

KfK 5223  
August 1993

# **Frequenz- und Temperaturabhängigkeit der mm-Wellen-Absorption in ionischen Einkristallen**

**G. Link**  
**Institut für Materialforschung**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



**Kernforschungszentrum Karlsruhe**

**Institut für Materialforschung**

**KfK 5223**

**Frequenz- und Temperaturabhängigkeit  
der mm-Wellen-Absorption in ionischen Einkristallen\***

**G. Link**

**\*von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe genehmigte Dissertation**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe**

Als Manuskript gedruckt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0303-4003

# **Frequenz- und Temperaturabhängigkeit der mm-Wellen-Absorption in ionischen Einkristallen**

## **Zusammenfassung**

Das Verständnis der intrinsischen dielektrischen Absorption ist von großen Interesse für die Auslegung von Transmissionskomponenten bei der Erzeugung und Übertragung von mm-Wellen sehr hoher Leistung, die zur Aufheizung des Plasmas in Fusionsreaktoren dienen sollen (Elektron-Zyklotron-Resonanz (ECR) Heizsystemen). Insbesondere für Gyrotronfenster sind - neben der Wärmeleitfähigkeit und dem Widerstand gegen thermische Reißbildung - die Absorptionseigenschaften der Fenstermaterialien im Bereich der ECR-Frequenzen (120 GHz bis 150 GHz) die bestimmenden Faktoren für die maximal erreichbare Ausgangsleistung. Durch den kryogenen Betrieb dieser Fenster lassen sich die dielektrischen Verluste erheblich reduzieren. Dieses Verhalten war zuvor nur mit einer unzureichenden Datenbasis bestimmt und theoretisch schlecht verstanden.

Die Aufgabenstellung, die dielektrischen Verluste des Referenzmaterials für kryogen gekühlte Gyrotronfenster - Saphir - zuverlässig zu charakterisieren und zu modellieren, wurde durch grundlegende Untersuchungen an weiteren ionischen Einkristallen angegangen. Hierfür wurden die Alkalihalogenide LiF, NaCl, KCl, KBr und die Erdalkalifluoride MgF<sub>2</sub>, CaF<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub> gewählt. Neben verschiedenen Saphirqualitäten wurde auch Quarz, der als Referenzmaterial für thermisch niedrig belastete aber absorptionsarme Systeme (z.B. in der Plasmadiagnostik) gilt, im Frequenzbereich von 15 GHz und 145 GHz und zwischen 25 K und 300 K untersucht. Die Einführung eines neuen, vollständig rechnergesteuerten Meßverfahrens und die Optimierung der mechanischen und thermischen Stabilität des Kryostatenaufbaus erlaubte die Umstellung von einer statischen in eine dynamische Temperatureinstellung, womit erstmals auch die Bestimmung der relativen Dielektrizitätskonstanten bei tiefen Temperaturen gelang. Zusammen mit einer Überarbeitung des allgemein benutzten Auswertalgorithmus konnte die Meßgenauigkeit der dielektrischen Verluste erheblich verbessert werden.

Für den neu erfaßten Frequenz- und Temperaturbereich konnten die Verluste in den Alkalihalogeniden durch das Sparks-King-Mills-Modell, das speziell für diese Kristalle entwickelt wurde, erklärt werden. Dieses Modell erklärt die mm-Wellen-Absorption mit 2-Phononen Differenzprozessen zwischen zwei energieunschärferen Phononenzweigen. Es gelang, das Modell derart zu erweitern, daß auch die Absorptionseigenschaften der übrigen untersuchten Kristalle mit einer anderen, komplexeren Kristallstruktur beschrieben werden konnten.

## Frequency and Temperature Dependence of the MM-wave-absorption in Ionic Crystals

### Abstract

The knowledge of the intrinsic dielectric absorption is of special interest for the design of transmission components in systems for generation and transmission of high power mm-waves for plasma heating in fusion reactors (electron cyclotron resonance (ECR) heating systems). Especially for the gyrotron windows, the absorption properties of the window materials in the region of the ECR-frequencies (120 GHz - 150 GHz) are the determining factors - apart from the thermal conductivity and the resistance against thermal crack formation - for the attainable maximum output power. The dielectric losses can be reduced remarkably by operation at cryogenic temperatures. So far there is only an insufficient database proving this behaviour and it has been unsatisfactorily described by theory.

The task of characterising and modelling the dielectric losses of the reference materials for the cryogenic gyrotron windows - sapphire - was tackled by preceding fundamental investigations of other ionic single crystals. For that purpose, the alkali halides LiF, NaCl, KCl, KBr and the alkaline earth fluorides  $MgF_2$ ,  $CaF_2$ ,  $BaF_2$  were selected. Apart from several grades of sapphire, also quartz has been investigated in the frequency range from 15 GHz to 145 GHz and between temperature from 25 K to 300 K, because it is considered as a reference material for thermally moderately loaded low loss systems (for example for plasma diagnostics). By the introduction of a new fully computer controlled measurement procedure and the optimization of the mechanical and thermal stability of the cryostat, the step from static into dynamic temperature control was achieved, allowing in addition the investigation of the relative dielectric constant at low temperatures. With a parallel revision of the standard algorithm the errors of the measured dielectric losses could be reduced substantially.

In the new frequency and temperature ranges covered, the losses in the alkali halides can be explained by the Sparks-King-Mills-model in agreement with literature where the model was proposed especially for this class of materials. The model explains the mm-wave-absorption by 2-phonon difference processes between two lifetime broadened phonon branches. The model was extended in this work to describe successfully the absorption properties in the other investigated crystals, which have more complex crystal structures.

## Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Theorie zur Infrarot-Absorption in Ionenkristallen</b>	<b>4</b>
2.1. Kenngrößen	4
2.2. Photon-Phonon-Wechselwirkung in der harmonischen Näherung	5
2.3. Der Einfluß von Anharmonizitäten auf die Photon-Phonon-Wechselwirkung	9
2.3.1. Klassische Beschreibung	9
2.3.2. Quantenmechanische Beschreibung	9
2.3.2.1. Mehr-Phononen-Prozesse	9
2.3.2.2. Die quantenmechanische dielektrische Funktion	12
2.4. Einfache Theorie zur mm-Wellen-Absorption in Alkalihalogeniden	15
<b>3. Messung dielektrischer Eigenschaften mit offenen Resonatoren</b>	<b>19</b>
3.1. Theorie offener Resonatoren	19
3.1.1. Einführende Bemerkungen	19
3.1.2. Der konfokale Resonator	21
3.1.3. Der hemisphärische Resonator	24
3.2. Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten mit hemisphärischen Resonatoren	25
3.2.1. Skalarfeldtheorie des beladenen hemisphärischen Resonators	25
3.2.2. Die Dielektrizitätskonstante	27
3.2.3. Vektorfeldtheorie	29
3.3. Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren	30
3.3.1. Die Güte des leeren Resonators	30
3.3.1.1. Reflexionsverluste	31
3.3.1.2. Verluste durch die Koppellöcher	32
3.3.1.3. Beugungsverluste	34
3.3.1.4. Absorptionsverluste	35
3.3.2. Die Güte des beladenen Resonators	35
3.3.3. Algorithmus zur Berechnung des dielektrischen Verlusttangens	36

<b>4. Experimentelle Details</b>	<b>38</b>
4.1. Experimenteller Aufbau	38
4.1.1. Charakterisierung der Resonatoren	38
4.1.2. Elektronik	41
4.2. Meßablauf	43
4.2.1. Messungen bei Raumtemperatur	43
4.2.2. Temperaturabhängige Messungen	45
4.3. Auswertemethoden und Fehlerbetrachtung	46
4.3.1. Dielektrizitätskonstante	46
4.3.2. Dielektrischer Verlusttangens	48
4.4. Charakterisierung des Probensatzes	52
<b>5. Meßergebnisse</b>	<b>57</b>
5.1. Dielektrischer Verlusttangens	57
5.2. Dielektrizitätskonstante	64
<b>6. Diskussion</b>	<b>70</b>
6.1. Modellfunktionen zur Beschreibung der gemessenen mm-Wellen Verluste	70
6.2. Alkalihalogenide	75
6.3. Erdalkalihalogenide	81
6.3.1. $\text{CaF}_2$ und $\text{BaF}_2$	81
6.3.2. $\text{MgF}_2$	86
6.4. Saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )	89
6.5. Quarz	95
<b>7. Zusammenfassung</b>	<b>99</b>
<b>8. Literaturverzeichnis</b>	<b>103</b>
<b>A. Anhang</b>	<b>113</b>

## Verzeichnis der benutzten Symbole

$a_0, a_1, a_2$	Entwicklungskoeffizienten für die Temperaturabhängigkeit von $\epsilon'$
$a, a^+$	Erzeugungs- und Vernichtungsoperator
$A(k_j)$	Normalkoordinaten der Gitterschwingungen
$b$	Abstand Probenoberfläche - sphärischer Spiegel $b=L-t$
$c$	Vakuumlichtgeschwindigkeit ( $2.99792458 \cdot 10^8$ m/s)
$D, d$	Durchmesser des sphärischen bzw. planen Spiegels
$E$	elektrische Feldstärke
$F$	Fresnelzahl
$FF$	Füllfaktor des hemisphärischen Resonators
$g$	Spiegelparameter
$G$	Geometriefaktor des Resonators
$h$	Plancksche Konstante ( $6.62620 \cdot 10^{-34}$ Js)
$H$	magnetische Feldstärke
$H_A$	anharmonischer Teil des Hamiltonoperators
$k$	Wellenzahl $2\pi/\lambda$
$k_B$	Boltzmannkonstante ( $1.38062 \cdot 10^{-23}$ J/K)
$L$	Spiegelabstand
$LF$	Ladefaktor des hemisphärischen Resonators
$M$	Verhältnis der Verlustwiderstände vom planen zum sphärischen Spiegel
$n$	Brechungsindex; Besetzungszahl der Phononenzustände
$N_B$	Anzahl der Phononenzweigpaare, die zur Absorption beitragen.
$N_{\lambda/2}$	Anzahl der in die Probe passenden halben Wellenlängen
$P$	Polarisation; Leistung
$Q$	Güte des Resonators
$r$	Abstand nächster Nachbarn; radialer Abstand von der optischen Achse
$R$	Reflexionskoeffizient; Krümmungsradius des sphärischen Spiegels und der Phasenfront
$R_s$	Oberflächenwiderstand
$t$	Probendicke
$T$	Temperatur
$V$	Volumen
$V(k_j, k_{j_1}, k_{j_2})$	Kubischer Koeffizient im Hamiltonoperator
$w$	Strahlradius
$w$	normierte relative Auslenkung der Ionengitter
$W$	Energie
$Z$	Ionen-Ladungszahl
$m$	Ionenmasse
$M$	Koordinationszahl, Verhältnis der Verlustwiderstände vom ebenen und sphärischen Resonator-Spiegel

$\alpha$	Verlustfaktor; Dämpfungskonstante
$\alpha'$	Madelungkonstante
$\beta$	Kompressibilität; thermischer Ausdehnungskoeffizient
$\chi^*$	komplexe dielektrischen Suszeptibilität $\chi^* = \chi' + i\chi''$
$\delta$	dielektrischer Verlustwinkel
$\Delta(k_j, \nu, T)$	Frequenzverschiebung des Phonons aus dem Phononenzweig j mit der Wellenzahl k
$\epsilon_0$	elektrische Feldkonstante ( $8.85419 \cdot 10^{-12}$ C/Vm)
$\epsilon^*$	komplexe Dielektrizitätskonstante $\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon''$
$\epsilon_s, \epsilon_\infty$	statische und optische Dielektrizitätskonstante
$\phi_3$	kubischer Koeffizient im Gitterpotential
$\Phi$	Phasenterm des Gaußschen Strahls
$\gamma$	Frequenzverbreiterung der Phononenzustände
$\Gamma(k_j, \nu, T)$	Dämpfung des Phonons aus dem Phononenzweig j mit der Wellenzahl k
$\kappa$	Absorptionskoeffizient
$\lambda$	Wellenlänge
$\Lambda$	Amplitude des Born-Mayer-Potentials
$\mu_0$	magnetischen Feldkonstante ( $1.256637 \cdot 10^{-6}$ Vs/Am)
$\nu$	Frequenz
$\rho$	Wirkungslänge des Born-Mayer-Potentials
$\sigma$	elektrischen Leitfähigkeit
$\sigma_m, \sigma_n$	komplexe Skalierungsfaktoren für die Feldverteilung auf den Spiegeln
$\nu$	Feldverteilung auf den Spiegeln
$\omega$	Kreisfrequenz $2\pi\nu$

# 1

## Einleitung

Schon seit langem beschäftigt sich die Wissenschaft mit der Messung dielektrischer Eigenschaften und deren theoretischen Beschreibung. So hat Debye [1] 1913 erstmals die grundlegende Theorie der dielektrischen Eigenschaften in polaren Lösungen formuliert, die auf der Relaxation von Dipolen in Richtung eines angelegten elektrischen Wechselfeldes bei Frequenzen im Radiofrequenz (RF)-Bereich basieren. Im Infrarot (IR)-Bereich beruhen die dielektrischen Eigenschaften auf einer Wechselwirkung der elektromagnetischen Felder mit den Eigenschwingungen des Kristallgitters (Phononen). Die theoretische Beschreibung dieser Wechselwirkung, die in ionischen Kristallen besonders stark ist, wurde in den letzten 30 Jahren entwickelt und es existieren zahlreiche experimentelle Daten von Alkalihalogeniden aus IR-Messungen, anhand derer diese Theorien überprüft wurden.

Für den Mikrowellen- bzw. Millimeter (mm)-Wellen-Bereich, dem Grenzgebiet zwischen IR- und RF-Bereich, gibt es bisher nur wenig experimentelle Daten. Mit der Entwicklung der Mikrowellentechnik fanden auch die dielektrischen Eigenschaften der in diesem Frequenzbereich eingesetzten Isolatormaterialien immer größeres Interesse. Insbesondere für die Entwicklung von Mikrowellen- und mm-Wellen-Quellen mit immer höherer Ausgangsleistung, wie den Gyrotrons, werden Isolatormaterialien mit möglichst geringem Absorptionsvermögen benötigt, aus denen sich Vakuumfenster realisieren lassen.

Solche Hochleistungsquellen eignen sich zum Heizen bzw. Modulieren des Plasmas in Fusionsreaktoren, wenn sie mm-Wellen im Bereich der Elektron-Zyklotron-Resonanz (ECR) erzeugen [2]. Die Zielsetzung der aktuellen Entwicklung für ein bei 140 GHz arbeitendes Gyrotron liegt bei 1 MW. Um extrem hohe Leistungen transmittieren zu können, benötigt man Fenstermaterialien, die neben einem geringen dielektrischen Absorptionsvermögen eine hohe Wärmeleitfähigkeit zur Abfuhr der absorbierten Energie und eine möglichst geringe Neigung zur thermischen Rißbildung besitzen. Mit dem Abkühlen des Fensters auf tiefe Temperaturen erreicht man eine deutliche Verbesserung der Betriebsbedingungen, denn zum einen sinken die dielektrischen Verluste und zum anderen durchläuft die Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen ein Maximum [3]. Die letztendlich erreichbare Ausgangsleistung hängt entscheidend von den Absorptionseigenschaften des Fenstermaterials ab.

Einkristallines  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , das den technischen Namen Saphir trägt und sich heute in ausgezeichneter Reinheit herstellen läßt, ist das Material, welches die gestellten Bedingungen an die physikalischen Eigenschaften bisher am besten erfüllt und heute als Referenzmaterial für Gyrotronfenster gilt. Ein weiteres großes technisches Anwendungsgebiet findet Saphir in der Stripline-Technik, wo er nicht nur als verlustarmes Dielektrikum sondern auch als Substratmaterial für die keramischen Hoch  $T_c$ -Supraleiter dient. Die Kenntnis der exakten Temperatur- und Frequenzabhängigkeit der Absorption ist deshalb für dieses Material von besonderem Interesse.

Zu den Raumtemperatureigenschaften des Saphirs sind im Bereich der ECR-Frequenz bisher nur wenig konsistente Ergebnisse in der Literatur zu finden. Die Daten, die in den

angrenzenden Frequenzbereichen existieren, zeichnen sich außerdem durch starke Diskrepanzen untereinander aus, was sich entweder auf unterschiedliche Saphirqualitäten zurückführen läßt oder auf ein begrenztes Auflösungsvermögen der benutzten Meßmethoden. Desweiteren sind keine experimentellen Arbeiten bekannt, die Aufschluß geben über das genaue Tieftemperaturverhalten im relevanten Frequenzbereich.

Die dielektrische Absorption läßt sich im mm-Wellen-Bereich, der weit unterhalb der optischen Eigenfrequenzen des Kristallgitters liegt, mit klassischen Modellen nicht mehr verstehen. Dazu ist eine quantenmechanische Beschreibung notwendig, die anharmonische Terme mitberücksichtigt. Die störungstheoretischen Lösungen dieses Modells konnten aufgrund ihrer Komplexität bisher nur für Kristalle einfacher Symmetrie, wie den Alkalihalogeniden, in Einklang gebracht werden mit existierenden Absorptionsmessungen.

Diese Modelle beruhen alle auf einer anharmonischen Kopplung der elektromagnetischen Feldquanten (Photonen) an das Phononensystem des Kristallgitters, die zu einer Absorption über n-Phononen-Streuprozesse führen. 4-Phononen-Prozesse und Prozesse höherer Ordnung werden aufgrund geringerer Übergangswahrscheinlichkeiten allgemein als vernachlässigbar angesehen. In der Literatur herrscht keine Einigkeit darüber, ob die Absorption im mm-Wellen-Bereich mehr durch 2- oder 3-Phononen-Prozesse dominiert wird.

Stolen und Dransfeld [4] erwähnten die Möglichkeit von 3-Phononen-Prozessen, die bei Temperaturen oberhalb der Debye-Temperatur ( $T \geq \Theta$ ) zu einer quadratischen Abhängigkeit führen ( $\tan \delta \sim T^2$ ) gegenüber einem linearen Temperaturgesetz ( $\tan \delta \sim T$ ) bei 2-Phononen-Prozessen. Nach Sparks et al [5] lassen sich diese unterschiedlichen Temperaturabhängigkeiten alleine mit 2-Phononen-Differenzprozessen verstehen.

Gurevich [6] führt die Absorptionseigenschaften verschiedener Kristalle auf Übergänge zwischen entarteten akustischen Phononenzweigen zurück, die empfindlich von der Kristallsymmetrie abhängen. In seinen theoretischen Arbeiten leitet er für eine große Zahl von Kristallklassen Temperatur- und Frequenzgesetze der dielektrischen Verluste für die Grenzfälle tiefer ( $T \ll \Theta$ ) bzw. hoher Temperaturen ( $T > \Theta$ ) ab, die jedoch für komplexere Kristallsysteme bisher nur begrenzt experimentell überprüft werden konnten.

Ein Ziel dieser Arbeit wird es sein, die Gültigkeit der einfachen für Alkalihalogenidkristalle entwickelten Modelle in neuen Frequenz- und Temperaturbereichen zu überprüfen und diese Modelle schrittweise auf Kristalle komplexerer Struktur zu übertragen, um letztendlich das Absorptionsverhalten des Saphirs zu verstehen. Dazu wurden Messungen an den Alkalihalogeniden LiF, NaCl, KCl und KBr im Frequenzbereich von 15 bis 150 GHz und bei Temperaturen von 70 K bis 300 K durchgeführt, in Bereichen, in denen die dielektrischen Verluste bisher nicht bzw. nur lückenhaft und mit geringerer Genauigkeit gemessen wurden. Messungen an den Erdalkalifluoriden  $\text{CaF}_2$  und  $\text{BaF}_2$ , von denen im besagten Frequenz- und Temperaturbereich bisher keine Messungen bekannt sind, sollen zeigen, ob sich diese Modelle auf andere Kristallsysteme mit vergleichbaren Symmetrieeigenschaften übertragen lassen. Inwieweit sich diese Modelle auf Kristalle komplexerer Struktur verallgemeinern lassen, sollen

Messungen an  $\text{MgF}_2$  mit einer tetragonalen Kristallstruktur bzw. an den trigonalen Kristallen Saphir und Quarz zeigen.

Die Messungen wurden mit hemisphärischen offenen Resonatoren durchgeführt, die sich bei höheren Frequenzen gegenüber den Hohlraumresonatoren durch höhere Güten und damit bessere Meßgenauigkeiten auszeichnen. Der Frequenzbereich von 15 GHz bis 150 GHz konnte durch drei unterschiedliche Resonatoren abgedeckt werden, wobei die Temperatur nur in dem bei 145 GHz arbeitenden Resonator variierbar ist. Um die Auflösungsgrenze der Verlusttangens-Messungen zu minimieren waren insbesondere bei dem temperaturvariablen Meßsystem [7] umfangreiche systematischen Messungen durchzuführen.

Die Arbeit gliedert sich in den anschließenden Kapiteln folgendermaßen:

- Kapitel 2 erläutert die wesentlichen Punkte der klassischen und quantenmechanischen Theorien zu den intrinsischen IR-Eigenschaften, und deren Reduktion auf den angrenzenden Mikrowellen-Bereich.
- Kapitel 3 gibt einen groben Überblick über die Resonatortheorie und die Meßmethodik zur Bestimmung der dielektrischen Funktion mit hemisphärischen Resonatoren.
- Kapitel 4 beschreibt den experimentellen Aufbau, charakterisiert den untersuchten Probensatz und erläutert einführende Messungen, die Aufschluß geben über die Meßgenauigkeit.
- In Kapitel 5 sind die Messergebnisse dieser Arbeit zur Frequenz- und Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften zusammengefaßt
- Kapitel 6 vergleicht die Meßergebnisse mit Literaturwerten und mit theoretischen Modellrechnungen.
- Abschließend gibt Kapitel 7 eine Zusammenfassung der wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit.

## 2 Theorie zur Infrarot-Absorption in Ionenkristallen

### 2.1 Kenngrößen

Der Mikrowellenbereich liegt im Übergangsbereich zwischen dem IR-Bereich und dem RF-Bereich. Zur Beschreibung der Mikrowelleneigenschaften von Festkörpern werden in der Literatur deshalb sowohl die im Infraroten benutzten optischen Materialparameter als auch die im RF-Bereich üblichen dielektrischen Materialparameter herangezogen, wobei letztere für die in diese Arbeit benutzten Frequenzen  $\nu$  (15 GHz bis 150 GHz) am gängigsten sind.

Das Eindringen einer elektromagnetischen Welle in ein Dielektrikum ist immer mit einer Polarisation  $P$  des Materials durch das elektrische Feld  $E$  der Welle verbunden. Die Stärke und Richtung der Polarisation sind durch die dielektrische Suszeptibilität  $\chi^*_{\alpha\beta}$  bzw. die Dielektrizitätskonstante  $\epsilon^*_{\alpha\beta}$  gegeben.

$$P_{\alpha} = \epsilon_0 \chi^*_{\alpha\beta} E_{\beta} = \epsilon_0 (\epsilon^*_{\alpha\beta} - 1) E_{\beta} \quad (2.1)$$

( $\epsilon_0$  entspricht der elektrischen Feldkonstanten.) Diese Größen sind komplexe Tensoren 2-ter Stufe, was bedeutet, daß die Ausbreitungseigenschaften elektromagnetischer Wellen in Materie im allgemeinen anisotrop sind.

$$\epsilon^*_{\alpha\beta} = \epsilon'_{\alpha\beta} + i\epsilon''_{\alpha\beta} \quad (2.2)$$

$$\chi^*_{\alpha\beta} = \chi'_{\alpha\beta} + i\chi''_{\alpha\beta}$$

Aufgrund der Symmetrieeigenschaften der untersuchten Kristalle läßt sich die Zahl der unabhängigen Tensorparameter reduzieren. Für Kristalle mit einer mindestens dreizähligen Symmetrieachse existieren im diagonalisierten Tensor mindestens 2 gleiche Elemente. Für eine große Zahl von Kristallklassen ergeben sich so maximal zwei unabhängige Tensorparameter, die sich getrennt messen lassen, wenn man das elektrische Feld  $E$  senkrecht bzw. parallel zur Symmetrieachse mit der höchsten Symmetrie polarisiert. Man spricht dann von Messungen im ordentlichen bzw. außerordentlichen Strahl. Die Symmetrieachse wird auch als optische Achse bezeichnet. Diese Form der Anisotropie ist bei den trigonalen Kristallstrukturen des Saphirs bzw. des Quarzkristalls und bei der tetragonalen Struktur des  $MgF_2$ -Kristall zu finden. Betrachtet man nur eine der beiden Orientierungen, so wirkt der dielektrische Tensor (2.2) wie eine skalare Größe. Die übrigen untersuchten Kristalle besitzen eine kubische Struktur und die diagonalisierten Tensorparameter sind aufgrund der hohen Symmetrie alle gleich, d.h. ihre dielektrischen Eigenschaften sind isotrop und die Beziehung (2.1) läßt sich als skalare Gleichung formulieren.

$$P = \epsilon_0 (\epsilon^* - 1) E \quad (2.3)$$

Zwischen der dielektrischen Funktion  $\epsilon^*$  und dem komplexen Brechungsindex  $n^*$  besteht folgender Zusammenhang:

$$\epsilon' + i\epsilon'' = (n + i\kappa)^2.$$

Das elektrische Feld einer sich in Materie in x-Richtung ausbreitenden ebenen Welle mit der Kreisfrequenz  $\omega = 2\pi\nu$  hat die Form:

$$E = E_0 \exp [i(\frac{\omega}{c}(n + i\kappa)x - \omega t)] = E_0 \exp [i(knx - \omega t)] \exp(-k\kappa x). \quad (2.4)$$

Dabei entspricht  $c$  der Vakuum-Lichtgeschwindigkeit und  $k$  der Wellenzahl der elektromagnetischen Welle mit der Wellenlänge  $\lambda$  ( $k = 2\pi/\lambda$ ). Durch den Imaginärteil  $\kappa$  des komplexen Brechungsindex ist eine Dämpfung bzw. Absorption der Welle definiert, weshalb er auch als Absorptionskoeffizient bezeichnet wird. Eine weitere Größe zur Beschreibung der Absorptionseigenschaften, die auch später zur Diskussion der Meßergebnisse benutzt wird, ist der dielektrische Verlusttangens  $\tan\delta$ , der sich aus dem Verhältnis des Imaginärteils zum Realteil der Dielektrizitätskonstanten berechnet.

$$\tan \delta = \frac{\epsilon''}{\epsilon'} = \frac{2\kappa}{n} \quad \text{für } \kappa \ll n \quad (2.5)$$

Im folgenden werden die dielektrischen Eigenschaften mit Hilfe der dielektrischen Funktion  $\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon''$  diskutiert. Die optischen Größen Brechungsindex  $n$  und Absorptionskoeffizient  $\kappa$  werden im weiteren nicht mehr benutzt, um Verwechslungen mit später eingeführten Größen auszuschließen.

## 2.2 Photon-Phonon-Wechselwirkung in der harmonischen Näherung

Viele physikalische Eigenschaften von Kristallen, wie z.B. elastische oder thermische Eigenschaften, sind eng mit dem Spektrum der möglichen Eigenschwingungen eines Kristallgitters verknüpft. Auch die Ausbreitungseigenschaften elektromagnetischer Wellen im IR-Bereich sind durch die Wechselwirkung mit den Gitterschwingungen, die in der quantenmechanischen Nomenklatur als Phononen bezeichnet werden, zu erklären. Die Eigenschaften im mm-Wellen-Bereich sind im wesentlichen ebenfalls durch diese Wechselwirkung bestimmt. Man unterscheidet zwischen akustischen und optischen Gitterschwingungen. Während bei den ersteren die Atome der Einheitszelle in Phase schwingen, bewegen sie sich bei den optischen Schwingungen gegenphasig und bewirken eine wechselnde Polarisation  $P$  des Gitters, falls die Atome entgegengesetzt geladen bzw. polarisiert sind. Ausschließlich bei einer Ausbreitung in Richtung von Symmetrieachsen besitzen Phononen rein transversalen oder rein longitudinalen Charakter. Die Gesamtheit aller möglichen Schwingungsformen ist durch die Gitterbausteine und Symmetrieeigenschaften des Kristalls bestimmt. Sie läßt sich, wie in Abbildung 2.1 für LiF gezeigt, als Dispersionsrelation darstellen, die den Energie-Impuls-Zusammenhang der einzelnen Phononen in verschiedene Kristallrichtungen zeigt. Solche Darstellungen lassen sich mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung experimentell bestimmen. Die Polarisation des Gitters bei transversal optischen (TO) Schwingungen ermöglicht die Wechselwirkung mit elektromagnetischen Wellen (Photonen), die sich im Gitter

ausbreiten. Diese Polarisation und damit auch die Wechselwirkung sind bei Ionenkristallen besonders stark.

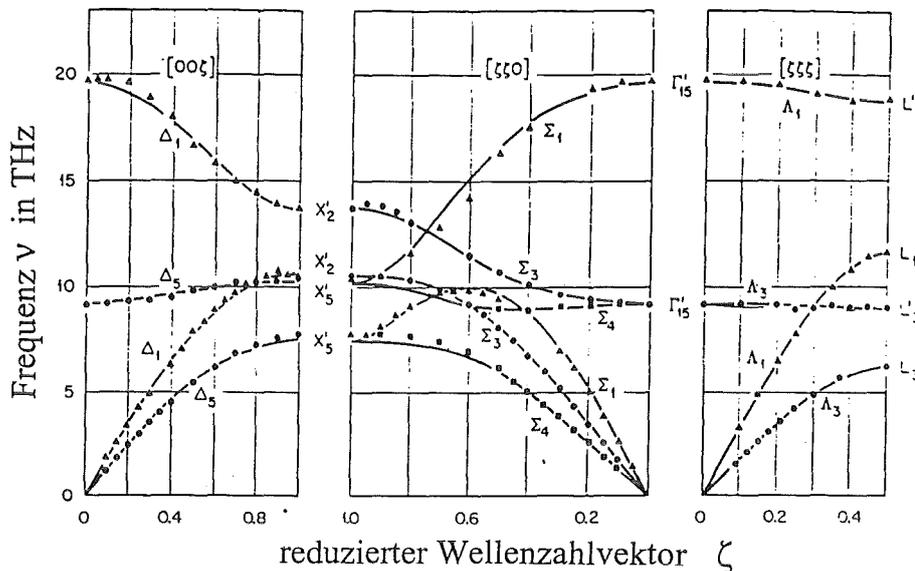


Abbildung 2.1 Dispersionsrelation für LiF [8] in drei Symmetrierichtungen (siehe Abbildung A.3) mit den Bezeichnungen nach Koster [9]

Eine erste theoretische Beschreibung der IR-Eigenschaften wurde für den einfachen Fall isotroper kubischer Ionenkristalle von Born und Huang [10] gegeben. Für den Grenzfall langwelliger Gitterschwingungen hängt die Polarisation  $\mathbf{P}$  (dick geschriebene Variablen bezeichnen im folgenden Vektoren) des Kristalls linear von einer normierten relativen Auslenkung  $\mathbf{w}$  der positiv und negativ geladenen Ionengitter und dem makroskopischen elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  ab.

$$\mathbf{P} = b_{21}\mathbf{w} + b_{22}\mathbf{E} \tag{2.6}$$

Der erste Term entspricht der durch die relative Verschiebung der Ionen induzierten Polarisation. Der zweite Term beschreibt die elektrische Polarisation aufgrund des makroskopischen Feldes. Der durch das elektrische Feld bewirkten Auslenkung  $\mathbf{w}$  der Ionen wirken die interatomaren Kräfte entgegen. Damit läßt sich die Bewegungsgleichung erzwungener Schwingungen eines harmonischen Oszillators formulieren.

$$\ddot{\mathbf{w}} = b_{11}\mathbf{w} + b_{12}\mathbf{E} \tag{2.7}$$

Aus diesen beiden Gleichungen (2.6) und (2.7) leiten Born und Huang mit der Definition der dielektrischen Verschiebung  $\mathbf{D}$

$$\mathbf{D} = \epsilon_0\mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon_0\epsilon^*\mathbf{E} \tag{2.8}$$

und dem harmonischen Ansatz ( $\mathbf{E}, \mathbf{P}, \mathbf{w} \sim \exp[i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)]$ ) einen Ausdruck für die dielektrische Funktion  $\epsilon^*$  ab, indem sie aus den Gleichungen (2.6) und (2.7) die relative Auslenkung  $\mathbf{w}$  der Untergitter eliminieren.

## 2.2 Photon-Phonon-Wechselwirkung in der harmonischen Näherung

---

$$\epsilon^* = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 - (v/v_{TO})^2} \quad (2.9)$$

mit  $v_{TO}^2 = -b_{11}$

$$\epsilon_\infty = \frac{b_{22}}{\epsilon_0} + 1$$

$$\epsilon_s - \epsilon_\infty = -\frac{b_{12}b_{21}}{\epsilon_0 b_{11}}$$

Dabei sind  $\epsilon_s$  und  $\epsilon_\infty$  die statische bzw. optische Dielektrizitätskonstante und  $v_{TO}$  die IR-Eigenfrequenz des Kristallgitters, bei der  $\epsilon^*$  eine Singularität aufweist.

Das lokale Feld  $\mathbf{E}$  und die Polarisation  $\mathbf{P}$  müssen den Maxwellgleichungen genügen, was zu zwei möglichen Lösungen führt. Diese Lösungen entsprechen einem Mischzustand aus einer elektromagnetischen Welle und einer Gitterschwingung, wobei die elektromagnetischen Felder entweder in Ausbreitungsrichtung polarisiert sein müssen oder senkrecht dazu. Die Frequenzen, bei denen diese Zustände auftreten, entsprechen der Frequenz  $v_{LO}$  der longitudinal optischen bzw. der Frequenz  $v_{TO}$  der transversal optischen Gitterschwingung. Diese Mischzustände lassen sich als neue Quantenzustände auffassen, die als Polaritonen bezeichnet werden und deren Energie-Impuls-Zusammenhang aus den Maxwellgleichungen resultiert (siehe Abbildung 2.2)

$$\frac{k^2 c^2}{(2\pi v)^2} = \epsilon_\infty + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)}{1 - (v/v_{TO})^2} \quad (2.10)$$

Die Frequenz  $v_{LO}$  der longitudinal optischen Gitterschwingung, die genau dann eintritt, wenn die dielektrische Funktion (2.9) gleich null wird, ist über die Lyddane-Sachs-Teller Beziehung [11] mit der Frequenz  $v_{TO}$  der transversal optischen Gitterschwingung verknüpft:

$$\frac{v_{LO}^2}{v_{TO}^2} = \frac{\epsilon_s}{\epsilon_\infty} \quad (2.11)$$

Für die Polaritonen existieren zwei Dispersionszweige, die durch eine Lücke zwischen  $v_{LO}$  und  $v_{TO}$  voneinander getrennt sind, in der es keine reelle Lösung der Gleichung (2.10) gibt. Der Verlauf der Dispersionszweige ist durch die starke Kopplung der elektromagnetischen Wellen (Photonen) mit den Gitterschwingungen (Phononen) bedingt. Die Polaritonen besitzen bei kleinen  $k$ -Werten im oberen Zweig bzw. großen  $k$ -Werten im unteren Zweig einen phononen-ähnlichen Charakter. In den anderen Bereichen ist deren Charakter eher photonenähnlich und kann durch die Photonendispersionsrelation angenähert werden (gestrichelte Linie). Die Übergangsbereiche sind Stellen starker Wechselwirkung zwischen Photon und Phonon, die sich bei Ionenkristallen in einer starken Veränderung der dielektrischen Eigenschaften im IR-Bereich äußert.

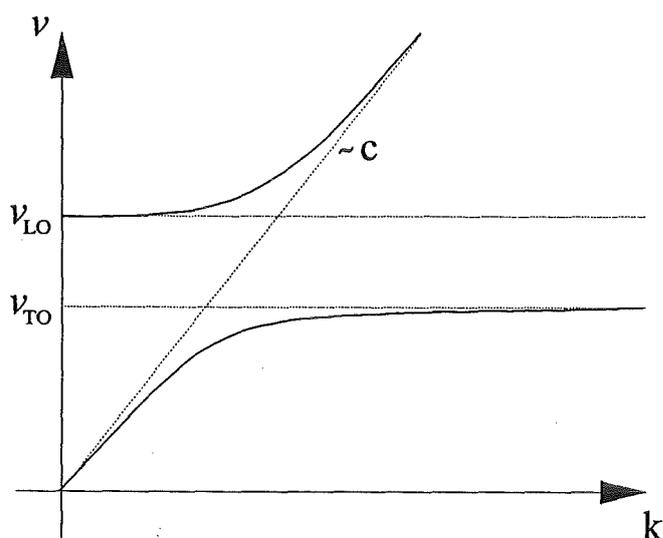


Abbildung 2.2 Dispersionsrelation für Polaritonen

Eine typische Meßgröße ist der Reflexionskoeffizient  $R$ , der folgendermaßen von der Dielektrizitätskonstanten abhängt.

$$R = \left| \frac{\sqrt{\epsilon^*} - 1}{\sqrt{\epsilon^*} + 1} \right|^2 \quad (2.12)$$

Aus Gleichung (2.9) und (2.11) ist ersichtlich, daß  $\epsilon^*$  zwischen  $\nu_{TO}$  und  $\nu_{LO}$  negativ ist, was zu einem Reflexionskoeffizienten von 1 führt. Die gemessenen Reflexionskoeffizienten sind jedoch nie exakt 1 (siehe Abbildung 2.3), vielmehr dringt immer ein Teil der elektromagnetischen Welle in das Dielektrikum ein, wo sie dann stark absorbiert wird.

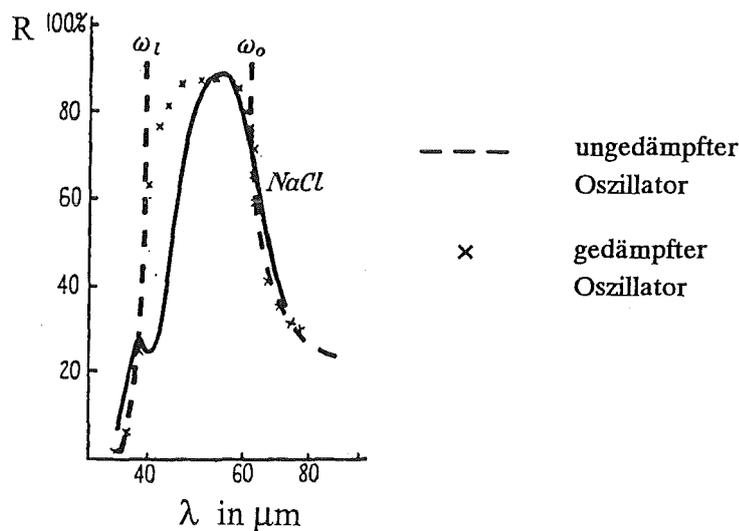


Abbildung 2.3 Gemessener und berechneter Reflexionskoeffizient für NaCl [10]

## 2.3 Der Einfluß von Anharmonizitäten auf die Photon-Phonon-Wechselwirkung

### 2.3.1 Klassische Beschreibung

Die bisher erläuterte Theorie enthält keine dissipativen Elemente, die das Phänomen der Absorption erklären könnten. Aufgrund der Linearität der Gleichungen (2.6) und (2.7) ist eine Wechselwirkung der Gitterschwingungen untereinander ausgeschlossen. In Wirklichkeit sind sie jedoch über Terme höherer Ordnung, die hier vernachlässigt wurden, miteinander gekoppelt. Diese Kopplung ermöglicht den Zerfall der angeregten, transversal optischen Phononen in weitere Phononen, was eine Energiedissipation ermöglicht. Die exakte Berechnung dieser Energiedissipation ist sehr komplex, denn dazu müssen die erwähnten nichtlinearen Terme in den Gleichungen (2.6) und (2.7) eingeführt werden und die Gesamtheit aller möglichen Phononen-Zerfallsprozesse muß bekannt sein. Zur phänomenologischen Beschreibung experimenteller Daten in der Umgebung der Frequenz  $\nu_{TO}$  hat sich jedoch das klassische Modell des gedämpften harmonischen Oszillators bewährt. Dieses erhält man durch Einführen eines einfachen Dämpfungsterms  $-\alpha\dot{w}$  in Gleichung (2.7).

$$\ddot{w} = b_{11}w - \alpha\dot{w} + b_{12}E \quad (2.13)$$

Mit dem harmonischen Ansatz ergibt sich als Lösung dieser Bewegungsgleichungen eine komplexe dielektrische Funktion  $\epsilon^*$  der Form:

$$\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon'' = \epsilon_\infty + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)\nu_{TO}^2}{\nu_{TO}^2 - \nu^2 + i\nu\alpha} \quad (2.14)$$

Mit dem Imaginärteil  $\epsilon''$  sind nun dielektrische Verluste definiert. Durch eine Anpassung der dielektrischen Funktion (2.14) an experimentelle Daten läßt sich eine Dämpfungskonstante bestimmen, mit der die errechneten Reflexionsspektren deutlich besser mit den gemessenen übereinstimmen (siehe Abbildung 2.3). Um die in IR-Spektren beobachtete Feinstruktur zu erfassen, bedient man sich der Superposition mehrerer Dispersionsoszillatoren der Form von Gleichung (2.14).

$$\epsilon^* = \epsilon_\infty + \sum_j \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)_j \nu_j^2}{\nu_j^2 - \nu^2 + i\nu\alpha_j} \quad (2.15)$$

### 2.3.2 Quantenmechanische Beschreibung

#### 2.3.2.1 Mehr-Phononen-Prozesse

Die in Kapitel 2.3.1 beschriebene klassische Theorie, die auf der harmonischen Näherung der Gitterschwingungen basiert, eignet sich zur phänomenologischen Beschreibung experimenteller Daten. Dies führt aber nur in unmittelbarer Nähe der IR-Resonanz  $\nu_{TO}$  zu zufriedenstellenden Ergebnissen [12]. Außerdem gibt diese Theorie keine Informationen über die

### 2.3 Der Einfluß von Anharmonizitäten auf die Photon-Phonon-Wechselwirkung

Ursachen der beobachteten Feinstrukturen und deren Temperaturabhängigkeit, d.h. sie trägt nichts zum genaueren physikalischen Verständnis bei. Wie bereits erwähnt treten die einzelnen Phononen aufgrund anharmonischer Terme im Gitterpotential miteinander in Wechselwirkung. Die Stärke und die Form solcher Wechselwirkungsprozesse hängt in entscheidender Weise von der Form des Gitterpotentials bzw. der interatomaren Kräfte und außerdem von den möglichen Eigenschwingungen des Kristalls ab.

Um solche Phononen-Wechselwirkungsprozesse und die daraus resultierende Dämpfungskonstante theoretisch beschreiben zu können, müssen die interatomaren Kräfte im Kristallgitter ausreichend bekannt sein. Das verbreitetste Modell zur Beschreibung der Gitterpotentiale in Ionenkristallen ist ein Modell von Born und Huang, welches die Ionen als starre Kugeln betrachtet. Das Wechselwirkungspotential der Ionen setzt sich zusammen aus dem anziehenden Coulombpotential großer Reichweite und aus einem abstoßenden Potential kurzer Reichweite, welches aus dem Überlapp der Kugelschalen resultiert. Ein durch Ergebnisse quantenmechanischer Rechnungen favorisiertes Überlapp-Potential ist das Born-Mayer-Potential. Es gilt:

$$\phi(r) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\alpha'(Ze)^2}{r} + M\Lambda \exp\left(-\frac{r}{\rho}\right). \quad (2.16)$$

Die Konstante  $\alpha'$  im Coulombpotential entspricht der Madelungkonstante und  $Z$  der kleinsten Ladungszahl der enthaltenen Ionen. Die Größe  $r$  steht für den Abstand nächster Nachbarn und  $M$  für die Koordinationszahl. Die Wirkungslänge  $\rho$  und die Größe  $\Lambda$  ergeben sich aus der Gleichgewichtsbedingung  $d\phi/dr(r_0)=0$ , wobei  $r_0$  Abstand nächster Nachbarn im Gleichgewicht entspricht, und aus dem funktionalen Zusammenhang zwischen der Kompressibilität  $\beta$  und der Potentialfunktion ( $1/\beta = -V dp/dV$  mit  $p = -d\phi/dV$ ). Es gilt:

$$\rho = \frac{r_0 \beta \alpha' (Ze)^2}{2\beta \alpha' (Ze)^2 + 72\pi\epsilon_0 r_0^4} \quad (2.17)$$

$$\Lambda = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\alpha' (Ze)^2 \rho}{M r_0^2} \exp\left(\frac{r_0}{\rho}\right).$$

Aus der Temperaturabhängigkeit von  $\beta$  und  $r_0$  folgt unmittelbar die Temperaturabhängigkeit des Gitterpotentials und aller damit zusammenhängenden physikalischen Eigenschaften.

Viele Anstrengungen wurden unternommen, den Einfluß von Anharmonizitäten auf das dynamische Verhalten von Kristallgittern störungstheoretisch zu berechnen. Die erste detaillierte Beschreibung dieses Problems, die von späteren Autoren [13-17] wieder aufgegriffen und verfeinert wurde, veröffentlichten Born und Huang. Cowley [18,19] erweiterte die Anwendung thermodynamischer Greens'scher Funktionen, die ursprünglich zur Beschreibung von Vielkörperproblemen benutzt wurde, auf das Problem der Gitterdynamik. Er kommt damit zu Ergebnissen, die mit denen der klassischen Störungstheorie vergleichbar sind.

### 2.3 Der Einfluß von Anharmonizitäten auf die Photon-Phonon-Wechselwirkung

Ausgangspunkt aller störungstheoretischen Rechnungen sind die anharmonischen Terme im Hamiltonoperator  $H_A$ , die sich in eine Potenzreihe der Normalkoordinaten  $A(kj)$  für die harmonischen Lösungen entwickeln lassen.

$$H_A = \sum_{kj} \sum_{k_1j_1} \sum_{k_2j_2} V(kj, k_1j_1, k_2j_2) A(kj) A(k_1j_1) A(k_2j_2) + \dots \quad (2.18)$$

Da der Einfluß anharmonischer Terme auf die Gitterdynamik mit zunehmender Ordnung vernachlässigbar ist [20], beschränkt sich Gleichung (2.18) auf Terme 3-ter Ordnung. Die Normalkoordinaten ergeben sich aus der Summe der Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren:

$$A(kj) = a^+(kj) + a(kj) \quad (2.19)$$

Die Größen  $k$  und  $j$ , über die summiert wird, entsprechen der Wellenzahl der Eigenschwingung des  $j$ -ten Phononenzweiges. Die Entwicklungskoeffizienten  $V(kj, k_1j_1, k_2j_2)$  im Hamiltonoperator, welche die Stärke der Wechselwirkungsprozesse dreier Phononen der Frequenzen  $\nu(kj)$ ,  $\nu(k_1j_1)$  und  $\nu(k_2j_2)$  charakterisieren, lassen sich als die Fouriertransformierten der kubischen Koeffizienten des Gitterpotentials auffassen [21].

Diese Phonon-Phonon-Wechselwirkung führt zu quasiharmonischen Eigenfrequenzen  $\nu'(kj)$ , die gegenüber den harmonischen Frequenzen  $\nu(kj)$  leicht verschoben und gedämpft sind.

$$\nu'(kj)^2 = \nu(kj)^2 + 2\nu(kj)[\Delta(kj, \nu, T) - i\Gamma(kj, \nu, T)] \quad (2.20)$$

Der Realteil dieser komplexen Frequenzen  $\nu'(kj)$  ist identisch mit den Frequenzen, die in Resonanzexperimenten zu messen sind, während der Imaginärteil gerade der Dämpfung der gemessenen Resonanzen entspricht. Die Störungsrechnung führt zu folgenden Beziehungen [19]:

$$\Delta(kj, \nu, T) = -\frac{18}{h^2} \sum_{k_1j_1} \sum_{k_2j_2} |V(kj, k_1j_1, k_2j_2)|^2 \quad (2.21)$$

$$\left\{ \frac{n_1+n_2+1}{(\nu_1+\nu_2+\nu)_p} + \frac{n_1+n_2+1}{(\nu_1+\nu_2-\nu)_p} + \frac{n_1-n_2}{(\nu_1-\nu_2+\nu)_p} + \frac{n_1-n_2}{(\nu_1-\nu_2-\nu)_p} \right\}$$

$$\Gamma(kj, \nu, T) = \frac{18\pi}{h^2} \sum_{k_1j_1} \sum_{k_2j_2} |V(kj, k_1j_1, k_2j_2)|^2 \quad (2.22)$$

$$\{ (n_1 + n_2 + 1)[\delta(\nu_1 + \nu_2 + \nu) - \delta(\nu_1 + \nu_2 - \nu)]$$

$$+ (n_1 - n_2) [\delta(\nu_1 - \nu_2 + \nu) - \delta(\nu_1 - \nu_2 - \nu)] \}$$

(Die Variablen  $k_1j_1$  und  $k_2j_2$  wurden wegen der Übersichtlichkeit durch die Indizes 1 und 2 ersetzt). Die Frequenzverschiebung  $\Delta(kj, \nu, T)$  und die Dämpfung  $\Gamma(kj, \nu, T)$  hängen demnach von drei Faktoren ab: Zum einen von dem Koeffizienten  $|V(kj, k_1j_1, k_2j_2)|^2$ , der die Zerfallswahrscheinlichkeit des Phonons der Frequenz  $\nu$  über einen 2-Phononen-Prozeß mit den

### 2.3 Der Einfluß von Anharmonizitäten auf die Photon-Phonon-Wechselwirkung

Phononen der Frequenzen  $\nu_1$  und  $\nu_2$  wiedergibt, zu zweit von den Besetzungszahlen  $n_i$ , die sich im thermischen Gleichgewicht nach der Bosestatistik berechnen lassen,

$$n_i = \left( \exp\left(\frac{h\nu_i}{k_B T}\right) - 1 \right)^{-1} \quad (2.23)$$

und schließlich von den Funktionen  $1/(x)_p$  und  $\delta(x)$ , welche die Energieerhaltung für solche Zerfallsprozesse fordern.

Diese anharmonischen Beiträge zur Gitterdynamik sind dann groß, wenn Zerfallsprozesse existieren, die den Energiesatz erfüllen - d.h. wenn die Argumente der  $\delta$ -Funktionen bzw. die Frequenzterme im Nenner von  $\Delta(k_j, \nu, T)$  verschwinden - und gleichzeitig die Besetzungszahlen  $n_1 - n_2$  bzw.  $n_1 + n_2 + 1$  groß sind oder anders ausgedrückt, wenn eine starke Wechselwirkung des Phonons der Frequenz  $\nu$  mit zwei anderen Phononen (2-Phononen-Prozesse) besteht. Dabei gibt es vier unterschiedliche 2-Phononen-Prozesse, die durch die Terme in den geschweiften Klammern beschrieben werden.

Die beiden ersten Terme stehen für Summationsprozesse, bei denen das Phonon der Frequenz  $\nu$  in zwei andere zerfällt oder umgekehrt durch den Zerfall zweier Phononen erzeugt wird. Die beiden letzten Terme beschreiben Differenzprozesse, in denen das Phonon der Frequenz  $\nu$  zusammen mit einem zweiten zerfällt, um ein drittes zu erzeugen bzw. umgekehrt durch den Zerfall eines Phonons zusammen mit einem anderen erzeugt wird. Diese Prozesse lassen sich wie in Abbildung 2.4 mit Hilfe von Feynmandiagrammen veranschaulichen.

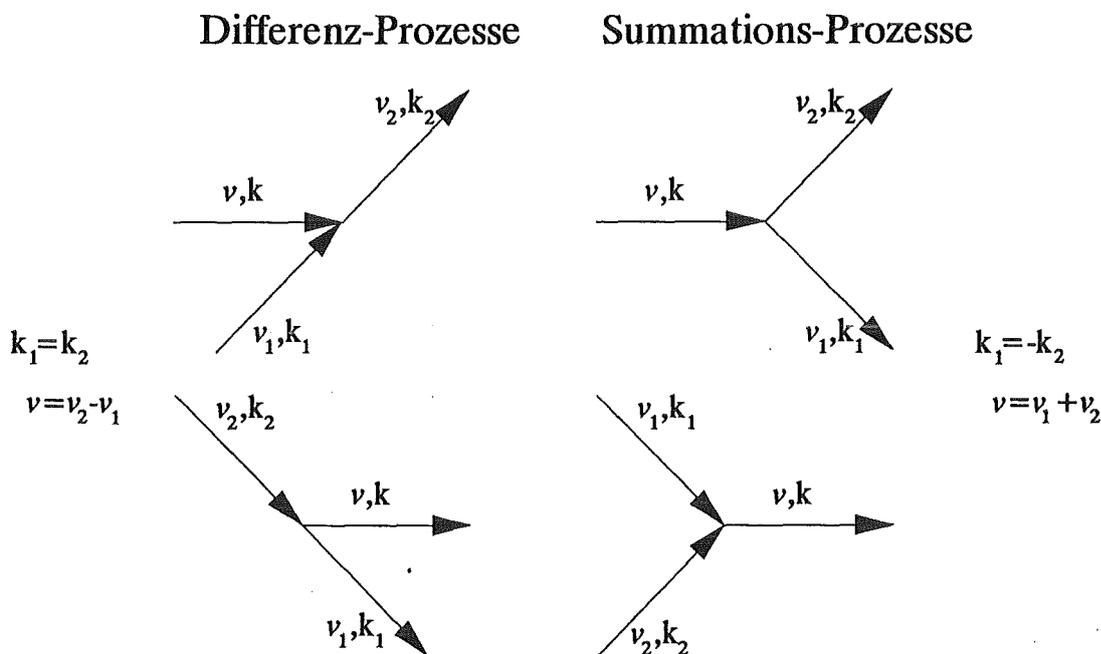


Abbildung 2.4 Feynmandiagramme der möglichen 2-Phononen-Prozesse

Nach der Heisenbergschen Unschärferelation läßt sich diese Dämpfung  $\Gamma(k_j, \nu, T)$  auch als eine Energieunschärfe verstehen, die aus der - durch die Zerfallsprozesse bedingte - endlichen Lebensdauer resultiert.

### 2.3.2.2 Die quantenmechanische dielektrische Funktion

Mit der in Kapitel 2.3.2.1 erläuterten Energieunschärfe ist es nun möglich, kurzfristig IR-aktive Phononen mit Photonen anzuregen, deren Energie deutlich größer ( $\nu \gg \nu(0j)$ ) oder kleiner ( $\nu \ll \nu(0j)$ ) ist, als die der optischen Phononen, falls diese gleich wieder über die beschriebenen 2-Phononen-Prozesse zerfallen. D.h. der Energiesatz kann kurzfristig verletzt sein, weshalb bei den kurzzeitig angeregten optischen Phononen oft von virtuellen Phononen die Rede ist. Man erhält zwar nach wie vor eine starke Absorption in der Nähe der IR-aktiven optischen Phononen, durch die anharmonischen Effekte ergibt sich jedoch eine zusätzliche Feinstruktur in den angrenzenden Frequenzbereichen.

Aufgrund des Energieerhaltungssatzes (2.24) dominieren bei Frequenzen unterhalb der Frequenz der langwelligen optischen Phononen ( $\nu \ll \nu(0j)$ ) die 2-Phononen-Differenzprozesse und oberhalb dieser Frequenz ( $\nu \gg \nu(0j)$ ) die 2-Phononen-Summutationsprozesse. Da zwei Phononen an diesen Streuprozessen beteiligt sind, bleibt die Absorption nicht, wie in harmonischer Näherung, auf langwellige Phononen ( $k=0$ ) beschränkt, d.h. zum genauen Verständnis der Absorptionsmechanismen ist die Information aus dem gesamten Phononenspektrum zu berücksichtigen.

	Energiesatz	Impulssatz	
2-Phononen-Differenzprozeß:	$\nu = \nu_1 - \nu_2$	$k_1 = k_2$	(2.24)
2-Phononen-Summutationsprozeß:	$\nu = \nu_1 + \nu_2$	$k_1 = -k_2$	

Erlaubt man im Gitterpotential bzw. im Hamiltonoperator anharmonische Terme höherer Ordnung, läßt sich damit eine zusätzliche Absorption über Mehr-Phononen-Prozesse erklären. So sind durch Terme  $m$ -ter Ordnung ( $m-1$ )-Phononen-Prozesse erlaubt. Existieren Kombinationsschwingungen des Kristallgitters mit elektrischen Quadrupolmomenten oder Momenten höherer Ordnung, so können Photonen auch direkt, ohne den Umweg über ein virtuelles Phonon, an diese Kombinationsschwingungen ankoppeln (siehe Abbildung 2.5).

