



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG
Institut für Festkörperforschung

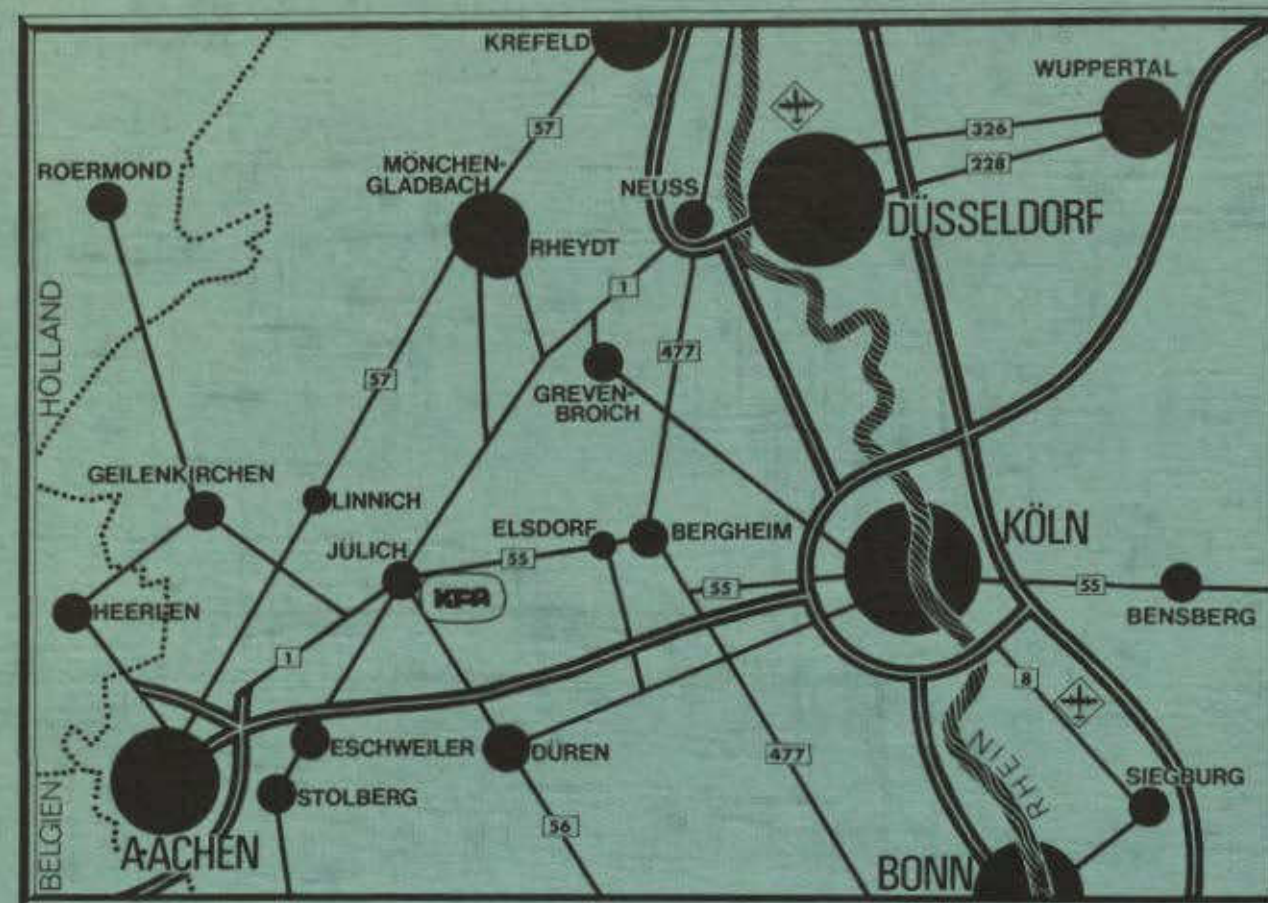
**Experimenteller Nachweis inelastischer
Prozesse in der Helium-Festkörper-Grenzschicht**

von

W. Dietsche

Jül - 1161
Februar 1975

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 1161

Institut für Festkörperforschung Jülich - 1161

Dok.: Superfluidity
 Helium-Solid Interface
 Kapitza Resistance
 Phonon Scattering - Helium Film
 Phonon - Inelastic Scattering

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
 Jülich, Bundesrepublik Deutschland

Experimenteller Nachweis inelastischer Prozesse in der Helium-Festkörper-Grenzschicht

von

W. Dietsche

D 90 (Diss. Uni. Karlsruhe)

Experimental Proof of Inelastic Processes in the Helium-Solid-Interface

Abstract:

Monochromatic and tunable phonons (up to 870 GHz) were scattered from surfaces covered with helium films of various thicknesses. A strong phonon loss due to less than three atomic layers was observed which was independent of frequency. A frequency analysis of the scattered phonons showed that there are nonlinear processes in the surface layer. The results suggest a new approach to the understanding of the Kapitza-resistance.

Zusammenfassung:

Monochromatische und abstimmbare Phononen (bis 870 GHz) wurden an Festkörperoberflächen gestreut, die mit verschiedenen dicken Heliumfilmen bedeckt waren. Ein starker Verlust von Phononen unabhängig von der Frequenz wurde schon bei dünnen Filmen (< 3 Atomlagen) und niedrigen Heliumdrücken beobachtet. Eine Frequenzanalyse der gestreuten Phononen zeigt, daß in der Grenzschicht nichtlineare Prozesse stattfinden. Das weist in eine neue Richtung zum Verständnis des Problems des Kapitza-Widerstands.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
I. Kapitzawiderstand	1
II. Erzeugung und Nachweis monochromatischer Phononen	3
II.1 Sender	3
II.2 Detektor mit Diskriminatorschwelle	4
II.3 Detektor ohne Diskriminatorschwelle	5
III. Messungen an Festkörper-Helium-Grenzflächen	6
III.1 Experimenteller Aufbau	6
III.2 Veränderung der Echos durch Helium	7
III.3 Abhängigkeit von der Sendefrequenz	8
III.4 Nachweis der Abkonversion von Phononen	9
III.5 Nachweis der Aufkonversion von Phononen	11
IV. Zusammenfassung	12

I. Kapitza-Widerstand

P.L. Kapitza /1/ entdeckte 1941 bei der Messung des Wärmeübergangs von Kupfer in suprafluides Helium einen Temperatursprung in unmittelbarer Umgebung der Grenzschicht. In der Tat kann man immer eine Diskontinuität an den Grenzschichten verschiedener Körper bzw. Medien beobachten, aber nur beim Helium ist dieser Kapitza-Widerstand groß genug, so daß er relativ leicht gemessen werden kann /2/. Dabei zeigt es sich, daß dieser Effekt in gleicher Weise bei supraflüssigem und normalem ^4He und bei ^3He auftritt.

Theoretisch versuchte man dieses Phänomen durch die akustische Fehlanpassung zu beschreiben /3/. Dabei wird angenommen, daß der Wärmetransport durch die Grenzschicht über die direkte Transmission von Phononen, das heißt von akustischen Wellen erfolgt. Dann ergibt sich ein Wärmewiderstand durch Reflexion wegen den unterschiedlichen Impedanzen $Z = \rho \cdot c$ der beiden Medien. Dabei ist ρ die Dichte und c die Schallgeschwindigkeit.

Der Energie-Transmissionskoeffizient bei senkrechtem Einfall beträgt dann:

$$\alpha = \frac{4 Z_1 Z_2}{(Z_1 + Z_2)^2} \quad (1)$$

Einfallswinkel und Schallgeschwindigkeit sind durch das Snellius'sche Gesetz verbunden:

$$\frac{\sin \theta_1}{c_1} = \frac{\sin \theta_2}{c_2} \quad (2)$$

Khalatnikov /3/ berechnete den Transmissionskoeffizienten eines Festkörpers zu flüssigem Helium und, gemittelt über alle Winkel, ergab sich näherungsweise:

$$\alpha = \frac{\rho_{\text{He}} \cdot c_{\text{He}}}{\rho_{\text{FK}} \cdot c_t} \quad (3)$$

ρ_{He} und c_{He} sind Dichte und Schallgeschwindigkeit im Helium, ρ_{FK} die Dichte des Festkörpers und c_t die Schallgeschwindigkeit der

transversalen Mode im Festkörper. Für typische Materialien ist α von der Größenordnung 10^{-3} .

Bei Temperaturen über 1 K, die Phononenfrequenzen oberhalb 100 GHz /4/ entsprechen, findet man jedoch einen Transmissionskoeffizienten, der um einen Faktor von 10 bis 100 größer ist als erwartet. Unterhalb von 100 GHz nimmt α ab und nähert sich dem erwarteten an /5/.

Auch eine Veränderung der Parameter in (3), beispielsweise durch Wahl des Festkörpers (ρ_{FK} , c_t) oder durch Kompression des flüssigen Heliums (ρ_{He} , c_{He}), wird durch die Theorie nicht richtig beschrieben /2/. Versuche die Theorie zu modifizieren, zum Beispiel durch Berücksichtigung einer komprimierten Grenzschicht, die die akustische Anpassung verbessert /7/, blieben ebenfalls wenig erfolgreich.

Das bedeutet, das Problem des Kapitzwiderstands lautet nicht, warum gibt es einen Temperatursprung, sondern warum ist er nicht viel größer als beobachtet, zumindest für Temperaturen oberhalb 1 K (≈ 100 GHz).

Die in der Vergangenheit allein üblichen Messungen der stationären Wärmeleitfähigkeit haben den Nachteil, daß man (a) nicht zwischen verschiedenen Phononmoden unterscheiden kann und (b) nicht mit monochromatischen Phononen sondern mit einer Planckverteilung einstrahlt.

Modentrennung kann man durch Wärmepulse erreichen. Dabei heizt man mit einem kurzen Puls und die dabei erzeugten Phononen breiten sich mit den den jeweiligen Moden entsprechenden Geschwindigkeiten aus. Man hat aber immer noch eine Planckverteilung.

