

Geheimnis der Tunnelsysteme im Glas gelüftet

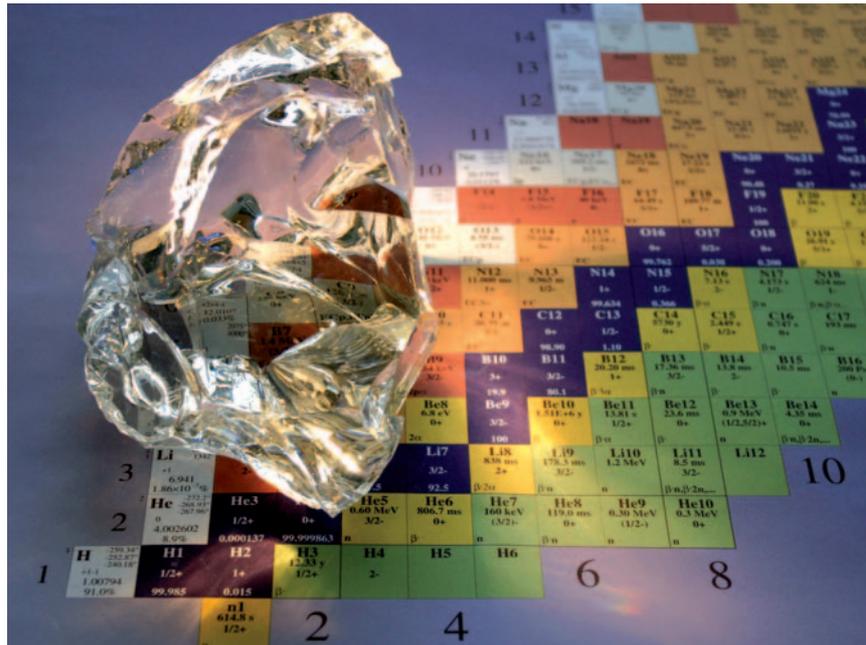
Beim Tunneln von Atomen in Gläsern spielen die Kernmomente eine entscheidende Rolle.

Andreas Fleischmann und Christian Enss

Obwohl Glas seit Jahrtausenden verwendet wird und uns im Alltag ständig begegnet, birgt die Physik des Glaszustands noch viele Rätsel. Bei tiefen Temperaturen bestimmen atomare Tunnelsysteme die Eigenschaften von Gläsern. Neue Ergebnisse zeigen, dass die Kernmomente der tunnelnden Atome eine wichtige Rolle spielen und erstmals Einblicke in die mikroskopische Natur der Tunnelsysteme erlauben.

Während Lehrbücher der Festkörperphysik fast ausschließlich Kristalle diskutieren, sind im täglichen Leben amorphe Festkörper allgegenwärtig, da sie aufgrund ihrer besonderen Eigenschaften technologisch von hoher Bedeutung sind. Obwohl die physikalischen Vorgänge in Gläsern noch viele grundlegende Rätsel aufgeben, gelingt es, amorphe Substanzen für viele Zwecke herzustellen, materialtechnisch zu optimieren und einzusetzen. Amorphe Festkörper entstehen üblicherweise durch rasches Abkühlen ihrer Schmelzen. Dabei verfestigen sie sich auf einer Zeitskala, die eine regelmäßige Anordnung der Atome wie in einem perfekten Kristall nicht erlaubt. Das Erstarren der Schmelze ohne Kristallisation wird als Glasübergang bezeichnet. Im Gegensatz zu Kristallen besitzen Gläser keine langreichweitige Ordnung, was eine theoretische Beschreibung ihrer physikalischen Eigenschaften erheblich erschwert. Daher ist der Glasübergang, obwohl er seit vielen Jahrzehnten intensiv untersucht wird, bis heute in grundlegenden Aspekten unverstanden.

Ähnlich verhält es sich mit dem ungewöhnlichen Verhalten von Gläsern bei tiefen Temperaturen: Zwar ist allgemein anerkannt, dass lokale Umlagerungen auf atomarer Skala, sog. Tunnelsysteme, hierfür verantwortlich sind, jedoch ist deren mikroskopische Natur trotz zahlreicher Bemühungen bislang nicht geklärt. Abb. 1 soll eine intuitive Vorstellung vom Auftreten atomarer Tunnelsysteme im Netzwerk amorpher Substanzen vermitteln. Hier sind drei unterschiedliche atomare Konfigurationen farblich gekennzeichnet, die jeweils mehrere energetisch fast äquivalente Gleichgewichtslagen einnehmen können. Bei tiefen Temperaturen sind Wechsel zwischen den Konfigurationen nur durch Tunnelprozesse möglich. Unterhalb von einem Kelvin überwiegen diese Anregungen die Zahl der



angeregten Schwingungsmoden des atomaren Gitters und bestimmen somit die thermischen, dielektrischen und akustischen Eigenschaften von Gläsern [1].

