

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

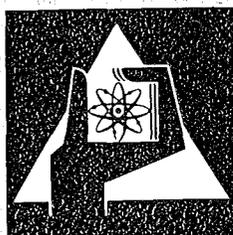
August 1974

KFK 2030

Institut für Experimentelle Kernphysik

Kapitzzwiderstand an Grenzflächen zwischen Festkörpern

C. Schmidt



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2030

Institut für Experimentelle Kernphysik

KAPITZAWIDERSTAND AN GRENZFLÄCHEN ZWISCHEN FESTKÖRPERN*

von

Curt Schmidt

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

*Von der Fakultät für Physik der Universität (TH) Karlsruhe
genehmigte Dissertation

Zusammenfassung

Der Grenzflächenwärmeübergangswiderstand (Kapitza-Widerstand) R_k wurde an einer Reihe von Metall-Isolator- und Metall-Metall-Grenzflächen gemessen. Für Saphir-Indium-Grenzflächen konnten reproduzierbare Ergebnisse erhalten werden, und es wird gezeigt, daß die Abweichung zwischen den Meßergebnissen anderer Autoren durch die Art der Probenherstellung erklärt werden kann. Eine Erniedrigung von R_k beim Übergang des Indium in den normalleitenden Zustand konnte zweifelsfrei festgestellt werden. Beim Wärmeübergang zwischen Metallen spielt R_k dann eine Rolle, wenn eines der Metalle supraleitend ist und die Leitungselektronen für den Wärmetransport ausfallen. Es wurden Nb-Cu- und NbTi-Cu-Grenzflächen untersucht. Schließlich wurden Wärmeleitfähigkeitsmessungen an mit Kupferpulver gefüllten Epoxydharzen in Abhängigkeit von Füllgrad und Korngröße durchgeführt, ergänzt durch die direkte Messung von R_k zwischen Epoxydharz und Kupfer. Die experimentellen Werte von R_k lagen in allen Fällen über der Voraussage der "Acoustic-Mismatch-Theorie".

Summary

KAPITZA RESISTANCE AT BOUNDARIES BETWEEN SOLIDS

The thermal boundary layer resistance (Kapitza resistance) R_k was measured at a number of metal-to-insulator and metal-to-metal boundary layers. Reproducible results could be obtained for sapphire-indium boundary layers and it is shown that the deviation between the results measured by other authors can be explained by the way of sample preparation. A reduction of R_k after transition of indium into the normal state was observed without doubt. In the heat transfer between metals R_k plays a part if one of the metals is superconducting and thus the conduction electrons are not available for heat transport. Nb-Cu and NbTi-Cu boundary layers were investigated. Finally, thermal conductivity measurements were performed with epoxy resins filled with copper powder as a function of the filler concentration and the grain size; they were supplemented by the direct measurement of R_k between epoxy resin and copper. In all cases, the experimental values obtained for R_k were above the prediction according to the Acoustic Mismatch Theory.

Inhalt

	Seite
A) EINLEITUNG	1
B) THEORIE	
1. Einführung	6
2. Die einfache Acoustic-Mismatch-Theorie für Grenzflächen zwischen Festkörpern	6
3. Die Verbesserung der Acoustic-Mismatch-Theorie durch Einführung von gedämpften Wellen (Attenuated-Phonon-Modell)	11
4. Kapitza-Widerstand zwischen Festkörper und Helium	14
C) EXPERIMENTELLER TEIL	
1. Probenherstellung	18
1.1 Saphir-Indium-Proben	18
1.2 Rubin-Kupfer(+Mangan)-Proben	23
1.3 Cu-Nb- und Cu-NbTi-Proben	24
1.4 Kupfer-Epoxydharz-Proben	
1.5 Gefüllte Epoxydharzproben	29
2. Experimenteller Aufbau	
2.1 Kryostat und Magnet	34
2.2 Ankopplung der Proben und der Heizspulen	37
2.3 Ankopplung der Widerstände an die Proben	39
3. Meßtechnik	
3.1 Elektrische Stromkreise	40
3.2 Wahl der Thermometer und ihre Eichung	42
3.3 Temperaturregelung	44
3.4 Durchführung der Messungen	46
3.5 Auswertung	47
D) ERGEBNISSE UND DISKUSSION	
1. Saphir-Indium- und Rubin-Kupfer-Messungen	
1.1 Wärmeleitfähigkeit von Saphir und Rubin	51
1.2 Wärmeleitfähigkeit von Indium und Kupfer	55
1.3 Kapitza-Widerstand an einer Saphir-In-Grenzfläche	57

	Seite	
1.4	Einfluß der Leitungselektronen auf den Kapitzawiderstand zwischen Saphir und Indium	70
1.5	Kapitzawiderstand an einer Rubin-Cu+Mn-Grenzfläche	75
2.	Die Niob-Kupfer- und NbTi-Kupfer-Experimente	
2.1	Wärmeleitfähigkeit von Niob und NbTi	78
2.2	Kapitzawiderstand zwischen Niob und Kupfer	82
2.3	Kapitzawiderstand zwischen NbTi und Kupfer	89
3.	Kapitzawiderstand zwischen Kupfer und Epoxydharz und seine Auswirkungen auf die Wärmeleitfähigkeit gefüllter Epoxydharze	
3.1	Die direkte Messung von R_k (Kupfer-Epoxydharz)	92
3.2	Wärmeleitfähigkeitsmessungen an gefüllten Epoxydharzen	95
E)	ZUSAMMENFASSENDER DARSTELLUNG DER ERGEBNISSE	103

A) EINLEITUNG

Fließt ein Wärmestrom durch die Grenzfläche zweier verschiedener Medien, so tritt an der Grenzfläche ein Temperatursprung auf. Für den Fall, daß der Wärmestrom \dot{Q} durch ein Flächenstück A proportional zum Temperatursprung ΔT ist, ist die Definition eines Wärmeübergangswiderstandes

$$R_k = \frac{\Delta T}{\dot{Q}/A} \quad \{\text{cm}^2 \text{ K/W}\}$$

sinnvoll. Dieser, sich nur bei tiefen Temperaturen bemerkbar machende Grenzflächenwärmewiderstand, wurde von Kapitza entdeckt, als er die Wärmeleitfähigkeit von He II (superfluides Helium) messen wollte¹. Kapitza vermutete nämlich, daß die damals schon bekannte extrem hohe Wärmeleitfähigkeit von He II in Kapillaren auf den Strom eines sehr dünnen Heliumfilms entlang den Kapillärwänden (und einen Gegenstrom in der Mitte der Röhre) zurückzuführen ist, und daß die Wärmeleitfähigkeit von ruhendem He II ähnlich wie die von He I (Helium oberhalb des λ -Punktes) sehr gering ist. Durch seine Experimente des Wärmeübergangs von einem Platin- bzw. Kupferkörper zu He II wurde er in seiner Annahme bestärkt. Er fand nämlich zwischen dem Festkörper und He II eine Temperaturdifferenz proportional der Heizleistung, und erklärte sie mit einem Temperaturgradienten im He II. Allerdings zeigten weitere Experimente, bei denen die Temperaturmeßstelle im Helium sehr dicht an der Oberfläche angebracht war, ebenso wie der Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf den Wert von $\Delta T/\dot{Q}$, daß der Temperaturabfall in einem sehr engen Bereich nahe der Oberfläche ($<10^{-2}$ mm) stattfinden mußte, und er schloß daraus auf eine sehr kleine Wärmeleitfähigkeit des ruhenden He II. Bei diesem Erklärungsversuch setzte er jedoch stillschweigend einen kontinuierlichen Temperaturverlauf an der Grenzfläche selbst voraus. Auf diese Weise ergibt sich ein Temperaturverlauf, wie er für "normale" Flüssigkeiten bei nicht zu tiefen Temperaturen gilt (Abb. 1a). Die Abnahme des Temperaturgradienten zum Innern der Flüssigkeit hin beruht auf der Erhöhung des Wärmetransportes durch Konvektion. Bei dem beobachteten Phänomen tritt jedoch wie man heute weiß, ein Temperatursprung an der Grenzfläche selbst auf, und der Temperaturgradient im He II ist vernachlässigbar klein (Abb. 1b).

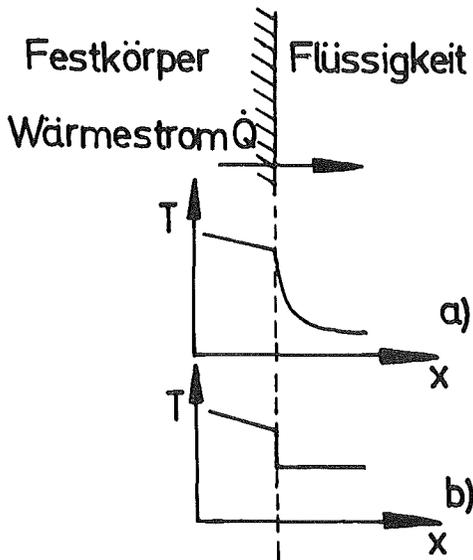


Abb. 1: Temperaturverlauf beim Wärmeübergang von einem Festkörper zu einer Flüssigkeit bei "Normalbedingungen" (a) und zum superfluiden Helium (b).

Bereits von Kapitza wird eine Temperaturabhängigkeit von $\Delta T / \dot{Q} \sim T^{-3}$ angegeben. Später wurde in vielen Experimenten diese für den Kapitzwiderstand charakteristische T^{-3} -Abhängigkeit (oder zumindest eine Temperaturabhängigkeit mit einem von -3 nicht sehr abweichenden Exponenten) gefunden, die sich in guter Übereinstimmung mit der Theorie befindet. Aus dieser Temperaturabhängigkeit ergibt sich einmal, daß R_k für $T \rightarrow 0$ über alle Grenzen wächst, was bei der Erzeugung extrem tiefer Temperaturen ein ernstes Hindernis darstellt, zum andern, daß der Wärmeübergangswiderstand an einer Grenzfläche bei genügend hohen Temperaturen keine Rolle mehr spielt bzw. nicht mehr beobachtet werden kann.

Für den Wärmeübergangswiderstand zwischen Festkörper und Helium bürgerte sich sehr bald die Bezeichnung Kapitzwiderstand ein, die in dieser Arbeit, in Übereinstimmung mit anderen neueren Artikeln, generell für den Wärmeübergangswiderstand an beliebigen Grenzflächen (also auch zwischen Festkörpern) gebraucht wird. Zuweilen ist es nützlich, eine Kapitzaleitfähigkeit $h_k = 1/R_k$ zu definieren, wenn der Energietransport über die Grenzfläche durch mehrere Mechanismen erfolgt.