Die störungstheoretische Beschreibung solcher höheren anharmonischen Effekte wird mit zunehmender Ordnung komplexer und die Ergebnisse ungenauer, da die entsprechenden Terme im Gitterpotential und die elektrischen Momente der Kombinationsschwingungen im allgemeinen nicht genau bekannt sind. Mit zunehmender Ordnung nimmt jedoch der Einfluß solcher Prozesse auf die dielektrische Funktion stark ab.

Die meisten Arbeiten, die sich mit der theoretischen Beschreibung der IR-Eigenschaften von Kristallen beschäftigen, beschränken sich deshalb in ihren Rechnungen auf Terme, die ausschließlich Dipolmomente bis zur 1-ten Ordnung bzw. Terme im Hamiltonian bis zur 3-ten und vereinzelt bis zur 4-ten Ordnung benötigen. Dies gilt auch für die Arbeiten von Eldrige et al [22-24] und Bell et al [25,26]. Die gute Übereinstimmung ihrer theoretischen Vorhersagen mit gemessenen IR-Spektren an Alkalihalogeniden zeigen deutlich, daß der Einfluß höherer anharmonischer Terme keine große Rolle spielt. Die Übereinstimmung ist im Bereich

des Reststrahlenpeaks deutlich besser als in den angrenzenden Bereichen, insbesondere zu tieferen Frequenzen, wo die Abweichungen teilweise eine Größenordnung übersteigen. Dies liegt zum einen daran, daß die Theorien den IR-Eigenschaften angepaßt sind und zum anderen daran, daß im Mikrowellenbereich nur wenige Daten zur Verfügung stehen, anhand derer die Theorien getestet werden könnten. Die folgenden theoretischen Überlegungen beschränken sich aufgrund dessen auf Beiträge, die durch die kubischen Terme im Gitterpotential definiert sind.

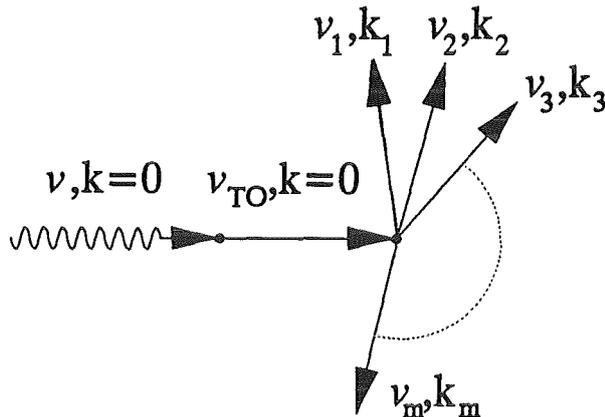


Abbildung 2.5a  $m$ -Phononen-Prozess aufgrund des Gitterpotentials  $(m+1)$ -ter Ordnung

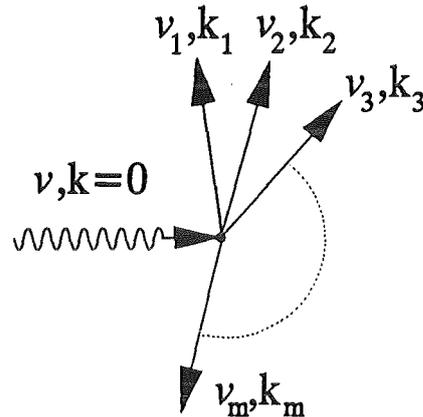


Abbildung 2.5b  $m$ -Phononen-Prozess aufgrund des elektrischen Moments  $m$ -ter Ordnung

Aus Gleichung (2.22) ist ersichtlich, daß die Dämpfung des virtuellen, optischen Phonons keinesfalls, wie im klassischen Modell (2.15) angenommen, frequenz- und temperaturunabhängig ist. Die dielektrische Funktion, die aus den quantenmechanischen Rechnungen resultiert, läßt sich auf folgende halbquantenmechanische Funktion reduzieren [27]:

$$\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon'' = \epsilon_\infty + \sum_j \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)_j v^2(0j)}{v^2(0j) - v^2 + i2v(0j)\Gamma(0j, \nu, T)} \quad (2.25)$$

Dabei entspricht  $\Gamma(0j, \nu, T)$  der Dämpfung der langwelligen, IR-aktiven optischen Phononen ( $k \approx 0$ ), die sich nach Gleichung (2.22) berechnet. Mit den Identitäten

$$2v(0j)\Gamma(0j, \nu, T) = \nu\alpha_j \quad (2.26)$$

$$v(0j) = v_j$$

läßt sich Gleichung (2.25) in den klassischen Algorithmus (2.15) überführen, der zwar in gewissem Maße einer Frequenzabhängigkeit, nicht aber der Temperaturabhängigkeit des Dämpfungstermes im Nenner Rechnung trägt. Da sich diese Arbeit nicht nur mit der Frequenz- sondern auch mit der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften beschäftigt, wird im folgenden die halbquantenmechanische Theorie (2.25) benutzt

## 2.4 Einfache Theorie zur mm-Wellen-Absorption in Alkalihalogeniden

Aufgrund der hohen Symmetrie der kubischen Alkalihalogenide läßt sich die dielektrische Funktion (2.25) deutlich vereinfachen. Da in diesen Kristallen nur ein einzelner IR-aktiver Phononenzweig ( $v_j=v_{TO}$ ) existiert, fällt die Summation in Gleichung (2.25) weg. Mit Gleichung (2.5) läßt sich daraus eine Beziehung für den dielektrischen Verlusttangens  $\tan\delta$  ableiten, für den gilt:

$$\tan \delta = \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{\epsilon_s} \frac{2v_{TO}^3 \Gamma(0, TO, v, T)}{\left(v_{TO}^2 - \epsilon_\infty v^2 / \epsilon_s\right) \left(v_{TO}^2 - v^2\right) + 4v_{TO}^2 \Gamma^2(0, TO, v, T) \epsilon_\infty / \epsilon_s} \quad (2.27)$$

Im mm-Wellen-Bereich, der weit unterhalb der optischen Frequenzen liegt ( $v \ll v_{TO}$ ), kann man Gleichung (2.27) durch folgende einfache Beziehung annähern [5]:

$$\tan \delta = \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{\epsilon_s} \frac{2\Gamma(0, TO, v, T)}{v_{TO}} \quad (2.28)$$

(Die Dämpfung  $\Gamma(0, TO, v, T)$  entspricht hier dem doppelten Wert der entsprechenden Dämpfung in der Arbeit von Sparks et al [5].) Da, wie bereits erwähnt, die Absorption in diesem Frequenzbereich alleine durch Differenzprozesse bestimmt wird, reduziert sich die quantenmechanische Dämpfungsfunktion (2.22) auf den Ausdruck:

$$\Gamma(0, TO, v, T) = -\frac{18\pi}{h^2} \sum_{k_1 j_1} \sum_{k_2 j_2} |V(0, TO, k_{j_1}, k_{j_2})|^2 (n_1 - n_2) \delta(v_1 - v_2 - v) \quad (2.29)$$

Die Dämpfung und damit nach Gleichung (2.28) auch die Verluste, sind dann groß, wenn die kombinierte Besetzungszahl  $n_1 - n_2$  der am Differenzprozeß beteiligten Phononen bzw. die 2-Phononen-Zustandsdichte groß ist und gleichzeitig das Argument in der  $\delta$ -Funktion verschwindet. Hohe 2-Phononen-Zustandsdichten treten in der Dispersionsrelation an Stellen auf, wo die Phononenzweige parallel verlaufen. Solche Stellen liegen bevorzugt in den Symmetriepunkten im Zentrum bzw. auf dem Rand der 1. Brillouin-Zone in Richtungen hoher Symmetrie. In diesen Symmetriepunkten nehmen die Phononenzweige in der Regel Extremwerte an, d.h. der Gradient des Energie-Impuls-Zusammenhangs wird null ( $\text{grad}_k v(k)=0$ ).

Dabei ist bekannt, daß die Übergangskoeffizienten zwischen den Phononenzweigen hoch sind, die gleiche Symmetrieeigenschaften besitzen und wie die Photonen transversal polarisiert sind. Angewendet auf LiF (siehe Abbildung 2.1) bedeutet dies Übergänge in den Symmetrierichtungen [111], [110] und [001] zwischen den transversal akustischen und transversal optischen Phononenzweigen, die in der Darstellung nach Koster [9] mit  $\Lambda_3$ ,  $\Sigma_4$  und  $\Delta_5$  bezeichnet werden. Für kleine Frequenzen sind diese Prozesse an den Stellen mit den geringsten Frequenzabständen am stärksten, die überwiegend am Brillouinonenrand liegen. Diese Übergänge sind in allen Richtungen sehr ähnlich, was aus der hohen Symmetrie der Alkalihalogenide resultiert. Zur Berechnung der Dämpfung nach Gleichung (2.29) erscheint es deshalb legitim, sich auf eine Symmetrierichtung zu beschränken, für die Sparks et al die [111]-Richtung, d.h. die Richtung höchster Symmetrie wählen [5].

Bei Frequenzen, die dem Abstand dieser beiden Phononenzweige entsprechen, muß deshalb eine merkliche Absorption zu messen sein. Die Frequenzen im mm-Wellen-Bereich, bei denen in dieser Arbeit Messungen durchgeführt wurden, liegen in der Regel unterhalb einer kritischen Frequenz  $\nu_c$ , die dem kleinsten Abstand entspricht. Eine Absorption läßt sich aus Gründen der Energieerhaltung mit Gleichung (2.29) nicht mehr durch 2-Phononen-Differenzprozesse erklärt. Eine dennoch beobachtet Absorption in diesem Frequenzbereich wird deshalb gerne Phononen-Prozessen höherer Ordnung - und zwar 3-Phononen-Prozessen - zugeschrieben [4].

Subbaswamy und Mills [28] machen die berechnete Annahme, daß auch die an den Differenzprozessen beteiligten Phononen gedämpft sind, denn nach Gleichung (2.22) beschränkt sich der Einfluß der Anharmonizitäten nicht nur auf die langwelligen, transversal optischen Phononen. Diese Dämpfung läßt sich ausdrücken, indem man die  $\delta$ -Funktion in Gleichung (2.29) durch eine Lorentzfunktion ersetzt.

$$\delta(\nu_1 - \nu_2 - \nu) \Rightarrow L(\nu_1 - \nu_2 - \nu) = \frac{1}{\pi h} \frac{\gamma}{(\nu_1 - \nu_2 - \nu)^2 + \gamma^2} \quad (2.30)$$

Die Größe  $\gamma$  entspricht dabei einer kombinierten Dämpfung bzw. Energieunschärfe der beiden beteiligten Phononen ( $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$ ). Dadurch sind auch für Frequenzen unterhalb der kritischen Frequenz  $\nu_c$ , die dem kleinsten Abstand der Phononenzweige entspricht, Differenzprozesse erlaubt.

Mit diesem theoretischen Ansatz erreichen Subbaswamy und Mills, unter Einbeziehung der Information aus der Phononendispersionsrelation für Alkalihalogenide, eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen.

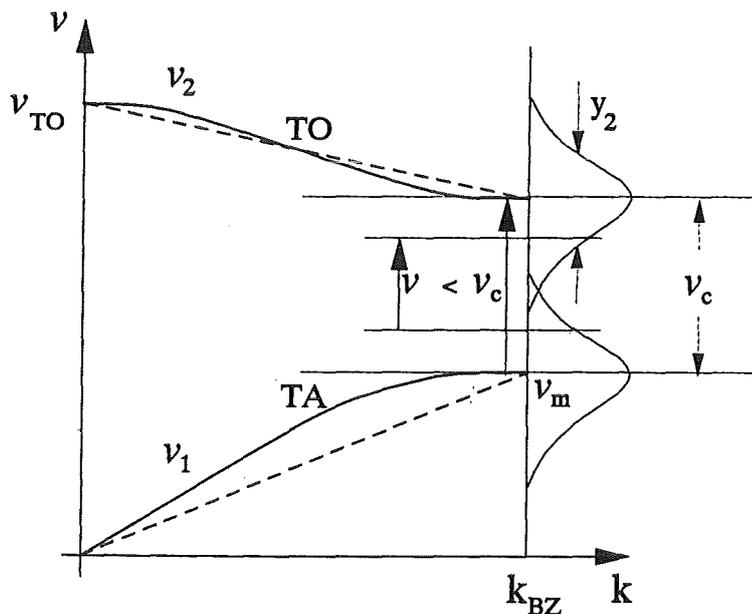


Abbildung 2.6 Schematische Darstellung der Verbreiterung der TA und TO Phononen und Annäherung der Phononenzweige durch Geraden.

Sparks et al [5] betrachten die relevanten Phononenzweige wie in Abbildung 2.6 näherungsweise als Geraden, die sich durch die charakteristischen Frequenzen  $\nu_{TO}$  des langwelligen ( $k \approx 0$ ) transversal optischen Phonons,  $\nu_m$  des transversal akustischen Phonons am Rand der 1. Brillouinzone und die kritische Frequenz  $\nu_c$ , die dem kleinsten Frequenzabstand der beiden Phononenzweige entspricht, definiert sind. Damit sind sie in der Lage, die numerisch zu berechnende Doppelsumme in Gleichung (2.29) durch eine einfache Integration zu ersetzen. Der Phononenimpuls  $k_0$  ( $k_0 = k_1 = k_2$ ) bei einem energieerhaltenden Differenzprozeß hängt in dieser Näherung für Übergangsfrequenzen, die größer als die kritische Frequenz sind ( $\nu = \nu_1 - \nu_2 > \nu_c$ ), linear von der Frequenz ab.

$$k_0 = \begin{cases} k_{BZ} \frac{\nu_{TO} - \nu}{\nu_{TO} - \nu_c} & \text{für } \nu > \nu_c \\ k_{BZ} & \text{für } \nu < \nu_c \end{cases}$$

Damit läßt sich in Gleichung (2.29) die Integration über den Impulsraum in eine Integration über den Frequenzraum transformieren:

$$\Gamma(0, TO, \nu, T) = \int_{\nu_c}^{\nu_{TO}} d(\nu_1 - \nu_2) \frac{k_{BZ}}{\nu_{TO} - \nu_c} g(k, \nu) L(\nu_1 - \nu_2 - \nu) \quad (2.31)$$

$$\text{mit } g(k, \nu) = \frac{18N_B V_S}{\pi \hbar} k^2 |V(0, TO, k_{j_1}, k_{j_2})|^2 (n_1 - n_2) .$$

Dabei entspricht  $N_B$  der Anzahl der Phononenzweig-Paare in denen Differenzprozesse ablaufen und  $V_S$  dem Probenvolumen.

Für Frequenzen im Mikro- und mm-Wellen-Bereich ( $\nu < \nu_c$ ) ersetzen Sparks et al die Funktion  $g(k, \nu)$  durch einen Mittelwert, wodurch sie sich vor das Integral ziehen läßt. Mit dieser Näherung geben die Autoren eine explizite Gleichung für die Dämpfungskonstante  $\Gamma(0, TO, \nu, T)$  an, deren Funktionswerte selbst für die angrenzenden Frequenzen oberhalb von  $\nu_c$  von der exakten Lösung maximal um einen Faktor 1.5 abweichen. Sie lautet:

$$\Gamma(0, TO, \nu) = 1.5 g(k_0, \nu) \frac{k_{BZ}}{\nu_{TO} - \nu_c} \int_{\nu_c}^{\nu_{TO}} d(\nu_1 - \nu_2) L(\nu_1 - \nu_2 - \nu) \quad (2.32)$$

$$= \frac{2}{\pi} \Gamma_0 \left[ \arctan \left( \frac{\nu_{TO} - \nu}{\gamma} \right) - \arctan \left( \frac{\nu_c - \nu}{\gamma} \right) \right]$$

$$\text{mit } \Gamma_0 = \Gamma_\infty (n_1 - n_2) \left( \frac{k_0}{k_{BZ}} \right)^2 \left( \frac{\nu_m^3}{\nu_1 \nu_2 (\nu_{TO} - \nu_c)} \right) \sin^2 \left( \frac{\pi k_0}{2k_{BZ}} \right)$$

$$\Gamma_\infty = \frac{\pi N_B \hbar \phi_3^2}{12 m_r m_+ m - 2 \pi \nu_{TO} (2 \pi \nu_m)^3} .$$

## 2.4 Einfache Theorie zur mm-Wellen-Absorption in Alkalihalogeniden

---

Dabei sind  $m_+$ ,  $m_-$  die Massen der Kationen bzw. Anionen und  $m_r$  deren reduzierte Masse ( $m_r = m_+ m_- / (m_+ + m_-)$ ).  $\phi_3$  entspricht dem kubischen Koeffizienten des Wechselwirkungspotentials nächster Nachbarn.

Sparks et al gelingt es in überzeugender Weise, mit dieser einfachen, geschlossenen Formel die Frequenz- und Temperaturabhängigkeit der an LiF, NaCl, KBr und KJ gemessenen Absorptionskoeffizienten zu beschreiben, die vereinzelt Bereiche der betrachteten Frequenz- bzw. Temperaturintervalle von 30 GHz bis 3000 GHz bzw. 30 K bis 1000 K abdecken, ohne einen der in der Theorie enthaltenen Parameter anzupassen.

Der Parameter, der sich am schwierigsten ermitteln läßt, ist die Verbreiterung der Phononenzustände  $\gamma$ . Für diese Größe existiert nur eine geringe Zahl experimenteller Daten, da sie selbst durch Neutronenstreuexperimente schwer zugänglich ist. Unter der Annahme, daß die Güten der Phononenzustände, die sich als Quotient aus Phononenfrequenz und  $\gamma$  definieren lassen, für ähnliche Materialien vergleichbar sind, kann man die Energieverbreiterung  $\gamma$  aus der Güte eines bekannten Materials grob abschätzen. Entsprechend wenig ist bekannt über die Temperaturabhängigkeit dieser Größe. Die beste Übereinstimmung der theoretischen Werte mit den experimentellen Daten finden Sparks et al für eine von der Temperatur unabhängige Energieverbreiterung  $\gamma$ .

### 3 Messung dielektrischer Eigenschaften mit offenen Resonatoren

#### 3.1 Theorie offener Resonatoren

##### 3.1.1 Einführende Bemerkungen

Für die Messung dielektrischer Materialeigenschaften im Mikrowellen-Bereich werden sowohl Hohlraumresonatoren als auch offene Resonatoren eingesetzt. Während im unteren Frequenzbereich Hohlraumresonatoren bevorzugt werden, sind im Millimeter- bzw. Submillimeter-Wellen-Bereich offene Resonatoren geeigneter, was im folgenden erläutert wird.

Durch Messungen mit Hilfe eines bei 15 GHz arbeitenden Hohlraumresonators [29], die J. Molla vom CIEMAT (Centro de Investigaciones Energeticas Medioambientales y Tecnologicas, Madrid) freundlicherweise an Proben gleicher Qualität durchführte, konnte die Richtigkeit der in dieser Arbeit ausschließlich mit offenen Resonatoren gewonnenen Meßergebnissen überprüft werden. Die Meßgenauigkeit beider Proben sollte bei diesen Frequenzen vergleichbar sein [30]

Durch die scharfen Randbedingungen des Hohlraumresonators, die durch die elektrisch leitenden Wände vorgegeben sind, läßt sich die Wellengleichung exakt formulieren und die Feldverteilungen bzw. Frequenzen  $\nu_{mnq}$  der Resonanzmoden berechnen.

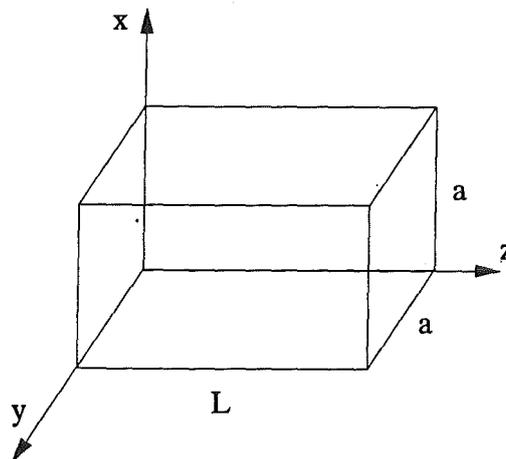


Abbildung 3.1 Schematische Darstellung eines quaderförmigen Hohlraumresonators

Für einen quaderförmigen Hohlraumresonator entsprechend Abbildung 3.1 gilt folgende Resonanzbedingung [31]:

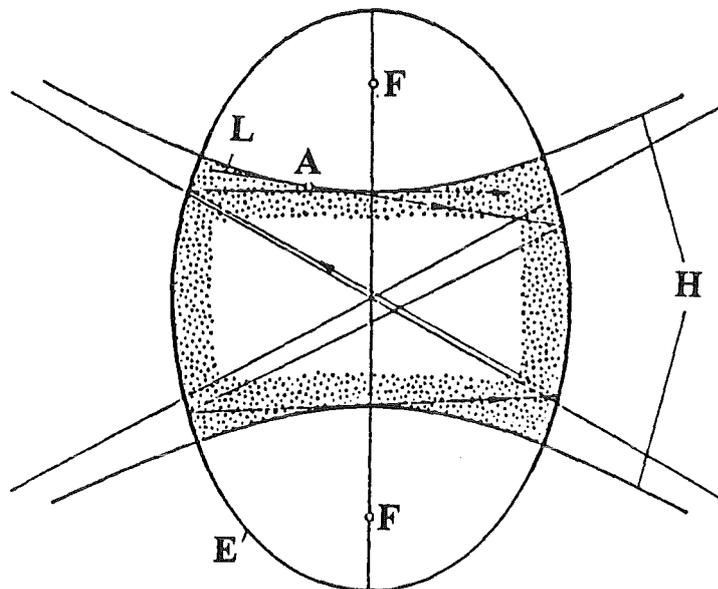
$$\nu_{mnq} = \frac{c}{2L} \sqrt{q^2 + \left(\frac{mL}{a}\right)^2 + \left(\frac{nL}{a}\right)^2} \quad (3.1)$$

Die Indizes  $q$ ,  $m$  und  $n$  charakterisieren die Feldverteilung der Moden in  $z$ -,  $y$ - und  $x$ -Richtung. Die Modendichte und damit die Modenselektivität hängt von dem Verhältnis der charakteristischen Resonatorlänge  $L$  zur Wellenlänge ab und läßt sich in einem konstanten Frequenzbereich durch die Abmessung  $L$  regulieren. Da die Modendichte mit der 3. Potenz in  $L$  zunimmt [32] sind Abmessung idealer Hohlraumresonatoren immer von der Größenordnung der Wellenlänge. Hohlraumresonatoren im Millimeter- bzw. Submillimeter-Wellenbereich wären deshalb extrem klein. Dies hätte eine sehr kleine Güte  $Q$  zur Folge, die proportional ist zum Verhältnis der gespeicherten Feldenergie  $W$  zur Verlustleistung  $P$  in den Resonatorwänden.

$$Q = 2\pi\nu \frac{W}{P} \quad (3.2)$$

Die Messung dielektrischer Eigenschaften mit sehr hoher Genauigkeit erfordert jedoch hohe Güten.

Eine gute Alternative für höhere Frequenzen sind deshalb offene Resonatoren, die sich durch eine gute Modenselektivität bei gleichzeitig hohen Güten auszeichnen. Anhand einer geometrischen Ellipse (siehe Abbildung 3.2) läßt sich veranschaulichen, daß sich damit elektromagnetische Felder speichern lassen, obwohl dieser Resonatortyp nicht allseitig geschlossen ist.



**Abbildung 3.2** Reflexion eines Lichtstrahls an einer innen verspiegelten Ellipse (Ausbildung einer hyperbolischen Kaustik) [33].

Ein Lichtstrahl  $L$ , der die zur Ellipse  $E$  konfokale Hyperbel  $H$  in einem Punkt  $A$  berührt, bleibt bei fortgesetzten Reflexionen an der Ellipse immer Tangente der Hyperbel und erfüllt nach vielen Reflexionen das in Abbildung 3.2 punktierte Gebiet innerhalb der hyperbolischen Kaustik [34]. Entfernt man die außerhalb der Kaustik liegenden Bögen der Ellipse, so hätte man im Fall einer uneingeschränkten Gültigkeit der geometrischen Optik einen idealen verlustfreien "Lichtkondensator".

Das Wellenbild ergänzt die Überlegungen dahin, daß das Feld auch in das Gebiet des geometrischen Schattens vordringt. Somit entstehen an den Spiegelrändern Beugungsverluste, die aber klein gehalten werden können, wenn man die Spiegel etwas über das Gebiet der geometrischen Kaustik hinaus vergrößert. Damit wird verständlich, daß offene Resonatoren hoher Güte mit sphärischen Spiegeln möglich sind.

Die Aufgabe der Resonatortheorie ist es, die Resonanzfrequenzen der einzelnen Moden, die zugehörige Feldverteilung und die Beugungsverluste an den Spiegelrändern bei vorgegebener Geometrie zu ermitteln. Geht man von einem quaderförmigen Hohlraumresonator entsprechend Abbildung 3.1 aus und entfernt die zur z-Achse parallelen Wände, dann erhält man einen offenen Resonator mit quadratischen Spiegeln. Die exakte Theorie dieses offenen Resonators ist aufgrund der nun auftretenden Abstrahlverluste komplizierter. Wählt man jedoch die Seitenlänge  $a$  deutlich größer als den Spiegelabstand  $L$  ( $a \gg L$ ) und betrachtet Moden mit  $q \gg m, n$ , so sind die Beugungsverluste aufgrund kleiner Felder an den Spiegelrändern vernachlässigbar und die Resonanzbedingung (3.1) gilt in guter Näherung auch für offenen Resonatoren. Sie läßt sich entwickeln zu:

$$v_{mnq} = \frac{c}{2L} q \left[ 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{mL}{qa} \right)^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{nL}{qa} \right)^2 \right] \quad \text{für } q \gg m, n \text{ und } a \gg L . \quad (3.3)$$

Mit zunehmendem Spiegelabstand  $L$  bzw. Modenummern  $m$  und  $n$  werden die Beugungsverluste jedoch größer und die Beziehung (3.3) verliert ihre Gültigkeit.

Die Modendichte offener Resonatoren ist im Vergleich zu Hohlraumresonatoren deutlich kleiner und wächst nur linear mit der Länge  $L$ , da sich die höheren Moden aufgrund der stärkeren Abstrahlverluste nur äußerst schwach bzw. gar nicht anregen lassen. Dies ermöglicht den Bau offener Resonatoren, deren Abmessungen groß sind gegen die Wellenlänge, ohne an der Modenselektivität einzubüßen. Das so erreichbare große Speichervolumen bewirkt hohe Güten und eine damit verbundene hohe Meßgenauigkeit.

#### 3.1.2 Der konfokale Resonator

Nach den Überlegungen des vorangegangenen Kapitels ist es möglich offene Resonatoren hoher Güte aus sphärischen Spiegeln zu bauen, vorausgesetzt die Geometrie ist mit der in Abbildung 3.2 dargestellten elliptischen Geometrie vergleichbar. Grenzfälle offener Resonatoren [35] aus sphärischen Spiegeln sind der Fabry-Pérot-Resonator mit planparallelen Spiegeln (Krümmungsradius  $R_0 = \infty$ ) und der konzentrische Resonator, bei dem der Fokus beider Spiegel zusammenfällt ( $2R_0 = L$ ). Ein weiterer Grenzfall ist der konfokale Resonator mit Spiegeln gleicher Krümmung im Abstand des Krümmungsradius ( $R_0 = L$ ), dessen skalarfeldtheoretische Beschreibung im folgenden grob skizziert wird.

Eine skalare Formulierung optischer Probleme ist dann gerechtfertigt, wenn alle Abmessungen groß gegen die Wellenlänge sind und die Felder nahezu transversal elektromagnetisch (TEM) und linear polarisiert sind. Geht man von einem Resonator aus, der diese

Bedingungen erfüllt, so läßt sich das Feld in einem Punkt  $P_2$  auf dem Spiegel  $S_2$  aus der Feldverteilung  $v_1$  auf dem Spiegel  $S_1$  mit Hilfe des Huygenschen Prinzips wie folgt berechnen [36]:

$$v_2 = \frac{ik}{4\pi} \int v_1 \frac{\exp(-iks)}{s} (1 + \cos \theta) dS_1 \quad (3.4)$$

Dabei bezeichnet  $k$  die Wellenzahl ( $k=2\pi/\lambda$ ),  $s$  den Abstand vom Quellpunkt zum Aufpunkt, und  $\theta$  den Winkel zwischen  $s$  und der Flächennormalen im Quellpunkt.

Ein Resonatormode ist dadurch definiert, daß sich die so errechnete Feldverteilung  $v_2$  nur durch einen komplexen Faktor  $\sigma$  von der Feldverteilung  $v_1$  unterscheidet.

$$v_2 = \sigma v_1 \quad (3.5)$$

Hierbei ist  $|\sigma|$  und  $\arg \sigma$  ein Maß für die Beugungsverluste bzw. die Phasenverschiebung beim einmaligen Durchlaufen der Länge  $L$  (es wird angenommen, daß die Reflexionsverluste am Spiegel null sind). Die Integralgleichung (3.4) ist für Resonatoren mit beliebiger Spiegelgeometrie nur numerisch und mit hohem Rechenaufwand zu lösen. Fox und Li [37,38] haben diese Rechnungen an mehreren Beispielen durchgeführt.

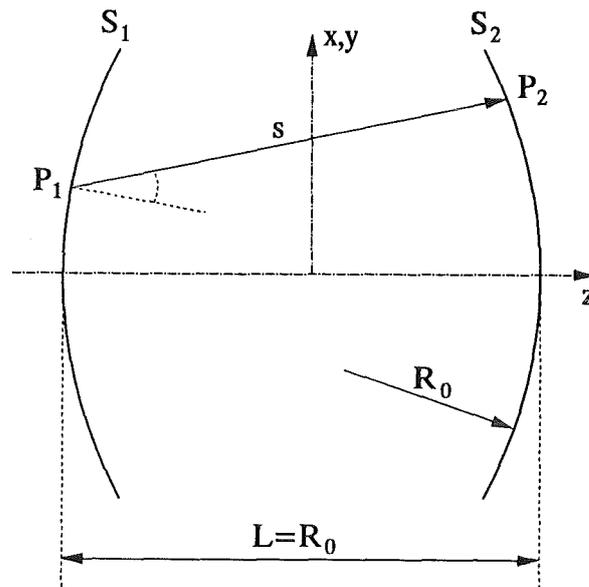


Abbildung 3.3 Schematische Zeichnung eines konfokalen Resonators

Der konfokale Resonator hingegen läßt sich analytisch berechnen [39]. Für rechteckige bzw. quadratische Spiegel ist die Integralgleichung (3.4) nach  $x$ - und  $y$ -Koordinate separierbar, woraus zwei voneinander unabhängige Größen  $\sigma_m$  und  $\sigma_n$  resultieren. Die Resonanzfrequenz  $\nu_{mnq}$  der transversal elektromagnetischen Moden ( $TEM_{mnq}$ ) erhält man aus der Bedingung, daß bei Resonanz die Phasenverschiebung von einem Spiegel zum anderen einem ganzzahligen Vielfachen von  $\pi$  entspricht:

$$\arg(\sigma_m \sigma_n) = q\pi \quad q = 1, 2, \dots \quad (3.6)$$

Daraus folgt die Resonanzbedingung für konfokale Resonatoren:

$$v_{mnq} = \frac{c}{2R_0} \left[ q + \frac{1}{2}(m+n+1) \right] \quad (3.7)$$

Mit Hilfe der Beziehung

$$\delta_{B,mn} = 1 - |\sigma_m \sigma_n|^2 \quad (3.8)$$

berechnen sich die Beugungsverluste des  $TEM_{mn}$ -Modes, die in Abbildung 3.4 in Abhängigkeit von den Größe  $F$ , welche die Geometrie der Spiegel charakterisiert und als Fresnelzahl bezeichnet wird, dargestellt sind. Bei Spiegeln mit Fresnelzahlen  $F > 1$  ist das Feld am Spiegelrand sehr klein und dessen Verteilung damit uninteressant im Vergleich zur Feldverteilung in der Spiegelmitte. Die Feldverteilung der Moden mit den Indizes  $m=n=0$  ( $TEM_{mnq}$ ), die im Folgenden als Grundmoden bezeichnet werden, ist für Resonatoren aus sphärischen Spiegeln unterschiedlicher Form (z.B. rechteckig oder kreisförmig) deshalb identisch [33].

$$v_{00q} \sim \exp\left(-\frac{r^2 k}{2R_0}\right) \quad (3.9)$$

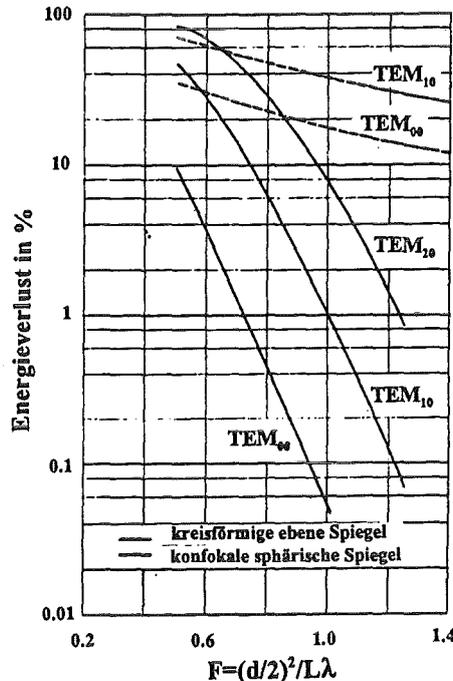


Abbildung 3.4 Beugungsverluste konfokaler Resonatoren im Vergleich mit den Beugungsverlusten offener Resonatoren aus ebenen Spiegeln [37].

Mit Hilfe des Huygenschen Prinzips lässt sich aus der Feldverteilung auf den Spiegeln die räumliche Feldverteilung berechnen. Für die Grundmoden ergibt sich daraus eine Feldverteilung, die sich in Zylinderkoordinaten wie folgt schreiben lässt:

$$v_{00q}(r, \phi, z) = \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-ikz - i\frac{kr^2}{2R(z)} - i\Phi(z)\right) \quad (3.10)$$

mit  $\Phi(z) = \arctan\left(\frac{2z}{R_0}\right)$

Aus dem zweiten Faktor erkennt man, daß die Feldstärke mit dem radialen Abstand  $r$  von der optischen Achse exponentiell abnimmt.  $w(z)$  entspricht dem Strahlradius an der Stelle  $z$ . Er ist definiert als der Abstand von der Achse, bei dem die Feldstärke auf  $1/e$  abgefallen ist. Es gilt:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{2z}{R_0}\right)^2} \quad \text{mit} \quad w_0 = \sqrt{\frac{R_0}{k}} \quad (3.11)$$

Dabei entspricht  $w_0$  dem Strahldurchmesser der Strahltaile an der Stelle  $z=0$ .

Die Flächen konstanter Phase sind näherungsweise Kugelflächen. Dies ergibt sich aus dem Phasenfaktor in Gleichung (3.10) unter Vernachlässigung des letzten Termes. Die Phasenflächen, welche die Achse in  $z$  schneiden, besitzen einen Krümmungsradius  $R(z)$ , mit

$$R(z) = z \left[ 1 + \left(\frac{R_0}{2z}\right)^2 \right] \quad (3.12)$$

In der Strahltaile ist der Krümmungsradius unendlich, was einer ebenen Welle gleichkommt. Auf den sphärischen Spiegelflächen, die hier im Gegensatz zum Fabry-Pérot-Resonator Flächen konstanter Phase sind, wird der Radius der Phasenfläche minimal.

$$R\left(\pm \frac{R_0}{2}\right) = R_0 \quad (3.13)$$

### 3.1.3 Der hemisphärische Resonator

Die Integralgleichung (3.4) läßt sich für allgemeine Resonatoren, die aus sphärischen Spiegeln unterschiedlicher Krümmungsradien bestehen, nicht mehr analytisch lösen. Es gibt aber die Möglichkeit einen allgemeinen Resonator auf einen konfokalen zu reduzieren [33]. Ist ein Resonator aus 2 sphärischen Spiegeln mit den Krümmungsradien  $R_1$  und  $R_2$  gegeben, die im Abstand  $L$  angeordnet sind, und läßt sich ein konfokaler Resonator finden, in dem Phasenflächen mit gleichen Krümmungsradien existieren, so kann der gegebene Resonator in einen konfokalen "eingebettet" werden. Da die Feldverteilung des konfokalen Resonators bekannt ist, kennt man auch die Feldverteilung des gegebenen Resonators. Mit Hilfe der Beziehung (3.12) kann  $R_0$  des gesuchten konfokalen Resonators aus den Parametern  $R_1$ ,  $R_2$  und  $L$  des gegebenen Resonators abgeleitet werden. Führt man die Spiegelparameter  $g_1$  und  $g_2$  ein, mit

$$g_i = 1 - \frac{L}{R_i} \quad (i=1,2) \quad , \quad (3.14)$$

so ergibt sich:

$$R_0^2 = L^2 \frac{4g_1g_2(1-g_1g_2)}{g_1+g_2-2g_1g_2} \quad (3.15)$$

Die Resonanzfrequenz der  $TEM_{00q}$ -Moden allgemeiner Resonatoren aus sphärischen Spiegeln berechnet sich aus Gleichung 3.10, indem man die Phasenverschiebung beim einmaligen Durchlaufen der Resonatorlänge  $L$  einem ganzzahligen Vielfachen von  $\pi$  gleichsetzt.

$$v_{00q} = \frac{c}{2L} \left[ q + \frac{1}{\pi} \arccos \sqrt{g_1 g_2} \right] \quad (3.16)$$

Ein Sonderfall offener Resonatoren aus sphärischen Spiegeln ist der näherungsweise hemisphärische Resonator, bei dem einer der beiden Spiegel plan ist ( $R_0 = \infty$ ). Diese Resonatorform eignet sich besonders für Messungen dielektrischer Eigenschaften, da die dielektrischen Proben leicht am ebenen Spiegel zu fixieren sind. Desweiteren befindet sich am Ort des ebenen Spiegels die Strahltaile, was bedeutet, daß das Dielektrikum näherungsweise von einer ebenen, transversal elektromagnetischen Welle durchdrungen wird, deren Feldstärke radial exponentiell abnimmt. Ein Resonator dieser Geometrie besitzt die Spiegelparameter

$$g_1 = 1 \quad (3.17)$$

$$g_2 = 1 - \frac{L}{R} ,$$

wobei R dem Krümmungsradius des sphärischen Spiegels entspricht. Setzt man diese Spiegelparameter mit Gleichung (3.15) in Gleichung (3.11) ein, so lassen sich die Strahlradien  $w_1$  und  $w_2$  am ebenen und sphärischen Spiegel berechnen.

$$w_0 = w_1 = \sqrt{\frac{2}{k}} [L(R-L)]^{1/4} \quad (3.18)$$

$$w_2 = \sqrt{\frac{2}{k}} \left[ \frac{LR^2}{R-L} \right]^{1/4}$$

Es gilt die Resonanzbedingung:

$$v_{00q} = \frac{c}{2L} \left[ q + \frac{1}{\pi} \arccos \left( \sqrt{1 - \frac{L}{R}} \right) \right] . \quad (3.19)$$

Man erkennt, daß bei exakt hemisphärischen Resonatoren ( $L=R$ )  $w_2$  gegen unendlich geht, was unendliche Abstrahlverluste bedeutet, d.h. exakt hemisphärische Resonatoren sind instabil. Deshalb muß der Spiegelabstand L immer etwas kleiner sein als der Krümmungsradius des sphärischen Spiegels ( $0 < (L-R) \ll R$ ), damit der Resonator stabil ist. Wenn im folgenden von hemisphärischen Resonatoren die Rede ist, dann sind damit immer annähernd hemisphärische Resonatoren gemeint, die dieses Stabilitätskriterium erfüllen.

## 3.2 Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten mit hemisphärischen Resonatoren

### 3.2.1 Skalarfeldtheorie des beladenen hemisphärischen Resonators

Von einem beladenen Resonator spricht man, wenn ein Dielektrikum in den felderfüllten Raum des Resonators eingebracht wird. Um die dielektrischen Materialgrößen aus dem Resonanzverhalten exakt berechnen zu können, müssen die Feldverteilung im Dielektrikum bzw. im übrigen Resonatorvolumen und die räumlichen Abmessungen des Resonators bekannt sein.

### 3.2 Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten mit hemisphärischen Resonatoren

Fixiert man eine zylinderförmige Probe mit ausreichendem Durchmesser am ebenen Spiegel des hemisphärischen Resonators entsprechend Abbildung 3.5, so bleibt die radialsymmetrische Feldverteilung nach Gleichung (3.10) erhalten und zusätzliche Streuverluste am Probenrand sind vernachlässigbar.

Aus Kapitel 3.1 wird klar, daß die vollständige theoretische Beschreibung offener Resonatoren, die Beugungsverluste mitberücksichtigt, deutlich komplizierter ist als die für geschlossene Resonatoren. Selbst wenn die Beugungsverluste verschwindend gering sind, müssen Näherungen gemacht werden, um einigermaßen handhabbare Lösungen der Wellengleichung zu bekommen. Solche Lösungen sind gaußförmige Feldverteilungen der Form von Gleichung (3.10), die z.B. als Repräsentant des in x-Richtung linear polarisierten elektrischen Feldes dienen kann.

$$E_x = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-i(kz - \Phi(z)) - i\frac{kr^2}{2R(z)}\right) \quad (3.20)$$

Nimmt man an, daß die Größen  $w(z)$ ,  $\Phi(z)$  und  $R(z)$  wesentlich weniger mit  $z$  variieren als  $kz$ , dann folgt aus der 3. Maxwellgleichung für die magnetische Feldstärke:

$$H_y = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E_x \quad (3.21)$$

So erhält man in guter Näherung eine Formel für das transversal elektromagnetische Feld eines gauß'schen Strahls, der sich in positive  $z$ -Richtung ausbreitet. Addiert man dazu das konjugiert komplexe Feld, was einem gauß'schen Strahl mit negativer Ausbreitungsrichtung entspricht, so resultiert das Feld einer stehenden Welle, die sich im Resonator bei Resonanz einstellt.

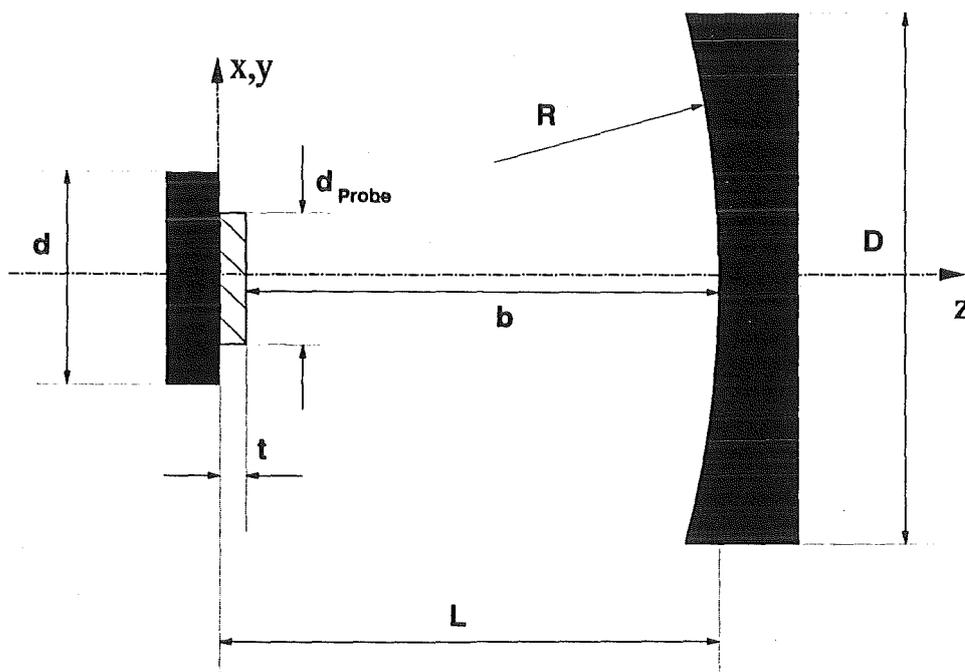


Abbildung 3.5 Skizze des beladenen hemisphärischen Resonators

### 3.2 Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten mit hemisphärischen Resonatoren

Durch die Geometrie des beladenen Resonators wird an eine stehende Welle zum einen die Forderung gestellt, daß unter der Annahme ideal reflektierender Spiegel die tangentialen elektrischen Felder auf den Spiegelflächen verschwinden und zum anderen, daß die tangentialen elektromagnetischen Feldkomponenten an der Grenzfläche Luft-Dielektrikum keine Diskontinuitäten aufweisen.

Da die Spiegelflächen in guter Näherung Flächen konstanter Phasen sind, ist die Bedingung  $E_x=0$  in der Spiegelmitte hinreichend für die Erfüllung der ersten Forderung. Nimmt man an, daß die Grenzfläche Luft-Dielektrikum sphärisch ist, mit dem selben Krümmungsradius  $R(t)$ , den die Phasenfläche des Gauß'schen Strahls an dieser Stelle besitzt, dann reicht es aus, die Stetigkeit der tangentialen Felder im Schnittpunkt der Symmetrieachse mit der Probenoberfläche ( $r=0, z=t$ ) zu zeigen, um die zweite Forderung zu erfüllen. Der Einfachheit halber verfolgt man zunächst diese paraxiale Näherung zur Lösung des Problems, um anschließend durch Störungsrechnung der Tatsache Rechnung zu tragen, daß die Probenoberfläche plan und nicht wie angenommen sphärisch ist.

Cullen und Yu [40] kommen mit dieser paraxialen Näherung der skalaren Feldtheorie zu folgendem Ergebnis für das elektrische Feld im Dielektrikum:

$$E_{x1}(z) = E_0 \frac{w_{01}}{w_1(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w_1^2(z)}\right) \sin\left(\sqrt{\epsilon'} kz - \Phi_1(z) - \frac{\sqrt{\epsilon'} kr^2}{2R_1(z)}\right) \quad (3.22)$$

$$\text{mit } w_1(z) = w_{01} \sqrt{1 + \left(\frac{z}{\sqrt{\epsilon'} z_0}\right)^2}$$

$$R_1(z) = z \left[ 1 + \left(\frac{\sqrt{\epsilon'} z_0}{z}\right)^2 \right]$$

$$\Phi_1(z) = \arctan\left(\frac{z}{\sqrt{\epsilon'} z_0}\right)$$

$$z_0 = \frac{1}{2} k w_{01}^2 .$$

Die tangential elektrische Feldkomponente im luftgefüllten Raum muß auf dem sphärischen Spiegel, d.h. bei  $z=t+b=L$ , verschwinden. Mit der Bedingung, daß die Krümmungsradien der Phasenflächen und die Strahlradien auf beiden Seiten der Grenzfläche Luft-Dielektrikum gleich sind ( $w_0=w_{01}=w_{02}$ ), folgt, daß die Strahltaile für das Feld im luftgefüllten Raum an der Stelle  $z_2=t-t/\epsilon'$  liegt. Für das elektrische Feld im Bereich  $t < z < b$  gilt demnach:

$$E_{x2}(z) = E_0 \frac{w_{02}}{w_2(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w_2^2(z)}\right) \sin\left(k(z-t-b) - \Phi_2(z) + \Phi_2(t+b) - \frac{\sqrt{\epsilon'} kr^2}{2R_2(z)}\right) . (3.23)$$

Die Parameter  $w_2$ ,  $R_2$  und  $\Phi_2$  gehen aus den entsprechenden Parametern in Gleichung (3.22) hervor, wenn man  $\epsilon'=1$  setzt und berücksichtigt, daß die Lage der Strahltaile im Punkt  $z_2$

liegt. Die magnetischen Feldkomponenten ergeben sich entsprechend Gleichung (3.21) aus der 3. Maxwellgleichung.

### 3.2.2 Die Dielektrizitätskonstante

Eine Beziehung, aus der sich letztlich die relative Dielektrizitätskonstante berechnen läßt, erhält man durch die Stetigkeitsbedingung der transversalen Felder an der Probenoberfläche  $z=t$ . Mit den Feldern aus den Gleichungen (3.22) und (3.23) ergibt die Rechnung folgendes:

$$\frac{1}{\sqrt{\epsilon'}} \tan \left( \sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_t \right) = -\tan (kb - \Phi_b) \quad (3.24)$$

mit  $\Phi_t = \arctan \left( \frac{t}{\sqrt{\epsilon'} z_0} \right)$

$$\Phi_b = \arctan \left( \frac{b''}{z_0} \right) - \arctan \left( \frac{t}{\epsilon' z_0} \right)$$

$$z_0 = \sqrt{b''(R_0 - b'')}$$

$$b'' = b + \frac{t}{\epsilon'}$$

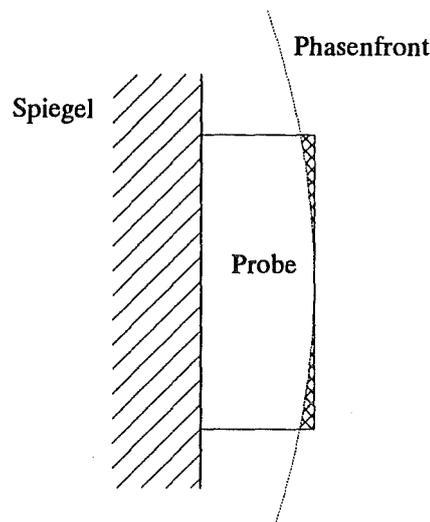


Abbildung 3.6 Verlauf der Phasenfront an der Probenoberfläche

Der bisher noch nicht berücksichtigte Teil der Probe zwischen der angenommenen sphärischen Grenzfläche und der tatsächlichen (siehe Abbildung 3.6) bewirkt eine zusätzliche Verschiebung der Resonanzfrequenz. Eine von Cullen und Yu durchgeführte Störungsrechnung ergibt eine relative Frequenzänderung der Form:

$$\frac{\delta\nu}{\nu} = \frac{\delta k}{k} = -\frac{\epsilon' - 1}{\epsilon'^2} \frac{t \Delta \sin^2 \left( \sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_t \right)}{k^2 w^2 (t \Delta + b)} \quad (3.25)$$

mit 
$$\Delta = \frac{\epsilon'}{\epsilon' \cos^2(\sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_t) + \sin^2(\sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_t)}$$

Entspricht die Probendicke einem ganzzahligen Vielfachen der halben Wellenlänge in der Probe  $\lambda/2\sqrt{\epsilon'}$ , dann verschwindet das Feld an der Probenoberfläche und man würde erwarten, daß dann auch die Korrektur wegfällt. Vernachlässigt man  $\Phi_t$  gegenüber  $\sqrt{\epsilon'} kt$ , was in guter Näherung zulässig ist, dann erkennt man, daß die Korrekturfunktion (3.25) diese Erwartung erfüllt. Entspricht die Probendicke einem ungeradzahligen Vielfachen von  $\lambda/4\sqrt{\epsilon'}$ , dann wird die Korrektur maximal.

Cook et al [41] gehen einen anderen Weg, dem bisher unberücksichtigten Volumen des Dielektrikum Rechnung zu tragen. Sie schlagen vor, die Probendicke um einen effektiven Wert  $\delta t$  zu korrigieren

$$\delta t = \frac{w^2(t)}{4R(t)}, \tag{3.26}$$

wobei  $w(t)$  bzw.  $R(t)$  dem Strahlradius bzw. dem Krümmungsradius der Phasenfläche am Ort  $z=t$  entsprechen.

Die beiden Grenzflächenkorrekturen sind innerhalb der Genauigkeit, mit der sie abgeleitet wurden, analytisch gleich.

### 3.2.3 Vektorfeldtheorie

In einer vektorfeldtheoretischen Behandlung des Resonatorproblems finden Cullen und Yu [42,43], daß die Felder der Resonatormoden nicht exakt linear polarisiert sind, wie bisher angenommen wurde. Es existieren ebenso Felder in  $y$ - bzw.  $z$ -Richtung, die jedoch für  $kw_0 \ll 1$  vernachlässigbar sind (siehe Abbildung 3.7).

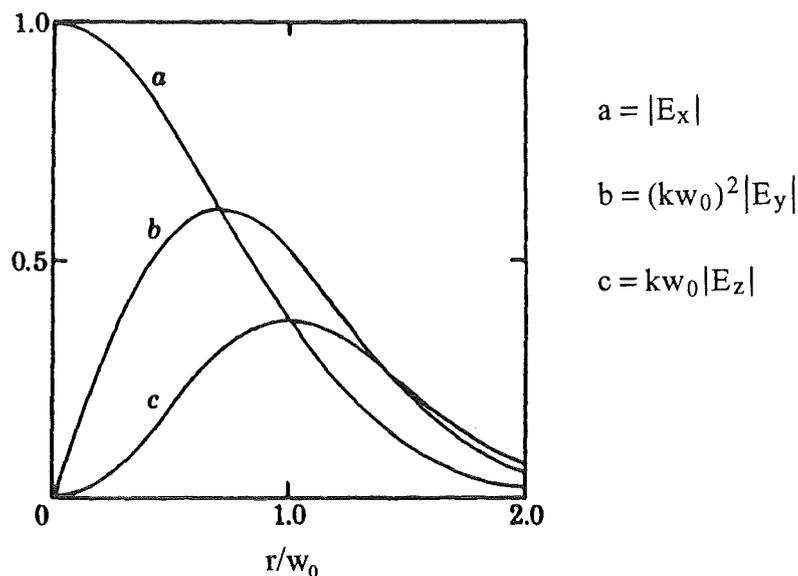


Abbildung 3.7 Normierte Feldkomponenten der Grundmoden [43]

### 3.2 Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten mit hemisphärischen Resonatoren

Die Stetigkeitsbedingung der transversalen Felder an der Probenoberfläche - im Schnittpunkt mit der Achse ( $r=0$ ) - führt zu einer transzendenten Gleichung, welche sich von Gleichung (3.24) nur durch die Phasenterme  $\Phi_T$  und  $\Phi_B$  unterscheidet.

$$\frac{1}{\sqrt{\epsilon'}} \tan \left( \sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_T \right) = -\tan (kb - \Phi_B) \quad (3.27)$$

$$\text{mit} \quad \Phi_T = \arctan \left( \frac{t}{\sqrt{\epsilon'} z_0} \right) - \arctan \left( \frac{1}{\sqrt{\epsilon'} kR_1(t)} \right)$$

$$\Phi_B = \arctan \left( \frac{b+t/\sqrt{\epsilon'}}{z_0} \right) - \arctan \left( \frac{t}{\sqrt{\epsilon'} z_0} \right) - \arctan \left( \frac{1}{kR_0} \right) + \arctan \left( \frac{1}{\sqrt{\epsilon'} kR_2(t)} \right)$$

Auch in diesem Fall führt - wie im vorherigen Kapitel - die Tatsache, daß Probenoberflächen und Phasenflächen nicht deckungsgleich sind (siehe Abbildung 3.6), zu einer Verschiebung der gemessenen Resonanzfrequenz gegenüber der theoretisch vorhergesagten gemäß dem ersten Term folgender Gleichung:

$$\frac{\delta\nu}{\nu} = -\frac{t(\sqrt{\epsilon'} - \Delta)}{\epsilon' k^2 w_1^2 (t\Delta + b)} - \frac{3}{4k^2 (t\Delta + b) R_0} \quad (3.28)$$

Eine zusätzliche Frequenzverschiebung, die durch den 2. Term in Gleichung (3.28) gegeben ist, resultiert aus der Abweichung der sphärischen Spiegeloberfläche von der Form der Phasenfront am Ort der Oberfläche.

### 3.3 Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren

#### 3.3.1 Die Güte des leeren Resonators

Die Güte des leeren Resonators, von der letztendlich die Meßgenauigkeit abhängt, berechnet sich nach Gleichung (3.2) aus der gespeicherten Energie  $W$ , der Kreisfrequenz und der Verlustleistung  $P$ , die sich aus dem Verlustfaktor  $\alpha$  wie folgt ergibt:

$$P = \alpha \frac{Wc}{L} \quad (3.29)$$

Der Verlustfaktor eines offenen Resonators setzt sich zusammen aus Reflexionsverlusten  $\alpha_R$ , Beugungsverlusten  $\alpha_D$  an den Spiegelrändern, Streuverlusten  $\alpha_S$  und Koppelverlusten  $\alpha_K$  an den Koppellöchern, sowie aus Absorptionsverlusten  $\alpha_A$  in dem Medium, das den Resonator ausfüllt. Für die Güte des Resonators folgt damit:

$$\frac{1}{Q} = \frac{c}{2\pi\nu L} (\alpha_R + \alpha_D + \alpha_S + \alpha_K + \alpha_A) \quad (3.30)$$

$$= \frac{1}{Q_R} + \frac{1}{Q_D} + \frac{1}{Q_S} + \frac{1}{Q_K} + \frac{1}{Q_A},$$

d.h. die meßbare Güte ergibt sich nach obiger Gleichung aus den Teilgüten  $Q_R$ ,  $Q_D$ ,  $Q_S$ ,  $Q_K$  und  $Q_A$ , die im folgenden aus der Geometrie der eingesetzten hemisphärischen Resonatoren abgeschätzt werden.