Als ein besonders markantes Beispiel sei die in der Temperatur T lineare spezifische Wärme von Gläsern [2] erwähnt. Abb. 2 zeigt die spezifische Wärme von Quarzglas im Vergleich zu kristallinem Quarz. Ursprünglich hatte man erwartet, dass in beiden Substanzen entsprechend dem Debye-Modell langwellige Phononen als Anregungen dominieren und daher die spezifischen Wärmen sehr ähnlich sein sollten. Während die Kurve für Quarzkristall, wie vom Debye-

Das Ersetzen von Wasserstoff durch das schwerere Isotop Deuterium in Glasbildnern wie Glycerin ermöglicht Einsichten in die mikroskopische Natur atomarer Tunnelsysteme in solchen Festkörpern.

KOMPAKT

- Die ungewöhnlichen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen rühren daher, dass Atome oder Atomgruppen zwischen äquivalenten Positionen tunneln können.
- Echoexperimente zeigen überraschenderweise, dass die dielektrischen Eigenschaften von Gläsern von einem angelegten Magnetfeld abhängen.
- Dies ist auf die Kernmomente von tunnelnden Atomen zurückzuführen und erlaubt Rückschlüsse auf die mikroskopische Natur der Tunnelsysteme.

Dr. Andreas Fleischmann und Prof. Dr. Christian Enss, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, Im Neuenheimer Feld 227, 69120 Heidelberg

Modell vorausgesagt, proportional zu T^3 variiert, ist die spezifische Wärme für die amorphe Modifikation unterhalb von einem Kelvin eine lineare Funktion von T . Bei einer Temperatur von 25 mK liegt der Absolutwert der spezifischen Wärme von diesem Glas um einen Faktor 5000 höher als nach dem Debye-Modell zu erwarten war. Dieser enorme zusätzliche Beitrag zur spezifischen Wärme lässt sich durch eine nahezu konstante Verteilung von niederenergetischen Anregungen erklären. Etwas überspitzt ausgedrückt verhalten sich Gläser bei tiefen Temperaturen so, als ob sie allein aus atomaren Tunnelsystemen bestünden und alle anderen Freiheitsgrade vergleichsweise unwichtig wären.

Gläser zeichnen sich dadurch aus, dass ihre thermischen Eigenschaften bei tiefen Temperaturen nahezu unabhängig von ihrer chemischen Zusammensetzung sind. Dieses Phänomen ist unter dem Stichwort Universalität der Tieftemperatureigenschaften von amorphen Dielektrika bekannt. Gerade diese weitgehende Materialunabhängigkeit hat es bislang trotz unzähliger Versuche enorm erschwert, die mikroskopische Natur der niederenergetischen Anregungen in Gläsern aufzuklären.

Eine phänomenologische Beschreibung für die Tieftemperatureigenschaften von Gläsern liefert das Tunnelmodell [3, 4] (Infokasten). Dieses geht davon aus, dass sich die niederenergetischen Anregungen in Gläsern durch Atome oder Atomgruppen beschreiben lassen, die in einem Doppelmuldenpotential bestehend aus zwei harmonischen Potentialen tunneln. Aufgrund der strukturellen Unordnung in Gläsern sind die Parameter dieser Doppelmuldenpotentiale breit verteilt, was unmittelbar den linearen Verlauf der spezifischen Wärme erklärt. Das fehlende Wissen über die detaillierte mikroskopische Natur der atomaren Tunnelsysteme verhindert jedoch tiefergehende Analysen ihrer Dynamik. Beispielsweise zeigt sich, dass die dielektrische und elastische Antwortfunktion das Tunnelmodell bei Temperaturen unter 100 mK nicht

befriedigend beschreiben kann. Bislang ließen sich die beobachteten Abweichungen der Wechselwirkung zwischen den Tunnelsystemen zuschreiben, die im Tunnelmodell vernachlässigt wird. Neuerdings ist klar, dass außerdem noch weitere Effekte eine wichtige Rolle spielen, auf die wir hier eingehen wollen.

Da in der Vergangenheit jeder experimentelle Ansatz zur Aufklärung der mikroskopischen Natur der Tunnelsysteme fehlgeschlagen ist, kommt molekulardynamischen Simulationen besondere Bedeutung zu. Hierbei werden Modellgläser „auf dem Rechner abgekühlt“, bevor ausgefeilte Algorithmen nach möglichen Tunnelsystemen suchen. Ziel ist es nicht, nur einige spezielle Tunnelsysteme zu identifizieren, sondern auch eine Aussage über die Verteilung ihrer Parameter zu machen [5]. Solche Simulationen schlagen darüber hinaus eine Brücke zwischen den Eigenschaften der Gläser bei tiefen Temperaturen und am Glasübergang. Eine Frage dabei ist, wie die Netzwerkstrukturen im Detail aussehen müssen, um die experimentell beobachtete Verteilung von Tunnelsystemen zu erhalten.

