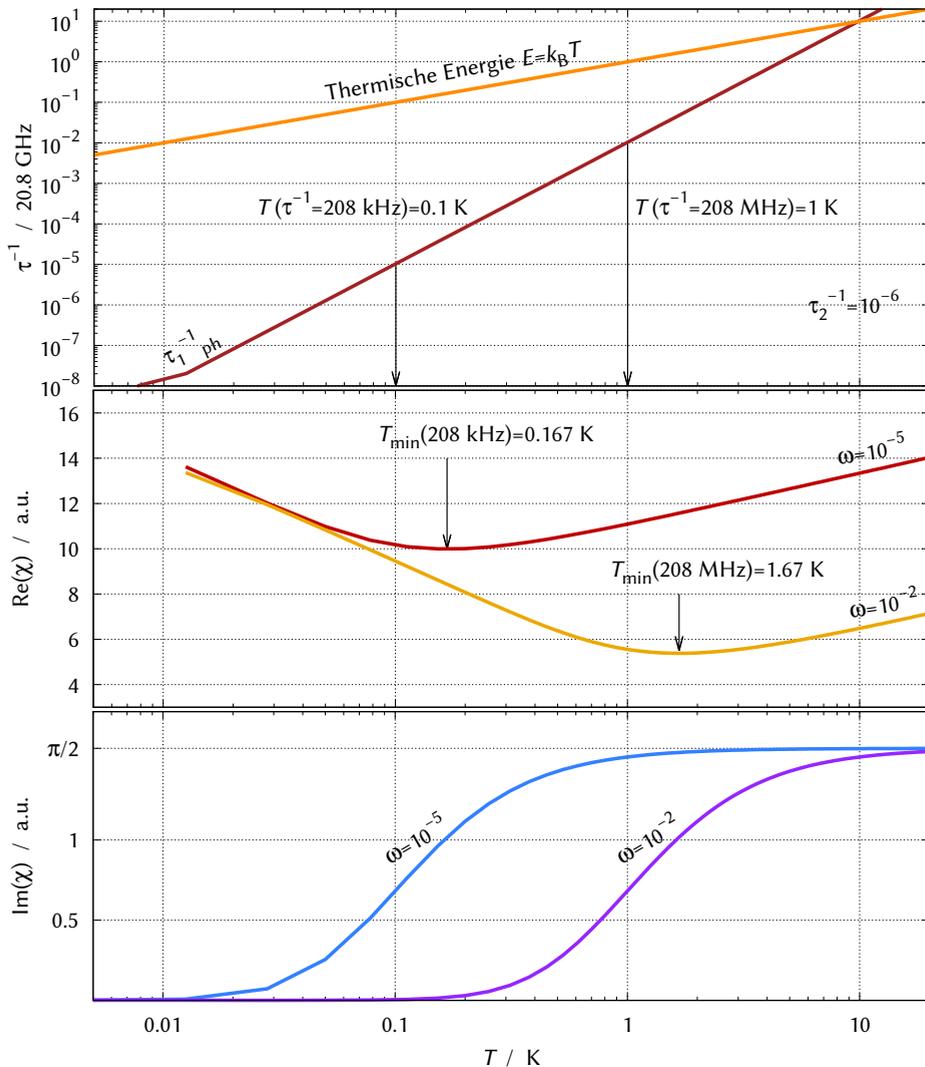


Abbildung 2.14: Relaxationsraten und ihr Einfluss auf die longitudinale Suszeptibilität. **Oben:** Energie-Relaxationsrate symmetrischer TS für die Kopplungsstärke $a = 96 \text{ MHz/K}^3$ und die thermische Energie. Symmetrische TS mit $E \approx k_B T$ erreichen bei $T = 0,1 \text{ K}$ die Rate $\tau_1^{-1} = 208 \text{ kHz}$, bei $T = 1 \text{ K}$ von $\tau_1^{-1} = 208 \text{ MHz}$. **Mitte:** Das Minimum im Realteil folgt jedoch erst bei $T_{\text{min}} = 167 \text{ mK}$ bzw. $T_{\text{min}} = 1,67 \text{ K}$. **Unten:** In der Absorption ist der Wendepunkt des Anstiegs an der Stelle, an der mit $\omega = \tau_1^{-1}$ die Anregungsfrequenz der Relaxationsrate entspricht.

3 Experimentelle Methoden

Ungeordnete Festkörper erhalten durch die TS eine erhöhte Suszeptibilität wenn sie äußeren Feldern ausgesetzt werden. In isolierenden Gläsern ist es möglich, die Suszeptibilität aus der Permittivität zu bestimmen. Mit der Kapazität eines Kondensators, der das zu untersuchende Glas als Dielektrikum enthält, kann die Änderung der Permittivität gemessen werden. Um die Kapazitätsänderung bei hohen Frequenzen zu bestimmen, kann dieser Kondensator in einen Schwingkreis eingebettet werden, dessen Resonanzfrequenz gemessen wird.

In metallischen Gläsern ist eine dielektrische Messung nicht möglich, da sie – wie Metalle – leitfähig sind und elektrische Felder abschirmen. Hier bleibt nur die akustische Suszeptibilität zugänglich, die durch ihren Einfluss auf die Elastizität bzw. die Schallgeschwindigkeit gemessen werden kann.

Im Folgenden wird kurz auf die Herstellung des untersuchten metallischen Glases eingegangen. Anschließend wird die Messung der Änderung des Elastizitätsmoduls mit Hilfe eines Vibrating Reed und die Bestimmung der Schallgeschwindigkeit durch die phasensensitive Detektion der Laufzeit von Ultraschallpulsen erläutert.

Die Herstellung und Messung von ungeordnetem Aluminium-Oxid in Plattenkondensatoren wird beschrieben, die Methoden bei der Herstellung und Messung unterscheiden sich grundlegend von denen beim metallischen Glas. Die Herstellung des Oxids AlO_x wird als dünner Film zwischen Aluminium-Elektroden wird beschrieben und die Messung der Kondensatoren mit einer kommerziellen Kapazitäts-Messbrücke wird vorgestellt.

3.1 Metallisches Glas

3.1.1 Herstellung des metallischen Glases

Das untersuchte metallische Glas $Zr_{59}Ti_3Cu_{20}Ni_8Al_{10}$ ist ein massives metallisches Glas (bulk metallic glass, BMG), das mit verhältnismäßig niedrigen Abkühlgeschwindigkeiten hergestellt werden kann. Daher steht es als massiver Zylinder mit einem Durchmesser von 3,1 mm zur Verfügung. Hergestellt wurde es von UTA KÜHN am Institut für Werkstoffkunde (IFW) in Dresden. Details zur Herstellung und dem Ursprung der genauen Zusammensetzung des Mehr-Komponenten-Glases sind in ihrer Arbeit zu finden [47].

Die Komponenten des Glases werden in einem Lichtbogen aufgeschmolzen und anschließend unter hohem Druck in einen evakuierten Kupferzylinder gepresst. Der Kupferzylinder kühlt das Gemisch durch seine große Wärmekapazität schnell ab, wodurch das Metall nicht kristallisieren kann. Der so entstandene Zylinder wurde in mehrere kürzere Teile gesägt. Zwei Zylinder mit 4,8 mm und 5,1 mm Länge wurden von der Firma STÄHLI¹ planparallel geläppt, um Ultraschall-Reflexionsmessungen zu ermöglichen. Ein längerer Teil wurde in Form gefräst für eine *Vibrating Reed*. Im Folgenden werden diese beiden Methoden zur Schallgeschwindigkeitsmessung bei niedrigen und hohen Frequenzen erläutert.

3.1.2 Vibrating Reed

Die Technik des *Vibrating Reed* ist zur Messung der mechanischen Eigenschaften bis zu einigen kHz eine gängige Methode der Materialwissenschaften. Sie ist geeignet, flache Proben wie Folien oder durch Bearbeitung geformte Geometrien, die zur Schwingung angeregt werden können, zu untersuchen [9, 53]. Einfache Geometrien wie ein schwingender Balken sind dabei leicht herzustellen, jedoch verfälscht die Reibung an der Einspannung, wo auch die Verformung des Materials am größten ist, die Messung. Durch geschickte Formgebung kann die Position maximaler Verformung weitgehend ins Volumen des Probematerials verlegt werden. Für flache Proben kann man dies durch die sogenannten Double-Paddle Oszillatoren realisieren, womit das metallische Glas $Zr_{46,8}Ti_{8,2}Cu_{7,5}Ni_{10}Be_{27,5}$ untersucht wurde [22, 45]. Da das hier untersuchte metallische Glas als Zylinder vorlag,

¹ Stähli-Läpptechnik, Weil im Schönbuch

wurde eine Zunge herausgefräst [2], die zu Schwingungen angeregt wird (siehe Abb. 3.1).

3.1.2.1 Messprinzip

Die Oszillationsfrequenz des *Vibrating Reed* verhält sich ähnlich der Schwingung eines einseitig eingespannten Balkens (EULER-BERNOULLI-Balken). Für diesen lässt sich die Schwingungsfrequenz mit dem Elastizitätsmodul E , der Materialdichte ρ , seiner Querschnittsfläche A und seinem Flächenträgheitsmoment in Auslenkungsrichtung I_y , analytisch zu $\omega^2 = \kappa^4 EI_y / \rho A$ berechnen [23]. Dabei ist κ ein numerischer Faktor der charakteristisch für die jeweilige Mode der Balkenschwingung ist. Die Oszillationsfrequenz hängt dabei genauso von E ab, wie die Schallgeschwindigkeit eines langen, dünnen Stabes, bei dem eine Kompressionswelle entlang des Stabes von einer Durchmesservariation begleitet wird. Diese E -Modul-Schallgeschwindigkeit kann analog zur Oszillationsfrequenz des Balkens betrachtet werden: $v_E^2 = E/\rho$ [53, 63].

Bei tiefen Temperaturen sind I_y , A und ρ konstant, eine temperaturabhängige Änderung der Resonanzfrequenz ω folgt daher aus der Temperaturabhängigkeit des Elastizitätsmoduls E , die aus der longitudinalen bzw. transversalen Schallgeschwindigkeit $v_{l/t}$ folgt [19]:

$$E = \rho \frac{v_t^2(3v_l^2 - 4v_t^2)}{v_l^2 - v_t^2} \quad (3.1)$$

$$\sigma = \frac{v_l^2 - 2v_t^2}{2(v_l^2 - v_t^2)}. \quad (3.2)$$

Das Poisson-Verhältnis σ beschreibt dabei die Kontraktion des Materials senkrecht zur Dehnungsrichtung und ist später für die Simulation der Reed-Geometrie wichtig. Kleine Änderungen der mechanischen Suszeptibilität erzeugen eine Variation der Schallgeschwindigkeit $v_{l/t}$ beziehungsweise entsprechend des E -Moduls. Um den Beitrag der TS zur Schallgeschwindigkeit zu ermitteln, wird die Änderung der Schallgeschwindigkeit bzw. der Oszillationsfrequenz $\omega(T)$ gemessen. Da die elastischen Eigenschaften des Materials, in dem die TS eingebettet sind, bei tiefen

Temperaturen konstant ist, kann die Schallgeschwindigkeit bzw. Oszillationsfrequenz $\omega = \omega(T_0)$ bei einer beliebigen Referenztemperatur gewählt werden. Die Änderung der Oszillationsfrequenz eines Balkenschwingers

$$\frac{\delta\omega}{\omega} = \frac{\delta v_E}{v_E} \quad (3.3)$$

ist somit direkt proportional zur Änderung der mit dem E -Modul verknüpften Schallgeschwindigkeit.

3.1.2.2 Messung der Resonanzfrequenz und der Güte

Die Schwingungsamplitude des Reeds lässt sich für kleine Auslenkungen wie ein harmonischer Oszillator beschreiben. Gegenüber einem ungedämpften Oszillator mit der Eigenfrequenz ω_0 ist die Eigenfrequenz des gedämpften Oszillators mit $\omega_d = \sqrt{\omega_0^2 - \gamma^2}$ etwas niedriger, die Schwingungsamplitude A klingt nach Auslenkung auf A mit der Einhüllenden² $Ae^{-\gamma t}$ ab. Die Güte eines Oszillators ist definiert als der inverse Energieverlust pro Schwingung. Drückt man die Energie E durch die Amplitude aus, findet man mit dem Hookschen Gesetz $E = 1/2 \cdot kA^2 \propto e^{-2\gamma t}$ für die Güte

$$Q = 2\pi \frac{E(t)}{\left. \frac{dE}{dt} \right|_t \cdot \frac{1}{f}} = 2\pi \frac{e^{-2\gamma t} \cdot f}{-2\gamma e^{-2\gamma t}} = 2\pi \frac{f}{2\gamma} = \frac{\pi f}{\gamma}. \quad (3.4)$$

Beim getriebenen harmonische Oszillator gilt für die reelle Amplitude bei Anregungsfrequenz ω im eingeschwungenen Fall

$$A(\omega) = \frac{F_0}{m \sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (2\gamma\omega)^2}}. \quad (3.5)$$

Die Phase zwischen der treibenden Kraft und der Oszillationsamplitude folgt mit

$$\Theta(\omega) = \arctan \left(\frac{2\gamma\omega}{\omega_0^2 - \omega^2} \right). \quad (3.6)$$

² Nur in diesem Abschnitt bezeichnet γ nicht das Deformationspotential.

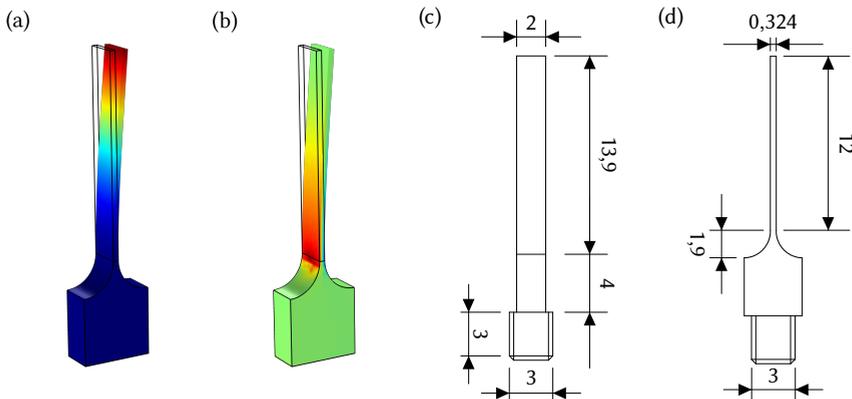


Abbildung 3.1: (a) Auslenkung und (b) Deformation des Vibrating Reed. In (c) und (d) sind die Maße des Reeds in mm aufgeführt, der untere Teil des Sockels ist zu einem Gewinde geschnitten [2].

Die Frequenz maximaler Amplitude im getriebenen Fall ist die Amplitudenresonanzfrequenz $\omega_{\text{res}} = \sqrt{\omega_0^2 - 2\gamma^2}$, die sogar noch niedriger liegt, als die Eigenfrequenz des gedämpften Oszillators [39]. Die absorbierte Leistung wird jedoch bei $\omega = \omega_0$ maximal, dort ist die Phase zwischen Anregung und Auslenkung des Oszillators gerade $\Theta = \pi/2$ [39].

Bei der Messung wird das Reed kontinuierlich angetrieben und die Phase auf $\Theta = \pi/2$ geregelt. Da die Güte des Reeds typischerweise über $Q > 10^4$ liegt und die Schwingungsfrequenz $f = 1,1$ kHz beträgt, ist $\gamma \lesssim 1$. Die Amplitudenresonanzfrequenz verschiebt sich damit um $\delta\omega_{\text{res}}/\omega_{\text{res}} \lesssim 3 \cdot 10^{-9}$ gegenüber der Frequenz des Phasendurchgangs $\Theta = \pi/2$. Die Zunahme der Güte hin zu tiefen Temperaturen verkleinert diesen Abstand noch weiter. Die typische gemessene Frequenzverschiebung durch die Schallgeschwindigkeitsänderung ist von der Größenordnung $\delta\omega/\omega = 10^{-5}$, die Frequenzverschiebung durch die Dämpfung ist maximal bei der geringsten Güte bei hohen Temperaturen und um zwei Größenordnungen kleiner als das Rauschen von $\delta\omega/\omega = 10^{-6}$.

3.1.2.3 Geometrie und Simulation der Moden

Aus dem ca. 21 mm langen Zylinder des BMG wurde an einem Ende ein M3 Gewinde mit 3 mm Länge geschnitten und der längere Teil mit einem Fräser zu einem Balken mit einer Dicke von 2 mm gefräst. Anschließend wurde aus dem Balken auf 12 mm Länge eine Zunge mit 0,324 mm Dicke heraus gearbeitet, wobei

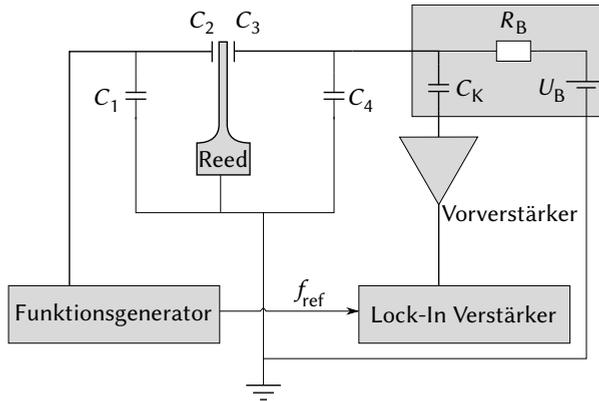


Abbildung 3.2: Aufbau zur Messung der Schwingung des Vibrating Reed. Der Funktionsgenerator erzeugt eine Sinusspannung der Frequenz f , die das Reed über den Kondensator zwischen Elektrode und Reed C_2 zur Oszillation mit $2f$ anregt. Die Kapazität zur gegenüberliegenden Elektrode C_3 variiert durch die Abstandsänderung, die Modulation der Spannung wird über C_K ausgekoppelt und mit einem Lock-In Verstärker bei der Frequenz $2f$ gemessen.

der Übergang zum Sockel ein Kreissegment mit dem Durchmesser des Fräsers von 1,9 mm hat [2]. Mit dieser Geometrie, die in Abb. 3.1 dargestellt ist, wird eine Deformation des Materials in der Nähe der Einspannung vermieden, was die temperaturunabhängige Restdämpfung reduziert. So ist es möglich an Reeds aus Aluminium inverse Güten von $Q^{-1} \leq 5 \cdot 10^{-6}$ zu erreichen [46].

Um die Eigenfrequenz dieses Reeds zu berechnen, können die in den Ultraschall-experimenten bestimmten transversalen und longitudinalen Schallgeschwindigkeiten verwendet werden. Die beiden angrenzenden Teile des Zylinders zeigen signifikant unterschiedliche Schallgeschwindigkeiten: In einem angrenzenden Zylinder $v_t = (2182 \pm 7) \text{ m/s}$ und $v_l = (4741 \pm 28) \text{ m/s}$ [62] beziehungsweise $v_t = (2029 \pm 10) \text{ m/s}$ und $v_l = (4421 \pm 10) \text{ m/s}$ bei dem zweiten angrenzenden Zylinder [29]. Die Unterschiede deuten auf eine Inhomogenität des Materials hin, was im Herstellungsprozess begründet sein kann: Der Teil, der beim Guß als erstes abgeschreckt wird, hat eine größere Kühlrate als das Ende, das zuletzt gegossen wird. Entlang des Radius des Zylinders variiert die Kühlrate ähnlich: die Randbereiche werden schneller abgekühlt als der Kern. Die mittlere Schallgeschwindigkeit erlaubt, mit Gl. 3.1 das Young'sche Modul $E = 70 \text{ MPa}$ und mit Gl. 3.2 das Poisson-Verhältnis $\sigma = 0,35$ zu berechnen. Mit der Dichte des Materials $\rho = 6592 \text{ kg/m}^3$ [47] kann durch numerische Simulation die Eigenfrequenz und der Ort der größten Deformation berechnet werden, die in Abb. 3.1(b) dargestellt ist.

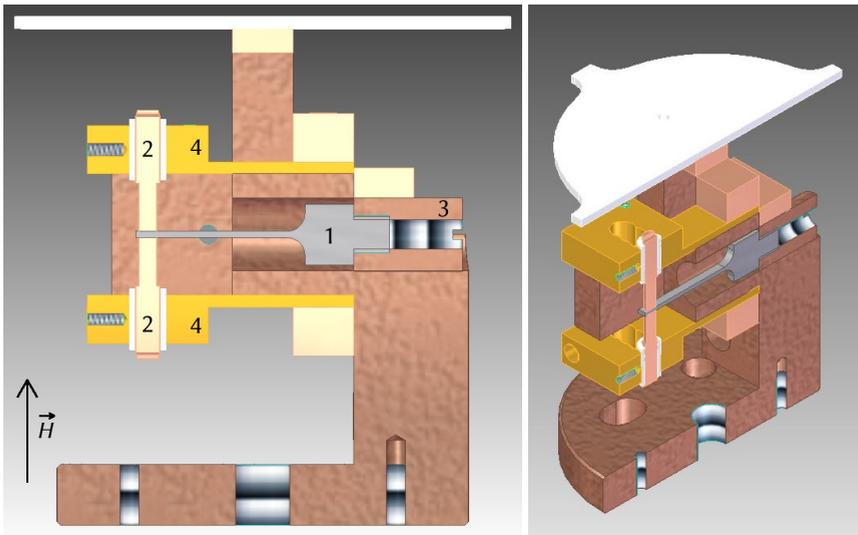


Abbildung 3.3: Halterung für das Vibrating Reed. Das Reed (1) bildet mit den Elektroden (2) Kondensatoren, über die Schwingungen angeregt und detektiert werden können. Es ist in eine drehbar gelagerte Kupferhülse eingeschraubt (3), mit der das Reed ausgerichtet werden kann. Im Kryostaten ist das Magnetfeld vertikal ausgerichtet, so dass die Auslenkung des Reeds parallel zu den Feldlinien verläuft. Die Elektroden werden mit geklemmten Messingbacken (4) in Position gehalten. Der Abstand der Elektroden zum Reed kann durch Schrauben eingestellt werden, mit denen die Backen vom Gehäuse abgedrückt werden. Der gesamte Halter wird an der Mischkammer angeschraubt und durch eine Teflonscheibe (weißer Deckel) zusätzlich im Kryostaten zentriert [27].