### 3.3 Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren

Die Abmessungen der drei benutzten Resonatoren sind dem jeweiligen Frequenzbereich, in dem sie eingesetzt werden, angepaßt. So nehmen die Spiegeldurchmesser  $D$  bzw.  $d$  des sphärischen bzw. planen Spiegels und der Spiegelabstand  $L$  mit zunehmender Frequenz, d.h. zu kleineren Wellenlängen, ab (siehe Tabelle 3.1).

Die Bezeichnung der Resonatoren und der jeweilige Frequenzbereich, in dem sie eingesetzt werden, sind in Tabelle 3.1 zu finden, einschließlich der Zuordnung der Frequenzbereiche zu Frequenzbänder, die in der Nachrichtentechnik gebräuchlich sind.

**Tabelle 3.1** Charakterisierung der eingesetzten Resonatoren

Resonator	Frequenzbereich GHz	D mm	d mm	R mm	L mm
Ku-Band-Resonator	15 - 20	270	80	150	146
Ka-Band-Resonator	30 - 40	160	80	120	114
D-Band-Resonator	144 - 146	100	50	120	114

#### 3.3.1.1

#### Reflexionsverluste

Die endliche Leitfähigkeit der metallischen Spiegeloberflächen führt zu Reflexionsverlusten. Die Verlustleistung läßt sich aus dem Produkt des Oberflächenwiderstandes  $R_s$  und dem Oberflächenintegral über das Betragsquadrat der tangentialen magnetischen Feldstärke  $H_{\tan}$  berechnen. Dabei wird ein über die ganze Spiegeloberfläche konstanter Oberflächenwiderstand angenommen. Die im Resonator gespeicherte Energie ergibt sich aus dem Volumenintegral über das Betragsquadrat der elektrischen oder magnetischen Feldstärke. Nach Gleichung (3.2) findet man damit eine Beziehung für die Güte  $Q_R$  eines Resonators, dessen Verluste ausschließlich durch die Reflexion an den metallischen Spiegeloberflächen bestimmt sind [31].

$$Q_R = \frac{2\pi\nu W}{P_R} = \frac{2\pi\nu\epsilon_0 \int_V |E|^2 dV}{R_S \int_A |H_{\tan}|^2 dA} \quad (3.31)$$

$$= \frac{G}{2R_s}$$

Durch Gleichung (3.31) wird ein Geometriefaktor  $G$  definiert, für den die Ausführung der Integration bei offenen Resonatoren näherungsweise folgendes ergibt [44]:

$$G = \pi\nu\mu_0 L \quad (3.32)$$

Der Oberflächenwiderstand ist umgekehrt proportional zur Leitfähigkeit  $\sigma$  und der Eindringtiefe  $s$  (Skintiefe) des elektromagnetischen Feldes in das Spiegelmaterial.

$$R_S = \frac{1}{\sigma s} = \sqrt{\frac{\pi\nu\mu_0}{\sigma}} \quad (3.33)$$

$$s = 1/\sqrt{\pi\nu\mu_0\sigma}$$

### 3.3 Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren

Die Skintiefe berechnet sich nach den Formeln für den klassischen Skineffekt. Beiträge eines anormalen Skineffektes zur Leitfähigkeit bei 140 GHz sind vernachlässigbar [45]. Die Skintiefe nimmt mit wachsender Frequenz  $\nu$  ab und beträgt in Kupfer bei 145 GHz nur noch  $0.18 \mu\text{m}$ . Bei Eindringtiefen dieser Größenordnung wirkt sich die defektreiche Oberfläche des Spiegelmaterials zunehmend negativ auf den Oberflächenwiderstand aus. Deshalb muß bei höheren Frequenzen für eine möglichst defektfreie Oberfläche gesorgt werden, um den Oberflächenwiderstand nicht zu verschlechtern.

Besteht ein hemisphärischer Resonator aus zwei Spiegeln unterschiedlicher Materialien, mit den Oberflächenwiderständen  $R_{S,p}$  und  $R_{S,s}$  des planen bzw. sphärischen Spiegels, so erhält man für die Reflexionsgüte  $Q_R$  folgendes:

$$Q_R = \frac{G}{R_{S,s} + R_{S,p}} \quad (3.34)$$

Die mit den Gleichungen (3.32) und (3.34) bestimmten theoretischen Güten der drei eingesetzten Resonatoren sind nachfolgend zusammen mit den jeweiligen Geometriefaktoren und Oberflächenwiderständen tabelliert.

*Tabelle 3.2 Theoretische Reflexionsgüten und Widerstände der eingesetzten Resonatoren*

Resonator	G in $\Omega$	$R_{S,s}$ in $\text{m}\Omega$	$R_{S,p}$ in $\text{m}\Omega$	$Q_R$
Ku-Band-Resonator	8645	38.7 (Al)	32.2 (Cu)	122000
Ka-Band-Resonator	15800	47.8 (Cu)		165000
D-Band-Resonator	65258	98.8 (Cu)		330000

#### 3.3.1.2 Verluste durch die Koppellöcher

Zur Messung der Güten bzw. Resonanzfrequenzen werden die Resonatoren in Transmission betrieben, wozu Vorrichtungen zum Ein- bzw. Auskoppeln der Mikrowellen notwendig sind. Lochblenden im Zentrum der sphärischen Spiegel, die auf der Spiegelrückseite fest mit Rechteckhohlleitern verbunden sind, erfüllen diesen Zweck (siehe Abbildung 3.8). Der Durchmesser  $d$  und die Länge  $l$  der Koppellöcher sind dabei so zu wählen, daß möglichst wenig Leistung durch Streuung an den Löchern bzw. Einstrahlen in die Koppellöcher verloren geht und die Feldverteilung im Resonator nicht beeinflusst wird. Diese Kriterien sprechen für kleine Koppellöcher. Die Löcher müssen allerdings auch ausreichend groß sein, um eine meßbare Leistung transmittieren zu können.

Das Koppelloch entspricht einem Dipolstrahler, dessen magnetisches Dipolmoment durch das Magnetfeld am Ort des Koppelloches induziert wird. Dieser Dipol strahlt einen Teil (etwa 50%) seiner Leistung  $P_{\text{rad}}$  in den Hohlleiter ab. Dabei muß im Koppelloch die  $TE_{11}$ -Hohlleiterwelle und anschließend die  $TE_{01}$ -Hohlleiterwelle des Rechteckhohlleiters angeregt werden. Da das Koppelloch ein weit unterhalb der Grenzfrequenz betriebenes Hohlleiterstück darstellt, wird die  $TE_{11}$ -Welle mit der Dämpfungskonstanten  $\alpha_{TE_{11}}$  stark gedämpft. Damit läßt sich eine Koppelgüte wie folgt definieren [46]:

### 3.3 Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren

$$\frac{1}{Q_K} = \frac{P_{\text{rad}}}{4\pi v W} \exp(-2\alpha_{\text{TE}_{11}} l) \quad (3.35)$$

$$Q_K = \frac{27c^4 L^2 \exp\left[2\left(\frac{r_k}{w_0}\right)^2\right]}{8\pi^2 v^4 d^6 \sqrt{2\frac{L}{R} - \left(\frac{L}{R}\right)^2}} \exp(2\alpha_{\text{TE}_{11}} l) .$$

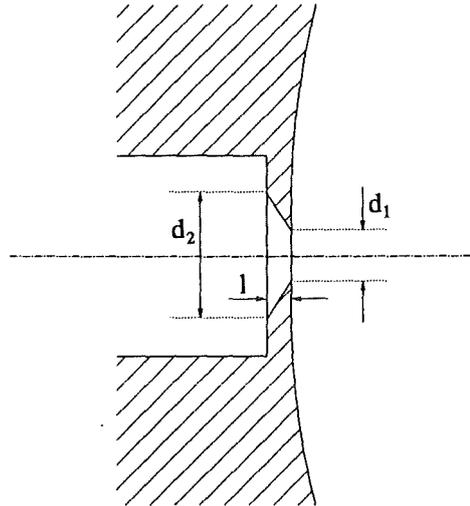


Abbildung 3.8 Querschnitt eines Koppelloches

Die Dämpfungskonstante  $\alpha_{\text{TE}_{11}}$  der  $\text{TE}_{11}$ -Hohlleiterwelle beträgt für ein zylindrisches Koppelloch mit dem Durchmesser  $d$

$$\alpha_{\text{TE}_{11}} = \sqrt{\left(\frac{3.682}{d}\right)^2 - \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^2} . \quad (3.36)$$

Für konische Koppellöcher mit dem kleineren, der Resonatorseite zugewandten Durchmesser  $d_1$  bzw. dem größeren Durchmesser  $d_2$  gilt:

$$d = d_{\text{eff}} = \frac{d_1 - d_2}{\ln(d_1/d_2)} . \quad (3.37)$$

Aufgrund der starken Dämpfung wird ein großer Teil der Leistung in den Resonator zurückgestreut und trägt somit zu den Streuverlusten bei. Die Streugüte  $Q_S$  des Koppelloches hängt demnach direkt mit der Koppeltgüte zusammen; es gilt:

$$Q_S = \frac{Q_K}{2 \exp(2\alpha_{\text{TE}_{11}} l) - 1} . \quad (3.38)$$

Die Koppeltgüte bestimmt unter anderem den Koppelfaktor  $\beta$ , mit

$$\beta = \frac{Q_0}{Q_K} . \quad (3.39)$$

$Q_0$  enthält alle Verluste gemäß Gleichung (3.30) bis auf die Verluste, die durch Abstrahlung in den Hohlleiter entstehen und damit die Koppeltgüte  $Q_K$  bewirken.

Tabelle 3.3 Koppellochgeometrieen und berechnete Koppelgüten der eingesetzten Resonatoren.

Resonator	$r_k$ mm	$l$ mm	$d_1$ mm	$d_2$ mm	$d_{\text{eff}}$ mm	$\alpha_{\text{TE11}}$ 1/mm	$Q_K$ $10^6$	$Q_S$ $10^6$
Ku-Band-Resonator	0.0	1.0	2.0	3.5	2.68	1.33	156.0	5.60
Ka-Band-Resonator	0.0	0.5	2.5	3.5	2.36	1.38	8.4	1.40
D-Band-Resonator	0.0	0.3	0.7	1.8	1.16	0.88	1.2	0.85
	2.6						2.6	1.90

Die Geometrieen der Koppellöcher sind für die benutzten Resonatoren nur ungenau zu ermitteln, da sie ihre endgültige konische Form durch manuelles Nachbehandeln mit einem Handbohrer erhalten. Die Größe  $l$  ist direkt aus den Konstruktionszeichnungen entnommen, während die Durchmesser  $d_1$  und  $d_2$  mit Hilfe der Form des entsprechend verwendeten Bohrers abgeschätzt wurden. Der Fehler der angegebenen Daten liegt demnach bei Werten von  $\pm 0.1$  mm, weshalb die errechneten Güten nur einem groben Vergleich mit den gemessenen Güten dienen können.

Aus Tabelle 3.2 ist ersichtlich, daß die Koppel- bzw. Streugüten der Koppellöcher mit zunehmender Frequenz abnehmen, wodurch sich die meßbaren Güten der Resonatoren verschlechtern. Der D-Band-Resonator besitzt im Gegensatz zu den beiden anderen Resonatoren zwei Koppellöcher im sphärischen Spiegel, von denen das eine auf der optischen Achse liegt ( $r_k=0$ ) und das zweite  $r_k=2.6$  mm von der Achse entfernt. Die berechneten Streugüten dieser Koppellöcher ist vergleichbar mit der Reflexionsgüte; sie unterscheiden sich in etwa um einen Faktor 3 bis 6. Auch im Ka-Band sind Streugüte und Reflexionsgüte von der gleichen Größenordnung, während im Ku-Band der Einfluß des Koppelloches am geringsten ist.

### 3.3.1.3 Beugungsverluste

Die Beugungsverluste eines offenen Resonators sind durch die Stärke der Felder an den Spiegelrändern bestimmt. Exakte Werte für die Verlustleistung lassen sich durch Lösen der Integralgleichung (3.4) finden, wozu in der Regel aufwendige numerische Berechnungen nötig sind [37,38]. Nach Slepian [47] läßt sich in guter Näherung der Verlustfaktor  $\alpha_D$  als der integrale Anteil des Quadrates der Feldstärke berechnen, der über die Spiegelränder hinausragt.

$$\alpha_D = \frac{\int_0^{2\pi} d\phi \int_a^{\infty} r dr E^2}{\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\infty} r dr E^2} \quad (3.40)$$

Unter Berücksichtigung der Feldverformung - aufgrund der Beugung an den Spiegelrändern - erhält Slepian folgendes, mit den numerischen Rechnungen von Fox und Li übereinstimmendes Resultat für die  $TEM_{00q}$ -Moden:

$$\alpha_D = 16\pi^2 F \exp(-4\pi F) . \quad (3.41)$$

### 3.3 Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren

Mit den Fresnelzahlen  $F_s$  bzw.  $F_p$  des sphärischen bzw. planen Spiegels, für die gilt [48]

$$F_s = \frac{a_s^2}{L\lambda} \sqrt{2\frac{L}{R} - \left(\frac{L}{R}\right)^2} \quad (3.42)$$

$$F_p = \frac{a_p^2}{L\lambda} \sqrt{\frac{L}{R-L}},$$

ergeben sich nachfolgend tabellierte Verlustfaktoren. Es zeigt sich deutlich, daß die Beugungsverluste keinen meßbaren Einfluß auf die Resonatorgüte haben, denn die berechneten Beugungsgüten übersteigen die Reflexionsgüten bzw. Koppelgüten um mehrere Größenordnungen.

**Tabelle 3.4** Durch Streuung an den Spiegelrändern verursachte Verlustfaktoren und Güten

Resonator	$F_s$	$F_p$	$\alpha_s$	$\alpha_p$	$Q_D$
Ku-Band-Resonator	6.2	3.3	$8.8 \cdot 10^{-32}$	$4.5 \cdot 10^{-16}$	$>10^{17}$
Ka-Band-Resonator	5.6	6.1	$2.2 \cdot 10^{-28}$	$3.9 \cdot 10^{-31}$	$>10^{28}$
D-Band-Resonator	10.6	11.5	$2.8 \cdot 10^{-55}$	$1.7 \cdot 10^{-61}$	$>10^{57}$

#### 3.3.1.4

#### Absorptionsverluste

Die bei Raumtemperatur betriebenen Resonatoren sind luftgefüllt. Je nach Zusammensetzung der Luft und der Betriebsfrequenz wird die Mikrowelle dadurch unterschiedlich stark gedämpft. Im Absorptionsspektrum der Luft findet man bei 22 GHz und 188 GHz Maxima aufgrund des Wasserdampfes. Bei 60 GHz bzw. 120 GHz liegen Absorptionslinien des molekularen Sauerstoffs. Für die durch atmosphärische Absorption reduzierte Güte  $Q_A$  gilt

$$Q_A = \frac{2\pi v}{c\alpha_a} \quad (3.43)$$

Mit den durchschnittlichen Absorptionskonstanten  $\alpha_a$  der Luft, die in Tabelle 3.5 angegeben sind, berechnen sich folgende Absorptionsgüten  $Q_A$  für die drei zu Verfügung stehenden Resonatoren.

**Tabelle 3.5** Absorptionsgüten

Resonator	$\alpha_a$ in dB/km [49]	$Q_A$
Ku-Band-Resonator	0.04	$>10500000$
Ka-Band-Resonator	0.07	$>12000000$
D-Band-Resonator	0.60	$>5000000$

#### 3.3.2

#### Die Güte des beladenen Resonators

Da der dielektrische Verlusttangens  $\tan\delta$  aus dem Vergleich der gemessenen Güten des beladenen und des unbeladenen Resonators gewonnen wird, ist es notwendig, die gespeicherte Energie bzw. die Verlustleistung des beladenen Resonators genau zu kennen. Erst dann ist es möglich, eine Beziehung für den Verlusttangens des Dielektrikum abzuleiten.

### 3.3 Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren

Die gespeicherte Energie  $W$  berechnet sich gemäß Gleichung (3.31) aus dem Volumenintegral der elektrischen Feldstärke im Quadrat, wobei über den mit dem Dielektrikum erfüllten Raum  $V_1$  und das Restvolumen  $V_2$  separat zu integrieren ist.

$$W = \frac{1}{2} \epsilon' \epsilon_0 \int_{V_1} E_1^2 dV + \frac{1}{2} \epsilon_0 \int_{V_2} E_2^2 dV \quad (3.44)$$

Die Integration über die Felder gemäß Gleichung (3.44) führt zu folgendem Ergebnis [50]:

$$W = \frac{1}{4} \epsilon_0 E_1^2 \frac{\epsilon'}{\Delta} k(t\Delta + b) \quad \text{mit} \quad \Delta = \frac{\epsilon'}{\epsilon' \cos^2(\sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_t) + \sin^2(\sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_t)} \quad (3.45)$$

Die Verlustleistung des Resonators setzt sich zusammen aus Reflexionsverlusten  $P_R$  und Absorptionsverlusten  $P_A$ . Die übrigen Verlustmechanismen werden hier zunächst außer acht gelassen. Für die Reflexionsverluste erhält man:

$$P_R = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E_1^2 \left( \epsilon' R_{S,p} + \frac{\epsilon'}{\Delta} R_{S,s} \right) \quad (3.46)$$

Dabei bezeichnen  $R_{S,p}$  und  $R_{S,s}$  die Oberflächenwiderstände des planen bzw. sphärischen Spiegels. Die Absorptionsverluste im Dielektrikum berechnen sich nach

$$P_A = \frac{1}{2} 2\pi v \epsilon' \tan \delta \int_{V_1} E_1^2 dV \quad (3.47)$$

Daraus ergibt sich

$$P_A = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E_1^2 \frac{\epsilon'}{\Delta} \left[ kt\Delta + \frac{1}{2} \sin [2(kb - \Phi_b)] \right] \tan \delta \quad (3.48)$$

Mit der Definition (3.2) erhält man die theoretische Güte  $Q_{\delta, \epsilon'}$  des beladenen Resonators, die gemessen werden sollte, wenn keine weiteren Verluste - z.B. durch die Koppellöcher oder durch Beugung - auftreten.

$$Q_{\delta, \epsilon'} = \frac{2\pi v W}{P_R + P_A} = \frac{t\Delta + b}{\frac{2}{k} \sqrt{\epsilon_0/\mu_0} \left( R_{S,p}\Delta + R_{S,s} \right) + \left[ t\Delta + \frac{1}{2k} \sin [2(kb - \Phi_b)] \right] \tan \delta} \quad (3.49)$$

#### 3.3.3 Algorithmus zur Berechnung des dielektrischen Verlusttangens

Um aus der Güte  $Q_{\delta, \epsilon'}$  des beladenen Resonators den Verlusttangens des Dielektrikums bestimmen zu können, muß dem reziproken Wert diese Güte das Reziproke der Güte  $Q_{0, \epsilon'}$  abgezogen werden, die man erhalten würde, wenn der Resonator mit einer verlustfreien Probe ( $\tan \delta = 0$ ) der gleichen Dicke  $t$  und Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon'$  gefüllt wäre. Mit Gleichung (3.49) erhält man dann einen Ausdruck der Form:

$$\tan \delta = FF \left[ \frac{1}{Q_{\delta, \epsilon'}} - \frac{1}{Q_{0, \epsilon'}} \right] \quad \text{mit} \quad FF = \frac{t\Delta + b}{t\Delta + \frac{1}{2k} \sin [2(kb - \Phi_b)]} \quad (3.50)$$

Die Güte  $Q_{0, \epsilon'}$  des mit einer verlustfreien Probe beladenen Resonators ist der Messung nicht zugänglich. Man kann sie jedoch aus der meßbaren Güte  $Q_0$  des leeren Resonators durch eine

### 3.3 Bestimmung der dielektrischen Verluste mit hemisphärischen Resonatoren

Korrektur mit dem Ladefaktor (LF) berechnen, der sich aus Gleichung (3.49) ableitet. Es gilt:

$$\frac{1}{Q_{0,\epsilon'}} = \frac{1}{Q_0} \text{LF} \quad \text{mit} \quad \text{LF} = \frac{L}{t\Delta+b} \frac{R_{S,p}\Delta+R_{S,s}}{R_{S,p}+R_{S,s}} \quad (3.51)$$

Mit dieser Korrektur ergibt sich schließlich folgender Ausdruck für den dielektrischen Verlusttangens:

$$\tan \delta = \text{FF} \left[ \frac{1}{Q_{\delta,\epsilon'}} - \frac{1}{Q_0} \text{LF} \right] \quad (3.52)$$

Geht man davon aus, daß die Oberflächenwiderstände beider Spiegel gleich sind ( $R_{S,s}=R_{S,p}$ ), dann kürzen sich im Ladefaktor die Oberflächenwiderstände heraus und man erhält eine Beziehung, die überwiegend in der Literatur zu finden ist [41,51-53]:

$$\text{LF} = \frac{L(\Delta+1)}{2(\Delta+t+b)} \quad (3.53)$$

Berücksichtigt man bei der Berechnung der Güte außer den Reflexionsverlusten  $P_R$  und den Absorptionsverlusten  $P_A$  auch die Verluste  $P_K$  durch das Koppelloch im sphärischen Spiegel, was nach den Ergebnissen aus Kapitel 3.2.1.2 durchaus sinnvoll erscheint, so gilt:

$$Q_{\delta,\epsilon'} = \frac{\omega W}{P_R+P_A+P_K} \quad (3.54)$$

Die Verlustleistung  $P_K$  beinhaltet die Koppelverluste und Streuverluste des Koppeloches. Behandelt man diese Verluste, als seien sie durch einen zusätzlichen Widerstand  $R_{S,K}$  entsprechend der Oberflächenwiderstände der metallischen Spiegel verursacht, so ändert sich der Ladefaktor (3.53) wie folgt:

$$\text{LF} = \frac{L}{(t\Delta+b)} \frac{M\Delta+1}{M+1} \quad \text{mit} \quad M = \frac{R_{S,p}}{R_{S,s}+R_{S,K}} \quad (3.55)$$

M beschreibt das Verhältnis der Widerstände und damit auch der Verlustleistungen vom planen Spiegel zum sphärischen Spiegel. Entsprechen die Probendicken einem ganzzahligen Vielfachen von  $\lambda/2\sqrt{\epsilon'}$ , dann wird  $\Delta=1$  und  $Q_{0,\epsilon'}=Q_0$ , d.h. die Koppellöcher bzw. Unterschiede im Oberflächenwiderstand der Spiegel haben keinen Einfluß auf die Auswertung des dielektrischen Verlusttangens. Bei Probendicken, die einem ungeradzahligen Vielfachen von  $\lambda/4\sqrt{\epsilon'}$  entsprechen, wird  $\Delta=\epsilon'$  und  $Q_{0,\epsilon'} \neq Q_0$ . Das bedeutet, daß die Koppellöcher bzw. die Oberflächenwiderstände zu berücksichtigen sind.

Mit verlustreichen Proben ist die Güte des beladenen Resonators deutlich kleiner als die des leeren Resonators. Dadurch ist in Gleichung (3.52) der Ausdruck in eckigen Klammern näherungsweise durch das Reziproke der beladenen Güte  $1/Q_{\delta,\epsilon'}$  ersetzbar, was heißt, daß auch in diesem Fall der Einfluß der Koppellöcher und der Oberflächenwiderstände vernachlässigbar ist. Bei Proben mit geringen dielektrischen Verlusten macht sich dieser Einfluß jedoch deutlich bemerkbar, wie in den folgenden Kapiteln gezeigt wird.

## 4 Experimentelle Details

### 4.1 Experimenteller Aufbau

#### 4.1.1 Charakterisierung der Resonatoren

Die Resonatoren, die zur Bestimmung der dielektrischen Eigenschaften benutzt wurden, sind ausschließlich hemisphärische offene Resonatoren. Sie bestehen aus einem planen und einem sphärischen Spiegel, die im Abstand  $L$  voneinander fest und vibrationsgedämpft fixiert sind. Dabei ist der Spiegelabstand etwas kleiner gewählt als der Krümmungsradius  $R$  des sphärischen Spiegels. Dies ist notwendig, da nach Kapitel 3.1.3 exakt hemisphärische Resonatoren ( $R=L$ ) instabil sind.

Die drei eingesetzten Resonatoren, deren Geometrie durch Tabelle 3.1 ausreichend charakterisiert ist, erlauben Messungen im Ku-Band bei Frequenzen zwischen 15 und 20 GHz, im Ka-Band bei Frequenzen zwischen 30 und 40 GHz und im D-Band im Frequenzbereich von 144 bis 146 GHz. Während die beiden erstgenannten Resonatoren bis zu sieben Grundmoden für die Messung bereitstellen, sind im D-Band, aufgrund der Schmalbandigkeit der mm-Wellen-Quelle, maximal 2 Grundmoden nutzbar. Insgesamt sind demnach Messungen bei 16 verschiedenen Frequenzen innerhalb der angegebenen Frequenzbereiche möglich.

Nach Gleichung (3.11) nehmen die Strahlradien der sich ausbildenden Gaußstrahlen mit der Wurzel der Wellenlänge zu. Entsprechend sollten sich Spiegelgröße bzw. die Mindestdurchmesser der Proben mit der Wellenlänge verändern, um Beugungsverluste an den Spiegel- bzw. Probenrändern vernachlässigen zu können. Die Radien der Spiegel sollten deshalb mindestens doppelt so groß sein, wie die Strahlradien am Ort derselben. Die entsprechenden Strahlradien am ebenen und sphärischen Spiegel sind in Tabelle 4.1 aufgeführt. Durch das Einbringen einer scheibenförmigen Probe verschiebt sich die Strahltaile (siehe Kapitel 3.2.1) in die Nähe der Grenzfläche Luft-Dielektrikum, wodurch die Strahlradien in der Probe abhängig von deren Dicke  $t$  etwas größer werden als in Tabelle 4.1 angegeben. Es zeigt sich, daß im Ku-Band-Resonator Mindestdurchmesser der Proben von 70 mm erforderlich sind, während im Ka- bzw. D-Band-Resonator Proben mit Durchmessern von mindestens 40 mm bzw. 20 mm genügen.

Bis auf den sphärischen Ku-Band-Spiegel, der aus Aluminium hergestellt wurde, sind alle Spiegel aus massivem Elektrolytkupfer gedreht. Die Oberflächen wurden sorgfältig poliert, um eine möglichst gute Oberflächenleitfähigkeit bzw. Reflektivität zu erreichen.

Um bevorzugt Grundmoden im Resonator anzuregen, wird die Energie auf der Achse des sphärischen Spiegels mit Hilfe einer irisförmigen Öffnung eingekoppelt. Da die Kopplungseigenschaften empfindlich von Größe und Form des Koppelloches bzw. von der Wellenlänge des eingekoppelten Mikrowellen-Signals abhängen (siehe Kap. 3.3.1.2), werden die Koppellocher sorgfältig dem benutzten Frequenzbereich angepaßt. Dies wird erreicht durch sukzessives Aufbohren mit Hilfe eines Handbohrers. Die letztendlich gemessenen Güten der drei

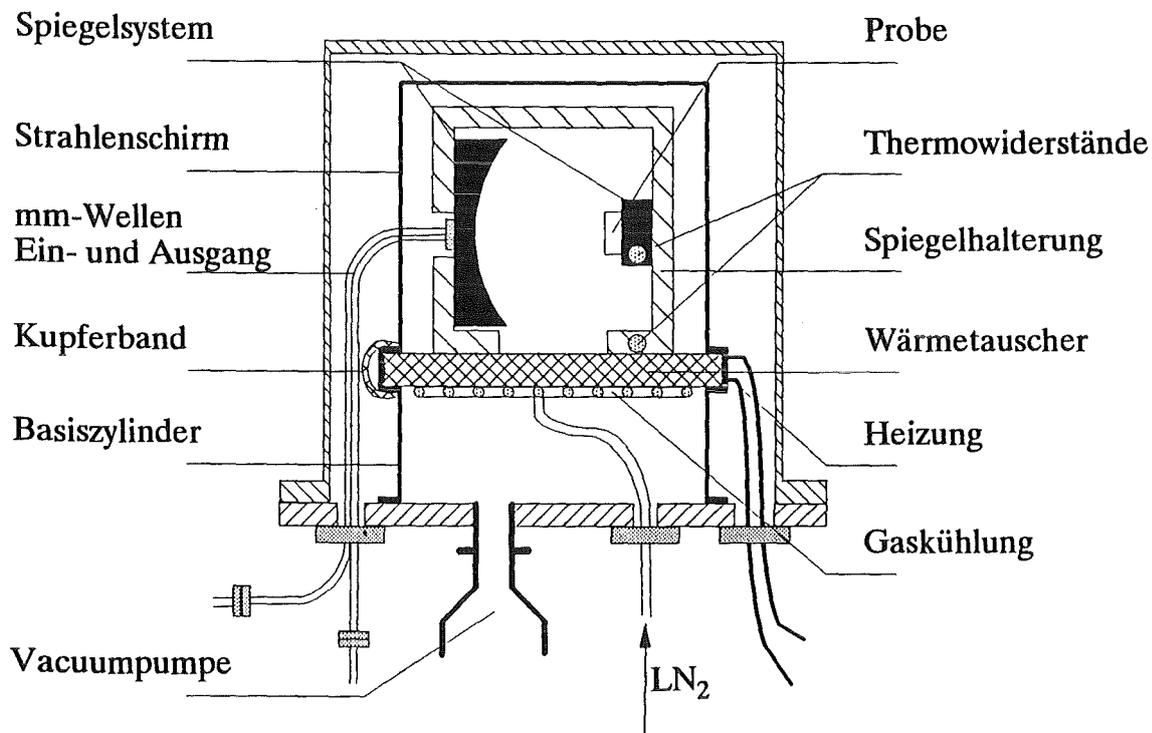
#### 4.1 Experimenteller Aufbau

Resonatoren, die in Tabelle 4.1 zu finden sind, stimmen in Anbetracht der durchgeführten Näherungen erstaunlich gut mit den theoretisch abgeschätzten Werten überein.

**Tabelle 4.1** Strahltaillien und Güten der eingesetzten Resonatoren

Resonator	$w_0$ mm	$w_2$ mm	$(w_0 k)^{-1}$	$Q_0$ exp.	$Q_0$ theor.
Ku-Band-Resonator	12.4	76.0	0.25	85000	120000
Ka-Band-Resonator	9.1	40.8	0.17	110000	130000
D-Band-Resonator	4.1	18.6	0.08	200000	170000

Der D-Band-Resonator ist fest auf dem kupfernen Wärmetauscher eines Verdampferkryostaten montiert (siehe Abbildung 4.1). Die Temperatur des Wärmetauschers wird kontrolliert durch eine auf der Unterseite spiralförmig verlötete Gasleitung, durch die flüssiger Stickstoff gepumpt wird, und durch einen um die Außenseite der Wärmetauscherplatte eingelassenen Heizdraht. Der Strahlenschutzschild, welcher die Wärmeeinstrahlung von außen auffangen soll, darf nicht, wie von der Entwicklerfirma vorgesehen, direkt auf dem Wärmetauscher festgeschraubt werden, da ansonsten der Resonator nicht reproduzierbar mechanisch verstimmt würde. Dies hätte eine um Größenordnungen schlechtere Meßgenauigkeit der Dielektrizitätskonstanten zur Folge. Der für tiefe Temperaturen notwendige Wärmekontakt zwischen Wärmetauscher und Schutzschild ließ sich durch flexible Kupferbänder herstellen.



**Abbildung 4.1** Skizze des Verdampferkryostaten

Dieser ganze Aufbau ist in einem Vakuumrezipienten von der Umgebung thermisch isoliert. Es ist damit möglich, die Temperatur zwischen 70 und 300K zu variieren. Durch den Einsatz

#### 4.1 Experimenteller Aufbau

von flüssigem Helium als Kühlmittel sind Temperaturen bis 25K erreichbar. Die Temperaturbestimmung erfolgt über eine 4-Punkt-Widerstandsmessung an Platin-Thermowiderständen (PT100), wobei ein Widerstand die Temperatur im Wärmetauscher mißt und ein zweiter die Temperatur des planen Spiegels, an dem sich die Probe fixieren läßt.

Mit abnehmenden Temperaturen verkleinert sich aufgrund der thermischen Ausdehnung des Resonators der Spiegelabstand und somit nach Gleichung (3.19) auch die Resonanzfrequenz. Die Resonanzfrequenz hängt empfindlich vom Spiegelabstand ab und kann sogar zur Bestimmung des Spiegelabstandes  $L$  mit einer Genauigkeit im Mikrometer-Bereich dienen. Abbildung 4.2 zeigt, daß der thermische Ausdehnungskoeffizient des Resonators gut mit dem linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Kupfer übereinstimmt. Daraus läßt sich schließen, daß keine größeren mechanischen Verformungen im Resonator auftreten, die das Resonanzverhalten zusätzlich beeinflussen könnten.

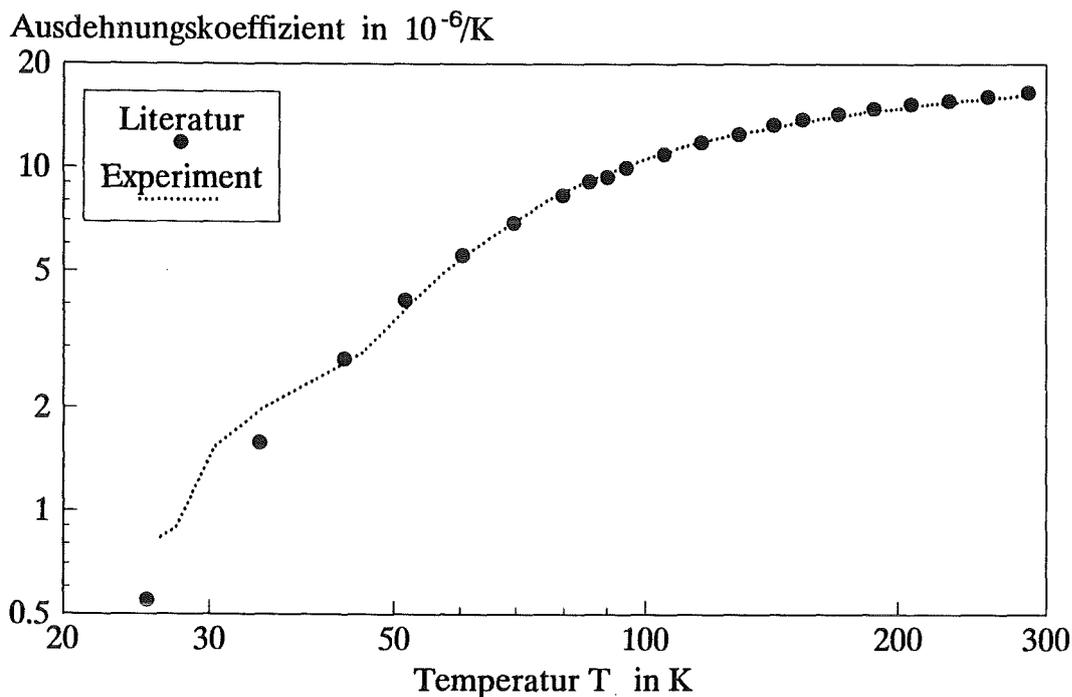


Abbildung 4.2 Gemessener thermischer Ausdehnungskoeffizient des Resonators im Vergleich mit Literaturwerten [54] des linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Kupfer

## 4.1.2

## Elektronik

Abbildung 4.3 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau für Messungen im Ku- bzw. Ka-Band. In beiden Fällen dient ein HP8430-Synthesizer als Quelle, der Frequenzen bis zu 20 GHz liefert. Dieses Signal wird verstärkt und im Ku-Band direkt in den Resonator eingekoppelt, während für die Messung im Ka-Band die nötigen Frequenzen von 30 bis 40 GHz zunächst mit Hilfe eines breitbandigen Verdopplers zu erzeugen sind. Um den Einfluß der am Koppelloch reflektierten Leistung auf die Signalerzeugung auszuschließen, ist dem Resonator ein Isolator vorgeschaltet.

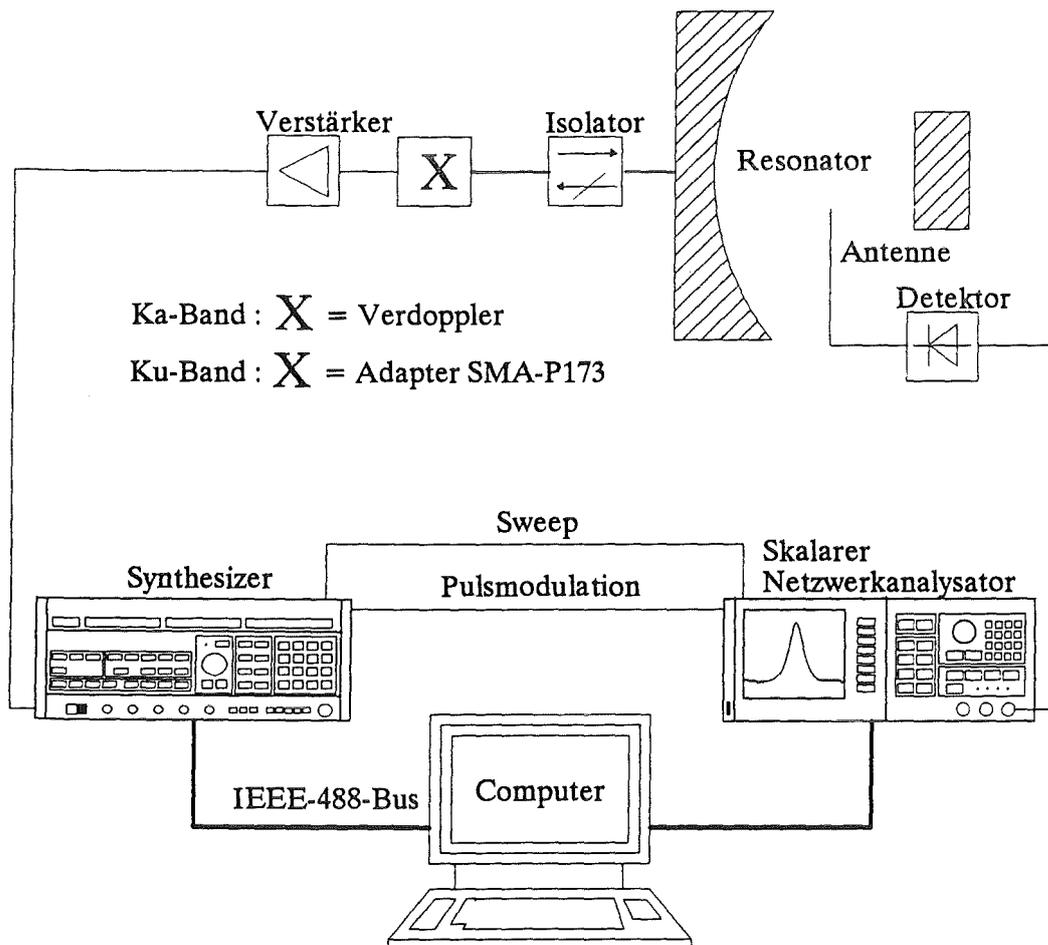


Abbildung 4.3 Schematische Darstellung des Ku- bzw. Ka-Band-Aufbaus

Ausgekoppelt wird das Signal mit Hilfe einer Antenne, die aus einem einfachen starren Koaxialkabel besteht. Dieses so ausgekoppelte Signal wird detektiert und mittels eines Skalarer Netzwerkanalysators (HP 8757A) gemessen. Die Antenne ist dabei - unter Beobachtung der Resonanzform auf dem Monitor des skalarer Netzwerkanalysators - so im Resonator zu plazieren, daß die Feldverteilung im Resonator so wenig wie möglich gestört wird, um die maximale Meßgenauigkeit zu erhalten.

Die Meßgeräte und ein Computer sind über einen HPIB-488 Datenbus miteinander verbunden, was eine Automatisierung des Meßvorganges mit anschließender Auswertung und Datensicherung mittels selbstgeschriebenen Computerroutinen ermöglicht.

#### 4.1 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau für Messungen im Frequenzbereich von 144 bis 146 GHz gestaltet sich etwas komplexer [55] (siehe Abbildung 4.4). Der in Zusammenarbeit mit dem Institut für Hochfrequenztechnik der Universität Karlsruhe von F. Königer entwickelte Aufbau [7] wurde so verbessert, daß auch hier eine vollständig rechnergesteuerte Messung möglich ist.

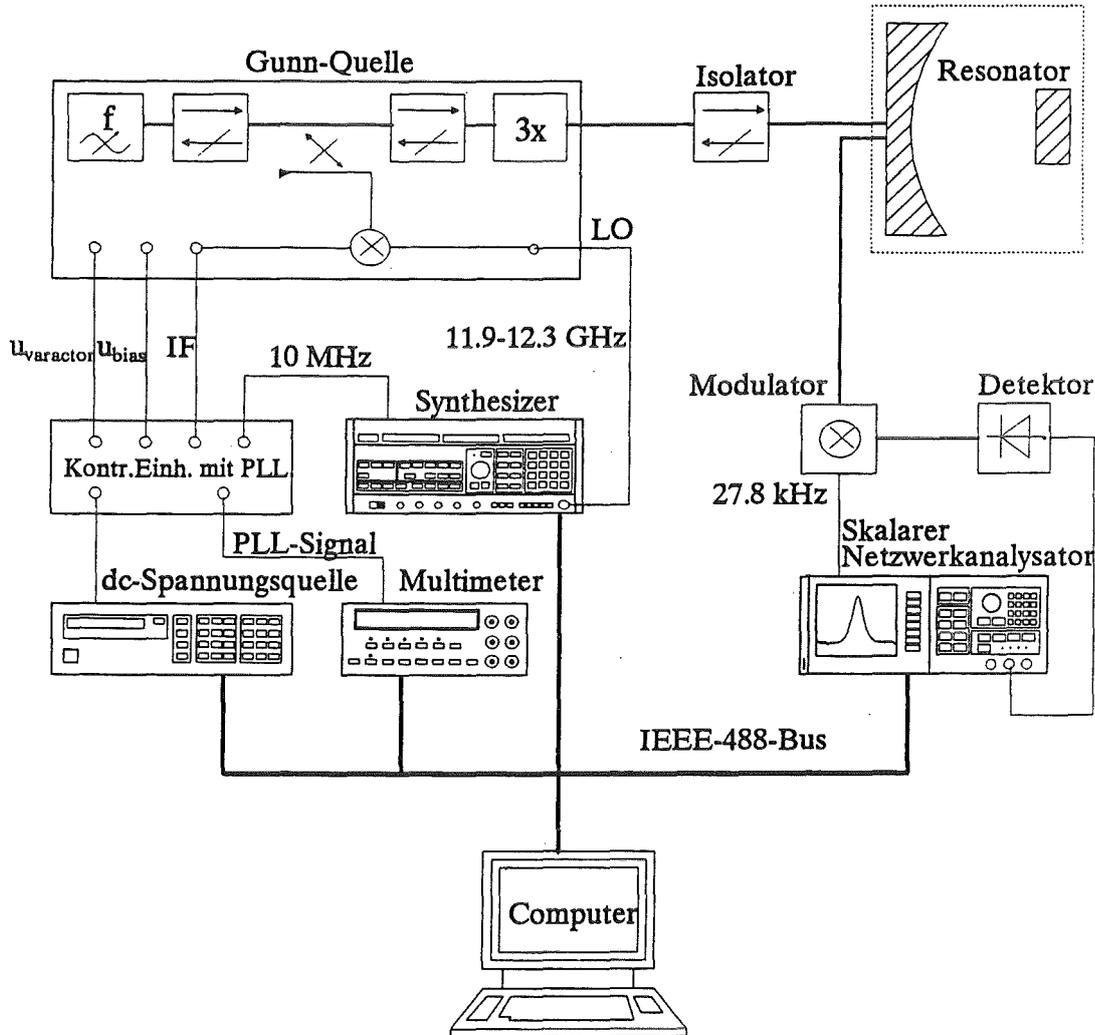


Abbildung 4.4 Schematische Darstellung des D-Band-Aufbaus

Ein wesentlicher Unterschied zum oben beschriebenen Aufbau im Ka- bzw. Ku-Band besteht in der Art der Frequenzerzeugung. Als Quelle dient hier ein über einen Varaktor abstimmbarer GUNN-Oszillator. Dies ist eine spezielle Halbleiterdiode, die durch Anlegen einer ausreichenden Spannung Millimeterwellen bei etwa 48 GHz abstrahlt. Zur Frequenzstabilisierung wird mittels eines Richtkopplers 1% der Leistung des GUNN-Signals ausgekoppelt und mit der vierten Harmonischen des als Lokaloszillator (LO) fungierenden Synthesizers harmonisch gemischt. Die dabei entstehende niederfrequente Zwischenfrequenz (IF) wird in einer Phasenstabilisierenden Schleife zur Erzeugung eines Regelsignals benutzt, welches wiederum der Varaktorspannung überlagert wird. Mit dieser Art der Stabilisierung erreicht man eine Frequenzstabilität des GUNN-Signals kleiner als  $10^{-7}$ . Ein Tripler erzeugt aus diesem Signal

die gewünschten Frequenzen von 144 bis 146 GHz mit einer Leistung von 5 dBm. Eine Modulation des Mikrowellen-Signals mit einer Frequenz von 27.8 kHz erhöht die Sensitivität aller Systeme um 10 dB. Während im D-Band-Aufbau die Modulation mit Hilfe einer PIN-Diode erreicht wird, erlaubt der Synthesizer eine interne Modulation für die Messungen im Ku- bzw. Ka-Band

## 4.2 Meßablauf

### 4.2.1 Messungen bei Raumtemperatur

Zur Bestimmung der dielektrischen Materialparameter werden die in Kapitel 3 beschriebenen Grundmoden der Resonatoren benutzt. Die Meßgrößen, die letztendlich zur Auswertung dienen, sind die Resonanzfrequenzen bzw. Güten dieser Grundmoden im leeren und beladenen Zustand. Es gibt zwei prinzipiell unterschiedliche Methoden zur Gewinnung dieser Größen. Zum einen können die Resonanzen bei konstantgehaltener Frequenz durch Variation der Resonatorlänge  $L$ , oder bei konstanter Resonatorlänge durch Variation der Frequenz des eingekoppelten Signals vermessen werden.

Der Bau einer festfrequenten Quelle mit ausreichender Frequenzstabilität ist deutlich einfacher und kostengünstiger als der Bau einer breitbandigen Quelle vergleichbarer Stabilität, was die erste Methode begünstigt. Sie hat jedoch den entscheidenden Nachteil, bei nur einer Frequenz messen zu können. Außerdem ist die Längenmessung der ersten Methode in ihrer Genauigkeit der Frequenzmessung der zweiten Methode deutlich unterlegen [7].

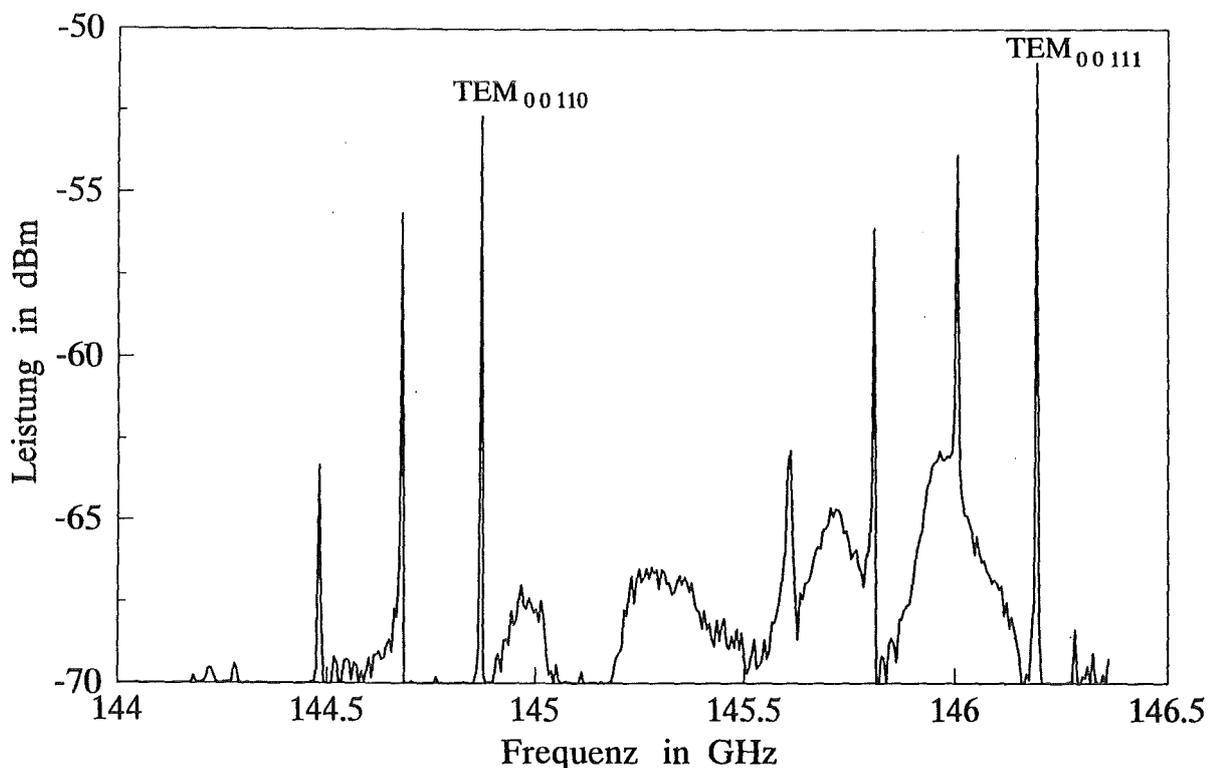


Abbildung 4.5 Transmissionsspektrum des D-Band-Resonators

Aus den genannten Gründen wird bei allen drei Resonatoren die Frequenzmethode angewandt. Der breitbandige, sweepfähige Synthesizer, der im Ka- und Ku-Band als Quelle eingesetzt wird, erleichtert in hohem Maße die Unterscheidung der Grundmoden von den Moden höherer Ordnung. Er läßt sich über einen Computer steuern, was eine Automatisierung des eigentlichen Meßprozesses ermöglicht. Abbildung 4.5 zeigt ein typisches Transmissionspektrum des D-Band-Resonators.

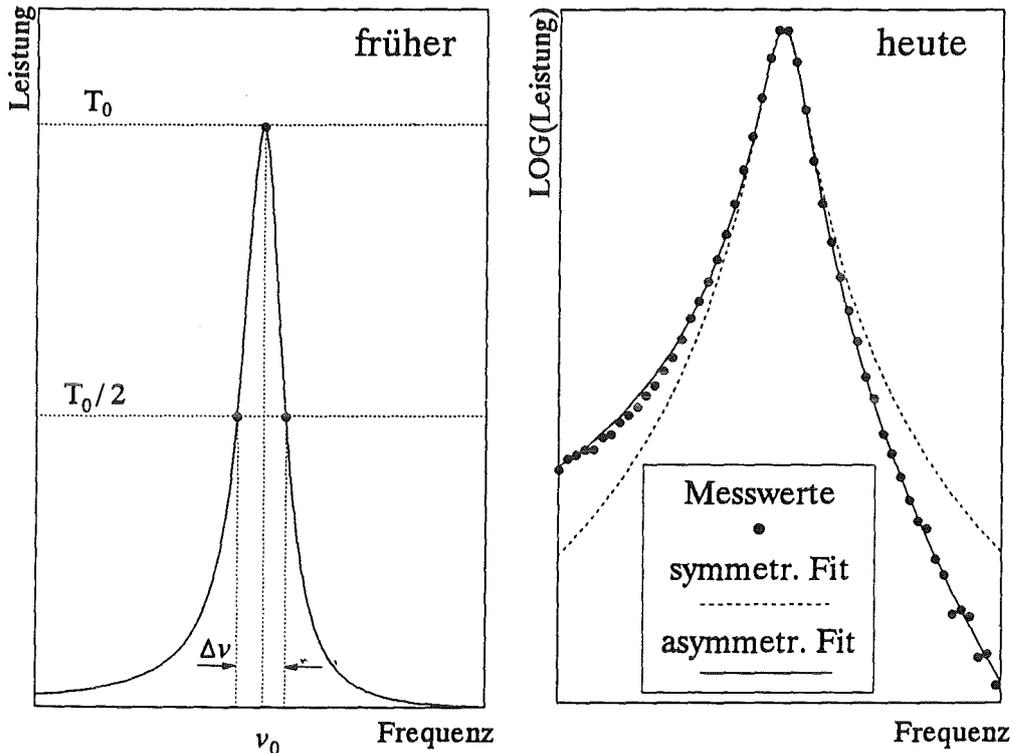


Abbildung 4.6 Ursprüngliche und verbesserte Meßmethode

Das ursprünglich benutzte Verfahren, bei dem die Resonanzfrequenz  $\nu_0$  direkt und die Güte  $Q$  der Resonanz ( $Q=\nu_0/\Delta\nu$ ) über die 3dB-Punkte gemessen wurde, konnte durch ein verbessertes Verfahren ersetzt werden (siehe Abbildung 4.6). Dieses mißt die transmittierte Leistung  $T(\nu)$  einer Resonanz in 100 äquidistanten Frequenzschritten. Anschließend lassen sich Resonanzfrequenz und Güte durch Anpassen einer theoretischen Resonanzfunktion, die lorentzförmig ist [31], nach dem Prinzip der kleinsten Fehlerquadrate bestimmen. Diese Methode zeichnet sich durch eine höhere Genauigkeit aufgrund der verbesserten Statistik aus, was sich vor allem bei schwach ausgeprägten, stark vom Systemrauschen überlagerten Resonanzen bemerkbar macht. Außerdem lassen sich systembedingte Störeffekte wie Modenüberlagerung oder Überkopplungserscheinungen, die zu asymmetrischen Resonanzformen führen, durch einen komplexen Zusatzterm  $t_1+it_2$  in der Anpassungsfunktion reduzieren. Aufgrund der skalaren Meßmethode lassen sich nur die Beträge des transmittierten Signals erfassen, was zu einer Anpassungsfunktion folgender Form führt:

$$T(\nu) = \left| \frac{t_0}{1+i2Q(\nu-\nu_0)/\nu_0} + t_1 + it_2 \right|^2 \quad (4.1)$$

Nach dieser Methode werden rechnergesteuert nacheinander zunächst die Grundmoden des leeren Resonators gemessen und anschließend die des beladenen Resonators. Bei der anschließenden Auswertung (siehe Kapitel 4.3) ist darauf zu achten, daß die Resonanzen des leeren bzw. beladenen Resonators möglichst nahe beieinander liegen, um systematische Fehler zu vermeiden, die durch frequenzabhängiges Koppelverhalten oder unterschiedliche Feldverteilungen im Resonator hervorgerufen werden können.

### 4.2.2 Temperaturabhängige Messungen

Der Kryostat reguliert die Temperatur des gesamten auf den Wärmetauscher montierten Resonators, was dazu führt, daß dessen Länge sich aufgrund der thermischen Ausdehnung mit der Temperatur ändert (siehe Abbildung 4.4). Während die Resonanzfrequenz  $\nu_{00q}$  nach Gleichung (3.19) sehr empfindlich auf kleine Änderungen des Spiegelabstandes reagiert, ändert sich die Güte dadurch nur unwesentlich. Deshalb ist zur Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten besonders auf die Reproduzierbarkeit des Spiegelabstandes zu achten. Zum Beladen des Resonators muß der Kryostat vollständig geöffnet und wieder geschlossen werden, was leicht zu einer mechanischen Verstimmung führen kann. Um dies zu verhindern, wird, wie in Kapitel 4.1 erläutert, der nötige Wärmekontakt zwischen Wärmetauscher und Strahlenschutzschild mit Hilfe flexibler Kupferbänder erzeugt.

Um Messungen bei stationären Temperaturen auszuführen, müssen Heizung und der Durchfluß an flüssigem Stickstoff so eingeregelt sein, daß der Wärmeaustausch des Resonators mit der Umgebung sich in einem dynamischen Gleichgewicht befindet. Solch ein Zustand ist jedoch im vorliegenden Verdampferkryostat nur mit viel experimentellem Geschick zu realisieren und noch viel schwieriger zu reproduzieren, womit sich eine genaue Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten nicht verwirklichen ließ. Außerdem erforderte diese ursprünglich benutzte Methode einen enormen zeitlichen Aufwand des Experimentators.