Eine unerwartete Entdeckung

1998 entdeckte Peter Strehlow bei Messungen an einem Kernentmagnetisierungskryostaten an der PTB, dass die dielektrische Suszeptibilität von bestimmten isolierenden Gläsern empfindlich von äußeren Magnetfeldern abhängt [6]. Diese unerwartete Entdeckung eröffnete ein völlig neues Kapitel in Bezug auf die Tieftemperatureigenschaften von Gläsern. Bis zu dieser Messung herrschte die feste Überzeugung, dass die dielektrischen Eigenschaften von isolierenden Gläsern ohne elektronische magnetische Momente kaum von äußeren Magnetfeldern abhängen, da das elektrische Feld durch einen polaren und ein Magnetfeld durch einen axialen Vektor beschrieben wird. In erster Ordnung sollten diese Felder daher nicht koppeln, sodass

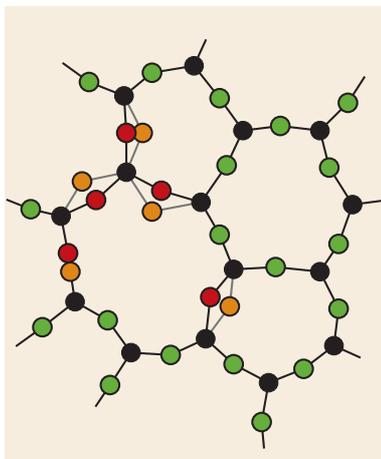


Abb. 1 Die Struktur eines amorphen Festkörpers erlaubt es Atomen und Atomgruppen, unterschiedliche, aber energetisch fast äquivalente Gleichgewichtslagen einzunehmen (rot und orange).

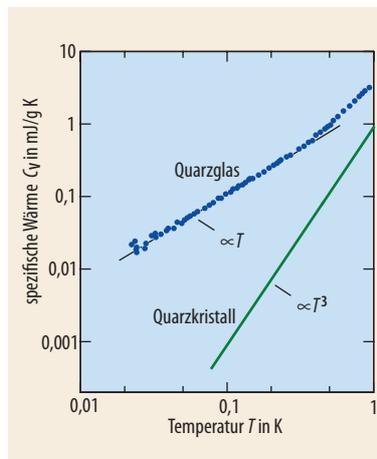


Abb. 2 Die spezifische Wärme von Quarzglas weist im Vergleich zu kristallinem Quarz einen großen zusätzlichen Beitrag von niederenergetischen Systemen auf [2].

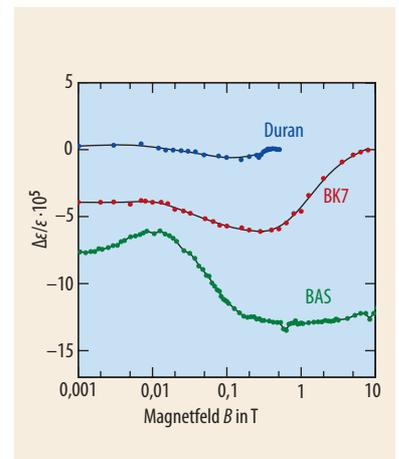


Abb. 3 Die dielektrischen Konstanten verschiedener Glassorten hängen nicht-monoton vom Magnetfeld ab [7, 8]. Die Messungen an Duran und BK7 wurden bei 15 mK und die an BAS bei 50 mK durchgeführt.

die temperaturabhängige dielektrische Konstante von Gläsern vielfach als geeignete Größe angesehen wurde, um die Temperatur in Magnetfeldern bei tiefen Temperaturen zu bestimmen. Tatsächlich wurden eine Reihe von Glaskapazitätsthermometern zu diesem Zweck entwickelt und eingesetzt. Auch die Untersuchungen von Peter Strehlow hatten als Ausgangspunkt das Ziel, ein neues Glaskapazitätsthermometer für Messungen in Magnetfeldern zu entwickeln.

Zunächst war unklar, ob sich diese Beobachtung auf BAS-Glas beschränkt oder ein allgemeineres Phänomen ist. Schnell zeigte sich jedoch, dass auch die dielektrische Konstante von anderen Gläsern dieses ungewöhnliche Verhalten aufweist, das allerdings nicht universell ist und stark vom untersuchten Material abhängt, wie das Beispiel der drei Gläser BK7, Duran und BAS zeigt (Abb. 3) [7, 8]. Insbesondere die nicht-monotone Magnetfeldabhängigkeit war eine große Überraschung. Diese Experimente zeigten auch, dass magnetische Verunreinigungen keine Rolle spielen.

Worin liegt also die Ursache für die Magnetfeldabhängigkeit? Ein möglicher Einfluss von Kernmomenten wurde zunächst voreiligerweise ausgeschlossen, da die Kerne in Dielektrika bei tiefen Temperaturen sehr lange Relaxationszeiten besitzen und somit auf der Zeitskala der durchgeführten niederfrequenten Experimente (1 kHz) irrelevant sein sollten. Ähnlich wie die spezifische Wärme wird auch die dielektrische Suszeptibilität von Gläsern bei tiefen Temperaturen von Tunnelsystemen bestimmt. Die Tunnelsysteme koppeln über ihre elektrischen Dipolmomente an äußere elektrische Felder. Ein Einfluss von Magnetfeldern auf Tunnelsysteme würde sich also direkt auf die dielektrischen Eigenschaften auswirken.