Guo und Maris /10/ benutzten solche Wärmepulse, um den Einfluß von Helium auf Oberflächenechos zu untersuchen. Es zeigte sich, daß bei den meisten Materialien der Energieverlust für transversale Phononen größer ist als für longitudinale.

Die Eigenschaft (b), aber ohne Modentrennung, war bei Anderson und Sabisky /8/ und Trumpp, Lassmann und Eisenmenger /9/ erfüllt. Erstere benutzten die Spin-Aufspaltung von Tm^{2+} in einem Magnetfeld zur frequenzselektiven Detektion. Die zweiten bestimmten den Verlust von Phononen aus einer supraleitenden Tunnel-diode /12/ ins. umgebende Helium. In beiden Fällen ergab sich ein starker Verlust hochfrequenter Phononen durch Helium.

Bei den in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Experimenten sind dagegen zum ersten Mal beide Bedingungen gleichzeitig erfüllt. Dabei ist es möglich, neben Messungen der Energietransmission auch eine Frequenzanalyse der von der Grenzschicht in den Festkörper zurückgestrahlten Phononen qualitativ durchzuführen. Dabei kann man prüfen, ob an der Grenzschicht wirklich nur elastische Transmission, das heißt ohne Frequenzveränderung, stattfindet, wie bisher allgemein angenommen wurde /2/, oder ob inelastische Prozesse eine Rolle spielen.

II. Erzeugung und Nachweis monochromatischer Phononen

II.1 Sender

Eisenmenger und Dayem /12/ zeigten, daß man eine supraleitende Tunnel-diode als Phononenquelle verwenden kann. Kinder /13/ verbesserte das Verfahren und konnte monochromatische und abstimmbare Phononen erzeugen. Diese Methode ist in der vorliegenden Arbeit verwendet worden und soll hier kurz beschrieben werden.

Bild 1.a zeigt die Strom-Spannungscharakteristik der Generator-Diode. Diese besteht bekanntlich aus zwei durch eine Oxidschicht getrennten supraleitenden Metallfilmen. Legt man eine Spannung U_0 , die größer als $2\Delta_G/e$ ist, an diese Elektroden, dann erhalten die tunnelnden Elektronen neben der Anregungsenergie Δ_G auch kinetische Energie, die maximal $e \cdot U_0 - 2\Delta_G$ beträgt. Bei der Abbremsung und Rekombination der Elektronen werden Phononen abgestrahlt, deren Frequenzspektrum in Bild 1.b gezeigt ist. Es besteht aus der Bremsstrahlung und den sogenannten $2\Delta_G$ -Phononen, die durch Rekombination entstehen und die

Frequenz $2\Delta_G/h$ haben.

Die scharfe Kante des Bremsstrahlungsspektrums ist eine Folge der Singularität in der BCS-Zustandsdichte. Bei normalen Metallen tritt statt der Kante nur ein Knick auf.

Ändert man den Tunnelstrom durch einen Puls um δi , dann verschiebt sich vom Bremsstrahlungsspektrum nur die Kante bei $e \cdot U_0 - 2\Delta_G$. Sorgt man dafür, daß nur Änderungen der Phononenintensität nachgewiesen werden (durch Kondensator-Kopplung des Detektors), dann kann man die Phononen an der Kante abtrennen und erhält so eine monochromatische Linie, deren Frequenz von U_0 abhängt. Außerdem ändert sich aber auch die Intensität der $2\Delta_G$ -Phononen, weil die Zahl der tunnelnden Elektronen erhöht wird (Bild 1.c), so daß man zusätzlich noch eine Linie bei der Frequenz $2\Delta_G$ hat, die nicht von U_0 abhängt. Durch die pulsförmige Modulation kann gleichzeitig wieder die Trennung der Moden durch den Laufzeitunterschied erfolgen.

Die maximale Sendefrequenz der Bremsstrahlungsphononen ist durch $2\Delta_G/h$ begrenzt, weil dann Wiederabsorption durch Aufbrechen von Cooperpaaren eintritt. Zinn hat eine Energielücke von 1.2 meV entsprechend 290 GHz /13/. Im Verlauf dieser Arbeit konnten geeignete Dioden aus einer $Pb_{0.7}Bi_{0.3}$ -Legierung entwickelt werden, die den Frequenzbereich bis auf 870 GHz (3.6 meV) ausdehnten.

II.2 Detektor mit Diskriminationsschwelle

Zum Nachweis der Phononen kann im Prinzip jede temperaturabhängige Anordnung verwendet werden. Es hat sich aber gezeigt, daß Tunnel-dioden die größte Empfindlichkeit haben /12,13/. Sie werden bei Spannungen unterhalb der Energielücke betrieben, wo der Tunnelstrom durch thermisch angeregte Einzelelektronen (Quasiteilchen) bestimmt wird. Einfallende Phononen brechen zusätzliche Paare auf und erhöhen die Zahl der Quasiteilchen und damit den Tunnelstrom. Bild 2 (obere Spannungsskala) zeigt eine typische Kennlinie mit dem Arbeitspunkt U_1 . Um eine hohe Empfindlichkeit zu

erreichen, muß man niederohmige Dioden herstellen (große Tunnelwahrscheinlichkeit). Daher ist der kritische Strom i_c der supraleitenden Filme nur wenig größer als der thermische Strom.

Die besondere Eigenschaft dieser Dioden-Detektoren ist eine Diskriminatorschwelle, die durch die Energielücke $2\Delta_D$ des Detektormaterials bedingt ist: Phononen mit Frequenzen kleiner als $2\Delta_D/h$ werden nicht nachgewiesen, weil diese keine Cooper-Paare aufbrechen können. Diese Schwelle liegt für die meistens verwendeten Detektoren aus Al bei etwa 120 GHz (0.5 meV).

Bild 1.d zeigt ein typisches gemessenes Spektrum mit einer $\text{Pb}_{0.7}\text{Bi}_{0.3}$ -Diode als Sender. Außer den Bremsstrahlungsphononen wird immer auch ein konstanter Untergrund von $2\Delta_G$ -Phononen nachgewiesen. Dieser läßt sich aus dem Signal unterhalb von $2\Delta_D/h$ bestimmen, wo die Bremsstrahlungsphononen nicht nachgewiesen werden. Entsprechend zeigt die Stufe bei $2\Delta_D/h$ den Beitrag der Bremsstrahlungsphononen bei dieser Frequenz. Ab $4\Delta_D/h$ (Knick) wächst die Empfindlichkeit der Diode, da ab dieser Frequenz durch ein Phonon über mehrere Schritte mehrere Cooper-Paare aufgebrochen werden können.

II.3 Detektor ohne Diskriminatorschwelle

Erhöht man den Strom in der Detektordiode über den kritischen Strom i_c hinaus, dann wirkt die Diode wie ein "weak link" (Bild 2, untere Spannungsskala). Dabei ist einer der Filme an einer schwachen Stelle normalleitend geworden und befindet sich in einem Zwischenzustand /14/, in dem der Strom im Arbeitspunkt U_2 temperaturabhängig ist. Der Detektor wirkt jetzt als Bolometer, da er die Temperaturerhöhung und damit die gesamte einfallende Energie unabhängig von den Phononenfrequenzen nachweist. Die Empfindlichkeit ist aber etwa 20-mal schlechter als bei der Verwendung als Diode.

Da hier die Diskriminatorschwelle entfällt, lassen sich durch Vergleich des mit Bolometer und Diode gemessenen Signals Rückschlüsse auf das Frequenzspektrum der nachgewiesenen Phononen ziehen.

Die wesentlichen Eigenschaften von Phononenexperimenten dieser Art lassen sich zusammenfassen:

1. Das ausgestrahlte Pulsspektrum besteht aus einem Anteil der festen Frequenz $f = 2\Delta_G/h$ (Rekombinationsphononen) und einem abstimmbaren Anteil mit $f = (e \cdot U_0 - 2\Delta_G)/h$ (Bremsstrahlungs-Phononen).
2. Durch Pulsmodulation lassen sich durch die Laufzeit die verschiedenen Moden trennen.
3. Der Detektor weist als Diode nur Phononen mit Frequenzen größer als $2\Delta_D/h$ nach, als Bolometer dagegen alle Phononen.

III. Messungen an Festkörper-Helium-Grenzflächen^x

III.1 Experimenteller Aufbau

Bild 3 zeigt ein stark vereinfachtes Blockdiagramm des Versuchsaufbaus. An die Generatordiode G werden gleichzeitig eine Gleichspannung und eine Pulsspannung angelegt. Die dabei erzeugten Phononen durchlaufen den Kristall, werden von der Rückwand reflektiert und im Detektor nachgewiesen. Die Detektordiode wird auf einen geeigneten Arbeitspunkt eingestellt und die durch die Phononen erzeugten Pulse werden über den Kondensator ausgekoppelt und verstärkt. Der "Boxcar" wirkt wie ein Schalter mit nachfolgendem RC-Glied. Dieser Schalter kann zu einer bestimmten Zeit nach dem ursprünglichen Puls kurzzeitig geschlossen werden. Damit wird das Phononensignal in Abhängigkeit von der Laufzeit abgetastet und auf Schreiber 2 registriert.

Für die Messung der Frequenzabhängigkeit wird die Abtastzeit fest auf den gewünschten Phononenpuls eingestellt und dann die Gleichspannung der Generatordiode variiert. Auf Schreiber 2 wird die

^x Ein Teil der Messungen ist bereits veröffentlicht in "Strong Phonon Conversion at the Helium-Solid Interface", H. Kinder, W. Dietsche, Phys.Rev.Lett. 33, 578 (1974).

Intensität als Funktion der Frequenz (Spannung) registriert.

An der Rückwand des Kristalls ist eine Vakuumkammer angebracht. In diese Kammer kann man Helium einlassen und dabei die Veränderung der Echos beobachten. Der Heliumdruck wird mit einem Kapazitätsmanometer gemessen. Die Druckwerte wurden um den Effekt der Thermomolekularströmung korrigiert /16/.