Durch eine Neukonstruktion der Spiegelhalterungen verbesserte sich der Wärmekontakt zwischen Resonator und Wärmetauscher, wodurch ursprünglich auftretende Temperaturgradienten von bis zu 20 K auf maximal 1K reduziert werden konnten.

Das in Kapitel 4.1 beschriebene neue Meßverfahren, welches in einer relativ kurzen Zeit von ca. 60 Sekunden Resonanzfrequenz und Güte zu bestimmen vermag, ermöglicht Messungen bei sich langsam verändernder Temperatur, wodurch das aufwendige Einstellen eines stationären Zustandes entfällt. Ändert sich die Temperatur nur langsam und in dem kurzen Zeitintervall von 60 Sekunden nahezu linear, so kann der Einfluß der Temperaturdrift während der Datenaufnahme dadurch eliminiert werden, daß die Resonanz einmal mit steigender und ein zweites Mal mit fallender Frequenz durchgemessen wird. Das arithmetische Mittel der errechneten Resonanzfrequenzen und Güten sind dann von der Temperaturdrift unabhängig.

Um Resonanzfrequenz und Güte über den gesamten Temperaturbereich zu messen, wird der Kryostat zunächst auf die kleinste erreichbare Temperatur (ca. 70K bei flüssigem Stickstoff bzw. 25K bei flüssigem Helium) abgekühlt. Anschließend wird die Kühlung ausgeschaltet, wodurch sich der Kryostat bis auf Raumtemperatur frei erwärmt. Die hohe Wärmekapazität

der massiven Kupferspiegel und deren Halterung verhindert dabei ein zu schnelles Erwärmen. Ab 190K wird nach und nach die Leistung der elektrischen Heizung auf 25 Watt hochgeregelt, um den Aufwärmprozeß im oberen Temperaturbereich etwas zu beschleunigen. Während der Aufwärmphase wird vollständig rechnergesteuert das oben beschriebene Meßverfahren wiederholt, wodurch in einer Zeit von etwa 17 Stunden quasikontinuierlich über den gesamten Temperaturbereich von 70K bis 300K etwa 800 Datenpunkte gemessen und abgespeichert werden können. Mit Messungen bei stationären Temperaturen waren im gleichen Zeitraum höchsten 3 bis 4 Meßpunkte zu gewinnen bei gleichzeitig größerer Streubreite wie in Abbildung 4.7 zu sehen ist.

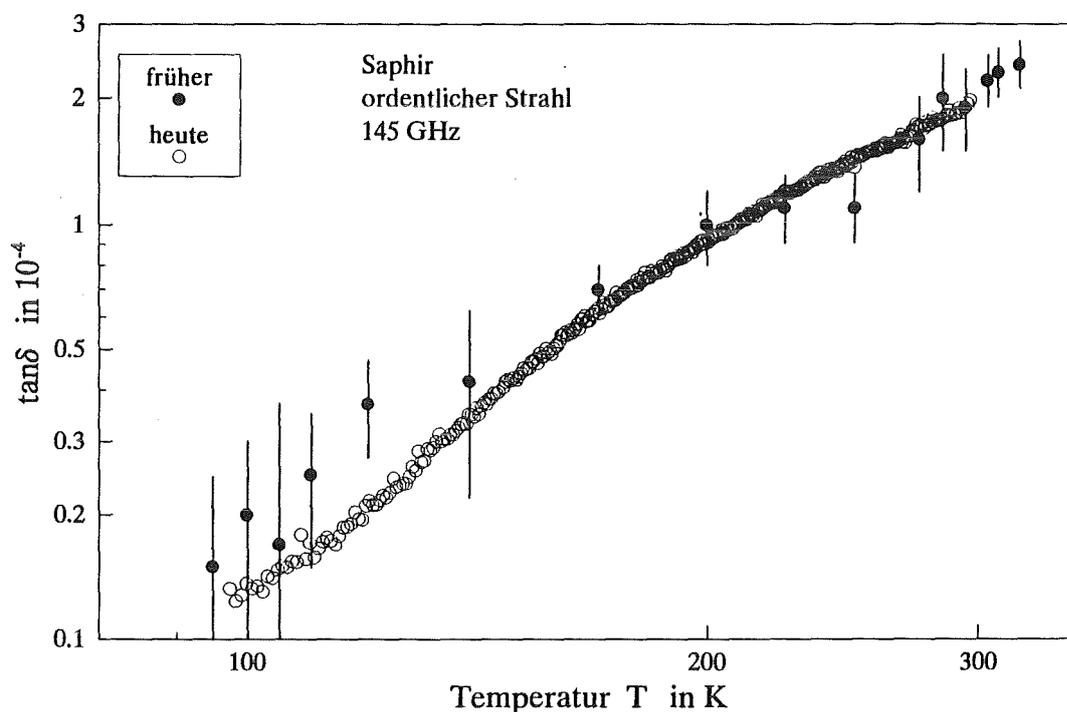


Abbildung 4.7 Erreichbare Datendichte früher [56] und heute

### 4.3 Auswertemethoden und Fehlerbetrachtung

#### 4.3.1 Dielektrizitätskonstante

Die Werte für die Dielektrizitätskonstante werden ausschließlich durch Lösen der aus der Resonatortheorie resultierenden transzendenten Gleichung (3.24) bzw. (3.27) mit Hilfe des Newtonschen Iterationsverfahren gewonnen. Da immer mehrere Lösungen möglich sind, ist es notwendig, einen Startwert in der Nähe des zu erwartenden Wertes vorzugeben. Im folgenden sollen die in Kapitel 3.2 erläuterten Ansätze, denen eine skalarfeldtheoretische (SFT) bzw. vektorfeldtheoretische (VFT) Betrachtung des Resonatorproblems zugrunde liegt, gegenübergestellt werden. Dabei werden alle vorgeschlagenen Korrekturen (Gleichungen (3.25), (3.26) und (3.28)) benutzt, die aus der Fehlanpassung der planen Probenoberfläche an die sphärischen Phasenflächen der Resonatormoden folgen.

Abbildung 4.8 zeigt Messungen mit dem Ka-Band-Resonator an einer Saphirprobe im ordentlichen Strahl, die mit den unterschiedlichen Verfahren ausgewertet wurden. Die Ergebnisse sind aufgetragen über  $N_{\lambda/2}$ , der Anzahl der halben Wellenlängen, die in die Probe passen. Die Messungen wurden mit einer einzigen Probe bei unterschiedlichen Grundmoden  $TEM_{00q}$  durchgeführt, wodurch sich  $N_{\lambda/2}$  entsprechend der Frequenz bzw. der Wellenlänge der Grundmoden ändert.

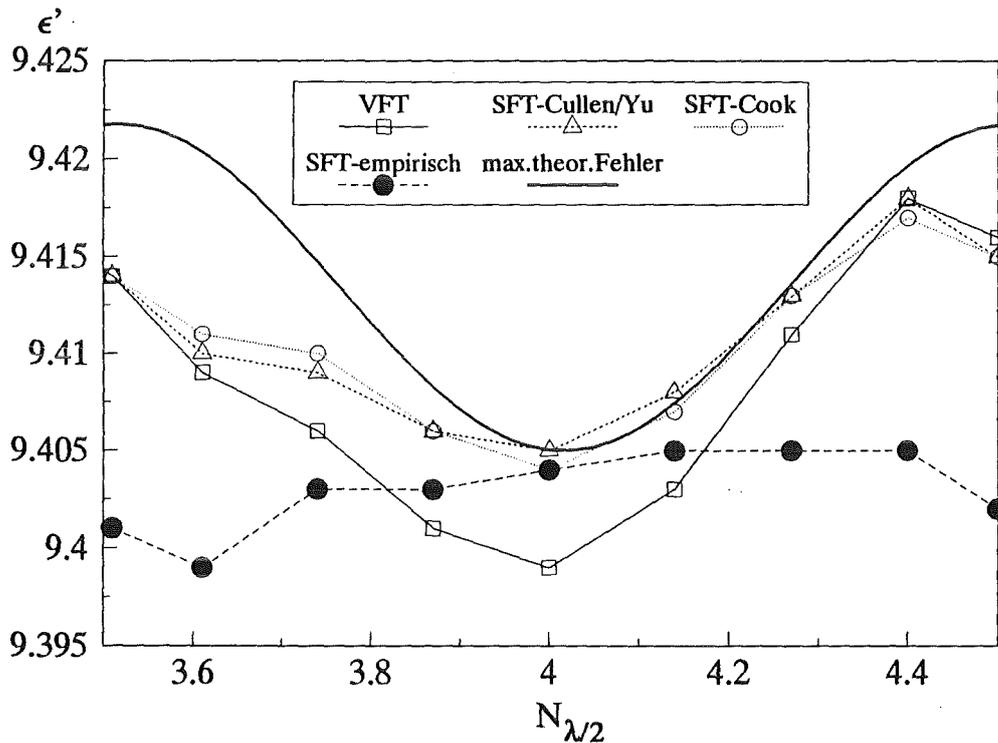


Abbildung 4.8 Vergleich der verschiedenen Auswertemethoden zur Bestimmung der Dielektrizitätskonstanten

Man erkennt, daß die von Cook für die SFT angebotene Dickenkorrektur (3.26) bzw. die von Cullen und Yu vorgeschlagene Korrektur der Wellenzahl  $k$  (3.25) äquivalent sind, wie in Kapitel 3.2 behauptet wurde. Die VFT, welche die Resonanzfrequenzen des leeren Resonators mit einer Genauigkeit von  $(kw_0)^{-6}$  zu bestimmen vermag - gegenüber der Genauigkeit von  $(kw_0)^{-4}$  der SFT - [42], bringt, wie Abbildung 4.8 zeigt, keine deutliche Verbesserung. Die beste Übereinstimmung der errechneten Dielektrizitätskonstanten für alle Frequenzen, ist durch eine empirische Anpassung der Probendicke  $t$  zu erreichen [57]

Diese empirische Methode wird im folgenden zusammen mit der Dickenkorrektur von Cook et al [41] verwendet. Sie ist jedoch nur praktikabel, wenn, wie bei den Messungen im Ku- und Ka-Band, mehrere Grundmoden zur Verfügung stehen. Beim D-Band-Aufbau, der aufgrund der schmalbandigen Quelle nur Messungen bei maximal 2 Frequenzen erlaubt, wird die im Ka-Band empirisch ermittelte Probendicke für die Auswertung benutzt.

Die in Abbildung 4.8 bei den ersten drei Auswertemethoden zu beobachtende Variation in der Dielektrizitätskonstanten läßt sich nach Jones [58] durch einen Fehler in der Probendicke

t erklären. Cullen und Yu haben gezeigt [42], daß der Einfluß solch eines Fehlers periodisch in  $N_{\lambda/2}$  variiert und bei Probendicken, die einem ungeradzahligem Vielfachen von  $\lambda/4\sqrt{\epsilon'}$  entsprechen, maximal wird. Bei resonanten Proben ist der Einfluß kleiner Fehler in der Dicke t hingegen nahezu vernachlässigbar. Der durch einen fehlerhaften Wert der Probendicke verursachten Fehler in der Dielektrizitätskonstanten läßt sich wie folgt abschätzen:

$$d\epsilon' = 2 \sin^2 \left( \sqrt{\epsilon'} kt - \Phi_t \right) (\epsilon' - 1) \frac{dt}{t} . \quad (4.2)$$

Fehler im Krümmungsradius R des sphärischen Spiegels wirken sich ebenfalls auf die berechnete Dielektrizitätskonstante aus. Deren Einfluß ist jedoch geringer und weitgehend auszuschließen, wenn man die Krümmungsradien mit Hilfe der Gleichung (3.19) aus den gemessenen Resonanzfrequenzen des leeren Resonators berechnet.

### 4.3.2 Dielektrischer Verlusttangens

Der dielektrische Verlusttangens wird für alle Materialien und Resonatoren nach der skalarfeldtheoretischen Gleichung (3.52) und (3.55) aus den Güten  $Q_{\delta,eff}$  und  $Q_0$  des beladenen bzw. leeren Resonators berechnet. Das durch die Theorie nicht berücksichtigte Volumen zwischen der Grenzfläche Dielektrikum-Luft und der Phasenfläche an dieser Stelle, wird auch hier durch eine Dickenkorrektur entsprechend Gleichung (3.25) erfaßt.

Neben einer statistischen Streuung der Gütewerte, die aus einer Anpassung der theoretischen Transmissionsfunktion 4.1 an die gemessene resultiert, entstehen Fehler bei der Berechnung des Ladefaktors (3.55), mit dem die Güte des leeren Resonators  $Q_0$  zu korrigieren ist, um die fiktive Güte  $Q_{0,eff}$  zu erhalten. Eine exakte Berechnung dieses Faktors setzt voraus, daß die Oberflächenwiderstände  $R_{S,s}$  und  $R_{S,p}$  des sphärischen bzw. planen Spiegels und außerdem die durch  $R_K$  charakterisierten Koppelverluste bekannt sind.

Die Summe all dieser Widerstände erhält man mit der Güte  $Q_0$  des leeren Resonators und dem Geometriefaktor (3.32) wie folgt:

$$R_{S,s} + R_{S,p} + R_{S,K} = \frac{G}{Q_0} . \quad (4.3)$$

Die Oberflächenwiderstände  $R_{S,s}$  und  $R_{S,p}$  sollten sich nach Gleichung (3.33) aus der Leitfähigkeit und der Skintiefe des Spiegelmaterials berechnen lassen. Durch die geringe Eindringtiefe des elektromagnetischen Feldes wirkt sich jedoch die Oberflächenstruktur der Spiegel auf deren Oberflächenleitfähigkeit aus. Die durch die mechanische Bearbeitung entstehenden mikroskopischen Riefen und Defekte der metallischen Struktur in der Oberfläche wirken als Streuzentren für die elektrischen Abschirmströme, woraus eine Erhöhung der Oberflächenwiderstände resultiert [59,60]. Eine im Lauf der Zeit auftretende Oxidation der Spiegeloberflächen wirkt sich ebenfalls nachteilig auf deren Reflexionseigenschaften aus.

Um den Einfluß der Oberflächenbeschaffenheit der eingesetzten Spiegel quantifizieren zu können, wurden die ebenen Kupferspiegel der Resonatoren gegen Kupferspiegel ausgetauscht, deren Oberflächen zunächst mit Diamantwerkzeug gedreht und anschließend

elektropoliert wurden. Auf diese Weise bearbeitete Spiegel zeichneten sich deutlich durch die besten Reflexionseigenschaften aus.

Vergleicht man die Güten  $Q_0$  der zur Messung benutzten Resonatoren mit den Güten  $Q_{0,ep}$ , die man mit den elektropolierten Spiegeln mißt, dann läßt sich der zusätzliche Oberflächenwiderstand  $R_{S,D}$  durch die Oberflächendefekte abschätzen, wenn man annimmt, daß der Oberflächenwiderstand der elektropolierten Spiegel aufgrund ihrer hohen Qualität gegenüber den Literaturwerten nicht erhöht ist. Da der Geometriefaktor  $G$  und die Widerstände  $R_{S,s}$  und  $R_{S,K}$  durch den Umbau unverändert bleiben, gilt:

$$R_{S,D} = G \left( \frac{1}{Q_0} - \frac{1}{Q_{0,ep}} \right). \quad (4.4)$$

Geht man davon aus, daß die Oberflächenwiderstände der ebenen bzw. sphärischen Spiegel aufgrund gleicher Bearbeitung gleichermaßen erhöht sind, so läßt sich auch der durch die Koppellöcher bedingte Verlustwiderstand  $R_{S,K}$  abschätzen:

$$R_{S,K} = \frac{G}{Q_{0,ep}} - \left( R_{S,p} + R_{S,s} + 2R_{S,D} \right). \quad (4.5)$$

Die Ergebnisse für  $R_{S,D}$  und  $R_{S,K}$ , welche die Messungen an den drei eingesetzten Resonatoren liefern, sind in Tabelle 4.2 aufgelistet. Insofern die drei Resonatoren vergleichbar sind, erkennt man, daß der Oberflächendefekt-Widerstand  $R_{S,D}$  mit der Frequenz ansteigt. Dies würde man auch erwarten, da die Skintiefe mit höherwerdender Frequenz abnimmt (3.33) und somit der Einfluß der defektbehafteten bzw. oxydierten Schicht wächst [60].

**Tabelle 4.2** Verlustwiderstände der Resonatorspiegel

	Ku-Band 15GHz		Ka-Band 35GHz	D-Band 145GHz
	pl. Spiegel	sph. Spiegel	pl./sph. Spiegel	pl./sph. Spiegel
Material	Cu	Al	Cu	Cu
$R_{S,th}$ mΩ	32.2	38.7	47.8	98.8
$R_{S,D}$ mΩ	2.1 ± 1.1	18.3 ± 3.2	6.6 ± 4.2	12.3 ± 6.5
$R_{S,K}$ mΩ	7.4 ± 3.4		22.8 ± 4.9	94 ± 14
$\Sigma$ mΩ	99.7 ± 7.7		131.6 ± 13.3	316.2 ± 20.5
M	0.548 ± 0.073		0.705 ± 0.137	0.458 ± 0.086

Mit der Kenntnis von  $R_{S,D}$ ,  $R_{S,K}$  und den theoretischen Oberflächenwiderständen  $R_{S,th}$  läßt sich der Ladefaktor (3.55) bzw. der darin enthaltene M-Faktor abschätzen (siehe Tabelle 4.2). Der Fehler beim Berechnen dieses Parameters ist relativ groß und beträgt beim Ka-Band-Resonator nahezu 20%. Solche Fehler wirken sich wie folgt auf die ermittelten Verlusttangens-Werte aus:

$$d \tan \delta = -FF \frac{1}{Q_{0,1}} \frac{L}{t\Delta + b} \frac{\Delta - 1}{(M+1)^2} dM. \quad (4.6)$$

Wie in Kapitel 4.2 erläutert, macht sich der Einfluß des M-Faktors und somit dessen Ungenauigkeit auf die berechneten  $\tan\delta$ -Werte ausschließlich bei nichtresonanten, verlustarmen Proben ( $\Delta \neq 1$ ) bemerkbar, d.h. bei Proben, deren Dicken nicht exakt einem ganzzahligen Vielfachen von  $\lambda/2\sqrt{\epsilon'}$  entsprechen. Aus diesem Grund empfiehlt es sich möglichst resonante Scheiben aus dem zu untersuchenden Material zu benutzen. Dies empfiehlt sich vor allem im D-Band-Resonator, mit dem im Gegensatz zu den anderen Resonatoren nur bei maximal 2 Frequenzen gemessen werden kann.

Sowohl systematische als auch statistische Fehler in den gemessenen Güten wirken sich auf die Genauigkeit der  $\tan\delta$ -Werte aus. Die Streubreite der Gütemessung liegt im Mittel bei etwa 2%. Sie hängt jedoch davon ab, wie stark die Resonanz vom Systemrauschen überlagert bzw. wie sehr ihre Form durch Überkopplungseffekte gestört ist und kann zwischen 1% und 5% variieren. Es gilt:

$$d \tan \delta = FF \left( LF \frac{1}{Q_{0,1}^2} dQ_{0,1} + \frac{1}{Q_{\delta,\epsilon'}^2} dQ_{\delta,\epsilon'} \right) . \quad (4.7)$$

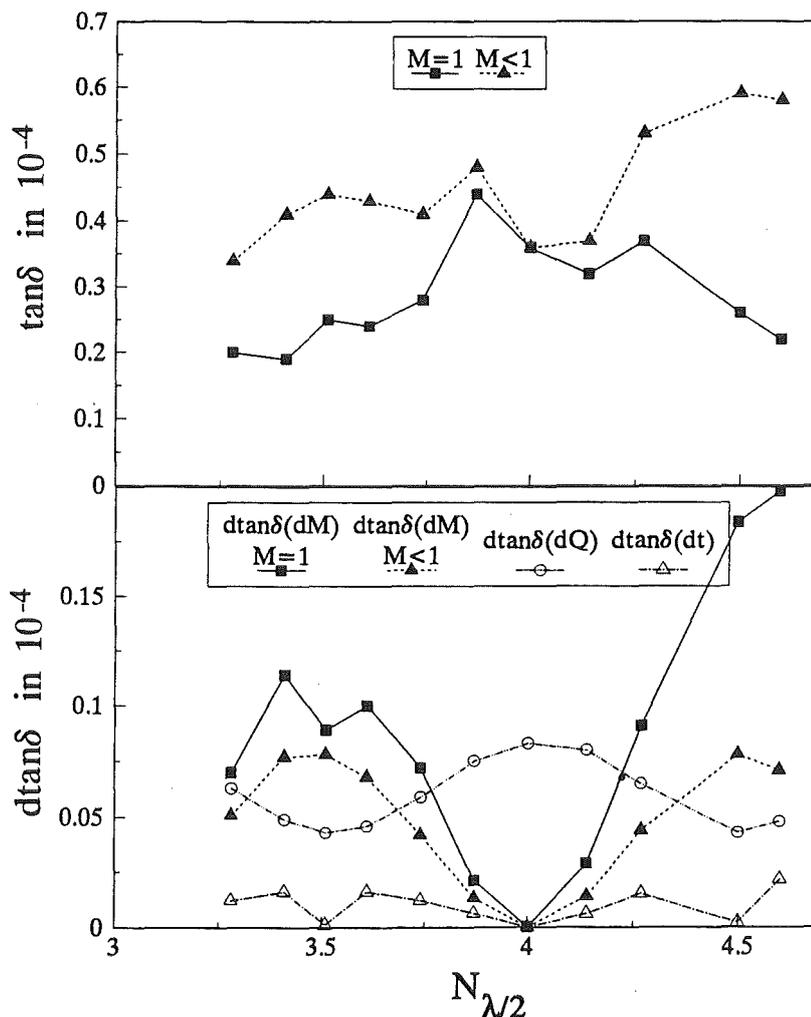


Abbildung 4.9 Berechnete  $\tan\delta$ -Werte für Ka-Band-Messungen an Saphir im ordentlichen Strahl nach der konventionelle ( $M=1$ ) und korrigierten Methode ( $M>1$ ) mit den berechneten Fehlern

Abbildung 4.9 zeigt eine Raumtemperaturmessung mit dem Ka-Band-Resonator an einer Saphirprobe im ordentlichen Strahl. Die Quadrate sind mit dem konventionellen Ladefaktor (3.53) berechnet, während die Dreiecke aus dem korrigierten Ladefaktor (3.55) resultieren. Gleichzeitig sind die nach Gleichung (4.6) und (4.7) berechneten absoluten Fehler dargestellt. Man erkennt, daß die Werte der konventionellen Theorie alle niedriger liegen, insbesondere bei halbzahligen Werten in  $N_{\lambda/2}$ .

Bei den Tieftemperaturmessungen mit dem D-Band-Resonator ist der Ladefaktor für jede Temperatur gesondert zu bestimmen. Da der spezifische Widerstand des Spiegelmaterials und damit die Skintiefe mit fallender Temperatur stark abnehmen, macht sich der Einfluß einer schlechtleitenden Oberfläche stärker bemerkbar. Geht man davon aus, daß die Koppelverluste  $R_{S,K}$  sich nicht mit der Temperatur ändern, weil eine thermische Expansion der Koppelöcher und eine damit verbundene Änderung im Koppelverhalten vernachlässigbar ist, so läßt sich für den gesamten Temperaturbereich der Raumtemperaturwert von  $R_{S,K}$  zur Berechnung des Ladefaktors benutzen.

Der temperaturabhängige Anteil  $R_{S,D}(T)$  an den Gesamtverlusten, der durch die defekte Oberfläche entsteht, berechnet sich demnach wie folgt aus der gemessenen leeren Güte  $Q_0(T)$ :

$$R_{S,D}(T) = \frac{1}{2} \left( \frac{G(T)}{Q_0(T)} - 2R_{S,th}(T) - R_{S,K} \right) . \quad (4.8)$$

Abbildung 4.10 zeigt die Temperaturabhängigkeit der einzelnen Anteile am gesamten Verlustwiderstand und des M-Faktors, der sich daraus ergibt.

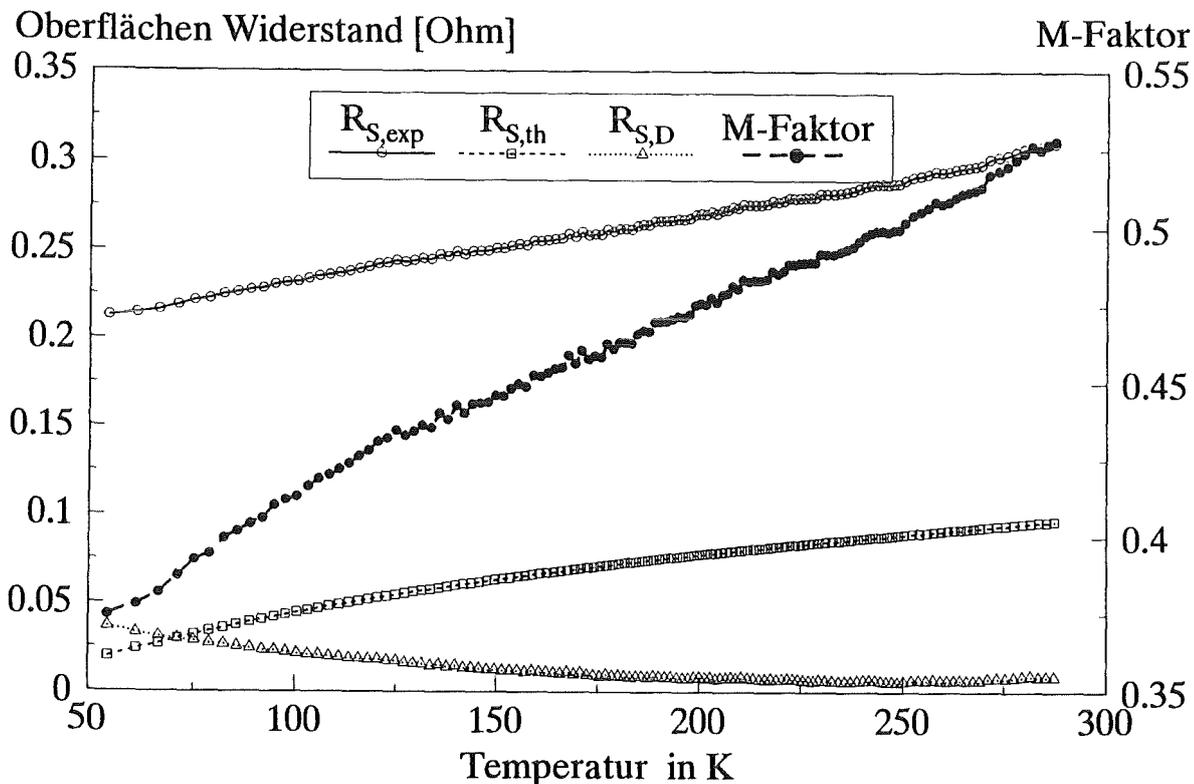


Abbildung 4.10 Temperaturabhängigkeit der Verlustwiderstände im D-Band-Resonator

Um zu verdeutlichen, welchen Einfluß das Einführen des M-Faktors auf die Auswertung hat, sind in der folgenden Abbildung 4.11 Meßergebnisse von Saphirproben unterschiedlicher Dicke im ordentlichen Strahl dargestellt, die zum einen konventionell ( $M=1$ ) und zum anderen mit dem korrigierten Algorithmus ( $M=M(T)<1$ ) gewonnen wurden. Man erkennt, daß ein fehlerhafter M-Faktor bei nichtresonanten Proben zu einer deutlichen Erniedrigung der Ergebnisse führt. Teilweise treten sogar physikalisch sinnlose negative Verlusttangens-Werte auf. Bei korrekten M-Faktoren sind die Ergebnisse für alle Probendicken konsistent.

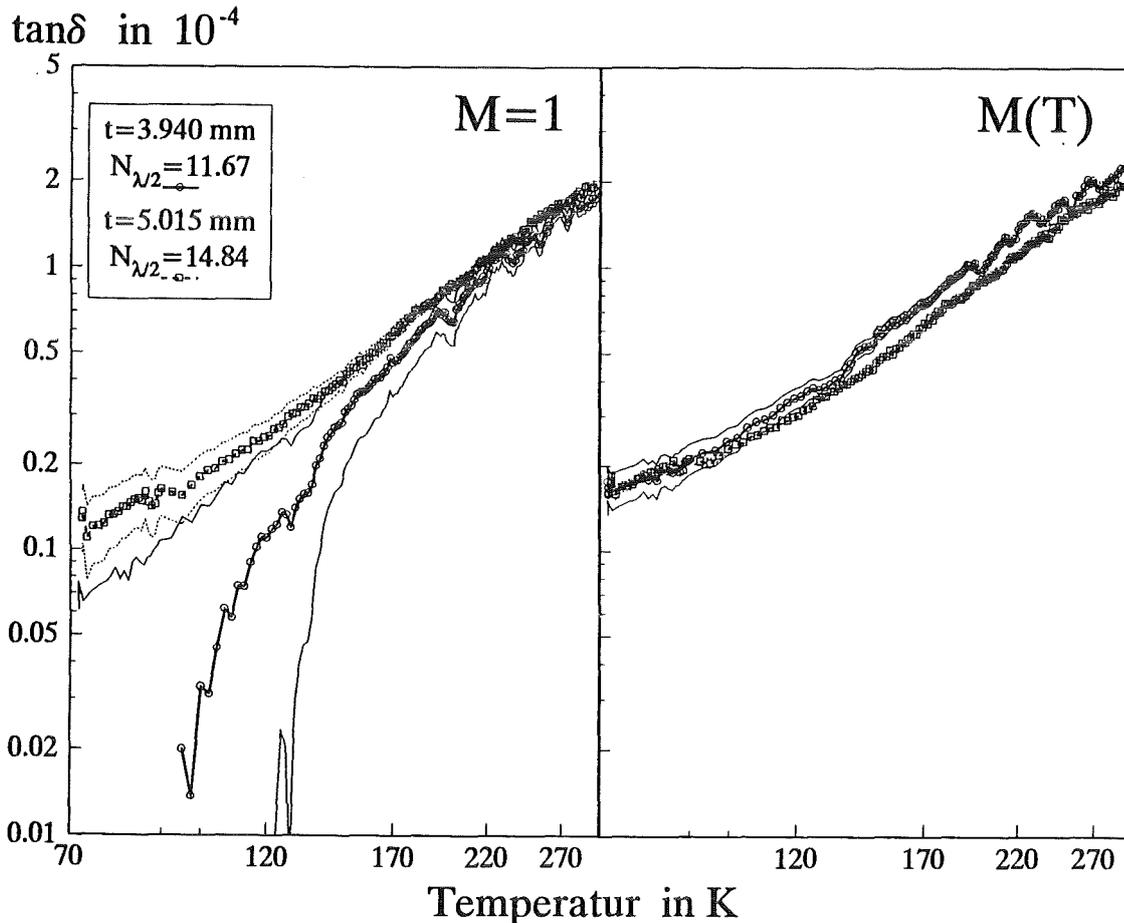


Abbildung 4.11 Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  für Saphirproben unterschiedlicher Dicke. Ausgewertet nach der konventionellen Methode ( $M=1$ ) und der korrigierten Methode ( $M(T)$ ). Die dünnen Linien markieren die mit Gleichung (4.6) berechneten oberen bzw. unteren Fehlergrenzen

#### 4.4 Charakterisierung des Probensatzes

Unterschiedliche Alkalihalogenide mit ihrer einfachen kubisch flächenzentrierten NaCl-Struktur bilden die Grundlage dafür, die bestehenden Literaturdaten, die teilweise über 25 Jahre alt sind, zu überprüfen und für neue Temperatur- und Frequenzbereiche zu vervollständigen. Sie eignen sich besonders, theoretische Modelle, die überwiegend für diese einfachen Kristalle entwickelt wurden, zu überprüfen. Die untersuchten Kristalle sind LiF, NaCl, KCl und KBr, die als optisch polierte Scheiben in den notwendigen Dicken und Durchmessern

von der Firma Steeg & Reuter (Gießen) bezogen wurden. NaCl, KCl und KBr sind stark hygroskopisch, weshalb sie zusammen mit Trockenmittel luftdicht aufzubewahren sind.

Um überprüfen zu können, inwieweit sich solche an Alkalihalogeniden getestete Modelle zur mm-Wellen-Absorption auf andere Kristallklassen übertragen lassen, wurden von der gleichen Firma CaF<sub>2</sub> und BaF<sub>2</sub>-Kristalle bezogen, die mit ihrer kubisch flächenzentrierten CaF<sub>2</sub>-Struktur ähnliche Symmetrieeigenschaften aufweisen.

Messungen an MgF<sub>2</sub> (Steeg & Reuter) sollen Aufschluß darüber geben, wie gut sich solche einfachen Modelle auf Kristalle komplexerer Struktur übertragen lassen.

Eine chemische Analyse mittels Atomemissions-Spektroskopie zeigt nur schwache metallische Verunreinigungen im ppm-Bereich, die teilweise unterhalb der durch die Reinheit der Eichsubstanzen vorgegeben Nachweisgrenze liegen (siehe Tabelle 4.4 - die in Klammer angegebenen Werte entsprechen der Standardabweichung in der letzte Ziffer). Die analytische Gruppe ist damit beschäftigt, eine neue Analyse-Methode zur empfindlichen Halogenbestimmung zu entwickeln. Entsprechende Ergebnisse liegen deshalb bisher noch keine vor.

Um die von der Firma Steeg & Reuter gekauften Proben eindeutig zuordnen zu können, wurden mit Hilfe von Röntgenbeugungsanalysen die Gitterparameter der einzelnen Kristalle bestimmt.

Da Saphir als Referenzmaterial für die kryogen gekühlten mm-Wellen-Fenster gilt, wurden in dieser Arbeit unterschiedliche Qualitäten untersucht. Für die Untersuchungen dieser Arbeit wurden Proben aus einkristallinem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> benutzt, die mit dem Czochralski Verfahren (CZ) bzw. mit der Wärmeaustausch-Methode (Heat Exchange Method (HEM)) hergestellt wurden. Während bei der ersten Methode der Kristall aus der Oberfläche der Schmelze gezogen wird findet bei der zweiten Methode die Kristallbildung auf dem Boden der Schmelze statt. Der CZ-Saphir, wie er von Union Carbide (San Diego, USA) hergestellt wird, läßt sich über die Firma Roditi GmbH (Hamburg, D) beziehen und der von Crystal Systems (Salem, USA) produzierte HEMEX-Saphir wurde von der Firma Döhler (Karlsbad, D) geliefert. Die dielektrischen Eigenschaften des HEMEX-Saphir sind von besonderem Interesse, da diese Qualität derzeit für die Fensterentwicklung im Kernforschungszentrum Karlsruhe eingesetzt wird.

Der Einfluß gezielter Verunreinigungen läßt sich an einem Ti-dotierten Saphir studieren, der für den Einsatz in Festkörper-Lasern entwickelt wurde. Er läßt sich am ehesten mit dem HEMEX-Saphir vergleichen, da er nach dem gleichen Verfahren hergestellt ist, mit dem Unterschied, daß etwa 0.03 Gew.% TiO<sub>2</sub> der Schmelze beigegeben wurden. Die Ergebnisse chemischer Analysen, die aufgrund der geringen Verunreinigungen und der Gefahr der Kontamination beim Lösungsprozeß schwierig durchzuführen sind, zeigt Tabelle 4.4.

Als ein möglicher Alternativwerkstoff zum Bau von kryogen gekühlten Fenstern gilt Quarz (einkristallines SiO<sub>2</sub>), da seine dielektrischen Verluste bei Zimmertemperatur deutlich kleiner sind als im Saphir. Diese Vorzüge als Fenstermaterial werden durch die schlechtere Wärmeleitfähigkeit wieder aufgehoben. Zwei unterschiedliche Qualitäten, die von der Firma

Steeg & Reuter als konventioneller Quarz und Naturquarz erhältlich sind wurden auf ihre dielektrischen Eigenschaften untersucht.

Alle ausgewählten Einkristalle sind optisch transparent. Optische Transmissionsspektren vom IR-Bereich bis zum nahen UV-Bereich (1100 nm bis 200 nm) von einem Prismenspektrometer von Perkin Elmer ( $\lambda/2$ ) wurden dazu benutzt, Verunreinigungen bzw. Punktdefekte nachzuweisen, die sich in diesem Spektralbereich teilweise als Absorptionsbanden (F-Zentren) bemerkbar machen.

Das einzige Material, das F-Zentren im sichtbaren Bereich zeigt, ist der Ti-dotierte Saphir mit einer breiten Absorptionsbande zwischen 400 nm und 600 nm (siehe Abbildung 4.12), die für die Laseranwendung benutzt wird. Von den Alkali- und Erdalkalihalogenuiden sind nur im  $\text{CaF}_2$  F-Zentren nachzuweisen, die bei ca. 305 nm zu einer starken Absorption führen. Im HEMEX-Saphir zeigt sich bei 220 nm eine Absorptionsbande, die nachweislich auf Sauerstofflücken zurückzuführen ist [61]. Während diese F-Zentren im CZ-Saphir nicht auftreten, ist dieser Wellenlängenbereich im Ti-dotierten Saphir von einer starken, durch das Titan verursachte Absorptionsbande verdeckt (siehe auch Abbildung 4.12) [62]. Mit den optischen Spektren kann man deshalb keine Aussage über die Existenz von Sauerstofflücken in Ti-Saphir gewinnen. Ein direkter Vergleich der Absorptionsstärken ist in dem Bereich unterhalb 300 nm schwierig, da dieser nahe an der spektralen Grenze des Spektrometers liegt und zusätzlich durch eine starke Absorptionslinie des atmosphärischen Sauerstoff überlagert ist.

Da sich, wie in Kapitel 4.3 erläutert wurde, der Einfluß systematischer Fehler bei resonanten Proben - das sind Proben mit einer Dicke von einem Vielfachen der halben Wellenlängen - erheblich reduzieren läßt, wurden für die Messungen im D-Band-Resonator Proben entsprechender Dicke besorgt. Diese Dicken sind zusammen mit der entsprechenden Anzahl  $N_{\lambda/2}$  der halben Wellenlängen, die bei 145 GHz in die Probe passen, in Tabelle 4.3 zu finden.

#### 4.4 Charakterisierung des Probensatzes

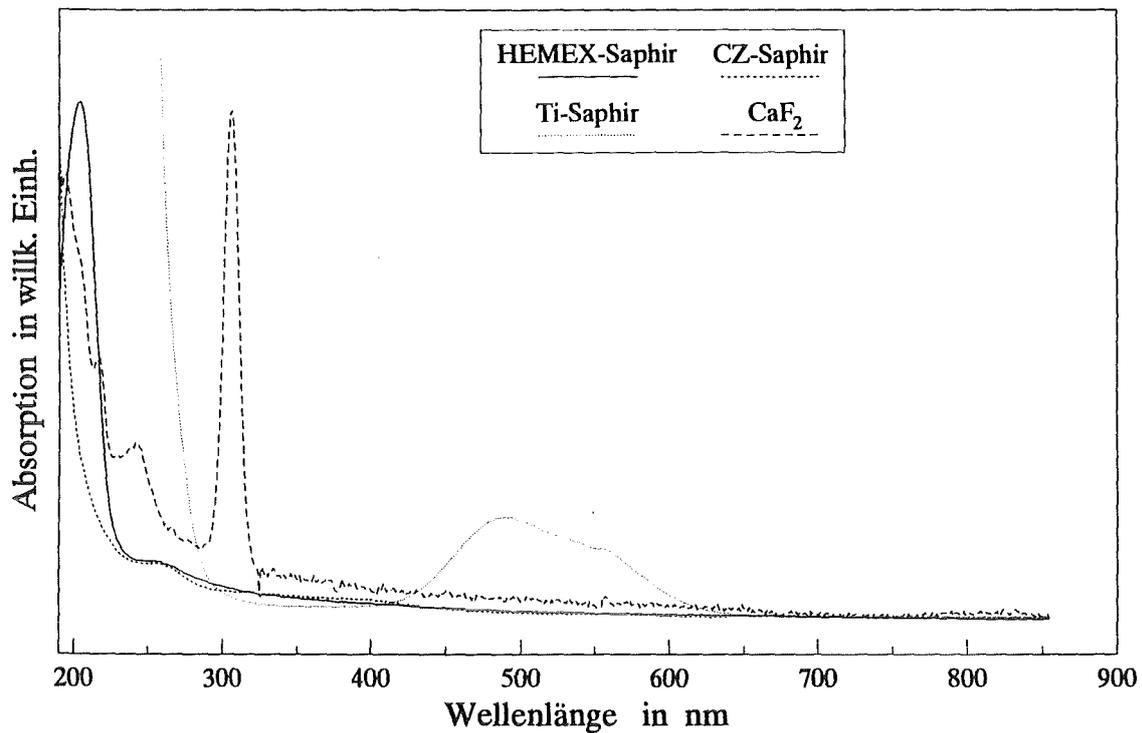


Abbildung 4.12 Optische Transmissionsspektren der drei Saphirqualitäten und des  $\text{CaF}_2$

Tabelle 4.3 Dicken, der im D-Band-Resonator eingesetzten Proben und die durch Röntgenbeugung gemessenen Gitterparameter der einzelnen Kristalle

Material	Probendicke mm	Probendicke $N_{\lambda/2}$	Gitterebenenabstand a in Å
LiF	1.714	4.93	4.0267(2)
NaCl	1.855	4.99	5.6407(3)
KCl	1.900	3.98	6.2925(7)
KBr	1.892	3.99	6.5980(5)
$\text{CaF}_2$	1.590	3.97	5.4621(3)
$\text{BaF}_2$	1.156	3.01	6.1983(3)
$\text{MgF}_2$ ord. Str.	2.632	5.94	$a=4.6226(5)$
$\text{MgF}_2$ außero. Str.	2.829	5.94	$c=3.0512(5)$
Cz-Saphir ord. Str.	4.71	13.91	
HEMEX ord. Str.	5.015	14.84	
Ti-Saphir ord. Str.	5.023	15.01	
CZ-Saphir außero. Str.	4.488	14.78	
Quarz ord. Str.	4.868	9.92	
Quarz außero. Str.	4.868	10.14	
Naturquarz	4.888	9.97	

4.4 Charakterisierung des Probensatzes

**Tabelle 4.4** Ergebnisse Chemischer Analysen der Alkalihalogeniden und des CZ- bzw. HEMEX-Saphirs. Angaben in ppm

	LiF	NaCl	KCl	KBr	CaF <sub>2</sub>	CZ-Saphir	HEMEX
B							< 1
Ba	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3			
Ca	6	< 3	< 3	< 3			2
Co					< 2	< 30	< 0.1
Cr					< 8	< 200	< 1
Cs	2.3(5)	2.2(5)	< 1	1.5(2)			
Cu					< 1	< 50	< 1
Fe					4(2)	< 100	5
K	1	22(4)			10.7(1)		< 4
Li		< 1	< 1	< 1			
Mg	28	< 0.4	< 0.4	< 0.4	10.0(6)		< 1
Mn					0.6(1)	< 10	< 1
Na	34		46(1)	62(2)	63.9(75)		< 1
Ni					5		< 1
Rb	< 1	< 1	9.7(3)	5.6(5)			
Sr	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3	118(27)		
Ti					< 1		3
V					< 2		0.2
Zn					< 2		< 1

## 5

## Meßergebnisse

## 5.1

## Dielektrischer Verlusttangens

Alkalihalogenide werden wegen ihrer einfachen kubischen Kristallstruktur oft gewählt, um theoretische Modelle zur Beschreibung grundlegender physikalischer Eigenschaften zu verifizieren. Aufgrund ihrer hohen Symmetrie lassen sich Modelle meist deutlich vereinfachen. So gibt es eine ganze Reihe von Arbeiten, die sich mit den dielektrischen Eigenschaften dieser Kristalle im RF- bzw. IR-Bereich beschäftigen. Arbeiten zu den mm-Welleneigenschaften gibt es jedoch nur wenige. Durch diese Arbeit konnte die experimentelle Datenbasis für die Alkalihalogenide LiF, NaCl, KCl und KBr erheblich erweitert werden.

Die bei Raumtemperatur und mit den drei hemisphärischen Resonatoren bei unterschiedlichen Frequenzen gemessenen  $\tan\delta$ -Werte sind in den Tabellen 5.1 und 5.2 zusammen mit den nach Gleichungen (4.6) und (4.7) berechneten Gesamtfehlern zu finden. Die gemessene Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Verluste in den Alkalihalogeniden zeigt Abbildung 5.1. Aufgrund der starken Verluste in der Probe und einer damit verbundenen geringen Signalhöhe der transmittierten mm-Wellen waren in NaCl und KCl temperaturabhängige Messungen nur bis etwa 200 K möglich. Man erkennt, daß die Verluste in allen vier Alkalihalogeniden einem ähnlichen Temperaturgesetz gehorchen, das mit Ausnahme von LiF über den gesamten Temperaturbereich gilt. Bei LiF ist bei tiefen Temperaturen ein Übergang zu einer stärkeren Temperaturabhängigkeit zu beobachten.

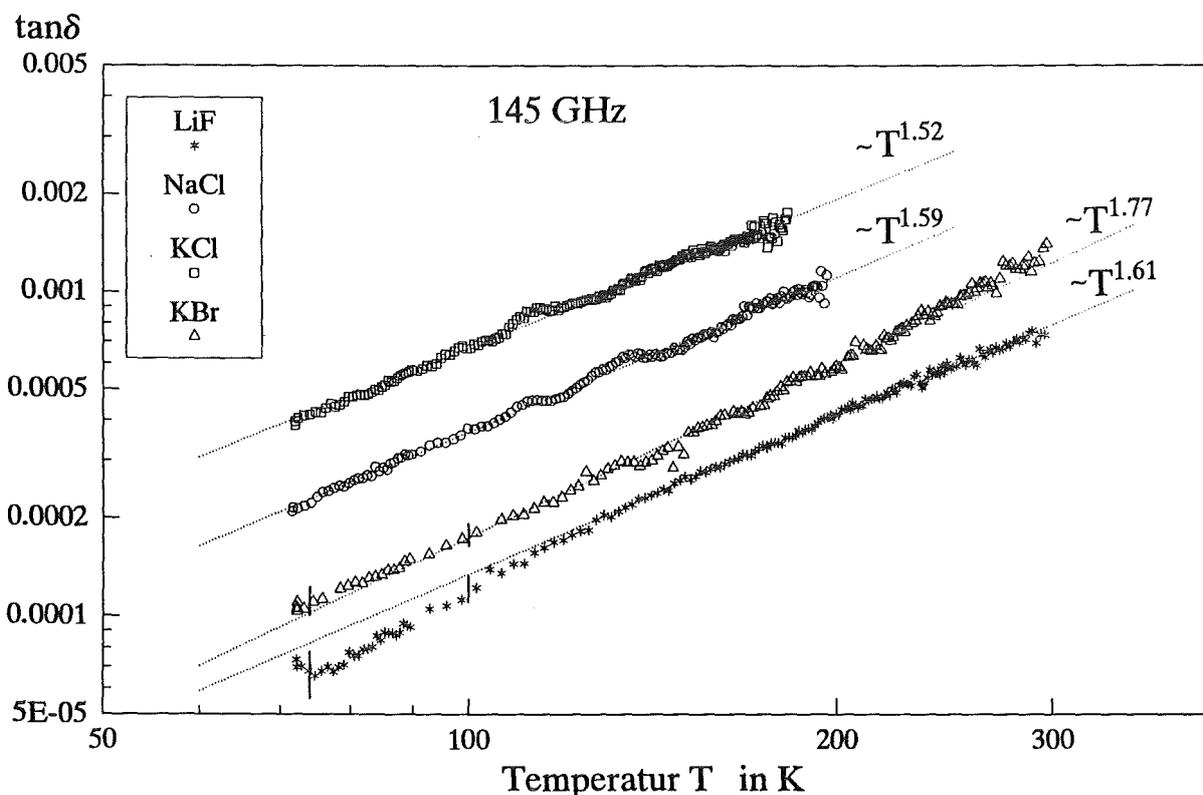


Abbildung 5.2 Bei 145 GHz gemessene Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in den Alkalihalogeniden LiF, NaCl, KCl und KBr

5.1 Dielektrischer Verlusttangens

*Tabelle 5.1 Meßergebnisse bei Raumtemperatur an LiF und NaCl mit systematischen Fehlern nach Gleichungen (4.6) und (4.7)*

	LiF			NaCl		
	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$
Ku- Band- Resonator	12.32	0.58	0.20	12.42	1.57	0.19
	13.32	0.71	0.18	13.47	1.31	0.19
	14.25	0.86	0.17	14.52	1.75	0.19
	15.08	0.84	0.16	15.55	1.68	0.19
	15.95	0.88	0.14	16.56	1.96	0.18
	16.93	1.02	0.13	17.52	2.02	0.18
	17.95	1.02	0.13	18.43	2.16	0.17
	19.00	0.89	0.13	19.34	2.08	0.16
Ka- Band- Resonator	29.44	1.28	0.12	29.10	3.29	0.20
	30.75	1.45	0.12	30.25	3.49	0.20
	32.04	1.73	0.14	31.34	3.59	0.19
	33.27	1.82	0.15	32.49	3.76	0.18
	34.33	1.91	0.15	33.73	3.98	0.17
	35.33	2.03	0.15	35.02	4.15	0.16
	36.50	2.01	0.13	36.33	4.20	0.16
D-Band- Resonator	144.40	9.49	0.31	144.93	19.93	0.50
	145.73	8.16	0.31	146.25	21.55	0.55

*Tabelle 5.2 Meßergebnisse bei Raumtemperatur an KCl und KBr mit systematischen Fehlern nach Gleichungen (4.6) und (4.7)*

	KCl			KBr		
	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$
Ku- Band- Resonator	12.47	2.10	0.19			
	13.52	1.90	0.18	13.52	1.04	0.17
	14.57	2.26	0.18	14.57	1.21	0.16
	15.62	2.61	0.19	15.62	1.36	0.17
	16.66	2.86	0.20	16.65	1.47	0.17
	17.68	2.94	0.20	17.68	1.51	0.17
	18.67	3.00	0.19	18.67	1.51	0.16
Ka- Band- Resonator	29.32	4.75	0.20	29.32	2.14	0.15
	30.61	5.04	0.21	30.61	2.36	0.16
	31.87	5.26	0.22	31.88	2.59	0.17
	33.07	5.50	0.22	33.09	2.68	0.17
	34.21	5.77	0.23	34.25	2.90	0.17
	35.36	6.05	0.22	35.40	3.00	0.16
	36.57	6.18	0.22	36.59	3.04	0.16
D-Band- Resonator	145.94	30.63	0.73	144.60	15.02	0.41
	145.94	30.13	0.73	145.93	14.25	0.42

## 5.1 Dielektrischer Verlusttangens

In Abbildung 5.2 und Tabelle 5.3 ist zu erkennen, daß  $\text{CaF}_2$  und  $\text{BaF}_2$ , von denen im untersuchten Temperatur- und Frequenzbereich bisher keine Literaturdaten bekannt sind, nahezu gleiche Absorptionseigenschaften besitzen. Die an diesen Kristallen gewonnenen Meßdaten sollen zeigen, inwieweit die für Alkalihalogenide entwickelten und experimentell überprüften Modelle zur mm-Wellen-Absorption sich auf Kristalle vergleichbarer Symmetrieeigenschaften übertragen lassen.

$\text{MgF}_2$ , von dem im besagten Frequenz- und Temperaturbereich ebenfalls keine Literaturwerte zur Absorption vorliegen, besitzt eine tetragonale Kristallstruktur von Rutil-Typ mit einer ausgezeichneten 4-zähligen Drehachse, die mit der optischen Achse übereinstimmt. Die darin begründete optischen Anisotropie äußert sich in zwei voneinander unabhängigen Koeffizienten  $\epsilon_{\perp}^* = \epsilon_{xx}^* = \epsilon_{yy}^*$  und  $\epsilon_{\parallel}^* = \epsilon_{zz}^*$  im dielektrischen Tensor. Es ist möglich, diese mit dem hemisphärischen Resonator getrennt zu bestimmen, wenn man den Kristall im Resonator so orientiert, daß das elektrische Feld senkrecht (ordentlicher Strahl) bzw. parallel (außerordentlicher Strahl) zur optischen Achse polarisiert ist. So beträgt die relative Dielektrizitätskonstante im ordentlichen Strahl  $\epsilon'_{\perp} = 5.517$  gegenüber  $\epsilon'_{\parallel} = 4.784$  im außerordentlichen Strahl. Das Absorptionsverhalten im untersuchten Frequenz- und Temperaturbereich ist im Rahmen der Meßgenauigkeit für beide Orientierungen gleich (siehe Abbildung 5.2).

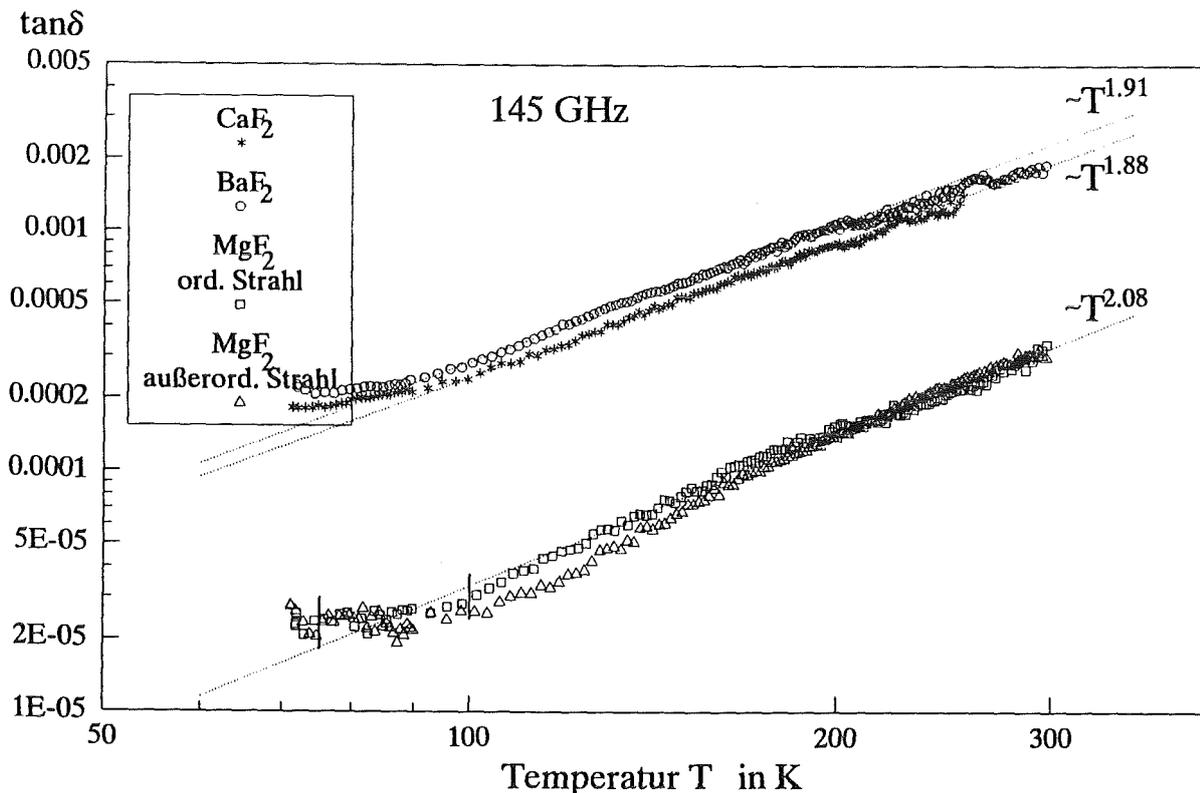


Abbildung 5.2 Bei 145 GHz gemessene Temperaturabhängigkeit von  $\tan \delta$  in den Erdalkalifluoriden  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$  und  $\text{MgF}_2$

5.1 Dielektrischer Verlusttangens

**Tabelle 5.3** Meßergebnisse bei Raumtemperatur an  $\text{CaF}_2$  und  $\text{BaF}_2$  mit systematischen Fehlern nach Gleichungen (4.6) und (4.7)

	$\text{CaF}_2$			$\text{BaF}_2$		
	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$
Ku- Band- Resonator	12.39	1.07	0.19	12.37	1.71	0.21
	13.44	1.15	0.19	13.41	1.69	0.20
	14.48	1.64	0.19	14.43	1.72	0.19
	15.49	1.88	0.19			
	16.45	1.92	0.18	16.28	2.03	0.18
	17.35	2.05	0.17	17.15	1.95	0.16
	18.23	2.31	0.17	18.09	2.35	0.16
	19.18	2.54	0.17	19.10	2.25	0.15
Ka- Band- Resonator	29.86	3.22	0.19	29.64	3.46	0.18
	31.03	3.29	0.18	30.91	3.62	0.16
	32.29	3.51	0.16	32.21	3.66	0.15
	33.59	3.57	0.15	33.52	3.95	0.16
	34.90	3.87	0.15	34.83	4.16	0.17
	36.21	4.06	0.16	36.11	4.45	0.19
	37.51	4.17	0.18	37.32	4.63	0.20
D-Band- Resonator	144.23	14.94	0.43	144.99	19.19	0.57
	145.56	16.79	0.49	146.32	18.61	0.59

**Tabelle 5.4** Meßergebnisse bei Raumtemperatur an  $\text{MgF}_2$  im ordentlichen und außerordentlichen Strahl mit systematischen Fehlern nach Gleichungen (4.6) und (4.7)

	$\text{MgF}_2$ ord. Strahl			$\text{MgF}_2$ außerord. Strahl		
	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$
Ku- Band- Resonator				12.47	0.43	0.16
	13.49	0.25	0.16	13.52	0.06	0.14
	14.54	0.28	0.16	15.62	0.30	0.15
	16.59	0.30	0.15	16.66	0.30	0.15
	17.58	0.34	0.14	17.68	0.37	0.15
	18.51	0.26	0.13	18.68	0.38	0.14
Ka- Band- Resonator	29.22	0.36	0.13	29.33	0.30	0.11
	30.46	0.53	0.14	30.63	0.46	0.12
	31.62	0.62	0.13	31.90	0.62	0.13
	32.73	0.75	0.13	33.12	0.67	0.13
	33.88	0.68	0.12	34.27	0.70	0.13
	35.11	0.69	0.10	35.41	0.76	0.12
	36.39	0.88	0.10	36.60	0.73	0.11
D-Band- Resonator	144.26	3.17	0.14	144.51	3.15	0.14
	145.58	2.76	0.15	145.83	3.09	0.15

## 5.1 Dielektrischer Verlusttangens

Wie das tetragonale Gitter des  $\text{MgF}_2$  ist auch der Saphir - das technisch interessanteste Material - anisotrop mit zwei voneinander unabhängigen dielektrischen Funktionen senkrecht und parallel zur optischen Achse. Verglichen mit  $\text{MgF}_2$  ist die Anisotropie in Saphir jedoch deutlich stärker. So beträgt die relative Dielektrizitätskonstante im ordentlichen Strahl  $\epsilon'_{\perp}=9.406$  gegenüber  $\epsilon'_{\parallel}=11.599$  im außerordentlichen Strahl. Die  $\tan\delta$ -Werte sind bei 145 GHz in der ersten Orientierung etwa doppelt so groß wie in der zweiten (siehe Tabelle 5.5).