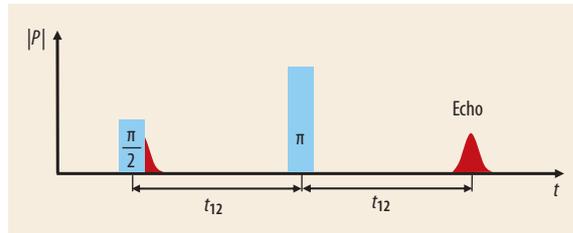


Abb. 4 Beim Zweipuls-Echo zerfällt die makroskopische Polarisation der Probe (rot) nach der Anregung mit einem $\pi/2$ -Puls zunächst. Nach der Zeit $2t_{12}$ erscheint sie wieder als Echo, falls zur Zeit t_{12} ein π -Puls eingestrahlt wurde.

Magnetfeldabhängige Polarisationsechos

Um zu klären, ob Tunnelsysteme an äußere Magnetfelder koppeln, dienten dann dielektrische Echoexperimente. Dazu wird die Glasprobe in einem Topfkreisresonator abgekühlt, in den sich kurze Mikrowellenpulse induktiv ein- bzw. auskoppeln lassen. Bei den hier diskutierten Experimenten hatten die beladenen Topfkreise eine Resonanzfrequenz von ungefähr 1 GHz, d. h. die am Echo beteiligten Tunnelsysteme besitzen eine Energieaufspaltung von etwa $E/k_B = 50$ mK. Ähnlich wie in NMR-Echoexperimenten sind im Prinzip viele verschiedene Pulssequenzen zur Erzeugung solcher Polarisationsechos möglich. Hier wollen wir Zweipuls-Echos betrachten (Abb. 4), wobei zwei kurze Mikrowellenpulse im Abstand von einer Zeit t_{12} , die typischerweise einige Mikrosekunden beträgt, in den Resonator eingekoppelt werden. Das Echo, d. h. das makroskopische und hochfrequente Polarisationsignal entsteht dann zu einer Zeit $2t_{12}$.

Der erste Puls bringt die mit dem angelegten Feld resonanten Tunnelsysteme in einen zeitabhängigen ge-

TUNNELMODELL FÜR GLÄSER

Ausgangspunkt des Tunnelmodells ist die Annahme, dass die beobachteten niederenergetischen Anregungen in isolierenden amorphen Festkörpern auf Atome bzw. Atomgruppen zurückzuführen sind, die zwischen energetisch nahezu entarteten Gleichgewichtslagen tunneln [1]. Das Modell nähert diese Tunnelsysteme vereinfacht durch **Teilchen in Doppelmuldenpotentialen** an, die sich aus zwei harmonischen Potentialen im Abstand

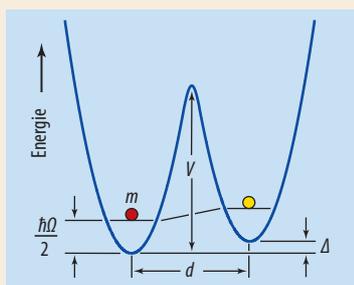


Abb. i Doppelmuldenpotential mit den charakteristischen Parametern

d zusammensetzen (Abb. i). So entsteht zwischen den Mulden eine Barriere der Höhe V , die die Teilchen bei ausreichend tiefen Temperaturen thermisch aktiviert nicht mehr überwinden können. Platzwechsel finden dann allein durch Tunnelprozesse statt, wobei die Tunnelwahrscheinlichkeit $\exp(-\lambda)$ durch den Überlapp der Wellenfunktion in der Barriere gegeben ist. Der sog. Tunnelparameter λ enthält die mikroskopischen Größen Muldenabstand, Barrierenhöhe und Teilchenmasse. Die entarteten lokalisierten Zustände werden um

$$\Delta_0 = \hbar\Omega e^{-\lambda}$$

aufgespalten. Hierbei entspricht $\hbar\Omega/2$ einer effektiven Grundzustandsenergie. Im Allgemeinen sind die Mulden nicht gleich tief, und es tritt eine zusätzliche Asymmetrieenergie Δ auf. Insgesamt ist die Energieaufspaltung durch

$$E = (\Delta_0^2 + \Delta^2)^{1/2}$$

gegeben. Die niederenergetischen Anregungen in Gläsern sind also **Zweiniveau-Systeme** mit der Aufspaltung E . Aufgrund der unregelmäßigen Struktur von amorphen Festkörpern ergibt sich eine breite Verteilung der Parameter Δ und λ . Das Tunnelmodell geht vereinfachend von einer konstanten Verteilung dieser beiden Größen gemäß

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

aus. Eine kurze Rechnung zeigt, dass diese Annahme mit dem Auftreten einer linearen Temperaturabhängigkeit in der spezifischen Wärme verträglich ist. Erstaunlicherweise gelang es mit dieser doch recht groben Verteilung, viele andere Tieftemperatureigenschaften von Gläsern befriedigend zu beschreiben. Bei sehr tiefen Temperaturen treten allerdings Abweichungen auf, die in vielen Ansätzen auf die gegenseitige Wechselwirkung der Tunnelsysteme zurückgeführt werden.