Die Untersuchung der Rückstreuung hat gegenüber der Messung der durch die Festkörper-Helium-Grenzschicht transmittierten Phononen den Vorteil, daß Vorgänge beim Aufwachsen eines Helium-Films untersucht werden können und daß Phononenstreuung in der Flüssigkeit /15/ die Effekte an der Grenzschicht nicht überdecken.

Die Probe ist in ein Heliumbad eingetaucht, das durch Abpumpen mit einer Booster-Pumpe auf der Temperatur 1,0 K gehalten wird. Das Bad sorgt auch für die schnelle Ableitung der durch die Phononenerzeugung entstehenden Wärmeleistung von etwa 1 mW.

III.2 Veränderung der Echos durch Helium

Messungen wurden an mechanisch polierten Silizium-, Germanium- und Saphiroberflächen sowie an chemisch polierten Siliziumoberflächen durchgeführt. Zunächst wurden die Echos als Funktion der Laufzeit gemessen und Veränderungen beim Aufwachsen des Heliumfilms untersucht. Die Frequenz der eingestrahlten Phononen wird dabei noch festgehalten. Bild 4 zeigt Ergebnisse an einem Ge-Kristall in Scheibenform mit 20 mm Durchmesser und 4 mm Dicke in $[110]$ -Orientierung. Als Sender diente eine Sn-Diode, als Detektor eine Al-Diode mit $2\Delta_D/h = 125$ GHz. Die differentielle Rate der rückgestreuten Phononen ist als Funktion der Zeit aufgetragen. Bei $t = 0$ wurde ein 100 nsec langer Phononenpuls erzeugt mit der Frequenz 290 GHz ($U_0 = 4\Delta_G/e$). Nach einem kurzen elektromagnetischen Übersprechsignal werden zuerst aus dem Innern des Kristalls gestreute Phononen nachgewiesen. Diese klingen mit t^{-2} ab (gestrichelte Linie), da die Zone, aus der die Phononen zurückkommen, d.h. der Phononenpuls, mit Schallgeschwindigkeit in den Kristall hineinläuft.

Nach den Laufzeiten der verschiedenen Moden werden dann Echos entsprechend longitudinalen (L), schnellen transversalen (FT) und langsamen transversalen (ST) Phononen nachgewiesen. Die beiden zusätzlichen Pulse sind wahrscheinlich durch Modenkonversion an der Oberfläche entstanden. Zum Beispiel kann ein L-Puls teilweise als FT-Puls zurückgestreut werden.

Beim Einlassen von Helium verkleinern sich alle Rückwandechos. Dabei ist der Effekt auf den langsamen transversalen Puls am stärksten. Dieser verringert sich auf 32 % der ursprünglichen Intensität. Der FT-Puls sinkt auf 45 % ab und der L-Puls auf 70 %.

Bild 5 zeigt ähnliche Messungen an Silizium in $[100]$ -Orientierung mit mechanisch polierter Oberfläche bei einer Sendefrequenz von 870 GHz. Der L-Puls ist infolge von Phononenfokussierung /17/ fast nicht nachweisbar, die Modenkonversion (MC) ist noch zu erkennen. Das Helium verringert hier den Transversalpuls auf 23 %. Dabei wurde ebenfalls ein Diodendetektor verwendet ($2\Delta_D/h = 120$ GHz).

Zusammenfassend kann man über diese Messungen sowie weitere an anderen Kristallen sagen: Schon bei einem Heliumgasdruck von 10^{-3} mTorr bis 10^{-4} mTorr bei Silizium und Saphir und von etwa $5 \cdot 10^{-2}$ mTorr bei Germanium setzt eine deutliche Abnahme der Echos ein. Dabei ist der Effekt ungleich stärker für die transversalen Pulse als für die longitudinalen. Bereits bei einem Druck von etwa 10 mTorr (etwa 10 % des gesättigten Dampfdrucks) ist die Intensität gleich der bei durchgehender Flüssigkeit. Ein Einfluß der Oberflächenbearbeitung ist nicht festzustellen.

III.3 Abhängigkeit von der Sendefrequenz

Mit $\text{Pb}_{0.7}\text{Bi}_{0.3}$ -Sendern und Al-Dioden als Detektoren kann die Frequenzabhängigkeit zwischen etwa 120 GHz und 870 GHz gemessen werden. Ein Beispiel zeigt Bild 6 mit der Frequenzabhängigkeit des in Bild 5 gezeigten Transversalpulses für verschiedene ^4He -Drücke. Die Strukturen der Kurve 1 (ohne Helium) folgen einzig

aus den Eigenschaften von Sender und Empfänger (siehe II.2), da im Innern des verwendeten Kristalls fast keine Streuung auftrat.

Man erkennt, daß das Einlassen von Helium die Intensität bei allen Frequenzen im gleichen Verhältnis verringert. Das heißt, daß keine Frequenzabhängigkeit zwischen 120 GHz und 870 GHz auftritt.

Genauere Messungen zeigen einen gewissen Effekt in der Nähe von $2\Delta_D/h$. Dieser wird im Abschnitt III.5 diskutiert.

III.4 Nachweis der Abkonversion^x von Phononen

In Abschnitt II.3 wurde gezeigt, wie man qualitativ eine Frequenzanalyse durchführen kann, indem man den Detektor als Bolometer oder Diode betreibt. Vergleicht man die Messungen in beiden Betriebsarten, dann kann man feststellen, welcher Anteil der rückgestreuten Phononen Frequenzen unterhalb der Detektorschwelle $2\Delta_D/h$ haben.

Bild 7 zeigt die Intensität der rückgestreuten Phononen als Funktion der Zeit für die beiden Detektorzustände bei verschiedenen Heliumbedeckungen. Es ist nur der transversale Puls gezeigt, da dieser den größten Teil der Energie enthält. Der Unterschied der Pulsformen ohne ^4He (beim Bolometer ist der Puls breiter) ist eine Folge des unterschiedlichen dynamischen Widerstands von Diode und Bolometer, der Unterschiede der elektronischen Zeitkonstanten zur Folge hat.

Zwei Gruppen von Experimenten wurden durchgeführt. Einmal wurde bei jeder Heliumbedeckung zwischen Diode und Bolometer umgeschaltet, zum anderen wurde der Detektorzustand beibehalten, während mehr und mehr Helium eingelassen wurde. Innerhalb der

^x Vom englischen "down conversion", gemeint ist Verkleinerung der eingestrahlten Frequenz.

Fehlergrenzen wurde kein Unterschied zwischen den beiden Methoden festgestellt.

Da sich mit Heliumbedeckung die Pulsformen leicht verändern, muß über den ganzen Puls integriert werden, um die gesamte reflektierte Phononenenergie zu erhalten. Gleichzeitig verkleinert sich durch die Integration der statistische Fehler. Dazu wurden die einzelnen Pulse aus Kopien ausgeschnitten und gewogen, nachdem die Homogenität des Papiers geprüft war. Die so bestimmten Flächen wurden auf die der jeweiligen Kurven bei Vakuum normiert. Damit wurde die unterschiedliche Empfindlichkeit in den beiden Detektorzuständen berücksichtigt (siehe II.3). Im weiteren sollen also - bei gegebenem Druck - die relativen Änderungen, gemessen in den beiden Detektorzuständen, verglichen werden.

In Bild 8 sind die normierten Flächen über dem Druck aufgetragen. Außerdem ist die Dicke des ungesättigten Heliumfilms angegeben. Da die Heliumatome durch die van-der-Waals-Anziehung an die Wand gebunden werden, kann man die Dicke d berechnen /25/. Es ergibt sich $d = d_0 \cdot [\alpha / T \cdot \ln(P_0/P)]^{1/3}$, dabei ist d_0 die Dicke einer Atomlage bei der Dichte von flüssigem ^4He , T die Temperatur, P_0 der gesättigte Dampfdruck, P der Gasdruck und α eine Materialkonstante, die 36 K für Silizium ist /18/.

Aus Bild 8 folgt, daß die Zahl der Phononen mit einer Frequenz größer als $2\Delta_D/h$ bereits bei einem Druck von 10^{-4} mTorr abnimmt, während die gesamte Phononenenergie, wie sie vom Bolometer nachgewiesen wird, bis zu $5 \cdot 10^{-2}$ mTorr keine Änderungen zeigt. Mit weiter zunehmendem Druck zeigen Bolometer- und Diodensignal eine ähnliche relative Abnahme, jedoch liegt die relative Zahl hochfrequenter Phononen stets unter der relativen gesamten Phononenenergie.

Eine genauere Untersuchung der Pulsformen (Bild 7) ergibt, daß die niederfrequent rückgestreuten Phononen den Detektor zu späteren Zeiten erreichen. Beim Bolometer schneidet die Kurve 2 zum Beispiel die Vakuumkurve 1. Wären diese verzögerten Phononen noch hochfrequent ($f > 2\Delta_D/h$), müßten sie auch beim Dioden-

detektor verzögert nachgewiesen werden. Das ist aber nicht der Fall. Stattdessen nimmt bei der Diode das Signal gleichmäßig zu allen Zeiten ab. Offensichtlich werden in dem Druckbereich 10^{-4} mTorr bis $5 \cdot 10^{-2}$ mTorr die Phononen bereits abkonvertiert, d.h. inelastisch gestreut, während die Energie erst bei höheren Drücken ans Gas abgegeben wird. In Bild 8 ist das erste Auftreten von Streuung beim Bolometersignal durch einen senkrechten Pfeil gekennzeichnet.

Die Zeitverzögerung kann zwei Ursachen haben. Erstens der Ausfallswinkel der von der Rückwand (ohne Helium) gestreuten Phononen ist nicht vom Einfallswinkel unabhängig. Dann könnten die Phononen durch den Heliumfilm unter schiefen Winkeln gestreut werden, was einen größeren Beitrag nach längeren Laufzeiten ergibt. Die zweite Möglichkeit wäre, daß ein Teil der angestrahlten Phononenenergie den Film erst zu späteren Zeiten wieder verläßt. Welcher der beiden Mechanismen vorherrscht, kann im Augenblick experimentell nicht entschieden werden.