Es wurden drei unterschiedliche Saphirqualitäten auf ihre dielektrischen Eigenschaften hin untersucht, die sich in ihrem Herstellungsverfahren voneinander unterscheiden (siehe Kapitel 4.4). Sowohl Frequenz- als auch Temperaturabhängigkeit wurden im ordentlichen Strahl für alle drei Qualitäten gemessen, während im außerordentlichen Strahl die Temperaturmessungen auf CZ-Saphir beschränkt blieben. Bei Raumtemperatur sind im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Unterschiede zwischen den einzelnen Qualitäten festzustellen, weshalb die Ergebnisse zur Frequenzabhängigkeit in Tabelle 5.5 über alle Qualitäten gemittelt sind. Ku-Band-Messungen im außerordentlichen Strahl waren nicht durchführbar, da keine Probe mit entsprechender Orientierung (Z-Schnitt) und ausreichendem Durchmesser zur Verfügung stand.

Die Messungen mit dem Ku- und Ka-Band-Resonator streuen deutlich stärker als bei den Alkali- bzw. Erdalkalihalogenuiden, da die gemessenen Werte näher an der Auflösungsgrenze dieser Resonatoren liegen.

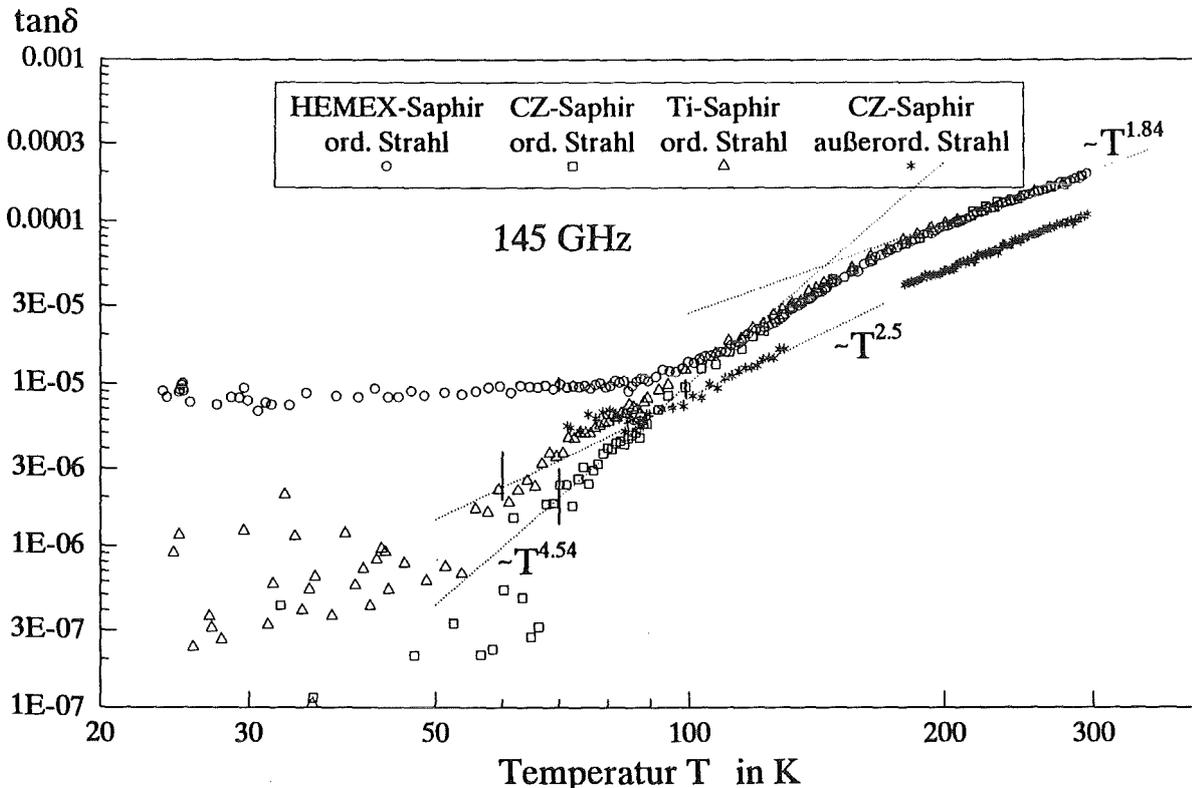


Abbildung 5.3 Bei 145 GHz gemessene Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in unterschiedlichen Saphirqualitäten im ordentlichen und außerordentlichen Strahl

### 5.1 Dielektrischer Verlusttangens

Bei den temperaturabhängigen Messungen zeigen die einzelnen Qualitäten bis zu Temperaturen von ca. 80 K ebenfalls gleiches Absorptionsverhalten (siehe Abbildung 5.3). Unterhalb dieser Temperatur deuteten sich jedoch Unterschiede an. Um diese Unterschiede genauer untersuchen zu können, wurde der Verdampferkryostat mit flüssigem Helium bis auf Temperaturen von 25 K abgekühlt. Dabei hat sich gezeigt, daß die  $\tan\delta$ -Werte des HEMEX-Saphirs unterhalb 80 K bei  $\tan\delta=10^{-5}$  in Sättigung gehen, während die Verluste des CZ-Saphirs und des Ti-dotierten Saphirs mit einem  $T^{4.5}$ -Gesetz weiter bis zur Auflösungsgrenze der Meßapparatur von ca.  $\tan\delta=10^{-6}$  abfallen. Die Verluste des CZ-Saphirs liegen dabei leicht unter denen des Ti-dotierten Saphirs. Bei tiefen Temperaturen machen sich demnach die unterschiedlichen Qualitäten im Absorptionsverhalten bemerkbar. Im außerordentlichen Strahl zeigt der CZ-Saphir eine schwächere Temperaturabhängigkeit als im ordentlichen Strahl und die Temperaturkurven scheinen sich bei etwa 90 K zu schneiden.

*Tabelle 5.5 Meßergebnisse bei Raumtemperatur an Saphir im ordentlichen und außerordentlichen Strahl mit systematischen Fehlern nach Gleichungen (4.6) und (4.7)*

	Saphir ord. Strahl			Saphir außerord. Strahl		
	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$
Ku- Band- Resonator	12.60	0.17	0.05			
	14.02	0.17	0.04			
	15.04	0.15	0.04			
	16.47	0.15	0.04			
	17.49	0.17	0.04			
	18.23	0.21	0.04			
Ka- Band- Resonator	30.73	0.17	0.10	30.33	0.25	0.13
	32.01	0.28	0.11	32.36	0.25	0.11
	33.21	0.34	0.13	33.62	0.33	0.09
	34.74	0.38	0.12	34.93	0.29	0.08
	35.85	0.40	0.11			
	36.46	0.37	0.10	36.24	0.34	0.09
	37.75	0.47	0.09			
	39.06	0.36	0.08			
	40.37	0.35	0.09			
	41.66	0.49	0.11			
	42.86	0.72	0.13			
43.89	0.52	0.12				
44.91	0.53	0.12				
D-Band- Resonator	144.70	2.07	0.08	145.38	0.95	0.07
	146.02	1.90	0.09	145.38	1.19	0.07

Quarz ist der einzige der ausgewählten Kristalle mit nicht ionischem sondern kovalentem Bindungscharakter. Quarzkristalle finden aufgrund ihrer piezoelektrischen Eigenschaften verbreitet Anwendung in der Elektrotechnik. Mit einer dreizähligen Symmetrieachse ist auch Quarz optisch aktiv. Die Anisotropie ist jedoch sowohl im dielektrischen Verlusttangens als auch in der Dielektrizitätskonstanten mit  $\epsilon'_{\perp} = 4.44$  und  $\epsilon'_{\parallel} = 4.641$  deutlich schwächer als in Saphir. Wegen der geringen dielektrischen Verluste, die bei 145 GHz und Raumtemperatur im ordentlichen Strahl mit  $\tan\delta = 5 \cdot 10^{-5}$  um etwa einen Faktor 5 kleiner sind als im Saphir (vergleiche Tabelle 5.5 mit 5.6), wird Quarz als ein möglicher Alternativwerkstoff für thermisch nicht hoch belastete Fenster (z.B. Fenster zur Plasmadiagnostik) diskutiert.

Proben mit ausreichendem Durchmesser für Messungen mit dem Ku-Band-Resonator waren nicht verfügbar. Wegen des geringen Absorptionsvermögens des Quarzes wären solche Messungen auch nur mit unbefriedigender Genauigkeit durchführbar. Die Meßergebnisse im Ka- und D-Band weisen eine relativ starke Streuung auf, da die Meßwerte nahe an den Fehlergrenzen liegen (siehe Tabelle 5.6). Insgesamt ist eine deutlich schwächere Frequenzabhängigkeit der Verluste zu beobachten als in den anderen untersuchten Kristallen.

Die von der Firma Steeg & Reuter als Naturquarz erhältliche Qualität unterscheidet sich von der konventionellen Qualität durch  $\tan\delta$ -Werte, die sowohl bei Raumtemperatur als auch zu tieferen Temperaturen um etwa 25% höher liegen. Unterhalb 100 K zeigt sich in beiden Qualitäten eine Sättigung der Verluste bei  $\tan\delta \approx 7 \cdot 10^{-6}$  (siehe Abbildung 5.4).

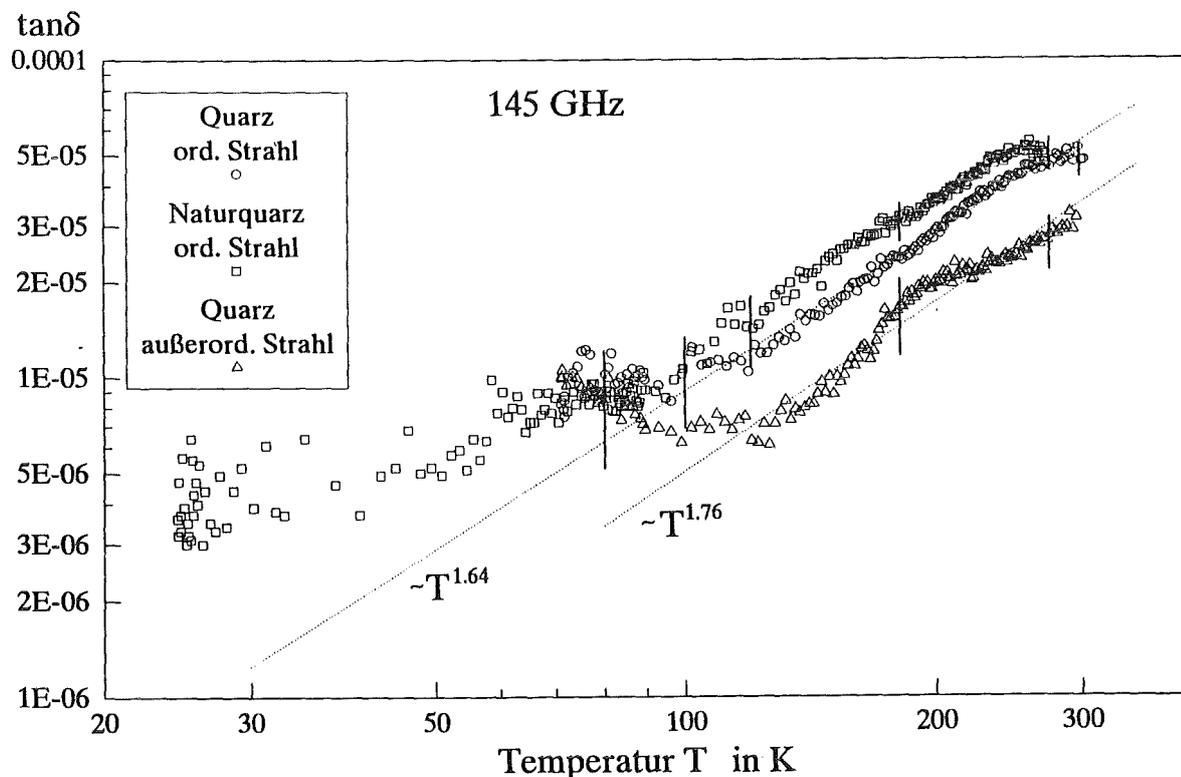


Abbildung 5.4 Bei 145 GHz gemessene Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in konventionellem Quarz und Naturquarz im ordentlichen und außerordentlichen Strahl

## 5.2 Dielektrizitätskonstante

*Tabelle 5.6 Meßergebnisse bei Raumtemperatur an Quarz im ordentlichen und außerordentlichen Strahl mit systematischen Fehlern nach Gleichungen (4.6) und (4*

	Quarz ord. Strahl			Quarz außerord. Strahl		
	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$	Frequenz GHz	$\tan\delta$ $10^{-4}$	$\Delta\tan\delta$ $10^{-4}$
Ka- Band- Resonator	29.38	0.02	0.09	29.35	0.02	0.10
	30.69	0.15	0.10	30.65	0.19	0.10
	33.25	0.27	0.12	33.18	0.30	0.12
	34.47	0.32	0.12	34.37	0.34	0.12
	35.64	0.34	0.12	35.51	0.40	0.11
D-Band- Resonator	36.79	0.35	0.11	36.67	0.37	0.11
	144.50	0.49	0.05	144.36	0.39	0.06
	145.81	0.43	0.06	145.68	0.29	0.05

### 5.2

### Dielektrizitätskonstante

Mit der Verbesserung der thermischen und mechanischen Stabilität des Verdampferkryostaten und der Umstellung vom statischen in den dynamischen Temperaturbetrieb war es erstmals möglich, neben der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Verluste auch die Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätskonstante zu messen. Da diese Größe, durch die im wesentlichen die Reflexionseigenschaften der mm-Wellen-Fenster bestimmt sind, ebenfalls in die Konstruktion dieser Fenster miteinfließt [63], werden die Ergebnisse dieser Messungen im folgenden dargestellt.

Die Dielektrizitätskonstante der einzelnen Kristalle wurde bei Raumtemperatur im gesamten, zur Verfügung stehenden Frequenzbereich bestimmt, wobei im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Dispersion festzustellen ist. Die in Tabelle 5.7 angegebenen Werte sind deshalb über alle Frequenzen gemittelt, wobei  $\Delta\epsilon'_s$  jeweils der statistischen Streuung entspricht.

*Tabelle 5.7 Über alle Frequenzen gemittelte Dielektrizitätskonstante bei Raumtemperatur*

Material	$\epsilon'_s$	$\Delta\epsilon'_s$
LiF	9.028	0.018
NaCl	5.897	0.009
KCl	4.816	0.009
KBr	4.879	0.007
CaF <sub>2</sub>	6.807	0.007
BaF <sub>2</sub>	7.357	0.013
MgF <sub>2</sub> ord. Strahl	5.517	0.009
MgF <sub>2</sub> außerord. Strahl	4.784	0.007
Saphir ord. Strahl	9.406	0.005
Saphir außerord. Strahl	11.599	0.009
Quarz ord. Strahl	4.440	0.004
Quarz außeror. Strahl	4.641	0.004

Die Dielektrizitätskonstante ist über die makroskopische Claussius-Mossotti-Relation mit der Polarisierbarkeit des Kristalls verknüpft

$$\frac{\epsilon' - 1}{\epsilon' + 2} = \frac{4\pi}{3} \frac{\alpha_m}{V} \quad (5.1)$$

Dabei entspricht  $\alpha_m$  der Polarisierbarkeit eines makroskopischen, kugelförmigen Volumens  $V$ . Diese Polarisierbarkeit setzt sich zusammen aus der optischen Polarisierbarkeit, die aus der Verschiebung der Elektronenhülle gegenüber den Atomkernen resultiert, und der Polarisierbarkeit des Kristallgitters aufgrund der Auslenkung der Ionen. Nach Bosman und Haviga sind für die Temperaturabhängigkeit drei unterschiedliche Effekte verantwortlich [64]: zum einen die Abnahme der Dichte polarisierbarer Teilchen aufgrund der thermischen Ausdehnung, zum zweiten die stärkere Polarisierbarkeit der einzelnen Teilchen mit zunehmender Temperatur aufgrund des größeren zur Verfügung stehenden Volumens und zum dritten die Temperaturabhängigkeit von  $\alpha_m$  bei konstantem Volumen.

Geht man davon aus, daß die beiden ersten Beiträge dominieren, dann ist der lineare Temperaturkoeffizient der Dielektrizitätskonstanten direkt proportional zum thermischen Ausdehnungskoeffizient  $\beta = 1/r_0 \, dr_0/dT$  und dem Faktor  $(\epsilon' - 1)(\epsilon' + 2)$  [64]:

$$\frac{d\epsilon'}{dT} \sim (\epsilon' - 1)(\epsilon' + 2) \beta \quad (5.2)$$

Diese Größe wurde für die untersuchten Alkalihalogenide, die über den gesamten Temperaturbereich eine nahezu lineare Temperaturabhängigkeit von  $\epsilon'$  zeigen (siehe Abbildung 5.5)

$$\epsilon'(T) = a_0 + a_1 T \quad (5.3)$$

mit den entsprechenden Werten aus Tabelle 6.2 bestimmt. Vergleicht man die Ergebnisse mit den gemessenen linearen Temperaturkoeffizienten  $d\epsilon'/dT$  (siehe Tabelle 5.8), so erkennt man, daß LiF, mit dem größten Wert, die stärkste und KCl, mit dem kleinsten Wert, die schwächste Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten zeigt. D.h. dieser Vergleich führt zu einem qualitativen Verständnis der in den Alkalihalogeniden beobachteten Unterschiede in den linearen Temperaturkoeffizienten  $a_1$ . Zum genaueren quantitativen Verständnis muß man jedoch neben dem thermischen Ausdehnungskoeffizienten außerdem die Volumen- und Temperaturabhängigkeit der Polarisierbarkeit kennen.

**Tabelle 5.8** Berechnete normierte Temperaturkoeffizienten von  $\epsilon'$  entsprechend der Beziehung (5.2) im Vergleich mit den gemessenen Temperaturkoeffizienten  $a_1$

	$(\epsilon' - 1)(\epsilon' + 2) \beta$ in $10^{-3} \text{ K}^{-1}$	$a_1 = d\epsilon'/dT$ in $10^{-3} \text{ K}^{-1}$	$a_0 = \epsilon'(0 \text{ K})$
LiF	2.85	2.43	8.37
NaCl	1.5	2.35	5.26
KCl	0.94	1.15	4.49
KBr	1.0	1.29	4.51
CaF <sub>2</sub>		1.53	6.40
BaF <sub>2</sub>		1.48	6.94

## 5.2 Dielektrizitätskonstante

Oberhalb 130 K findet man für die Dielektrizitätskonstante der Erdalkalifluoride  $\text{CaF}_2$  und  $\text{BaF}_2$  ebenfalls ein annähernd lineares Temperaturgesetz (siehe Abbildung 5.6). Bei tieferen Temperaturen findet jedoch ein Übergang zu einem nahezu temperaturunabhängigen Verhalten statt. Dies läßt sich nach Gleichung 5.2 verstehen, da der thermische Ausdehnungskoeffizient zu tiefen Temperaturen gegen null geht. Die anisotropen Einkristalle  $\text{MgF}_2$ , Saphir und Quarz zeigen sowohl im ordentlichen als auch im außerordentlichen Strahl ein annähernd quadratisches Temperaturgesetz (siehe Abbildungen 5.7, 5.8 und 5.9), welches in einer früheren Arbeit bereits in Saphir gefunden wurde [65]:

$$\epsilon'(T) = a_0 + a_1 T + a_2 T^2 \quad (5.4)$$

Die Koeffizienten  $a_0$ ,  $a_1$  und  $a_2$  wurden den Meßkurven nach dem Prinzip der kleinsten Fehlerquadrate angepaßt. Es zeigt sich, daß bei allen drei Kristallen der quadratische Term gegenüber dem linearen stark dominiert (siehe Tabelle 5.9)

*Tabelle 5.9 Anpassungsparameter des quadratischen Temperaturgesetzes (5.8) an die gemessene Dielektrizitätskonstanten in den anisotropen Kristallen  $\text{MgF}_2$ , Saphir und Quarz.*

	$a_0 = \epsilon'(0 \text{ K})$	$a_1$ in $10^{-4} \text{ K}^{-1}$	$a_2$ in $10^{-6} \text{ K}^{-2}$
$\text{MgF}_2$ ord. Str.	5.36	2.89	1.17
$\text{MgF}_2$ außerord. Str.	4.61	1.73	1.55
Saphir ord. Str.	9.29	-0.33	1.74
Saphir außerord. Str.	11.33	2.47	2.46
Quarz ord. Str.	4.45	-0.38	0.134
Quarz außerord. Str.	4.65	-0.08	0.119

Die Änderung der Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon'$  mit der Temperatur ist in Quarz, im Vergleich zu den anderen untersuchten Kristallen äußerst klein. So liegen die Änderungen über den gesamten Temperaturbereich unter 0.2%. Im ordentlichen Strahl nimmt die Dielektrizitätskonstante bei tiefen Temperaturen sogar ab und durchläuft bei etwa 150 K ein Minimum. Shelby et al [66], die dieses außergewöhnliche Temperaturverhalten bei einer Meßfrequenz von 1 kHz ebenfalls beobachteten, erklären dies durch die piezoelektrischen Eigenschaften des Quarzes.

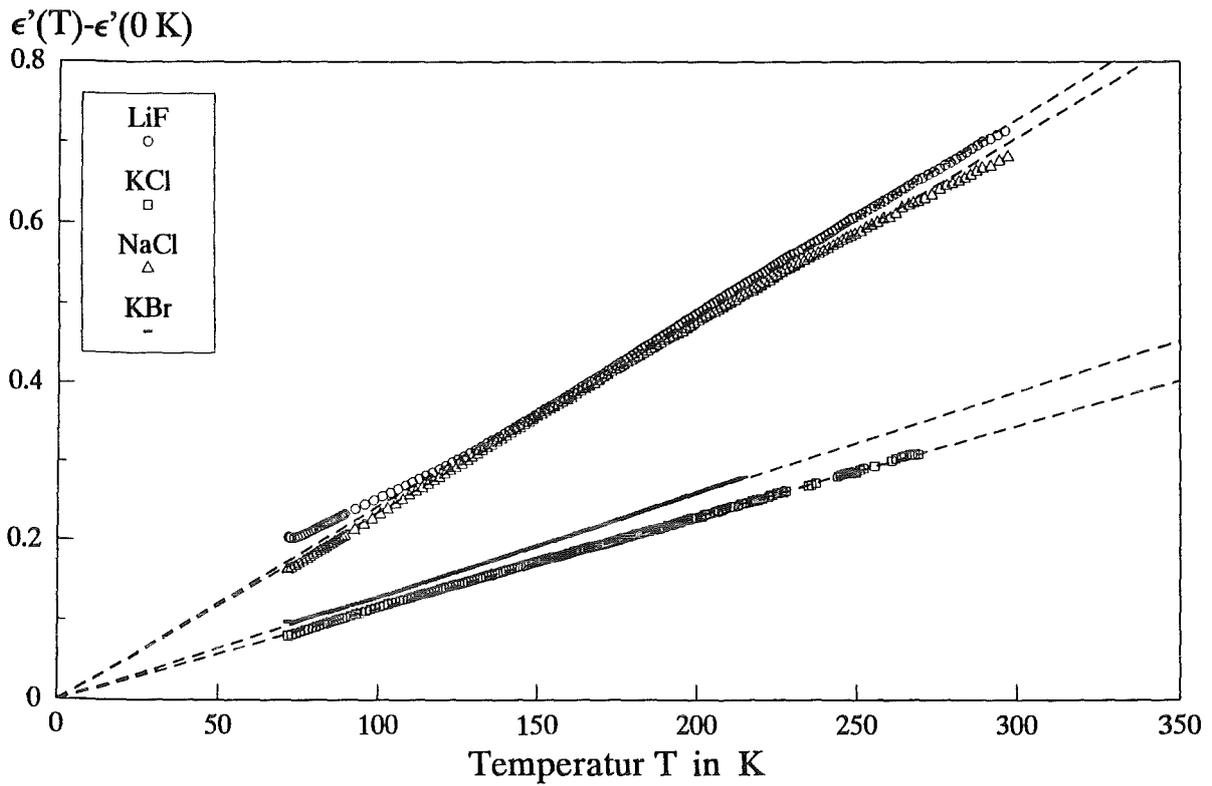


Abbildung 5.5 Temperaturabhängigkeit von  $\epsilon'$  in den Alkalihalogeniden LiF, NaCl, KCl und KBr

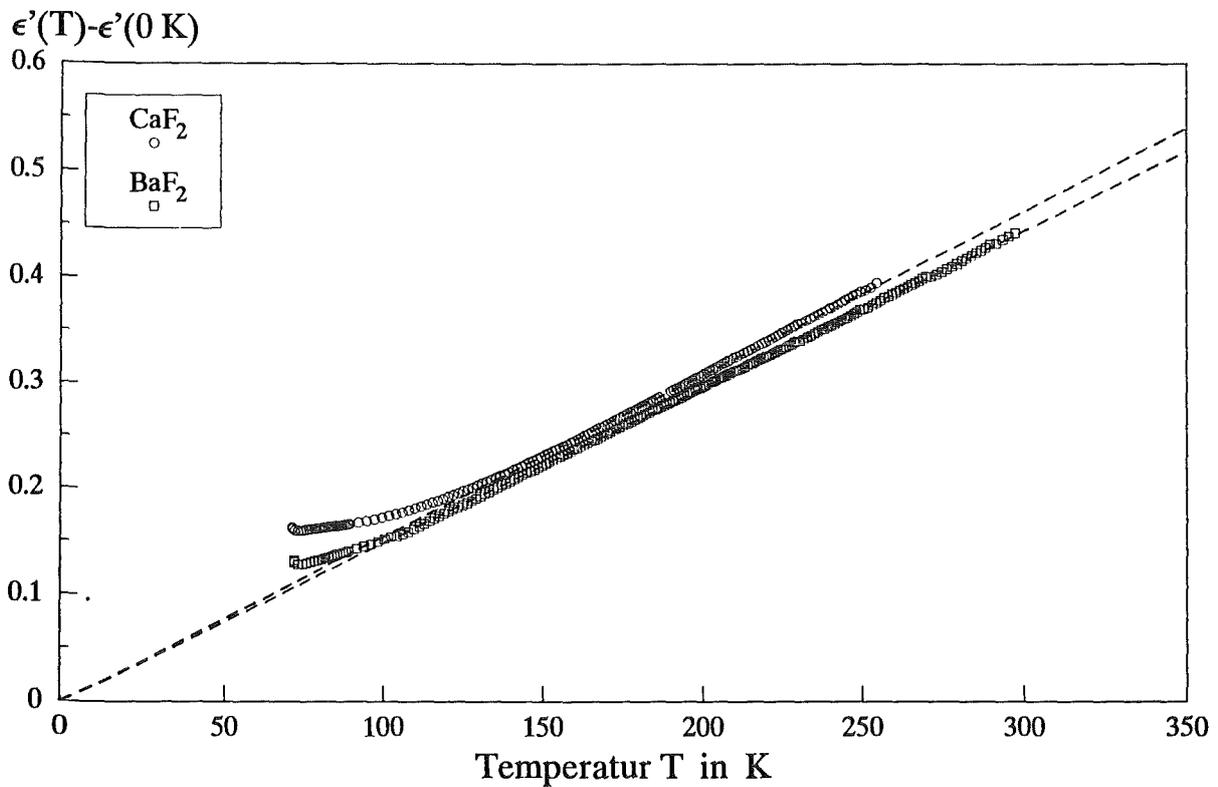


Abbildung 5.6 Temperaturabhängigkeit von  $\epsilon'$  in den Erdalkalifluoriden CaF<sub>2</sub> und BaF<sub>2</sub>

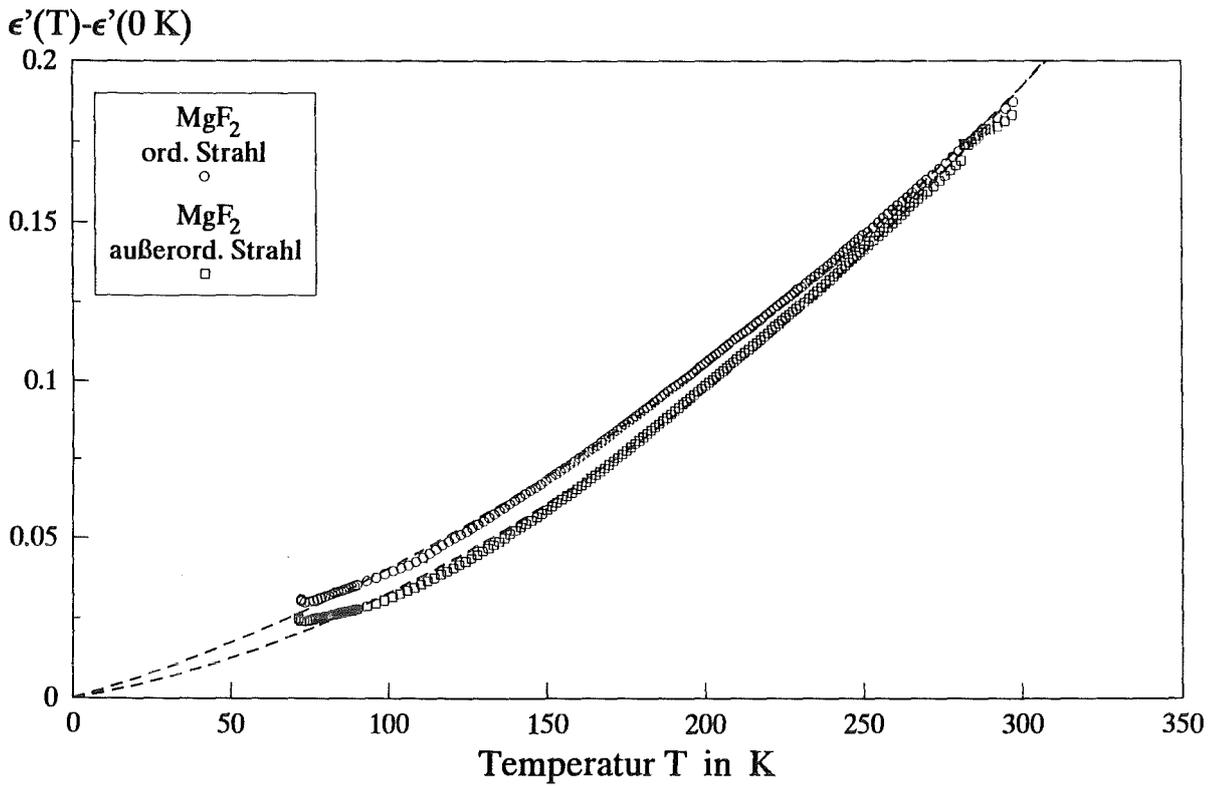


Abbildung 5.7 Temperaturabhängigkeit von  $\epsilon'$  in  $\text{MgF}_2$  im ordentlichen und außerordentlichen Strahl

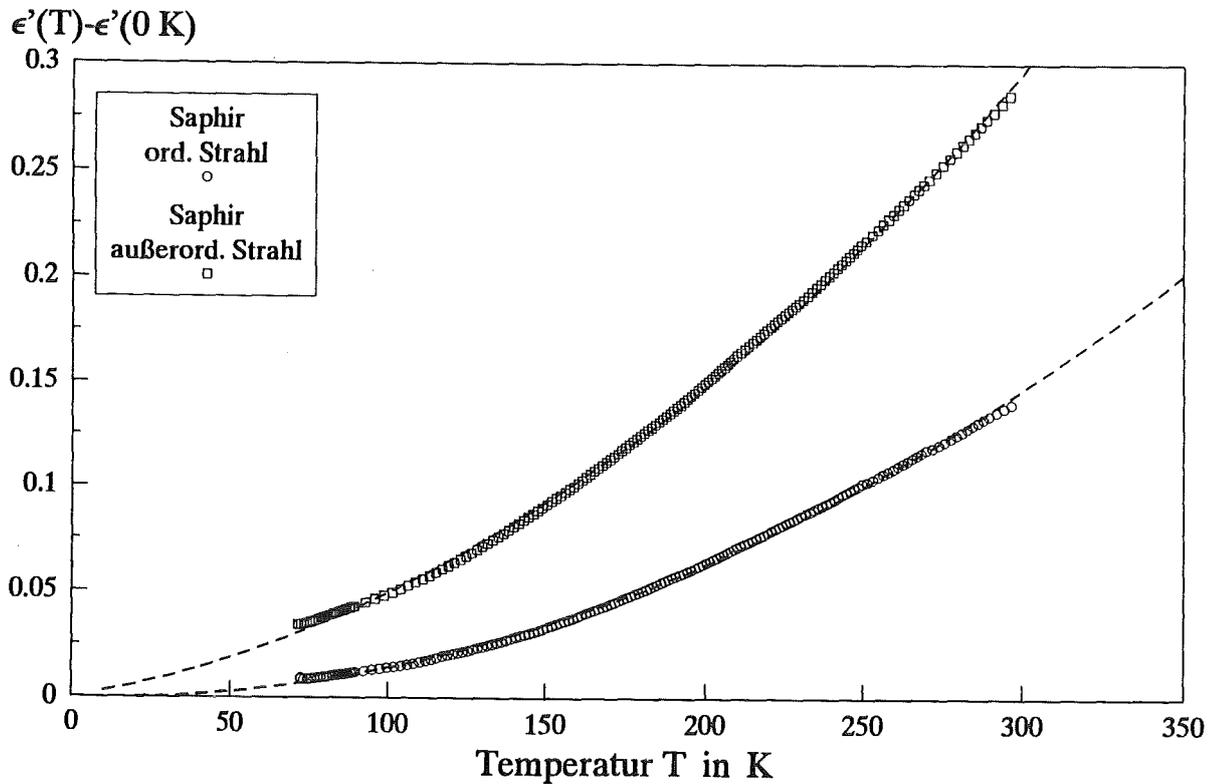


Abbildung 5.8 Temperaturabhängigkeit von  $\epsilon'$  in Saphir im ordentlichen und außerordentlichen Strahl

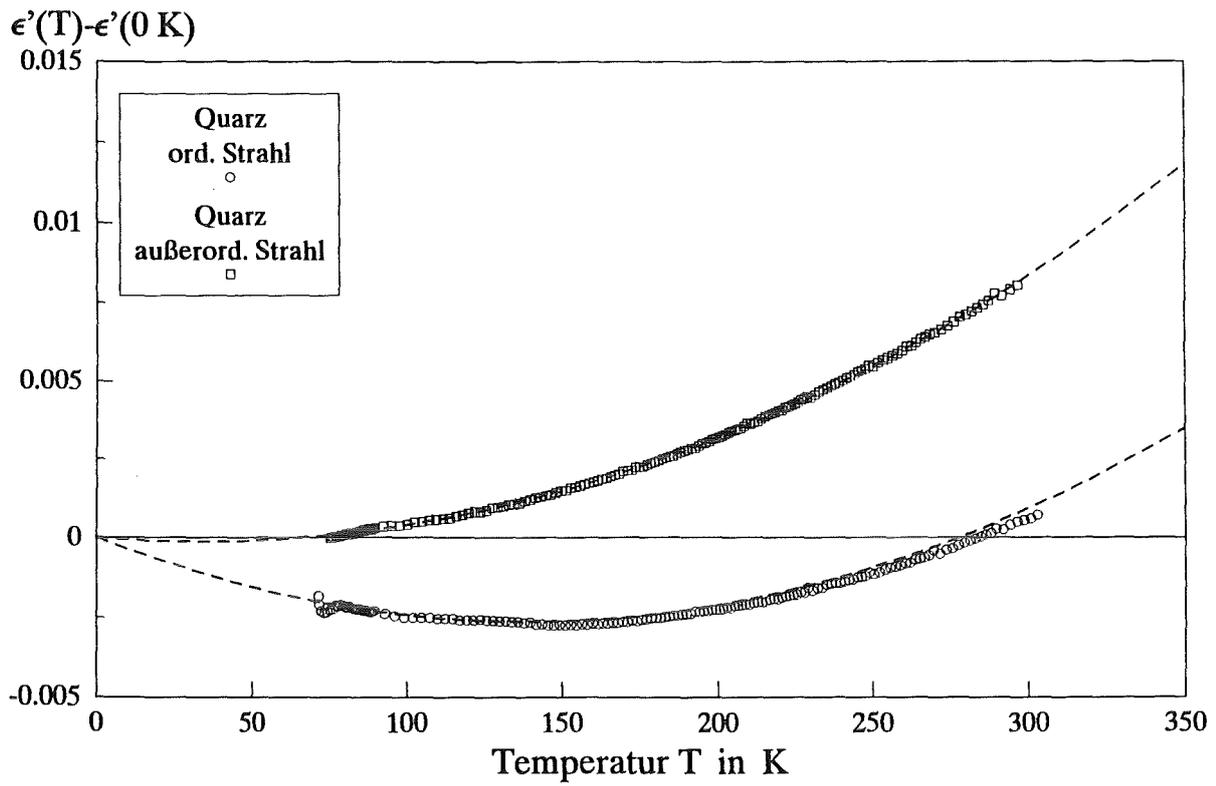


Abbildung 5.9 Temperaturabhängigkeit von  $\epsilon'$  in Quarz im ordentlichen und außerordentlichen Strahl

## 6

## Diskussion

## 6.1 Modellfunktionen zur Beschreibung der gemessenen mm-Wellen-Verluste

Die Diskussion der gefundenen Meßergebnisse schließt sich der Betrachtungsweise von Sparks et al an, die nachwies, daß die Temperaturabhängigkeit dielektrischer Verlust auch dann durch ein 2-Phononen-Modell beschrieben wird, wenn deren Steilheit über eine lineare Funktion hinausgeht [5]. Damit sind frühere Argumente zur Verwendung eines 3-Phononen-Modells stark entkräftet worden. Bei der Anwendung ihres Modells auf weniger spezielle Substanzen als die dort diskutierten Alkalihalogenide LiF, NaCl, KBr und KJ, ergibt sich vorrangig die Schwierigkeit, die Frequenzverbreiterung  $\gamma$  der beteiligten Phononen zu bestimmen, die den 2-Phononen-Differenzprozeß im mm-Wellen-Bereich energetisch erst erlaubt.

Da experimentelle Daten in der Regel nicht vorliegen, wird der Ansatz von Sparks et al übernommen, der die experimentell verfestigten Werte für NaCl gemäß einem Ansatz konstanter Güte der Phononenzuständen auf andere Materialien extrapoliert, wie z. B. für KBr.

$$\gamma_{\text{KBr}} = [\nu_m + \nu_m + \nu_c]_{\text{KBr}} \frac{\gamma_{\text{NaCl}}}{[\nu_m + \nu_m + \nu_c]_{\text{NaCl}}} = [\nu_m + \nu_m + \nu_c]_{\text{KBr}} \frac{1}{14} = 370 \text{ GHz} \quad (6.1)$$

Diese Größe wird als temperaturunabhängig angenommen.

Ein weiterer, schwer verfügbarer Parameter ist der kubische Koeffizient im Wechselwirkungspotential nächster Nachbarn  $\phi_3$ , der quadratisch in die Berechnung der Dämpfungskonstante  $\Gamma(0, \text{TO}, \nu, T)$  eingeht (siehe Gleichung (2.32)), für den in der Literatur unterschiedliche Formeln zu finden [5,23,67]. Während das Born-Mayer-Potential bei allen gleichermaßen in die Wechselwirkung eingeht, herrscht bei dem Anteil des Coulomb-Potentials keine Übereinstimmung. Dies liegt an der großen Reichweite der Coulombkräfte, die unterschiedlich stark berücksichtigt wird, wodurch in den einzelnen Arbeiten Abweichungen bis zu 35% entstehen. Daraus resultieren aufgrund der quadratischen Abhängigkeit Unterschiede in  $\Gamma(0, \text{TO}, \nu, T)$  bis zu einem Faktor 2. Das von Sparks et al [5] vorgeschlagene Potential liefert niedrigere Werte als das von Eldridge und Howard [23] bzw. Karo und Hardy [67]. Zur Berechnung des kubischen Koeffizienten  $\phi_3$  wurde als Kompromiß das Modell von Karo und Hardy gewählt, dessen Werte zwischen denen der anderen Modelle liegen.

$$\phi_3 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{6e^2}{r_0^4} - \frac{\Lambda}{\rho^3} \exp\left(-\frac{r_0}{\rho}\right) \quad (6.2)$$

Die Parameter  $\Lambda$  und  $\rho$  sind nach Gleichung (2.17) durch den Abstand nächster Nachbarn  $r_0$  und die Kompressibilität  $\beta$  gegeben.

Mit diesen Festlegungen und weiteren Parametern aus der Literatur, die in Tabelle 5.2 zusammengestellt sind, wurden die theoretisch zu erwartenden Verlusttangens-Werte im untersuchten Frequenz- und Temperaturbereich nach Gleichung (2.32) für KBr berechnet. Die bei

Sparks et al vorgegebenen charakteristischen Frequenzen wurden anhand der Arbeit von Schröder [68] korrigiert. Bei der Berechnung der Temperaturabhängigkeit wurden die linearen Temperaturkoeffizienten der Parameter  $\nu_{TO}$ ,  $\nu_m$ ,  $r_0$  und  $\beta$  berücksichtigt. Da nur für die langwelligen transversal optischen Phononen der Frequenz  $\nu_{TO}$  Literaturwerte zur Temperaturabhängigkeit existieren, wird für  $\nu_m$  die gleiche Temperaturabhängigkeit angenommen. In Abbildung 6.3 sind die Meßergebnisse zusammen mit den Ergebnissen der Rechnung dargestellt, die als durchgezogene Linie zu sehen ist. Dieser Modellierung der Meßergebnisse wird im folgenden mit Theorie I bezeichnet. In Anbetracht der vielen Näherungen, die in die Theorie eingehen, insbesondere durch die Reduktion der Dispersionsrelation auf die Richtung höchster Symmetrie (siehe Kapitel 2.4), herrscht eine gute Übereinstimmung der theoretischen Vorhersagen mit den experimentellen Ergebnissen. Ohne auch nur einen Parameter anzupassen, ist die maximale Abweichung nie größer als ein Faktor 2. Die Aussagekraft zeigt sich insbesondere beim Vergleich der hier berechneten Dämpfung  $\Gamma(0,TO,\nu,T)$ , die auch bei Frequenzen  $\nu$  weit oberhalb von  $\nu_c$  in guter Näherung mit Werten übereinstimmt, die von Karo und Hardy [67] aus der gesamten Dispersionsrelation für KCl numerisch berechnet wurden (siehe Abbildung 6.1).

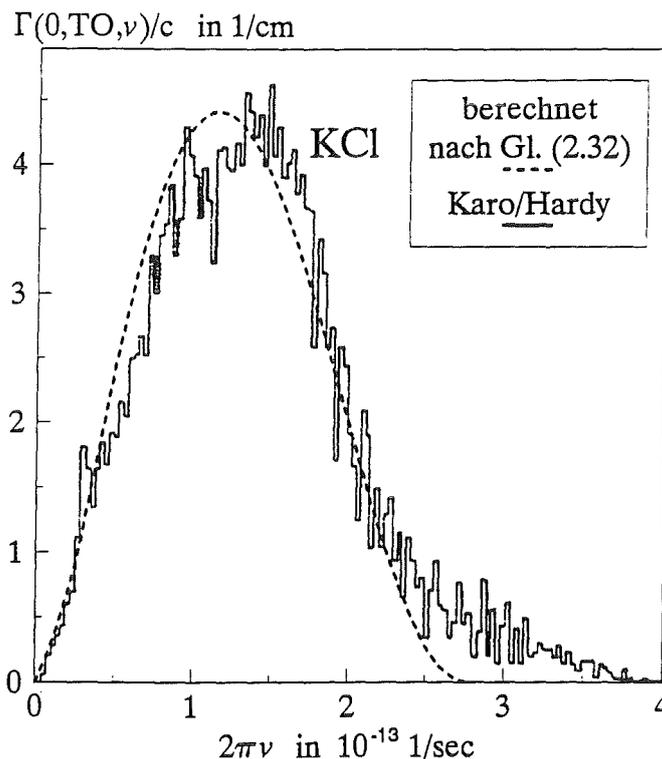


Abbildung 6.1 Vergleich der mit Theorie I berechneten Dämpfung  $\Gamma(0,TO,\nu)$  mit Ergebnissen Numerischer Analysen der Dispersionsrelation für KCl [67]

Zur Modellierung von Materialien mit komplexerer Kristallstruktur wurden weitere Vereinfachungen herangezogen. Bei dem mit Theorie II bezeichneten Modell wurde der etwas unsichere kubische Koeffizient des Gitterpotentials  $\phi_3$  nicht berechnet. Er wurde so skaliert, daß

die berechneten Kurven bei Raumtemperatur und 145 GHz mit den gemessenen  $\tan\delta$ -Werten zusammenfallen. Da dieser Koeffizient keine frequenzabhängigen Parameter enthält, wird die Frequenzkurve nur um einen konstanten Faktor nach oben oder unten verschoben. Für den Fall, daß die für  $\phi_3$  berechneten Werte fehlerbehaftet sind, erreicht man mit Theorie II eine bessere Beschreibung der Messung. Das Festhalten von  $\phi_3$  bewirkt wegen der Vernachlässigung der impliziten Temperaturabhängigkeit über die Variablen  $r_0$  und  $\beta$  eine Abschwächung der Steilheit im Temperaturverlauf (siehe Abbildung 6.3)

Das mit Theorie III bezeichnete Modell betrachtet ausschließlich die Differenz der Besetzungszahlen ( $n_1 - n_2$ ). Die anderen Faktoren wurden zur korrekten Wiedergabe der  $\tan\delta$ -Werte bei Raumtemperatur und 145 GHz normiert und festgehalten. Insbesondere die Temperaturabhängigkeit der charakteristischen Frequenz  $\nu_m$  wird dabei vernachlässigt, was dem Ansatz entspricht, mit dem Stolen und Dransfeld [4] und Bosomworth [69] den Beitrag von 2-Phononen-Differenzprozessen zur dielektrischen Absorption diskutieren. Man erkennt (siehe Abbildung 6.3), daß die theoretische Temperaturabhängigkeit deutlich schwächer ist, wenn man temperaturunabhängige Parameter annimmt.

Für Frequenzen unterhalb der kritische Frequenz  $\nu_c$  läßt sich auch mit diesem einfachen Modell eine recht gute Übereinstimmung mit der gemessenen linearen Frequenzabhängigkeit erzielen.

Die Theorie III hat den Vorteil, experimentelle Ergebnisse übersichtlich diskutieren zu können, denn der einzige materialspezifische Parameter, der in die Rechnung eingeht, ist die Frequenz  $\nu_m$  des transversal akustischen Phonons am Rand der Brillouinzone. Anhand einer normierten Darstellung der Besetzungszahldifferenz ( $n_1 - n_2$ ) über der reduzierten Temperatur  $Tk_B/h\nu_m$  (siehe Abbildung 6.2) lassen sich einige Gesetzmäßigkeiten der Absorptionseigenschaften diskutieren. Man erkennt, daß bei hohen Temperaturen  $T$  bzw. kleinen Frequenzen  $\nu_m$ , d.h. für  $k_B T/h\nu_m \gg 1$ , die Verluste nach diesem Modell linear von Temperatur und Frequenz abhängen sollten, denn die Differenz der Besetzungszahlen läßt sich dann annähern zu:

$$n_1 - n_2 \approx \frac{k_B}{h\nu_m^2} \nu T . \quad (6.3)$$

Allgemein kann man sagen, daß die Konvergenz zu einem linearen Temperatugesetz bei um so höheren Temperaturen einsetzt, desto höher die Frequenz  $\nu_m$  liegt. Oder anders ausgedrückt zeigt sich bei höheren Werten von  $\nu_m$  im gleichen Temperaturbereich eine stärkere Temperaturabhängigkeit der Verluste. Gleichzeitig sind für größere  $\nu_m$  im gleichen Temperatur- und Frequenzbereich geringere  $\tan\delta$ -Werte zu erwarten, da die Besetzungszahl  $n(\nu_m)$  aufgrund der benötigten höheren thermischen Aktivierungsenergie kleiner ist.

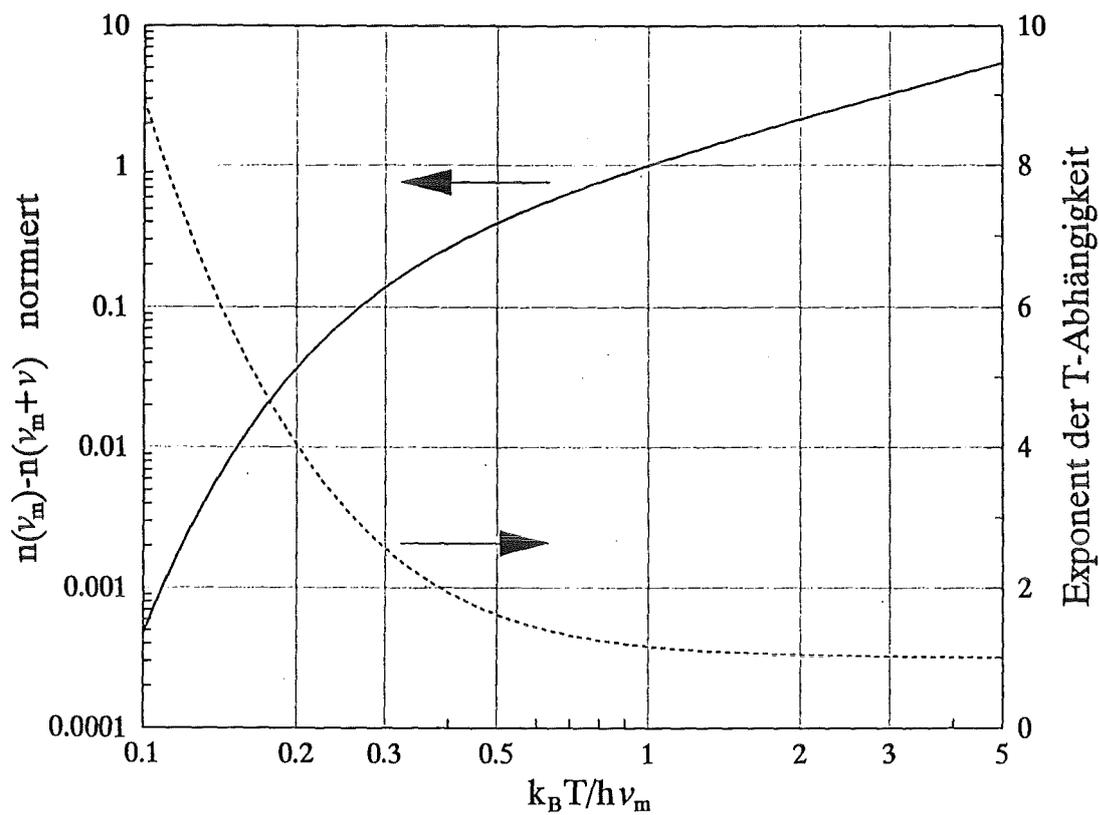


Abbildung 6.2 Normierte Darstellung der Besetzungszahl-Differenz  $n(\nu_m) - n(\nu_m + \nu)$

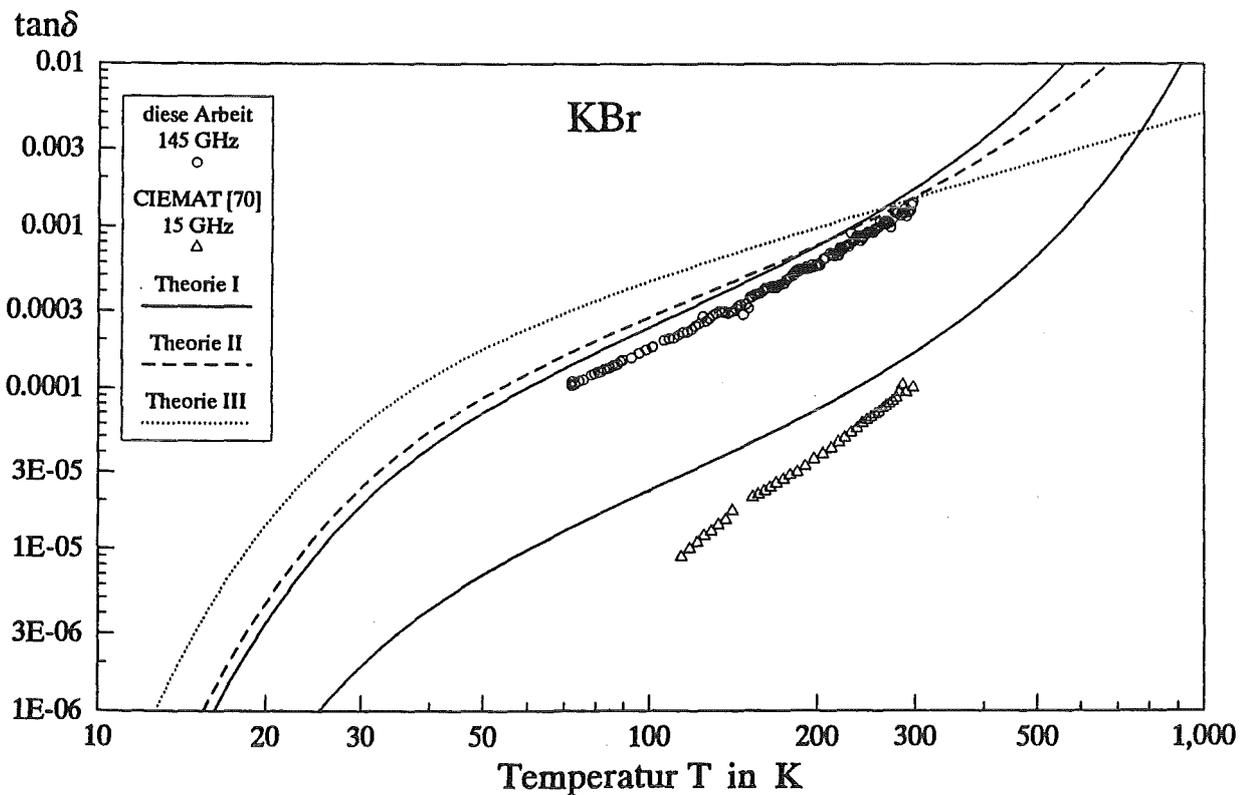
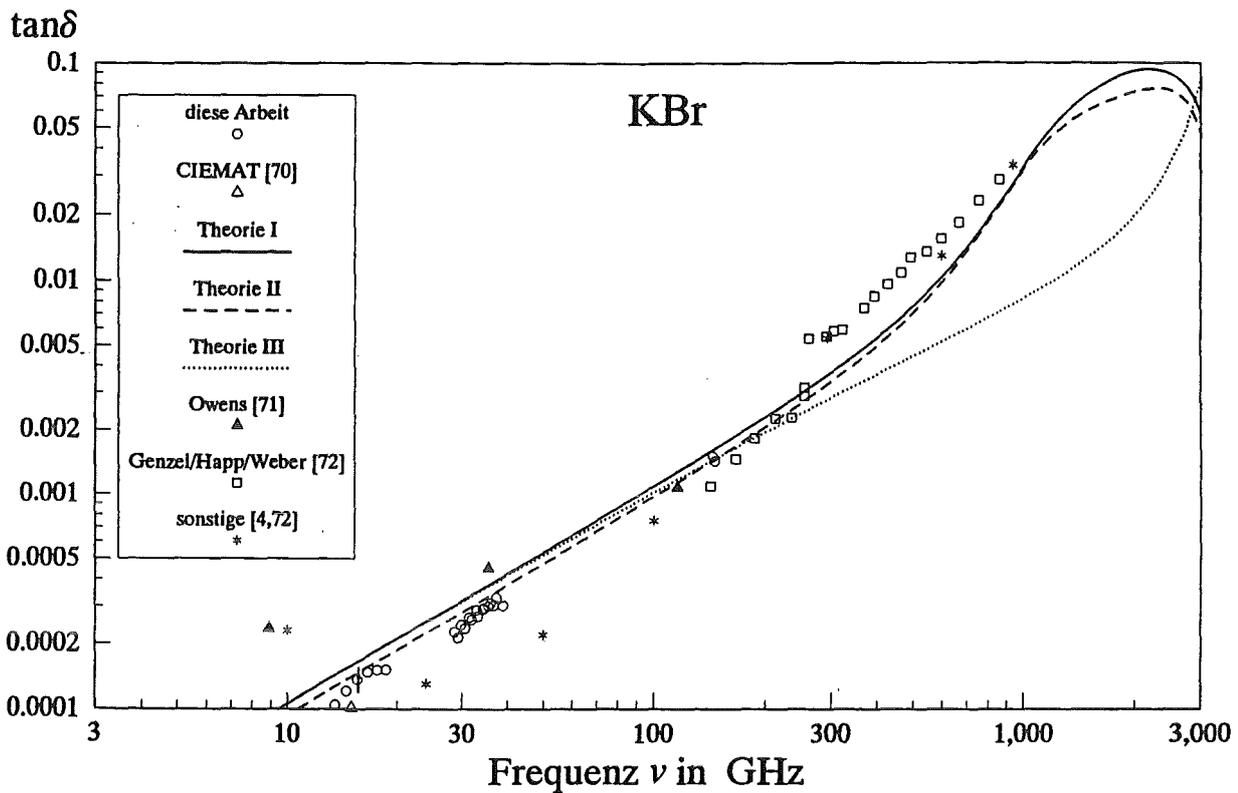


Abbildung 6.3 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in KBr im Vergleich mit Literaturwerten und theoretischen Modellen

## 6.2

## Alkalihalogenide

Durch die in dieser Arbeit gewonnenen experimentellen Ergebnisse läßt sich die Gültigkeit bestehender Theorien zur mm-Wellen-Absorption zu niedrigeren Frequenzen und tieferen Temperaturen hin untersuchen. Die von J. Molla (CIEMAT) durchgeführten Hohlraumresonator-Messungen bei 15 GHz [70] bestätigen im Rahmen der Meßgenauigkeit die Ku-Band-Messungen dieser Arbeit. Mit seinen temperaturabhängigen Messungen im Bereich von 70 K bis 300 K, in dem auch die in dieser Arbeit beschriebenen D-Band-Messungen liegen, lassen sich die theoretischen Modelle zur Temperaturabhängigkeit auch bei 15 GHz überprüfen.