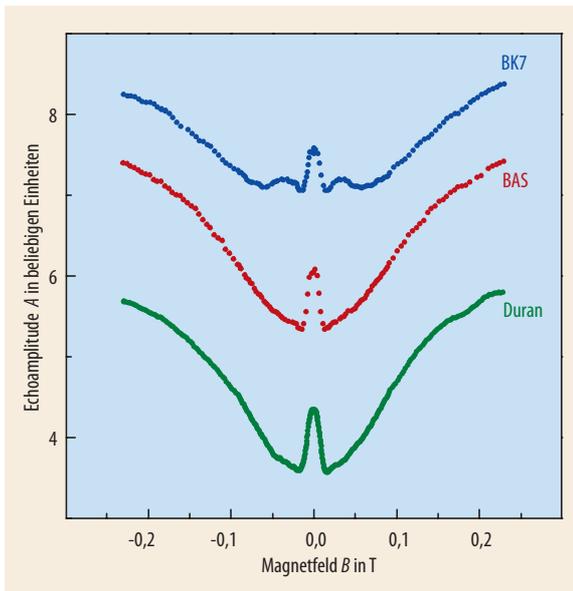


Abb. 5 Die relative Amplitude von Polarisationsechos hängt in BK7, Duran und BAS-Glas stark vom Magnetfeld ab [9]. Zur besseren Übersicht wurden die Kurven für verschiedene Materialien verschoben. Der Absolutwert der Echoamplitude ist für alle Gläser etwa gleich.

mischten Zustand, der anschaulich einer Lokalisierung der jeweiligen Tunnelteilchen entspricht und daher mit einem Dipolmoment verbunden ist. Die Überlagerung der oszillierenden Dipolmomente führt kurzzeitig zu einer makroskopischen Polarisation, die sich aber aufgrund der unterschiedlichen Energien der beteiligten Tunnelsysteme schnell wegmittelt. Dies wird als freier Polarisationszerfall bezeichnet. Nach dem ersten Puls entwickelt sich der nun gemischte Zustand für eine Dauer t_{12} frei in der Zeit, wobei die Anteile, aus denen sich die Wellenfunktion zusammensetzt, entsprechend ihrer Energie eine unterschiedliche Phase aufsammeln.

Der zweite Puls unterbricht die freie Entwicklung kurzzeitig und bewirkt ein erneutes Mischen. Obwohl sich nun alle beteiligten Tunnelsysteme in einem Überlagerungszustand befinden und ein oszillierendes Dipolmoment zeigen, ist nach dem zweiten Puls keine makroskopische Polarisation messbar – durch die kurzen Pulse wurden Tunnelsysteme mit unterschiedlichen Energieaufspaltungen angeregt und der Ensemblemittelwert des oszillierenden Dipolmoments verschwindet aufgrund der breit verteilten Frequenzen. Eine Ausnahme bildet der Zeitpunkt $2t_{12}$. Hier haben die Anteile der Wellenfunktion eines jeden Tunnelsystems – unabhängig von dessen Energieaufspaltung – dieselbe Phase aufgesammelt und daher Phasendifferenz Null. Die resultierende makroskopische Polarisation zu diesem Zeitpunkt dauert in etwa so lange wie die eingestrahlten Pulse und wird „spontanes Polarisationsecho“ genannt.

Tatsächlich zeigten diese Experimente, dass die Amplitude von Zweipuls-Echos ausgeprägt vom Magnetfeld abhängt (Abb. 5) [9, 10]. Ähnlich wie bei der dielektrischen Konstante ist die Magnetfeldabhängigkeit nichtmonoton. Besonders überraschend war, dass die Echoamplitude in hohen Magnetfeldern größer ist

als im Nullfeld. Dies bedeutet, dass das Magnetfeld die Kohärenz quasi verbessern kann. Damit war gezeigt, dass die Tunnelsysteme selbst an äußere Magnetfelder koppeln.

Einfluss der Kernmomente

Eine konsistente Erklärung für die beobachtete Magnetfeldabhängigkeit liefert ein Modell, das die Kernmomente der am Tunneln beteiligten Atome berücksichtigt [11]. Obwohl die Kernspin-Gitter-Relaxationszeiten in Dielektrika bei tiefen Temperaturen extrem lang sind, lassen sich die Kernmomente nicht isoliert von den atomaren Tunnelsystemen betrachten. Tragen die tunnelnden Atome selbst z. B. ein Kernquadrupolmoment, können die Eigenzustände des Kernspins von der Position des Tunnelsystems in den beiden Mulden abhängen. Daher sind die Kernniveaus mit dem Zwei-Niveau-System der Tunnelsysteme verknüpft, d. h. jedes Tunnelniveau spaltet in ein Multiplett auf, wobei die Aufspaltung vom lokalen elektrischen Feldgradienten und dem Kernquadrupolmoment abhängt. Dies hat nun drastische Folgen für die erwartete Amplitude in Echoexperimenten. Grob gesprochen reduziert dieser Effekt die Echoamplitude im Nullfeld, da zusätzliche Interferenzeffekte im Vergleich zu einem Zwei-Niveau-System auftreten.