3.1.2.4 Messung der Biegeschwingung

Das Vibrating Reed wird elektrisch zur Schwingung angeregt, die ebenfalls elektrisch ausgelesen wird, wie in Abb. 3.2 schematisch dargestellt. Der Funktionsgenerator erzeugt eine Sinusspannung der Frequenz f , die das Reed über C_2 zur Schwingung mit Frequenz $2f$ anregt. Durch die Schwingung ändert das Reed periodisch den Abstand von Kondensator C_3 , dessen Kapazität so oszilliert. Mit einer Batteriespannung von $U_0 = 84 - 120 \text{ V}$ wird dieser durch einen großen Vorwiderstand $R_B = 470 \text{ M}\Omega$ auf eine konstante Ladung Q aufgeladen. Durch die oszillierende Kapazität wird so die Spannung $U_0 + \delta U = Q/(C_3 + \delta C)$ variiert, die über C_K ausgekoppelt und verstärkt wird. Da das Reed mit der doppelten Frequenz der Anregung schwingt, kann die Anregungsspannung leicht von der Schwingungsfrequenz durch einen Lock-In Verstärker getrennt werden.

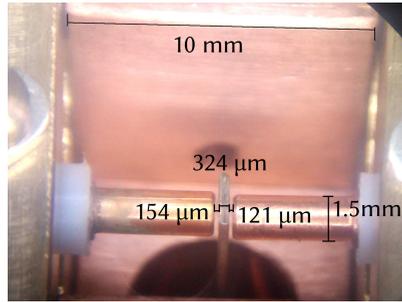


Abbildung 3.4: Vibrating Reed zwischen den Elektroden. Mit der bekannten Länge der Kupfer-teile und Dicke der Elektroden kann der Abstand zwischen Reed und Elektrode von $154\ \mu\text{m}$ bzw. $121\ \mu\text{m}$ und die Dicke des Reeds von $324\ \mu\text{m}$ bestimmt werden [27].

Einspannung im Magnetfeld Um Messungen im Magnetfeld durchführen zu können, muss die Auslenkung parallel zu den Feldlinien verlaufen. In dieser Ausrichtung ist die Änderung der vom Magnetfeld durchdrungenen Fläche minimal und damit die Erzeugung von Wirbelströmen. Bei einem supraleitenden Plättchen können diese Ströme bei paralleler Ausrichtung im Magnetfeld eine Rückstellkraft erzeugen, welche die Resonanzfrequenz fast um eine Größenordnung erhöhen kann [16].

Der Halter, mit dem das Reed und die Elektroden im Kryostaten befestigt werden, ist in Abb. 3.3 dargestellt. Die Abstände zwischen dem Reed und den Elektroden können aus einer Aufnahme durch ein Binokular durch Vergleich mit bekannten Längen abgeschätzt werden, wie in Abb. 3.4 zu erkennen ist. Das Reed (Abb. 3.3(1)), wird mit dem Gewinde in eine zylinderförmige Kupferhülse geschraubt (Abb. 3.3(3)), die im Halter drehbar gelagert ist und so parallel zu den Elektroden (Abb. 3.3(2)), ausgerichtet werden kann. Das so eingespannte Reed zeigt im Magnetfeld knapp unterhalb des kritischen Feldes H_{c2} eine Frequenzverschiebung von maximal 35 Hz, was einer Änderung von 3% entspricht [27]. Sobald die Supraleitung vollständig unterdrückt ist, schwingt das Reed mit 1103,28 Hz, was gegenüber der Oszillation ohne Magnetfeld mit 1102,74 Hz eine Erhöhung der Frequenz um $5 \cdot 10^{-4}$ entspricht.

Für die immer noch vorhandene, aber relativ kleine Änderung gegenüber einem parallel eingespannten Reed gibt es mehrere mögliche Ursachen. Zum einen ist die Flächenänderung nicht exakt 0 sondern nur in erster Ordnung. Die Flächenänderung hängt von der Auslenkung wie $\cos(\Theta) = 1 - 1/2 \cdot x^2 + O(x^4)$ ab. Bei einer Länge des Reeds von $l = 12\ \text{mm}$ und einer Auslenkung von der Größenordnung

einiger $d = 100 \text{ nm}$ ergibt sich in zweiter Ordnung eine Änderung der Fläche die senkrecht zum Magnetfeld steht von

$$\frac{\delta A}{A} = \cos(\Theta) \approx 1 - \frac{1}{2}\Theta^2 = 1 - \frac{1}{2} \left(\frac{d}{l} \right)^2 \approx 1 - 10^{-9}. \quad (3.7)$$

Die maximale Frequenzerhöhung ist gegenüber der parallelen Einspannung nur um einen Faktor 10^4 reduziert, die Flächenänderung ist jedoch um 10^9 unterdrückt. Die Flächenänderung kann daher nicht alleine die Ursache der Frequenzänderung im Magnetfeld sein.

Das Reed wird mit Hilfe der Elektroden ausgerichtet, indem es so gedreht wird, dass die Stirnfläche der Elektroden plan auf dem Reed aufliegen. Anschließend wird der Abstand zwischen dem Reed und den Elektroden über Abdrückschrauben in den Klemmbanken eingestellt. Dieses Vorgehen erlaubt bereits eine senkrechte Ausrichtung auf weniger als 1° , die Größe des Effekts im Magnetfeld erfordert jedoch eine Ausrichtung auf einen Bruchteil. Ohne größeren Aufwand ist eine derart präzise Ausrichtung nicht ohne weiteres möglich: mit planparallel geläpften Elektroden in einer präzisen Führung könnte solch eine Ausrichtung zu erreichen sein.

Weitere Experimente bieten sich jedoch als Ultraschallpulse bei einigen MHz in einem massiven Zylinder an. Die Experimente bei hohen Frequenzen legen nahe, dass das Magnetfeld dann keinen störenden Einfluss auf die Messung hat. Ob eine Schallwelle durch die Auslenkung des elastischen Materials im Magnetfeld mit einer anderen Geschwindigkeit propagiert als ohne Magnetfeld, wurde von ALPHER und RUBIN theoretisch untersucht [4]. Der Effekt wird als sehr klein eingeschätzt, bei den hier verwendeten Frequenzen könnte sich die Schallgeschwindigkeit im Magnetfeld um $\delta v/v \approx 10^{-6}$ erhöhen, was um Größenordnungen kleiner als die tatsächlich beobachtete Frequenzverschiebung ist. Die Absorption wird lediglich als verschwindend klein genannt.

3.1.3 Ultraschall

3.1.3.1 Phasensensitive Schallgeschwindigkeitsmessung

Die Änderung der Schallgeschwindigkeit bei tiefen Temperaturen wird mithilfe der phasensensitiven Detektion von Ultraschallpulsen gemessen. Dazu werden Pulse von einigen 100 ns Dauer an der Stirnseite eines Zylinders aus metallischem Glas erzeugt, die das Material anschließend durchlaufen, wie in Abb. 3.5 dargestellt.

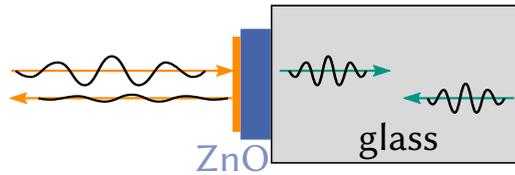


Abbildung 3.5: Prinzip der Ultraschallmessung. Ein Mikrowellenpuls wird an eine ZnO-Schicht angelegt, die das elektrische in ein akustisches Signal wandelt. Der Schallpuls durchläuft die Probe, wird am Ende reflektiert und bei Erreichen der ZnO-Schicht wieder in einen Mikrowellenpuls gewandelt.

An der gegenüberliegenden Stirnseite wird der Schall reflektiert und läuft wieder zurück zum Wandler, der aus der einlaufenden Schallwelle wieder ein elektrisches Signal erzeugt. Dieses elektrische Signal wird verstärkt und seine Amplitude sowie seine Phasenlage zum ursprünglichen elektrischen Signal bestimmt.

Ändert sich die Schallgeschwindigkeit in der Probe, so wird auch die Phasenlage zwischen dem Referenzweig und dem detektierten Ultraschallsignal verschoben (siehe Abb. 3.6). Durch Variation der Frequenz kann die Phasenlage konstant gehalten werden, da die Wellenlänge des Ultraschalls sich ändert. Die Änderung der Phasenlage des Referenzzweiges ist vernachlässigbar, da die Phase sich um einen Faktor Schallgeschwindigkeit durch Lichtgeschwindigkeit $v_{1/t}/c$ weniger ändert (siehe Gl. 3.9).

Auf eine Seite der planparallel geläpften Endflächen des Zylinders aus metallischem Glas wird direkt eine piezoelektrische Zinkoxid-Schicht durch Kathodenzerstäubung aufgebracht. Diese Schicht wird mit einem indiumbeschichteten Federkontaktstift kontaktiert, der als Innenleiter einer Koaxialleitung ausgeführt ist. Zwischen dem Stift und der Probe entsteht so ein Kondensator, in dem das Zinkoxid (ZnO) als Dielektrikum in einem elektrischen Wechselfeld liegt. Ein Mikrowellenpuls erzeugt eine Dickenänderung des ZnO, die als Ultraschallpuls in die Probe eingekoppelt wird. Der Ultraschall läuft durch die Probe, wird an der Rückseite reflektiert und läuft wieder zurück zum ZnO-Wandler. Durch die Ausdehnung des Wandlers und der Kontaktfläche von ca. $\varnothing \approx 1 \text{ mm}$ hat auch die Wellenfront des Ultraschallpuls eine Ausdehnung senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Damit der Puls im ZnO wieder eine Spannung erzeugt, muss die gesamte Wellenfront mit gleicher Phasenlage eine Verzerrung des Wandlers erzeugen. Die akustische Laufstrecke durch die Probe muss daher über den Durchmesser des Pulses innerhalb eines Bruchteils der Wellenlänge von ca. $1 \mu\text{m}$ bei 2 GHz übereinstimmen.

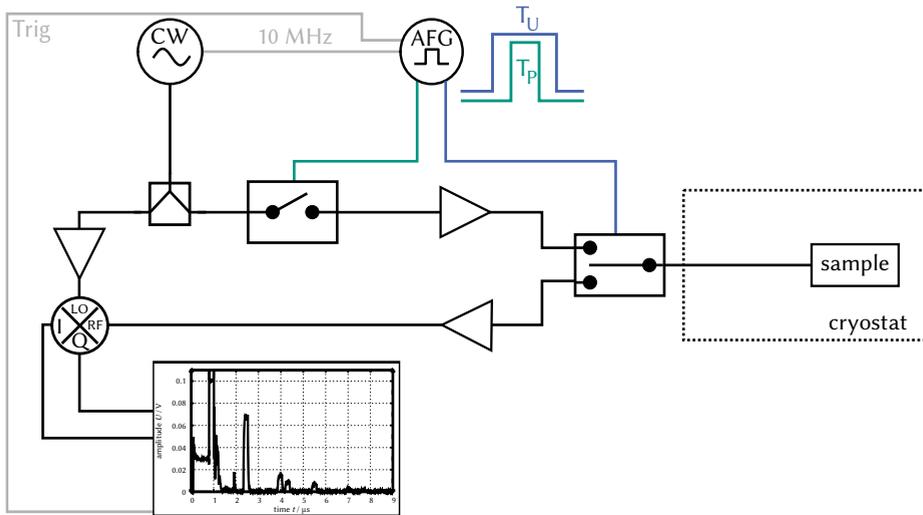


Abbildung 3.6: Schematischer Aufbau zur Erzeugung und Detektion kurzer Mikrowellenpulse. Der Sinusgenerator (CW) erzeugt ein kontinuierliches Signal, aus dem Pulse geformt werden. Mit einem Umschalter werden die Mikrowellenpulse zur Probe gelenkt und nach der Laufzeit durch die Probe verstärkt. Der I&Q-Mischer erlaubt die Detektion der Amplitude und Phasenlage zum Referenzsignal (nach [62]).

Die beiden Endflächen sind dafür planparallel geläpft, um den Laufstreckenunterschied durch die Probe klein zu halten. Erzeugt der ZnO-Wandler durch die rücklaufende Ultraschallwelle eine Spannung, entsteht wieder ein elektrischer Mikrowellenpuls, der durch den Federkontaktstift und die Koaxialleitung zu einem Verstärker geleitet wird.

Zur Erzeugung und Detektion der Mikrowellenpulse wird ein kontinuierliches Mikrowellensignal (CW-Generator in Abb. 3.6) aufgeteilt in einen Referenzzweig und einen Zweig, in dem die Pulse geformt werden. Mit einem Arbiträr-Funktionsgenerator (AFG) wird ein Schalter für die Dauer T_p des gewünschten Pulses geschlossen. Der Puls kann nun noch einmal verstärkt werden, um eine ausreichende Amplitude des Ultraschallsignals zu erreichen. Mit einem Umschalter wird dieser Puls zur Probe gelenkt, von der ein Teil des elektrischen Signals reflektiert wird. Während der Ultraschallpuls durch die Probe läuft, wird der Umschalter auf den Detektionszweig umgestellt. Der reflektierte Ultraschallpuls erzeugt nach einer Laufzeit von wenigen Mikrosekunden einen Mikrowellenpuls, der um 60 – 80 dB verstärkt wird. Da im ZnO nur ein Bruchteil der Energie des Ultraschallpulses wieder in einen Mikrowellenpuls gewandelt wird, entsteht eine

Pulsfolge, deren Amplitude proportional zur Amplitude des im Zylinder vor- und zurücklaufenden Ultraschallpulses ist. Die verstärkten Pulse werden durch einen I&Q Mischer mit dem Referenzsignal des CW-Generators gemischt. Das heruntergemischte Signal erlaubt, die Amplitude und die Phasenlage zwischen dem detektierten Ultraschall und der Referenz zu bestimmen.

Zur Messung der Schallgeschwindigkeitsänderung wird die Phasenlage konstant gehalten, indem die Frequenz nachgeregelt wird. Dazu wird ein Puls ausgewählt und sein Anteil, der in Phase (I-Anteil) oder um 90° verzögert zur Referenz (Q-Anteil) liegt, auf 0 geregelt. Wird der Q-Anteil auf 0 geregelt, entspricht der I-Anteil gerade der Amplitude. Die Phasenlage zwischen Ultraschall-Zweig und Referenz-Zweig $\varphi = (x_{\text{Probe}}\omega/v - \omega t) - (x_{\text{Ref}}\omega/c - \omega t) = n\pi$ ist dabei unabhängig von der Zeit t , da die Frequenz ω auf beiden Pfaden identisch ist. Der Weg durch die Probe x_{Probe} enthält dabei einen Teil, der mit Schallgeschwindigkeit v und einen Teil der mit der Lichtgeschwindigkeit im Kabel c zurückgelegt wird, wobei der Teil im Kabel wegen $c \gg v$ vernachlässigt wird. Für die Messung wird diese Phasenlage $\delta\varphi = \varphi - \varphi_0 = 0$ konstant gehalten, indem ein Dreiecksvergleich über die Phase des Referenzzweigs x_{Ref} durchgeführt wird:

$$\delta\varphi = \omega \left(\frac{x_{\text{Probe}}}{v} - \frac{x_{\text{Ref}}}{c} \right) - \omega_0 \left(\frac{x_{\text{Probe}}}{v_0} - \frac{x_{\text{Ref}}}{c} \right) \quad (3.8)$$

$$\Rightarrow x_{\text{Probe}} \left(\frac{\omega}{v} - \frac{\omega_0}{v_0} \right) = x_{\text{Ref}} \left(\frac{\omega}{c} - \frac{\omega_0}{c} \right) \quad (3.9)$$

Kompensiert man eine typische Änderung der Schallgeschwindigkeit von $4 \cdot 10^{-3}$ von Raumtemperatur auf 50 mK, so ändert sich die Phase des Referenzpfades auf der rechten Seite von Gl. 3.9 um $0,04 \cdot x_{\text{Ref}}$, während bei konstanter Frequenz die linke Seite durch die Schallgeschwindigkeitsänderung um $2000 \cdot x_{\text{Probe}}$ variiert. Die Änderung der Phase im Referenzweig ist um $v/c \approx 10^{-5}$ kleiner als in der Probe und kann daher ebenfalls vernachlässigt werden. Für die Schallgeschwindigkeitsänderung gilt dann in guter Näherung $\omega/\omega_0 = v/v_0$.

Für ein reflektiertes Signal, das die Probe zweifach durchlaufen hat, variiert die Phase bei Frequenzänderung doppelt so häufig wie für das erste Echo. Bei konstanter Schallgeschwindigkeit ist dies ist aus Gl. 3.8 durch Einsetzen von $2x_{\text{Probe}}$ für den zurückgelegten Weg ersichtlich. Die zweite Reflexion $\delta\varphi_{2, \text{Ref}}$ legt die doppelte Strecke $2 \cdot x_{\text{Probe}}$ zurück wie die erste Reflexion $\delta\varphi_{1, \text{Ref}}$ während der Referenzweg identisch ist:

$$\delta\varphi_{1. \text{ Ref.}} = \frac{x_{\text{Probe}}}{v}(\omega - \omega_0) - \frac{x_{\text{Ref}}}{c}(\omega - \omega_0) \approx \frac{x_{\text{Probe}}}{v} \delta\omega \quad (3.10)$$

$$\delta\varphi_{2. \text{ Ref.}} = \frac{2x_{\text{Probe}}}{v}(\omega - \omega_0) - \frac{x_{\text{Ref}}}{c}(\omega - \omega_0) \approx 2 \frac{x_{\text{Probe}}}{v} \delta\omega \quad (3.11)$$

3.1.3.2 Ultraschall-Dämpfung

Jeder Puls läuft mehrfach durch die Probe, so dass die gemessene Pulsfolge theoretisch eine exponentiell abklingende Amplitude besitzen sollte. Die Abklingkonstante erlaubt dann eine absolute Bestimmung der Absorption in der Probe. Dieses exponentielle Abklingen wurde jedoch nur in den seltensten Fällen beobachtet. Als Ursache konnte ein einfacher Interferenzeffekt, der durch nicht vollständig planparallele Stirnflächen verursacht wird, ausgeschlossen werden [62]. Eine Inhomogenität des Materials, die eine Variation der Schallgeschwindigkeit im Durchmesser der Probe erzeugt, kann ein nicht-exponentielles Abklingen der gemessenen Schallamplitude verursachen. Die leicht unterschiedliche Schallgeschwindigkeit in den einzelnen Zylindern, obwohl sie aus einem Guß sind, ist ein Hinweis auf eine vorhandene Inhomogenität des Materials.

Im Gegensatz zur absoluten Laufstreckendämpfung des Schalls kann bei gegebener Frequenz jedoch die Änderung der Amplitude einer Reflexion in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen werden. So ist es möglich, die Änderung der Absorption zu bestimmen und damit den Einfluss der TS auf die Ultraschalldämpfung zu untersuchen.

3.2 Ungeordnetes Aluminium-Oxid

Silizium ist in der Halbleiterherstellung von besonderem Wert, weil sein Oxid epitaktisch als Isolator zwischen verschiedenen Schichten hergestellt werden kann. In ähnlicher Weise ist Aluminium ein Standard-Material für die Herstellung von supraleitenden Schaltkreisen, da durch Oxidieren relativ leicht und zuverlässig Tunnelkontakte hergestellt werden können.

Aluminium ist dabei unterhalb der Sprungtemperatur von $T_C = 1,18 \text{ K}$ ein Supraleiter mit einer Energielücke $2\Delta_{\text{Al}} = (320 \pm 30) \mu\text{eV} = (3.2 \pm 0.3)k_B \text{ K}$, innerhalb derer die Elektronen nicht angeregt werden können [34]. Unter den elementaren Supraleitern ist dies keineswegs die höchste Sprungtemperatur, Niob mit $T_C = 9,26 \text{ K}$ scheint für supraleitende Schaltkreise weit besser geeignet [6].

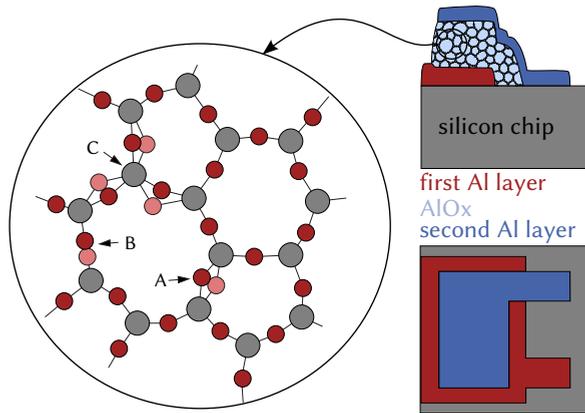


Abbildung 3.7: Schematischer Aufbau der Kondensatoren (**rechts**). Die untere Elektrode besteht aus gesputtertem Aluminium (rot), auf die in Sauerstoffatmosphäre eine reaktiv gesputterte AlO_x -Schicht (hellblau) abgeschieden wird, die *in situ* mit einer weiteren Aluminium-Schicht (blau) bedeckt wird. Der Ausschnitt **links** illustriert die Tunnelsysteme im ungeordneten Aluminiumoxid.

Doch die Zuverlässigkeit der JOSEPHSON-Kontakte in Aluminium geht so weit, dass selbst in Schaltkreisen aus Niob die Kontakte als Aluminium-Aluminiumoxid-Kontakt ausgeführt werden.

Die JOSEPHSON-Kontakte ermöglichen den Aufbau künstlicher Zwei-Niveau-Systeme, den Qubits, die empfindlich genug sind, mit einzelnen TS kohärent in Wechselwirkung zu treten. Diese Wechselwirkung ist oft nicht erwünscht, da die Nutzbarkeit des Qubits eingeschränkt wird, doch sie ermöglicht es, die Eigenschaften einzelner TS genauer zu studieren. Messungen legen nahe, dass die TS in der Oxidschicht des JOSEPHSON-Kontaktes im Aluminiumoxid liegen. Trotz dieser Möglichkeit, die Wechselwirkung mit einzelnen TS zu nutzen und der häufigen Verwendung von Aluminiumoxid in unterschiedlichen Bereichen ist vieles an der mikroskopische Entstehung des Tunnelkontakts noch unverstanden.