Es ist zu erkennen (siehe Abbildungen 6.3 bis 6.6), daß die bei Raumtemperatur gemessenen  $\tan\delta$ -Werte zu niedrigeren Frequenzen hin konsistent an die Literaturdaten anschließen. Dabei ist die Streuung in den Meßergebnissen dieser Arbeit merklich geringer als in den bisher veröffentlichten Daten.

Owens [71] findet bei vergleichbaren Frequenzen an LiF, NaCl und KBr deutlich höhere Verluste, was entweder auf ein schlechteres experimentelles Auflösungsvermögen oder auf durch Verunreinigung verursachte extrinsische Verluste zurückzuführen sein könnte. Transmissionsspektren im UV- und sichtbaren Frequenzbereich (250 nm bis 1100 nm) zeigen für die untersuchten Alkalihalogenid-Kristalle keinerlei Absorptionsbanden, die auf eventuelle stärkere Verunreinigungen oder hohe Punktdefektkonzentrationen hinweisen. Auch durch eine chemische Analyse ließen sich keine wesentlichen Verunreinigungen nachweisen. Es wird deshalb davon ausgegangen, daß die extrinsischen Verluste der für diese Arbeit gewählten Kristalle gegenüber den intrinsischen vernachlässigbar sind.

Die theoretischen Kurven in den Abbildung 6.4 und 6.5 wurden mit Hilfe der Modellfunktion von Theorie I berechnet (siehe Kapitel 6.1). Dabei wurden bis auf ein paar Ausnahmen alle von Sparks et al. vorgegebenen Parameter übernommen. Für die statische Dielektrizitätskonstante  $\epsilon'_s$  und den Nächst-Nachbar-Abstand  $r_0$  wurden die Ergebnisse eigener Messungen benutzt (siehe Tabelle 5.7 und 4.3), die sich nicht oder nur unwesentlich von den Literaturwerten unterscheiden. Die von Sparks et al vorgeschlagenen linearen Temperaturkoeffizienten der charakteristischen Frequenzen, die als wesentlich zu klein erachtet werden, wurden durch Werte aus den Arbeiten von Lowndes ersetzt [72].

Für die theoretische Beschreibung der KCl-Messungen war zunächst ein entsprechender Parametersatz zu beschaffen. Die charakteristischen Frequenzen  $\nu_{TO}$ ,  $\nu_m$  und  $\nu_c$  wurden der Phonondispersionsrelation [75] in [111]-Richtung entnommen (siehe Abbildung A.1) und die Energieunschärfe entsprechend Gleichung (6.1) abgeschätzt. Die übrigen Parameter, wie Abstand nächster Nachbarn  $r_0$ , Kompressibilität  $\beta$ , statische und optische Dielektrizitätskonstante und Atommassen, sind bestens bekannt und in Tabellenwerken wie Landolt Börnstein [76] nachzuschlagen.

Die mit diesen Parametern (siehe Tabelle 6.2) berechneten theoretischen Kurven decken sich nicht nur gut mit der gemessenen Frequenzabhängigkeit von  $\tan\delta$  sondern auch mit der bei

145 GHz gefundenen Temperaturabhängigkeit, ohne auch nur einen der in dem Modell enthaltenen Parameter an die Meßdaten anzupassen. Auch die von J. Molla (CIEMAT) [70] durchgeführten temperaturabhängigen Messungen lassen sich weitgehend mit diesem Modell beschreiben (siehe Abbildung 6.3 und 6.6).

Vergleicht man die bei den Alkalihalogeniden gemessenen  $\tan\delta$ -Werte bei Raumtemperatur und 145 GHz mit den entsprechenden Frequenzen  $\nu_m$ , so findet man die in Kapitel 6.1 anhand Theorie III diskutierten Gesetzmäßigkeiten mit Ausnahme des KBr erfüllt (siehe Tabelle 6.1). Wie erwartet zeigt LiF mit dem größten  $\nu_m$  die kleinsten Verluste. Das abweichende Verhalten von KBr, dessen Verluste trotz des kleinsten  $\nu_m$  nicht die größten sind, liegt in der Tatsache begründet, daß diese Regel von den Unterschieden im Gitterpotential  $\phi_3$  und den Ionenmassen überlagert ist. So führt die große Masse des  $\text{Br}^-$ -Ions, die reziprok in Gleichung (2.32) eingeht, trotz des kleinen  $\nu_m$  zu geringeren Verlusten als in KCl und NaCl.

*Tabelle 6.1 Vergleich der charakteristischen Frequenzen  $\nu_m$  mit den  $\tan\delta$ -Werten bei 145 GHz und Raumtemperatur und deren mittleren Exponenten  $n$  in der Temperaturabhängigkeit ( $\tan\delta \sim T^n$ ) im Temperaturbereich zwischen 100 K und 275 K*

	$\nu_m$ in THz	$\tan\delta$ in $10^{-4}$	$n_{\text{exp}}$
LiF	6.3	8.8	1.61
NaCl	3.45	20.7	1.59
KCl	3.12	30.4	1.52
KBr	2.13	14.6	1.77

Die gemessene Temperaturabhängigkeit läßt sich anhand Theorie III nur schwer diskutieren, da zum einen die Temperaturabhängigkeit von  $\nu_m$  nicht in die Rechnung miteingeht und zum anderen der Koeffizient  $\phi_3$  und dessen Temperaturabhängigkeit nicht in der Theorie enthalten sind. Sowohl die gefundene als auch die berechnete Temperaturabhängigkeit ist jedoch für alle Alkalihalogenide bei Raumtemperatur stärker als linear (siehe Tabelle 5.1). Stolen und Dransfeld, die ihre Meßergebnisse anhand des gleichen Modells unter der Näherung hoher Temperaturen diskutieren, führen dies auf zusätzliche Verluste zurück, die durch 3-Phononen-Prozesse verursacht sind und die bei höheren Temperaturen ein quadratisches Temperaturgesetz ( $\tan\delta \sim T^2$ ) zeigen sollten. Die gut Übereinstimmung mit Theorie I zeigt jedoch, daß die Annahmen von Stolen und Dransfeld für ein lineares Temperaturgesetz zu grob sind und die Temperaturabhängigkeit der Parameter die Temperaturabhängigkeit der Verluste, insbesondere bei kleinen  $\nu_m$ -Werten, zusätzlich verstärkt.

## 6.2 Alkalihalogenide

**Tabelle 6.2** Parameter zur Berechnung der dielektrischen Verluste in den Alkalihalogeniden LiF, NaCl, KCl und KBr nach Gleichungen (2.27), (2.28) und (2.32). (\* aus Referenz [5])

	LiF	NaCl	KCl	KBr
$\epsilon_{\infty}$	1.92 *	2.33 *	2.13 [74]	2.33 *
$r_0$ in $10^{-10}\text{m}$	2.013	2.82035	3.146	3.299
$dr_0/dT$ in $10^{-14}\text{m/K}$	0.649 *	1.09 *	1.139 [76]	1.23 *
$\beta$ in $10^{-11}/\text{Pa}$	-	-	5.53 [76]	6.49 *
$d\beta/dT$ in $10^{-15}/\text{PaK}$	-	-	39.26 [76]	18.55 *
$\phi_3$ in $10^{11}\text{J/m}^3$	-13.2 *	-5.93 *	-	-
$d\phi_3/dT$ in $10^8\text{J/m}^3\text{K}$	6.0 *	2.4 *	-	-
$m_+$ in $10^{-23}\text{g}$	1.15 *	3.82 *	6.492 *	6.49 *
$m_-$ in $10^{-23}\text{g}$	3.15 *	5.887 *	5.887 *	13.3 *
$m_r$ in $10^{-23}\text{g}$	0.842 *	2.32 *	3.087 *	4.36 *
$\nu_{\text{TO}}$ in THz	9.21 *	4.92 *	4.26 [75]	3.57 [68]
$\nu_m$ in THz	6.3 *	3.45 *	2.86 [75]	2.13 [68]
$\nu_c$ in THz	2.7 *	0.6 *	0.36 [75]	0.93 [68]
$d\nu/dT$ in GHz/K	-1.65 [74]	-1.98 [74]	-1.2 [74]	-1.2 [74]
$\gamma$ in THz	0.6 *	0.54 *	0.48	0.37 *

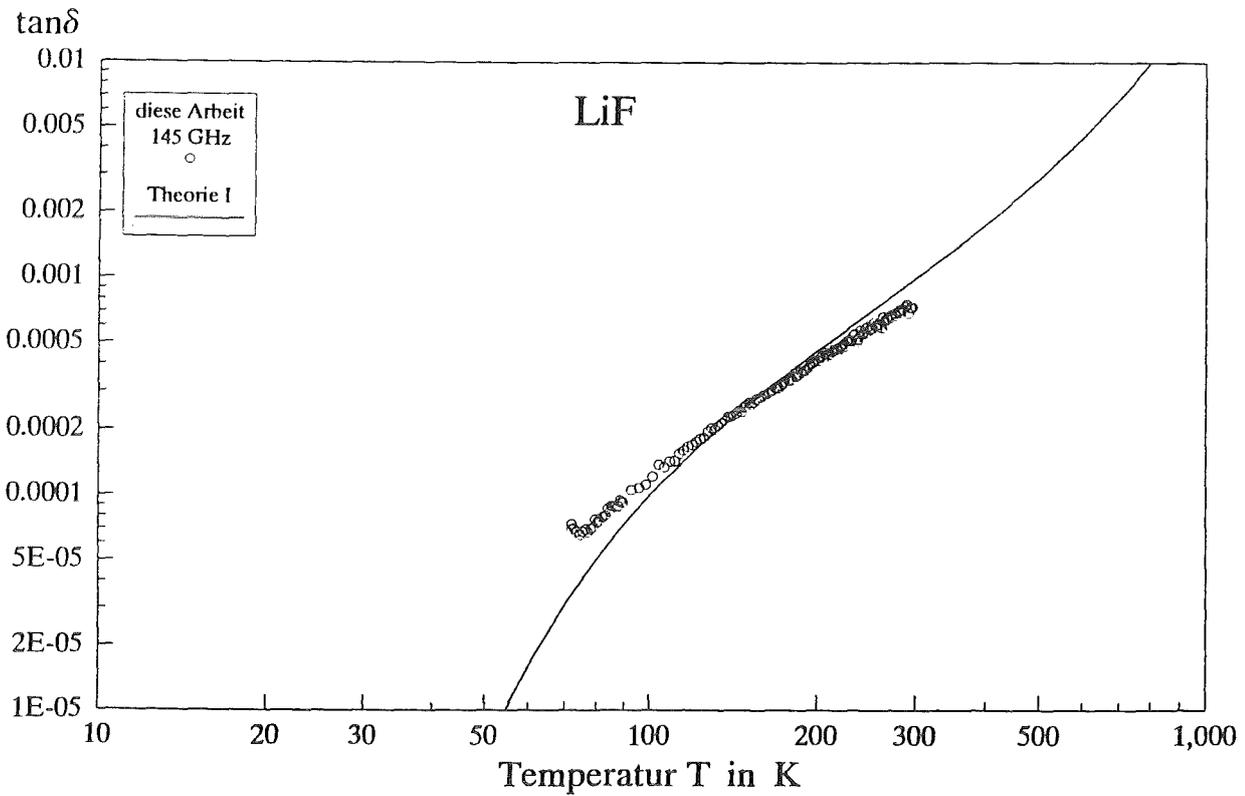
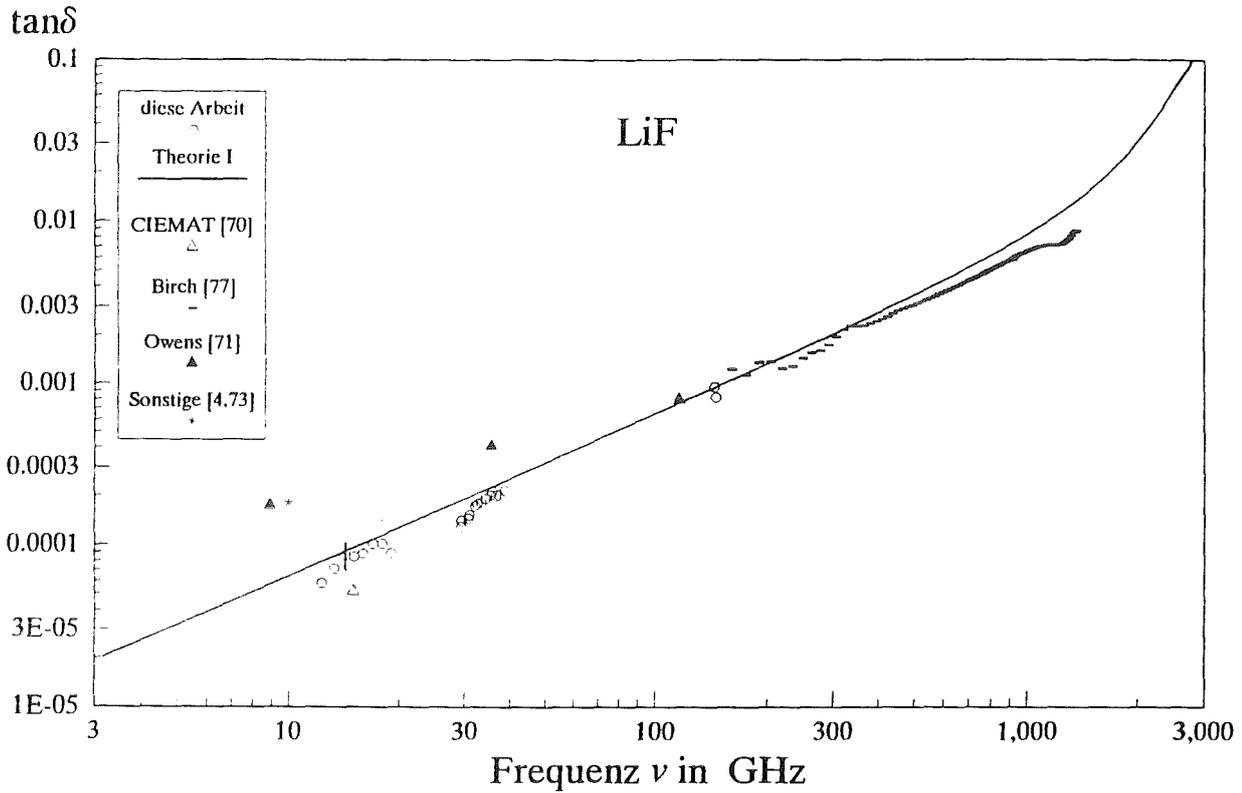


Abbildung 6.4 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in LiF im Vergleich mit Theorie I

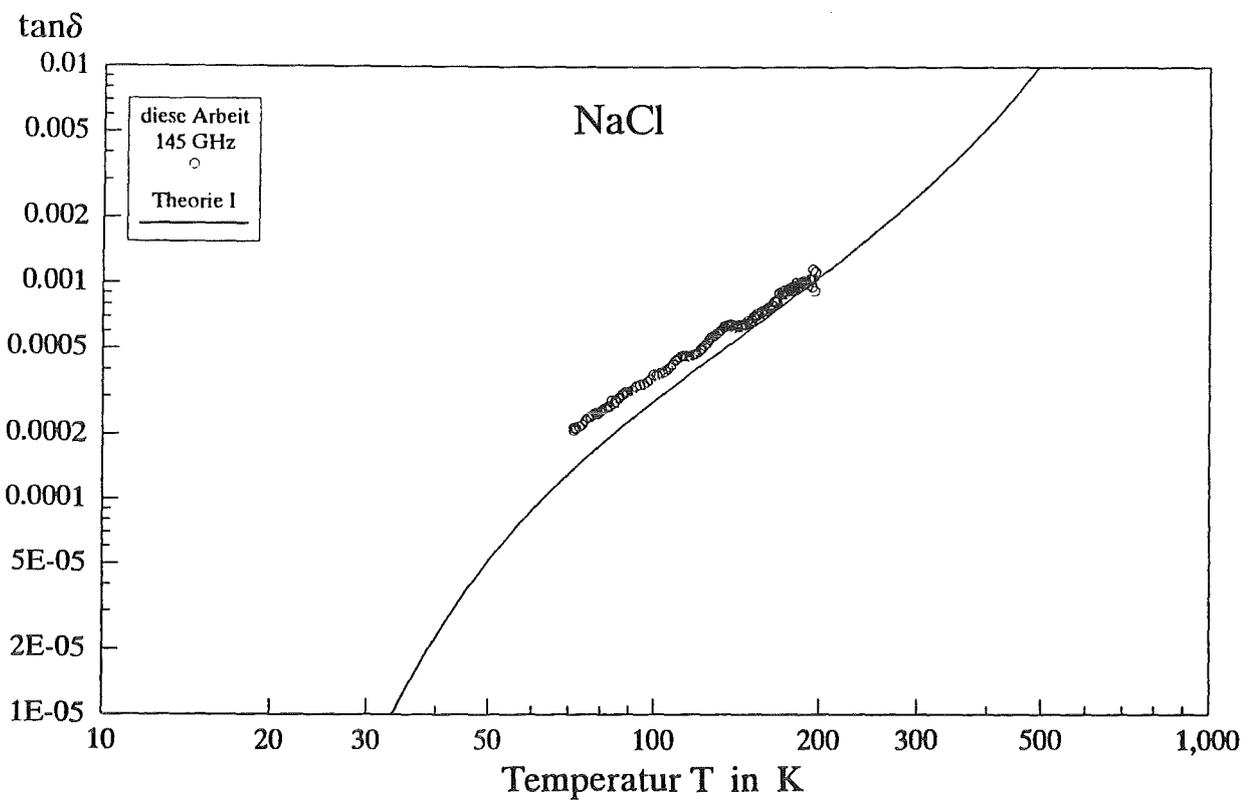
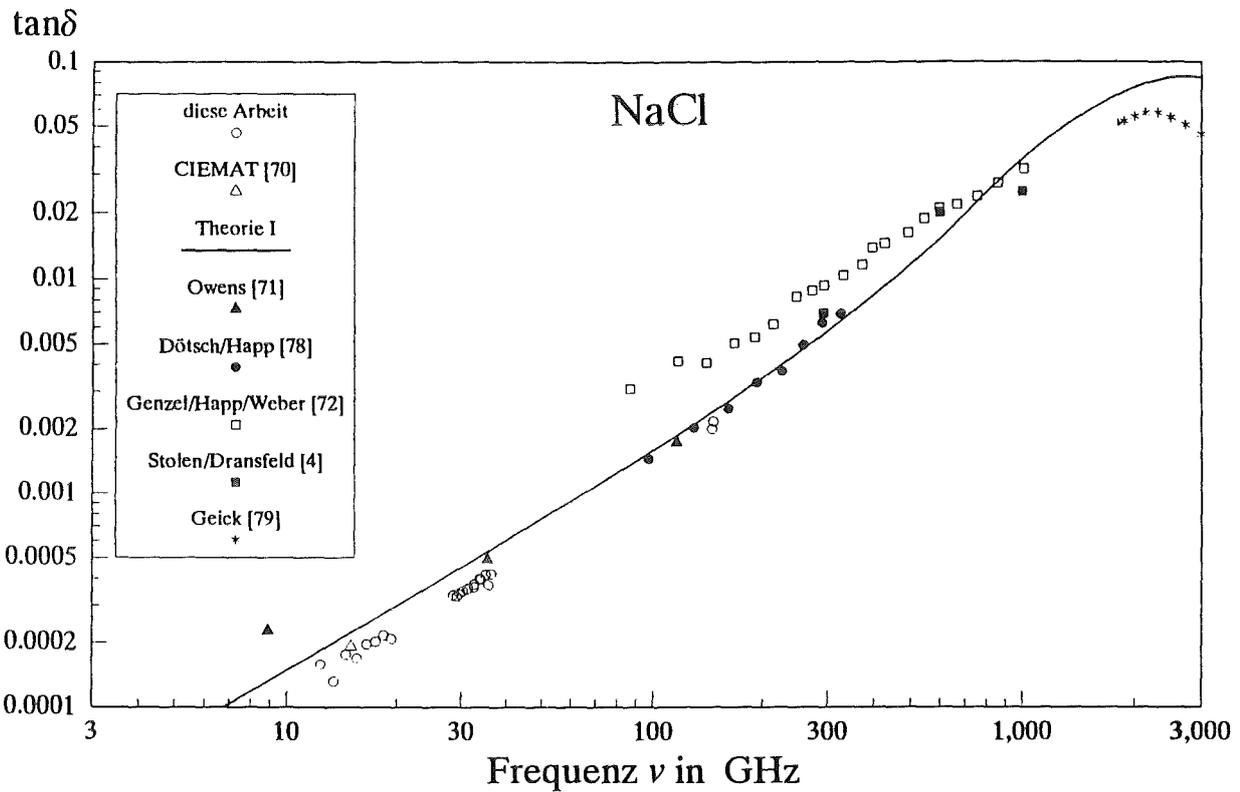


Abbildung 6.5 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan \delta$  in NaCl im Vergleich mit Theorie I

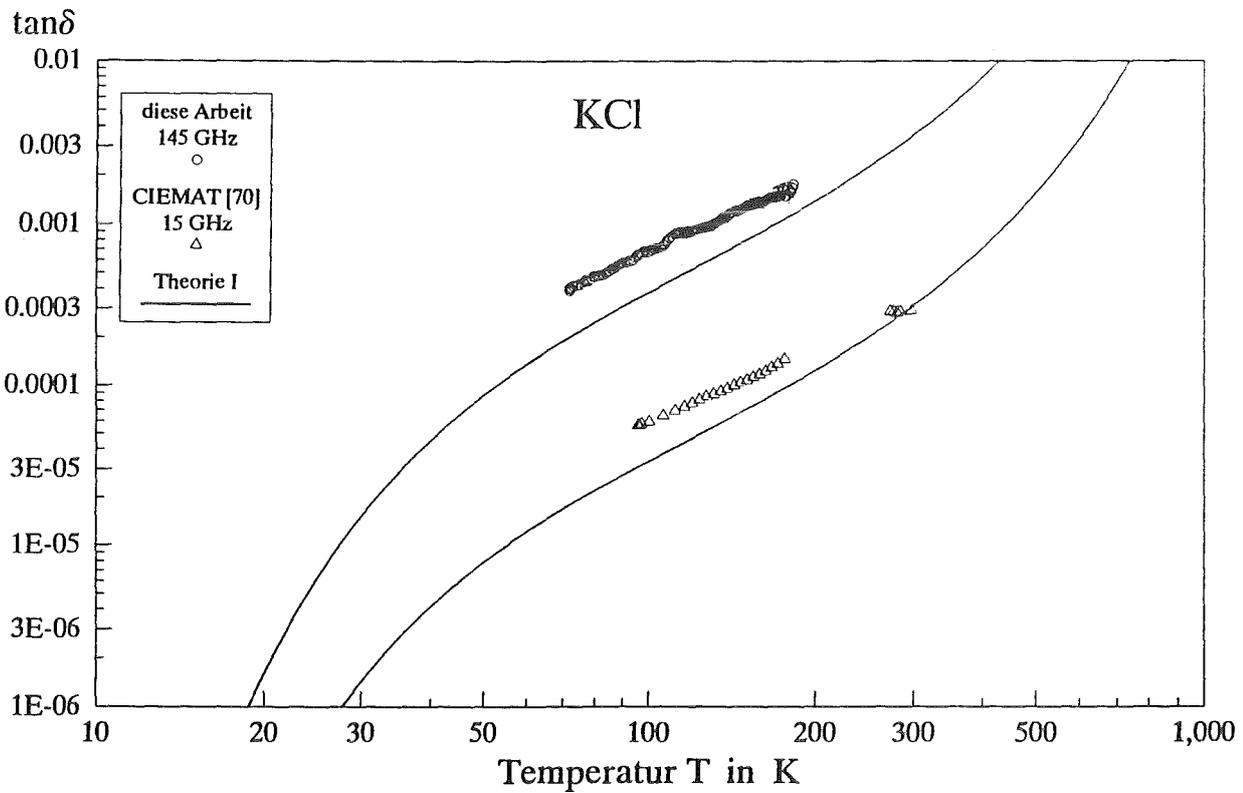
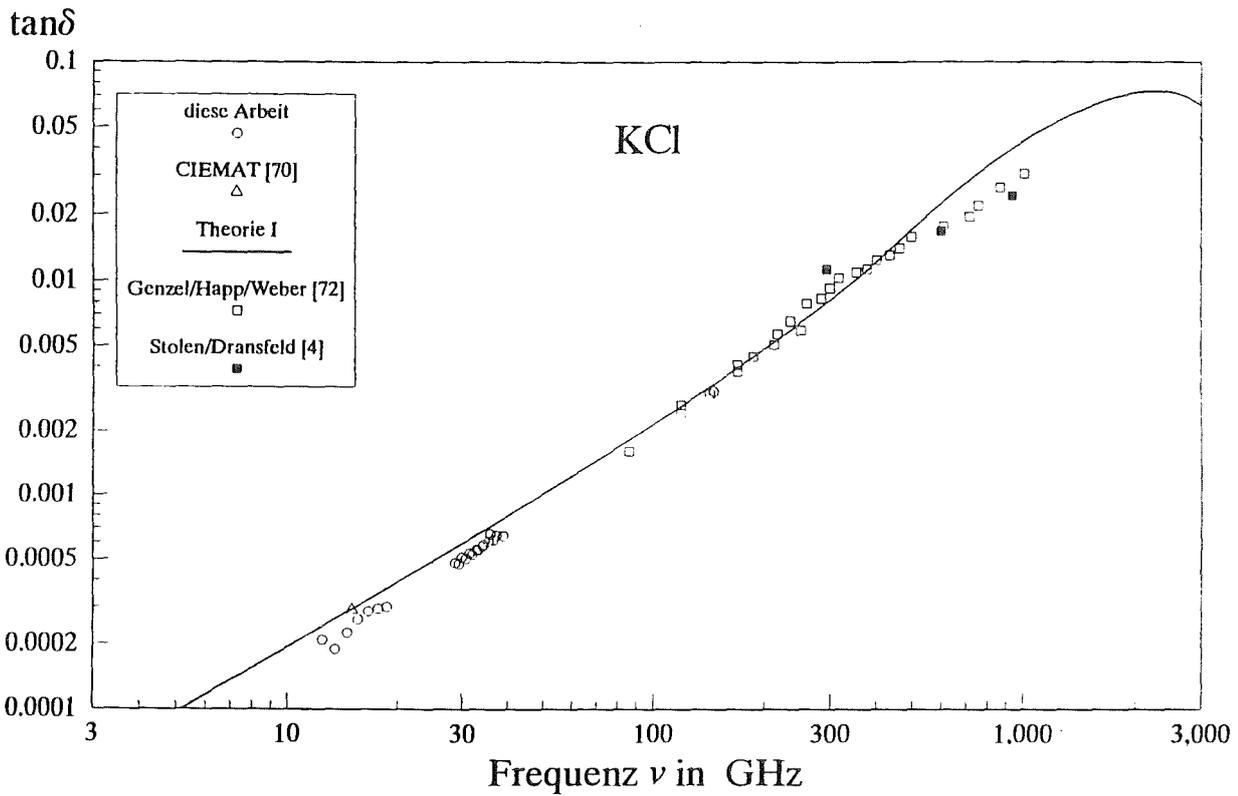


Abbildung 6.6 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan \delta$  in KCl im Vergleich mit Literaturwerten und theoretischen Modellen

## 6.3

## Erdalkalihalogenide

## 6.3.1

CaF<sub>2</sub> und BaF<sub>2</sub>

Während bei den untersuchten Alkalihalogeniden vereinzelt Literaturwerte existieren, die sich mit den Ergebnissen dieser Arbeit vergleichen lassen, lagen für CaF<sub>2</sub> und BaF<sub>2</sub> im relevanten Frequenzbereich keine Vergleichswerte in der Literatur vor. Die in CIEMAT durchgeführten Messungen bestätigen auch hier die im Ku-Band-Resonator gemessenen Raumtemperaturwerte des dielektrischen Verlusttangens. Für Frequenzen oberhalb 300 GHz gibt es neuere Daten zu CaF<sub>2</sub>, die im National Physical Laboratory (NPL) in London mittels Fourierspektrometrie bestimmt wurden [77]. Sie zeigen das gleiche lineare Frequenzgesetz, wie die Daten dieser Arbeit.

Unter Beachtung der an den Alkalihalogeniden gefundenen Auswahlregeln für die 2-Phononen-Differenzprozesse [5] läßt sich die Modellfunktion von Theorie I auf Kristalle mit CaF<sub>2</sub>-Struktur wie CaF<sub>2</sub> und BaF<sub>2</sub> verallgemeinern. Die CaF<sub>2</sub>-Struktur, deren Symmetrieeigenschaften vergleichbar sind zu denen der NaCl-Struktur der Alkalihalogenide, besteht aus einem kubisch flächenzentrierten Metallionengitter in dem die Anionen die Mitte eines jeden 1/8-Würfels ausfüllen. Mit 3 Atomen besitzt die Einheitszelle des CaF<sub>2</sub> bzw. BaF<sub>2</sub> ein Atom mehr als die der Alkalihalogenide, was zu einer um drei größeren Zahl an Phononenzweigen in der Phononen-Dispersionsrelation führt. Neben 3 akustischen gibt es 6 optische Phononenzweige, von denen nur 3 IR-aktiv sind. Die übrigen 3 sind ausschließlich in Raman-Streuexperimenten anzuregen und sollten deshalb auch für die mm-Wellen-Absorption nicht verantwortlich sein.

Wählt man aus den verbleibenden Phononenzweigen die charakteristischen Frequenzen an Punkten mit geringem Frequenzabstand  $\nu_c$  zwischen Zweigen gleicher Polarisation und mit möglichst niedriger Frequenz  $\nu_m$  des transversal akustischen Phonons, so lassen sich entsprechen den Alkalihalogeniden Modellfunktionen berechnen, welche die experimentellen Ergebnisse sehr gut wiedergeben.

Bei CaF<sub>2</sub> liegen diese Punkte demnach in [110]-Richtung, am Rand der 1. Brillouinzone, wo der Abstand zwischen den Phononenzweigen, die nach Koster mit  $\Sigma_4$  bezeichnet werden, am kleinsten ist (siehe Abbildung A.4) [80]. Die entsprechenden Dispersionskurven in [001]-Richtung sind denen in [110]-Richtung sehr ähnlich, liegen aber bei etwas höheren Frequenzen. Auch Zernik [81] macht in seiner Arbeit diese Differenzprozesse für die Absorption im fernen IR-Bereich verantwortlich. Er findet ein Maximum bei 1.35 THz, was in etwa dieser Energielücke entspricht.

Bosomworth [69] findet für CaF<sub>2</sub> bei 1.5 THz eine Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Verluste, die sich durch einen 2-Phononen-Differenzprozeß beschreiben läßt. Sein Modell unterscheidet sich von Theorie III dadurch, daß er die Frequenz des optischen Phonons als Parameter wählt und nicht die des akustischen. Die Anpassung dieses Modells führt ihn zu einer charakteristischen Frequenz  $\nu_m=10.5$  THz, die deutlich höher liegt als die zu

erwartende Frequenz des IR-aktiven Phonons. Er schließt deshalb einen Beitrag der Raman-aktiven Phononen nicht aus. Die Ursache für diese hohe Frequenz könnte jedoch nach der Diskussion in Kapitel 6.1 auch darin begründet sein, daß er wie Stolen und Dransfeld die Temperaturabhängigkeit der charakteristischen Frequenzen nicht mitberücksichtigt.

Für  $\text{BaF}_2$  liegen die stärksten Übergänge am Rand der 1. Brillouinzone zwischen den Phononenzweigen, die nach Koster mit  $\Lambda_3$  bezeichnet werden (siehe Abbildung A.5) [82]. Die Übergänge  $\Sigma_3$ - $\Sigma_3$  bzw.  $\Delta_5$ - $\Delta_5$  haben zwar kleinere Energielücken, die Energie der transversal akustischen Phononen ist jedoch in diese Symmetrierichtungen deutlich höher als in die [111]-Richtung. Bei Raumtemperatur und tieferen Temperaturen ist von diesen Übergängen ein wesentlich kleinerer Beitrag zur Absorption zu erwarten. Die Argumente werden dadurch bekräftigt, daß die Differenzprozesse zwischen transversal akustischen und IR-aktiven transversal optischen Phononen in [111]-Richtung ( $\Lambda_3$ - $\Lambda_3$ ) die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen liefern.

Die Frequenzunschärfe  $\gamma$  der Phononenzustände wurde mit Gleichung (6.1) unter der Annahme abgeschätzt, daß der für die Alkalihalogenide angenommene einheitliche Gütefaktor (14) auf die Erdalkalihalogenide übertragbar ist. Der kubische Koeffizient  $\phi_3$  in dem Wechselwirkungspotential nächster Nachbarn, läßt sich nach Gleichung (2.17) und (6.2) aus der Volumenkompressibilität  $\beta$  und dem Abstand nächster Nachbarn  $r_0$  berechnen, wenn man die doppelte Ladung des Ca-Ions ( $Z=2$ ) berücksichtigt. Da bei den langwelligen optischen Eigenschwingungen das gesamte Kationengitter gegen das Anionengitter schwingt, ist für die Masse  $m_+$  die doppelte Atommasse des Fluoratoms einzusetzen [81]. Die reduzierte Masse  $m_r$  ändert sich entsprechend.

Alle Parameter, die zur Berechnung der theoretischen Kurven dienen, sind in Tabelle 6.3 aufgelistet. Die Temperaturkoeffizienten der transversal optischen Frequenzen  $\nu_{\text{TO}}$  sind der Arbeit von Bosomworth entnommen. Für die akustischen Phononen wird, wie bei den Alkalihalogeniden, die gleiche Temperaturabhängigkeit vorausgesetzt. So konnten auch für diese Kristalle Vorhersagen für die intrinsischen Verluste gewonnen werden, die in überzeugender Weise mit den experimentellen Werten übereinstimmen, ohne auch nur einen Parameter anzupassen (siehe Abbildungen 6.7 und 6.8). Die maximalen Abweichungen sind wie bei den Alkalihalogeniden in keinem Bereich größer als ein Faktor 2.

Das durch die Theorie geforderte stärkere Ansteigen der Verluste in der Nähe von  $\nu_c$  wird bei  $\text{CaF}_2$  durch die Fourierspektrometer-Messungen [77] nicht bestätigt, was darauf hindeuten könnte, daß die Energielücke bei höheren Frequenzen liegt. Die in dieser Arbeit gefundenen Mikrowellendaten sind hingegen nahezu deckungsgleich mit der theoretisch vorhergesagten Frequenzabhängigkeit. Das gleiche gilt auch für die Temperaturabhängigkeit. Das beobachtete Abknicken der  $\tan\delta$ -Werte unterhalb von 100 K in ein nahezu temperaturunabhängiges Verhalten könnte auf extrinsische Verluste hindeuten, die durch Gitterdefekte oder Verunreinigungen verursacht sein können. Die gefundenen starken F-Zentren im UV-Bereich (siehe

### 6.3 Erdalkalihalogenide

Kapitel 4.5) erhärten diesen Verdacht. Bei  $\text{BaF}_2$ , das ebenfalls eine Sättigung unterhalb 100 K andeutet, waren solche F-Zentren nicht zu finden.

**Tabelle 6.3** Parameter zur Berechnung der dielektrischen Verluste in  $\text{CaF}_2$  und  $\text{BaF}_2$  nach Gleichungen (2.27), (2.28) und (2.32). (# aus Referenz [76])

		$\text{CaF}_2$		$\text{BaF}_2$	
$\epsilon_{\infty}$		2.04	[69]	2.16	[69]
$r_0$	in $10^{-10}\text{m}$	2.356		2.6838	
$dr_0/dT$	in $10^{-14}\text{m/K}$	0.65	#	1.09	#
$\beta$	in $10^{-11}/\text{Pa}$	1.167	#	1.737	#
$d\beta/dT$	in $10^{-15}/\text{PaK}$	2.711	#	4.734	#
$m_+$	in $10^{-23}\text{g}$	6.655	#	22.8	#
$m_-$	in $10^{-23}\text{g}$	6.31	#	6.31	#
$m_r$	in $10^{-23}\text{g}$	3.239	#	4.94	#
$\nu_{\text{TO}}$	in THz	7.68	[80]	5.58	[82]
$\nu_m$	in THz	4.26	[80]	2.04	[82]
$\nu_c$	in THz	1.26	[80]	4.056	[82]
$d\nu/dT$	in GHz/K	-1.38	[69]	-0.681	[69]
$\gamma$	in THz	0.72		0.57	

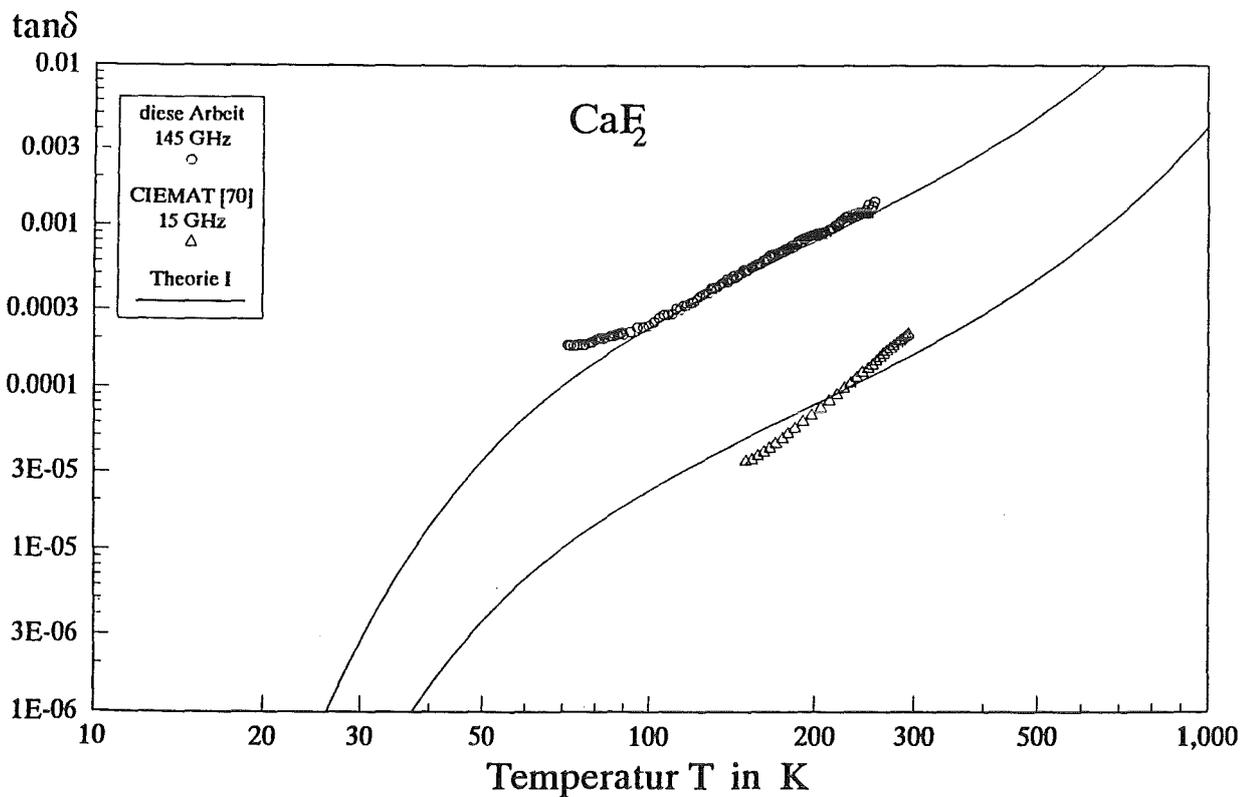
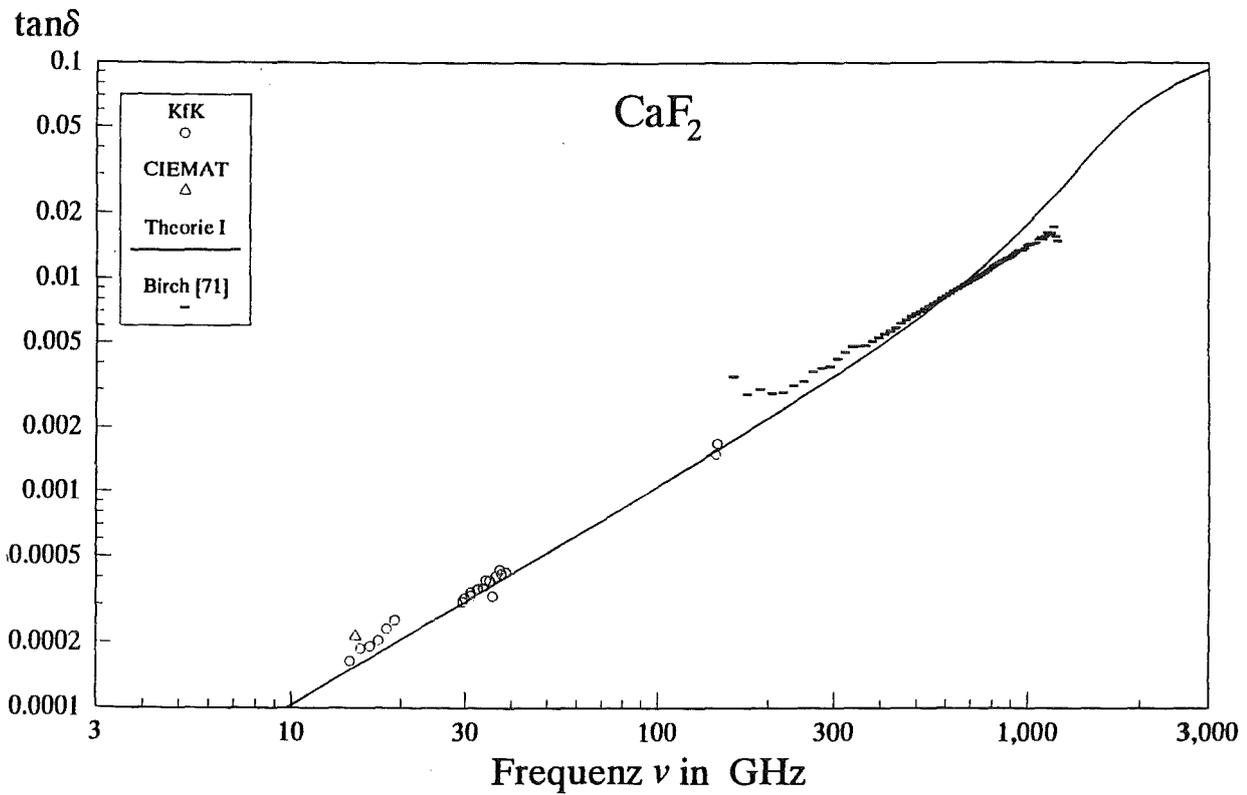


Abbildung 6.7 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in  $\text{CaF}_2$ , im Vergleich mit Theorie I

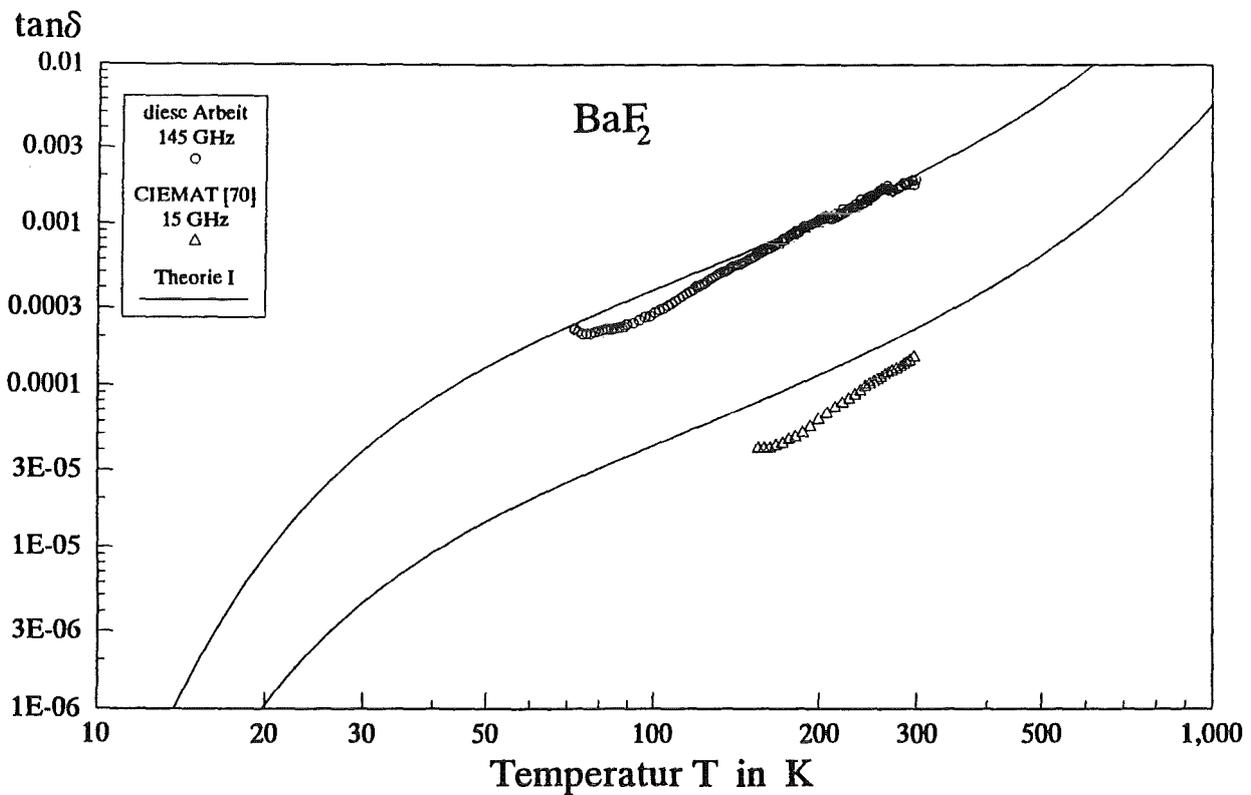
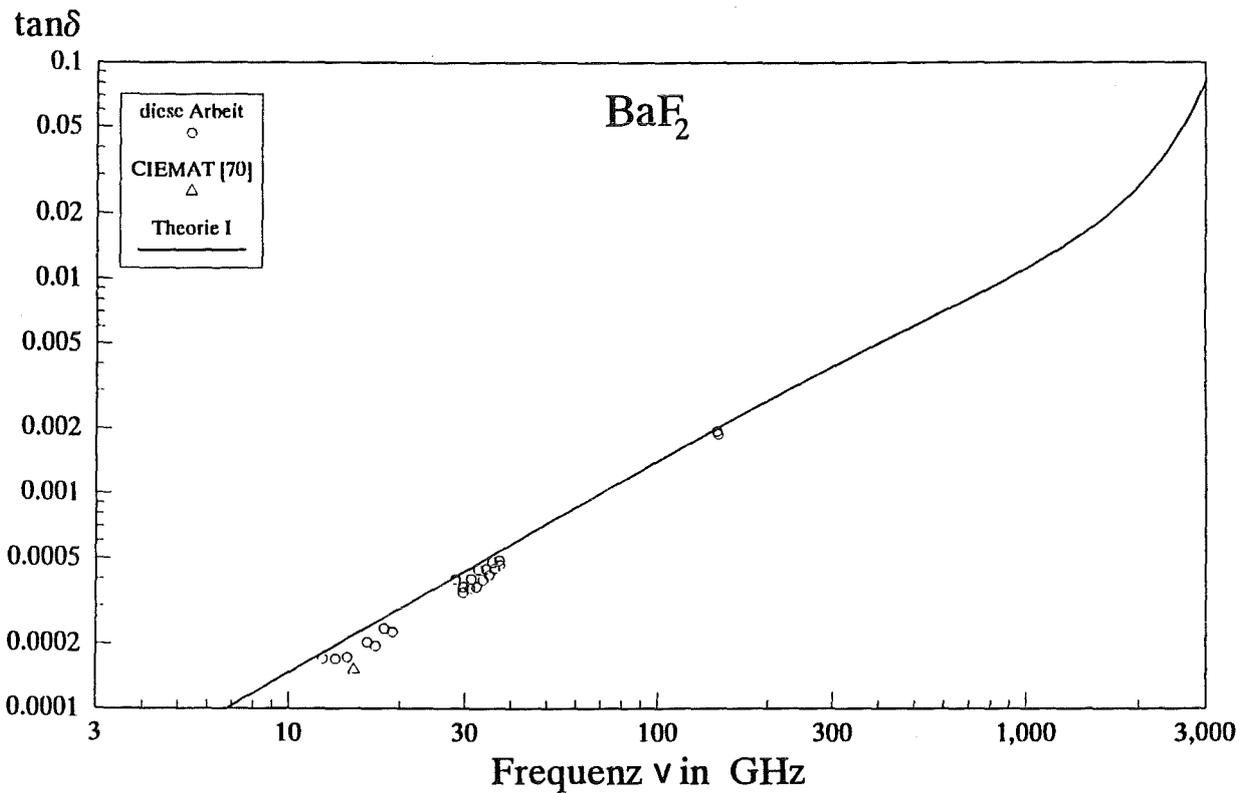


Abbildung 6.8 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan \delta$  in BaF<sub>2</sub>, im Vergleich mit Theorie I

## 6.3.2

 $\text{MgF}_2$ 

Literaturwerte zur dielektrischen Absorption bei vergleichbaren Frequenzen sind auch bei  $\text{MgF}_2$  keine bekannt. Die Hohlraumresonator-Messungen von J. Molla [70] geben die Ergebnisse dieser Arbeit im ordentlichen Strahl im Rahmen der Meßgenauigkeit wieder (siehe Abbildung 6.9). Messungen im außerordentlichen Strahl sind mit Hohlraumresonatoren keine möglich, da die elektrischen Feldkomponenten der TE-Moden nicht, wie im hemisphärischen Resonator linear polarisiert sind. Deshalb sind ausschließlich dielektrische Messungen parametrisierbar, für den Fall, daß die Schnittfläche der scheibenförmigen Probe senkrecht zur optischen Achse liegt (Z-Schnitt). Für alle anderen Schnitte erhält man immer gemischte Beiträge von  $\epsilon_{\perp}^*$  und  $\epsilon_{\parallel}^*$ .

Die Anisotropie macht die theoretischen Berechnungen der Verluste mit der Modellfunktion von Theorie I ungleich schwieriger als bei den Erdalkalihalogeniden, denn sie geht nicht nur in das Gitterpotential ein, sondern auch in das Phononenspektrum. Die Struktur des Gitterpotentials ist in Wirklichkeit wesentlich komplexer, als es durch Gleichung (6.2) ausgedrückt wird, da in der Rutil-Struktur des  $\text{MgF}_2$  unterschiedliche Nächst-Nachbar-Abstände und somit verschiedene Überlapp-Potentiale existieren. [83,84].

In Anbetracht der Tatsache, daß selbst für die wesentlich besser bekannten Alkalihalogenide die kubischen Koeffizienten  $\phi_3$  in der Literatur stark voneinander abweichen, scheint eine genauere Berechnung nur schwer möglich. Deshalb beschränken sich die folgenden theoretischen Rechnungen auf das Modell von Theorie II, in der dieser Koeffizient an die Meßkurven angepaßt wird.

Die Dispersionsrelation des  $\text{MgF}_2$  besteht aufgrund der 6-atomigen Einheitszelle aus 18 Phononenzweigen. Die Wahl der richtigen charakteristischen Frequenzen wird dadurch erheblich erschwert. So gibt es in Kristallen mit der Rutil-Struktur 3 IR-aktive Phononenzweige, die senkrecht zur optischen Achse polarisiert und somit für die Verluste im ordentlichen Strahl verantwortlich sind [85] (Phononen dieser Polarisation werden in ihrer irreduziblen Darstellung  $E_u$ -Moden bezeichnet). Das optische Phonon mit der geringsten Anregungsenergie ( $\nu_{\text{TO}}=7.41$  THz) zeigt die größte Coulombaufspaltung zwischen dem transversalen und longitudinalen Phononenzweig [83]. Nach der Lyddane-Sachs-Teller Beziehung (2.11) besitzt diese Gitterschwingung die größte Oszillatorstärke  $\epsilon_s - \epsilon_{\infty}$  und sollte deshalb im wesentlichen für die Absorption im mm-Wellen-Bereich verantwortlich sein.