Insgesamt zeigt dieses Experiment, daß die eingestrahlten Phononen in einer Oberflächenschicht ab etwa 1,4 Atomlagen zumindest teilweise ihre Frequenz ändern und abkonvertiert werden. Erst bei höheren Gasdrücken (über $5 \cdot 10^{-2}$ mTorr) kann die Energie den Film zum Gas hin verlassen.

III.5 Nachweis der Aufkonversion von Phononen

Neben den abkonvertierten Phononen konnten auch aufkonvertierte nachgewiesen werden, das heißt, die in den Film eingestrahlten Phononen verlassen diesen mit einer höheren Frequenz. Diese können mit der verwendeten Technik nachgewiesen werden, wenn ihre ursprüngliche Frequenz kleiner als $2\Delta_D/h$ und ihre neue größer als $2\Delta_D/h$ ist.

Bild 9 zeigt das Frequenzspektrum eines langsamen transversalen Pulses, gemessen an einem Ge-Kristall mit einer Sn-Diode als Sender für verschiedene Heliumdrücke. Zur Interpretation dieser Spektren ist die richtige Berücksichtigung des $2\Delta_G$ -Untergrunds

wichtig. Die $2\Delta_G$ -Phononen haben die gleiche Frequenz wie die Bremsstrahlungsphononen bei 290 GHz. Daher muß der Untergrund im gleichen Verhältnis abnehmen wie das Signal bei 290 GHz. Man kann dieses Verhältnis also benutzen, um den erwarteten $2\Delta_G$ -Untergrund zu berechnen (gestrichelte Linien in Bild 8).

Es ist deutlich zu sehen, daß die Meßkurven über den erwarteten liegen. Das kann man nur verstehen, wenn die im Sender erzeugten Bremsstrahlungsphononen nachweisbar werden, obwohl sie mit einer Frequenz kleiner $2\Delta_D/h$ ausgesendet wurden. Das bedeutet, daß die Phononen in der Grenzschicht ihre Frequenz erhöhen (aufkonvertieren) können.

Für Sendefrequenzen, die oberhalb von $2\Delta_D/h$ liegen, machen die aufkonvertierten Phononen keinen Unterschied, da sie in jedem Fall nachgewiesen werden. Dagegen fehlen die abkonvertierten, das heißt, diejenigen, die den Film mit Frequenzen kleiner als $2\Delta_D/h$ verlassen. Bei dünnen Filmen (Kurve 2) ist die Frequenzverschiebung nur klein, da bei Sendefrequenzen von 290 GHz das Vakuumsignal fast wieder erreicht wird, das heißt, fast alle abkonvertierten haben noch Frequenzen größer als $2\Delta_D/h$.

IV. Zusammenfassung

Ein Ergebnis dieser Messung ist, daß die Transmission von Phononenenergie zum Helium viel größer ist als von der Fehlanpassungstheorie vorhergesagt. Nämlich bis zu 70 % statt weniger als 1 %. Das entspricht den Messungen des zu niedrigen Kapitza-Widerstandes. Bestätigt wurde auch das schon bekannte Ergebnis, daß der Übergang von Wärmeenergie ins Heliumgas bei genügend hohen Drücken vergleichbar mit dem Übergang in die durchgehende Flüssigkeit ist /10, 11, 19/. Wie bei den Wärmepulsmessungen von Guo und Maris /10/ und von Long et al. /11/ war auch bei den vorliegenden Messungen die Kopplung der transversalen Phononen an Helium stärker als die der longitudinalen.

Ein zweites und neues Ergebnis ist die Messung der Abhängigkeit der Rückstreuung von der eingestrahlten Frequenz. In der vorliegenden Arbeit wurde keine Frequenzabhängigkeit zwischen 120 GHz und 870 GHz gefunden. Das scheint Wärmepulsmessungen der Energietransmission von Swanenberg und Wolter /21/ zu widersprechen, die ein schwaches Maximum bei Heizertemperaturen von 4 K bis 6 K (300 GHz bis 500 GHz /4/) fanden. Diese Autoren benutzten aber Leistungen von etwa 1 W/mm^2 während hier nur mit 1 mW/mm^2 eingestrahlt wurde. Möglicherweise wird das System bei den hohen Wärmepuls-Leistungen bereits zu stark gestört.

Das dritte und für den Kapitza-Widerstand wesentliche neue Ergebnis ist jedoch der Nachweis der Frequenzkonversion an der Grenzschicht zum Helium. Das heißt, es finden in dieser Schicht nichtlineare Prozesse statt. Aus den in Bild 8 gezeigten Messungen folgt, daß bei Silizium schon bei einer Filmdicke von 1.4 Atomlagen die spektrale Verteilung der eingestrahlten Phononen so geändert wird, daß ein Teil eine Frequenz kleiner $2\Delta_0/h$ erhält. Zusätzlich wurde nachgewiesen, daß Phononen ihre Frequenz auch erhöhen können. Beide Effekte kann man verstehen, wenn der Film nichtlinear wirkt und die einfallenden Phononen mit thermischen oder mit Anregungen wechselwirken können.

Bei höheren Gasdrücken ab 10^{-2} mTorr bis 10^{-1} mTorr wird Energie an das Gas abgegeben und der Unterschied zwischen Bolometer- und Diodenkurve verkleinert sich (Bild 8). Die Energieabgabe erfolgt nicht über direkte Desorption eines Atoms, da dafür eine Minimalenergie /22/ nötig wäre, die der Verdampfungswärme (150 GHz) plus einem Anteil der van-der-Waals-Anziehung zu Wand $kT \cdot \ln(P_0/P)$ entspricht. Man hätte in der Frequenzabhängigkeit einen Einsatz bei dieser Energie beobachten müssen.

Ob bei durchgehender Flüssigkeit auch Frequenzkonversion stattfindet, läßt sich aus dem Unterschied Bolometer-Diode nicht sicher entscheiden, da dieser zu klein ist. Bei direkter Transmission müßte aber das Frequenzspektrum Strukturen infolge der Dispersionskurve /20/ des superfluiden Heliums zeigen. Haug /23/ zeigte, daß dann die Transmission bei der Frequenz, die dem

Rotonminimum (R) und die dem Maximum (M) entspricht, eine Singularität haben müßte. Wie man aus Bild 9 erkennt, ist das nicht der Fall. Außerdem zeigt Bild 6, daß selbst Frequenzen, die vielfach höher als die Dispersionskurve sind, noch völlig den gleichen Effekt zeigen. Daraus läßt sich schließen, daß auch die Energieabgabe an die Flüssigkeit über die gleichen inelastischen Prozesse abläuft. Sie ist aber so effektiv, daß nur noch wenige abkonvertierte Phononen in den Festkörper zurückgestrahlt werden.

Für den Kapitza-Widerstand ist eine nichtlinear wirkende Zwischenschicht wichtig, weil der Wärmetransport nicht mehr durch die akustische Fehlanpassung begrenzt ist. Stattdessen kann es einen anderen effektiveren Mechanismus zum Energieaustausch geben. Über die Natur der inelastischen Vorgänge und ihre Ankopplung an die Phononen im Festkörper kann man im Augenblick nur spekulieren. Wahrscheinlich sind sie eine Folge der van-der-Waals-Bindung der He-Atome an die Wand, die viel stärker ist als die der Heliumatome untereinander. Sie wären dann keine spezifische Eigenschaft von ^4He . Auch der anomale Kapitza-Widerstand ist ja nicht auf ^4He beschränkt, sondern tritt auch bei ^3He und festem Helium auf [24]. In festem Helium ist die Bindungsenergie immer noch kleiner als die Anziehung zur Wand.

Neueste Messungen mit der vorliegenden Technik an der Grenzfläche von festem Neon und Silizium deuten an, daß entgegen anderen Vorstellungen [10] auch hier die Rückstreuung der Phononen nicht durch die Fehlanpassungstheorie beschrieben werden kann. Möglicherweise sind Nichtlinearitäten eine allgemeine Eigenschaft von Grenzflächen zu leichten Edelgasen. Dagegen zeigen sich keine Nichtlinearitäten an anderen Grenzschichten, wie etwa zwischen den Metallfilmen der Dioden und dem Substratkristall.

In zukünftigen Experimenten soll einmal die van-der-Waals-Anziehung durch geeignete Wahl der Substratkristalle variiert werden und zweitens sollen verschiedene Edelgase und Wasserstoff aufkondensiert werden. Außerdem wären Versuche bei sehr tiefen Temperaturen interessant, da dann noch dickere Helium-Filme

ohne angrenzendes Transportgas hergestellt werden können. Dadurch ließe sich die Rolle des Gases besser untersuchen. Schon jetzt hat sich aber gezeigt, daß der Kapitzawiderstand ein komplizierteres Problem ist als bisher angenommen wurde und daß neue Vorstellungen über anharmonische Wechselwirkungen der Grenzschicht entwickelt werden müssen, um dieses bereits 30 Jahre alte Problem zu verstehen.

Herrn Dr. H. Kinder danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für die wertvolle Unterstützung bei der Durchführung. Herrn Prof. W. Buckel möchte ich danken, daß er die Arbeit stets mit Interesse verfolgt hat und meinen Aufenthalt in Jülich überhaupt erst ermöglicht hat. Diskussionen mit den Herren Prof. G. Falk, Dr. R. Windheim und Dr. H. Wühl waren mir eine große Hilfe. Herrn Bergs danke ich für Unterstützung bei der Durchführung der Experimente. Bei Frau Klein möchte ich mich für das Schreiben des Manuskripts bedanken.