Während der Kapitzwiderstand an Grenzflächen zwischen Festkörper und Helium, insbesondere im leicht zugänglichen Temperaturbereich zwischen 1 und 2 K, in vielen Experimenten mit allen interessierenden Metallen und Nichtmetallen, untersucht worden ist, liegen für Grenzflächen zwischen Festkörpern erst wenige Resultate vor.

Als die vorliegende Arbeit begonnen wurde, war die große Diskrepanz zwischen den Festkörper-Helium-Experimenten und der Acoustic-Mismatch-Theorie (s. Abschnitt B2) noch nicht verstanden. Die

wenigen Messungen an Festkörper-Festkörper-Grenzflächen zeigten Werte für R_k von ähnlicher Größe wie an Festkörper-Helium-Grenzflächen, diesmal in recht guter Übereinstimmung mit der Acoustic-Mismatch-Theorie, die ja im Fall Festkörper-Festkörper wegen der nur wenig unterschiedlichen akustischen Impedanzen einen viel kleineren Kapitzwiderstand als im Fall Festkörper-Helium voraus-sagt.*

Es sah also so aus, als sei der Kapitzwiderstand wenig abhängig von den akustischen Impedanzen, und es lag daher nahe, weitere Messungen an Festkörper-Festkörper-Grenzflächen durchzuführen. Zudem ist die experimentelle Bestimmung des Wärmewiderstandes zwischen Festkörpern auch für viele Anwendungen von Interesse, nicht nur, wenn es um Abkühlung zu extrem tiefen Temperaturen geht, sondern auch dann, wenn der Wärmestrom viele Grenzflächen zu überwinden hat; neuerdings auch bei Experimenten mit dünnen supraleitenden Schichten, wo in vielen Fällen die Wärmeabfuhr zum Substratmaterial berechnet werden muß.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, weiteres experimentelles Material zur Klärung des Kapitzwiderstandes zwischen Festkörpern zu liefern, zum anderen die Untersuchung von speziellen, für die Anwendung wichtigen Systemen. Die durchgeführten Experimente können grob in drei Gruppen eingeteilt werden:

1. Metall-Isolator-Grenzflächen (Saphir-Indium und Rubin-Kupfer)
2. Metall-Metall-Grenzflächen (Niob-Kupfer und NbTi-Kupfer)
3. Wärmeleitfähigkeitsmessungen an mit Kupferpulver gefüllten Epoxydharzen, ergänzt durch die direkte Messung des Kapitza-widerstandes zwischen Kupfer und Epoxydharz.

Die ersten Messungen wurden an Saphir-Indium-Grenzflächen vorge-nommen. Zur Untersuchung des Kapitzwiderstandes zwischen einem Metall und einem Dielektrikum bietet sich dieses System aus ver-schiedenen Gründen an:

*z.B. beträgt für eine Saphir-He Grenzfläche der nach der Acoustic-Mismatch-Theorie berechnete Wert annähernd $10^4/T^3$, gemessen wurde jedoch $44/T^3$, also rund 200 mal weniger⁵. Für eine Saphir-Indium-Grenzfläche dagegen beträgt der berechnete Wert für R_k nur $20/T^3$ (alle Werte in $\text{cm}^2 \text{ K/W}$), der gemessene Wert liegt jedoch gleich hoch oder höher.

Synthetischer Saphir (Al_2O_3) hat bei Heliumtemperatur eine hohe Wärmeleitfähigkeit, was die Temperaturextrapolation zur Grenzfläche erleichtert. Als Metall eignet sich Indium wegen seiner Plastizität und dem niedrigen Schmelzpunkt. Die Supraleitfähigkeit von Indium unterhalb 3.4 K erlaubt es, Schlüsse auf den Beitrag der Elektronen zum Wärmetransport über die Grenzfläche zu ziehen.

Messungen an Saphir-Indium-Grenzflächen waren bereits vorher bekannt^{2,3}, ein weiteres Experiment wurde uns während unserer Messungen bekannt⁴. Die Ergebnisse der 3 Gruppen wichen jedoch teilweise erheblich voneinander ab, was offenbar an der unterschiedlichen Probenherstellung lag. Es schien deshalb sinnvoll, weitere Messungen vorzunehmen, um zu reproduzierbaren Resultaten zu gelangen. Insbesondere wurden Experimente mit auf verschiedene Weise hergestellten Proben gemacht, und es wurde der Einfluß der Oberflächenrauigkeit auf den Kapitzwiderstand untersucht.

In allen vorhandenen Theorien ist implizit enthalten, daß R_K von der Richtung des Wärmestroms unabhängig ist (s. Gl.6 in Abschnitt B), eine experimentelle Prüfung in einem Experiment ohne Umbau (und damit zwischenzeitliches Aufwärmen) der Probe hat nach Kenntnis des Verfassers bisher jedoch nicht stattgefunden. Es wurde daher ein Experiment mit umkehrbarem Wärmestrom an einer Saphir-Indium-Grenzfläche vorgenommen.

In einem weiteren Experiment sollte die Möglichkeit eines zusätzlichen Wärmetransports durch Spinankopplung untersucht werden. Von Abel et al⁵ wurde 1966 entdeckt, daß R_K zwischen dem magnetischen Salz Ceriummagnesiumnitrat (CMN) und ^3He im mK-Bereich mit sinkender Temperatur wieder abnimmt. Dieses anomale Verhalten wird mit einer Kopplung der magnetischen Spins mit den Kernspins im ^3He erklärt⁷. Inzwischen wurde ein ähnliches Verhalten auch zwischen ferromagnetisch verunreinigten Metallen und ^3He festgestellt⁸. An der Grenzfläche zweier Festkörper wurde eine derartige Anomalie bisher nicht gefunden. Wir untersuchten daher das System Rubin - Cu+Mn, konnten jedoch in dem uns zugänglichen Temperaturbereich oberhalb 1 K kein anomales Verhalten feststellen.

An Grenzflächen zweier Metalle macht sich der Kapitzwiderstand bemerkbar, wenn wenigstens eines der Metalle supraleitend ist

und die Elektronen zum Wärmetransport zumindest teilweise ausfallen. Es wurden die Systeme Cu-Nb und Cu-NbTi untersucht. NbTi ist ein technisch wichtiger Supraleiter und bei der Wärmeabfuhr aus einem Multifilamentleiter kann der Kapitza-widerstand eine gewisse Rolle spielen, insbesondere bei Filamenten von nur wenigen μ Durchmesser. Ergebnisse anderer Autoren⁹, die ein um Größenordnungen höheres R_k gemessen hatten, konnten nicht bestätigt werden.

Schließlich wurde eine für die unmittelbare Anwendung wichtige Untersuchung durchgeführt, die Wärmeleitfähigkeitsmessung gefüllter Epoxyharze. Bei mit einem gut wärmeleitenden Pulver (hier Kupfer) gefüllten Epoxyden macht sich der Kapitza-widerstand schon bei Temperaturen unterhalb 20 K durch eine Verschlechterung der Wärmeleitung bemerkbar, da hier der Wärmestrom viele Grenzflächen zu überwinden hat. Zusätzlich wurde der Kapitza-widerstand an einer Kupfer-Epoxydharz-Grenzfläche direkt gemessen. Der Vergleich mit den aus den Wärmeleitfähigkeitsmessungen gewonnenen Werten für R_k zeigte eine befriedigende Übereinstimmung.

B) THEORIE

1. Einführung

Die Annahme, der von Kapitza entdeckte Effekt hänge mit den besonderen Eigenschaften des superfluiden Heliums zusammen, erwies sich als falsch, da ein Wärmeübergangswiderstand später auch zwischen Festkörper und ^3He , He I, festem ^3He und ^4He , sowie zwischen verschiedenen Festkörpern gefunden wurde (s. die Reviewartikel von Pollack¹⁰, Snyder¹¹ und Challis¹²).

Eine erste theoretische Behandlung des Problems (Festkörper-He II wurde 1952 von Khalatnikov¹³ vorgenommen: Nach dem Khalatnikov-Modell ergibt sich der Wärmewiderstand aus der Phononenfehlankopplung zwischen Festkörper und He II aufgrund der sehr unterschiedlichen akustischen Impedanzen $\rho \cdot c$ (ρ Dichte, c Schallgeschwindigkeit). Die experimentell gefundene T^{-3} Abhängigkeit ergibt sich auch aus den Berechnungen von Khalatnikov, die berechneten Werte für R_k lagen jedoch um 1-2 Größenordnungen zu hoch. Erschwerend beim Vergleich mit der Theorie kam hinzu, daß die Meßergebnisse selbst oft um einen Faktor 10 streuten, was nur auf Unterschiede in der Oberflächenpräparation zurückgeführt werden kann.

Eine Erweiterung dieser "Acoustic-Mismatch-Theorie" auf Grenzflächen zwischen Festkörpern wurde von Little¹⁴ vorgenommen. Im folgenden soll zunächst dieser Fall besprochen werden, da in der vorliegenden Arbeit derartige Experimente beschrieben werden, und weil hier, wie wir sehen werden, die Theorie weit besser mit dem experimentellen Befund übereinstimmt. Die Diskrepanz der einfachen Acoustic-Mismatch-Theorie mit dem Experiment im Fall Festkörper-He, kann mit einem zusätzlichen Energietransport durch Einteilchen-Wechselwirkung im wesentlichen erklärt werden¹⁵, darauf wird in Abschnitt B4 noch näher eingegangen.

2. Die einfache Acoustic-Mismatch-Theorie für Grenzflächen zwischen Festkörpern

Das Grundkonzept zur Erklärung des Wärmeübergangswiderstandes ist recht einfach: Wenn mindestens eins der beiden Materialien

beiderseits der Grenzfläche ein Dielektrikum ist, erfolgt der Wärmetransport durch akustische Phononen, d.h. quantisierte Gitterschwingungen, für die bei genügend tiefen Temperaturen die Dispersionsrelation $\omega = c \cdot k$ gilt (ω Winkelfrequenz, c Schallgeschwindigkeit, k Betrag des Wellenvektors). Für auf die Grenzfläche auftreffende Phononen besteht eine gewisse Reflexionswahrscheinlichkeit.

Betrachten wir eine (unendlich ausgedehnte) Grenzfläche zwischen zwei nicht metallischen isotropen Festkörpern.