3.2.1 Herstellung der Plattenkondensatoren

Auf einem Silizium-Chip werden die Kondensatoren der Serie ResAl08 in einem Dreischicht-Prozess hergestellt, der in Abb. 3.7 Schematisch dargestellt ist. Die Silizium-Oberfläche wird mit Aceton, Isopropanol und Ethanol gereinigt und anschließend in einem Argon-Plasma (Ar) mit einer Leistung von 20 W bei 2,8 Pa und

einem Durchfluss von 14 sccm in der Vorkammer (load-lock) einer Beschichtungsanlage³ gereinigt. Im Plasma wird die Wasserschicht, die durch die Luftfeuchtigkeit auf allen Oberflächen entsteht, und mögliche organische Reste entfernt. Nach dem Transfer in die Hauptkammer mit einem Basisdruck von $2 \cdot 10^{-6}$ Pa wird die untere Elektrode in einem DC-Plasma von einem Aluminium-Platte (Al-Target) bei 300 W unter einem Ar-Druck von 0,12 Pa bei einem Fluss von 19 sccm gesputtert. Um das Al-Target zu reinigen bleibt die Abdeckung (shutter) zur Probe für 120 s geschlossen (presputter), anschließend wird innerhalb von 160 s die Al-Elektrode von 50 nm Dicke abgeschieden. Aus der flächigen unteren Elektrode wird mithilfe der optischen Lithografie und reaktivem Ätzen die untere Al-Lage strukturiert. Der Teil der Al-Schicht, der nicht von Fotolack geschützt ist, wird in einem induktiv gekoppelten Plasma (ICP) bei 1,3 Pa bei einem Durchfluss von 20 sccm Ar und 2 sccm Chlorgas Cl_2 bei 100 W ICP-Plasmaleistung und 100 W RF-Biasleistung abgetragen.

Die zweite und dritte Lage wird in einem Abhebeprozess (lift-off) hergestellt. Eine Fotolack-Schicht bedeckt alle Stellen, an denen später kein Aluminiumoxid mit oberer Elektrode vorhanden sein soll. Die Probe mit der strukturierten Fotolackschicht wird in der Vorkammer in einem Ar-Plasma bei 100 W mit 2,5 Pa und 2 sccm Durchfluss von Ar für 16 min gereinigt, um das native Oxid von der unteren Al-Elektrode zu entfernen. Anschließend wird der Chip in die Hauptkammer transferiert, wo die 28 nm dicke AlO_x -Schicht bei 300 W von einem reinen Al-Target in einem Gasgemisch bei 1,4 Pa in einem Durchfluss von 33 sccm Ar und 10 sccm Ar/O_2 80/20 reaktiv aufgetragen wird. Nach 5 min Konditionierung des Targets (presputter) wächst die Oxidlage innerhalb 1 min. In direkten Anschluss wird die obere Al-Elektrode hergestellt, die wieder in reinem Ar bei 0,12 Pa und einem Durchfluss von 19 sccm nach 2 min Konditionierung hergestellt wird. Die obere Elektrode wird zur Kontaktierung 200 nm dick, was eine Deposition von 8 min Dauer erfordert. Weitere Details zur Herstellung sind in der Arbeit von SASKIA MEIBNER beschrieben [56].

Weitere Proben mit identischen Parametern der Herstellung und abweichenden Schichtdicken wurden ebenfalls hergestellt, meist zeigen sie Leitfähigkeiten durch das Dielektrikum, die eine Messung als Plattenkondensator unmöglich machen.

³ PLASMA I

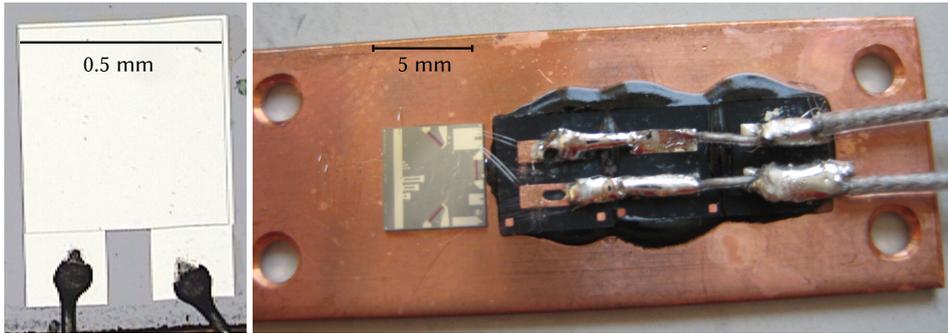


Abbildung 3.8: Links: Kondensator mit Kontaktierung durch Aluminium-Bond-Drähte. **Rechts:** Kontaktierte Probe auf einem Kupfer-Probenhalter. Die Koaxialkabel sind mehrfach thermisch angekoppelt.

Ein alternatives Verfahren zur Herstellung der Oxidschicht wurde in den Proben der Serie ResAl_A angewandt. Hier wurde die Oxidschicht durch wiederholtes aufwachsen und oxidieren von je 1 nm Al hergestellt. Die Proben enthalten jedoch zwischen der unteren Elektrode und der Oxidschicht noch eine Lage Fotolack von etwa 1 nm Dicke, die beim Abheben nach dem ersten Lithografieschritt nicht vollständig entfernt wurde.

3.2.2 Messung der Kapazitäten

Die Kapazität wird direkt mit einer ANDEEN-HAGERLING AH2500 Kapazitätsmessbrücke gemessen, die über einen variablen Transformator gegen interne Referenzkondensatoren und mit einem Lock-In Verstärker einen virtuellen Massepunkt herstellt. Die Verbindung von der Messbrücke zu den Proben wird über Koaxialkabel vollständig abgeschirmt, eine Seite der Probe liegt dadurch auf dem Potential der virtuellen Masse. Zwischen der elektrischen Masse des Kryostaten und den Proben besteht keine direkte galvanische Verbindung. Die Probe wird auf einem Kupfer-Plättchen flächig aufgeklebt, um einen guten thermischen Kontakt zu gewährleisten. Die elektrische Zuleitung durch die Koaxialkabel wird auf elektrisch isolierenden, thermisch leitfähigen Kontaktfeldern⁴ aufgelötet und der Innenleiter über ein weiteres Kontaktfeld geführt. Von einem dritten Kontaktfeld führen schließlich die Bond-Drähte zu den strukturierten Kondensatoren, die in Abb. 3.8 zu erkennen sind.

⁴ bondable terminals, MM MICRO-MEASUREMENTS, VISHAY PRECISION GROUP, INC

3.2.2.1 Kapazität und Verlust

Die Messbrücke gibt die Kapazität C und die Leitfähigkeit G durch die Probe aus. Den Werten liegt das Modell einer Kapazität mit parallel geschaltetem Widerstand zu Grunde. Mit der Messfrequenz f kann aus der Leitfähigkeit und der Kapazität der Verlusttangens $D = \tan(\delta) = G/(C \cdot 2\pi \cdot f)$ berechnet werden [3]. Der Verlustfaktor D entspricht sowohl dem Verlusttangens $\tan(\delta)$ als auch der inversen Güte eines Resonators $1/Q$. Die Messbrücke gibt C in pF und G in nS aus, bei der Umrechnung muss die Einheit entsprechend berücksichtigt werden. Gibt man f in kHz an, heben sich die Einheitenvorsätze gerade auf: $\text{nS}/(\text{pF} \cdot \text{kHz}) = 10^{-9}/10^{-12+3} \text{S}/(\text{F} \cdot \text{Hz})$. Der spezifische Widerstand $\rho = R \cdot A/d = A/(d \cdot G)$ lässt sich mit Hilfe der Geometrie abschätzen. Aus der Kapazität $C = \epsilon_0 \epsilon_{\text{AlO}_x} A/d$ und der Geometrie kann die Permittivität berechnet werden: $\epsilon = C \cdot d/\epsilon_0 A$.

4 Messungen an ungeordneten Materialien

In diesem Kapitel wird die Messung der Suszeptibilität durch TS bei tiefen Temperaturen in zwei grundlegend verschiedenen Materialien vorgestellt. Die Gemeinsamkeit liegt darin, dass beide Materialien – das metallische Glas und das ungeordnete Aluminiumoxid – TS enthalten, welche die Tieftemperatureigenschaften dominieren. Im ersten Teil wird durch die Messung der Schallgeschwindigkeitsänderung im metallischen Glas der Einfluss der Wechselwirkung von TS mit Quasiteilchen bzw. Leitungselektronen untersucht. Im zweiten Teil wird die Permittivität von Plattenkondensatoren gemessen, deren Temperaturabhängigkeit von TS im AlO_x dominiert wird.

4.1 Akustische Eigenschaften des metallischen Glases

Die Schallgeschwindigkeitsänderung unterhalb der Raumtemperatur wird anhand der Oszillationsfrequenz eines Vibrating Reed und der Laufzeit eines Ultraschallpulses durch einen Zylinder gemessen. Von Raumtemperatur bis zur Temperatur von flüssigem Helium steigt die Schallgeschwindigkeit um etwa 2% an [62]. Die akustischen Eigenschaften unterhalb 4 K werden in dem folgenden Kapitel vorgestellt und anhand des Tunnelmodells interpretiert. Die Schallgeschwindigkeitsänderung im supraleitenden Zustand erlaubt es, die Relaxationsraten der dominanten TS bei einigen Temperaturen zu bestimmen. Mit Hilfe dieser Raten können die Kopplungsstärken der TS an Phononen und Elektronen bestimmt werden. Anschließend kann die numerische Integration mit den gewonnenen Daten durchgeführt werden, deren Ergebnisse vorgestellt werden.

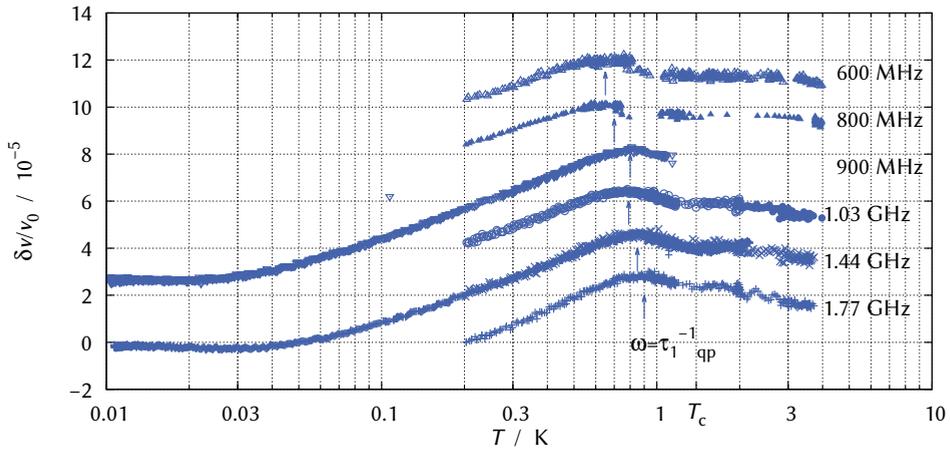


Abbildung 4.1: Schallgeschwindigkeitsänderung von longitudinalem Ultraschall in $Zr_{59}Ti_3Cu_{20}Ni_8Al_{10}$ bei 600 MHz bis 1,77 GHz (von oben nach unten) im supraleitenden Zustand. Anhand des Maximums wird die Energie-Relaxationsrate $\tau_{1,qp}^{-1}$ bestimmt.

Die Berücksichtigung der Linienbreite der TS ist für das Verständnis der Daten im normalleitenden Zustand wichtig. Für die Messung der Schallgeschwindigkeitsänderung wird die Supraleitung durch ein starkes Magnetfeld von 3 – 4 T unterdrückt, das deutlich größer als das kritische Feld $\mu_0 H_{c2} = 2,7 T$ des metallischen Glases ist [22, 27].

4.1.1 Supraleitender Zustand

Deutlich unterhalb T_c verhält sich das supraleitende metallische Glas für die TS wie ein Isolator. Die Elektronen stehen nicht für eine Wechselwirkung mit TS zur Verfügung, da sie in COOPER-Paaren gebunden sind. Die Schallgeschwindigkeitsänderung in Abb. 4.1 und später in Abb. 4.5 und 4.7 zeigt von tiefster Temperatur bis ca. 0,6 K den von einem dielektrischen Glas nach dem Tunnelmodell erwarteten Verlauf, wie in Kap. 2.3.3 beschrieben: Bei $2,2k_B T = \hbar\omega$ beginnt der Beitrag der transversalen Suszeptibilität mit einem Minimum der Schallgeschwindigkeitsänderung, dessen Position durch die Frequenz des angelegten Ultraschalls bestimmt ist. Bei der Ultraschallfrequenz von 1,44 GHz in Abb. 4.1 ist dies gerade bei 31 mK der Fall. Dieses Minimum in der Schallgeschwindigkeitsänderung entsteht als Summe der vielen Beiträge einzelner TS zur transversalen Suszeptibilität, die nahe ihrer Resonanzfrequenz angeregt werden, wie in der Einführung für ein Ensemble in Abb. 2.3 gezeigt ist. Die leichte Abnahme der Schallgeschwindigkeit von tiefster

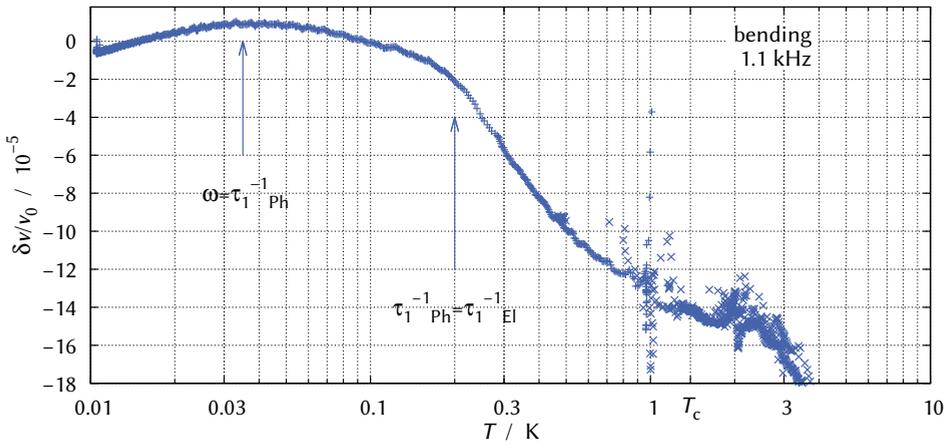


Abbildung 4.2: Schallgeschwindigkeitsänderung aus der Oszillationsfrequenz des Vibrating Reed aus $Zr_{59}Ti_3Cu_{20}Ni_8Al_{10}$ im supraleitenden Zustand. Bei 35 mK ist das Maximum in der Schallgeschwindigkeitsänderung. Bei Temperaturen oberhalb wird der Beitrag der longitudinalen Suszeptibilität durch die Relaxationsprozesse wichtig. Die Änderung der Steigung bei 200 mK markiert die Temperatur, oberhalb der die Wechselwirkung der TS mit thermisch aktivierten Quasiteilchen die Energie-Relaxationsrate τ_1^{-1} dominiert.

Temperatur zu dem Minimum zeigt zudem, dass sich das metallische Glas bis zu den tiefsten erreichten Temperaturen im thermischen Gleichgewicht mit dem Kryostaten und den verwendeten Thermometern befindet. Mit zunehmender Temperatur zeigt die Schallgeschwindigkeitsänderung einen logarithmischen Anstieg mit der Steigung C , wie in Kap. 2.3.3 beschrieben. Mit zunehmender Temperatur können immer weniger TS einen niederfrequenten Beitrag zur Suszeptibilität liefern, da sie durch die thermische Energie in Gleichbesetzung gebracht werden.

Bei den hohen Ultraschallfrequenzen erreicht die Schallgeschwindigkeit im Temperaturbereich zwischen 0,6 K und 1 K ein lokales Maximum. An diesem Punkt kompensieren sich die Beiträge zur longitudinalen und transversalen Schallgeschwindigkeit gerade. Bleibt die Relaxationsrate $\tau_{1,qp}^{-1}$ im Bereich des Maximums so klein, dass die Linienbreite τ_2^{-1} noch keinen Einfluss auf den Beitrag der transversalen Suszeptibilität hat, kann an diesem Punkt $\omega = \tau_{1,qp}^{-1}$ abgelesen werden.

Bei den niedrigen Frequenzen der Messung am *Vibrating Reed*, wie in Abb. 4.2 dargestellt ist, kann analog die Energie-Relaxationsrate $\tau_{1,ph}^{-1}$ durch Phononen aus der Position des Maximums abgelesen werden. Das Maximum liegt so weit Unterhalb T_C , dass der Einfluss der thermisch aktivierten Quasiteilchen keine Rolle mehr spielt. Beide Relaxationsraten werden im folgenden Abschnitt quantitativ behandelt.

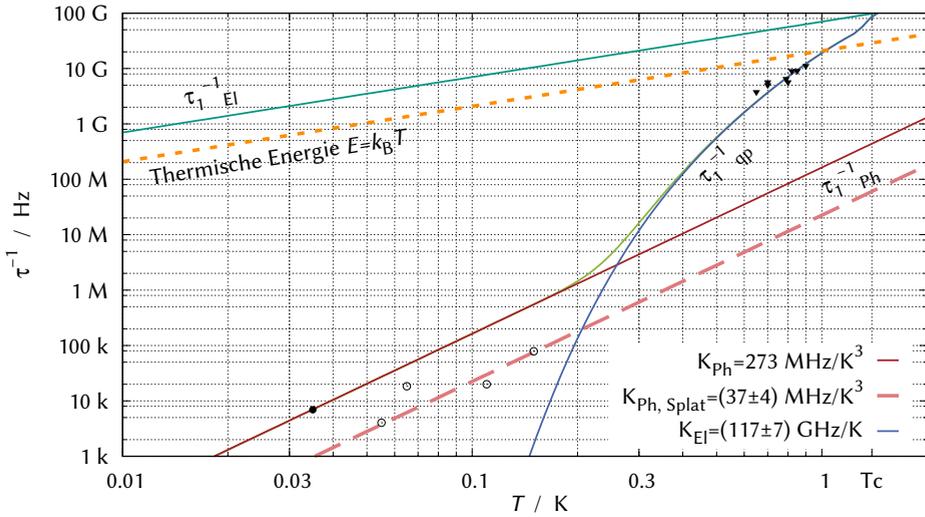


Abbildung 4.3: Temperaturabhängigkeit der Relaxationsraten. Der Übergang von der Steigung $+C \cdot \log(T/T_0)$ zur Steigung durch Relaxation (z.B. $-1/2 \cdot C \cdot \log(T/T_0)$) ist in den Einzelmessungen anhand des Maximums abgelesen. Für Temperaturen unter 200 mK ist die Relaxationsrate durch Ein-Phonon-Relaxation, oberhalb 500 mK die Quasiteilchen-TS-Wechselwirkung an die Daten angepasst. Die Daten für Frequenzen um 1 GHz stammen aus Ultraschall-Experimenten an $Zr_{59}Ti_3Cu_{20}Ni_8Al_{10}$ (gefüllte Dreiecke) [29, 62]. Der Punkt bei 1102,6 Hz (gefüllter Kreis) stammt von *Vibrating Reed*-Messungen an dem selben Material [27]. Die Einzelmessungen (offene Kreise) für niedrige Frequenzen sind durch *Vibrating Reed* Experimente an einem Splat aus $Zr_{46,8}Ti_{8,2}Cu_{7,5}Ni_{10}Be_{27,5}$ bestimmt [22, 45] und bestätigen den erwarteten T^3 -Verlauf der Relaxationsrate bei tiefen Temperaturen.

4.1.2 Kopplungsstärken in Zr-basierten metallischen Gläsern

Aus den niederfrequenten Messungen an dem *Vibrating Reed* in Abb. 4.2 lässt sich die Temperatur bestimmen, bei der die Energie-Relaxationsrate der für die longitudinale Suszeptibilität dominanten TS gerade der Oszillationsfrequenz des elastischen Feldes entspricht. Die Schwingungsfrequenz zweier verschiedener Reeds und die entsprechende Temperatur des Maximums sind in Abb. 4.3 eingetragen. Die Daten der Frequenzänderung eines Reeds aus einem anderen Material, einem „Splat“ aus $Zr_{46,8}Ti_{8,2}Cu_{7,5}Ni_{10}Be_{27,5}$, zeigen in Abb. 4.3 eine T^3 -Abhängigkeit der Energie-Relaxationsrate, wie es der Ein-Phonon-Prozess bei tiefen Temperaturen vorhersagt. Aus den verschiedenen Moden des flachen Reeds, das in anderen Arbeiten beschrieben wird [22, 45], kann die Rate $\tau_{1,Ph}^{-1} = (37 \pm 4) \text{ MHz/K} \cdot T$ extrahiert werden. Die Relaxationsrate für

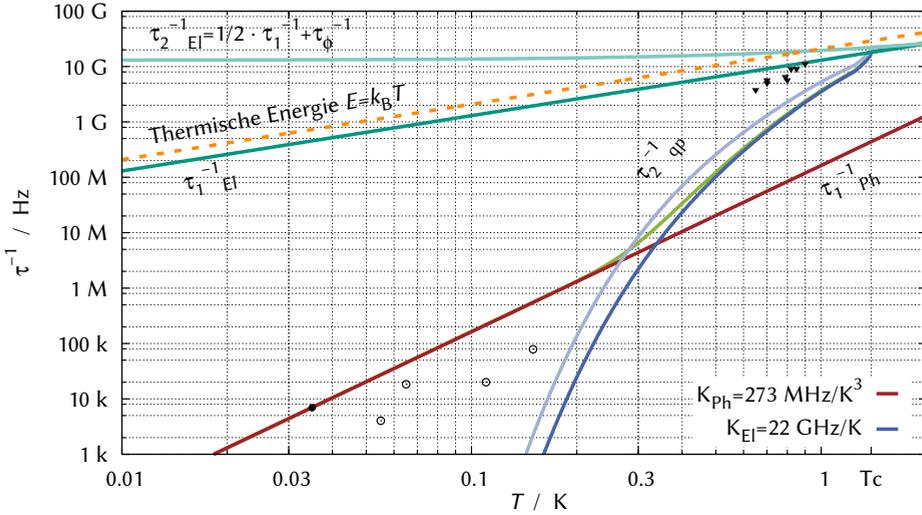


Abbildung 4.4: Die Dephasierung τ_2^{-1} und Energielaxation τ_1^{-1} durch Elektronen bzw. thermisch aktivierte Quasiteilchen, wie sie für die numerische Integration verwendet wird. Das Maximum in der Schallgeschwindigkeit, das die Messpunkte markieren, ist nahe T_C nicht mehr bei $\omega\tau_1 = 1$, daher liegen die Datenpunkte (gefüllte Dreiecke) der hochfrequenten Ultraschallmessungen nicht auf der Kurve der Energie-Relaxationsrate durch Quasiteilchen (blau).

das BMG, aus dem sowohl ein *Vibrating Reed* als auch die Zylinder für die Schallgeschwindigkeitsmessung mit Ultraschallpulsen bestehen, kann durch die festgelegte Oszillationsfrequenz des Reeds nur bei einer Temperatur bestimmt werden und liegt deutlich über der Rate des Splat-Materials. Aus der gemessenen Frequenz bei der Temperatur des Maximums lässt sich somit für die schnellsten Tunnelsysteme, deren Energieaufspaltung $E = k_B T$ gerade der thermischen Energie entspricht, die Kopplungsstärke an die Phononen extrahieren. Sie folgt der Abhängigkeit

$$\tau_{1,Ph}^{-1} = \left(\frac{\gamma_1^2}{\nu_1^5} + 2 \frac{\gamma_t^2}{\nu_t^5} \right) \frac{1}{2\pi\rho\hbar^4} \coth\left(\frac{1}{2}\right) (k_B T)^3 = 273 \text{ MHz/K}^3 \cdot T^3 \quad (4.1)$$

bzw. $a = 126 \text{ MHz/K}^3$, wegen der Vergleichbarkeit mit anderen Gläsern, wie sie in Tab. 2.1 im ersten Teil der Arbeit aufgeführt sind, da $\coth(1/2)$ in a nicht enthalten ist. Um das Deformationspotential γ_t zu bestimmen, das die Kopplung an die Phononen maßgeblich bestimmt, kann γ_1^2/ν_1^5 vernachlässigt werden, da $\nu_1^5 \gg \nu_t^5$ ist. Mit der gemessenen Schallgeschwindigkeit von $\nu_t = 2182 \text{ m/s}$ [62]

und der Dichte des metallischen Glases $\rho = 6592 \text{ kg/m}^3$ [47] folgt das transversale Deformationspotential

$$\gamma_t = \sqrt{\frac{2\pi\rho\hbar^4}{2k_B^3 \coth(1/2)}} v_t^5 \cdot 273 \text{ MHz/K}^3 = 7,8 \cdot 10^{-20} \text{ J} \quad (4.2)$$

oder umgerechnet $\gamma_t = 0,49 \text{ eV}$, was nur geringfügig kleiner als in Oxidgläsern ist (siehe Tab. 2.1).