Referenzen

- /1/ P.L. Kapitza, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 11, 1 (1941)
- /2/ G.L. Pollack, Rev. Mod. Phys. 41, 48 (1969);
N.S. Snyder, Cryogenics 10, 89 (1970);
L.J. Challis, J. Phys. C 7, 481 (1974)
- /3/ I.M. Khalatnikov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 22, 687 (1952)
- /4/ Wenn man die Temperaturverteilung eines schwarzen Körpers annimmt, hat die Verteilung ein Maximum bei 80 T GHz (T in Kelvin).
- /5/ A.C. Anderson, J.I. Connolly, J.C. Wheatley, Phys. Rev. 135, A 910 (1964)
- /6/ R.J. v. Gutfeld, A.H. Nethercot, Phys. Rev. Lett. 12, 64 (1964)
- /7/ L.J. Challis, K. Dransfeld, J. Wilks, Proc. R. Soc. A 260, 31 (1961)
- /8/ C.H. Anderson, E.S. Sabisky in Physical Acoustics, herausgegeben von W.P. Mason und R.N. Thurston (Academic, New York, 1971) Band 8, Seite 1
- /9/ H.J. Trumpp, K. Lassmann, W. Eisenmenger, Phys. Lett. 41A, 431 (1972)
- /10/ C.-J. Guo, H.J. Maris, Phys. Rev. Lett. 29, 855 (1972);
C.-J. Guo, H.J. Maris, Phys. Rev. A 10, 960 (1974), siehe auch /11/
- /11/ A.R. Long, R.A. Sherlock, A.F.G. Wyatt, J. Low Temp. Phys. 15, 523 (1974)
- /12/ W. Eisenmenger, A.H. Dayem, Phys. Rev. Lett. 18, 125 (1967)
- /13/ H. Kinder, Phys. Rev. Lett. 28, 1564 (1972);
H. Kinder, Z. Phys. 262, 295 (1973)
- /14/ W. Buckel, R. Hilsch, Z. Phys. 149, 1 (1957)
- /15/ J. Jäckle, K.W. Kehr, Phys. Rev. Lett. 27, 654 (1971)
- /16/ T.R. Roberts, S.G. Sydorjak, Phys. Rev. 102, 304 (1956)
- /17/ B. Taylor, H.J. Maris, C. Elbaum, Phys. Rev. Lett. 23, 416 (1969)
- /18/ E.S. Sabisky, C.H. Anderson, Phys. Rev. Lett. 30, 1122 (1973)
- /19/ A.C. Anderson, W.L. Johnson, J. Low Temp. Phys. 7, 1 (1972)
- /20/ D.G. Henshaw, A.D.B. Woods, Phys. Rev. 121, 1266 (1961)

- /21/ T.J.B. Swanenburg, J. Wolter, Phys. Rev. Lett. 33, 882
(1974)
- /22/ M.W. Cole, Phys. Rev. Lett. 28, 1622 (1972)
- /23/ H. Haug, Phys. Lett. 45 A, 170 (1973)
- /24/ J.T. Folinsbee, A.C. Anderson, Phys. Rev. Lett. 31, 1580
(1973)
- /25/ I.E. Dzyaloshinskij, E.M. Lifshitz, L.P. Pitaevskii,
Advan. Phys. 10, 165 (1961)

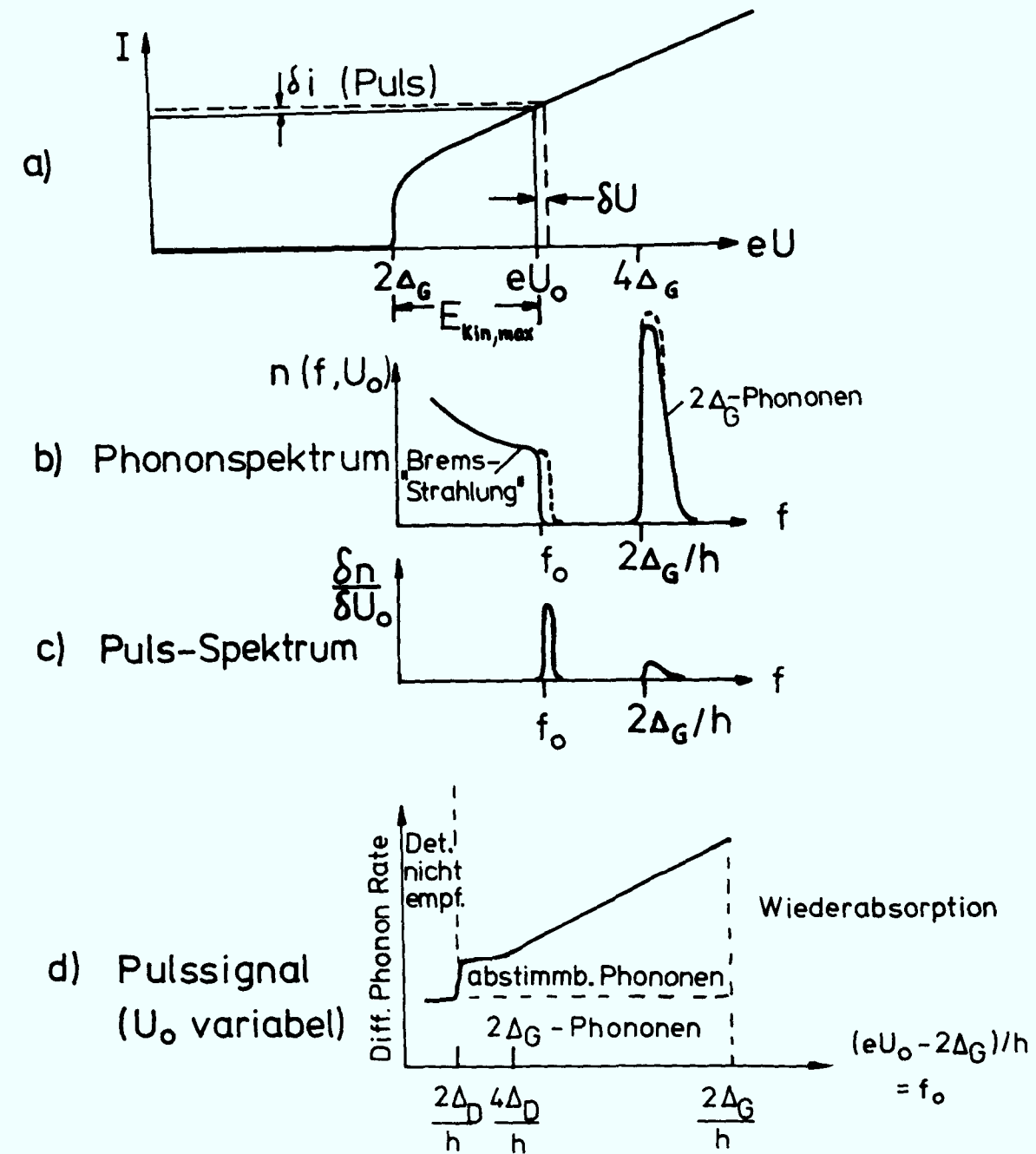


Bild 1: a) Charakteristik des Generators; b) durch Gleichspannung U_0 erzeugtes Spektrum; durch Überlagerung von Pulsen (δ_i) verschiebt sich kurzzeitig die Kante des Bremsstrahlungsspektrums; c) differentielles (Puls-) Spektrum $f_0 = (e \cdot U_0 - 2\Delta_G)/h$ ist aussortiert, d) gemessenes Pulsspektrum bei PbBi-Sendedioden und Al-Dioden als Detektoren. Erläuterung siehe Text.

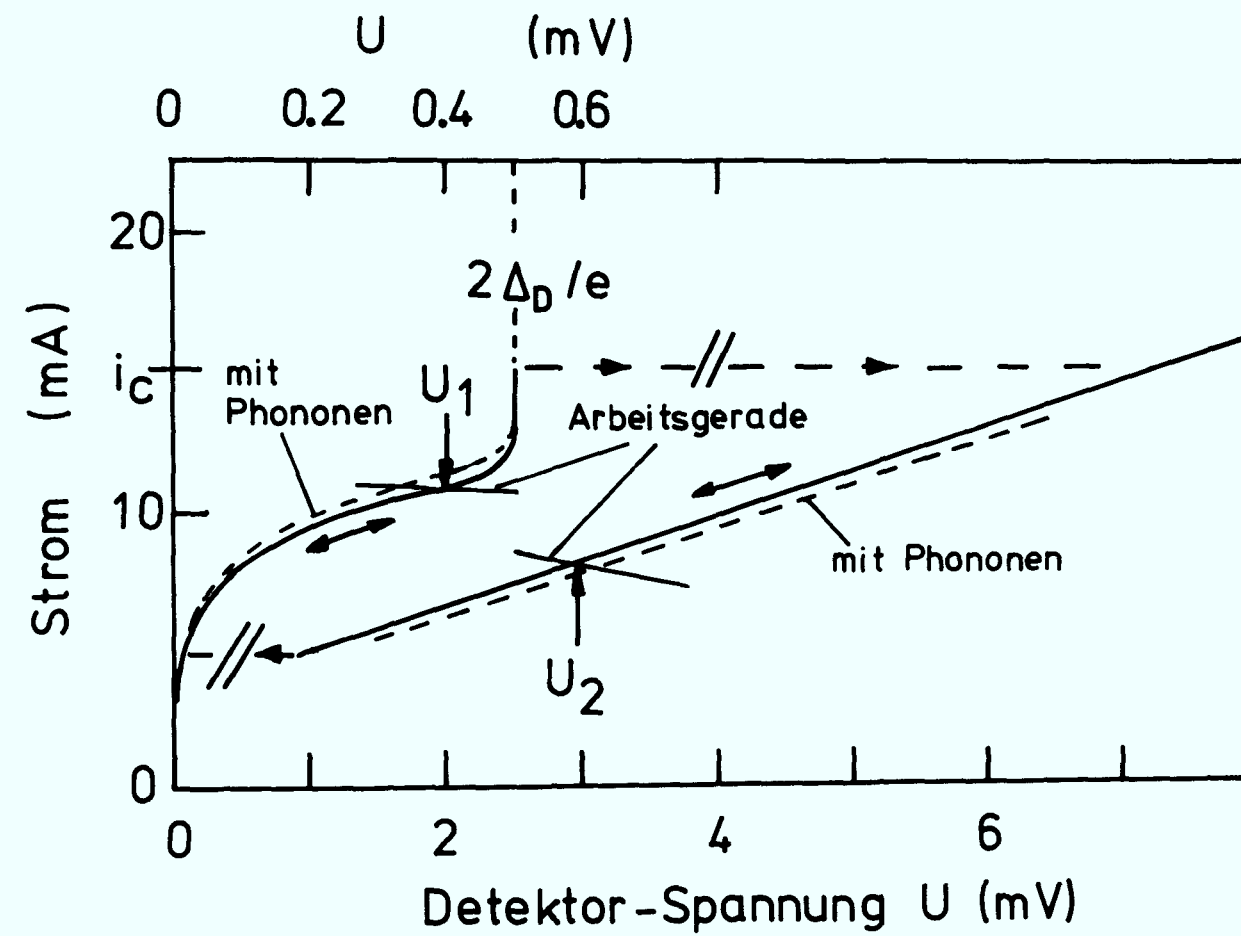


Bild 2: Typische Charakteristik einer Aluminium-Detektordiode. Oberhalb von i_c wird einer der Al-Filme teilweise normal, so daß die Diodencharakteristik (oberes Teilbild) nicht weiter durchfahren wird. U_1 ist der Dioden- und U_2 der Bolometerarbeitspunkt. Bei Phononenstrahlung verschieben sich die Kennlinien (gestrichelt). Der äußere Lastwiderstand (1Ω) ergibt die Steigung der Arbeitskennlinie.