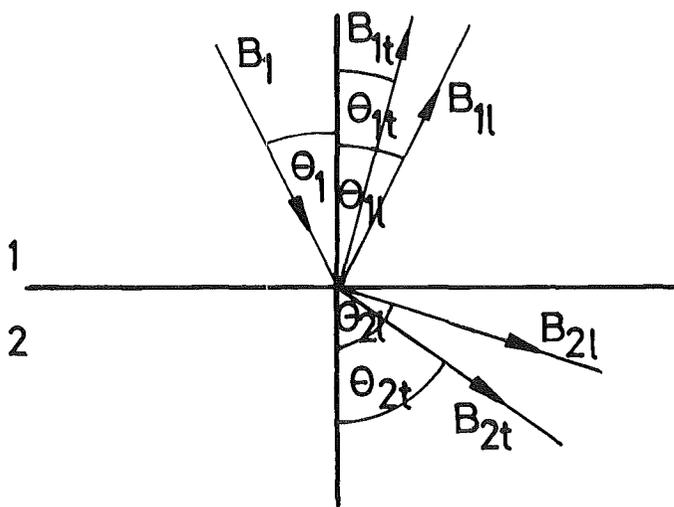


Abb. 2: Brechung und Reflexion einer longitudinalen Welle mit der Amplitude B_1 .
 (l) reflektierte Wellen,
 (t) gebrochene Wellen,
 (l) longitudinale
 (t) transversale Wellen.

Eine auf der Grenzfläche auftreffende longitudinale Welle mit der Amplitude B_1 erzeugt je eine reflektierte und eine gebrochene transversale und longitudinale Welle (Abb. 2). Ähnliches gilt für auf der Grenzfläche auftreffende transversale Wellen. Der Einfachheit halber betrachten wir zunächst nur longitudinale Wellen, d.h. Materialien mit Schubmodul Null. Die Anzahl der auf einem Flächenstück dA der Grenzfläche pro Zeiteinheit und unter einem Winkel zwischen θ_1 und $\theta_1 + d\theta_1$ auftreffenden Phononen der Energie $\hbar\omega$ beträgt

$$\frac{1}{2} \cdot c_{1l} \cdot N_1(\omega) \cdot \cos\theta_1 \sin\theta_1 \cdot d\theta_1 \cdot dA \cdot d\omega \quad (1)$$

c_{1l} ist die Gruppengeschwindigkeit longitudinaler Phononen und $N_1(\omega) d\omega$ ist die Anzahl der Phononen mit einer Energie zwischen $\hbar\omega$ und $\hbar(\omega+d\omega)$ pro Volumen in Medium 1.

Gleichung (1) ergibt sich aus einfachen geometrischen Überlegungen: $\frac{1}{2} \sin\theta_1 d\theta_1$ ist das Verhältnis der Phononenanzahl unter einem Winkel zwischen θ_1 und $\theta_1+d\theta_1$ zur Gesamtzahl der Phononen, $dA \cos\theta_1$ ist die Projektion von dA senkrecht zur Ausbreitungsrichtung dieser Phononen.

Die von 1 nach 2 übertragene Energie pro Zeit ergibt sich aus der Multiplikation von (1) mit der Phononenenergie $\hbar\omega$ und dem Transmissionskoeffizient w_1 und der Integration über Winkel, Frequenz und Fläche.

$$Q_{1 \rightarrow 2} = \frac{1}{2} \iiint c_{11} N_1(\omega) \hbar\omega_1(\theta) w_1(\theta) \cos\theta \sin\theta d\theta d\omega dA \quad (2)$$

$N_1(\omega)$ ist gegeben durch die Bose-Besetzungswahrscheinlichkeit $1/(e^{\hbar\omega/kT} - 1)$, multipliziert mit der Debye-Zustandsdichte $\omega^2/(2\pi^2 c_{11}^3)$, also

$$N_1(\omega) d\omega = \frac{\omega^2 d\omega}{2\pi^2 c_{11}^3 (e^{\hbar\omega/kT} - 1)} \quad k = \text{Boltzmannkonstante} \quad (3)$$

Die Integration von (2) über die Fläche und über die Frequenz liefert:

$$Q_{1 \rightarrow 2} = \frac{\pi^2 k^4 T_1^4 \cdot A}{60 \hbar^3 c_{11}^2} \cdot \Gamma_1 \quad (4)$$

mit der Abkürzung

$$\Gamma_1 = \int_0^{\frac{\pi}{2}} w_1(\theta) \cos\theta \sin\theta d\theta .$$

Dabei wurde bei der Integration über ω die obere Integrationsgrenze ω_D (Debyefrequenz) durch ∞ ersetzt und es wurde die Beziehung

$$\int_0^{\infty} \frac{z^3 dz}{e^z - 1} = \frac{\pi^4}{15}$$

benutzt. Der Netto-Energiestrom über die Grenzfläche ergibt sich aus der Differenz der Energieströme in beide Richtungen

$$\dot{Q} = \dot{Q}_{1 \rightarrow 2} - \dot{Q}_{2 \rightarrow 1} \quad (5)$$

$\dot{Q}_{2 \rightarrow 1}$ erhält man, wenn man auf der rechten Seite von (4) die Indizes durch 2 ersetzt.

Wenn beide Seiten der Grenzfläche die gleiche Temperatur haben, ist $\dot{Q} = 0$, also gilt

$$\Gamma_1 / c_{11}^2 = \Gamma_2 / c_{21}^2 \quad (6)$$

Mithilfe dieser Beziehung erhält man also für Gleichung (5)

$$\dot{Q} = \frac{\pi^2 k^4 A \cdot \Gamma_1}{60 \hbar^3 c_{11}^2} \cdot (T_1^4 - T_2^4), \quad (7)$$

bzw. wenn $\Delta T = T_1 - T_2$ klein gegen die mittlere Temperatur T ist:

$$\dot{Q} = \frac{\pi^2 k^4 A \cdot \Gamma_1}{15 \hbar^3 c_{11}^2} \cdot T^3 \Delta T \quad (8)$$

Der Wärmeübergangswiderstand ist

$$R_k \equiv \Delta T \cdot A / \dot{Q} = \frac{15 \hbar^3}{\pi^2 k^4} \cdot \frac{c_{11}^2}{\Gamma_1} \cdot T^{-3} \quad (9)$$

R_k wird also einmal durch die Anzahl der auf die Grenzfläche auftreffenden Phononen und dem von ihnen transportierten Wärmestrom $15 \hbar^3 c_{11}^2 / \pi^2 k^4 T^3$, zum anderen durch den integrierten Transmissionskoeffizienten

$$\Gamma = \int_0^{\frac{\pi}{2}} w(\theta) \cos \theta \sin \theta d\theta$$

bestimmt. Wenn, wie in der einfachen Acoustic-Mismatch-Theorie, der Transmissionskoeffizient $w(\theta)$ temperaturunabhängig ist, ergibt sich für R_k eine T^{-3} -Abhängigkeit.

Im allgemeinen Fall müssen wir außer den longitudinalen auch transversale Phononen zulassen, und zwar mit Polarisationsrichtung parallel zur Einfallsebene und senkrecht zur Einfallsebene. Die ersten beiden der auf der Grenzfläche auftreffenden Wellentypen erzeugen 4 auslaufende Wellen (s. Abb.2), senkrecht zur Einfallsebene

polarisierte transversale Wellen erzeugen nur zwei, eine gebrochene und eine reflektierte transversal polarisierte Welle, da in diesem Fall die Auslenkung keine Komponente senkrecht zur Grenzfläche hat.

Die Berechnung der Reflexions- und Transmissionskoeffizienten erfolgt mit Hilfe der klassischen Wellentheorie. Zur Berechnung der Amplituden der 4 auslaufenden Wellen stehen 4 Randbedingungen zur Verfügung, nämlich die Stetigkeit der Normalkomponenten und der Tangentialkomponenten der Verschiebung und der Spannung an der Grenzfläche.

Die Durchführung der Berechnung der Transmissionskoeffizienten w_1, w_t ist recht umständlich und kann an anderer Stelle nachgelesen werden^{16,17}. Die Transmissionskoeffizienten hängen von den Schallgeschwindigkeiten und den Dichten der beiden Medien ab, sowie von den Winkeln der einlaufenden und der auslaufenden Wellen. Die letzteren können nach dem Snellius'schen Gesetz aus θ_1 und den Schallgeschwindigkeiten berechnet werden:

$$\frac{\sin\theta_1}{c_{1l}} = \frac{\sin\theta_{1l}}{c_{1l}} = \frac{\sin\theta_{1t}}{c_{1t}} = \frac{\sin\theta_{2l}}{c_{2l}} = \frac{\sin\theta_{2t}}{c_{2t}} \quad (10)$$

Aus dieser Beziehung folgt, daß für die aus dem Medium mit der kleineren Schallgeschwindigkeit einlaufenden Wellen ab einem bestimmten Grenzwinkel Totalreflexion eintritt. Bei Totalreflexion werden auf der Grenzfläche Oberflächenwellen erzeugt, deren Amplitude senkrecht zur Oberfläche exponentiell abnimmt. Eine Energieübertragung in das andere Medium erfolgt durch Oberflächenwellen im Fall von ungedämpften Wellen, wie sie die einfache Acoustic-Mismatch-Theorie annimmt, nicht.

Schließlich bleibt die Integration der Transmissionskoeffizienten über den Winkel durchzuführen (s. Gl.4), was i.a. nur numerisch möglich ist.

Die Verallgemeinerung von Gleichung (8) unter Berücksichtigung der beiden transversalen Phononenzweige führt zu

$$\dot{Q} = \frac{\pi^2 k^4 A}{15h^3} \left(\frac{\Gamma_l}{c_l^2} + \frac{2\Gamma_t}{c_t^2} \right) \cdot T^3 \cdot \Delta T \quad (11)$$

mit Γ_l , Γ_t , c_l , c_t integrale Transmissionskoeffizienten und Schallgeschwindigkeiten für longitudinale und transversale Phononen.

Auch hier gilt wieder entsprechend Gl.(6) die Gleichheit des Klammerausdrucks für Medium 1 und 2. Werte für Γ_l und Γ_t wurden von Little¹⁴ numerisch berechnet für feste Verhältnisse c_l/c_t in Abhängigkeit von c_{2l}/c_{1l} und dem Verhältnis der Dichten ρ_2/ρ_1 .

Der Maximalwert für Γ_l und Γ_t beträgt 0.5, was einer perfekten Phononenankopplung (Transmissionskoeffizienten $w(\theta) \equiv 1$) entspricht. Der so berechnete Wert für R_k ist nicht gleich Null, sondern entspricht dem Wärmewiderstand des Materials auf einer freien Phononenweglänge ℓ ¹⁴. Dies wird verständlich, wenn man bedenkt, daß bei der Herleitung von Gl.(9) ungedämpfte Wellen vorausgesetzt wurden, d.h. $\ell = \infty$. R_k ($w \equiv 1$) wird i.a. als Phonon-Radiation-Limit bezeichnet¹¹.