Dieses Phonon transformiert in [100]-, [110]- und [001]-Richtung in Phononen der Darstellung  $\Delta_3$ ,  $\Sigma_3$  und  $\Lambda_5$ , von denen nur die ersten beiden eine reine Polarisation senkrecht zur optischen Achse besitzen [83]. Geht man davon aus, daß auch hier Übergänge zwischen Phononen gleicher Polarisation am stärksten sind, bedeutet dies eine Absorption über die 2-Phononen-Differenzprozesse  $\Sigma_3 - \Sigma_3$  und  $\Delta_3 - \Delta_3$ . Der  $\Lambda_5$ -Zweig in [001]-Richtung hat zwar keine reine Polarisationsrichtung senkrecht zur optischen Achse, die Energielücke zum transversal akustischen Phononenzweig entsprechender Symmetrie ist jedoch deutlich geringer, als zwischen den erwähnten Phononenzweig-Paaren. Desweiteren sind die Phononen der

Symmetrie  $\Lambda_3$ , wie bei den bisher betrachteten Kristallen, zweifach entartet, weshalb 4 Kombinationsmöglichkeiten ( $N_B=4$ ) für 2-Phononen-Prozesse existieren, gegenüber nur einer möglichen Kombination ( $N_B=1$ ) zwischen den  $\Sigma_3$ - und  $\Delta_3$ -Zweigen, die nicht entartet sind. Ein weiterer möglicher Übergang wäre  $\Sigma_1-\Sigma_1$  bei einem reduzierten Wellenzahlvektor von ca.  $[0.3,0.3,0]$ , der eine vergleichbar kleine Energielücke aufweist.

Die mit diesen 2-Phononen-Differenzprozessen nach Theorie II zu erwartenden Verluste wurden berechnet und mit den Ergebnissen verglichen (siehe Abbildung 6.9). Während die gefundene lineare Frequenzabhängigkeit sich mit allen Übergängen beschreiben läßt, ist die gemessene starke Temperaturabhängigkeit ( $\tan\delta \sim T^{2.14}$ ) nur mit dem  $\Lambda_3-\Lambda_3$ -Übergang zu erklären, der die größte charakteristische Frequenz  $\nu_m$  besitzt. Dies läßt sich nach der Diskussion in Kapitel 6.1 verstehen, nach der die Steilheit der Temperaturabhängigkeit mit  $\nu_m$  zunimmt.

In Kristallen der Rutil-Struktur existiert nur ein IR-aktiver Phononenzweig mit einer Polarisation entlang der optischen Achse (solche Phononen werden in ihrer irreduziblen Darstellung mit  $A_{2u}$  bezeichnet) [85]. Dieser ist für die Absorption im außerordentlichen Strahl verantwortlich und liegt in  $MgF_2$  und bei Raumtemperatur bei einer Frequenz von  $\nu_{TO}=11.97$  THz [83]. Dieses Phonon transformiert in die einzelnen Symmetrierichtungen in die Darstellungen  $\Sigma_2$ ,  $\Delta_2$  und  $\Lambda_1$ , wobei auch hier die Phononen in  $[001]$ -Richtung keine reine Polarisation in Richtung der Achse besitzen. Der Abstand zu den akustischen Phononen gleicher Darstellung ist in  $[100]$ - und  $[110]$ -Richtung mit mehr als 8 THz viel zu groß, als daß Differenzprozesse zwischen diesen Zweigen zu einer merklichen Absorption im mm-Wellen-Bereich beitragen könnten. Die Tatsache, daß  $MgF_2$  im außerordentlichen Strahl nahezu identisches Absorptionsverhalten zeigt wie im ordentlichen Strahl, könnte ein Hinweis darauf sein, daß diese  $A_{2u}$ -Moden über die gleichen Differenzprozesse zerfallen, wie die  $E_u$ -Moden.

Die niedrigen Verlusttangens-Werte des  $MgF_2$  im Vergleich zu den Alkali- und Erdalkalihalogeniden lassen sich zum einen durch die höhere Frequenz  $\nu_m$  der transversal akustischen Phononen am Zonenrand erklären und zum anderen durch die größere Zahl der Atome pro Einheitszelle, wodurch sich die Massen  $m_x$ ,  $m_y$  und  $m_z$  entsprechend erhöhen. Dies führt nach Gleichung (2.32) zu niedrigeren Verlusten, da diese sich umgekehrt proportional zum Produkt dieser Massen verhalten.

**Tabelle 6.4** Parameter zur Berechnung der dielektrischen Verluste in  $MgF_2$  nach Gleichungen (2.27), (2.28) und (2.32). (@ aus Referenz [83] ausgewählt)

	ord. Str.	außerord. Str.
$\epsilon_\infty$	1.926 [76]	1.893 [76]
$\nu_{TO}$ in THz	7.41 @	11.97 @
$\nu_m$ in THz		6.15 @
$\nu_c$ in THz		1.11 @
$dv/dT$ in GHz/K [86]		-0.7 @
$\gamma$ in THz		0.96

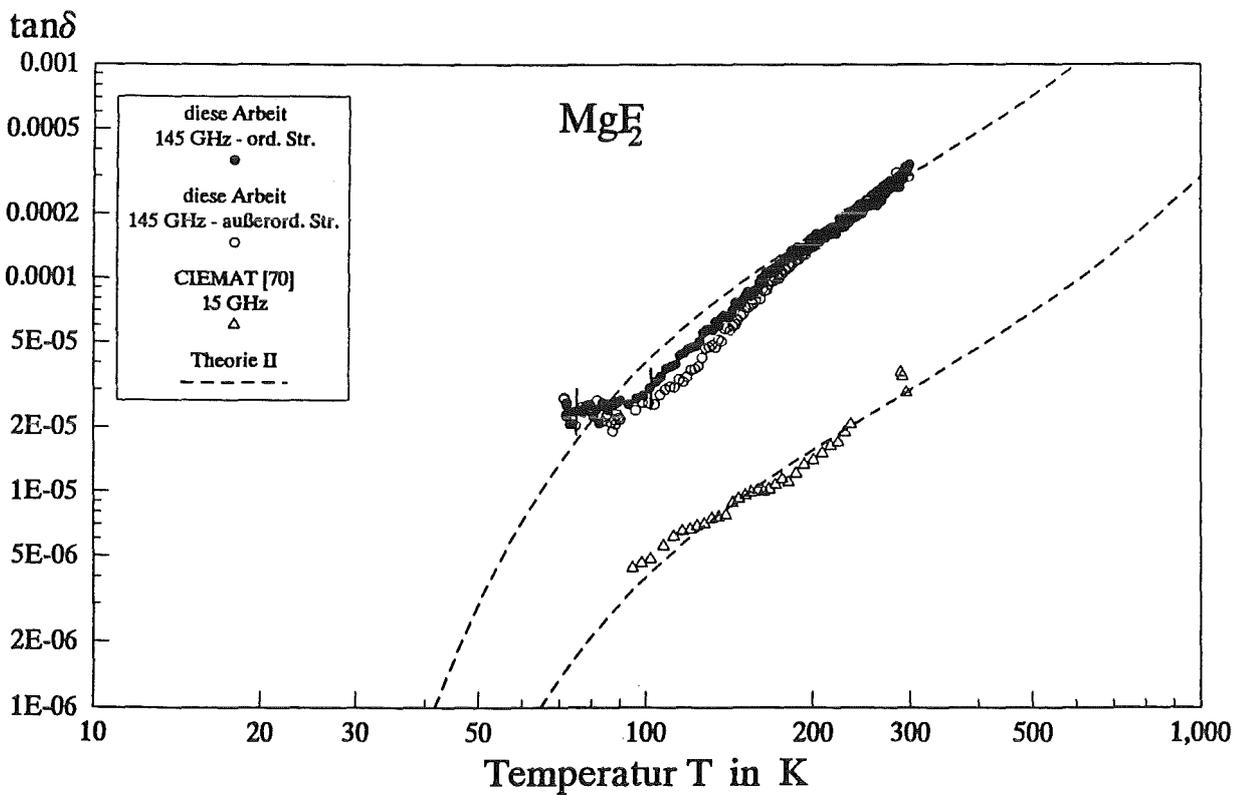
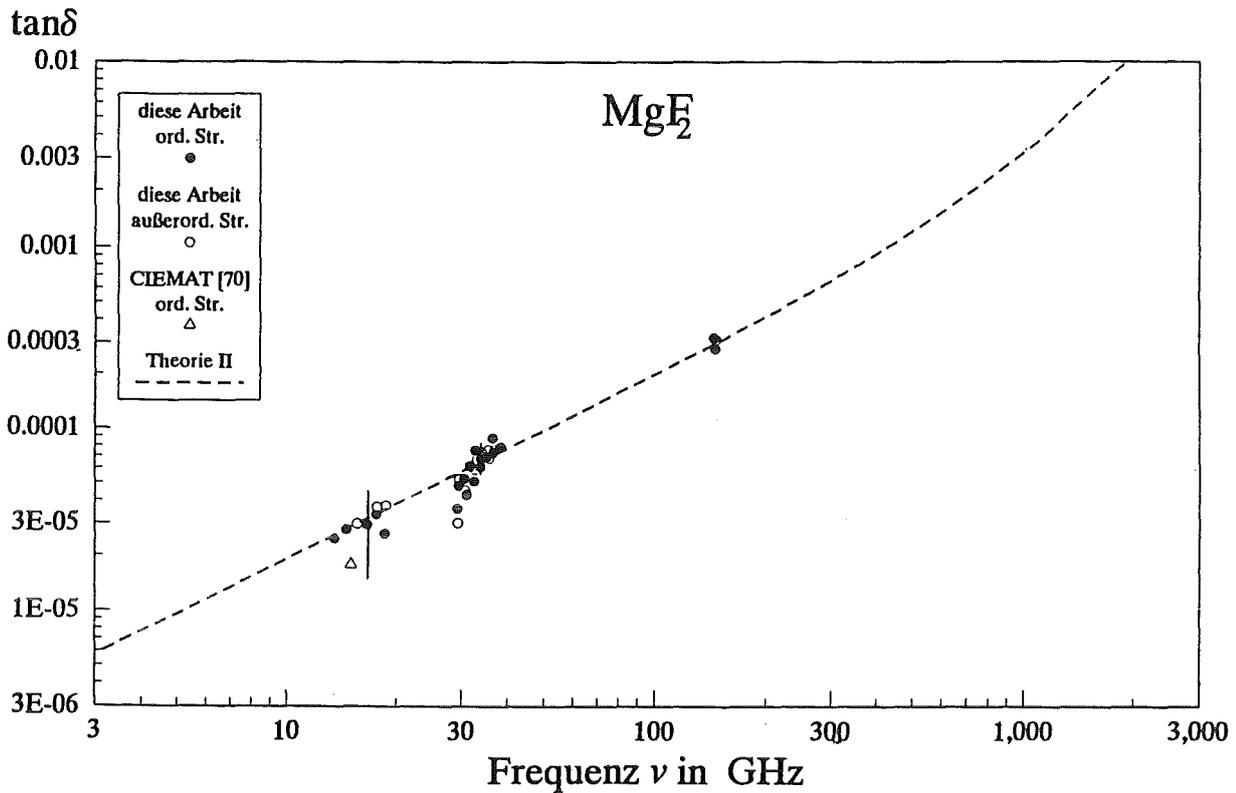


Abbildung 6.9 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in  $\text{MgF}_2$ , im ordentlichen und außerordentlichen Strahl im Vergleich mit Theorie II

## 6.4

Saphir ( $Al_2O_3$ )

Da Saphir ein technisch interessantes Material darstellt, sind auch in der Literatur vereinzelt  $\tan\delta$ -Werte im Mikrowellenbereich zu finden. Die Streubreite in den Literaturwerten liegt jedoch deutlich höher als in den Meßergebnissen dieser Arbeit [87]

Die von Braginsky et al [88] mit dielektrischen Resonatoren gefundenen Verluste liegen etwas niedriger als der Durchschnitt der übrigen Literaturwerte. Dies hängt damit zusammen, daß die benutzte Meßmethode über alle Polarisationsrichtungen mittelt [89]. Aufgrund der geringeren Verluste im außerordentlichen Strahl führt dies insgesamt zu Ergebnissen, die zwischen den Werten der beiden ausgezeichneten Orientierungen liegen. Ein eindeutiges Indiz dafür ist die gemessene relative Dielektrizitätskonstante  $\epsilon'$  von 10, die dem über alle Raumrichtungen gemittelten Wert  $(\epsilon'_{xx} + \epsilon'_{yy} + \epsilon'_{zz})/3$  entspricht.

Der beobachtete starke Abfall der Verluste zu tiefen Temperaturen (siehe Abbildung 6.11) wurde bei diesen Frequenzen bisher noch nicht gemessen. Braginsky et al [88,90] finden in ihrer Arbeit bei niedrigeren Frequenzen ein vergleichbares Temperaturverhalten ( $\tan\delta \sim T^{4,7}$ ), welches jedoch schon bei höheren Temperaturen einsetzt. Dabei verschiebt sich der Übergang zu dieser starken Temperaturabhängigkeit mit abnehmender Frequenz zu höheren Temperaturen.

Auch die von Braginsky et al untersuchten Saphire zeigen bei tiefen Temperaturen unterschiedliches Verhalten [88]. Dies scheint im Zusammenhang zu stehen mit der Sauerstofflückenkonzentration, denn diese Sauerstofflücken, die sich im UV-Bereich bei 220 nm als F-Zentren beobachten lassen [61], sind mit Sicherheit nur im HEMEX-Saphir zu finden. Im Ti-dotierten Saphir, der sich vom HEMEX-Saphir in der Herstellung nur durch die Zugabe von etwa 0.03 Gewichtsprozent  $TiO_2$  in die Schmelze unterscheidet, lassen sich diese Sauerstofflücken nicht durch optische Spektroskopie nachweisen, da deren F-Zentren durch starke F-Zentren der  $Ti^{3+}$ -Ionen überlagert sind [62]. Man könnte jedoch vermuten, daß die herstellungsbedingte Sauerstofflückenkonzentration durch die Zugabe von  $TiO_2$  in die Schmelze unterdrückt wird, da das Titan mehr Sauerstoff bindet als das Aluminium

Aufgrund der Komplexität der Kristallstruktur und der Phononen-Dispersionsrelation beschränken sich die theoretischen Berechnungen für Saphir auf das Modell von Theorie II, womit sich keine Aussagen mehr über Absolutwerte des Verlusttangens treffen lassen. Deren Abhängigkeit von der Frequenz bzw. Temperatur kann dennoch damit diskutiert werden, wenn man die genauen Phononen-Zerfallsprozesse der angeregten IR-aktiven Phononen kennt. Billard et al [91] finden anhand von Fern-IR-Messungen oberhalb 600 GHz, daß die Absorption im wesentlichen durch 2-Phononen-Differenzprozesse bestimmt ist. Erst bei Frequenzen  $\nu > 1.5$  THz und oberhalb Raumtemperatur machen sich 3-Phononen-Prozesse bemerkbar.

Die Kristallstruktur des Saphirs hat trigonalen Charakter und besitzt die Symmetrieeigenschaften der  $C_{3v}$ -Gruppe. Die Sauerstoffatome sind entsprechend der hexagonal dichtesten Kugelpackung angeordnet, wobei die Aluminiumatome 2/3 der Oktaederlücken ausfüllen.

Mit 10 Atomen pro Einheitszelle gibt es 30 Phononenzweige in der Dispersionsrelation, die durch Neutronenstreuexperimente nur schwer vollständig zu messen und ihrer irreduziblen Darstellung zuzuordnen sind [92,93].

Die Dispersionsrelation der Phononen in Saphir zeichnet sich durch eine Besonderheit aus. Die Phononen verhalten sich so, als ob der Kristall in  $\Gamma$ -Z- und  $\Gamma$ -A-Richtung nur eine halb so große primitive Zelle und damit eine doppelt so große Brillouinzone besitzen würde [94]. Dies führt dazu, daß die Phononen der  $\Sigma_1$ - und  $\Sigma_2$ - bzw.  $\Lambda_1$ - und  $\Lambda_2$ -Darstellung am Zonenrand ineinander übergehen. Die Phononen der Darstellung  $\Lambda_3$  sind an dieser Stelle vierfach entartet. Dies erlaubt es, die Brillouinzone zu entfalten, so daß man effektiv nur noch 10 bzw. 15 Phononenzweige hat.

Von diesen Zweigen sind für die Absorption im ordentlichen Strahl ausschließlich Phononen der Charaktere  $E_u$  [27] und für die Absorption im außerordentlichen Strahl Phononen der Charaktere  $A_{2u}$  verantwortlich [95]. Während vier unterschiedliche IR-aktive Phononen mit der Polarisation der  $E_u$ -Moden existieren, gibt es nur zwei IR-aktive Phononen mit einer Polarisation der  $A_{2u}$ -Moden. Die Aufspaltung in transversale und longitudinale Phononenzweige und damit die Oszillatorstärken  $(\epsilon_s - \epsilon_\infty)_j$  dieser einzelnen IR-aktiven Phononen sind sehr verschieden. Deshalb tragen diese unterschiedlich stark zur mm-Wellen-Absorption bei. Diese Parameter lassen sich durch Anpassen der klassischen Theorie des Dispersionsoszillators (2.15) an IR-Spektren bestimmen [27,95]. Eine Extrapolation dieser Funktion (2.15) zu niedrigen Frequenzen (in den Abbildungen 6.11 und 6.12 als punktierte Linien dargestellt) stimmt überraschend gut mit der experimentell gefundenen Frequenzabhängigkeit überein. Aussagen über die Temperaturabhängigkeit lassen sich mit diesem klassischen Modell jedoch nicht gewinnen, denn dazu ist die quantenmechanische Dämpfungsfunktion (2.32) einzuführen.

Im mm-Wellen-Bereich ist die stärkste Dämpfung der IR-aktiven Phononen - entsprechend der bisher behandelten Kristallsysteme - durch 2-Phononen-Differenzprozesse zwischen transversal akustischen und optischen Phononen gleicher Darstellung an Punkten kleinster Energielücken zu erwarten. Kennt man diese Übergänge, so lassen sich auch für solche komplexen Kristalle Aussagen über die zu erwartende Temperaturabhängigkeit gewinnen.

Für die mm-Wellen-Absorption im ordentlichen Strahl sind demnach in  $\Gamma$ -Z-Richtung starke Übergänge zwischen Phononen der Darstellung  $\Lambda_3$  zu erwarten. Deren kleinster Abstand in der erweiterten Brillouinzone entspricht in etwa einer Frequenz  $\nu_c=1.95$  THz bei einer Frequenz  $\nu_m=11.01$  THz des akustischen Phonons.

Die mit diesen Frequenzen berechneten theoretischen Kurven (Theorie II) geben die gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit sehr gut wieder (siehe Abbildung 6.11). Auch sie zeigen den beobachteten steten Übergang von einer nahezu quadratischen Temperaturabhängigkeit bei Raumtemperatur zu einer starken Temperaturabhängigkeit bei tiefen Temperaturen. Zur Beschreibung der in CIEMAT gemessenen Verluste [96] war diese Funktion nochmals für 15 GHz Meßfrequenz zu berechnen. Sie wurde dabei, um konsistent zu bleiben mit

dem gleichen Faktor skaliert, wie die Kurve für 145 GHz. Wie schon bei den Raumtemperaturwerten liegen die Temperaturdaten etwas unterhalb der theoretischen Kurve. Im Temperaturverlauf stimmen jedoch beide näherungsweise überein.

Wegen der relativ hohen charakteristischen Frequenzen beeinflußt deren Temperaturabhängigkeit die Steilheit der nach Theorie II berechneten Temperaturfunktion nicht besonders stark. Deshalb lassen sich die gemessenen Daten auch recht gut durch das Modell von Theorie III beschreiben, in dem diese Temperaturabhängigkeit der Parameter vernachlässigt wird (siehe Abbildung 6.11). Dies führt für die Verluste im ordentlichen Strahl zu folgender einfachen Funktion

$$\tan \delta = \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{\epsilon_s} \frac{2}{v_{TO}} 302 \text{GHz} [n(v_m, T) - n(v_m + v, T)] \quad , \quad (6.4)$$

wobei der Skalierungsfaktor 302 GHz aus dem Raumtemperaturwert bei 145 GHz berechnet wurde.

Wären die dielektrischen Verluste nicht durch extrinsische Verluste überlagert, so müßten nach den Voraussagen der Theorie die Temperaturabhängigkeit zu tiefen Temperaturen zunehmen. Das mittlere Temperatugesetz hängt somit nach diesem Modell stark von dem betrachteten Temperaturintervall ab und sollte nicht, wie in den theoretischen Arbeiten von Gurevich et al [6], gegen ein konstantes Temperatugesetz konvergieren. Die Diskrepanz zwischen dem von Braginsky gefundenen Tieftemperaturverhalten ( $\tan \delta \sim T^{4.7}$ ) und dem von Gurevich für Kristalle der Symmetrie-Gruppe  $C_{3v}$  geforderten ( $\tan \delta \sim T^4$ ) könnte auf diese Sachverhalt zurückzuführen sein.

In Abbildung 6.10 wurden die theoretischen Kurven auf die Meßfrequenzen von Braginsky et al übertragen. Die Kurven sind alle mit dem gleichen Faktor skaliert, der so gewählt wurde, daß der gemessene Raumtemperaturwert bei 72 GHz mit dem berechneten zusammenfällt. Wenn man davon absieht, daß der starke Abfall bei den gemessenen Verlusten bei etwas höheren Temperaturen einsetzt, als durch die Theorie gefordert, erkennt man auch da eine recht gute Übereinstimmung.

Nach den Arbeiten von Gurevich et al sollten Kristalle mit den Symmetrieeigenschaften des Saphirs im außerordentlichen Strahl und bei tiefen Temperaturen eine starke Frequenzabhängigkeit und ein quadratisches Temperatugesetz der Verluste zeigen ( $\tan \delta \sim v^4 T^2$ ). Es sind bisher keine Messungen bekannt, anhand derer dieses Gesetz überprüft wurde. Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen zwar eine schwächere Temperaturabhängigkeit als im ordentliche Strahl, sie ist jedoch mit  $\tan \delta \sim T^{2.5}$  zwischen 90 K und 130 K deutlich stärker als ein  $T^2$ -Gesetz.

Die langwelligen Gitterschwingungen mit einer Polarisierung in Richtung der optische Achse ( $A_{2u}$ -Moden), welche für die Absorption im fernen IR- und mm-Wellen-Bereich verantwortlich sind, liegen bei  $v_{TO} = 12$  THz [93]. Diese transformierten in  $\Gamma$ -Z-Richtung in die  $\Lambda_1$ -Darstellung und in  $\Gamma$ -A-Richtung in Phononen der Darstellung  $\Sigma_1$ . In  $\Gamma$ -Z-Richtung sollten demnach die stärksten Übergänge in der Nähe des Zonenrandes zu erwarten sein, an der Stelle, wo die Energielücke zwischen den  $\Lambda_1$ -Zweigen (durchgezogene Linien in Abbildung A.8) mit ca.  $v_c = 2.07$  THz am kleinsten ist. In  $\Gamma$ -A-Richtung gibt es zwischen den

entsprechenden IR-aktiven  $\Sigma_1$ -Zweigen eine vergleichbare Energielücke. Die mit diesen Frequenzen berechneten und skalierten  $\tan\delta$ -Werte stehen auch hier im Einklang mit den experimentellen Befunden (siehe Abbildung 6.12)

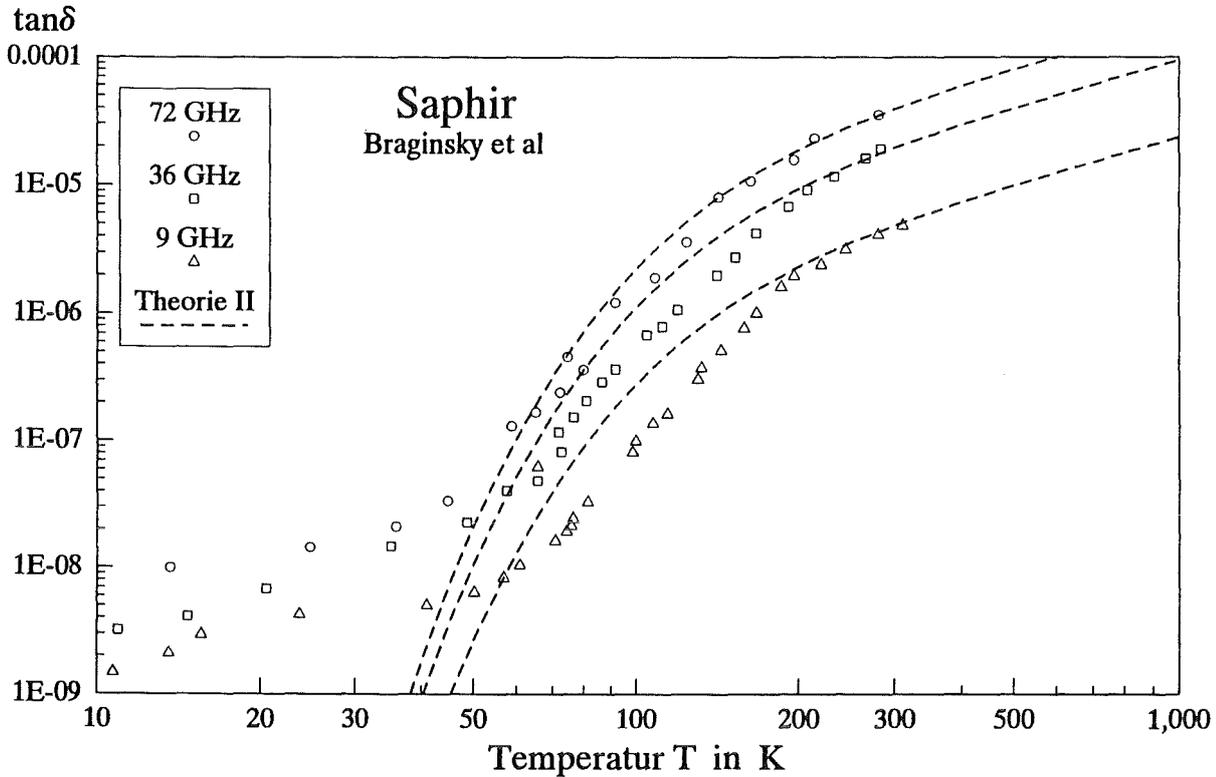


Abbildung 6.10 Vergleich der von Braginsky et al [88] gemessenen Temperaturabhängigkeit in  $\tan\delta$  mit Theorie II

Tabelle 6.5 Parameter zur Berechnung der dielektrischen Verluste in Saphir nach Gleichungen (2.27), (2.28) und (2.32). (\* aus Referenz [94] ausgewählt)

	ord. Str.	außerord. Str.
$\epsilon_\infty$	3.06 [27]	3.2 [95]
$\nu_{TO}$ in THz	11.55 *	12.0 *
$\nu_m$ in THz	11.01 *	9.3 *
$\nu_c$ in THz	1.95 *	2.07 *
$dv/dT$ in GHz/K	-0.22 [27]	-0.6 [95]
$\gamma$ in THz	1.74	1.56

6.4 Saphir ( $Al_2O_3$ )

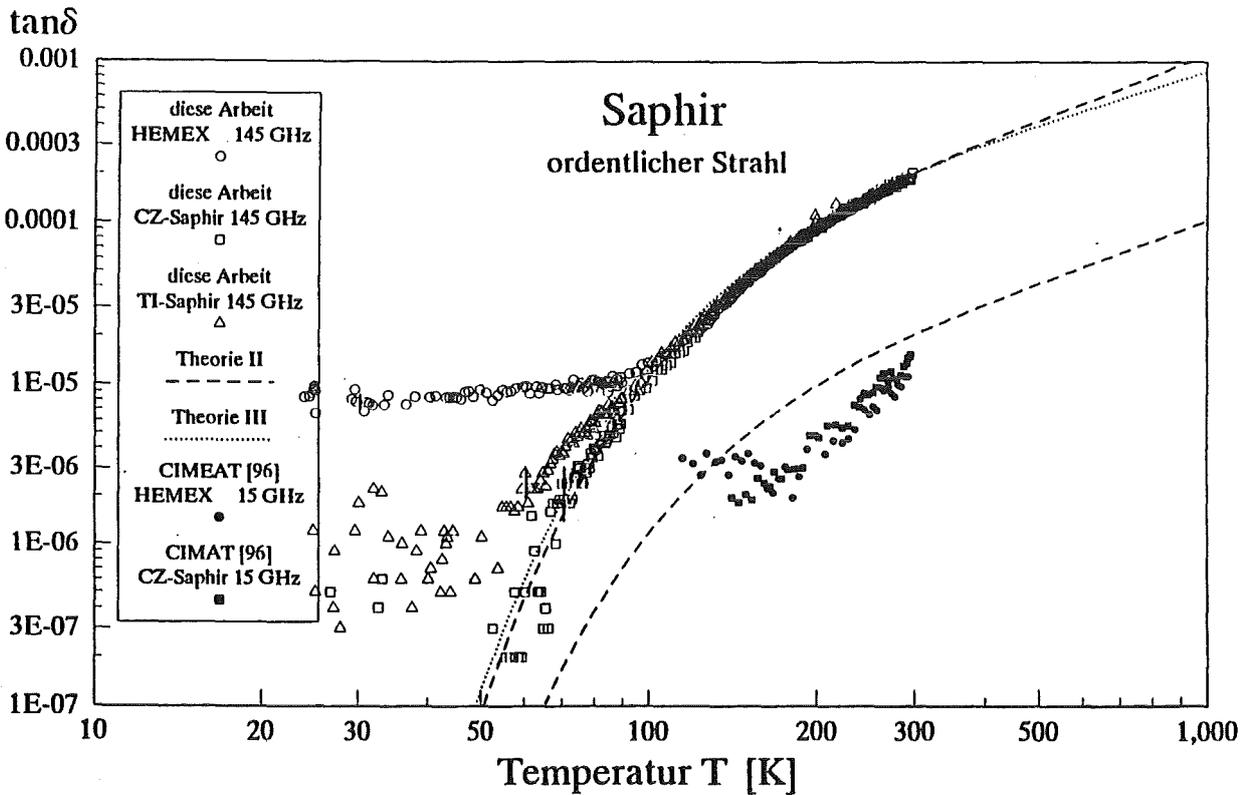
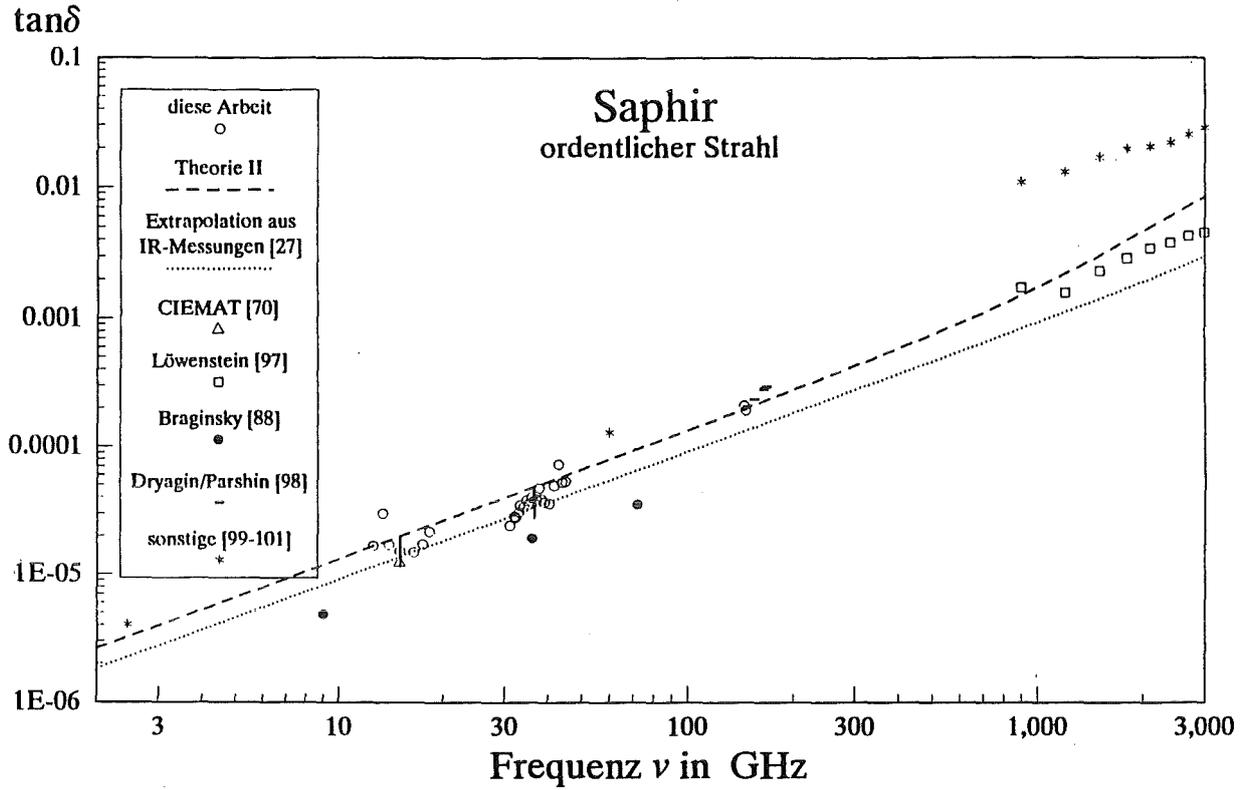


Abbildung 6.11 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in Saphir im ordentlichen Strahl im Vergleich mit Literaturwerten und theoretischen Modellen

6.4 Saphir ( $Al_2O_3$ )

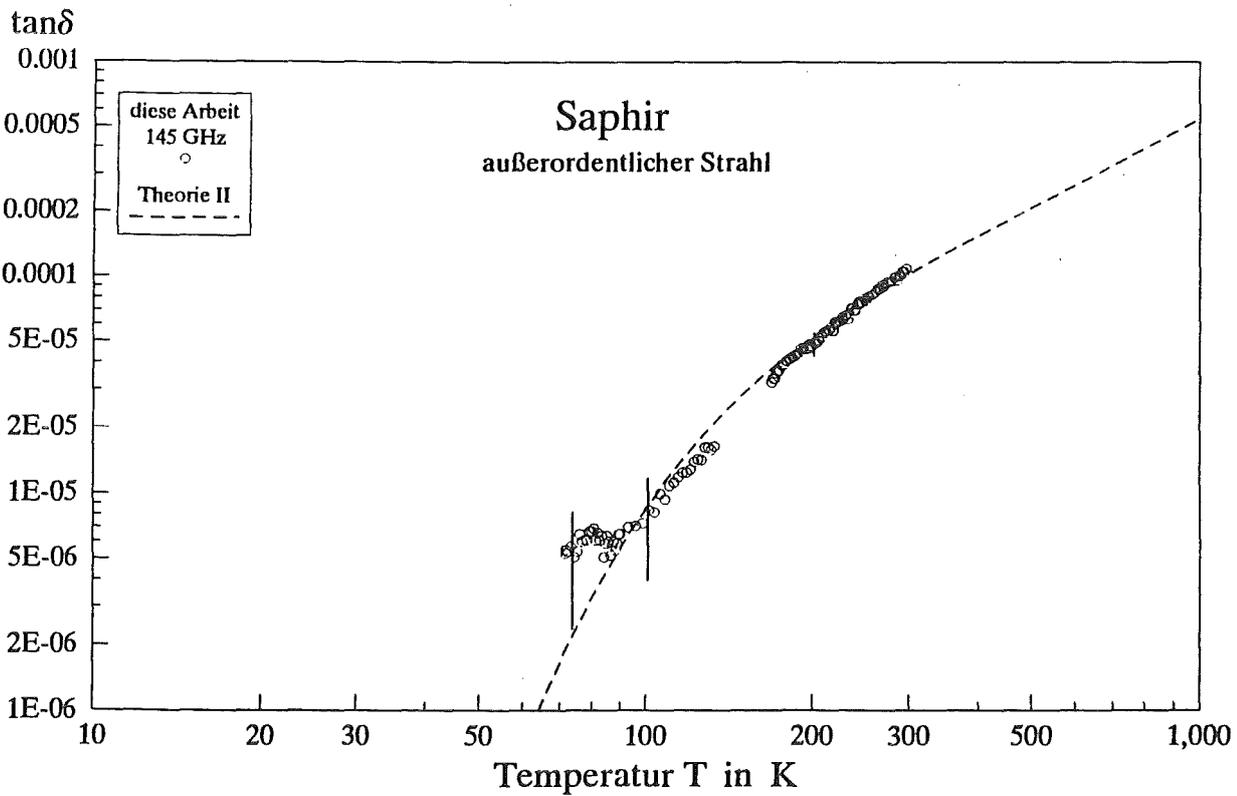
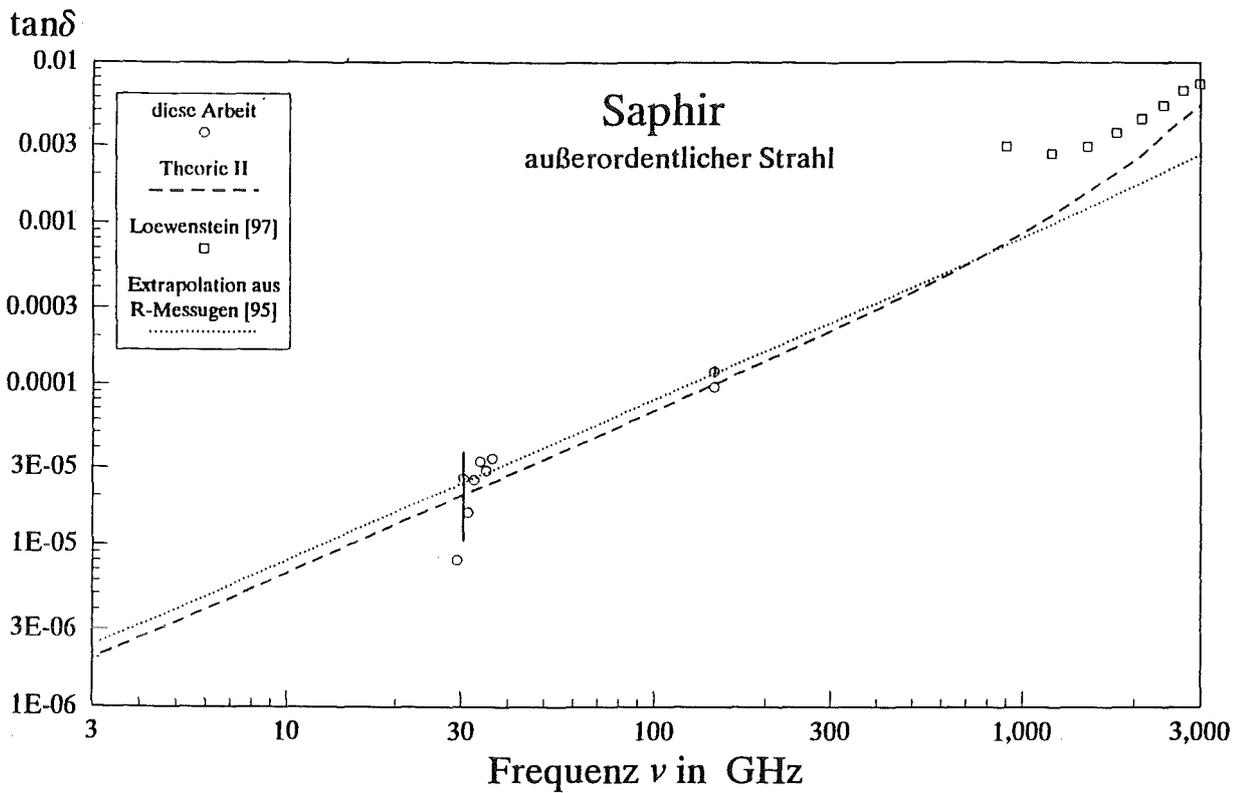


Abbildung 6.12 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in Saphir im außerordentlichen Strahl im Vergleich mit Literaturwerten und theoretischen Modellen

## 6.5

## Quarz

Eine von Birch (NPL, London) initiierte Vergleichsmessung im nahen mm-Wellen-Bereich an Quarzproben gleicher Qualitäten [102] zeigt, daß die niedrigen Verluste des Quarzes experimentell nur schwer aufzulösen sind. Die Meßergebnisse der beteiligten Laboratorien sind teilweise sehr verschieden. Auch die in dieser Arbeit mit den hemisphärischen offenen Resonatoren gemessenen  $\tan\delta$ -Werte wiesen eine relativ starke Streuung auf, da die Meßwerte nahe an den Fehlergrenzen liegen (siehe Tabelle 5.6).

Insgesamt ist eine deutlich schwächere Frequenzabhängigkeit der Verluste zu beobachten als in den anderen untersuchten Kristallen. Die gleichfalls mit einem offenen Resonator durchgeführten Messungen von R.N. Clark [102] zeigen sogar eine Abnahme der Verluste mit der Frequenz, was den übrigen experimentellen Ergebnissen widerspricht. Es wird vermutet, daß dies mit einem systematischen Fehler des Ladefaktors im Auswertalgorithmus zusammenhängt, der bei nichtresonanten Proben zu kleine  $\tan\delta$ -Werte liefert (siehe Abbildung 4.9). Tatsächlich wurde in den Messungen bei 72 GHz bzw. 144 GHz eine nichtresonante Probe eingesetzt, was die vergleichsweise niedrigeren Werte erklären könnte.

Der Quarzkristall, dessen Struktur sich aus spiralförmig angeordneten  $\text{SiO}_4$ -Tetraedern zusammensetzt, besitzt 9 Atome pro Einheitszelle und damit 27 Phononenzweige in der Phononen-Dispersionsrelation. Aus IR- und Raman-Messungen ist bekannt, daß für die Absorption im ordentlichen Strahl ausschließlich Phononen der irreduziblen Darstellung E und im außerordentlichen Strahl Phononen mit dem Charakter der  $A_2$ -Moden verantwortlich sind [103,104]. Dabei existieren acht unterschiedliche E-Moden, die senkrecht zur Achse polarisiert sind, gegenüber vier  $A_2$ -Moden mit einer Polarisation in Richtung der Symmetrieachse. Wie bei Saphir, läßt sich auch für Quarz die zur Beschreibung von IR-Messungen benutzte klassische Theorie in den Mikrowellen-Bereich extrapolieren. Die so berechnete Frequenzabhängigkeit ist in den Abbildungen 6.13 und 6.14 als gepunktete Linien zu sehen. Während die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten im ordentlichen Strahl durchaus zufriedenstellend ist, sind die so berechneten Werte für den außerordentlichen Strahl deutlich zu groß.

Die E-Moden transformieren in  $\Gamma$ -A-Richtung in Phononen der Darstellung  $\Delta_1$  und  $\Delta_2$ . Die kleinste Energielücke zu Phononenzweigen gleicher Darstellung mit gleichzeitig hohen Besetzungszahlen ist in  $\Gamma$ -A-Richtung bei einer reduzierten Wellenzahl von etwa 0.35 zwischen den  $\Delta_2$ -Phononenzweigen zu finden, mit  $\nu_c=0.45$  THz (siehe Abbildung A.10). In  $\Gamma$ -K-M-Richtung existiert am Zonenrand und bei einem Wellenzahlvektor von 0.4 eine vergleichbare Lücke zwischen den entsprechenden Phononenzweigen der Darstellung  $T_2$ . Sich in der Betrachtung auf eine Symmetrierichtung zu beschränken, wird deshalb auch in diesem Fall als legitim erachtet. Die Temperaturabhängigkeit, die sich mit den in  $\Gamma$ -A-Richtung gewonnenen charakteristischen Frequenzen (siehe Tabelle 6.6) nach dem für Theorie II benutzten Algorithmus berechnen läßt, stimmt oberhalb 100 K mit der gemessenen überein (siehe

Abbildung 6.13). Die berechnete Frequenzabhängigkeit ist jedoch stärker, als im Experiment beobachtet wird.

Das gleiche Bild gibt sich auch für die Absorption im außerordentlichen Strahl. Die entlang der optischen Achse polarisierten transversal akustischen und optischen Phononen ( $A_2$ -Moden) mit dem kleinsten Frequenzabstand, liegen in  $\Gamma$ -A-Richtung am Zonenrand bei 1.56 THz und 5.85 THz [105]. Aufgrund der größeren Energielücke ( $\nu_c=4.29$  THz) würde man wesentlich geringere Verluste als im ordentlichen Strahl erwarten. Dies wird jedoch durch die höhere Besetzungszahl der niederenergetischeren transversal akustischen Phononen teilweise kompensiert, so daß die Verluste im außerordentlichen Strahl bei 145 GHz um etwa 20% niedriger liegen als im ordentlichen Strahl.

*Tabelle 6.6 Parameter zur Berechnung der dielektrischen Verluste in Quarz nach Gleichungen (2.27), (2.28) und (2.32). (# aus Referenz [103] ausgewählt)*

		ord. Str.		außerord. Str.	
$\epsilon_\infty$		2.354[106]		2.383[106]	
$\nu_{TO}$	in THz	3.84	#	10.92	#
$\nu_m$	in THz	3.57	#	1.56	#
$\nu_c$	in THz	0.45	#	4.29	#
$dv/dT$	in GHz/K	-1.2	#	-1.2	#
$\gamma$	in THz	0.540		0.72	

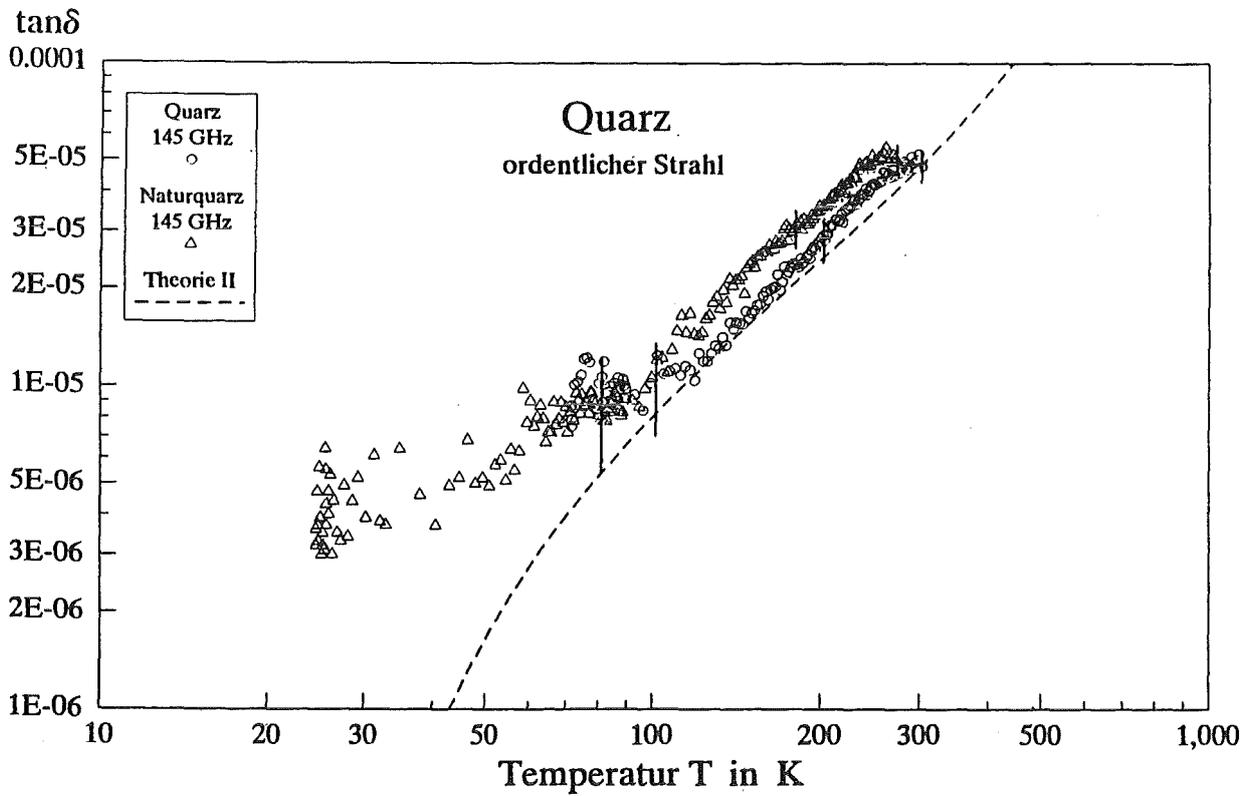
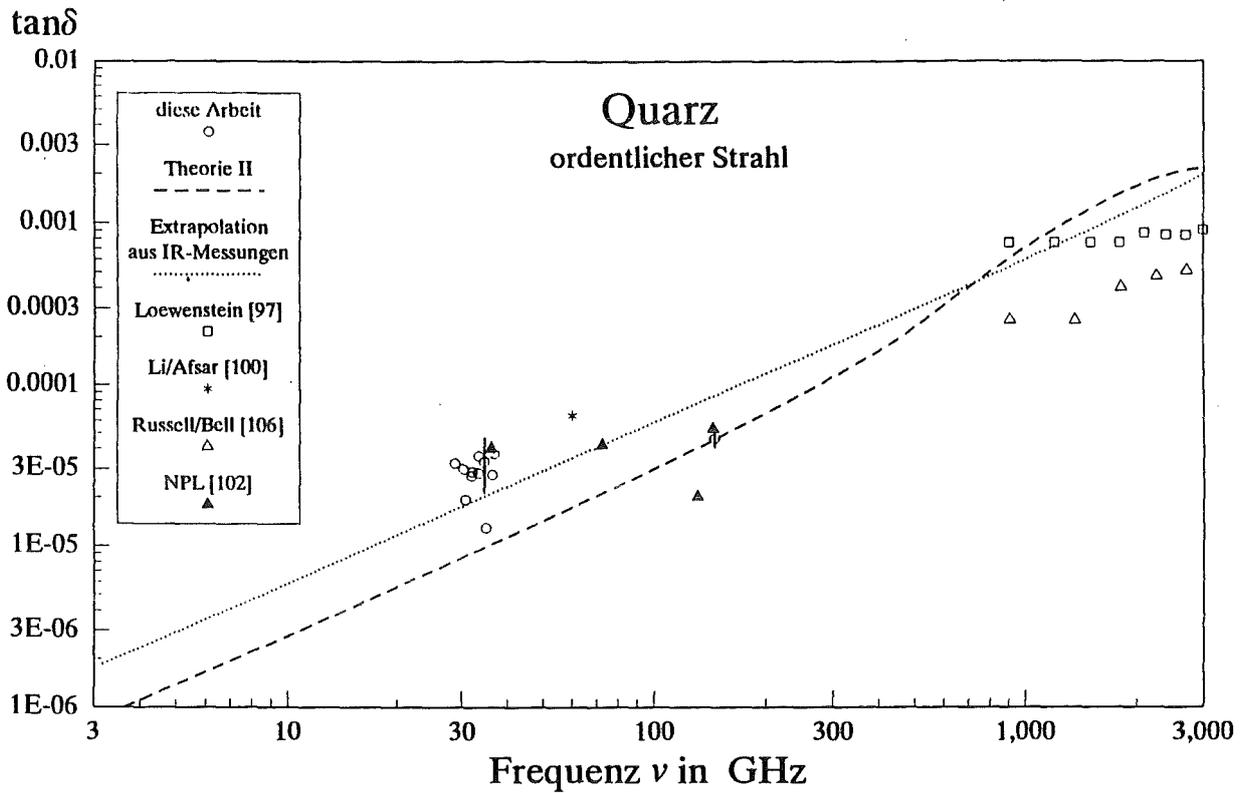


Abbildung 6.13 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan\delta$  in Quarz im ordentlichen Strahl im Vergleich mit Literaturwerten und theoretischen Modellen

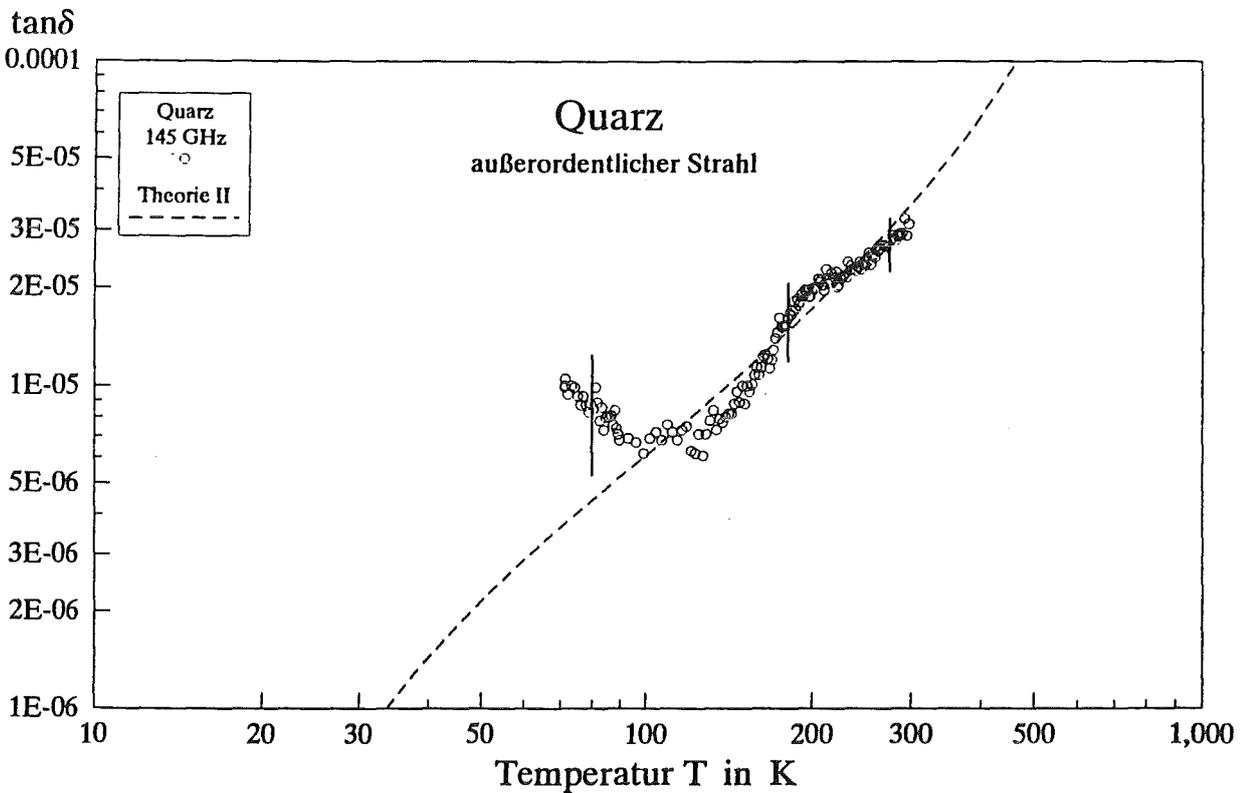
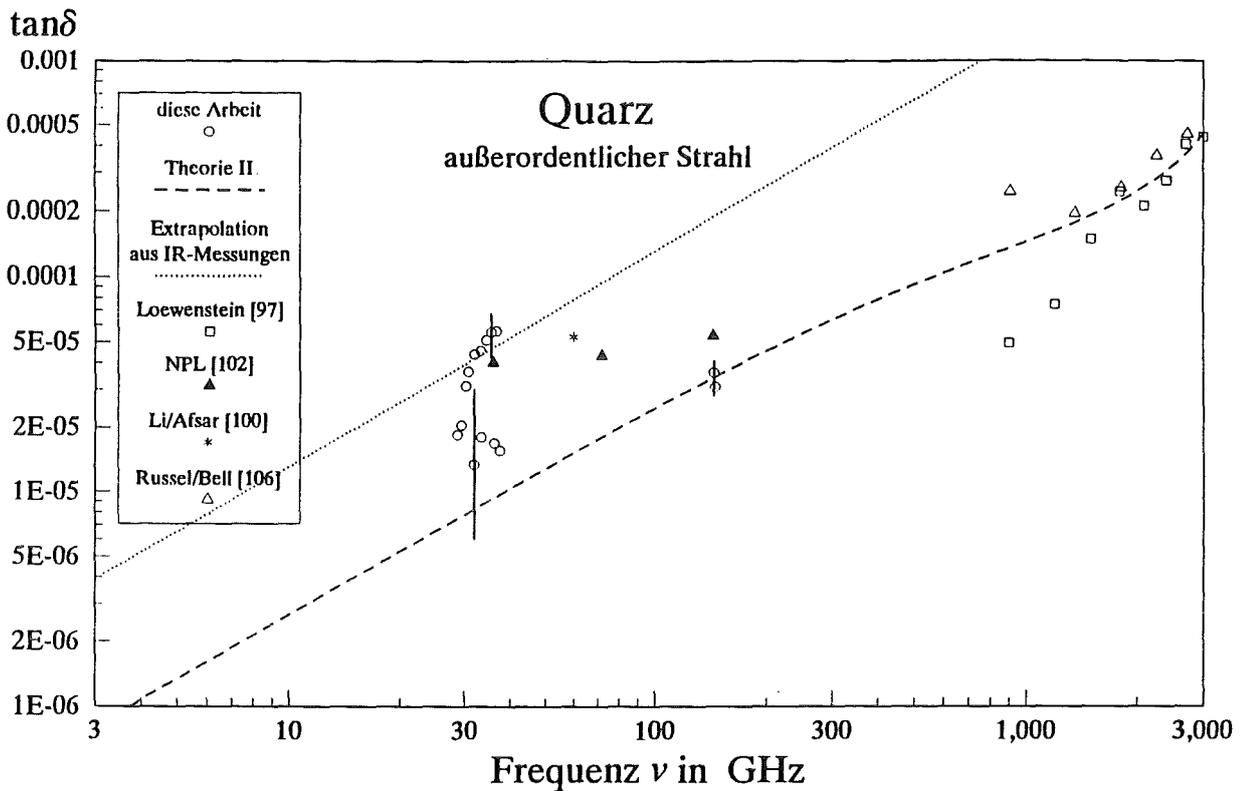


Abbildung 6.14 Gemessene Frequenz- und Temperaturabhängigkeit von  $\tan \delta$  in Quarz im außerordentlichen Strahl im Vergleich mit Literaturwerten und theoretischen Modellen

7

## Zusammenfassung

Mit Hilfe hemisphärischer offener Resonatoren wurden dielektrische Messungen, an ionischen Einkristallen und an Quarzeinkristallen in einem Frequenzbereich von 13 GHz bis 145 GHz und Temperaturbereich von 25 K bis 300 K durchgeführt. Dazu wurde ein neuer Resonator konstruiert, der Messungen im Ku-Band zwischen 13 GHz und 20 GHz erlaubt.