Das Verhalten in kleinen Magnetfeldern, bei denen die Zeeman-Energie geringer ist als die Quadrupolaufspaltung, hängt nun sehr von der genauen Struktur der Kernspinniveaus, den Auswahlregeln und von der Wartezeit t_{12} ab. Wird bei einer Wartezeit gemessen, bei der im Nullfeld maximal destruktive Interferenz vorliegt, nimmt die Echoamplitude mit zunehmendem Magnetfeld zu. Ist dies nicht der Fall, reduziert sich zunächst die Echoamplitude, bis der Punkt maximal destruktiver Interferenz erreicht ist. Wächst das äußere Magnetfeld weiter an, steigt auch die Echoamplitude. Im Grenzfall hoher Magnetfelder, wenn die Zeeman-Energie der Kerne größer ist als die Quadrupolaufspaltung, wird die Quantisierungsachse der Kerne allein durch die Magnetfeldrichtung bestimmt, und die Eigenzustände der Kernspins sind unabhängig von der Position im Doppelmuldenpotential. In diesem Limes wird die Kopplung zwischen den Tunnelniveaus und den Kernspinniveaus aufgehoben und die erwartete Echoamplitude für Zwei-Niveau-Systeme beobachtet.

Mithilfe von Echoexperimenten an Glycerin, einem organischen Glasbildner, gelang es, diese Vorhersagen eindrucksvoll zu bestätigen [12]. Abb. 6 zeigt die Amplitude von Zwei-Puls-Echos an normalem und an vollständig deuteriertem Glycerin. Bei der Darstellung der Daten für normales Glycerin wurde die Symmetrie bezüglich der Magnetfeldrichtung ausgenutzt und nur Daten, die bei positiven Feldern aufgezeichnet wurden, verwendet. Normales Glycerin besteht ausschließlich aus Atomen ohne Kernquadrupolmoment und sollte daher keine Magnetfeldabhängigkeit in der Echoamplitude aufweisen. Deuterium dagegen besitzt einen

Kernspin $I=1$ und damit ein Kernquadrupolmoment. Der große Isotopeneffekt bestätigt eindeutig den Einfluss der Kernmomente.

Auch das Verhalten ohne äußeres Magnetfeld verdeutlicht die Rolle der Kernspins in den Echoexperimenten. Variiert man den Abstand der anregenden Pulse und zeichnet eine Zerfallskurve auf, so lässt sich bei Systemen mit Kernquadrupolmomenten eine Quantenschwebung beobachten, die in hohen Magnetfeldern verschwindet. **Abb. 7** zeigt als Beispiel eine Messung an fünffach deuteriertem Glycerin. Dem Zerfall der Echoamplitude ist eine klare Oszillation überlagert. In der Periode spiegelt sich die Quadrupolaufspaltung der entsprechenden Kerne wider. Da es sich in diesem Fall allein um Deuteriumatome handelt, die im Glycerin an Kohlenstoffatome gebunden sind, ist die Quadrupolaufspaltung relativ scharf definiert. Aus NMR-Experimenten ergibt sich eine Aufspaltung von ca. 125 kHz [13], was mit der in Echoexperimenten beobachteten Schwebung exzellent übereinstimmt.

Interessanterweise kann aber nicht nur das Kernquadrupolmoment eine Magnetfeldabhängigkeit der Echoamplitude hervorrufen. Neuere Messungen zeigen, dass auch wechselwirkende magnetische Dipolmomente der Kerne unter gewissen Umständen zu einer Magnetfeldabhängigkeit der Echoamplitude führen können. Dies lässt sich anhand folgender Überlegung plausibel machen: Wenn die Glycerinmoleküle beim Tunneln rotieren, ändert sich klassisch betrachtet aufgrund der Anisotropie der Dipol-Dipol-Wechselwirkung deren relative Stärke, da die Ausrichtung der Kernspins bei der Rotation des Moleküls erhalten bleibt. Damit hängen die Eigenzustände der Kerne wieder von der Position im Doppelmuldenpotential ab, und die Tunnelniveaus sind nicht mehr unabhängig von den Kernspin-Niveaus. Im Unterschied zu den Kernquadrupolmomenten sind zumindest zwei wechselwirkende Kernmomente notwendig, und die Ener-

gieskala ist durch die schwache Dipol-Dipol-Wechselwirkung gegeben. Tatsächlich ist die kleine Abweichung von einer konstanten Echoamplitude bei sehr kleinen Magnetfeldern beim nicht-deuterierten Glycerin auf die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung der beteiligten Wasserstoffkerne zurückzuführen (**Abb. 6**). Dieser Effekt tritt deutlicher hervor, wenn man bei Pulsabständen misst, die der Aufspaltung der Kernniveaus entspricht. Bei normalem Glycerin beträgt dieser Pulsabstand etwa 20 Mikrosekunden.