Aus Gl.(11) geht hervor, daß transversale Phononen wegen $c_t < c_l$ einen wesentlich größeren Anteil als longitudinale Phononen am Wärmetransport über die Grenzfläche haben, wenn die integrierten Transmissionskoeffizienten Γ_l und Γ_t ähnliche Größen haben. Für $c_l = 2c_t$, was für viele Stoffe gilt, übertragen die transversalen Schwingungen annähernd 90% des Wärmestroms.

3. Die Verbesserung der Acoustic-Mismatch-Theorie durch Einführung von gedämpften Wellen (Attenuated-Phonon-Modell)

Wie bereits zuvor angedeutet, gilt die Unabhängigkeit der Transmissionskoeffizienten w von der Frequenz, und damit das T^{-3} -Gesetz nur bei Annahme von ungedämpften Wellen. Hat Medium 1 die geringere Schallgeschwindigkeit, so tritt für Phononen, die unter einem Winkel größer als

$$\theta_c = \arcsin \frac{c_1}{c_2} \quad (12)$$

aus Medium 1 die Grenzfläche erreichen, Totalreflexion ein.

Im allgemeinen Fall gibt es für jeden Wellentyp zwei kritische Winkel θ_c , oberhalb derer die Brechung von longitudinalen bzw. transversalen Wellen in das Medium mit der höheren Schallgeschwindigkeit nicht mehr möglich ist. Totalreflexion an einer freien

Oberfläche führt zur Ausbildung von Rayleigh-Oberflächenwellen, die sich entlang der Oberfläche ausbreiten und eine exponentiell mit wachsendem Abstand von der Grenzfläche abnehmende Amplitude haben. An einer Grenzfläche zwischen zwei Medien heißt der entsprechende Wellentyp Stoneley-Welle¹⁸. Durch Oberflächenwellen wird keine Energie senkrecht zur Grenzfläche transportiert, wenn die Wellen ungedämpft sind. Im Falle einer Dämpfung kann jedoch aus den Oberflächenwellen Energie in Medium 2 absorbiert werden. Dies wurde von Little¹⁹ und Andreev²⁰ für Festkörper-Helium-Grenzflächen untersucht. Als Mechanismus der Phononendämpfung wurde dabei nur die Elektron-Phonon-Wechselwirkung berücksichtigt. Eine Ausdehnung der Berechnung auf Festkörper-Festkörper-Grenzflächen erfolgte zuerst von Park und Narahara⁴, allerdings vernachlässigten letztere Autoren transversale Oberflächenwellen und betrachteten nur einen Typ von einlaufenden transversalen Wellen.

In systematischerer Weise wurde das Problem von Haug und Weiss²¹, und unabhängig davon, von Peterson und Anderson untersucht²², insbesondere dadurch, daß die Größe der Phononendämpfung nicht als fester Wert (nämlich der aus der Elektron-Phonon-Wechselwirkung berechnete), sondern als variable Größe in die Berechnungen einging. Wir gehen nun etwas näher auf diese Berechnungen ("Attenuated-Phonon-Model") ein:

Die in Abschnitt 2 aufgestellten Gleichungen gelten im wesentlichen weiterhin, für die Berechnung der Transmissionskoeffizienten $w(\theta)$ muß das dort Gesagte jedoch modifiziert werden. Für jede der 3 einlaufenden Wellentypen werden die Transmissions- bzw. Reflexionskoeffizienten, also die Verhältnisse der Amplituden der jeweils 4 (bzw. 2) auslaufenden Wellen zur Amplitude der einlaufenden Welle, durch Aufstellung der 4 Wellengleichungen der auslaufenden Wellen unter Anwendung der 4 Randbedingungen auf der Grenzfläche gelöst. Als Wellengleichung wird angesetzt

$$u = B e^{i\vec{k}\vec{r} - i\omega t - \alpha \vec{e}\vec{r}/2} \quad (13)$$

Dabei ist u die Verschiebung am Ort \vec{r} zur Zeit t , \vec{k} ist der Wellenvektor und \vec{e} ein Einheitsvektor in Richtung von \vec{k} . Der letzte Term im Exponenten fehlt beim Lösungsansatz in der einfachen Acoustic-Mismatch-Theorie. Die hier neu eingeführte Dämpfungskonstante α ist die Energiedämpfung pro Längeneinheit. Im allgemeinen Fall wird

α für die verschiedenen Wellentypen nicht gleich sein. Man kann den Exponenten in (13) etwas umschreiben, so daß

$$u = B e^{i(\omega \vec{e} \vec{r} / c') - i\omega t} \quad (14)$$

mit $c' = c / (1 + i\alpha c / 2\omega) = c / (1 + i\lambda / 4\pi\ell)$.

λ ist die Phononenwellenlänge und $\ell = 1/\alpha$ die freie Weglänge der Phononen bezüglich der Energiedämpfung. Hier wird also in den Ansatz für die Wellengleichung eine komplexe Schallgeschwindigkeit c' eingeführt, und der Lösungsansatz (14) entspricht rein formal wieder dem Lösungsansatz der einfachen Acoustic-Mismatch-Theorie. Jedoch sehen wir bereits hier, daß c' nur dann von der Frequenz ω unabhängig ist, wenn λ/ℓ konstant bleibt. Die Beziehung zwischen den Winkeln erhält man entsprechend der Gl.(10), wenn man die Schallgeschwindigkeiten c durch die entsprechenden komplexen Schallgeschwindigkeiten c' ersetzt. Diese Winkel sind jetzt allerdings komplex und entsprechen nicht mehr der Wellenausbreitungsrichtung.

Zur Berechnung der integrierten Transmissionskoeffizienten

$$\Gamma = \int_0^{\frac{\pi}{2}} w(\theta) \cos\theta \sin\theta d\theta \quad (15)$$

müssen also jetzt 4 komplexe Gleichungen mit vier komplexen Unbekannten für jeden der 3 möglichen Wellentypen gelöst werden. Zur Umgehung mathematischer Schwierigkeiten nehmen Peterson und Anderson immer an, daß die Wellen aus einem Medium ohne Dämpfung einlaufen und berechnen sodann die Reflexionskoeffizienten, d.h. also die Amplituden der reflektierten Wellen, aus denen dann die Transmissionswahrscheinlichkeiten $w(\theta)$ gewonnen werden können. Die Vernachlässigung der Dämpfung im Medium mit der geringeren Schallgeschwindigkeit führt zu keinem Fehler, da die aus dem Medium mit der höheren Schallgeschwindigkeit einlaufenden Wellen an der Grenzfläche nicht total reflektiert werden können, und somit auch keine Oberflächenwellen erzeugen, die infolge Dämpfung Energie in das Medium mit geringerer Schallgeschwindigkeit übertragen könnten. Die Integration der Transmissionskoeffizienten $w(\theta)$ über den Winkel gemäß (15) erfolgte mit einem Computerprogramm.

Es werden von Peterson und Anderson integrierte Transmissionskoeffizienten in Abhängigkeit vom Verhältnis λ/ℓ angegeben für Grenzflächen zwischen ^3He und Cu und für Grenzflächen zwischen verschiedenen Metallen und einem Epoxydharz (Epibond).

Bei der Integration von (2) über ω mit dem Ergebnis (4) wurde allerdings vorausgesetzt, daß die Transmissionswahrscheinlichkeit $w(\theta)$ frequenzunabhängig ist und damit vor das Integral gezogen werden konnte. Da in der Attenuated-Phonon-Theorie w auch frequenzabhängig ist, resultiert aus dieser Vereinfachung ein Fehler, der allerdings klein ist, wenn $w(\theta, \omega)$ im Bereich des Maximums der Funktion $\omega^3/(e^{\hbar\omega/kT} - 1)$ nur langsam mit der Frequenz variiert.

Mit Hilfe einer neuen Technik, der Erzeugung monochromatischer Phononen in supraleitenden Tunnelkontakten²³, ist es in jüngster Zeit gelungen, Transmissionskoeffizienten an Festkörper-Helium-Grenzflächen in Abhängigkeit von der Phononenfrequenz zu messen^{24, 25}. Zudem kann der Transmissionskoeffizient für longitudinale und transversale Phononen getrennt gemessen werden. Mit diesen Experimenten wird ein neuer Frequenzbereich in der Erzeugung von akustischen Wellen erschlossen. Sie versprechen darüber Aufschluß zu geben, warum die Theorie der akustischen Fehlanpassung, die im Frequenzbereich bis 1 GHz in guter Übereinstimmung mit dem Experiment ist¹², bei den Frequenzen der thermischen Gitterschwingungen zu weniger guten Resultaten führt.

4. Kapitzzawiderstand zwischen Festkörper und Helium

Obwohl nicht unmittelbar mit der vorliegenden Arbeit verknüpft, soll auf dieses Problem kurz eingegangen werden, da das Phänomen Kapitzzawiderstand experimentell und theoretisch hauptsächlich an Grenzflächen Festkörper-He II untersucht wurde. Die von Khalatnikov zuerst angebotene Erklärung der Phononenfehlankopplung wurde in seiner ursprünglichen Arbeit¹³ in etwas anderer Weise behandelt, als wir es in den beiden letzten Abschnitten gesehen haben. Khalatnikov betrachtete die Festkörperoberfläche als schwingende Membrane, die akustische Energie an das flüssige Helium abgibt. Die Bewegung der Oberfläche wird dabei durch aus dem Festkörper ankommende Phononen verursacht, für die vollständige Reflexion angenommen wird. Die Berechnung stimmt deswegen mit der exakten

Acoustic-Mismatch-Theorie überein, weil die akustischen Impedanzen $\rho \cdot c$ in Festkörper und Helium extrem verschieden sind, und damit die Annahme von vollständiger Reflexion einigermaßen gerechtfertigt ist. In einer späteren Arbeit behandelte Khalatnikov das Problem, wie wir es in Abschnitt 2 kennengelernt haben¹⁷.

Während die Acoustic-Mismatch-Theorie die richtige Temperaturabhängigkeit lieferte, lag der Absolutwert des Kapitzwiderstandes, zumindest im Temperaturbereich über 1 K, in dem alle früheren Experimente gemacht wurden, um 1-2 Zehnerpotenzen über den experimentell gefundenen Werten. Auch andere experimentelle Befunde werden falsch wiedergegeben: So erwartet man wegen der Änderung der Dichte des Heliums mit dem Druck eine starke Druckabhängigkeit von R_k , experimentell wird eine weit geringere Änderung gefunden²⁶. Es fehlte daher nicht an Versuchen, die Acoustic-Mismatch-Theorie zu verbessern bzw. nach zusätzlichen Mechanismen der Energieübertragung zu suchen (s. Rev.10).

Inzwischen hatten Experimente unterhalb 1 K gezeigt, daß der Wert für $R_k \cdot T^3$ bei 0.1 K etwa einen Faktor 10 höher liegt, als im oberen Temperaturbereich zwischen 1 und 2 K, und zwar sowohl für ^3He als auch für ^4He ²⁷. Die Übereinstimmung mit der Acoustic-Mismatch-Theorie ist also im unteren Temperaturbereich wesentlich besser.