Ein ursprünglich eingesetztes Meßverfahren, welches die Güte einer Resonanz aus der gemessenen Resonanzfrequenz und der Halbwertsbreite bestimmte, wurde durch ein neues Verfahren abgelöst, aus dem die Güte und Resonanzfrequenz aus der Anpassung einer theoretischen Lorentzfunktion an die gemessene Resonanzkurve hervorgehen. Dieses Verfahren verfügt vor allem bei schwach ausgeprägten, vom Systemrauschen überlagerten Resonanzen über einen deutlich geringeren statistischen Fehler. Außerdem erlaubt diese Methode, störende Einflüsse, die zu asymmetrischen Resonanzen und somit zu systematischen Fehlern führen, in der Anpassungsfunktion zu berücksichtigen.

Dank einiger durchgeführten Änderungen am Kryostatenaufbau konnte dessen thermische und mechanische Stabilität erheblich verbessert werden, wodurch es erstmals möglich wurde, neben den dielektrischen Verlusten auch die Dielektrizitätskonstante mit Fehlern kleiner als 0.5% sehr genau zu bestimmen. Weiterhin ist es gelungen, zusammen mit dem eingeführten Meßverfahren den Meßvorgang zu automatisieren und die temperaturabhängigen Messungen vom stationären in einen dynamischen Temperaturbetrieb des Kryostaten umzustellen. Mittels selbstgeschriebener Computerprogramme ist es so heute möglich, die Temperaturabhängigkeit der komplexen dielektrischen Funktion mit einer Datendichte und Genauigkeit zu bestimmen, die den alten Stand der Technik weit übertrifft.

Systematische Untersuchungen zur Abhängigkeit der bestimmten  $\tan\delta$ -Werte von der gewählten Probendicke führten zu einer Korrektur des allgemein für hemisphärische Resonatoren benutzten Auswertalgorithmus. Diese Korrektur beruht auf der Tatsache, daß die Verluste am ebenen und sphärischen Spiegel nicht gleich sind, wie bisher angenommen wurde, sondern durch unterschiedliche Oberflächenbeschaffenheiten bzw. durch die Koppellöcher im sphärischen Spiegel wesentlich voneinander abweichen können.

Nach all diesen Vorarbeiten konnten die intrinsischen dielektrischen Eigenschaften im besagten Frequenz- und Temperaturbereich an den Alkalihalogeniden LiF, NaCl, KCl und KBr, den Erdalkalifluoriden CaF<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub> und MgF<sub>2</sub> und schließlich an Saphir und einkristallinem Quarz untersucht werden. Dabei standen von Saphir, dem technisch interessantesten Material, drei und von Quarz zwei unterschiedliche Qualitäten zur Verfügung. Durch parallele Messungen in CIEMAT (Madrid) bei 15 GHz [70] mit Hilfe eines Hohlraumresonators konnten die im Ku-Band-Resonator gefundenen Ergebnisse bestätigt werden.

Die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit wurden mit Hilfe theoretischer Modelle beschrieben, die bisher im wesentlichen an den einfachen Alkalihalogenidkristallen auf ihre Gültigkeit geprüft wurden. Diese Modelle zur Beschreibung der Absorptionseigenschaften im Mikro- und mm-Wellen-Bereich, der weit unterhalb der Frequenz der IR-aktiven optischen

Phononen liegt, basieren alle auf einer anharmonischen Kopplung der elektromagnetischen Wellen an das Phononensystem des Kristalls. Die Anharmonizitäten führen zu Mehr-Phononen-Streuprozessen, wobei ausschließlich 2- und 3-Phononen-Prozesse in der Literatur diskutiert werden. Dabei herrscht keine Einigkeit darüber, welcher dieser Prozesse im wesentlichen für die Absorption in diesem Frequenzbereich verantwortlich ist.

Anhand der Meßergebnisse an den Alkalihalogeniden, die eine erhebliche Erweiterung der in der Literatur zu findenden Daten darstellen, konnten der Geltungsbereich der bestehenden Modelle zu neuen Frequenz- und Temperaturbereichen hin geprüft werden. Die gute Übereinstimmung der experimentellen Ergebnisse mit der von Sparks et al [5] für Alkalihalogenide entwickelt Theorie deutet darauf hin, daß sich die Absorption im untersuchten Frequenzbereich, entgegen den Aussagen der vielzitierten Arbeit von Stolen und Dransfeld [4], alleine durch 2-Phononen-Differenzprozesse ausreichend beschreiben läßt. Diese gute Übereinstimmung wurde ohne Anpassung der in der Theorie enthaltenen Parameter erreicht. Mit Hilfe eines entsprechenden Parametersatzes ließen sich erstmals auch für KCl die dielektrischen Verluste vorhersagen.

Mit den an den Alkalihalogeniden gewonnenen Erkenntnissen war es möglich, das Modell auf die Erdalkalifluorid-Kristalle  $\text{CaF}_2$  und  $\text{BaF}_2$  zu übertragen, von denen bisher keine Messungen im untersuchten Frequenzbereich bekannt sind. So wurden erstmals auch für diese Materialien ohne Parameteranpassung die Frequenz- und Temperaturabhängigkeit des dielektrischen Verlusttangens berechnet, die den gemessenen Datensatz erstaunlich gut wiedergeben.

Die übrigen, optisch anisotropen Kristalle wie  $\text{MgF}_2$  und die technisch interessanteren Kristalle Saphir und Quarz wurden sowohl im ordentlichen als auch im außerordentlichen Strahl auf ihre dielektrischen Eigenschaften untersucht. Vergleichbare Modellrechnungen ließen sich für diese Einkristalle nur bedingt anstellen, denn die Annahmen, die Sparks et al zu ihrem einfachen Algorithmus für die dielektrischen Verluste führen, sind zu grob, um der Komplexität dieser Kristallstrukturen Rechnung zu tragen. Kennt man jedoch einen einzelnen Meßpunkt, z.B. den Raumtemperaturwert von  $\tan\delta$  bei 145 GHz, dann kann man einen Skalierungsfaktor für das gleiche Modell bestimmen, mit dem sich die dielektrischen Verluste ohne weitere Parameteranpassung in den angrenzenden Frequenz- und Temperaturbereichen berechnen lassen. Die so für die anisotropen Kristalle durchgeführten Rechnungen stimmen erstaunlich gut mit der gemessenen Frequenz- und Temperaturabhängigkeit überein. Dabei hat sich gezeigt, daß die in den Alkali- und Erdalkalihalogeniden gefundenen Auswahlregeln für die relevanten 2-Phononen-Differenzprozesse auch in diesen komplexeren Kristallstrukturen ihre Gültigkeit bewahren, wenn man zusätzlich die Polarisationsrichtungen der Gitterschwingungen berücksichtigt.

Die Diskussion der Meßergebnisse zeigt, daß die dielektrischen Verluste im untersuchten Frequenz- und Temperaturbereich im wesentlichen durch die Differenz der Besetzungszahlen der Phononen bestimmt ist, die an den 2-Phononen-Differenzprozessen beteiligt sind. Bei Frequenzen im Mikro- und mm-Wellen-Bereich läßt sich dieser Faktor zu einem linearen

Frequenzgesetz entwickeln, welches bis auf Quarz auch in allen Kristallen gemessen wird. Die Stärke der Temperaturabhängigkeit ist eng mit der Frequenz  $\nu_m$  des thermischen Phonons verknüpft, welches im Differenzprozeß zusammen mit dem IR-aktiven Phonon vernichtet wird. Diese Frequenz ist in den transversal akustischen Phononenzweigen zu suchen und zwar bevorzugt am Rand der 1. Brillouinzone, wo der Abstand zu dem optischen Phononenzweig gleicher Symmetrie im allgemeinen am geringsten ist.

Als grobe Regel gilt, daß Kristalle mit größeren  $\nu_m$ -Werten in gleichen Temperaturbereichen geringere Verluste zeigen, da diese Phononen aufgrund der benötigten höheren thermischen Energie schwächer besetzt und 2-Phononen-Differenzprozesse damit unwahrscheinlicher sind. Gleichzeitig nimmt die Stärke der Temperaturabhängigkeit mit  $\nu_m$  zu. Für hohe Temperaturen nahe der Debye-Temperatur führt die Besetzungszahlen-Differenz zu einem linearen Temperaturgesetz. Eine gemessene stärkere Temperaturabhängigkeit wird vielfach durch 3-Phononen-Prozesse erklärt, die in gleicher Näherung zu einer quadratischen Temperaturabhängigkeit führen. Berücksichtigt man jedoch die Temperaturabhängigkeit der charakteristischen Frequenzen und des anharmonischen Termes im Gitterpotential, so resultiert ein deutlich stärkeres Temperaturgesetz, mit dem sich die gemessenen Verlustdaten im Rahmen der Genauigkeit, mit der die entsprechenden Koeffizienten bekannt sind auch ohne 3-Phononen-Prozesse beschreiben lassen.

Saphir zeigt aufgrund der hohen Frequenzen  $\nu_m$  der akustischen Phononen am Brillouinzonrand die stärkste Temperaturabhängigkeit, die im ordentlichen Strahl von einem nahezu quadratischen Temperaturgesetz bei Raumtemperatur stetig zu einem  $T^{4.5}$ -Gesetz zwischen 70 K und 100 K übergeht. Das entspricht in etwa den experimentellen Befunden bei niedrigeren Frequenzen [87]. Diese Temperaturabhängigkeit läßt sich gleich der Frequenzabhängigkeit im Mikrowellen-Bereich in guter Näherung mit der Differenz der Besetzungszahlen der an den 2-Phononen-Differenzprozessen beteiligten Phononen beschreiben

$$\tan \delta = 0.0353 [n(\nu_m, T) - n(\nu_m + \nu, T)] ,$$

mit  $\nu_m = 11.01$  THz. Dabei wurde der Vorfaktor empirisch aus dem Raumtemperaturwert bei 145 GHz berechnet. Das gemessene Temperaturgesetz, das sich, wie bei den Kristallen einfacher Symmetrie, durch 2-Phononen-Differenzprozesse erklären läßt, hängt stark von dem betrachteten Temperaturintervall ab und sollte nicht, wie in den theoretischen Arbeiten von Gurevich et al [6] gefordert, bei tiefen Temperaturen gegen ein  $T^4$ -Gesetz konvergieren.

Bei tiefen Temperaturen unterhalb 80 K zeigen sich zwischen den drei untersuchten Saphirqualitäten deutliche Unterschiede im Absorptionsverhalten. Während die Verluste des CZ-Saphirs und des Ti-dotierten Saphirs zu tieferen Temperaturen weiter stark abfallen, gehen die Verluste des HEMEX-Saphirs bei  $\tan \delta = 10^{-5}$  in Sättigung. Es wird vermutet, daß dieses unterschiedliche Verhalten mit der Sauerstofflückenkonzentration korreliert ist, die sich im HEMEX-Saphir im Gegensatz zum CZ-Saphir mittels optischer Spektroskopie als F-Zentren bei 220 nm nachweisen lassen. Möglicherweise können in der Zukunft Glühversuche an Luft,

## 7. Zusammenfassung

---

von denen man sich eine Reduktion der Sauerstofflücken erhofft, einen genaueren Aufschluß darüber geben.

Das von Gurevich et al vorhergesagte  $T^2$ -Gesetz für die Tieftemperaturverluste im außerordentlichen Strahl, was bisher experimentell noch nicht überprüft wurde, konnte durch die Messungen dieser Arbeit nicht bestätigt werden.

Die dielektrischen Verluste in Quarz, dem einzigen untersuchten Kristall mit nicht ionischer sondern kovalenter Bindung, zeichnen sich im Mikrowellenbereich durch eine deutlich schwächere Frequenzabhängigkeit aus, die mit den bestehenden Theorien nicht zu verstehen ist. Auch in Quarz unterscheiden sich die Absorptionseigenschaften zwischen den einzelnen Qualitäten. Im Gegensatz zu Saphir machen sich diese Unterschiede im Quarz jedoch schon bei Raumtemperatur bemerkbar.

8

Literaturverzeichnis

- [1] Debye P.J.W; Berichte der DPG; **15**, (1913); 777
- [2] Wilhelm R.  
Plasma Heating - A Comparative Overview for Future Application  
Fusion Engineering and Design; **11**, (1989); 167-180
- [3] Haste G.R., Kimrey D.D., Prosis J.P.  
Feasibility Study of a Cryogenically Cooled Window for High-Power Gyrotrons  
Report ORNL/TM-9906; Oak Ridge (USA); (1986)
- [4] Stolen R., Dransfeld K.  
Far-Infrared Lattice Absorption in Alkali Halides  
Physical Review; **139** (4A), (1965);1295-1303
- [5] Sparks M., King D.F., Mills D.L.  
Simple Theory of Microwave Absorption in Alkali Halides  
Physical Review B; **26** (12), (1982); 6987-7003
- [6] Gurevich V.L.  
Transport in Phonon Systems  
Modern Problems in Condensed Matter Sciences; **18**, (1986)  
Ed. Agranovich V.M, Maradudin A.A.  
North Holland Physics Publishing, Amsterdam
- [7] Königer F.  
Measurement System for the Precise Determination of Dielectric Properties in the  
MM-Wave Range base on Hemispherical Open Resonators  
Frequenz; **43** (7-8), (1989); 209-214
- [8] Dolling G., Smith H.G., Nicklow R.M., Vijayaraghavan P.R., Wilkinson M.K.  
Lattice Dynamics of Lithium Fluoride  
Physical Review; **168** (3); (1968); 970-979
- [9] Koster G.F.  
Space Groups and Their Representations  
Solid State Physics; **5**, (1957); 173-257
- [10] Born M., Huang K.  
Dynamical Theory of Crystal Lattices  
Oxford University Press, London (UK); (1954)
- [11] Lyddane R.H., Sachs R.G., Teller E.  
On the Polar Vibrations of Alkali Halides  
Physical Review; **59**(2), (1941); 673-676

- [12] Bilz H., Genzel L, Happ H.  
Zur Ultrarotdispersion der Alkalihalogenide. I Die Deutung der Spektren nach der Theorie von Born und Huang.  
Zeitschrift für Physik; **160**, (1960); 535-553
- [13] Bilz H., Genzel L.  
Ultrarotdispersion der Alkalihalogeniden. II Zur Theorie der Absorption bei tiefen Temperaturen  
Zeitschrift für Physik; **169**, (1962); 53-65
- [14] Szigeti B.  
Higher Order Terms in the Dielectric Constant of Ionic Crystals  
Proc. Royal Soc. London A; **252**, (1959); 217-235
- [15] Szigeti B.  
The Infrared Spectra of Crystals  
Proc. Royal Soc. London A; **258**, (1960); 377-401
- [16] Wallis R.F., Maradudin A.A.  
Lattice Anharmonicity and Optical Absorption in Polar Crystals. III Quantum Mechanical Treatment in the Linear Approximation  
Physical Review; **125** (4), (1962); 1277-1282
- [17] Maradudin A.A., Wallis R.F.  
Lattice Anharmonicity and Optical Absorption in Polar Crystals. II Classical Treatment in the Linear Approximation  
Physical Review; **123** (3), (1961); 777-789
- [18] Cowley R.A.  
The Lattice Dynamics of an Anharmonic Crystal  
Advances in Physics; **12**, (1963); 421-480
- [19] Cowley R.A.  
Anharmonic Crystals  
Reports on Progress in Physics; **31** (1), (1968)
- [20] Martin D.H.  
The Study of the Vibrations of Crystal Lattices by Far-Infrared Spectroscopy  
Advances in Physics; **14**, (1965); 39-99
- [21] Maradudin A.A., Fein A.E.  
Scattering of Neutrons by an Anharmonic Crystal  
Physical Review; **128**, (1962); 2589-2608
- [22] Eldridge J.E.  
Assignments of the Two-Phonon Infrared Absorption Spectrum of LiF  
Physical Review B; **6** (4), (1972); 1510-1519

- [23] Eldridge J.E., Howard R.  
Infrared Optical Properties of  $\text{Li}^7\text{F}$  and natural LiF at various Temperatures,  
Calculated with Shell Model Lattice-Dynamical Data  
Physical Review B; 7 (10), (1973); 4652-4665
- [24] Eldridge J.E., Staal  
Far-Infrared Dispersion-Reflection on NaCl, Compared with Calculations Based  
on Cubic and Quartic Anharmonicity  
Physical Review B; 16 (10), (1977); 4608-4618
- [25] Johnson K.W., Bell E.E.  
Far-Infrared Optical Properties of KCl and KBr  
Physical Review; 187 (3), (1969); 1044-1052
- [26] Berg J.I., Bell E.E.  
Far-Infrared Optical Constants of KJ  
Physical Review B; 4 (10), (1971); 3572-3580
- [27] Gervais F., Piriou B.  
Anharmonicity in Several-Polar-Mode Crystals: Adjusting Phonon Self-Energy  
of LO and TO modes in  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{TiO}_2$  to Fit Infrared Reflectivity  
J. Phys. C: Solid State Physics; 7, (1974); 2374-2384
- [28] Subbaswamy K.R., Mills D.L.  
Theory of Microwave Absorption in Wide-Band-Gap Insulators: The Role of  
Thermal Phonon Lifetimes  
Physical Review B; 33 (6), (1986); 4213-4220
- [29] Molla J., Ibarra A., Margineda J., Zamarro J.M., Hernandez A.  
CIEMAT, Madrid, (1992) noch unveröffentlicht
- [30] Cook R.J, Jones R.G., Rosenberg Ch. B.  
Comparison of Cavity and Open Resonator Measurements of Permittivity and  
Loss Angle at 35 GHz  
IEEE Trans. Instrumentation and Measurement; 23 (4), (1974); 438-442
- [31] Collin R.E.  
Foundations for Microwave Engineering. Quantum Electronic Series  
McGrawhill Book Company, New York (1966)
- [32] Cullen A.L.  
Millimeter-Wave Open-Resonator Techniques  
Infrared and Millimeterwaves; 10; Academic Press; (1983); 233
- [33] Grau G.  
Laser  
Ed. Kleen W, Müller R.; Springer Verlag, Berlin; (1969); 49-85

- [34] Byhow V.P., Vainstein L.A.  
Geometric Optic of Open Resonators  
Sov. Phys. JETP; **20** (2), (1965); 338-344
- [35] Clarke R.N., Rosenberg C.B.  
Fabry-Pérot and Open Resonators at Microwave and Millimeter Wave  
Frequencies, 2-300 GHz  
J. Phys. E: Sci. Instrum; **15**, (1982); 9-24
- [36] Consortini A., Pasqualetti F.  
Comparison of Various Diffraction Formulas in a Study of Open Resonators  
Applied Optics; **17** (16), (1978); 2519-2523
- [37] Fox A.G.; Li T.  
Resonant Modes in a Maser Interferometer  
The Bell System Technical Journal; **40**, (1961); 453-488
- [38] Fox A.G., Li T.  
Modes in a Maser Interferometer with Curved and Tilted Mirrors  
Proc. of the IEEE; **51** (1), (1963); 80-89
- [39] Boyd G.D., Gordon J.P.  
Convocal Multimode Resonator for Millimeter through Optical Wavelength  
Masers  
The Bell System Technical Journal; **40**, (1961); 489-508
- [40] Cullen A.L., Yu P.K.  
The Accurate Measurement of Permittivity by Means of an Open Resonator  
Proc. Roy. Soc. London A; **325**, (1979); 493-509
- [41] Cook R.J., Jones R.G., Rosenberg C.B.  
Comparison of Cavity and Open Resonator Measurements of Permittivity and  
Loss Angle at 35 GHz  
IEEE Trans. on Instr. and Meas.; **IM 23** (4), (1974); 438-442
- [42] Yu P.K., Cullen A.L.  
Measurement of Permittivity by Means of Open Resonators. I Theoretical  
Proc. Roy. Soc. London A; **380**, (1982); 49-71
- [43] Cullen A.L., Yu P.K.  
Complex Source Point Theory of the Electromagnetic Open Resonator  
Proc. Roy. Soc. London A; **366**, (1979); 155-171
- [44] Jones R.G.  
Effect of Mirror Resistivity on Loss Angle Measurements in Open Resonators  
Electronic Letters; **11** (20), (1975); 525-547

- [45] Geist Th.  
Hochfrequenz-meßtechnische Characterisierung von Herstellungsprozessen und Werkstoffen für Resonatoren eines 140 GHz Gyrotrons.  
Doktorarbeit; Fakultät für Elektrotechnik, Universität Karlsruhe, (1991)
- [46] Klein N.  
Supraleitende Mikrowellenresonatoren für Anwendungen in physikalischen Grundlagenexperimenten.  
Externer Bericht; Bergische Universität Wuppertal; WUB-DIS 89-3; (1989)
- [47] Slepian D.  
Prolate Spheroidal Wave Functions  
Bell Syst. Tech. J.; **43**, (1964); 3009
- [48] Boyd G.D., Kogelnik H.  
Generalized Confocal Resonator Theory  
Bell Syst. Tech. J.; **41**, (1962); 1347-1369;
- [49] Nimtz G.  
Mikrowellen. Einführung in Theorie und Anwendung  
B.I. Wissenschaftsverlag Mannheim; ISBN 3-411-03203-0; (1990)
- [50] Yu P.K.  
Dielectric Measurements Using an Open Resonator  
Doktorarbeit; Dep. of Electronic and Electr. Engineering; University College London; (1971)
- [51] Cook R.J., Jones R.G.  
Correction to Open-Resonator Permittivity and Loss Measurements  
Electronic Letters; **12** (1), (1976); 1-2
- [52] Afsar M., Li X., Chi H.  
An Automated 60 GHz Open Resonator System for Precision Dielectric Measurement  
IEEE Trans. on Mikrowave Theory and Tech.; **38** (12); (1990)
- [53] Komiyama B., Kiyokawa M., Matsui T.  
Open Resonator for Precision Dielectric Measurements in the 100 GHz Band  
IEEE Trans. on Microwave Theory and Tech.; **39** (10), (1991); 1792-1796
- [54] Rubin T., Altman H.W., Hohnson H. L.  
Thermal Expansion of Cupper form 15 to 300 K  
J. Amer. Chem. Soc.; **76** (5), (1954); 5289-5293
- [55] Heidinger R., Königer F., Link G.  
A Fabry-Pérot-Resonator System for MM-Wave Dielectric Measurements at Cryogenic Temperatures.  
15th Int. Conf. on Infrared and Millimeterwaves, Orlando Florida, 10-14Dez (1990); SPIE **1514**; 184-186

- [56] Heidinger R  
Dielectric loss of Alumina between 95 and 330 K at ECRH-Frequencies  
J. of Nuclear Materials; **173**, (1990); 243-246
- [57] Königer F., Wiesbeck W., Heidinger R.  
Meßsystem zur hochgenauen Bestimmung der komplexen Dielektrizitätszahl  
verschiedener Materialien in mm-Wellengebiet.  
Conf. Proc. MIOP'88 (1988); 1A-6
- [58] Jones R.G.  
Precise Dielectric Measurements at 35 GHz using an Open Microwave Resonator  
Proc. IEEE; **123** (4), (1976); 285-290
- [59] Tischer F.J.  
Excess Conduction Losses at Millimeter Wavelengths  
IEEE Trans. on Microwave Theory and Tech.; **MTT-24** (11), (1976); 853-858
- [60] Ramo S., Whinnery J.R.  
Fields and Waves in Modern Radio  
John Wiley & Sons; New York, London; Sec. Ed. (1964), 249-251
- [61] Atobe K., Nokagawa M.  
Production Rate and Thermal Stability of F-Centers in  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with Irradiation  
Temperature  
Cryst. Latt. Def. and Amorph. Mat.; **17**, (1987); 229-233
- [62] Ibarra A.,  
CIEMAT, Madrid; (1993), persönliche Mitteilung
- [63] Nickel H.-U., Heidinger R.  
A Survey of Vacuum-Windows for High-Energy Millimeter-Wave Systems in  
Fusion  
Proc. 20th Symp. on Electrom. Windows, Atlanta (USA), (Sept. 1992); 15-17
- [64] Bosman A.J., Havinga E.E.  
Temperature Dependence of Dielectric Constants of Cubic Ionic Compounds  
Physical Review, **129** (4), (1963); 1593-1600
- [65] Ibarra A, Molla J, Heidinger R, Link G.  
The Temperature Function of the Anisotropic Permittivity of Sapphire  
16th Int. Conf. on Infrared and Millimeterwaves; **SPIE 1576**, (1991), 446-447
- [66] Shelby R., Fontanella J., Andeen C.  
The Low Temperature Electrical Properties of some Anisotropic Crystals  
J. Phys. Chem. Solids; **41**, (1980), 69-74
- [67] Karo J.R., Hardy A.M.  
Theoretical Study of the Long-Wavelength Optical Properties of NaCl, KCl, KBr  
and KJ  
Physical Review B; **26** (6), (1982); 3327-3337
-

- [68] Schröder U.  
A New Modell for Lattice Dynamics  
Solid State Communications; **4**, (1966); 347-348
- [69] Bosomworth D.R.  
Far Infrared Optical Properties of  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{SrF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$  and  $\text{CdF}_2$   
Physical Review; **157** (3), (1967); 709-715
- [70] Molla J.  
CIEMAT, Madrid; (1992), unveröffentlicht
- [71] Owens J.C.  
Anharmonicity and Millimeter-Wave Absorption in Alkali-Halide Crystals  
Physical Review; **181** (3), (1969); 1228-1237
- [72] Genzel L., Happ H., Weber R.  
Dispersionsmessungen an NaCl, KCl und KBr zwischen 0,3 und 3 mm  
Wellenlänge  
Zeitschrift für Physik; **154**, (1959); 13-18
- [73] Hippel A.R.von, N.E.Dye, Smith G.C.  
siehe Referenz 24 von Owens [60]
- [74] R.P. Lowndes  
Dielectric Measurements of Ionic Solids  
Doktorarbeit, University London, Phys. Department, Queen Mary College,  
(1967)
- [75] Raunio G.; Rolandson S.  
Lattice Dynamics of NaCl, KCl, RbCl and RbF  
Physical Review B; **2** (6), (1970); 2098-2103
- [76] Landolt Börnstein  
Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik. Neue Serie III  
Band 7; Kristallstrukturdaten anorganischer Verbindungen  
Band 18; The Elastic Constants of Crystals and other Anisotropic Materials  
Springer Verlag, Berlin
- [77] Birch J.R., Heidinger R.  
The Dielectric Properties of  $\text{CaF}_2$  and LiF at mm- and Submm-Wavelengths  
15th Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves; Orlando Florida; SPIE **1514**,  
(1990); 464-466
- [78] Dötsch H., Happ H.  
Temperaturabhängigkeit der Absorption von NaCl zwischen 1 und 3 mm  
Wellenlänge  
Zeitschrift für Physik; **177**, (1964); 360-368

- [79] Geick R.  
Zur Dispersion des NaCl im Bereich seiner Ultraroten Eigenschwingungen  
Zeitschrift für Physik; **166**, (1962); 122-147
- [80] Elcombe M.M., Pryor A.W.  
The Lattice Dynamics of Calcium Fluoride  
J. Phys. C: Solid State Physics; **3**, (1970); 492-499;
- [81] Zernik W.  
Theory of Infrared Optical Properties of Fluorite Crystals  
Rev. of Modern Physics; **39** (2), (1967); 432-439
- [82] Hurrell J.R., Minkiewicz V.J.  
The Crystal dynamics of Barium Fluoride  
Solid State Communications; **8**, (1970); 463-466
- [83] Katiyar R.S.  
Dynamics of the Rutile Structure. II Lattice Dynamics of Magnesium Fluoride  
J. Phys. C: Solid State Physics; **3**, (1970); 1693-1702
- [84] Almairac R., Benoit C.  
Lattice Dynamics of Magnesium Fluoride  
J. Phys. C: Solid State Physics; **7**, (1970); 2614-2629
- [85] Gervais F., Piriou B.  
Temperature Dependence of Transverse- and Longitudinal-Optic Modes in TiO<sub>2</sub>  
(Rutil)  
Physical Review B; **10** (4), (1974); 1642-1654
- [86] J. Giordano, C. Benoit  
Infrared Spectra of Iron, Zinc and Magnesium Fluorides: I Analysis of Results  
J. Phys. C: Solid State Phys.; **21**, (1988), 2749-2770
- [87] Thomas M.E., Joseph R.  
Characterisation of the Infrared and Far-Infrared Properties of Sapphire and  
Quartz  
Conf. Digest of the 13th Int. Conf. on Infrared and Millimeter waves; Honolulu  
Hawaii; SPIE **1039**; (1988); 339-341
- [88] Braginsky V.B., Ilchenko V.S., Bagdassadov Vh. S.  
Experimental Observation of Fundamental Microwave Absorption in  
High-Quality Dielectric Crystals  
Physical Letter A; **120** (6), (1987); 300-305
- [89] Gurevich V.L., Tagantsev A.V.  
Intrinsic Dielectric Loss in Crystals  
Adv. in Physics; **40** (6), (1991); 719-767

- [90] Braginsky V.B., Bagdassadov Vh. S., Bulygin F.K., Ilchenko V.S.  
Temperature and Frequency Dependence of the Damping of Electromagnetic  
Waves in High-Quality Dielectric Single Crystals  
Soviet Tech. Phys. Letters; **11** (4), (1985); 177-178
- [91] Billard D., Gervais F., Piriou B.  
Far Infrared Absorption in  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and MgO  
Int. J. on Infrared and Millimeter Waves; **1** (4), (1980); 641-647
- [92] Bialas H., Stolz H.J.  
Lattice Dynamics of Sapphire (Corundum). I Phonon Dispersion by Inelastic  
Neutron Scattering  
Zeitschrift für Physik B; **21**, (1975); 319-324
- [93] Kappus W.  
Lattice Dynamics of Sapphire (Corundum). II Calculation of the  
Phonon-Dispersion  
Zeitschrift für Physik B; **21**, (1975); 325-331
- [94] Schober H.  
Untersuchungen der Gitterdynamik von Saphir mit Hilfe der inelastischen  
Neutronenstreuung  
Doktorarbeit; Naturwissenschaftliche Fakultät II - Physik; Universität  
Regensburg; (1992)
- [95] Gervais F., Billard D., Piriou B.  
High Temperature Phonon Self-Energy: An Application to Infrared Spectra of  
Corundum  $\text{Al}_2\text{O}_3$   
Rev. Int. Htes Temp. et Refract.; **12**, (1975); 58-62
- [96] Molla J., Ibarra A.,  
Dielectric Properties of Sapphire at Microwave Frequencies  
17th Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves; Pasadena, California;  
SPIE **1929**, (1992); 158-159
- [97] Loewenstein E.V., Smith D.B., Morgan R.L.  
Optical Constants of Far Infrared Material. 2 Crystalline Solids  
Applied Optics; **12** (2), (1973); 398-406
- [98] Dryagin Yu.A., Parshin V.V.  
A Method to Measure Dielectric Parameters in 5-0.5 mm Wavelength Band  
Int. J. of Infrared and Millimeter Waves; **13** (7), (1992); 1023-1032
- [99] Pells G.P., Buckley S.N.  
Persönliche Mitteilung

- [100] Li X., Afsar M.N.  
A Precision 60 GHz Fabry-Pérot Open Resonator System for Complex Dielectric Measurements  
15th Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves, Orlando Florida;  
SPIE 1514, (1990); 187-188
- [101] Cook W.B., Perkowitz S.  
Temperature Dependence of the Far Infrared Ordinary Ray Optical Constants of Sapphire  
Applied Optics; 24 (12), (1985); 1773-1775
- [102] Birch J.R.  
An Intercomparison of Measurement Techniques for the Determination of the Dielectric Properties of Solids of Near Millimetre Wavelengths  
National Physical Laboratory Report DES 115; (Oktober 1991)
- [103] Scott J.F., Porto S.P.S.  
Longitudinal and Transverse Lattice Vibrations in Quartz  
Physical Review; 161 (3), (1967); 903-910
- [104] Spitzer W.G., Kleinman  
Infrared Lattice Bands of Quartz  
Physical Review; 121 (5), (1961); 1324-1335
- [105] Barron T.H.K., Huang C.C., Pasternak A.  
Interatomic Forces and Lattice Dynamics of  $\alpha$ -Quartz  
J. Phys. C: Solid State Phys.; 9, (1976); 3925-3940
- [106] Russell E.E., Bell E.E.  
Measurement of the Optical Constants of Crystal Quartz in the Far-Infrared with the Asymmetric Fourier-Transform Method  
J. of the Optical Soc. of America; 57 (3), (1967); 341-348

A

Anhang

A.1

Literaturdaten zur Gitterdynamik

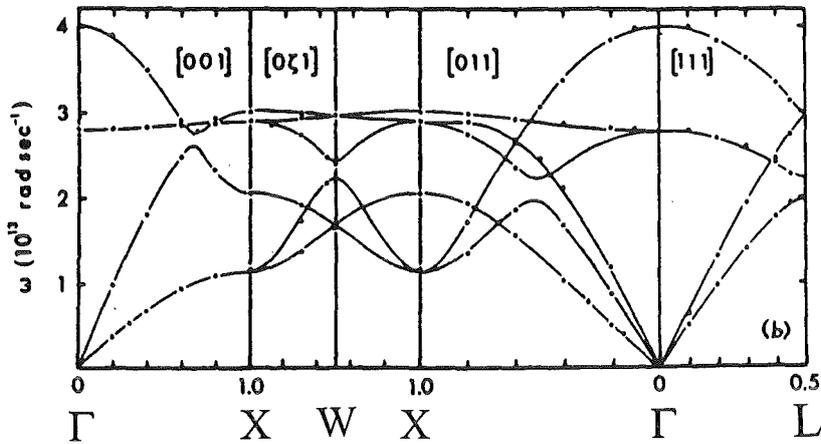


Abbildung A.1  
Phononen-Dispersionsrelation von KCl nach Raunio et al [75]

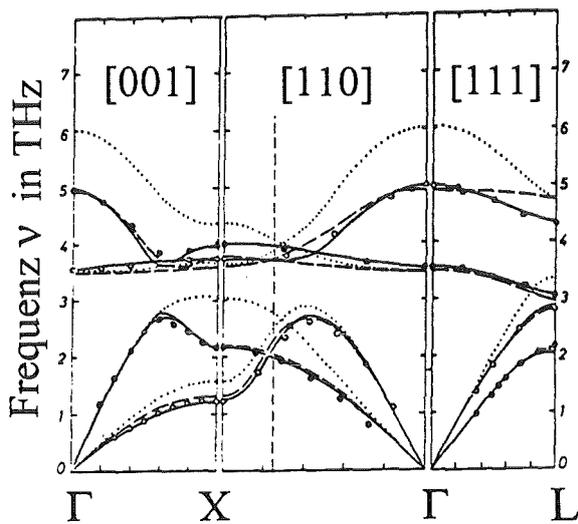


Abbildung A.2  
Phononen-Dispersionsrelation von KBr bei 90 K [68].

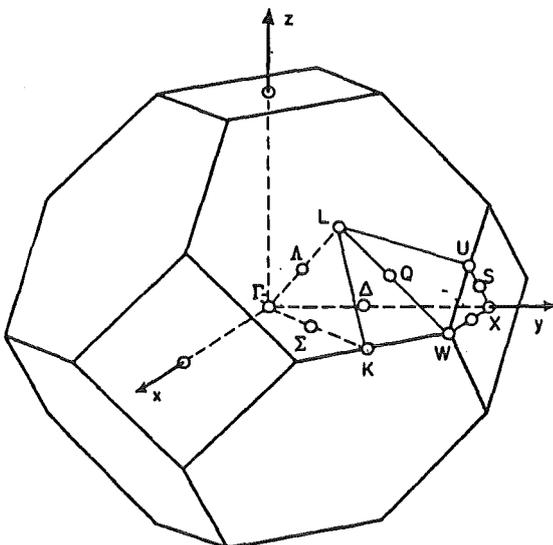


Abbildung A.3 1. Brillouinzone kubisch flächenzentrierter Kristalle mit der Bezeichnung der einzelnen Symmetrierichtungen nach Koster [9]

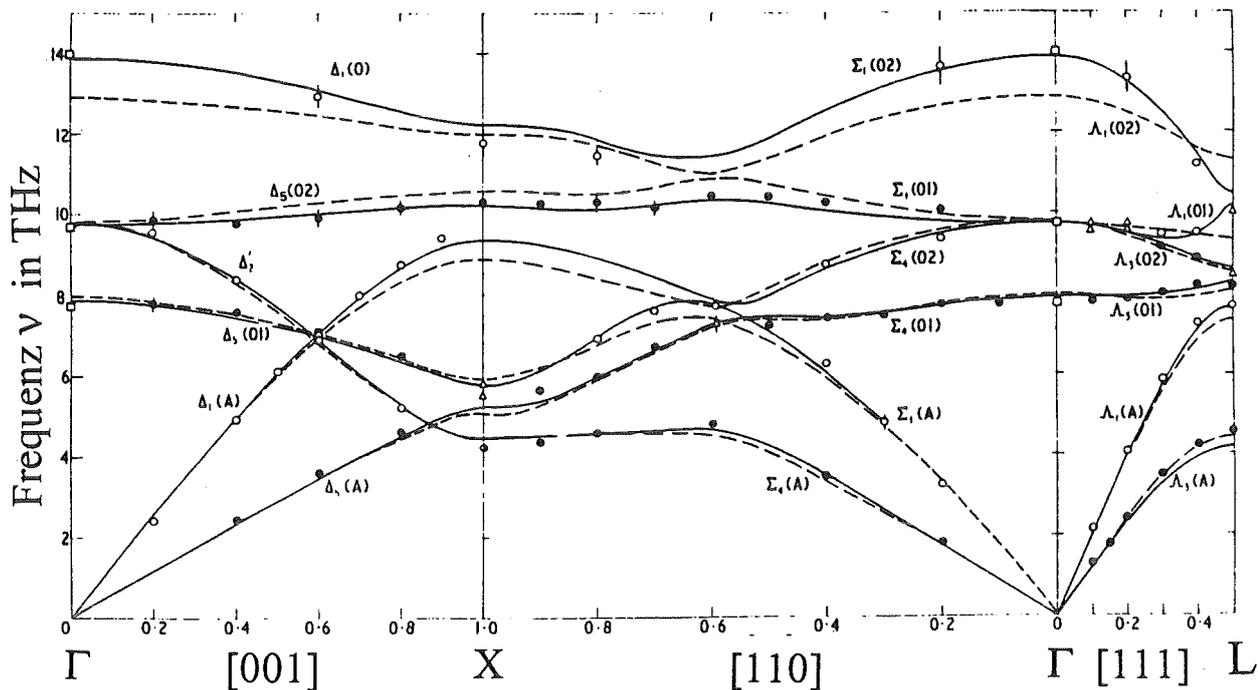


Abbildung A.4 Phononen-Dispersionsrelation von  $\text{CaF}_2$  [80] Ausgefüllte Kreise entsprechen transversalen und unausgefüllt Kreise longitudinalen Gitterschwingungen.

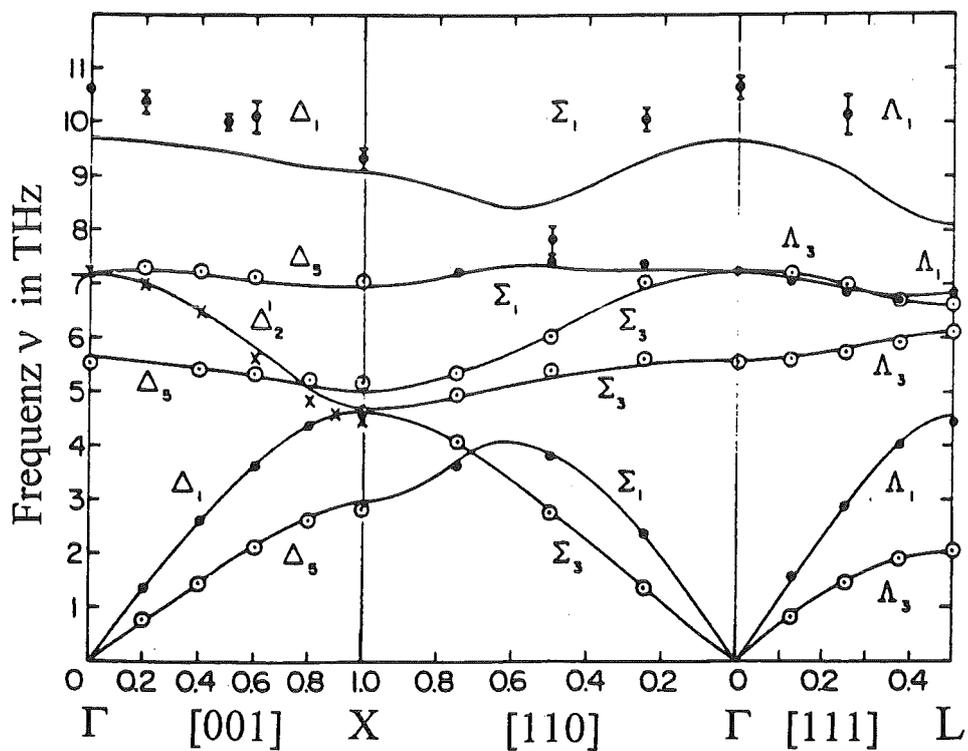


Abbildung A.5 Phononen-Dispersionsrelation von  $\text{BaF}_2$  [82]

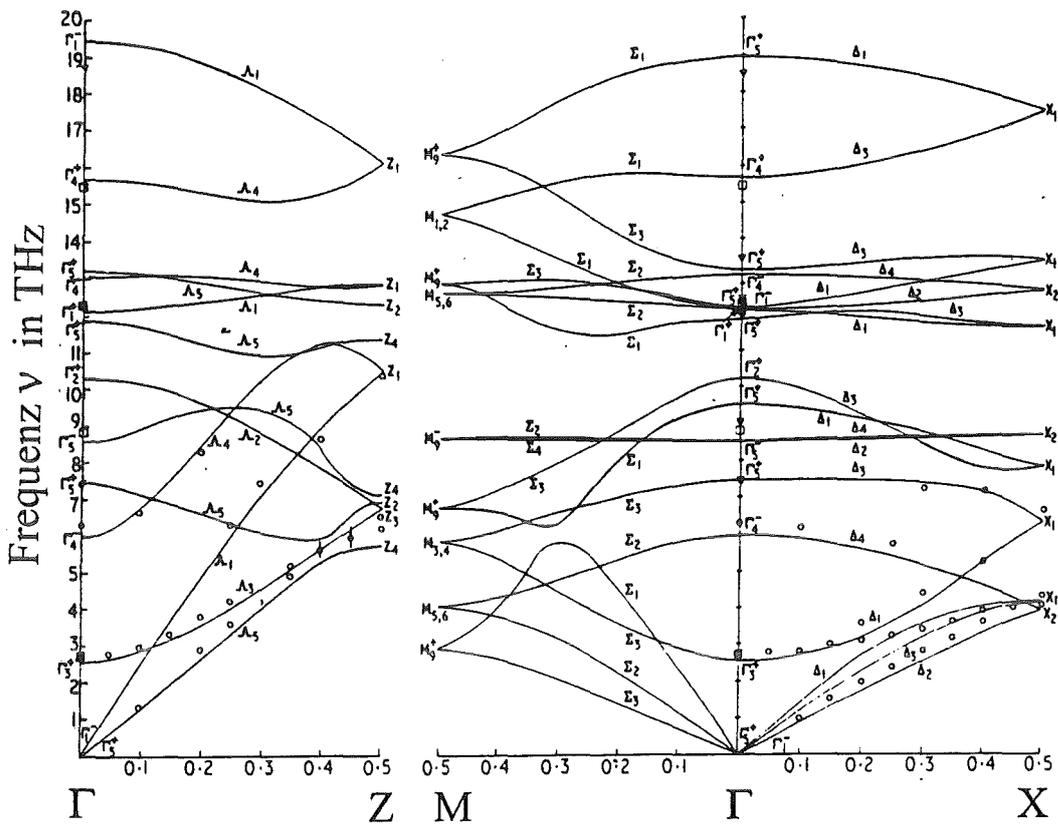
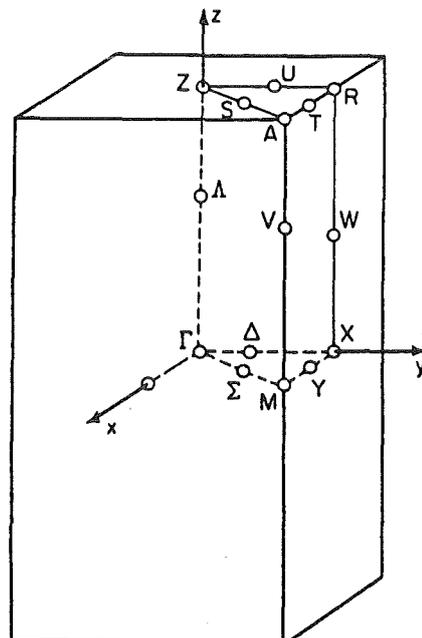


Abbildung A.6 Phononen-Dispersionsrelation von  $MgF_2$  [83]

Abbildung A.7 1. Brillouinzone eines tetragonalen Kristallgitters mit der Bezeichnung der einzelnen Symmetrierichtungen nach Koster [9].



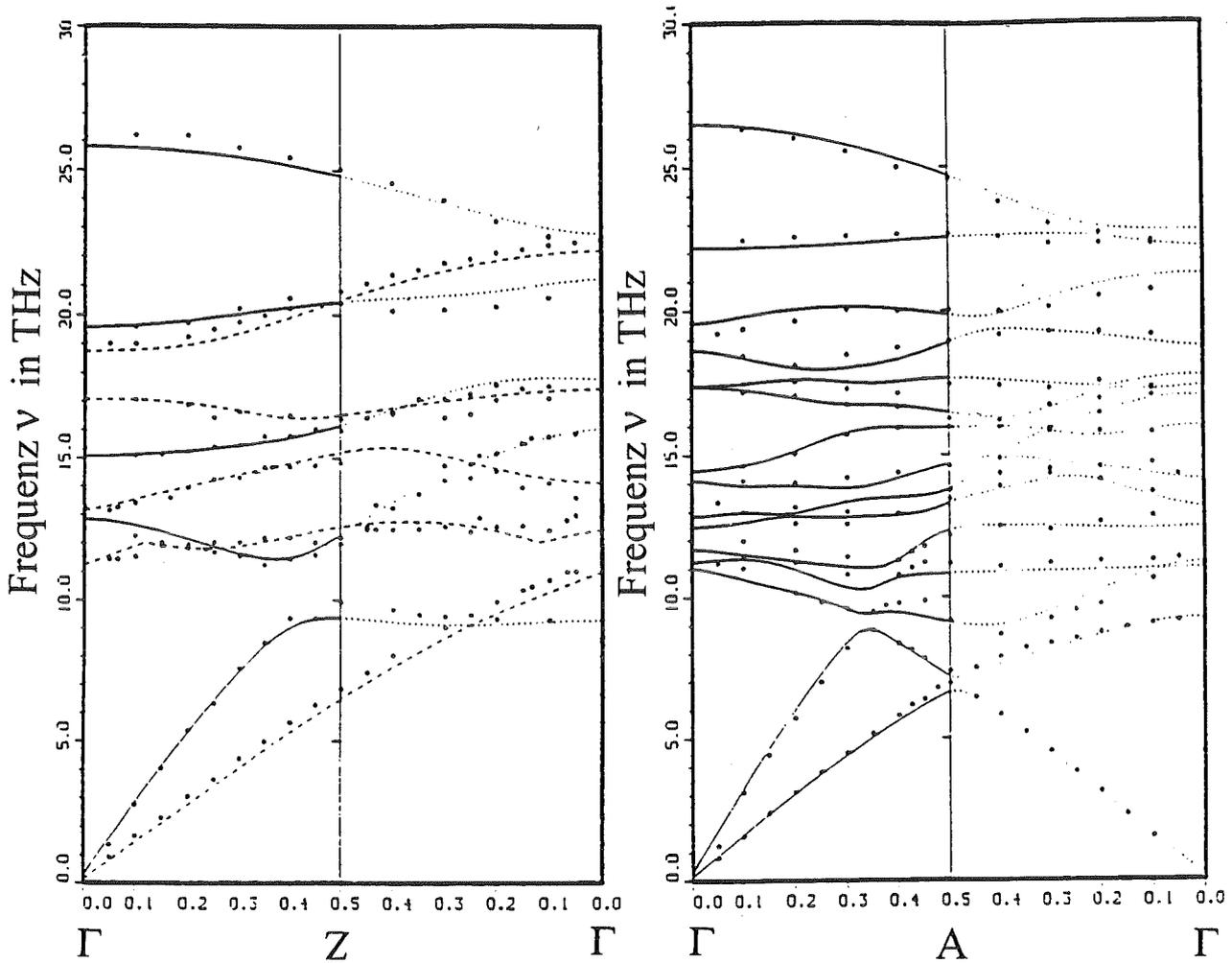
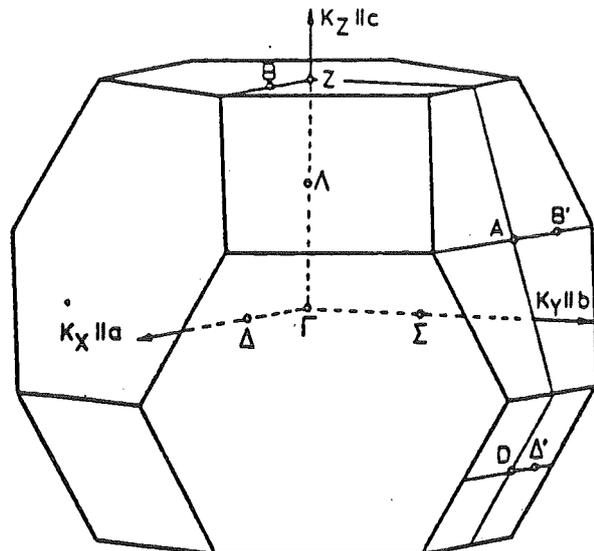


Abbildung A.8 Phononen-Dispersionsrelation von Saphir in zwei Richtungen hoher Symmetrie [94]. Die durchgezogenen, punktierten und gestrichelten Linien in  $\Gamma$ -Z-Richtung beziehen sich auf die  $\Lambda_1$ -,  $\Lambda_2$ - bzw.  $\Lambda_3$ -Darstellungen. Die durchgezogenen und punktierten Linien in  $\Gamma$ -A-Richtung entsprechen der  $\Sigma_1$ - bzw.  $\Sigma_2$ -Darstellung.

Abbildung A.9 1-Brillouizone von  $\alpha$ -Saphir mit der Bezeichnung der einzelnen Symmetrierichtungen nach Koster [9]



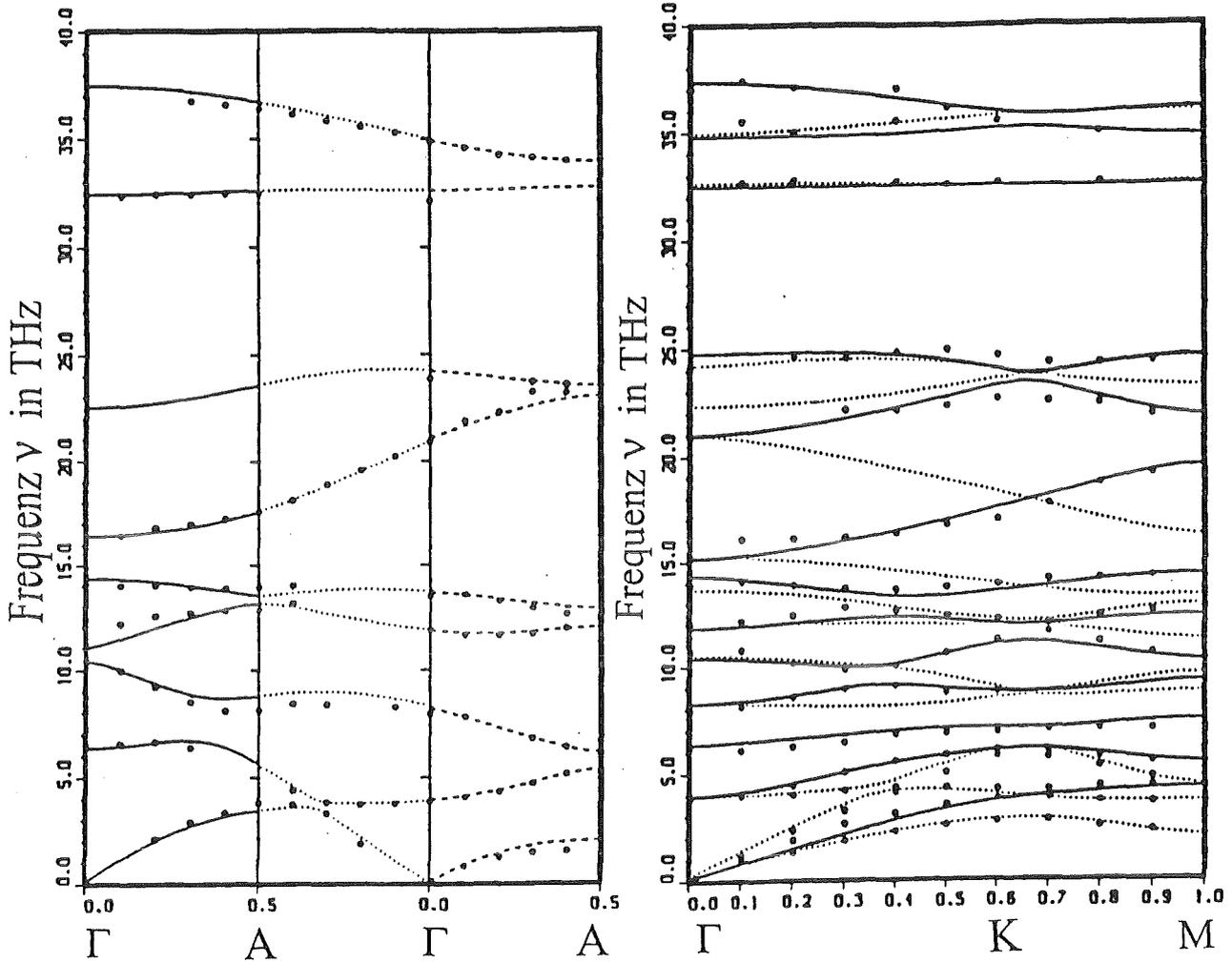


Abbildung A.10 Phononen-Dispersionsrelation von Quarz in zwei Richtungen hoher Symmetrie [94]. Die durchgezogenen, punktierten und gestrichelten Linien in  $\Gamma$ -A-Richtung beziehen sich auf die  $\Delta_1$ -,  $\Delta_2$ - bzw.  $\Delta_3$ -Darstellungen. Die durchgezogenen und punktierten Linien in  $\Gamma$ -K-M-Richtung entsprechen der  $T_1$ - bzw.  $T_2$ -Darstellung.

Abbildung A.11 1-Brillouizone von  $\alpha$ -Quarz mit der Bezeichnung der einzelnen Symmetrierichtungen nach Koster [9]