Mikroskopische Natur der Tunnelsysteme

Mithilfe der Kernmomente lassen sich nun interessante Schlussfolgerungen über die mikroskopische Natur der Tunnelsysteme ziehen. Im Folgenden soll dies anhand von Glycerin dargestellt werden. Die Tatsache, dass die Quadrupolaufspaltung von Deuterium in Glycerin wohldefiniert ist, erleichtert Modellrechnungen basierend auf konkreten mikroskopischen Vorstellungen. Als Beispiel wollen wir die Glycerinprobe mit fünf Deuteriumatomen, die jeweils an Kohlenstoffatome gebunden sind, betrachten. Bei der Modellrechnung wird angenommen, dass die Glycerinmoleküle als Ganzes starr um einen Winkel Θ rotieren. Ausgehend von dieser Vorstellung wird der Hamilton-Operator aufgestellt, dessen Eigenwerte numerisch berechnet werden. Über die relative Orientierung der Moleküle gegenüber dem äußeren Magnetfeld wird geeignet gemittelt und außerdem die Tunnelmodellverteilung berücksichtigt. Mit den so erhaltenen Eigenwerten ist es dann möglich, die Magnetfeldabhängigkeit der Echoamplitude zu verschiedenen Wartezeiten zu berechnen.

Abb. 8 zeigt das Ergebnis einer solchen Rechnung im Vergleich zu experimentellen Daten. Trotz der stark vereinfachenden Annahmen stimmen Theorie und Experiment sehr gut qualitativ und quantitativ überein. Der Tunnelwinkel beeinflusst wesentlich die Form der

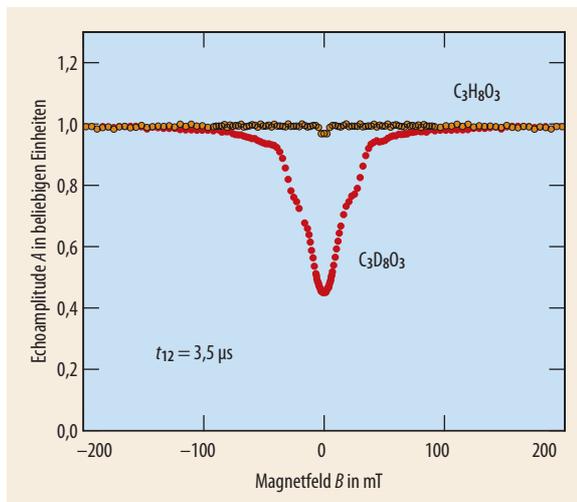


Abb. 6 Die starke Magnetfeldabhängigkeit der relativen Echoamplitude bei vollständig deuteriertem Glycerin $C_3D_8O_3$ im Gegensatz zu normalem Glycerin $C_3H_8O_3$ bestätigt den Einfluss der Kernmomente auf die Tunnelsysteme [12].

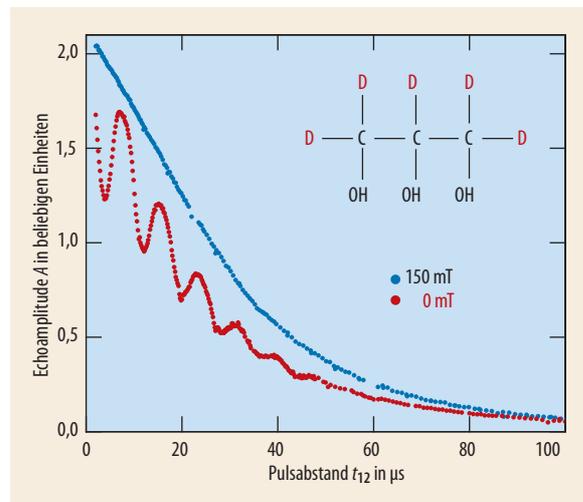


Abb. 7 In teildeuteriertem Glycerin ist der Amplitude von Polarisationsechos als Funktion der Wartezeit im Nullfeld eine Oszillation überlagert, die bei einem Feld von 150 mT verschwindet [14].

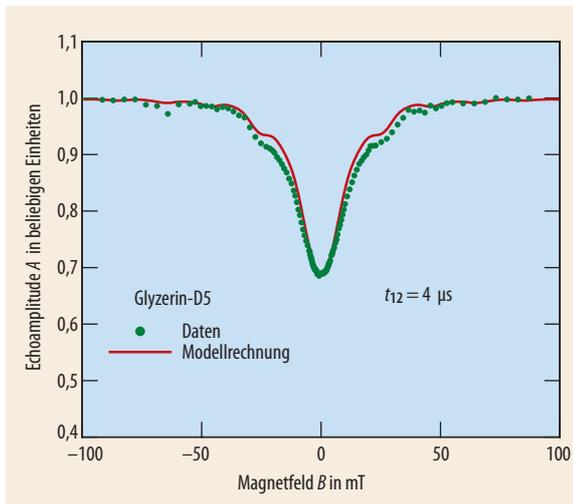


Abb. 8 Das Ergebnis einer Modellrechnung (Linie) stimmt sehr gut mit der gemessenen Amplitude von Polarisationsechos (Punkte), erzeugt in teildeutertem Glyzerin, als Funktion des angelegten Magnetfelds bei einer Wartezeit von 4 μ s überein [14].