Von Anderson und Johnson¹⁵ wurde als zusätzlicher Wärmetransportmechanismus eine Einteilchenanregung von Heliumatomen durch aus dem Festkörper ankommende Phononen vorgeschlagen: Infolge der Van-der-Waals-Wechselwirkung ist für einige Helium-Atomlagen nahe der Festkörperoberfläche eine Energieabsenkung vorhanden. Die hier interessierende Energieabsenkung Δ ist im wesentlichen die Energiedifferenz zwischen Positionen in der 2. und 3.Lage, da die 1.Lage zu fest gebunden ist, um bei Heliumtemperaturen angeregt werden zu können, während die 3.Lage bereits die Energie des bulk-Heliums besitzt. Die Energiedifferenz Δ kann dabei aus Messungen der van-der-Waals-Wechselwirkung gewonnen werden. Ein aus dem Festkörper auf der Grenzfläche auftreffendes Phonon mit einer Energie größer als Δ kann nun ein Atom der 2.Lage anregen. Die Wahrscheinlichkeit für den Prozeß wird dabei von Anderson und Johnson gleich eins gesetzt. Aus der (temperaturabhängigen) Anzahl der pro Zeiteinheit auf der Grenzfläche eintreffenden Phononen mit $\hbar\omega > \Delta$ kann der Wärmestrom leicht berechnet werden. Addiert man dazu den Wärmestrom nach der

Acoustic-Mismatch-Theorie und betrachtet wieder $R_k \cdot T^3$ als Funktion der Temperatur, so ergibt sich folgendes Bild: Unterhalb 0.1 K ist die Einteilchenwechselwirkung noch nicht wirksam, $R_k \cdot T^3$ ist eine durch die Acoustic-Mismatch-Theorie gegebene Konstante. Oberhalb 0.1 K macht sich zunehmend die Einteilchenwechselwirkung bemerkbar, $R_k \cdot T^3$ nimmt dadurch ab, um in der Gegend von 1 K wieder einen konstanten Wert zu erreichen, der um mehr als eine Zehnerpotenz unter dem Wert der Acoustic-Mismatch-Theorie liegt. Das Temperaturverhalten der experimentell gefundenen Werte für $R_k \cdot T^3$ wird dadurch gut wiedergegeben, die theoretische Kurve liegt allerdings immer noch um einen Faktor 3-5 zu hoch. Diese restliche Diskrepanz mag jedoch zumindest im unteren Temperaturbereich, wo die Einteilchenwechselwirkung noch keine Rolle spielt, durch das Attenuated-Phonon-Modell erklärt werden²². Im Temperaturbereich über 1 K dominiert jedoch die Einteilchenwechselwirkung bei weitem, und es ist nicht ohne weiteres ersichtlich, welchen Einfluß hier Oberflächeneffekte spielen sollten. Hier liegt offenbar noch eine Schwäche der Theorie der Einteilchenwechselwirkung, da $h_k = 1/R_k$ nur von der Anzahl der Phononen mit Energie größer als Δ abhängt, und damit nicht von irgendwelchen Oberflächeneffekten.

In einer neueren Arbeit von Opsal und Pollack²⁸ wird R_k nach der Acoustic-Mismatch-Theorie berechnet unter Berücksichtigung der Phonondämpfung im Festkörper und der zusätzlichen Annahme einer dichten Heliumschicht an der Grenzfläche. Diese führt zu einer Verbesserung der Phononenankopplung erst bei genügend kleinen Wellenlängen, also im oberen Temperaturbereich. Der Wert von $R_k \cdot T^3$ wird dadurch um einen Faktor 2-3 erniedrigt, liegt aber immer noch über dem Experiment. Addiert man jedoch den von Opsal angegebenen Wert von $h_k = 0.022 \text{ W/cm}^2$ zu der durch die Einteilchenwechselwirkung verursachten Kapitza-Leitfähigkeit¹⁵ $h_k = 0.028$, so erhält man für $R_k = 20 \text{ cm}^2 \text{ K/W}$ (alle Angaben beziehen sich auf Kupfer - ⁴He bei 1 K), was gut mit den Experimenten übereinstimmt.

Wie wir gesehen haben, ist es offenbar notwendig, mehrere verschiedene Mechanismen des Wärmetransports über eine Grenzfläche zu berücksichtigen, um zu einem quantitativen Verständnis des Kapitza-Widerstandes zu gelangen, insbesondere Energieabsorption aus Oberflächenwellen durch Phonondämpfung, Einteilchenwechselwirkung mit Heliumatomen, und die Verbesserung der Phononenankopplung

durch die dichtere Heliumoberflächenschicht. Die Trennung der verschiedenen Mechanismen, die teilweise noch empfindlich von der Oberflächenbeschaffenheit abhängen, ist experimentell' bisher nicht möglich, daher auch die vielen Irrwege bei der Deutung der experimentellen Ergebnisse.

C) EXPERIMENTELLER TEIL

1. Probenherstellung

Bei der Messung des Kapitzawiderstandes an Grenzflächen zwischen Festkörpern ist ein wesentliches Problem die Herstellung der Proben. Eine ideale Grenzfläche sollte glatt sein, die beiden Substanzen sollten extrem rein und durch die Grenzfläche sauber getrennt sein (d.h., es sollte keine Zwischenzone vorhanden sein), und dennoch sollten die beiden Materialien an jeder Stelle Kontakt haben. In der Praxis lassen sich diese Forderungen kaum gleichzeitig erfüllen. Ein Preßkontakt führt lediglich zur Berührung der Flächen an einzelnen Punkten, beim Verschweißen oder Verlöten von Metallen tritt zwangsläufig eine Übergangszone auf, in der die beiden Metalle ineinanderdiffundieren.

Am ehesten kann eine ideale Grenzfläche angenähert werden durch Aufdampfen oder Aufspütern des einen Materials auf das andere. Diese Technik eignet sich am besten zur Herstellung von Metall-Isolator-Grenzflächen (Saphir-Indium, Rubin-Kupfer), wenn man die Grenzfläche nicht einfach wie im Fall Kupfer-Epoxy durch Vergießen herstellen kann.

Zwischen zwei Metallen (hier Nb-Cu und NbTi-Cu) erzielt man eine saubere Verbindung mit einer minimalen Zwischenschicht durch Diffusionsschweißen.

Im letzten Teil dieses Abschnitts wird schließlich die Herstellung von gefüllten Epoxydharzproben für die Wärmeleitfähigkeitsmessungen behandelt.

1.1 Saphir-Indium-Proben

Die verwendeten synthetischen Saphire hatten Zylinderform von 6 mm \emptyset und 30 mm Länge. Sie wurden mit optisch polierten Endflächen und fein geschliffenem Umfang geliefert. Die Reinheit betrug nach Herstellerangabe* 99,99%. Über die Kristallorientierung

*Firma BIEG, Elzach/Schwarzwald und Firma Adolf Meller Co. Providence, Rhode Island / USA.

liegt nur von BIEG eine Angabe vor, und zwar Zylinderachse parallel $\pm 10\%$ zur C-Achse. Die Reinheit des Indium betrug nach Herstellerangabe (Firma Preussag, Goslar) 99,9999%.

Zur Herstellung der Saphir-Indium-Verbindung wurden verschiedene Techniken mit unterschiedlichem Erfolg angewandt; bei allen Varianten wird jedoch der unmittelbare Kontakt zwischen Saphir und Indium durch Aufdampfen bzw. Aufspütern im Vakuum, oder durch Ultraschallöten hergestellt. Die letztere Möglichkeit wurde, obwohl einfacher, zunächst nicht angewandt, da eine übermäßige Beanspruchung der Saphiroberflächenschicht (Aufreißen der Oberfläche) befürchtet wurde, sowie eine möglicherweise größere Verunreinigung des Indiums als beim Aufdampfen. Eine feste Verbindung ist nötig, da beim Abkühlen auf Heliumtemperatur erhebliche Spannungen infolge der unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten auftreten können. Insgesamt wurden 8 Proben hergestellt, sie werden im folgenden mit A bis H bezeichnet.

Versuche, auf eine auf den Saphir aufgedampfte Indiumschicht weiteres Indium im Vakuum aufzugießen, führten zu keinen befriedigenden Ergebnissen. Daher wurde bei den nächsten Versuchen in einer Kathodenzerstäubungsanlage zunächst eine Indiumschicht auf den Saphir aufgesputtert*, durch eine weitere im Vakuum aufgedampfte Schicht verstärkt und schließlich weiteres Indium im Vakuum aufgegossen. Bei der so hergestellten Probe A bestand jedoch nur eine schlechte Verbindung zwischen Saphir und Indium. Nach der zweiten Messung brach die Probe beim Umbauen auseinander und zwar so, daß noch ein Schimmer der aufgesputterten Schicht auf der Oberfläche des Saphirs zu sehen war. Wesentlich bessere Erfolge brachten folgende Methoden, mit denen die übrigen Proben hergestellt wurden:

Probenherstellung durch Aufdampfen und Aufpressen von Indium

Zum Aufdampfen wurde eine einfache Glasapparatur verwendet, die auf den Flansch eines Öldiffusionspumpstandes aufgesetzt wurde (Abb.3). Eine Glasglocke (70 mm Innendurchmesser) mit einer Drehdurchführung und einer angesetzten Ionisationsröhre bildete den Probenraum.

*Dies geschah im Institut für Reaktorbauelemente, zusammen mit den Herren E.Eggert, H.Schmidt und S.Müller.