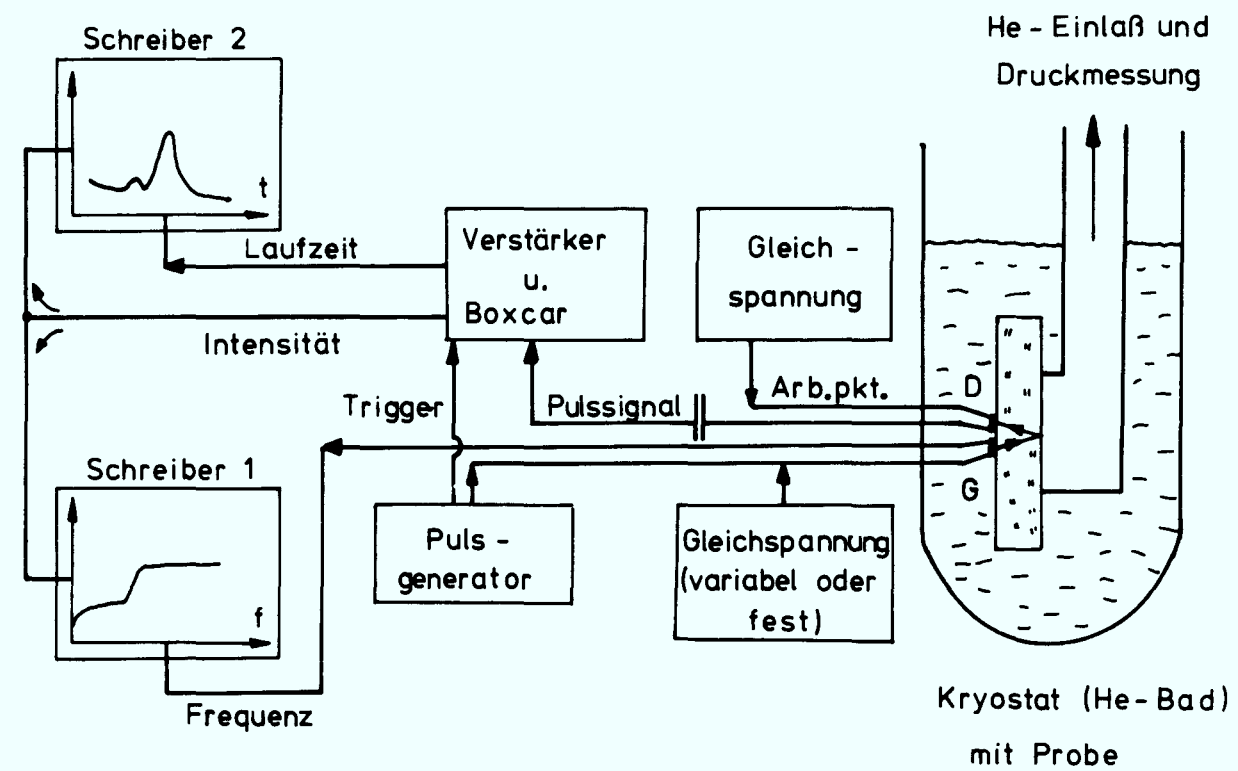


Bild 3: Blockdiagramm des Versuchsaufbaus. G ist die Generator- und D die Detektordiode. Die Dioden sind etwa 0,2 mm von einander entfernt. Bei der Messung wird entweder die Frequenz oder die Laufzeit fest eingestellt und die differentielle Phononenintensität als Funktion des anderen Parameters registriert.

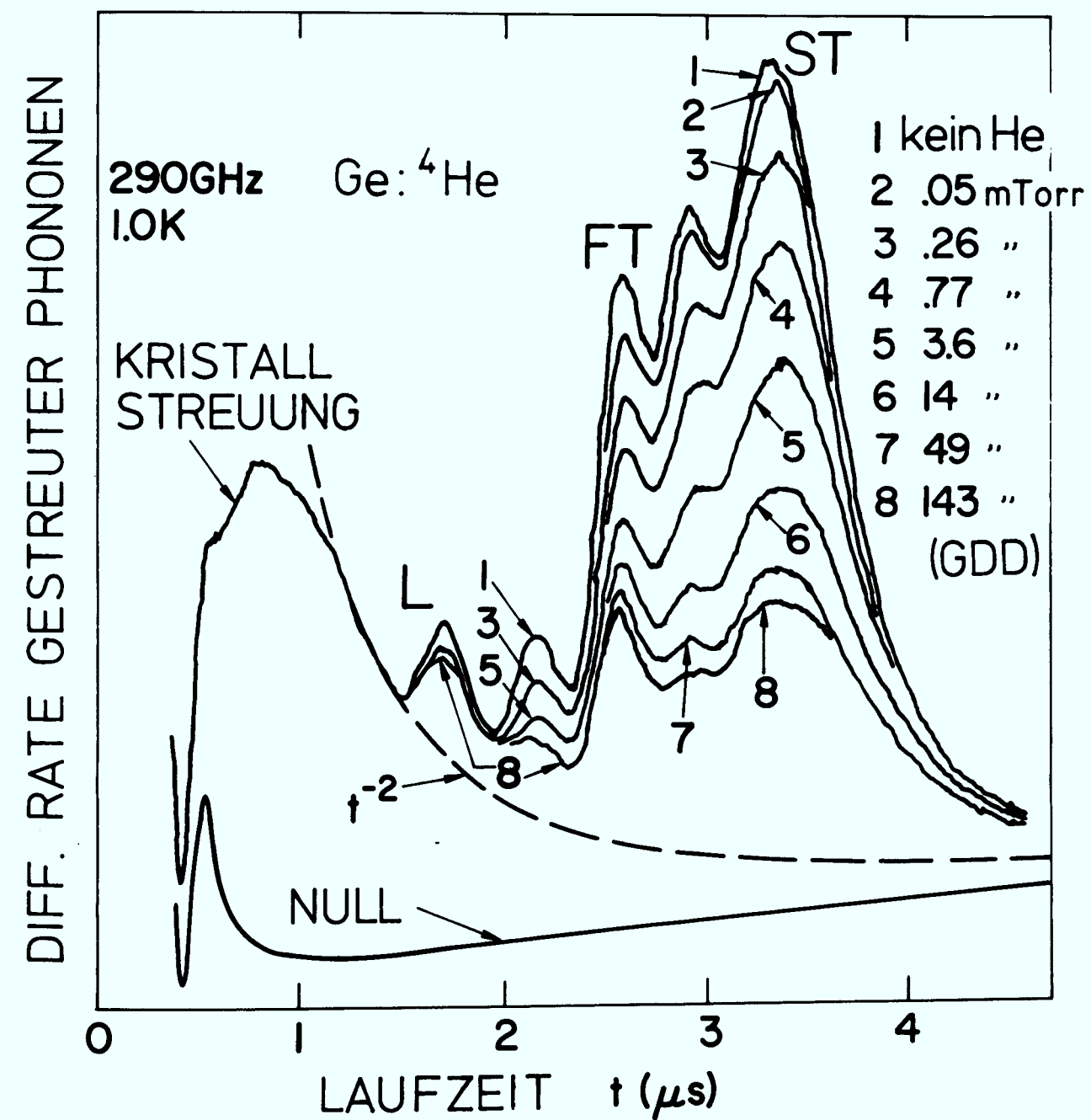


Bild 4: Phononenechos gestreut von einer Ge-Oberfläche ohne Helium (Kurve 1), mit ^4He -Filmen (2-7) und mit durchgehender Flüssigkeit (8). GDD heißt gesättigter Dampfdruck. L: longitudinales, FT: schnelles transversales ST: langsames transversales Echo. Die beiden weiteren Echos sind auf Modenkonversion ($L \rightarrow \text{FT}$ bzw. $\text{FT} \rightarrow \text{ST}$) zurückzuführen.