Dem Tunnelmodell ohne Berücksichtigung des Einfluss der Linienbreite auf die transversale Suszeptibilität folgend, kann im Temperaturbereich von $0.5 - 1 \text{ K}$ aus den Ultraschallmessungen in Abb. 4.1 in ähnlicher Weise die Temperatur bestimmt werden, bei der die Relaxationsrate der Kreisfrequenz des Schalls entspricht. Die Relaxationsrate der schnellsten TS ist in diesem Temperaturbereich durch die Kopplung an thermisch aktivierte Quasiteilchen bestimmt. Unter der Annahme, dass die Position des Maximums in der Schallgeschwindigkeit bei der Temperatur auftritt, bei der die Energie-Relaxationsrate $\tau_1^{-1} = \omega$ gerade der Kreisfrequenz entspricht, erhält man die in Abb. 4.3 dargestellte Relaxationsrate mit $\tau_{1, \text{El}}^{-1} = K_{\text{El}} \cdot T = (117 \pm 7) \text{ GHz/K} \cdot T$. Wird mit diesem Wert die Schallgeschwindigkeitsänderung unter Berücksichtigung der Linienbreite berechnet, zeigt sie die in Abb. 2.13 dargestellten charakteristischen Eigenschaften, die nicht gemessen werden: Insbesondere die Abnahme der Schallgeschwindigkeit im supraleitenden Zustand direkt unterhalb T_C wird nicht beobachtet, sondern direkt eine Zunahme hin zu dem Maximum wie in Abb. 4.1 und Abb. 4.5 zu erkennen ist. Die numerische Integration zeigt, dass sich tatsächlich durch den Einfluss der Linienbreite auf den resonanten Anteil der Suszeptibilität die Position des Maximums ändert, so dass daraus nicht mehr in einfacher Weise auf $\omega\tau_1 = 1$ geschlossen werden kann.

Der flache Verlauf bei T_C der Schallgeschwindigkeit im supraleitenden Zustand, die fast tangential in den normalleitenden Verlauf übergeht, legt eine Linienbreite nahe, die bei T_C gerade der Energieaufspaltung der TS von $E = k_B T$ entspricht. Die numerische Berechnungen mit einigen Kopplungsstärken K_{El} und der Vergleich mit den Messdaten lässt auf eine Energie-Relaxationsrate der Größenordnung

$$\tau_{1, \text{qp}}^{-1} = (22 \pm 6) \text{ GHz/K} \cdot T \cdot \frac{2}{1 + \exp\left(\frac{\Delta_{\text{BCS}}(T)}{k_B T}\right)} \quad (4.3)$$

schließen, wie sie in Abb. 4.4 dargestellt ist. Daraus lässt sich die Kopplungsstärke der TS an die thermisch aktivierten Quasiteilchen

$$W_{\text{El}}^2 = (22 \pm 6) \text{ GHz/K} \cdot \frac{4\hbar}{\pi k_{\text{B}} \coth(1/2)} = 0,10 \pm 0,03 \quad (4.4)$$

bestimmen. In der Notation von BLACK und FULDE entspricht dies $W_{\text{El}} = 0,31 \pm 0,04$, was in der Größenordnung bekannter Werte liegt [36].

Die gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen Daten und der numerisch integrierten Suszeptibilität des supraleitenden Zustandes in Abb. 4.5 zeigt, dass das Maximum nicht mehr an der Stelle $\omega = \tau_1^{-1}$ auftritt, sondern bereits bei etwas tieferen Temperaturen. Der Unterschied zwischen der einfachen Bestimmung der Relaxationsrate anhand des Maximums in Abb. 4.3 und der für die Berechnung verwendeten Raten in Abb. 4.4 liegt im Einfluss auf die transversale Suszeptibilität. Die Kopplung zwischen TS und Elektronen sorgt für eine endliche Linienbreite $\hbar\tau_2^{-1}$ der TS, was ihren Beitrag zur transversalen Suszeptibilität reduziert. Mit zunehmender Temperatur hin zu T_{C} wird der transversale Anteil zunehmend unterdrückt, während gleichzeitig der longitudinale Beitrag durch die Relaxation zunimmt. In Summe wird das Maximum zu tieferen Temperaturen verschoben, als es der Fall ist, wenn die Linienbreite noch keinen Einfluss auf den transversalen Beitrag zur Suszeptibilität hat.

4.1.3 Normalleitender Zustand

In einem starken Magnetfeld wird die Supraleitung unterdrückt. Die Wechselwirkung der TS mit den Leitungselektronen bleibt daher bis zu tiefsten Temperaturen erhalten. Die Schallgeschwindigkeit nimmt dann ab dem lokalen Maximum knapp oberhalb T_{C} zu tiefen Temperaturen kontinuierlich ab (siehe Abb. 4.5), wobei die Steigung gegenüber dem supraleitenden Fall deutlich reduziert ist. Diese schwache Abnahme der Schallgeschwindigkeit läuft bis zu den tiefsten gemessenen Temperaturen weiter.

Dem Standard-Tunnelmodell folgend (wie Kap. 2.3.4.3 beschrieben), sollte im normalleitenden Material die Änderung der Schallgeschwindigkeit unterhalb T_{C} halb so groß sein wie im supraleitenden bzw. isolierenden Material. Bei einer Temperatur unterhalb T_{C} sollten die beiden Schallgeschwindigkeiten sich treffen und zu tieferen Temperaturen identisch verlaufen, der in Abb. 4.5 bei hohen Frequenzen und in Abb. 4.7 sichtbare Kreuzungspunkt sollte nicht auftreten.

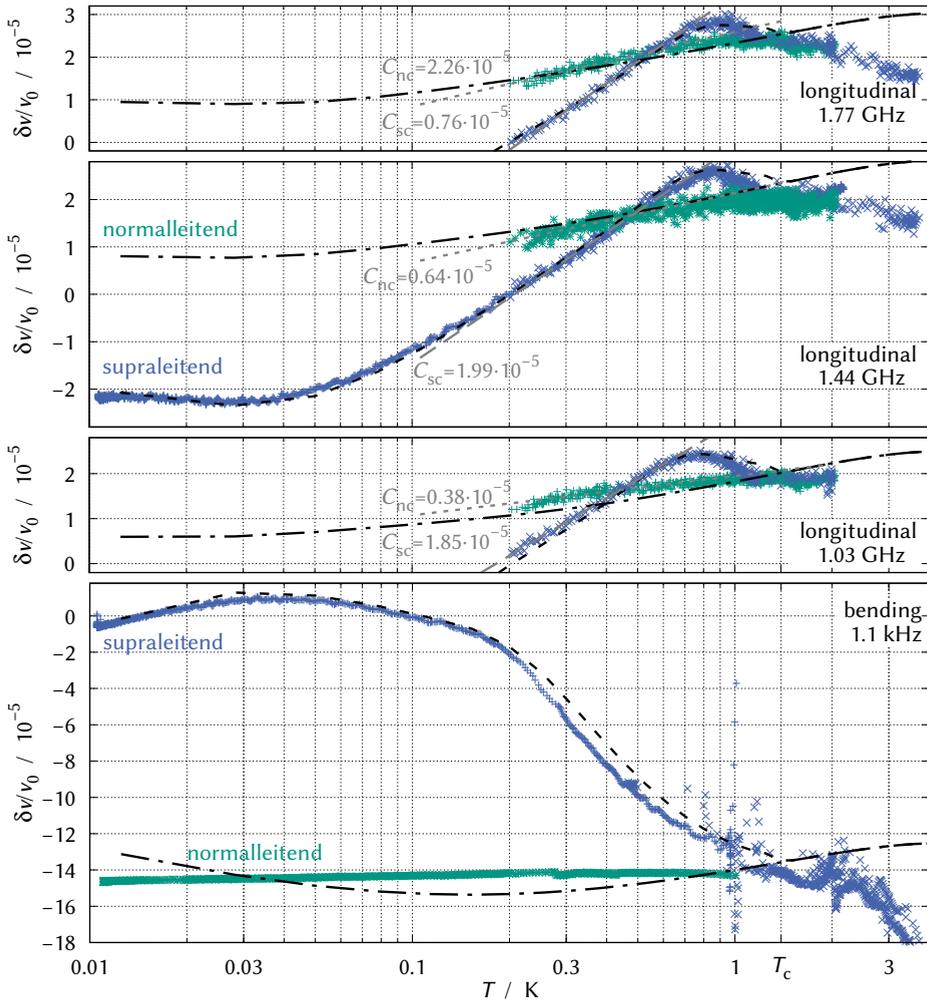


Abbildung 4.5: Schallgeschwindigkeitsänderung von Ultraschall im supraleitenden Zustand (blau) und normalleitenden Zustand (grün) [62, Probe 1]. **(oben)** Die Ultraschallmessung bei 1,44 GHz ist mit und ohne Magnetfeld nicht zueinander verschoben. Die Daten unterhalb 200 mK im supraleitenden Zustand stammen aus einer separaten Messung mit 0,5% höherer Frequenz. Bei 1,77 GHz wurden die Daten im normalleitenden Zustand um $0,2 \cdot 10^{-5}$ nach unten verschoben, bei 1,03 GHz um $2,9 \cdot 10^{-5}$ nach oben. **(unten)** Die Schallgeschwindigkeitsänderung des Reeds im normalleitenden Zustand (unteres Bild, grün [27]) ist um $4,8 \cdot 10^{-4}$ verschoben, so dass die Frequenzen oberhalb T_C identisch sind. Die durchgezogenen Linien entsprechen dem numerisch integrierten Tunnelmodell mit Dephasierung und einer logarithmischen Steigung $C_1 = 2,0 \cdot 10^{-5}$ für alle Frequenzen bzw. beim Reed, das sowohl longitudinale als auch transversale Deformation enthält, $C_E = 4,6 \cdot 10^{-5}$.

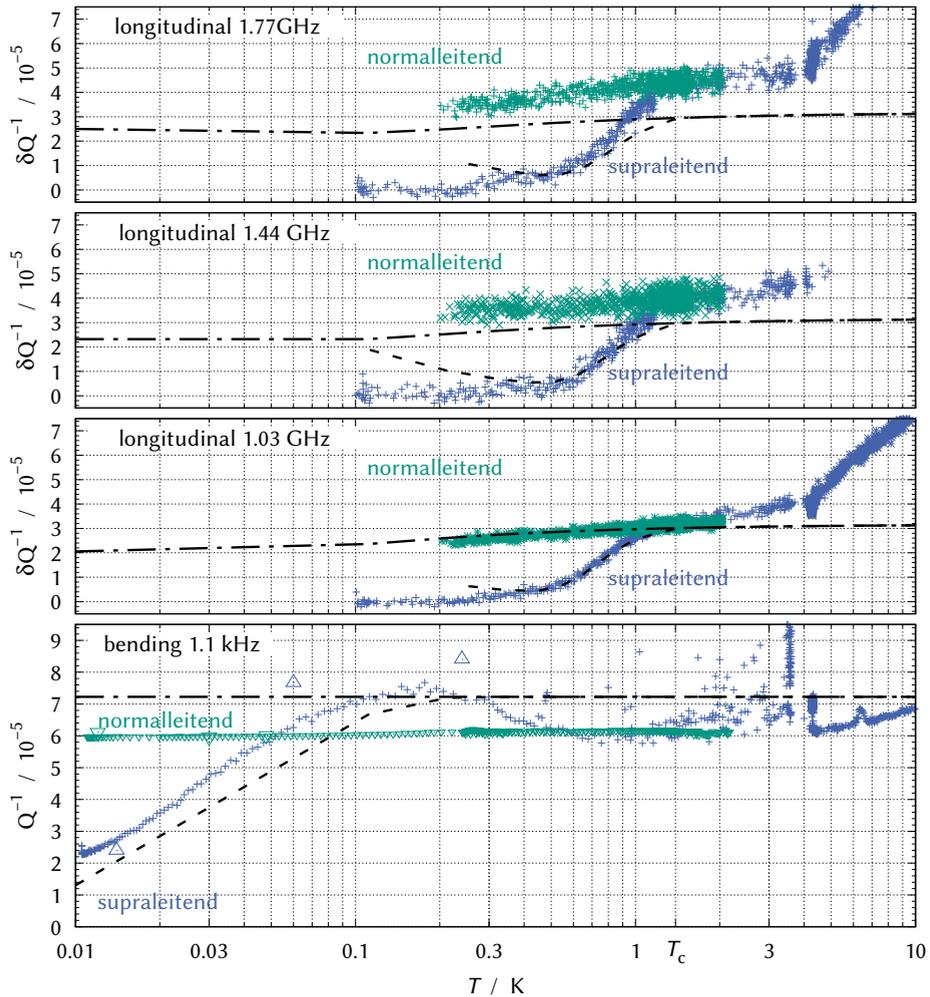


Abbildung 4.6: Dämpfung von Ultraschall im supraleitenden Zustand (blau) und normalleitenden Zustand (grün). **Oben** sind die temperaturabhängigen Änderungen der Amplitude eines longitudinalen Ultraschallpulses als innere Reibung bzw. Dämpfung pro Wellenlänge für drei verschiedene Frequenzen dargestellt. Die Amplitude bei tiefster Temperatur im supraleitenden Zustand dient dabei als Referenz. Bei 1,77 GHz ist die Dämpfung oberhalb T_C im normal- und supraleitenden Zustand identisch. Bei 1,44 GHz und 1,03 GHz ist die Referenzamplitude im normalleitenden Zustand T_C etwas kleiner als im supraleitenden Zustand. **Unten** ist die Güte des Vibrating Reed aufgetragen, die Dämpfung im normalleitenden Zustand ist oberhalb T_C an die Dämpfung im supraleitenden Zustand angepasst. Die schwarzen Linien folgen aus der numerischen Integration mit den Faktoren $C_{V/E}$ aus der Schallgeschwindigkeitsänderung und sind nicht an die gemessene Absorption angepasst.

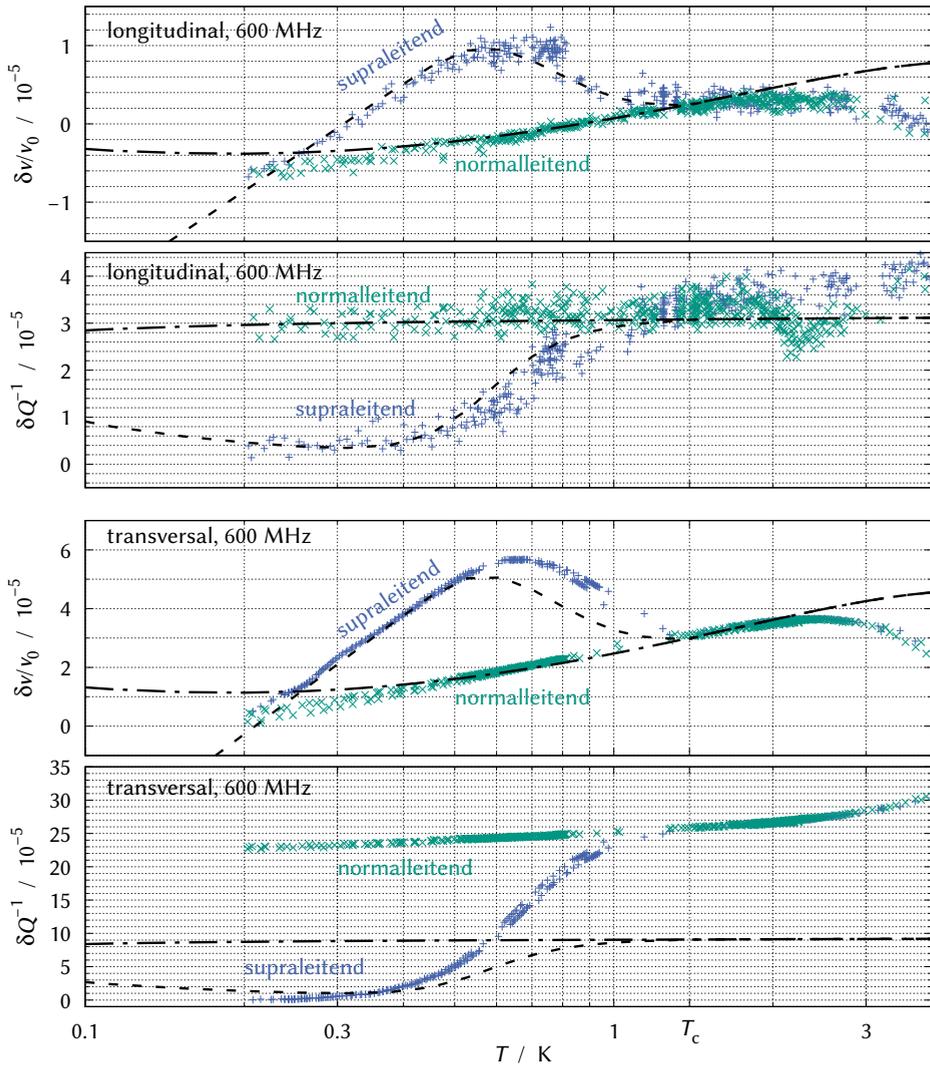


Abbildung 4.7: Longitudinaler (oben) und transversaler (unten) Ultraschall im supraleitenden (blau) und normalleitenden Zustand (grün). Beide Messungen sind bei 600 MHz durchgeführt, es ist jeweils die Schallgeschwindigkeitsänderung im oberen Teil und die Dämpfung im unteren Teil dargestellt. Die Streuung der Daten ist bei der Messung an longitudinalem Ultraschall größer, da die gemessene Amplitude der Pulse kleiner ist. Schwarz eingezeichnet ist die integrierte Suszeptibilität mit $C_l = 2,0 \cdot 10^{-5}$ für longitudinale bzw. $C_t = 5,9 \cdot 10^{-5}$ für transversalen Ultraschall. Die gemessene Absorption im normalleitenden Zustand (grün) von transversalem Ultraschall ist 2,5 mal größer als es die Schallgeschwindigkeitsänderung es erwarten lässt.

Berücksichtigt man im Tunnelmodell die großen Relaxationsraten und damit Linienbreiten τ_2^{-1} der TS, kann ein Verlauf wie der hier gemessene reproduziert werden (siehe Kap. 2.3.4.3). Die numerisch berechneten Verläufe für die jeweilige Frequenz sind in den Abb. 4.5, 4.6 und 4.7 als Linien eingezeichnet.

Zusätzlich ist im normalleitenden Zustand zu beobachten, dass die Änderung der Schallgeschwindigkeit von der Frequenz des Schalls abhängt. Der Anstieg zwischen dem Kreuzungspunkt und T_C wird mit abnehmender Frequenz immer flacher. Im supraleitenden Zustand kann durch eine temperaturabhängige logarithmische Steigung eine scheinbare Frequenzabhängigkeit entstehen, da bei verschiedenen Frequenzen immer leicht unterschiedliche Temperaturintervalle ausgewertet werden. Im hier gemessenen normalleitenden Zustand ist die Frequenzabhängigkeit jedoch deutlich ausgeprägter. Während bei 1,77 GHz noch $C_1 = 0,76 \cdot 10^{-5}$ ist, wird die Steigung bei 1,03 GHz zu $C_1 = 0,38 \cdot 10^{-5}$ bzw. bei 600 MHz ist $C_1 = 0,5 \cdot 10^{-5}$. Die niederfrequenten Vibrating-Reed Messungen bei 1,1 kHz zeigen schließlich fast keine Steigung mehr, sie ist nur noch $C_E = 0,14 \cdot 10^{-5}$. Im Rahmen des Tunnelmodells ist es nicht möglich, durch eine einfache Variation der Zustandsdichte eine solche Frequenzabhängigkeit zu erzeugen [48]. Die Berücksichtigung der Dephasierung und der daraus folgende Einfluss auf den resonanten Anteil der Schallgeschwindigkeitsänderung erlaubt zumindest eine qualitative Erklärung der gemessenen Daten. Der in Gl. 2.17 und 2.18 eingeführte neue Parameter, die Kopplungsstärke der Dephasierung $K_{\phi,El}$, wird gleich der Kopplung der Energierelaxation K_{El} gewählt, da der mikroskopische Mechanismus für beide Prozesse identisch ist [13]. Prinzipiell können beide Kopplungen unabhängig mit Hilfe von Puls-Echo Experimenten oder durch die kritische Intensität, ab der die resonante Absorption gesättigt wird, bestimmt werden. Die in Abb. 4.5 eingezeichneten Verläufe der Schallgeschwindigkeitsänderung wurden mit der Dephasierung aus Gl. 2.17 bzw. 2.18 und einer Kopplung von $K_{\phi,El} = K_{El} = 22 \text{ GHz/K}$ berechnet.