Kurve. Bei kleinen Winkeln unter 20 Grad ist dieser Parameter nicht mehr sehr empfindlich auf die Form der Kurven, sondern nur auf die Größe des Gesamteffekts. Dieser wird allerdings gleichzeitig auch durch die Zahl der unabhängig beitragenden Quadrupolmomente pro Tunnelsystem bestimmt. Unter der Voraussetzung, dass jeweils nur ein Molekül beteiligt ist, ergibt sich ein Tunnelwinkel von zirka 15 Grad. Bemerkenswert ist, dass Winkel in dieser Größenordnung auch in NMR-Messungen von thermisch aktivierten Drehsprüngen in der Nähe des Glasübergangs beobachtet wurden [13]. Dies weist auf einen direkten Zusammenhang der Dynamik am Glasübergang mit den Eigenschaften bei tiefsten Temperaturen hin. Natürlich erlaubt diese erste Analyse keine vollständige Klärung der mikroskopischen Eigenschaften der Tunnelsysteme in Glyzerin, aber damit ist ein ermutigender Anfang gemacht. Wichtige zusätzliche Informationen werden sicherlich Modellrechnungen unter Einbeziehung der magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung bringen. Dafür steht ein unabhängiger Parametersatz zur Verfügung, der die Ergebnisse der Quadrupolrechnung komplementär ergänzen kann. Erste Erfolge sind hier bereits erzielt worden [15]. Um mehr über die Verteilung der mikroskopischen Parameter der Tunnelsysteme in Glyzerin zu lernen, ist es darüber hinaus notwendig, auch bei verschiedenen Frequenzen zu messen.

Danksagung

Zu den in diesem Artikel dargestellten experimentellen Arbeiten in Heidelberg haben M. Bartkowiak, M. Bazrafshan, M. Brandt, G. Fickenscher, C. Fischer, S. Ludwig, P. Nagel und K. Reinhold mit großem Einsatz beigetragen. Darüber hinaus wollen wir uns bei U. Haerberlen, S. Hunklinger, A. Reiser, M. v. Schickfus, P. Strehlow und A. Würger für viele stimulierende Dis-

kussionen bedanken. Herrn H. Zimmermann danken wir für manchen Rat und die sorgfältige Präparation der partiell deutertierten Glyzerinproben.

Literatur

[1] S. Hunklinger und C. Enss, Series of Directions in Condensed Matter Physics 17, Insulating and Semiconducting Glasses, hrsg. von P. Boolchand, S. 499, World Scientific (2000)
 [2] R. C. Zeller und R. O. Pohl, Phys. Rev. **B4**, 2029 (1971)
 [3] W. A. Phillips, J. Low Temp. Phys. **7**, 351 (1972)
 [4] P. W. Anderson, B. I. Halperin und C. M. Varma, Philos. Mag. **25**, 1 (1972)
 [5] J. Reinisch und A. Heuer, Phys. Rev. Lett. **95**, 155502 (2005)
 [6] P. Strehlow, C. Enss und S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. **80**, 5361 (1998)
 [7] M. Wohlfahrt, P. Strehlow, C. Enss und S. Hunklinger, Europhys. Lett. **56**, 690 (2001)
 [8] R. Hauelsen und G. Weiss, Physica B **316&317**, 555 (2002)
 [9] S. Ludwig, C. Enss, S. Hunklinger und P. Strehlow, Phys. Rev. Lett. **88**, 075501 (2002)
 [10] S. Ludwig, P. Nagel, S. Hunklinger und C. Enss, J. Low Temp. Phys. **131**, 89 (2003)
 [11] A. Würger, A. Fleischmann und C. Enss, Phys. Rev. Lett. **89**, 237601 (2002)
 [12] P. Nagel, A. Fleischmann, S. Hunklinger und C. Enss, Phys. Rev. Lett. **92**, 245511 (2004)
 [13] W. Schmauss, F. Fujara und H. Sillescu, J. Chem. Phys. **97**, 1378 (1992)
 [14] M. Bartkowiak, M. Bazrafshan, K. Reinhold, G. Fickenscher, A. Fleischmann, C. Enss und H. Zimmermann, zur Veröffentlichung eingereicht
 [15] G. Fickenscher, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2007)

DIE AUTOREN

Andreas Fleischmann studierte Physik in Regensburg und Heidelberg, wo er 2003 am Kirchoff-Institut für Physik promovierte. Seine Diplomarbeit wurde 1998 mit dem Geiger-Preis ausgezeichnet. Anschließend ging er für einen einjährigen Forschungsaufenthalt an die Brown University (USA). Für seine Promotionsarbeit auf dem Gebiet der Tieftemperatur-Teilchendetektoren erhielt er den Ruprechts-Karls-Preis der Uni Heidelberg. Seit 2003 ist er Leiter einer Forschungsgruppe am Kirchoff-Institut für Physik.



Christian Enss studierte Physik und Chemie in Tübingen und Heidelberg, wo er am Institut für Angewandte Physik 1991 promovierte. Als Feodor Lynen-Stipendiat ging er an die Brown University (USA) und habilitierte sich anschließend an der Uni Heidelberg. Es folgten Lehrstuhlvertretungen an den Universitäten von Bayreuth und Konstanz. Als Associate Professor ging er dann erneut an die Brown University und ist seit 2004 Professor am Kirchoff-Institut für Physik der Uni Heidelberg.