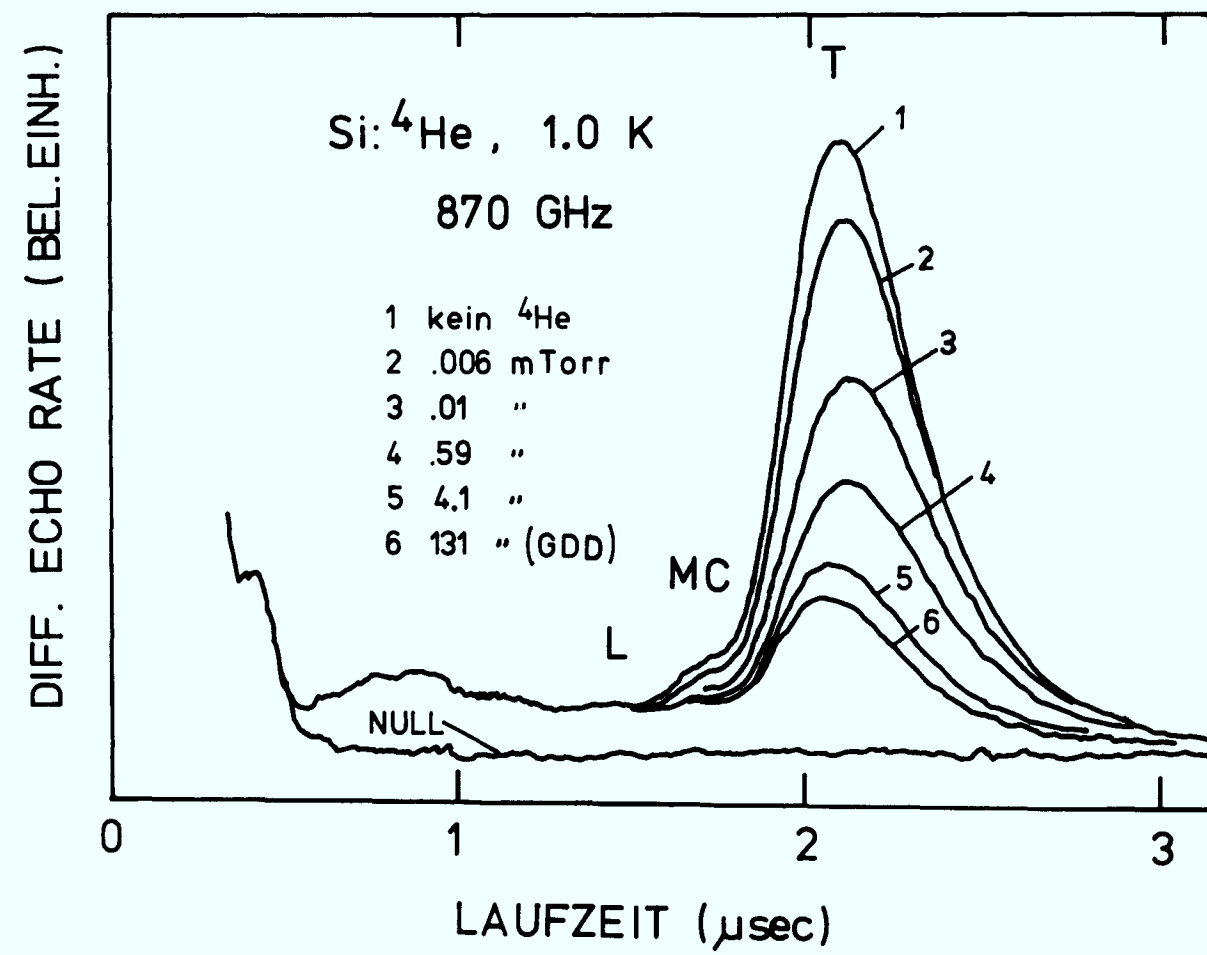


Bild 5: Phononenechos gestreut von einer Si-Oberfläche ohne ^4He (1), mit ^4He -Filmen (2-5) und mit durchgehender Flüssigkeit (6). L: longitudinales, MC: modenkonvertiertes und T: transversales Echo.

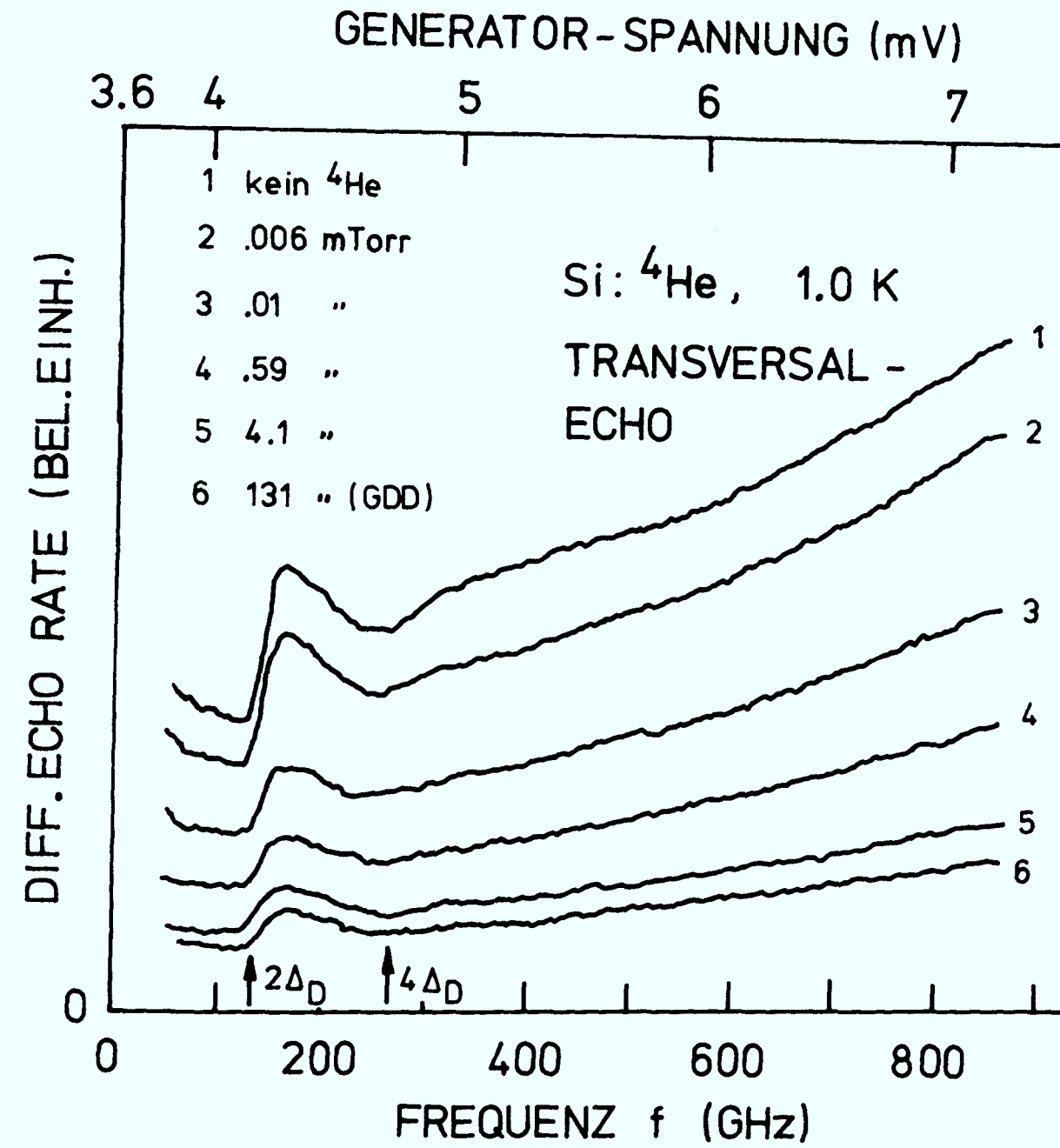


Bild 6: Frequenzabhängigkeit des Transversalechos zwischen 125 und 870 GHz. Es ist offensichtlich, daß weder bei ^4He -Filmen (2-5) noch bei durchgehender Flüssigkeit (6) eine Frequenzabhängigkeit auftritt.