Die Krümmung der Schallgeschwindigkeitsänderung im normalleitenden Zustand wird von der Temperaturabhängigkeit der reinen Dephasierung τ_ϕ^{-1} beeinflusst, wie bereits in Kap. 2.2.1.1 angedeutet ist. Für $\tau_\phi^{-1} \propto T$ verschwindet die Krümmung und die Schallgeschwindigkeitsänderung hat einen logarithmischen Verlauf, deren Steigung vom Absolutwert von τ_ϕ^{-1} bzw. der Kopplungsstärke abhängt. In Abb. 2.13 ist gezeigt, dass die normalerweise positive Steigung der Schallgeschwindigkeit sogar umgekehrt werden kann.

Die in Abb. 4.5 und 4.7 dargestellten, berechnete Suszeptibilität berücksichtigt einer Dephasierung, die unabhängig von der Temperatur bzw. Energieaufspaltung der TS ist, jedoch von deren Asymmetrie ε/E abhängt. Die berechnete Schallgeschwindigkeitsänderung für GHz-Ultraschall im normalleitenden Zustand in Abb. 4.5 zeigt ein flaches Minimum zwischen 20 mK und 30 mK, wo man auch das Minimum in der Schallgeschwindigkeit im supraleitenden Zustand findet. Seine Ursache ist im Wesentlichen das Maximum der transversalen Suszeptibilität, das bei $2,2k_{\text{B}}T = \hbar\omega$ auftritt und durch den Anteil der longitudinalen Suszeptibilität etwas flacher wird. Eine andere Ursache hat jedoch das Minimum der Schallgeschwindigkeit in der niederfrequenten Schallgeschwindigkeit des Vibrating Reed (Abb. 4.5 unten). Es entsteht durch die entgegengesetzten Einflüsse der longitudinalen und transversalen Suszeptibilität in der Berechnung, die sich in diesem Fall bei 150 mK gerade kompensieren.

Die Ultraschallabsorption, Dargestellt als innere Reibung Q^{-1} in Abb. 4.6 und 4.7, ist im normalleitenden Zustand über den gesamten betrachteten Temperaturbereich durch die longitudinale Suszeptibilität dominiert. Der Verlust ist nahezu konstant auf einem Wert von $\pi C/2$, da im gesamten Temperaturbereich von 200 mK bis 2 K TS mit Relaxationsraten $\tau_1^{-1} \approx \omega$ entsprechend der Ultraschallfrequenz vorhanden sind. Bei der Absorption von transversalem Ultraschall ist eine Zunahme von $Q^{-1} = 22 \cdot 10^{-5}$ bei 200 mK auf etwa $27 \cdot 10^{-5}$ bei 2 K zu beobachten. In der Absorption von transversalem Ultraschall kann eine ähnliche Zunahme vorhanden sein, sie ist im Rahmen der Messgenauigkeit jedoch nicht aufzulösen. Da der Plateauwert der Absorption direkt von der Zustandsdichte der TS abhängt, ist die Zunahme um etwa 20% in diesem Temperaturbereich ein Hinweis auf eine Zunahme der Zustandsdichte hin zu größeren TS-Energieaufspaltungen. Ein ähnlicher Effekt ist in der logarithmischen Zunahme der Schallgeschwindigkeit an transversalem Ultraschall zu beobachten, was im folgenden Abschnitt diskutiert wird.

4.1.4 Dichte der TS

Die Änderung der Schallgeschwindigkeit ist für transversalen Ultraschall entsprechend $C_{l/t} = P_0 \gamma_{l/t}^2 / \rho v_{l/t}^2$ größer als für longitudinalen Schall (siehe Kap. 2.3.2), da die Schallgeschwindigkeit v_t nur etwa halb so groß wie v_l ist. Da der Ultraschall in beiden Fällen durch das selbe Material läuft, kann aus den Schallgeschwindigkeiten

und dem Verhältnis der Steigungen der Unterschied zwischen der longitudinalen und transversalen Kopplung $\gamma_{l/t}$ der TS an die Phononen berechnet werden.

Die Bestimmung der Relaxationsrate τ_1^{-1} erlaubt, das transversale Deformationspotential der TS $\gamma_t = 0,49 \text{ eV}$ zu bestimmen. Zusammen mit der mittleren logarithmischen Steigung $C_t = 5,9 \cdot 10^{-5}$ aus Abb. 4.8 bei 600 MHz kann so die Zustandsdichte P_0 der TS bestimmt werden:

$$P_0|_{600 \text{ MHz}} = C_t \frac{\rho v_t^2}{\gamma_t^2} = C_l \frac{\rho v_l^2}{\gamma_l^2} = 3 \cdot 10^{44} \frac{1}{\text{Jm}^3}. \quad (4.5)$$

Im Vergleich zu anderen Gläsern (siehe Tab. 2.1) ist die Dichte der TS in diesem metallischen Glas um einen Faktor 3-5 kleiner. Die logarithmische Steigung der Schallgeschwindigkeitsänderung lässt dies bereits erwarten, sie ist ebenfalls kleiner als in anderen, dielektrischen Gläsern [61, 63].

Die Dichte der TS pro Volumen und Energie ist unabhängig davon, ob sie durch longitudinale oder transversale Schallwellen angeregt werden. Die absoluten Schallgeschwindigkeiten $v_l = 4741 \text{ m/s}$ und $v_t = 2182 \text{ m/s}$ sind aus den Messungen bekannt. Mit der logarithmischen Steigungen der Schallgeschwindigkeitsänderung von longitudinalem Ultraschall $C_l = 2 \cdot 10^{-5}$ und transversalem Ultraschall $C_t = 5,9 \cdot 10^{-5}$ kann das Verhältnis des longitudinalen zum transversalen Deformationspotential berechnet werden [62]

$$\frac{\gamma_l}{\gamma_t} = \sqrt{\frac{C_l}{C_t}} \cdot \frac{v_l}{v_t} = 1,26 \quad (4.6)$$

womit $\gamma_l = 0,62 \text{ eV}$ ist.

4.1.4.1 Transversaler Ultraschall – Energieabhängigkeit der Zustandsdichte

Durch die größere Änderung der Schallgeschwindigkeit und damit die verbundene hohe Auflösung der Messung ist es bei der transversalen Schallgeschwindigkeit möglich, eine Abweichung von der erwarteten, logarithmischen Steigung zu erkennen. In Abb. 4.8 zeigt sich, dass die Messdaten „durchhängen“, was bedeutet, dass die Steigung mit zunehmender Temperatur leicht zunimmt. Um diesen Effekt zu quantifizieren ist die Steigung oberhalb des Minimums zwischen 60 mK und 100 mK sowie unterhalb des Maximums zwischen 0.3 K und 0.6 K ausgewertet.

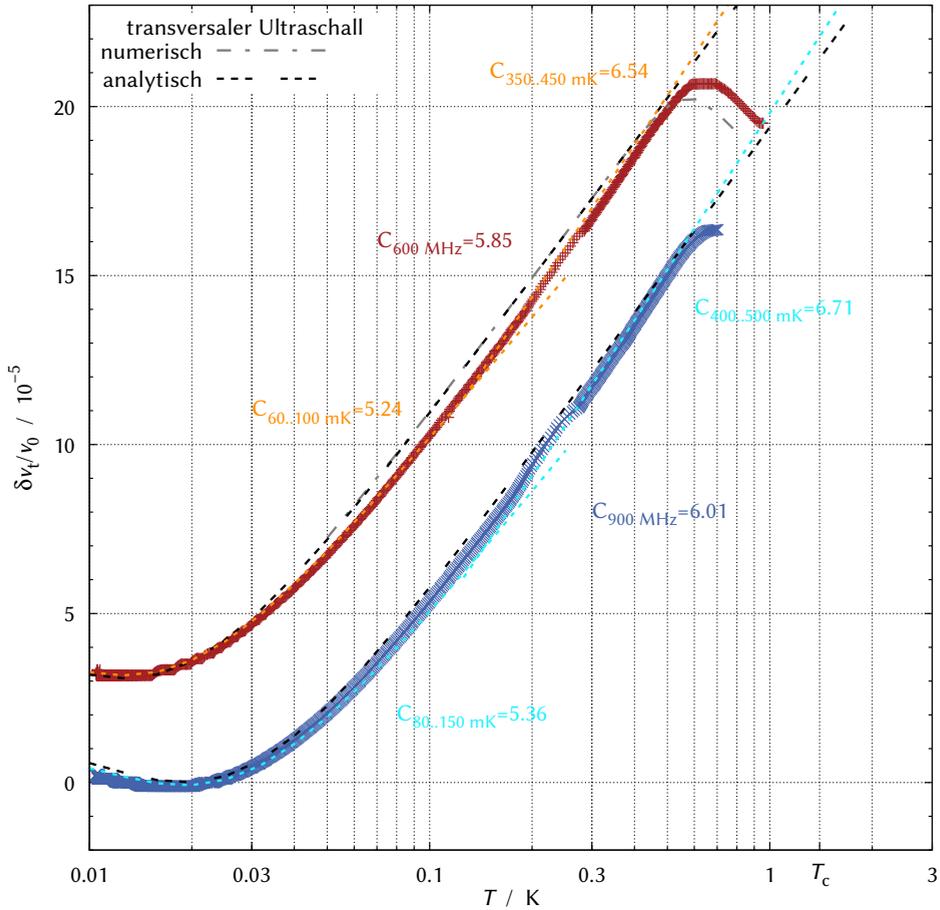


Abbildung 4.8: Änderung der Schallgeschwindigkeit von transversalem Ultraschall in dem metallischen Glas. Die Erwartung des Standard-Tunnelmodells bis zum Maximum der Schallgeschwindigkeit ist gestrichelt eingezeichnet. Es ist zu erkennen, dass die Steigung mit zunehmender Temperatur zunimmt. Oberhalb des Minimums und unterhalb des Maximums ist die Steigung je in einem eingeschränkten Temperaturbereich eingezeichnet [62]. Die numerische und die analytische Beschreibung sind bei 600 MHz unterhalb 0,45 K deckungsgleich.

Bei 600 MHz nimmt die Steigung von $5,24 \cdot 10^{-5}$ bei 80 mK um 25% auf $6,54 \cdot 10^{-5}$ bei 400 mK zu. In dem Temperaturintervall bei 900 Mhz nimmt die Steigung von $5,36 \cdot 10^{-5}$ bei 100 mK ebenfalls um 25% auf $6,71 \cdot 10^{-5}$ bei 450 mK zu.

Die logarithmische Steigung der Schallgeschwindigkeit für longitudinalen Ultraschall ist mit $C_{\text{long}} = (1.92 \pm 0.02) \cdot 10^{-5}$ bei 900 MHz und $C_{\text{long}} = (1.93 \pm 0.04) \cdot 10^{-5}$ bei 1.44 GHz im Rahmen der Messgenauigkeit unabhängig von der Frequenz und von der Temperatur. Die Variation der Steigung von 25% konnte für longitudinalen Ultraschall nicht aufgelöst werden, da der Einfluss der TS auf die Schallgeschwindigkeit entsprechend der höheren Schallgeschwindigkeit um einen Faktor 4 kleiner ist.

Die Variation der Steigung im Temperaturverlauf kann durch eine Variation der Zustandsdichte der TS verstanden werden, was in der numerischen Integration im Prinzip berücksichtigt werden kann. Neben der Zunahme der logarithmischen Steigung liefert der Verlust ebenfalls einen Hinweis auf eine Zunahme der Zustandsdichte hin zu größeren Energien. Der Verlust durch die longitudinale Suszeptibilität nimmt in Abb. 4.7 unten für transversalen Ultraschall nicht den Plateauwert $C_t \cdot \pi/2$ an, sondern steigt kontinuierlich zu höheren Temperaturen. Eine leicht ansteigende Zustandsdichte hin zu höheren Energien würde sowohl die zunehmende Steigung der Schallgeschwindigkeitsänderung als auch den zunehmenden Verlust erklären. Aus den betrachteten Temperatur kann jedoch nur auf die Zustandsdichte in dem betrachteten Energiefenster geschlossen werden. Daher ist hier in der numerischen Integration keine energieabhängige Zustandsdichte berücksichtigt.

Die scheinbare Frequenzabhängigkeit der Steigung kann jedoch nicht durch eine Modifikation der Zustandsdichte erreicht werden. Die Steigung der Schallgeschwindigkeit entspricht der Zustandsdichte bei der Energie, die durch die thermische Energie vorgegeben ist, wodurch die Steigung grundsätzlich Frequenzunabhängig ist. Wie bereits im normalleitenden metallischen Glas zu erkennen ist, kann die Steigung des resonanten Prozess auch durch einen Dephasierungsmechanismus beeinflusst werden. Im supraleitenden Zustand wurde in den bisherigen Rechnungen keine weitere reine Dephasierung τ_ϕ^{-1} berücksichtigt. Messungen an dielektrischen Gläsern legen jedoch nahe, dass sowohl die TS-TS Wechselwirkung als auch in speziellen Gläsern eine Wechselwirkung der tunnelnden Atome mit dem magnetischen Dipol- oder elektrischen Quadrupolmoment ihres Kerns existiert [51, 52].

4.1.5 Zusammenfassung Ultraschall in metallischen Gläsern

Berücksichtigt man im metallischen Glas den Einfluss der Wechselwirkung zwischen TS und Elektronen nur als Beitrag zur Energierelaxationsrate in der longitudinalen Suszeptibilität, kann das Glas im normalleitenden Zustand unterhalb T_C nur „weicher“ sein, als im supraleitenden Zustand. Die TS liefern durch den Relaxationsprozess einen zusätzlichen Beitrag zur Suszeptibilität. Dies widerspricht den Messungen dieser und anderer Arbeiten an metallischen Gläsern.

In dieser Arbeit wird der Einfluss der Wechselwirkung auf die Linienbreite und die zusätzliche Dephasierung berücksichtigt, was den Beitrag durch den resonanten Prozess reduziert. Dies erklärt, wie ein metallisches Glas im normalleitenden Zustand „härter“ sein kann als im supraleitenden, da der Beitrag des resonanten Prozess zur Suszeptibilität durch die Linienbreite der TS teilweise unterdrückt wird. Die gemessene Schallgeschwindigkeitsänderung an den hier untersuchten metallischen Gläsern bei niedrigen und hohen Frequenzen können so ohne eine Modifikation der Zustandsdichte im Rahmen des Standard-Tunnelmodells erklärt werden.

Die Linienbreite $\tau_2^{-1} = 1/2 \cdot \tau_1^{-1} + \tau_\phi^{-1}$ wird dabei durch die Energierelaxation τ_1^{-1} und durch eine reine Dephasierung τ_ϕ^{-1} bestimmt. Die Dephasierung ist in dieser Arbeit phänomenologisch motiviert, wobei die Wechselwirkung mit Elektronen im normalleitenden und mit thermisch aktivierten Quasiteilchen im supraleitenden Zustand eine mikroskopische Begründung liefert. Entgegen einer einfachen Annahme folgt die funktionale Abhängigkeit der Dephasierung dabei nicht einer ohmschen spektralen Dichte. Sie nimmt zu kleinen Energien weniger stark ab, was wiederum kompatibel mit der Dekohärenz-Spektroskopie an einzelnen TS ist [12, 74, 75].

Die starke Kopplung der TS an Elektronen führt dazu, dass sie nicht mehr zur transversalen Suszeptibilität beitragen. Dadurch wird die logarithmische Steigung der Schallgeschwindigkeit im normalleitenden Fall sehr viel flacher, als die Steigung im supraleitenden Zustands erwarten lässt. Berücksichtigt man die Linienbreiten der TS, die durch die Wechselwirkung mit Elektronen entsteht, kann dieses Verhältnis verstanden werden. Eine Renormierung der Zustandsdichte, wie sie als alternative Erklärung von KAGAN und PROKOV'EV vorgeschlagen wurde [42], ist nicht zwingend notwendig.

Eine Frequenzabhängigkeit der Schallgeschwindigkeitsänderung kann im Rahmen des Tunnelmodells nicht durch eine einfache Variation der Zustandsdichte

in Abhängigkeit von der Energieaufspaltung der TS beschrieben werden. Die Energie der TS, welche die logarithmische Steigung erzeugen, wird nur durch die thermische Energie ausgewählt, so dass die Oszillationsfrequenz des äußeren Feldes keine Rolle spielt. Die numerische Berechnung zeigt jedoch, dass die temperaturunabhängige Dephasierung die Ursache für eine Frequenzabhängigkeit der logarithmischen Steigung im normalleitenden Zustand sein kann. Dies ist an den unterschiedlichen Verläufen der berechneten Schallgeschwindigkeitsänderung bei wenigen GHz und einigen kHz im normalleitenden Zustand sichtbar. Dies kann die Frequenzabhängigkeit der Schallgeschwindigkeitsänderung, wie sie in dieser Arbeit beobachtet wird, zumindest teilweise erklären.

Aus der Messung der Schallgeschwindigkeitsänderung können die Kopplungskonstanten der Wechselwirkung zwischen TS und Phononen sowie zwischen TS und Elektronen ermittelt werden. Die einfache Auswertung die davon ausgeht, dass die Energie-Relaxationsrate an der Position des Maximums gerade der Anregungsfrequenz $\omega = \tau_1^{-1}$ entspricht, liefert dabei eine unrealistisch starke Kopplung K_{EI} , die unter Berücksichtigung der Linienbreite $\tau_2^{-1} = 1/2 \cdot \tau_1^{-1}$ zu zwei Kreuzungspunkten führen würde. Durch die Linienbreite hat die Kopplungsstärke nicht nur einen Einfluss auf die longitudinale Suszeptibilität durch die Relaxation, sondern auch auf die transversale Suszeptibilität durch die resonanten Wechselwirkung, was die Position des Maximums verschiebt.

Weitere Messungen können den bislang unbekanntem Verlauf der Schallgeschwindigkeit im normalleitenden Zustand bis unter das Minimum im supraleitenden Zustand bei $2,2k_{\text{B}}T = \hbar\omega$ aufklären und so Aufschluss über die Dephasierungsmechanismen geben. Des Weiteren ist der Verlust bei niedrigen Frequenzen im Rahmen des hier diskutierten Modells noch nicht verstanden: Die Messungen an einem Vibrating Reed bei einigen kHz zeigen ein Maximum des Verlustes Q^{-1} unterhalb T_{C} im supraleitenden Zustand [63, 57], das in Ultraschallmessungen bei einigen MHz bis GHz hier und in anderen Messungen nicht oder nur sehr schwach ausgeprägt ist [11, 10], in anderen metallischen Gläsern jedoch deutlich sichtbar ist [31].

4.2 Dielektrische Eigenschaften des AlO_x

In diesem Kapitel wird ein ungeordnetes Material vorgestellt, in dem man zunächst keine Wechselwirkung zwischen Elektronen und TS erwarten würde: Eine dünne Schicht ungeordnetes Aluminiumoxid, das zwischen Aluminiumelektroden als

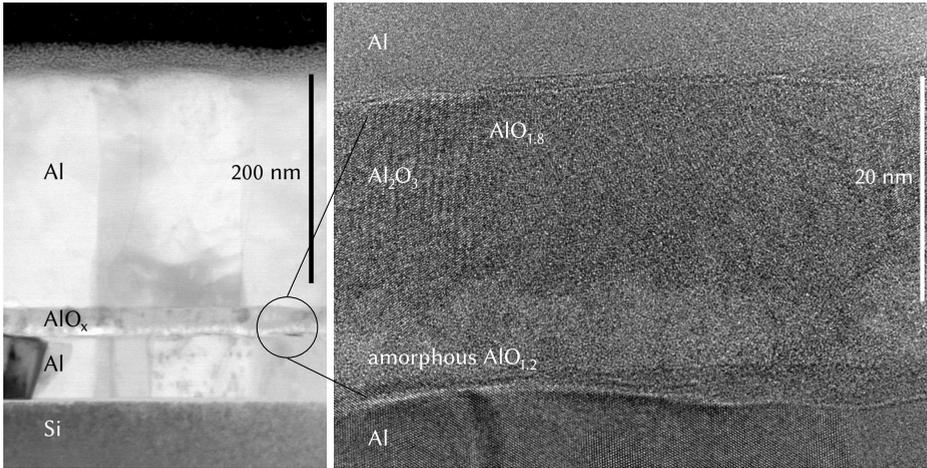


Abbildung 4.9: HR-TEM Aufnahme eines Querschnitts durch den Plattenkondensator in SPUT. Links ist die polykristalline untere und obere Al-Elektrode zu erkennen, dazwischen die dünne Oxidschicht. Die Schichtstruktur wurde ausgehend vom Si-Substrat von unten nach oben aufgebaut. Rechts eine Detailaufnahme der Oxidschicht. Im unteren Bereich besteht sie aus amorphem AlO_x mit Sauerstoffmangel, gefolgt von einem Übergang zu polykristallem γ - Al_2O_3 mit Sauerstoffüberschuss an den Korngrenzen [33].

Dielektrikum einen Plattenkondensator formt. Die Tieftemperaturabhängigkeit der Permittivität folgt in diesem Material weitgehend der Beschreibung durch das Standard-Tunnelmodell, zeigt jedoch einige überraschende Ähnlichkeiten mit den Besonderheiten der Schallgeschwindigkeitsänderung in metallischen Gläsern.

Die Proben der Serie ResAl08, hier bezeichnet als SPUT wie in [33], wurden durch reaktive Kathodenerstäubung in einer Argon-Sauerstoff Atmosphäre hergestellt, wie es in Kap. 3.2.1 beschrieben ist.