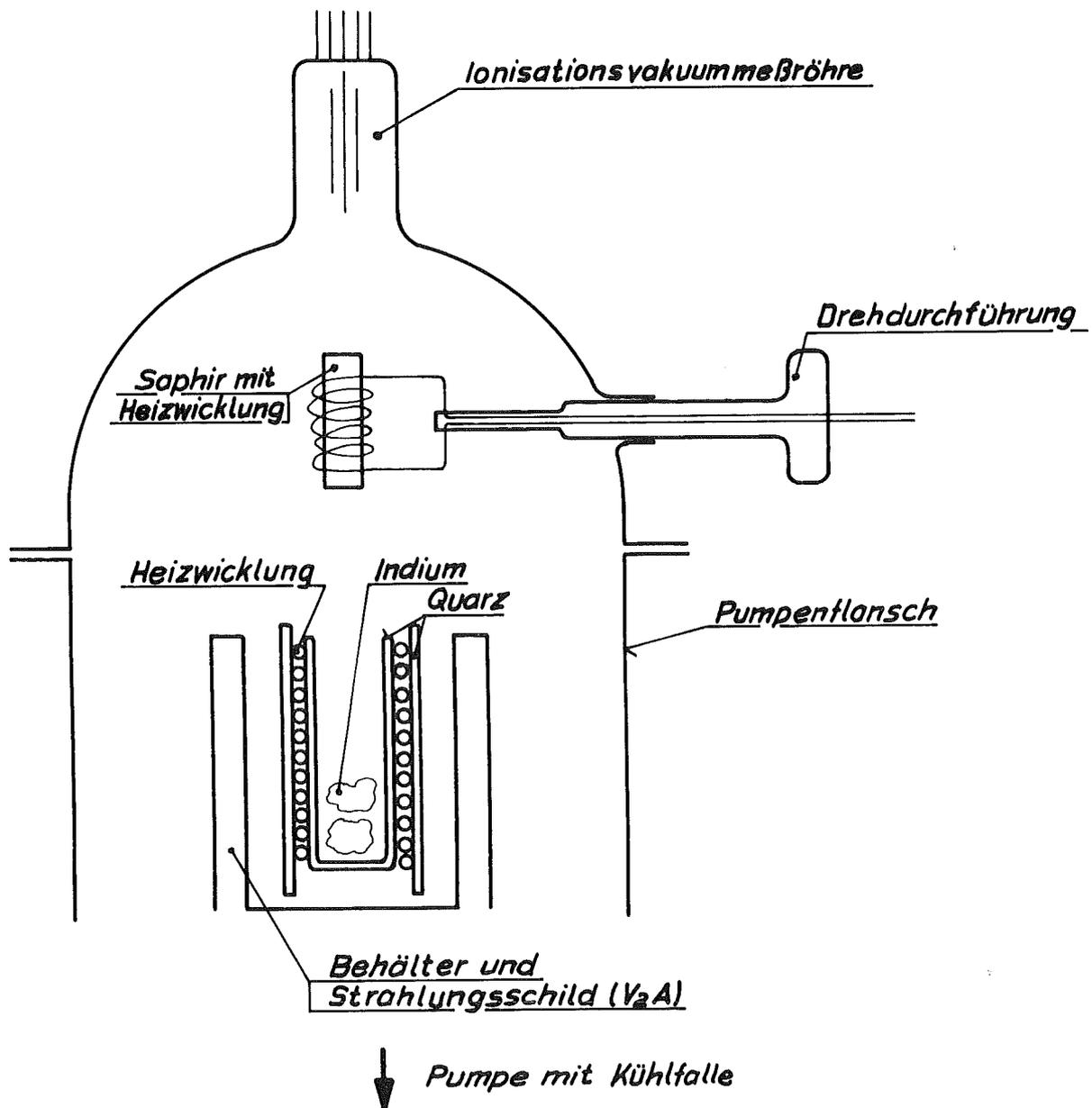


Abb. 3: Aufdampfapparatur (etwa Originalgröße)

Der Saphir ist mit einer Heizwicklung aus Molybdändraht versehen, die gleichzeitig zur Befestigung an der Drehdurchführung dient. Das Aufdampfgut befindet sich in einem Quarzröhrchen, das ebenfalls mit einer Heizwicklung versehen ist. Eine zweite Quarzröhre dient zur Isolation der Heizwicklung,

gleichzeitig aber als Strahlungsschild. Das ganze steht in einem doppelwandigen Behälter (Zwischenraum nach unten offen) aus V₂A-Stahl, dessen Wände weitere Strahlungsschilde darstellen, und der mit 3 dünnen Stäben am Pumpenflansch befestigt ist. Die Diffusionspumpe ist mit einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Kühlfalle versehen, an deren kalten Teil ein mit gekörnter Aktivkohle gefülltes Kupfernetz angelötet ist. Wenn die Aktivkohle zuvor im Vakuum ausgeheizt wurde, konnte mit dieser Anordnung im Probenraum ein Vakuum von $0.5 \cdot 10^{-6}$ Torr erzielt werden.

Die Endflächen der Sapphire wurden zum Teil, um den Einfluß der Oberflächenrauigkeit zu studieren, mit Diamantschmirgel verschiedener Körnung behandelt, die übrigen wurden so verwandt wie erhalten, d.h. mit optisch polierter Oberfläche.

Vor dem Einbauen wurden die Sapphire in einem mit Aceton gefüllten Ultraschallbad einige Minuten gereinigt, dann im Vakuum etwa 1 h bei einigen hundert °C ausgeheizt. Zum Aufdampfen muß das Indium auf etwa 900 - 1000°C aufgeheizt werden, 1-2 Minuten genügte, um eine dicke Aufdampfschicht zu erzeugen. Durch die drehbare Aufhängung des Saphirs konnten beide Stirnflächen bedampft werden. Das Ergebnis war jeweils eine dicke, fest haftende Aufdampfschicht, zuweilen mit perliger Oberfläche. Bei einigen Versuchen wurde der Saphir beim Bedampfen so warm, daß die Aufdampfschicht flüssig wurde (Indium schmilzt bei 156°C). Es zeigte sich jedoch, daß dadurch die Haltbarkeit nicht litt.

Die thermische Ankopplung an die aufgedampfte Indiumschicht erfolgte durch Zusammenpressen zweier Sapphire mit einer Indiumzwichenschicht, oder durch Aufpressen des Saphirs auf den vorher ver"indiumten" Probenträger aus Kupfer oder die Heizspule (Abb. 4). Dabei wurde der größte Teil des als Zwischenschicht verwendeten Indiums wieder seitlich aus der Probe herausgepreßt, die Geschmeidigkeit von Indium erlaubt dies bei nicht zu hohen Drücken. Durch das "Fließen" des Indiums wird ständig neue Oberfläche gebildet, so daß die verschiedenen Indiumteile vollständig verschweißt sein sollten. Im Allgemeinen (außer bei Probe F) wurde zusätzlich ein dünner 0.2 mm Ø) ver"indiumter" Kupferdraht mit in die Schicht

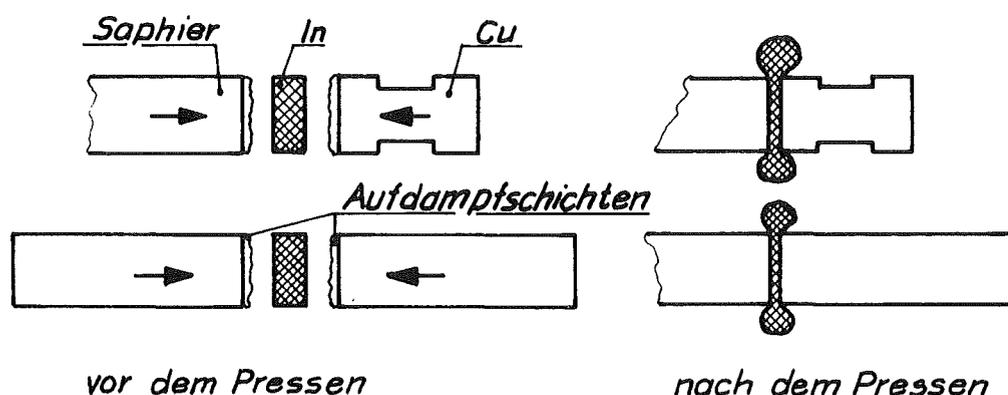


Abb. 4: Herstellung der Saphir-Indium-Proben

eingepreßt, der später zur Ankopplung der Kohlewiderstände diente. Überschüssiges Indium wurde ebenso wie Aufdampfschichten an den Seiten der Saphire sorgfältig entfernt. Proben B bis F wurden so hergestellt.

Für Probe B wurde derselbe Saphir wie bei A verwendet, die noch sichtbare Sputterschicht auf der Oberfläche wurde vor dem Aufdampfen nicht entfernt. Der hohe Kapitzawiderstand zeigte, daß auch hier keine gute Verbindung vorlag.

Probe C bestand aus 2 Saphiren mit dazwischengepreßter Indiumschicht, eine Saphiroberfläche war dabei vor dem Aufdampfen ebenfalls mit einer Sputterschicht versehen worden.

Für Probe E wurde wiederum derselbe Saphir wie bei A verwendet, jedoch wurden diesmal zuvor alle Indiumreste von der Oberfläche entfernt, zudem wurde die Rückseite mit 30 μ Diamantpaste aufgeraut und ebenfalls mit Indium versehen. An einer Seite dieser Probe wurde mit Hilfe einer PVC-Form ein 5 mm langer Indiumzylinder aufgepreßt, um die Wärmeleitfähigkeit des kaltverformten Materials messen zu können.

Probe D, mit Heizungen an beiden Seiten versehen, diente der Messung von R_k bei umkehrbarem Wärmestrom.

Bei Probe F wurde, da es auf eine sehr dünne Indiumschichtdicke ankam, und es aussichtslos erschien, bei vernünftigem Druck die Indiumschicht auf weniger als 50 μ zusammenzupressen, die beiden Saphire mit den aufgedampften, sehr dicken Schichten

gegeneinander im Vakuum (10^{-5} Torr) und bei einer Temperatur über dem Schmelzpunkt des Indiums zusammengepreßt. Ein Quarzröhrchen mit Heizwicklung diente dabei als Führung. Die Indiumschicht der Probe war schließlich 38μ stark.

Probenherstellung durch Ultraschallöten

Dieses Verfahren wurde angewandt, um Experimente anderer Gruppen^{2,4} mit ultraschallgelöteten Proben reproduzieren zu können.

Dabei wird ein (wie üblich geheizter) LötKolben von einem Ultraschallgenerator in Schwingungen versetzt. Die damit auf einen Saphir aufgelötete Indiumschicht zeigt eine sehr gute Haltbarkeit. Zur Herstellung von Probe G wurde der Saphir mit aufgelöteter Indiumschicht mit weiterem Indium in eine Quarzröhre mit aufgewickelter Heizspirale gesteckt und das Indium bei 10^{-5} Torr aufgeschmolzen. Die fertige Probe bestand aus dem Saphir mit einem ca. 7 mm langen Indiumzylinder. Die Probe war so stabil, daß beim Biegeversuch der Indiumteil gebogen werden konnte, ohne vom Saphir abzubrechen.

Probe H wurde auf dieselbe Weise hergestellt, nur wurde die Spitze des UltraschalllötKolbens mit einer Quarzkappe versehen, um sicherzugehen, daß beim Lötvorgang nicht Spuren des LötKolbenmaterials das Indium verunreinigen.

In Tabelle III auf S.65 ist eine Zusammenstellung aller Proben zu sehen.