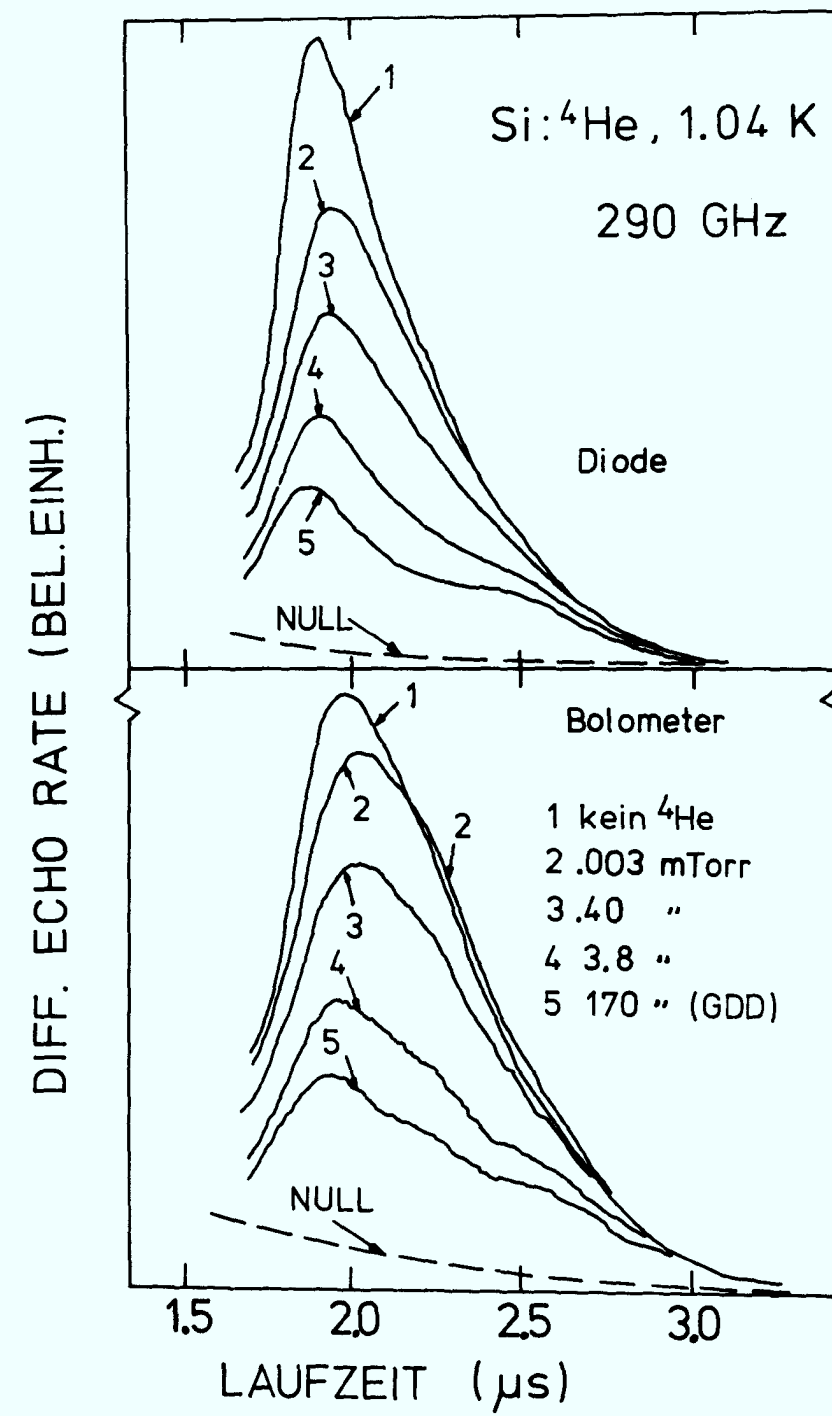


Bild 7: Transversalechos gestreut von einer Si-Oberfläche. Nachgewiesen mit einem Diodendetektor (oben) und einem Bolometerdetektor (unten) bei derselben Probe. Druckangaben beziehen sich auf beide Teilbilder. Die Erhebung bei etwa $2.5 \mu\text{s}$ wird von Streuung am In-Dichtring verursacht.

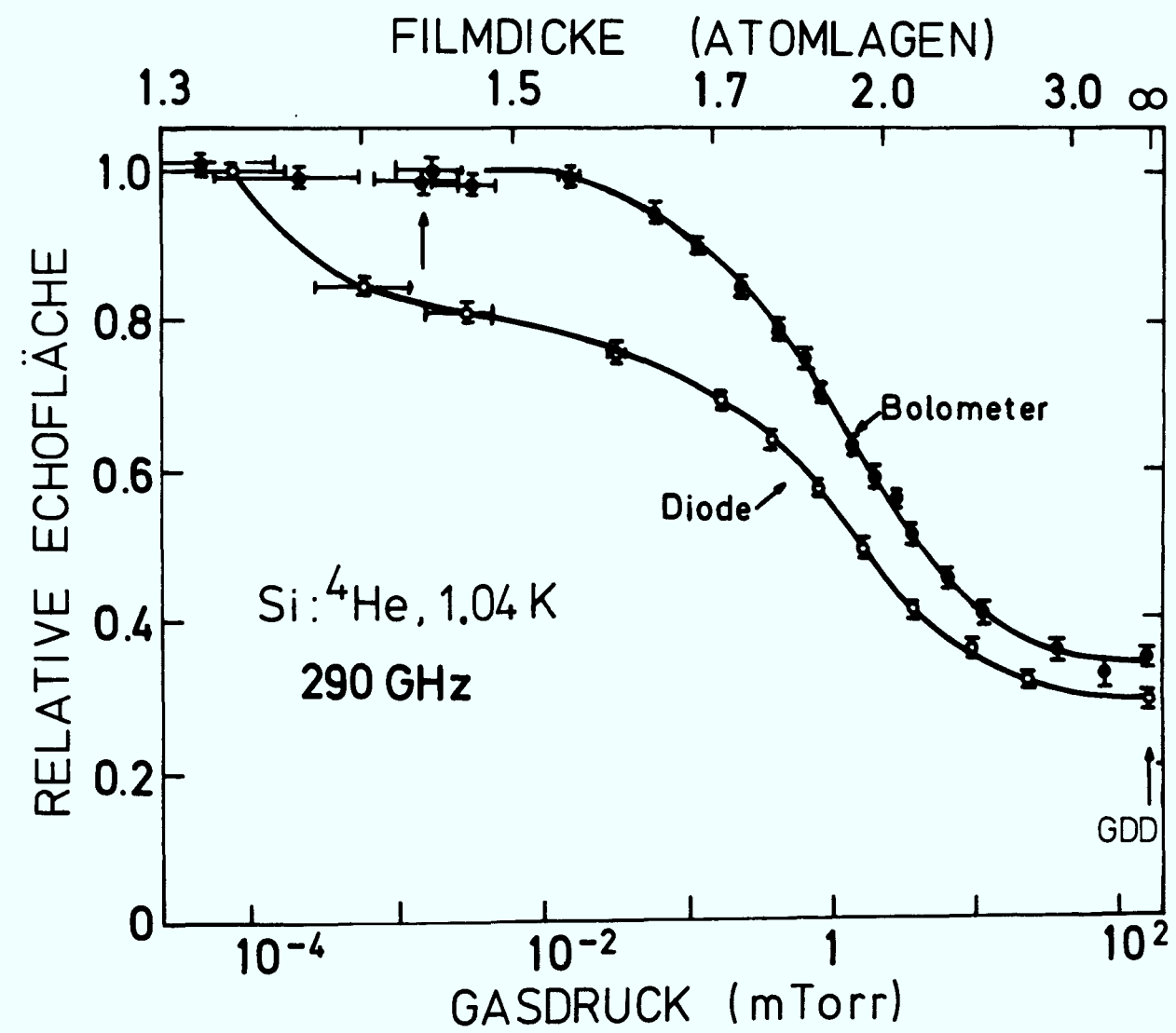


Bild 8: Relative Änderung der Echofläche mit zunehmendem ⁴He-Druck. Gemessen mit dem Bolometer- und dem Diodendetektor an derselben Oberfläche. Die erste Änderung der Pulsform beim Bolometer ist mit einem senkrechten Pfeil gekennzeichnet.

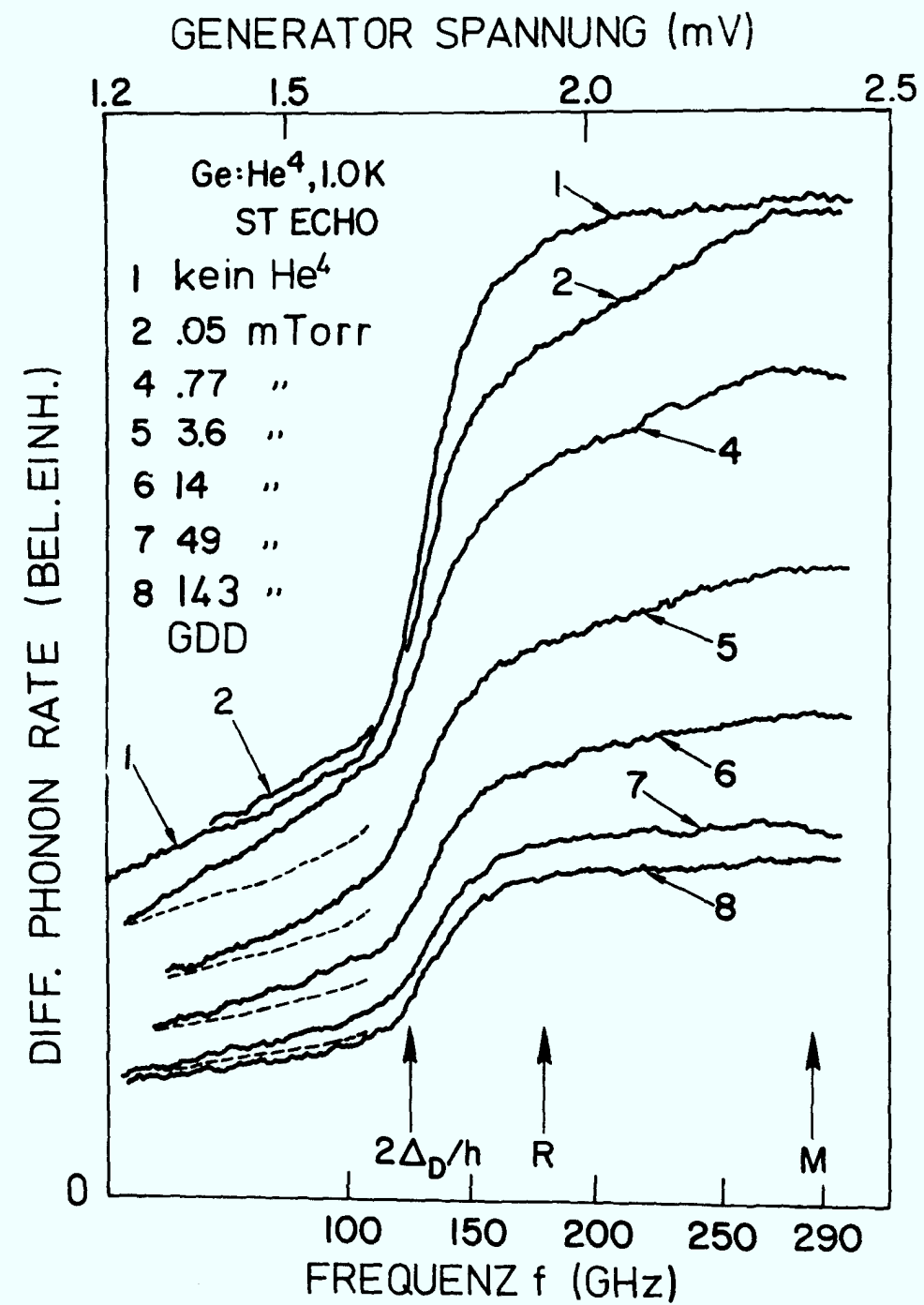


Bild 9: Frequenzabhängigkeit des langsamen transversalen Echos von einer Ge-Oberfläche. Die gestrichelten Kurven sind der erwartete (verringerte) Untergrund der $2\Delta_G$ -Phononen. Die gemessenen Kurven zeigen einen zusätzlichen Anteil von aufkonvertierten Bremsstrahlungs-Phononen. Keine Struktur infolge des Rotonminimums (R) oder des Maximums (M) der Dispersionskurve ist zu sehen.