4.2.1 Mikrostruktur des Aluminiumoxid

Aus einer Probe wurde mit Hilfe eines fokussierten Gallium-Ionenstrahls eine Lamelle herausgeschnitten und in einem Transmissions-Elektronenmikroskop am LEM¹ untersucht. Die untere Al-Elektrode besteht aus Körnern mit einer durchschnittlichen Größe von (117 ± 62) nm. Die Al-Oxidschicht hat eine Gesamtdicke von $(27,7 \pm 1,8)$ nm und besteht aus zwei Teilen: einem unteren, amorphen aus $\text{AlO}_{1,2}$ mit einem Sauerstoffmangel gegenüber stöchiometrischem Al_2O_3 und einer

¹ Aufgenommen mit FEI PHENOM von Stefan Fritz, Labor für Elektronenmikroskopie

Dicke von $(8,6 \pm 2,1)$ nm (siehe Abb. 4.9). Darüber liegt eine Schicht aus mikrokristallinem $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ mit Sauerstoffüberschuss an den Korngrenzen. Messungen mit EELS (Elektronen-Energieverlustspektroskopie, electron energy loss spectroscopy) zeigen, dass an den Korngrenzen molekularer Sauerstoff O_2 vorhanden ist [33].

4.2.2 Kapazitätsmessung

Die Kondensatoren zeigen von Raumtemperatur bis 1 K eine Abnahme der Kapazität um etwa 10% auf 510 pF bei den kleinen Kondensatoren mit $0,5 \cdot 0,5 \text{ mm}^2$ Fläche und 2003 pF bei den größeren mit $1 \cdot 1 \text{ mm}^2$. Der Verlusttangens aller Proben ist in der Größenordnung von $3 \cdot 10^{-3}$ bei 1 K. Mit Hilfe der Dicke des Oxids aus der TEM-Messung kann sowohl die relative Permittivität $\epsilon_{\text{AlO}_x} = 6,3 \pm 0,4$ als auch die Volumenleitfähigkeit $\rho = (1,0 \pm 0,1) \cdot 10^9 \Omega\text{m}$ berechnet werden. Für isolierende Schichten aus Al_2O_3 kann man in der Literatur Werte im Bereich $\epsilon_{\text{Al}_2\text{O}_3} \sim 7$ und $\rho \sim 10^{11} \Omega\text{m}$ finden [70].

Im Gegensatz zu anderen isolierenden Gläsern zeigt der Verlust der Probe SPUT kein Maximum im Bereich um 50 K. Unterhalb 10 K folgen der Verlust und die Permittivität zumindest qualitativ den Vorhersagen des Standard-Tunnelmodells. Wie weiter unten in Abb. 4.13 zu sehen ist, nimmt die Permittivität von 10 K bis 1 K etwa mit einer logarithmischen Steigung ab, während der Verlust nur leicht abnimmt. In diesem Bereich sollte der longitudinale Beitrag die Suszeptibilität bestimmen, die eine logarithmische Steigung des Realteils und ein Plateau im Imaginärteil der Suszeptibilität erwarten lässt. Das Plateau im Verlust ist im Vergleich zum etwas stärkeren Anstieg von 30 mK bis etwa 0,2 K in Abb. 4.10 zu erkennen. Oberhalb von 4 K steigt der Verlust mit zunehmender Temperatur wieder stark an. Der gefundene Anstieg des Verlustes mit der Temperatur und das Fehlen eines „echten“ Plateaus kann im Rahmen des Tunnelmodells durch eine ansteigende Zustandsdichte der TS hin zu größeren Energien verstanden werden. Die zunehmende Steigung in der Permittivität zu höheren Temperaturen, die von einer rein logarithmischen Steigung abweicht, lässt die gleiche Interpretation zu. Für die weitere Auswertung wird eine konstante Zustandsdichte angenommen, da so die Permittivität quantitativ mit dem Verlust verglichen werden kann.

Wie bereits im metallischen Glas kann die aus der näherungsweise logarithmischen Abnahme der Permittivität zwischen 40 mK und 100 mK bis 200 mK auf die Dichte der TS und ihre Kopplungsstärke an das äußere Feld geschlossen

werden. Die gefundene Steigung aus Abb. 4.10 reicht von $C_\epsilon = 0,52 \cdot 10^{-3}$ bis $C_\epsilon = 0,92 \cdot 10^{-3}$, wobei die Steigung mit zunehmender Temperatur größer wird und daher bei höheren Frequenzen größer erscheint, da der Bereich, in dem die logarithmische Steigung ausgewertet werden kann, sich zu höheren Temperaturen erstreckt. Diese Steigung liefert einen Wert für das erwartete Plateau der Absorption liegt im Bereich der gemessenen Werte, wie in Abb. 4.11 unten zu erkennen ist.

4.2.2.1 Frequenzabhängigkeit

Die Kapazitätsmessung der Al/AlO_x/Al Plattenkondensatoren zeigt eine Variation der Kapazität unterhalb 1 K, wie es für dielektrischen Gläsern charakteristisch ist. Die Kapazitätsänderung ist mit der dielektrischen Permittivität und daher mit der Suszeptibilität verknüpft, die bei tiefen Temperaturen durch die Dynamik der TS dominiert wird. Unterhalb 1 K sinkt die Permittivität ϵ , da der Relaxationsprozess einen abnehmenden Beitrag liefert, bis ein Minimum in ϵ erreicht wird (siehe Abb. 4.10). Dieses Minimum markiert die Temperatur, bei der die Relaxationsrate τ_1^{-1} gerade der Frequenz des angelegten Wechselfeldes ω entspricht. Unterhalb dieser Temperatur kann die thermische Besetzung der TS der Modulation der Energie nicht mehr folgen, so dass bei tieferen Temperaturen nur noch der resonante Prozess einen Beitrag liefert. Aus der Position des Minimums kann so die Relaxationsrate bei dieser Temperatur abgelesen werden. Durch Kapazitätsmessungen bei verschiedenen Frequenzen kann die so die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate bestimmt werden. In Abb. 4.10 ist die Permittivität bei Frequenzen von 100 Hz bis 20 kHz dargestellt, die Position der Minima ist mit der jeweiligen Unsicherheit durch einen horizontalen Balken markiert. Die Temperatur, bei der das Minimum auftritt, ist zusammen mit der Unsicherheit in Abb. 4.11 eingetragen. Diese Auftragung erlaubt, die Modelle der Relaxationsraten mit den Daten zu vergleichen und so die Kopplung der TS an die jeweilige Umgebung zu ermitteln. Für Temperaturen unterhalb 200 mK wird die Rate durch den Ein-Phonon Prozess beschrieben, der die Steigung T^3 besitzt. Oberhalb 300 mK steigt die Relaxationsrate deutlich schneller an als mit T^3 was nahe legt, dass die Relaxationsrate durch thermisch aktivierte Quasiteilchen erhöht wird.

Der Absolutwert des Verlusts in Abb. 4.10 nimmt oberhalb von 1 kHz stark zu, was nicht durch das Tunnelmodell erklärt werden kann und auf weitere frequenzabhängige Verlustmechanismen hinweist. In Abb. 4.10 unten ist der Verlust bei der

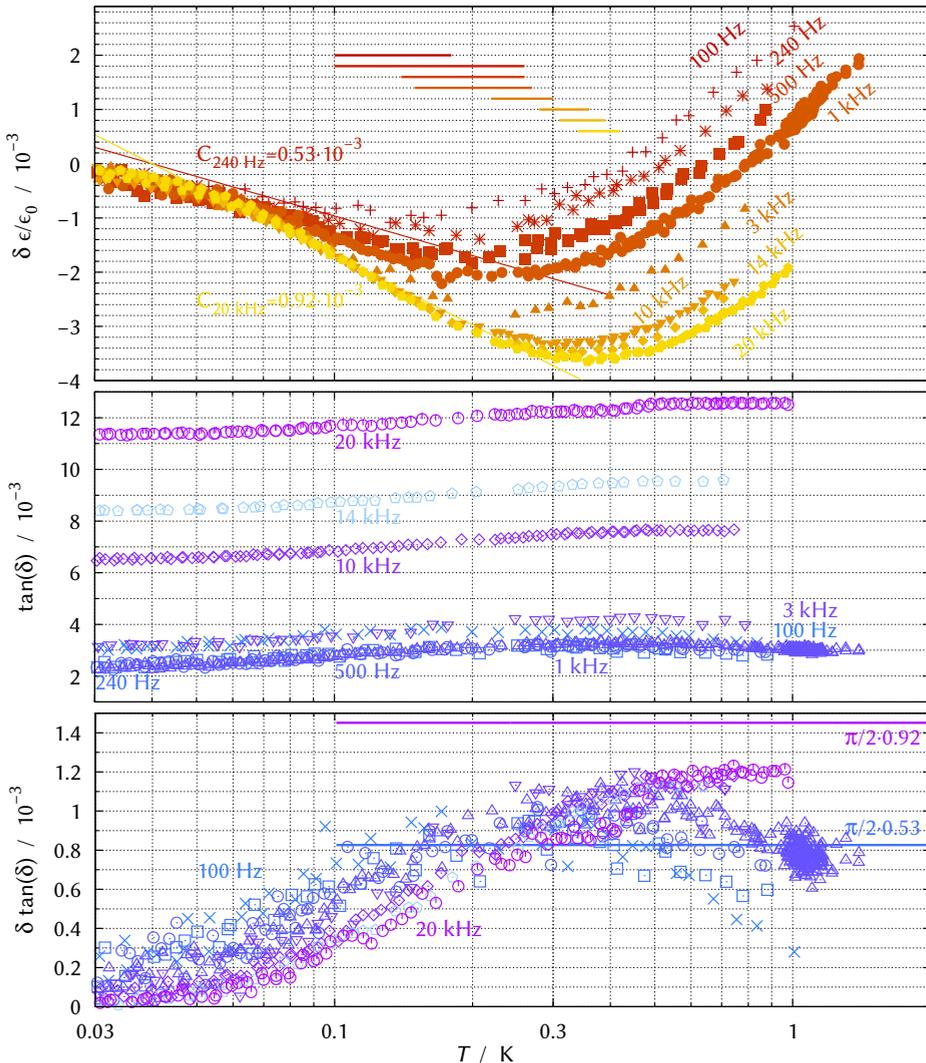


Abbildung 4.10: Frequenzabhängigkeit der Dielektrizität von ungeordnetem AlO_x in SPUT. **Oben:** Das Minimum im Realteil der Suszeptibilität wandert mit zunehmender Frequenz zu höheren Temperaturen. Der Anstieg zu bei tiefen Temperaturen unterhalb des Minimums wird bei tiefen Temperaturen frequenzunabhängig. Zur Bestimmung der Relaxationsrate ist die Position des Minimums ist durch horizontale Balken markiert. Die log. Steigung für zwei Frequenzen eingetragen. **Mitte:** Der Absolutwert des Verlusttangens ist stark Frequenzabhängig. **Unten:** Die Zunahme des Verlusttangens über den Wert bei 30 mK. Mit zunehmender Frequenz verschiebt sich der Anstieg des Verlustes zu höherer Temperatur. Der aus der Steigung erwartete Plateauwert für zwei Frequenzen ist eingetragen. Alle Kapazitätsmessungen sind bei einer Spannung von 3 mV bzw. einer Feldstärke im Dielektrikum von 108 kV/m durchgeführt.

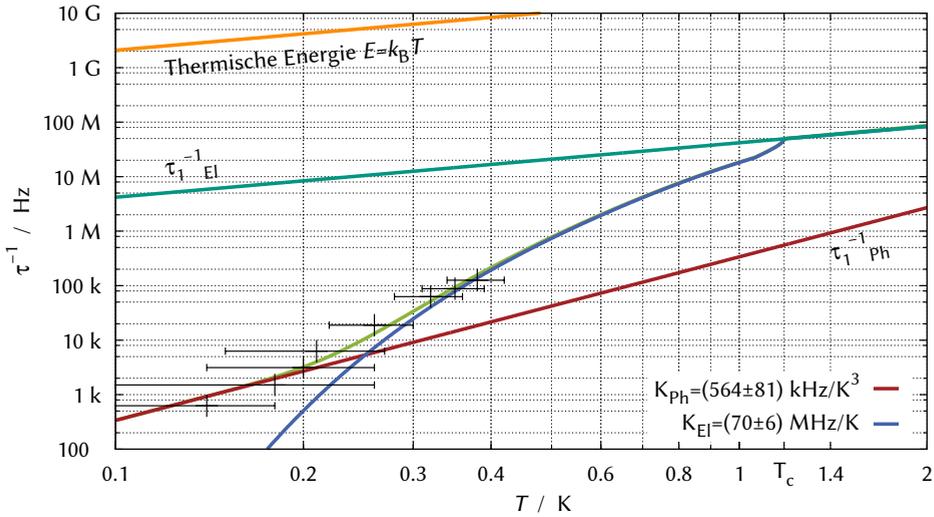


Abbildung 4.11: Temperaturabhängigkeit der Relaxationsraten der TS in der AlO_x -Schicht. Die Kreuze markieren jeweils die Temperatur, bei der das Minimum in der Permittivität auftritt. Da die Minima sehr flach sind, ist die Unsicherheit in der Temperatur groß (markiert durch Fehlerbalken). Die Relaxationsrate entspricht dort der Kreisfrequenz der Wechselspannung mit der die Kapazität gemessen wird.

tiefsten gemessenen Temperatur abgezogen und nur die Zunahme $\delta \tan(\delta)$ des Verlusttangens über der Temperatur dargestellt. Der Temperaturverlauf bei jeder einzelnen Frequenz zeigt einen Anstieg, der mit zunehmender Frequenz zu höherer Temperatur verschoben ist. Dieser Anstieg entspricht der Erwartung des Tunnelmodells, dass der Relaxationsverlust seinen stärksten Anstieg bei Temperaturen etwas unterhalb des Minimums in der Permittivität hat.

Die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate in Abb. 4.11 erlaubt analog zur Analyse der TS im metallischen Glas die Bestimmung der Kopplung von TS an Phononen. Mit der Energie-Relaxationsrate

$$\tau_1^{-1} = (564 \pm 81) \text{ kHz/K}^3 \cdot T^3 \tag{4.7}$$

kann das Deformationspotential abgeschätzt werden. Da die AlO_x -Schicht dünner ist, als die Wellenlängen der Phononen im relevanten Energiebereich, ist nicht klar, welche Schallgeschwindigkeit in Gl. 2.12 richtig ist. Da die Schallgeschwindigkeit mit der fünften Potenz eingeht, ist daher keine zuverlässige Aussage über das Deformationspotential möglich. Mit der Schallgeschwindigkeit $v_t = 3100 \text{ m/s}$

und Dichte $\rho = 2700 \text{ kg/m}^3$ von Aluminium [24] ist das Deformationspotential $\gamma_t = 0,034 \text{ eV}$, für Phononen in kristallinem Al_2O_3 mit $v_t = 6000 \text{ m/s}$ und $\rho = 3900 \text{ kg/m}^3$ jedoch $\gamma_t = 0,21 \text{ eV}$. Für Phononen im Silizium-Substrat liegen die Werte dazwischen. Neben der Unsicherheit, in welchem Material sich die Phononen ausbreiten, kann durch die Struktur der unterschiedlichen Materialien auch die Zustandsdichte der Phononen von der eines massiven Körpers abweichen. Dies könnte eine andere Energie- und damit Temperaturabhängigkeit der Zustandsdichte der Phononen erzeugen, als sie das DEBYE-Modell liefert.

Messungen an einzelnen TS in AlO_x mit einem Qubit liefern eine Verteilung von Deformationspotentialen γ bis $0,4 \text{ eV}$ [37, 58]. Dabei wird das Deformationspotential durch die Änderung der Asymmetrieenergie bei einer statischen Verzerrung der Umgebung der TS gemessen.

Auf den gleichen Chips sind neben den beiden hier vorgestellten Plattenkondensatoren noch Resonatoren mit kleineren, identisch aufgebauten Kondensatoren vorhanden. Diese erlauben, den Verlust bei hohen Frequenzen im GHz-Bereich zu messen. Ensemble-Messungen an diesen Resonatoren auf den gleichen Chips liefern deutlich größere Werte von bis zu 6 eV [56].

Der stärkere Anstieg der Energie-Relaxationsrate oberhalb $0,3 \text{ K}$ weist auf eine Wechselwirkung zwischen TS und Quasiteilchen hin. Die Messungen in einem starken Magnetfeld, das im nächsten Kapitel beschrieben wird, weist ebenfalls auf einen Einfluss der Quasiteilchen bzw. Leitungselektronen auf die Dynamik der TS hin. Analog zum Verhalten Schallgeschwindigkeitsänderung im metallischen Glas wird hier die Energie-Relaxationsrate der TS bei Temperaturen zwischen $0,3 \text{ K}$ und der beobachteten Sprungtemperatur T_C von $1,18 \text{ K}$ ausgewertet. Aus den Messfrequenzen zwischen 10 kHz und 20 kHz kann so die Energie-Relaxationsrate $\tau_{1, \text{qp}}^{-1} = (70 \pm 6) \text{ MHz/K} \cdot T$ extrahiert werden. Die Rate ist deutlich kleiner als im metallischen Glas. Das ist konsistent mit der Vorstellung, dass sie durch tunnelnde Elektronen bzw. Quasiteilchen hervorgerufen wird, deren Dichte im Dielektrikum mit zunehmendem Abstand zu den Elektroden rasch abnimmt.

4.2.2.2 Kapazitätsmessung im Magnetfeld

Neben dem starken Anstieg der Energie-Relaxationsrate in Abb. 4.11 oberhalb von 300 mK liefern Messungen im Magnetfeld einen Hinweis auf die Wechselwirkung von TS mit Quasiteilchen. Wird der Kondensator einer Feldstärke von 100 mT

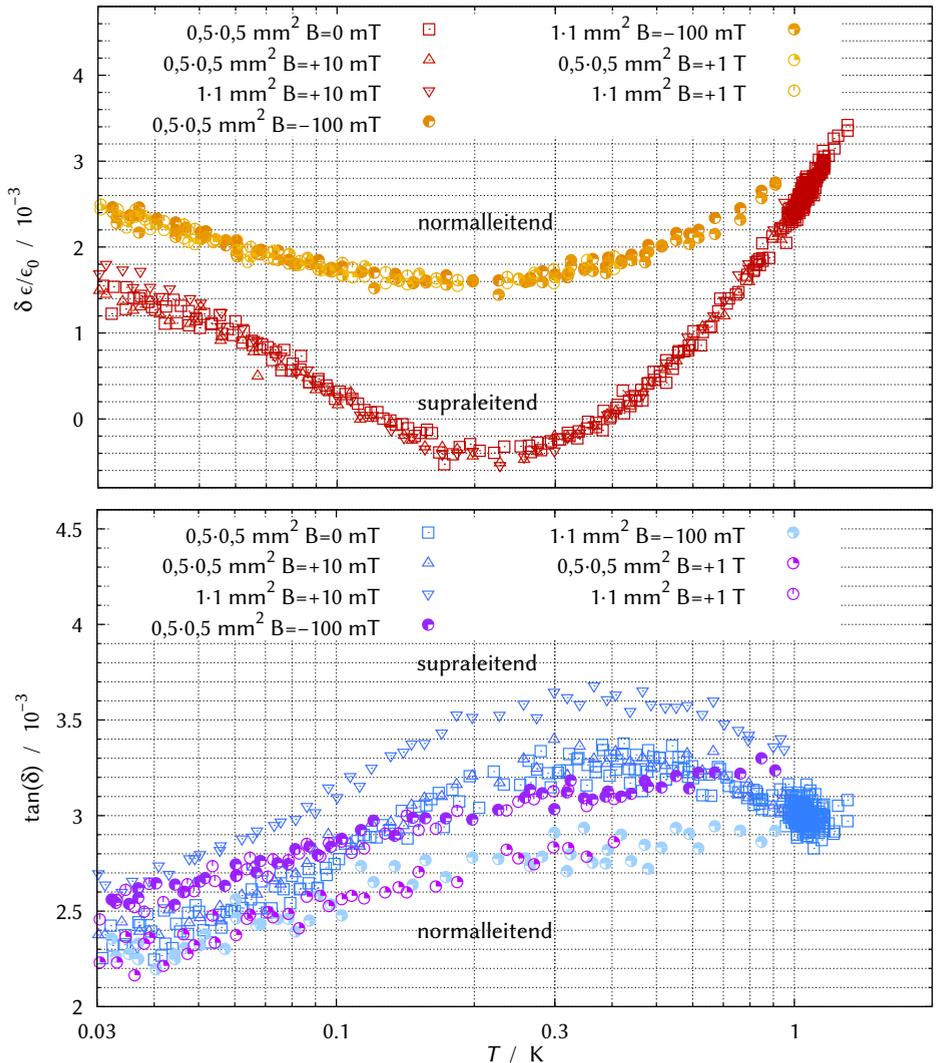


Abbildung 4.12: Kapazitätsänderung (oben) und Verlust (unten) des Plattenkondensators Re-sAl08 mit und ohne Magnetfeld. Nur unterhalb 1,18 K ist ein Unterschied zwischen der Messung mit und ohne Magnetfeld sichtbar. Der supraleitende Verlauf der Permittivität (untere Kurve im oberen Teil) ist bei 0 mT und 10 mT gemessen, der normalleitende Verlauf bei 100 mT und 1 T (obere Kurve im oberen Teil). Der Verlusttangens zeigt im supraleitenden Zustand ein schwach ausgeprägtes Maximum unterhalb T_C (obere Kurven im unteren Teil), während der Verlust im normalleitenden Zustand unterhalb T_C mit der Temperatur monoton abnimmt. Alle Kapazitätsmessungen sind bei einer Spannung von 3 mV bzw. einer Feldstärke im Dielektrikum von 108 kV/m durchgeführt.

oder mehr ausgesetzt, findet man in Abb. 4.12 unterhalb 1,18 K ein deutlich verändertes Verhalten gegenüber den Messungen ohne Magnetfeld. Oberhalb von 1,18 K verlaufen sowohl die Permittivität ϵ als auch der Verlust $\tan(\delta)$ mit und ohne Magnetfeld deckungsgleich, wie Messungen bei geringeren elektrischen Feldstärken als der in Abb. 4.12 verwendeten zeigen. Der Knick in der Permittivität bei 1,18 K zum supraleitenden Zustand, der später in Abb. 4.13 gut zu erkennen ist, verschwindet in einem starken Magnetfeld. Die Kapazitätsänderung in einem Feld von 10 mT entspricht der ohne Feld. Das Magnetfeld wird parallel zu den Kondensator-Flächen angelegt, wodurch das Aluminium bei 10 mT das Feld noch verdrängen und im supraleitenden Zustand bleiben kann. Bei 100 mT ist die Supraleitung dann unterdrückt und die Elektroden des Kondensators sind normalleitend. Befinden sich TS innerhalb der Oxidschicht in der Nähe der Elektroden, so besteht die Möglichkeit dass sie durch Anregung von Elektronen relaxieren, wenn die exponentiell abklingende Elektronendichte noch einen endlichen Überlapp mit dem TS besitzt.