1.2 Rubin-Kupfer(+Mangan) Proben

Rubine sind Al_2O_3 -Kristalle mit geringem Zusatz von Cr_2O_3 . Die verwendeten synthetischen Rubine (Fa. BIEG) enthielten 0.5 at. % Cr_2O_3 , sie hatten Zylinderform, 15 mm lang und 5 mm \emptyset . Eine Aufdampf- und Preßtechnik wie bei Indium kommt natürlich bei Kupfer nicht infrage. Daher wurde eine Aufdampf-Verschmelz-Methode angewandt:

Die zum Aufdampfen von Kupfer nötige Temperatur ($1100-1200^{\circ}C$) konnte in der zuvor besprochenen Apparatur erzielt werden. Eine Cu + 100 ppm Mn-Legierung war vorhanden, die Rubine wurden wie üblich jeweils im Ultraschallbad gereinigt.

Da in Vorversuchen eine normale Aufdampf- und Vergießtechnik ähnlich wie bei Indium keinen Erfolg brachte, wurde der Rubin einfach über die Cu-Mn-Legierung in das Quarzröhrchen gestellt (Abb. 5). Danach wurde (wieder im Vakuum) die Temperatur weit über den Schmelzpunkt des Kupfers erhöht. (Die Glasglocke zeigte eine leichte Cu-Aufdampfschicht). Nach langsamem Abkühlen und nach Zerstörung des Quarzröhrchens konnte die Probe entnommen werden. Das Metall war mit dem Rubin an etwa $3/4$ der Oberfläche fest verbunden, im Kupfer war seitlich eine Höhlung, die etwa 25% der Rubinoberfläche freiließ.

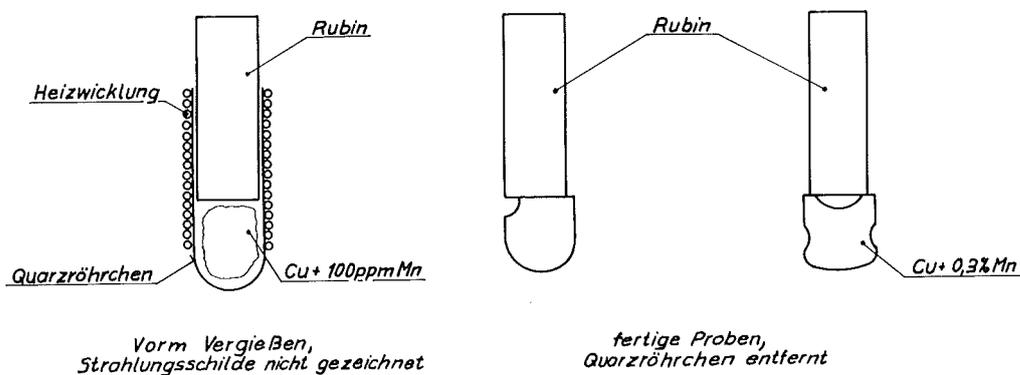


Abb. 5: Herstellung der Rubin-Cu+Mn-Proben

Ebenso wurde eine Rubin-Cu + 0.3% Mn-Probe hergestellt, sie zeigte eine große Höhlung in der Mitte der Verbindungsstelle, so daß etwa $1/4$ - $1/3$ der Rubinoberfläche Kontakt hatte.

1.3 Cu-Nb- und Cu-NbTi-Proben

Eine feste Verbindung zweier Metalle wird i.A. durch Verschweißen erreicht. Dabei gehen jedoch an der Schweißstelle beide Metalle in die flüssige Phase über und bilden eine relativ breite, meist unregelmäßige Zwischenschicht. Ein Verfahren, bei dem die Metalle nicht in die flüssige Phase übergehen und auch mechanisch nicht (oder nur sehr wenig) verformt werden, ist das Diffusionsschweißen: Die beiden Werkstücke werden mit den zu verschweißenden, gut polierten Oberflächen, mit nur geringem Druck zusammengepreßt und im

Vakuum oder unter Schutzgas auf eine Temperatur erhitzt, die unter den Schmelzpunkten der beiden Metalle liegt. Die Diffusion erfolgt durch Platzwechsel der Gitterbausteine unter Benutzung von Fehlstellen oder Zwischengitterplätzen. Der angewendete Druck sorgt lediglich für eine Berührung der Flächen an jeder Stelle, er kann umso kleiner sein, je geringer die dazu nötige Verformung des Materials ist. Die Diffusionszeit richtet sich nach der Größe des Diffusionskoeffizienten, der mit der Temperatur etwa $\sim e^{-1/T}$ ansteigt. Für die Kombination Cu-Nb und Cu-NbTi konnten keine experimentellen Werte für den Diffusionskoeffizienten gefunden werden, daher ist eine Abschätzung der Diffusionsschichtdicke nicht möglich. Für die Schweißtemperatur wird i.A. ein Wert empfohlen, der etwa $3/4$ der Schmelztemperatur des Metalls mit dem niedrigeren Schmelzpunkt beträgt²⁹. Es wurde daher eine Temperatur von 850°C (Schmelzpunkt Cu 1083°C , Nb 2500°C) gewählt.

Ein Zylinder von 25 mm Länge und 5 mm Durchmesser aus Niob (99.8%) wurde in einem UHV-Ofen bei 1850°C und 10^{-9} Torr ausgeheizt. Eine Endfläche des Stabes wurde mechanisch poliert, danach elektropoliert.* Ein ebensolcher Zylinder aus OFHC-Kupfer wurde an einem Ende mechanisch poliert. Die Herstellung der Cu-Nb-Probe kann anhand von Abb. 6 erläutert werden:

In einem Metallrezipienten ist an 3 Stäben eine Metallscheibe aufgehängt, von oben ragt eine verschiebbare Durchführung in den Rezipienten hinein. Die beiden Probenteile stecken in Keramikteilen, die auf der Scheibe bzw. an der Durchführung befestigt sind. Die Heizung besteht wieder aus einem Quarzrohr mit aufgewickelter Molybdändraht. Zur Temperaturmessung ist ein Thermoelement wenige mm von der Grenzfläche entfernt an dem Kupferzylinder angebracht.

Zunächst wurden die Probenteile bei 10^{-6} Torr und $350-400^{\circ}\text{C}$ einige Stunden ausgeheizt, dann wurde die Temperatur auf 850°C erhöht, die Teile zusammengeführt und die Durchführung mit einem Gewicht belastet, mit dem ein Druck von etwa 0.5 kp/mm^2 ausgeübt wurde. Nach einer Diffusionsschweißzeit von 5 Minuten wurde die Heizung abgeschaltet.

*Das Elektropolieren wurde von Herrn Piosczyk, IEKP, vorgenommen.

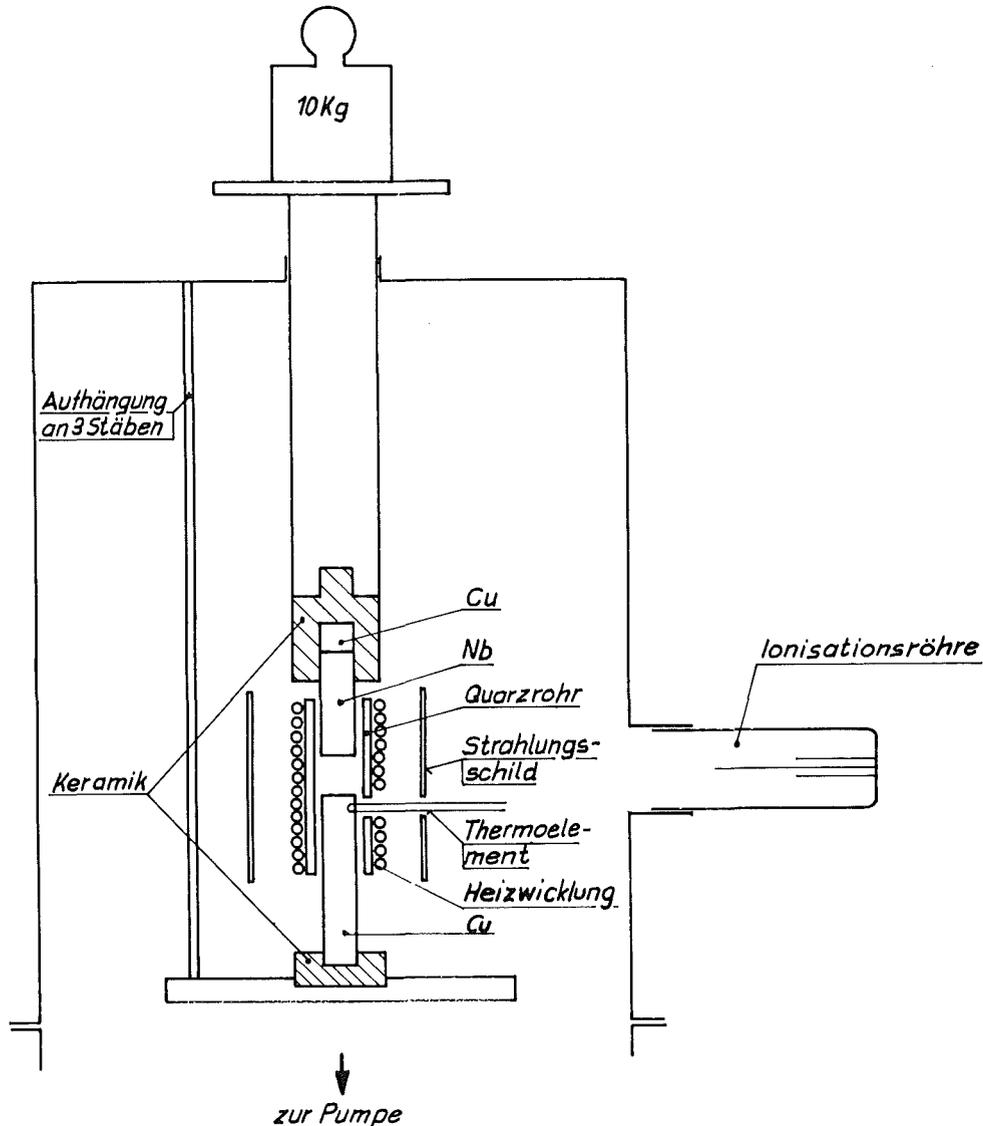


Abb. 6: Apparatur zum Diffusionsschweißen

Die fertige Probe hatte eine Gesamtlänge von 50 mm (auf die Rückseite des Niob-Zylinders war gleichzeitig eine dünne Kupferscheibe zum späteren Anlöten einer Heizspule diffusionsgeschweißt worden). Sie wurde in Längsrichtung von 2 Seiten über die ganze Länge angeschliffen. Die Betrachtung der Grenzfläche unter dem Mikroskop zeigte eine glatte Grenzfläche und eine gute Verbindung über die ganze Breite des Schliffs. Eine Abschätzung der Dicke der Diffusionsschicht aus Schliffbildern ist insofern schwierig, weil sich beim Schleifen und Polieren infolge der unterschiedlichen Härten der Metalle an der Nahtstelle eine Stufe ergibt. Eine Aufnahme der polierten und geätzten Oberfläche in 800-facher Vergrößerung

ist in Abb. 7a zu sehen: Die scheinbaren Löcher an der Nahtstelle entstehen beim Ätzen, da Nb und Cu verschieden stark angegriffen werden. Eine obere Grenze für die Dicke der Diffusionsschicht von 1-2 μ mag realistisch sein. Der Niobteil der Probe bestand aus wenigen, einige mm großen Kristalliten. Auf der Kupferseite sind viele kleinere Bereiche zu erkennen (Abb. 7b, 160-fache Vergrößerung, geätzt). Bei der ausgeprägten schwarzen Linie an der Nahtstelle handelt es sich um den Schatten der durch das Polieren entstandenen Stufe (Schräglichtaufnahme).