Ein alternativer Erklärungsversuch basiert auf der Erfahrung, dass granulares Aluminiumoxid, das in einem ähnlichen Prozess hergestellt wird wie das hier vorhandene ungeordnete Oxid, kleine Körner aus reinem Aluminium besitzt. Diese Körner können als Inseln für einen Ladungstransport von Korn zu Korn dienen, wobei Elektronen oder COOPER-Paare im elektrischen Feld auf die Inseln tunneln und so ebenfalls einen Beitrag zur Polarisierbarkeit des Materials liefern. Für die Größe der Inseln findet man bei Variation der Herstellung eine minimale Korngröße von 2 nm [26, 64]

Solche Materialien zeigen einen Übergang vom Supraleiter zum Isolator bei geringfügiger Erhöhung des Sauerstoffanteils. Typischerweise ist der Raumtemperaturwiderstand dieses Materials mit $10^{-6} \Omega\text{m}$ bis $10^{-3} \Omega\text{m}$ jedoch um Größenordnungen geringer als bei dem hier vorhandenen Oxid [25]. Die supraleitenden granularen Aluminium-Oxidfilme zeigen zudem ein deutlich erhöhtes T_C bis über 3 K und ebenfalls deutlich erhöhte kritische Feldstärken $\mu_0 H_c$ bis über 1 T [21, 72].

Der hier gefundene Knick der Permittivität in Abb. 4.13 liegt um 1,18 K und die notwendige Feldstärke um von dem „supraleitend“-Verlauf zum „normalleitend“-Verlauf der Permittivität zu wechseln liegt zwischen 10 mT und 100 mT, wie in Abb. 4.12 dargestellt ist. Beide Werte passen sehr viel besser zu den Eigenschaften von reinem Aluminium als zu denen von granulearem Aluminium-Oxid. Da die dünnen Elektroden der Kondensatoren parallel zum Feld ausgerichtet sind,

kann die kritische Feldstärke etwas höher liegen als der Wert für reines Volumen-Aluminium. Der Beitrag von Al-Körnern in der Oxidschicht zur dielektrischen Messung lässt deutlich höhere T_C und H_C erwarten, als in den Messungen tatsächlich gefunden werden und wird daher als Erklärungsversuch hier nicht weiter verfolgt.

4.2.2.3 Nichtlineare Polarisation

Bei konstanter Frequenz des angelegten Feldes von 1 kHz tritt unterhalb von 1 K eine starke Feldstärkeabhängigkeit auf (siehe Abb. 4.13). Die nichtlineare Anregung der TS tritt auf, wenn die Änderung der Energieaufspaltung des TS durch das äußere Feld $\delta E = |\vec{p} \cdot \vec{E}|$ vergleichbar oder größer als die thermische Energie $k_B T$ wird. Diese Energieänderungen sind für ein Dipolmoment von 1 Debye exemplarisch in Tab. 4.1 aufgeführt, unterhalb der angegebenen Temperatur erwartet man einen großen Einfluss durch die nichtlinearen Effekte. Dabei steigt der Realteil der Suszeptibilität zu tiefen Temperaturen mit zunehmender Feldstärke immer schneller an, geht dann jedoch in ein Plateau zu tiefen Temperaturen über. Der Unterschied bei den kleinsten verfügbaren Feldstärken von 18 kV/m und 36 kV/m kann den bekannten Effekten der nichtlinearen Anregung von Tunnelsystemen zugeordnet werden [67]. Der Verlust sinkt bei diesen Feldstärken monoton mit abnehmender Temperatur, wie es der Imaginärteil der Suszeptibilität durch den Relaxationsprozess erwarten lässt.

Bei Feldstärken über 100 kV/m ist im Verlusttangens eine dramatische Änderung zu beobachten: Unterhalb $T_C \approx 1,18$ K steigt der Verlust sehr stark an und durchläuft ein Maximum im Bereich um 300 – 500 mK. Bei tiefen Temperaturen endet der Verlust in einem Plateau, das mit zunehmender Feldstärke bei höheren Temperaturen beginnt und dessen Absolutwert steigt. Da sowohl die Permittivität als auch der Verlust bei sehr großen Feldstärken von 1 MV/m flach werden, kann das Plateau hier auch durch eine thermische Entkopplung der Probe von der Temperatur des Kryostaten verursacht werden. Durch die vergleichsweise großen Spannungen von 30 mV ist die in der Probe deponierte Leistung $P = G \cdot U^2$ um mindestens eine Größenordnung erhöht ist und die Leitfähigkeit $G = 1/R = \omega C \cdot \tan(\delta)$ durch die Probe ebenfalls um 30% erhöht bleibt.

Das Maximum im Verlust unterhalb T_C ähnelt dabei sehr stark dem bekannten Verlust in niederfrequenten akustischen Messungen an metallischen Gläsern, wie er auch am Vibrating Reed in Abb. 4.6 gemessen wird.

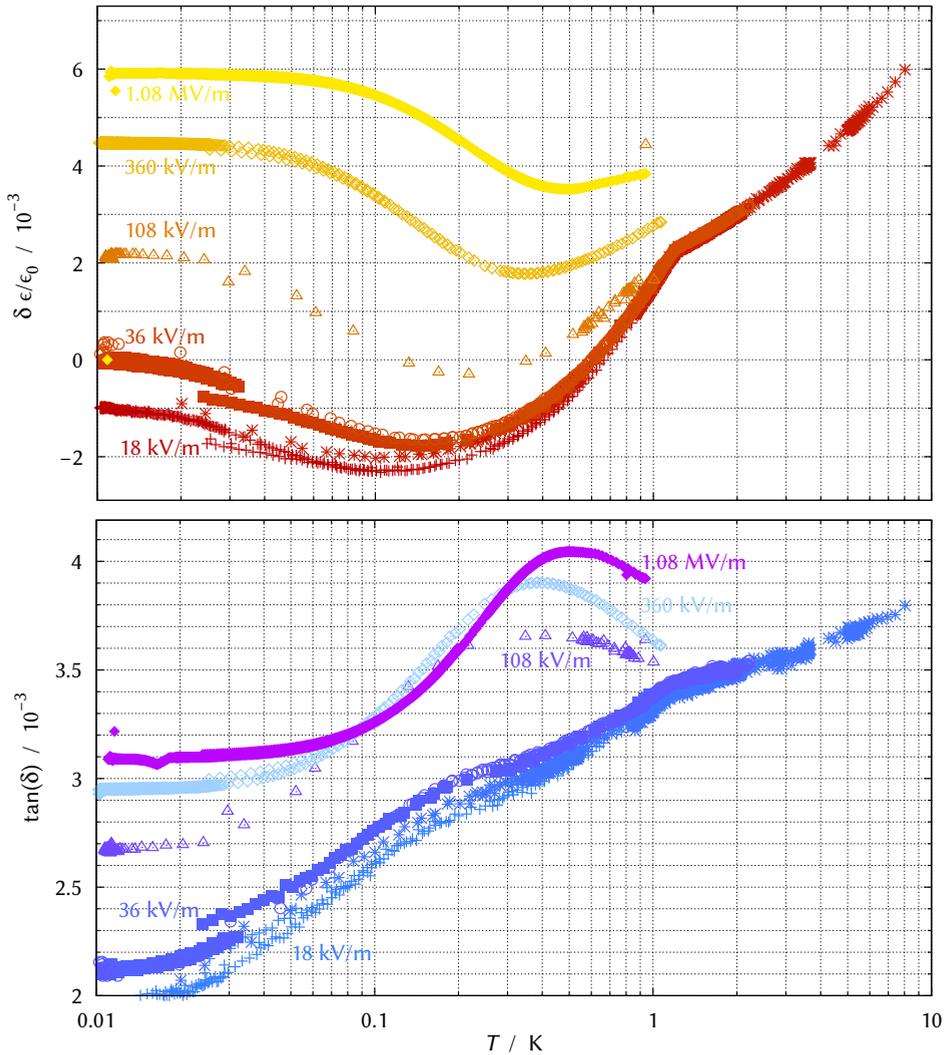


Abbildung 4.13: Amplitudenabhängigkeit der Permittivität (**oben**) und dem Verlusttangens (**unten**) von ungeordnetem AlO_x in SPUT gemessen bei 1 kHz.

Tabelle 4.1: Feldstärke $|\vec{E}|$ im Plattenkondensator bei angelegter Spannung U und die zugehörige maximale Änderung der Asymmetrieenergie eines TS mit dem Dipolmoment $p = 1 \text{ Debye} \approx 0.2 \text{ eÅ} \approx 3.33 \cdot 10^{-30} \text{ Cm}$.

U	$ \vec{E} _{27,7 \pm 1,8 \text{ nm}}$	pE/k_B
0,5 mV	$18 \pm 1 \text{ kV/m}$	4 mK
1 mV	$36 \pm 2 \text{ kV/m}$	9 mK
3 mV	$108 \pm 7 \text{ kV/m}$	26 mK
100 mV	$3.6 \pm 0.2 \text{ MV/m}$	0.9 K

4.2.3 Zusammenfassung dielektrische Messungen

Die Permittivität, die in dieser Arbeit in einem Frequenzbereich von 100 Hz bis 20 kHz gemessen wurde, kann in ihrem Verlauf im Rahmen des Tunnelmodells verstanden werden. Weitere Messungen, die SASKIA MEIßNER im Rahmen ihrer Arbeit [56] an identischen Kondensatoren als Teil von Hochfrequenz-Resonatoren durchgeführt hat, folgen ebenfalls dem Tunnelmodell und liefern eine vergleichbare Zustandsdichte der TS. Die niederfrequenten Messungen ergeben $C_\epsilon = P_0 p^2 / \epsilon \epsilon_0$ im Bereich von $0,5 \cdot 10^{-3}$ bis $0,9 \cdot 10^{-3}$, mit den Resonatoren findet man im Frequenzbereich von 600 MHz und 6 GHz Werte von $0,6 \cdot 10^{-3}$ bis $1 \cdot 10^{-3}$. Die gute Übereinstimmung der logarithmischen Steigung der Änderung der Permittivität $\delta\epsilon/\epsilon$ in einem Frequenzbereich von 100 Hz bis 6 GHz, zusammen mit dem Verlust $\tan(\delta)$, der ebenfalls die vom Tunnelmodell erwarteten Plateau-Werte im Rahmen der gleichen Streuung erreicht, sprechen für das Tunnelmodell. Es liefert eine Vorhersage, die in einem breiten Frequenz- und Temperaturbereich Übereinstimmung mit den gemessenen Daten übereinstimmt, mit nur wenigen Parametern.

Die gefundene Abhängigkeit der dielektrischen Permittivität in einem schwachen Magnetfeld weist darauf hin, dass die Leitungselektronen aus den Elektroden mit TS in einem isolierenden Material wechselwirken. Komplementäre Messungen an einzelnen TS in einem dünnen JOSEPHSON-Tunnelkontakt eines Qubits zeigen ebenfalls, dass die Relaxationsrate der TS von der Dichte der Quasiteilchen abhängt [12].

Eine Variation der Schichtdicke könnte Aufschluss über das Verhältnis von TS an der Grenzfläche zwischen dem AlO_x und Al liefern. Solche Messungen scheiterten bislang an der Reproduzierbarkeit stark isolierender Oxidschichten.

5 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Zr-basierte metallische Volumengläser untersucht. Bei niedrigen Frequenzen im Bereich von kHz wurde die Änderung der Schallgeschwindigkeit und die Absorption mit der Vibrating-Reed-Technik gemessen. Bei hohen Frequenzen im Bereich von 500 MHz bis 2 GHz wurde die Schallgeschwindigkeit und die Absorption durch die Laufzeit und Amplitude kurzer Ultraschallpulse durch massive Zylinder bestimmt. Erstmals wurde dabei ein metallisches Glas aus einem einzigen Guss in diesem breiten Frequenzfenster untersucht.

Die Daten bestätigen die grundlegenden Eigenschaften des Standard-Tunnelmodells, das mit wenigen Parametern eine Vorhersage für die Tieftemperatureigenschaften der Schallgeschwindigkeit und der Dämpfung über einen Frequenzbereich von sechs Größenordnungen und einen Temperaturbereich von zwei Größenordnungen liefert. Abweichend vom Standard-Tunnelmodell zeigen die gemessenen Daten, dass über einen Energiebereich von zwei Größenordnungen von 30 mK bis 3 K eine Zunahme der Zustandsdichte der TS um 20-25% möglich ist.

In dieser Arbeit wird gezeigt, dass die stark reduziert erscheinende Zustandsdichte im normalleitenden Zustand, abgeleitet aus der Schallgeschwindigkeitsänderung, ohne weitere Parameter durch Berücksichtigung der Kopplung der TS an die Elektronen erklärt werden kann. Die schnellen Relaxationsraten im normalleitenden Zustand sorgen für eine Linienbreite der TS, die ihren resonanten Beitrag zur transversalen Suszeptibilität verschwinden lässt. Die Dichte der TS bleibt jedoch unverändert, wie die konstante Ultraschallabsorption im normalleitenden Zustand zeigt. Eine Renormierung der Zustandsdichte scheint nicht notwendig und es bedarf keiner zusätzlichen freien Parameter, die an die Daten angepasst werden müssten.

Der Einfluss einer reinen Dephasierung der TS wird in dieser Arbeit erstmals im Rahmen des Tunnelmodells berücksichtigt. Die Details einer solchen Dephasierung, die selbst noch Gegenstand aktueller Forschung ist, sind an dieser Stelle noch

offen und bedürfen weiterer Untersuchung. Variationen der Temperaturabhängigkeit der Dephasierung legen nahe, dass eine noch bessere Übereinstimmung mit den gemessenen Daten möglich ist.

Eine vergleichbare Wechselwirkung von TS mit Elektronen wurde überraschenderweise in einem völlig anderen Materialsystem gefunden: Plattenkondensatoren des Schichtsystems Al/AlO_x/Al mit Aluminiumelektroden und einer 28 nm dicken ungeordneten Aluminiumoxid-Schicht als Dielektrikum zeigen einen charakteristischen Verlauf der Permittivität, die dem der mechanischen Suszeptibilität des metallischen Glases sehr ähnlich ist. So zeigt die Suszeptibilität in Real- und Imaginärteil einen Knick bei der supraleitenden Sprungtemperatur T_C von Aluminium. Die extrahierten Relaxationsraten der TS weisen ebenfalls auf eine Wechselwirkung der TS mit thermisch aktivierten Quasiteilchen hin. In den niederfrequenten Messungen der Permittivität kann die Wechselwirkung mit Leitungselektronen unterhalb T_C durch ein Magnetfeld ein- und ausgeschaltet werden. Die kritische Temperatur und das kritische Feld, bei denen die Supraleitung unterdrückt wird, erlauben den Einfluss von granularem Aluminiumoxid in der Oxidschicht auszuschließen.

Der Einfluss der Linienbreite im Rahmen des Tunnelmodells spielt nicht nur in metallischen Gläsern eine Rolle, sondern kann auch einen Beitrag zum Verständnis anderer Gläser liefern: Bei tiefen Temperaturen eröffnet die TS-TS-Wechselwirkung einen neuen Relaxationskanal und kann dabei für eine konstante Linienbreite sorgen, ähnlich wie es in dieser Arbeit in dem metallischen Glas angenommen wurde. Möglicherweise kann das Abflachen der Suszeptibilität bei tiefen Temperaturen in anderen Gläsern mit bekannten zusätzlichen Relaxationsmechanismen durch die Berücksichtigung der endlichen Linienbreite verstanden werden.

Obwohl das Tunnelmodell zur Beschreibung der Tieftemperatur-Eigenschaften ungeordneter Festkörper nun über 45 Jahre alt ist, hält seine Anwendung noch Überraschungen bereit. So kann das Verhalten supraleitender metallischer Gläser ohne weitere Modifikationen der Zustandsdichte der TS verstanden werden, wenn der Einfluss der Wechselwirkung zwischen TS und Elektronen auf die Linienbreite berücksichtigt wird. So kann das Tunnelmodell das grundsätzliche Verhalten bei tiefen Temperaturen über viele Größenordnungen sowohl in der Frequenz als auch in der Temperatur beschreiben.

Abstract

The standard tunneling model for the description of the low temperature properties of disordered solids is now over 45 years old and its predictions match a broad variety of different physical quantities which have all the same microscopic origin – atoms or groups of atoms in metastable configurations, the so-called tunneling systems (TS). In this work we investigate the change of the velocity of sound in metallic glasses and the dielectric permittivity in disordered AlO_x . Both quantities are dominated by the dynamics of these TS. We show that the sound velocity of the superconducting and normal conducting states of the metallic glass can be consistently described by the standard tunneling model without changing the underlying density of states. The influence of the interaction between TS and electrons on the line-width of TS is crucial and explains the differences in the sound velocity between the superconducting and normal states in these materials. Taking into account an additional dephasing of TS further enhances the agreement between prediction and measurement. This agreement holds over the investigated range of frequencies from 1 kHz up to 2 GHz and temperatures from 10 mK to 2 K.

Taking into account the effect on the line-width may further explain the properties of other glasses, where independent measurements show rather large energy relaxation rates of the TS at low temperatures, as it is found in glasses with large nuclear quadrupole moments.

Measurements of the permittivity of AlO_x embedded between Al electrodes show a similar agreement with the tunneling model whereas a moderately increasing density of states with increasing TS energies may be required. Together with the work of SASKIA MEIßNER the tunneling model is explored by measurement of the permittivity and loss between 100 Hz and up to 6 GHz in the temperature range from 20 mK to about 1 K. The low frequency measurements done in this work surprisingly show an influence of a magnetic field applied to the plate capacitors. The influence is attributed to the interaction between TS and quasi-particles in the superconducting state of the Al-electrodes and conduction electrons in the normal state, respectively.

Literatur

- [1] M. Abramowitz und I. A. Stegun. *Handbook of Mathematical Functions With Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*. Applied Mathematics Series ; 55. U.S. Government Printing Office Washington, D.C. 220402, 1972 (siehe S. 22).
- [2] Clemens Adler. „Niederfrequente akustische Messungen an amorphen $Zr_{59}Ti_3Cu_{20}Ni_8Al_{10}$ “. Magisterarb. Wolfgang-Gaede Str. 1, 76131 Karlsruhe, Germany: Physikalisches Institut, Okt. 2009 (siehe S. 41, 43).
- [3] *AH2500A 1kHz Ultra-Precision Capacitance Bridge*. ANDEEN-HAGERLING, INC. 31200 Bainbridge Road Cleveland, Ohio 44139-2231 U.S.A., Juni 1995 (siehe S. 55).
- [4] Ralph A. Alpher und Robert J. Rubin. „Magnetic Dispersion and Attenuation of Sound in Conducting Fluids and Solids“. In: *The Journal of the Acoustical Society of America* 26.3 (1954), S. 452–453 (siehe S. 47).
- [5] P. W. Anderson, B. I. Halperin und M. C. Varma. „Anomalous low-temperature thermal properties of glasses and spin glasses“. In: *Philosophical Magazine* 25.1 (1972), S. 1–9 (siehe S. 3, 5).
- [6] N.W. Ashcroft und N.D. Mermin. *Solid State Physics*. Philadelphia: Saunders College, 1976 (siehe S. 52).
- [7] B.A. Auld. *Acoustic fields and waves in solids*. A Wiley-Interscience publication. Wiley, 1973 (siehe S. 8).
- [8] J. F. Berret und M. Meißner. „How universal are the low temperature acoustic properties of glasses?“ In: *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter* 70.1 (1988), S. 65–72 (siehe S. 24).
- [9] B. S. Berry und W. C. Pritchett. „Vibrating Reed Internal Friction Apparatus for Films and Foils“. In: *IBM Journal of Research and Development* 19.4 (Juli 1975), S. 334–343 (siehe S. 40).

- [10] E. V. Bezuglyi, A. L. Gaiduk, V. D. Fil u. a. „Sound attenuation in the superconducting amorphous alloy ZrTiCuNiBe“. In: *Low Temperature Physics* 25.12 (1999), S. 999–1002 (siehe S. 73).
- [11] E. V. Bezuglyi, A. L. Gaiduk, V. D. Fil u. a. „Electron renormalization of sound interaction with two-level systems in superconducting metallic glasses“. In: *Phys. Rev. B* 62.10 (Sep. 2000), S. 6656–6664 (siehe S. 73).
- [12] Alexander Bilmes, Sebastian Zanker, Andreas Heimes u. a. „Electronic Decoherence of Two-Level Systems in a Josephson Junction“. In: *arXiv* 1609.06173 (2016) (siehe S. 17, 72, 84).
- [13] J. L. Black. „Low-energy excitations in metallic glasses“. In: *Glassy Metals I: Ionic Structure, Electronic Transport, and Crystallization*. Hrsg. von Hans-Joachim Güntherodt und Hans Beck. Springer Berlin Heidelberg, 1981, S. 167–190 (siehe S. 16, 67).
- [14] J. L. Black und P. Fulde. „Influence of the Superconducting State upon the Low-Temperature Properties of Metallic Glasses“. In: *Phys. Rev. Lett.* 43 (6 Aug. 1979), S. 453–456 (siehe S. 13, 15).
- [15] F. Bloch. „Nuclear Induction“. In: *Phys. Rev.* 70 (7-8 Okt. 1946), S. 460–474 (siehe S. 7, 10).
- [16] E. H. Brandt, P. Esquinazi, H. Neckel u. a. „Drastic increases of frequency and damping of a superconducting vibrating reed in a longitudinal magnetic field“. In: *Phys. Rev. Lett.* 56 (1 Jan. 1986), S. 89–92 (siehe S. 46).
- [17] Christin Büchner, Leonid Lichtenstein, Xin Yu u. a. „Ultrathin Silica Films: The Atomic Structure of Two-Dimensional Crystals and Glasses“. In: *Chemistry – A European Journal* 20.30 (2014), S. 9176–9183 (siehe S. 4).
- [18] W. Buckel und R. Hilsch. „Supraleitung und elektrischer Widerstand neuartiger Zinn-Wismut-Legierungen“. In: *Zeitschrift für Physik* 146.1 (Feb. 1956), S. 27–38 (siehe S. 3).
- [19] J.D.N. Cheeke. *Fundamentals and Applications of Ultrasonic Waves*. CRC series in pure and applied physics. CRC Press, 2010 (siehe S. 41).
- [20] J. Classen, C. Enss, C. Bechinger u. a. „Low frequency acoustic and dielectric measurements on glasses“. In: *Annalen der Physik* 506.5 (1994), S. 315–335 (siehe S. 13, 20, 21).

- [21] Roger W. Cohen und B. Abeles. „Superconductivity in Granular Aluminum Films“. In: *Phys. Rev.* 168 (2 Apr. 1968), S. 444–450 (siehe S. 81).
- [22] Sebastian W. W. Craft. „Niederfrequente akustische Messungen an amorphem $Zr_{46.8} Ti_{8.2} Cu_{7.5} Ni_{10} Be_{27.5}$ “. Magisterarb. Wolfgang-Gaede Str. 1, 76131 Karlsruhe, Germany: Physikalisches Institut, Dez. 2014 (siehe S. 40, 58, 60, 61).
- [23] L. Cremer und M. Heckl. *Körperschall: Physikalische Grundlagen und technische Anwendungen*. Springer Berlin Heidelberg, 1995 (siehe S. 41).
- [24] Volker Deutsch, Michael Platte und Manfred Vogt. *Ultraschallprüfung*. VDI-Buch. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1997, S. IX, 372 (siehe S. 79).
- [25] G. Deutscher, B. Bandyopadhyay, T. Chui u. a. „Transition to Localization in Granular Aluminum Films“. In: *Phys. Rev. Lett.* 44 (17 Apr. 1980), S. 1150–1153 (siehe S. 81).
- [26] G. Deutscher, H. Fenichel, M. Gershenson u. a. „Transition to zero dimensionality in granular aluminum superconducting films“. English. In: *Journal of Low Temperature Physics* 10.1-2 (1973), S. 231–243 (siehe S. 81).
- [27] Markus Döttling. „Niederfrequente akustische Messungen an amorphem $Zr_{59} Ti_3 Cu_{20} Ni_8 Al_{10}$ “. Magisterarb. Wolfgang-Gaede Str. 1, 76131 Karlsruhe, Germany: Physikalisches Institut, Nov. 2016 (siehe S. 45, 46, 58, 60, 64).
- [28] Doussineau, P., Matecki, M. und Schön, W. „Connection between the low temperature acoustic properties and the glass transition temperature of fluoride glasses“. In: *J. Phys. France* 44.1 (1983), S. 101–107 (siehe S. 24).
- [29] Sebastian Eisenhardt. „Akustische Eigenschaften von ungeordnetem $Zr_{59} Ti_3 Cu_{20} Ni_8 Al_{10}$ bei tiefen Temperaturen“. Magisterarb. Wolfgang-Gaede Str. 1, 76131 Karlsruhe, Germany: Physikalisches Institut, Sep. 2016 (siehe S. 44, 60).
- [30] C. Enss und S. Hunklinger. *Tiefemperaturphysik*. Springer, 2000 (siehe S. 3, 8, 10, 19).
- [31] P. Esquinazi, H.M. Ritter, H. Neckel u. a. „Acoustic experiments on amorphous Pd_3OZr_7O and Cu_3OZr_7O in the superconducting and the normal state“. English. In: *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter* 64.1 (1986), S. 81–93 (siehe S. 73).

- [32] Pablo Esquinazi, Hrsg. *Tunneling Systems in Amorphous and Crystalline Solids*. Springer Berlin Heidelberg, 1998 (siehe S. 3, 19).
- [33] Stefan Fritz, Arnold Seiler, Lucas Radtke u. a. „Correlating the nanostructure of Al-oxide with deposition conditions and dielectric contributions of two-level systems in perspective of superconducting quantum circuits“. In: *arXiv* (2017) (siehe S. 74, 75).
- [34] Ivar Giaever und Karl Megerle. „Study of Superconductors by Electron Tunneling“. In: *Phys. Rev.* 122 (4 Mai 1961), S. 1101–1111 (siehe S. 51).
- [35] Brage Golding und John E. Graebner. „Phonon Echoes in Glass“. In: *Phys. Rev. Lett.* 37 (13 Sep. 1976), S. 852–855 (siehe S. 15).
- [36] Brage Golding, John E. Graebner, Anne B. Kane u. a. „Relaxation of Tunneling Systems by Conduction Electrons in a Metallic Glass“. In: *Phys. Rev. Lett.* 41 (21 Nov. 1978), S. 1487–1491 (siehe S. 13, 31, 63).
- [37] Grigorij J. Grabovskij, Torben Peichl, Jürgen Lisenfeld u. a. „Strain Tuning of Individual Atomic Tunneling Systems Detected by a Superconducting Qubit“. In: *Science* 338.6104 (2012), S. 232–234 (siehe S. 79).
- [38] Ralf Haueisen. „Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen“. Diss. Karlsruhe: Physikalisches Institut, Mai 2003 (siehe S. 8).
- [39] Hendrik van Hees. *Klassische Mechanik*. Lecture. Juni 2014 (siehe S. 43).
- [40] S. Hunklinger und W. Arnold. „Ultrasonic Properties of Glasses at Low Temperatures“. In: *Physical Acoustics V12: Principles and Methods*. Hrsg. von W.P. Mason und R.N. Thurston. Bd. 12. *Physical Acoustics: Principles and Methods*. Academic Press, 1976, S. 155–215 (siehe S. 3, 8, 12, 17, 19).
- [41] J. Jäckle. „On the ultrasonic attenuation in glasses at low temperatures“. English. In: *Zeitschrift für Physik* 257.3 (1972), S. 212–223 (siehe S. 12).
- [42] Yu. Kagan und N.V. Prokof'ev. „Acoustic properties of metallic and superconducting glasses“. In: *Solid State Communications* 65.11 (1988), S. 1385–1389 (siehe S. 36, 72).
- [43] Christoph Kaiser. „High quality Nb/Al-AlOx/Nb Josephson junctions : technological development and macroscopic quantum experiments“. Diss. Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Juli 2011, S. XIX, 169 (siehe S. 13, 14).

- [44] Klement W., Willens R. H. und Duwez Pol. „Non-crystalline Structure in Solidified Gold-Silicon Alloys“. In: *Nature* 187.4740 (Sep. 1960), S. 869–870 (siehe S. 3).
- [45] Thomas Koch. „Niederfrequente akustische Messungen an amorphem $Zr_{46.8}Ti_{8.2}Cu_{7.5}Ni_{10}Be_{27.5}$ bei tiefen Temperaturen“. Magisterarb. Wolfgang-Gaede Str. 1, 76131 Karlsruhe, Germany: Physikalisches Institut, Juli 2017 (siehe S. 40, 60, 61).
- [46] B. Kübler, M. Burst, R. Haueisen u. a. „Acoustic measurements of crystalline aluminum and of an aluminum alloy (Al 5056)“. In: *Physica B: Condensed Matter* 316–317.0 (2002). Proceedings of the 10th International Conference on Phonon Scatte ring in Condensed Matter, S. 558–560 (siehe S. 44).
- [47] Uta Kühn. „Strukturelle und mechanische Charakterisierung von vielkomponentigen amorphen, teilamorphen und kristallinen Zirkon-Basislegierungen“. Diss. Fakultät Maschinenwesen, Professur für Werkstoffsynthese und Analytik, 2004 (siehe S. 40, 44, 62).
- [48] Anthony J. Leggett und Dervis C. Vural. „“Tunneling Two-Level Systems” Model of the Low-Temperature Properties of Glasses: Are “Smoking-Gun” Tests Possible?“ In: *The Journal of Physical Chemistry B* 117.42 (2013). PMID: 23924397, S. 12966–12971 (siehe S. 67).
- [49] Jürgen Lisenfeld, Alexander Bilmes, Shlomi Matityahu u. a. „Decoherence spectroscopy with individual two-level tunneling defects“. In: *arXiv* 1601.03213 (2016) (siehe S. 15).
- [50] Hilbert von Löhneysen. „Low energy excitations in amorphous metals“. In: *Physics Reports* 79 (Dez. 1981), S. 161–212 (siehe S. 4).
- [51] Annina Luck. „Nuclear spin dominated relaxation of atomic tunneling systems in glasses“. Diss. Heidelberg: Ruperto-Carola-Universität Heidelberg, Nov. 2016 (siehe S. 36, 71).
- [52] S. Ludwig, P. Nagel, S. Hunklinger u. a. „Magnetic Field Dependent Coherent Polarization Echoes in Glasses“. In: *Journal of Low Temperature Physics* 131.1 (2003), S. 89–111 (siehe S. 71).
- [53] Bruno Lüthi. *Physical Acoustics in the Solid State*. Springer Series SOLID-STATE SCIENCE 148. Berlin, Heidelberg, New York: Springer, 2005 (siehe S. 40, 41).

- [54] Yuriy Makhlin, Gerd Schön und Alexander Shnirman. „Dissipation In Josephson Qubits“. In: *New Directions in Mesoscopic Physics (Towards Nanoscience)*. Hrsg. von R. Fazio, V. F. Gantmakher und Y. Imry. Dordrecht: Springer Netherlands, 2003, S. 197–224 (siehe S. 16).
- [55] Yuriy Makhlin, Gerd Schön und Alexander Shnirman. „Dissipation in Josephson qubits“. In: *arXiv* (2003) (siehe S. 16).
- [56] Saskia Meißner. „Dynamik atomarer Tunnelsysteme in dünnen, ungeordneten AlO_x-Schichten“. Diss. Karlsruhe: Physikalisches Institut, Apr. 2017 (siehe S. 4, 15, 17, 53, 79, 84).
- [57] H. Neckel, P. Esquinazi, G. Weiss u. a. „The tunneling model – Incomplete for amorphous metals“. In: *Solid State Communications* 57.3 (1986), S. 151–154 (siehe S. 73).
- [58] Torben Peichl. „Einfluss mechanischer Deformation auf atomare Tunnelsysteme – untersucht mit Josephson Phasen-Qubits“. Diss. Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Jan. 2012 (siehe S. 8, 79).
- [59] W. A. Phillips. „Tunneling states in amorphous solids“. In: *Journal of Low Temperature Physics* 7.3 (1972), S. 351–360 (siehe S. 3, 5).
- [60] W A Phillips. „Two-level states in glasses“. In: *Reports on Progress in Physics* 50.12 (1987), S. 1657 (siehe S. 3).
- [61] L. Piché, R. Maynard, S. Hunklinger u. a. „Anomalous Sound Velocity in Vitreous Silica at Very Low Temperatures“. In: *Phys. Rev. Lett.* 32 (25 Juni 1974), S. 1426–1429 (siehe S. 69).
- [62] Alexander Prieschl. „GHz-Ultraschall in ungeordnetem Zr₅₉ Ti₃ Cu₂₀ Ni₈ Al₁₀ bei tiefen Temperaturen“. Magisterarb. Karlsruhe: Physikalisches Institut, März 2017 (siehe S. 44, 49, 51, 57, 60, 62, 64, 69, 70).
- [63] A.K. Raychaudhuri und S. Hunklinger. „Low frequency elastic properties of glasses at low temperatures—implications on the tunneling model“. English. In: *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter* 57.2 (1984), S. 113–125 (siehe S. 3, 41, 69, 73).
- [64] H. Rotzinger, S. T. Skacel, M. Pfirrmann u. a. „Aluminium-oxide wires for superconducting high kinetic inductance circuits“. In: *arXiv* 1408.4347v3 (Aug. 2014) (siehe S. 81).

- [65] Gudrun Ruyters. „Phasenkohärenz und Energierelaxation von Tunnelsystemen in Gläsern“. Diss. Kirchhoff-Institut für Physik, 2013 (siehe S. 15, 17).
- [66] Gerd Schön. *Theoretische Physik F - Statistische Physik*. 2010 (siehe S. 7).
- [67] Jürgen T. Stockburger, Milena Grifoni und Maura Sasseti. „Nonlinear acoustic response of glasses in the tunneling model“. In: *Phys. Rev. B* 51 (5 Feb. 1995), S. 2835–2843 (siehe S. 82).
- [68] D.R. Tilley und J. Tilley. *Superfluidity and Superconductivity*. Graduate Student Series in Physics. Taylor & Francis, 1990 (siehe S. 13, 14).
- [69] M. Tinkham. *Introduction to Superconductivity: Second Edition*. Dover Books on Physics. Dover Publications, 2004 (siehe S. 13, 14).
- [70] M Voigt und M Sokolowski. „Electrical properties of thin rf sputtered aluminum oxide films“. In: *Materials Science and Engineering: B* 109.1–3 (2004). {EMRS} 2003, Symposium I, Functional Metal Oxides - Semiconductor Structures, S. 99–103 (siehe S. 75).
- [71] G. Weiss und B. Golding. „Phonon Echoes in Superconducting Amorphous Pd₃₀Zr₇₀“. In: *Phys. Rev. Lett.* 60 (24 Juni 1988), S. 2547–2550 (siehe S. 15, 17, 24).
- [72] Kazumasa Yamada, Hiroyuki Fujiki, Bunjyu Shinozaki u. a. „Superconducting properties in granular aluminum films near percolation threshold“. In: *Physica C: Superconductivity* 355.1 (2001), S. 147–155 (siehe S. 81).
- [73] W. H. Zachariasen. „The Atomic Arrangement in Glass“. In: *Journal of the American Chemical Society* 54.10 (1932), S. 3841–3851 (siehe S. 3, 4).
- [74] S. Zanker, M. Marthaler und G. Schön. „Decoherence and Decay of Two-Level Systems Due to Nonequilibrium Quasiparticles“. In: *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 26.3 (Apr. 2016), S. 1–4 (siehe S. 17, 72).
- [75] Sebastian Zanker. „Decoherence in microscopic two-level systems and in analog quantum simulators“. Diss. Institut für Theoretische Festkörperphysik (TFP), Juli 2017 (siehe S. 17, 72).
- [76] R. C. Zeller und R. O. Pohl. „Thermal Conductivity and Specific Heat of Noncrystalline Solids“. In: *Phys. Rev. B* 4 (6 Sep. 1971), S. 2029–2041 (siehe S. 3).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich für die Unterstützung bedanken, die in den letzten Jahren zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. An erster Stelle gilt dies Herrn Prof. G. Weiß, in dessen Arbeitsgruppe die Mittel und die Erfahrung zur Verfügung standen, die es ermöglicht haben, ein kleines Stück neues Wissen hinzuzufügen. Dieses Wissen konnte durch den Rat von Herrn Prof. A. Shnirman an die mir nicht vertraute Begriffswelt der theoretischen Physik angeschlossen werden.

Zu den vielen kleinen Schritten, die notwendig sind, um ein größeres Bild zu erlangen, haben viele weitere Personen beigetragen, von denen ich hier nur einige nennen kann. Zum einen Danke ich den Studenten, die ich betreuen durfte: Alexander Prieschl, Thomas Koch, Markus Döttling, Sebastian Eisenhardt, Sebastian Craft. Durch immer neues Diskutieren und Erklären der Zusammenhänge entwickelt sich ein Verständnis der Inhalte, das durch reines Nachlesen oder Nachdenken nicht erreicht werden kann. Die Ergebnisse der Arbeiten, die so entstanden und auf die im Text verwiesen wird, liefern viele Bausteine für das Gesamtbild.

Den Werkstätten des Physikalischen Instituts für die Unterstützung, die von einem gut sortierten Schraubenlager bis zur Fertigung vollständiger, komplexer Probenhalter reicht. Mit Hilfe des Dialogs wird aus einer diffusen Idee ein leicht handhabbares und nützliches Werkzeug. Stellvertretend danke ich hier den Leitern Michael Meyer und Roland Jehle. Ebenfalls wichtiger Bestandteil der Infrastruktur sind funktionierende Computer, für die Lars Behrens viel im Hintergrund arbeitet, und flüssiges Helium, das Willi Pensl in scheinbar unmöglichen Situationen noch rechtzeitig bereit stellen konnte.

Dank gilt ebenso den Kollegen und ehemaligen des Physikalischen Instituts, die zu der angenehmen und positiven Arbeitsatmosphäre beigetragen haben. Unkompliziert über Wissenschaftliches wie Privates diskutieren zu können, hilft oft schnell weiter. Torben, Christian, Wolfram – ich hoffe, dass wir ähnliche Diskussionen auch nach der Zeit am PI führen können.

Für viele Fragen und Diskussionen, aber auch immer wieder neue Motivation und den Drang, den Dingen auf den Grund zu gehen, danke ich meiner Frau Saskia.

Experimental Condensed Matter Physics

(ISSN 2191-9925)

Herausgeber
Physikalisches Institut

Prof. Dr. David Hunger
Prof. Dr. Alexey Ustinov
Prof. Dr. Georg Weiß
Prof. Dr. Wolfgang Wernsdorfer
Prof. Dr. Wulf Wulfhekel

- Band 1** Alexey Feofanov
Experiments on flux qubits with pi-shifters. 2011
ISBN 978-3-86644-644-1
- Band 2** Stefan Schmaus
Spintronics with individual metal-organic molecules. 2011
ISBN 978-3-86644-649-6
- Band 3** Marc Müller
Elektrischer Leitwert von magnetostriktiven Dy-Nanokontakten. 2011
ISBN 978-3-86644-726-4
- Band 4** Torben Peichl
Einfluss mechanischer Deformation auf atomare Tunnelsysteme – untersucht mit Josephson Phasen-Qubits. 2012
ISBN 978-3-86644-837-7
- Band 5** Dominik Stöffler
Herstellung dünner metallischer Brücken durch Elektromigration und Charakterisierung mit Rastersondentechniken. 2012
ISBN 978-3-86644-843-8
- Band 6** Tihomir Tomanic
Untersuchung des elektronischen Oberflächenzustands von Ag-Inseln auf supraleitendem Niob (110). 2012
ISBN 978-3-86644-898-8
- Band 7** Lukas Gerhard
Magnetoelectric coupling at metal surfaces. 2013
ISBN 978-3-7315-0063-6
- Band 8** Kirill Fedorov
Fluxon readout for superconducting flux qubits. (nicht erschienen)
ISBN 978-3-7315-0067-4

- Band 9** Jochen Zimmer
Cooper pair transport in arrays of Josephson junctions. 2014
ISBN 978-3-7315-0130-5
- Band 10** Oliver Berg
Elektrischer Transport durch Nanokontakte von Selten-Erd-Metallen. 2014
ISBN 978-3-7315-0209-8
- Band 11** Grigorij Jur'evic Grabovskij
Investigation of coherent microscopic defects inside the tunneling barrier of a Josephson junction. 2014
ISBN 978-3-7315-0210-4
- Band 12** Cornelius Thiele
STM Characterization of Phenylene-Ethynylene Oligomers on Au(111) and their Integration into Carbon Nanotube Nanogaps. 2014
ISBN 978-3-7315-0235-7
- Band 13** Michael Peter Schackert
Scanning Tunneling Spectroscopy on Electron-Boson Interactions in Superconductors. 2014
ISBN 978-3-7315-0238-8
- Band 14** Susanne Butz
One-Dimensional Tunable Josephson Metamaterials. 2014
ISBN 978-3-7315-0271-5
- Band 15** Philipp Jung
Nonlinear Effects in Superconducting Quantum Interference Meta-Atoms. 2014
ISBN 978-3-7315-0294-4
- Band 16** Sebastian Probst
Hybrid quantum system based on rare earth doped crystals. 2016
ISBN 978-3-7315-0345-3
- Band 17** Wolfram Kittler
Magnetische Anisotropie und Quantenphasenübergang in $\text{CeTi}_{1-x}\text{V}_x\text{Ge}_3$. 2015
ISBN 978-3-7315-0363-7
- Band 18** Moritz Peter
Towards magnetic resonance in scanning tunneling microscopy using heterodyne detection. 2015
ISBN 978-3-7315-0410-8

- Band 19** Junji Tobias Märkl
Investigation of Magnetic Adatoms with Scanning Tunneling Techniques. 2015
ISBN 978-3-7315-0435-1
- Band 20** Jochen Braumüller
Quantum simulation experiments with superconducting circuits. 2018
ISBN 978-3-7315-0780-2
- Band 21** Jinjie Chen
Local Investigation of Single Magnetic Molecules with Scanning Tunneling Microscopy. 2018
ISBN 978-3-7315-0819-9
- Band 22** Arnold Seiler
Einfluss der Leitungselektronen auf die Dynamik atomarer Tunnelsysteme in ungeordneten Festkörpern: Relaxationsprozesse in metallischen Gläsern und ungeordneten dünnen Aluminiumoxid-Schichten. 2019
ISBN 978-3-7315-0870-0

Der Quantencomputer – ein Ziel, das mit supraleitenden Schaltkreisen erreichbar scheint. Doch atomare Materialdefekte, wie sie aus Gläsern bekannt sind, begrenzen ihre Leistungsfähigkeit. Aktuelle Untersuchungen zeigen zudem, dass Leitungselektronen einen starken Einfluss auf die Dynamik der Defektzustände haben. Ein Modellsystem für diese Dynamik bieten metallische Gläser, deren akustische Eigenschaften in dieser Arbeit gemessen und analysiert werden. Der Einfluss der Elektronen auf die Lebensdauer der Anregungen der Defekte liefert dabei einen einfachen Mechanismus zum Verständnis der Anomalien. Mit der Untersuchung isolierender Schichten aus Aluminiumoxid – eine wichtige Komponente supraleitender Schaltkreise – soll der Ursprung der Defekte aufgeklärt werden. Die durchgeführten Messungen der Permittivität zeigen, dass die isolierenden Schichten viele Ähnlichkeiten zu makroskopischen Gläsern besitzen. Überraschend ist der starke Einfluss der Elektronen auf die dielektrischen Eigenschaften.

ISSN 2191-9925
ISBN 978-3-7315-0870-0