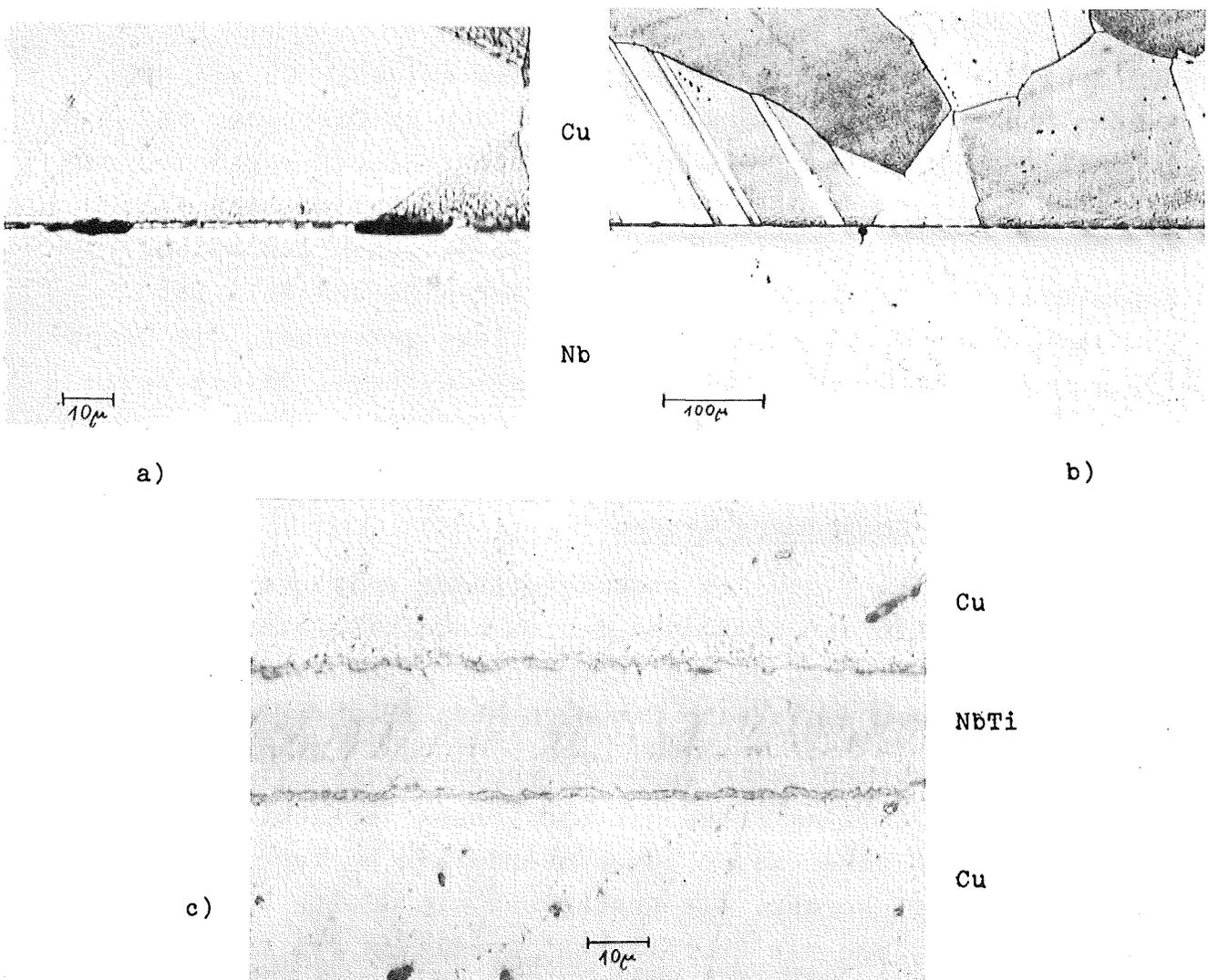


Abb. 7: Schliffbilder der Nb-Cu-Probe (a und b), und der NbTi-Cu-Probe (c).

Zur Herstellung der NbTi-Cu-Probe wurde eine dünne NbTi-Folie zwischen zwei Kupferzylinder (5 mm Ø) in derselben Weise diffusionsverschweißt, so daß die Folie an allen Seiten aus der Probe herausragte. Ein Kontakt der beiden Kupferteile war damit ausgeschlossen. Wegen der geringen Wärmeleitfähigkeit von NbTi muß die Schichtdicke möglichst gering sein, andernfalls würde der Temperaturabfall über das NbTi den Kapitzwiderstand an den Grenzflächen überdecken. Eine NbTi-Folie von ca. 18µ Stärke konnte durch mechanisches Abschleifen eines 60µ dünnen NbTi-Blechtes (50 Gew.% Ti) erhalten werden. Die Diffusionsschweißzeit betrug 15 min.

Auf Schliffbildern ist die Übergangszone zwischen Cu und NbTi wesentlich besser zu erkennen, als bei der Nb-Cu-Probe, da offenbar die Ausbildung einer Stufe beim Polieren wegen der nur geringen Dicke der NbTi-Folie fast ganz unterblieb. Abb. 7c, ($\times 1000$, ungeätzt) zeigt die NbTi-Folie zwischen den beiden Kupferhälften. An den Nahtstellen zwischen Cu und NbTi ist deutlich eine Übergangszone von 1-2µ Dicke erkennbar. Die Grenzflächen sind nicht glatt wie bei der Nb-Cu-Probe, da die NbTi-Folie vor dem Verschweißen mechanisch bearbeitet wurde.

1.4 Kupfer-Epoxydharz-Proben

Die direkte Messung des Kapitzwiderstandes zwischen Epoxydharz und Kupfer diente der Ergänzung der Wärmeleitfähigkeitsmessungen an mit Kupferpulver gefüllten Epoxydharzen. Ähnlich wie bei den NbTi-Cu-Messungen wurde eine Sandwich-Methode angewandt:

Auf eine Kupfergrundplatte wurden 3 Kupferstücke mit einer Oberfläche von $7 \times 12 \text{ mm}^2$ Größe mit Epoxydharz verklebt (Abb. 8). Die Kupferoberflächen waren zuvor mechanisch poliert und mit Aceton entfettet worden. Als Abstandsstücke diente 10.5µ Hostaphanfolie, die die Oberflächen jeweils zu 25% bedeckte. Es wurde das gleiche Harz verwendet wie bei den Wärmeleitfähigkeitsmessungen, CY 221 + Härter HY 979 im Verhältnis 10 : 3. Während des Aushärtens bei 60°C wurden die Proben gepreßt. Nach dem Aushärten hatte einer der Kupferblöcke Kurzschluß mit der Grundplatte. Der Übergangswiderstand betrug ca. 20 mΩ.

Die drei Kupferstücke wurden nun mit Heizspulen versehen, und an jeden der Kupferblöcke wurden in der Nähe der Grenzflächen

die Kohlewiderstände angekoppelt. An der Grundplatte, die später an den Innenkryostaten angeschraubt wurde, wurde die Temperatur nur an einer Stelle mit einem Germaniumwiderstand gemessen.

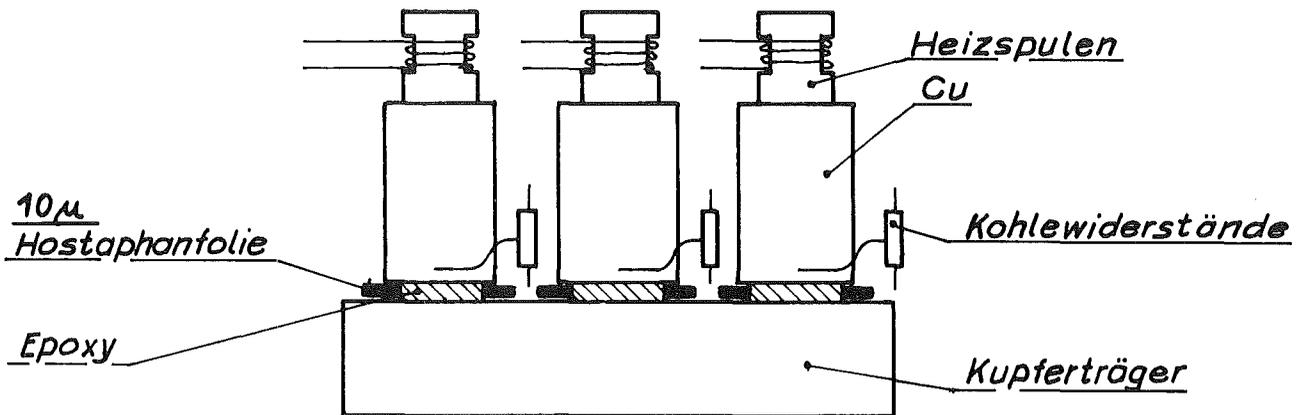


Abb. 8: Kupfer-Epoxydharz-Proben

1.5 Gefüllte Epoxydharzproben

Zur Messung der Wärmeleitfähigkeit von mit Kupferpulver gefüllten Epoxydharzen wurden Proben mit verschiedener Korngröße und Füllgrad hergestellt.

Im Handel erhältliches Kupferpulver (Reinheit 99.7%, fettfrei) wurde in einem sogenannten Zickzacksichter in Korngrößen zwischen 5 und 30 μ zerlegt. Bei diesem Verfahren passieren die Körner die radial verlaufenden Kanäle eines schnell rotierenden Rades. Ein Gebläse erzeugt gleichzeitig einen Luftstrom durch die Kanäle zum Zentrum des Rades hin. Auf die Teilchen wirkt also die Zentrifugalkraft (~Volumen) und die durch den Luftstrom erzeugte Gegenkraft (~Oberfläche), die schweren Körner sammeln sich außen, die leichten innen. Über die Drehzahl und die Geschwindigkeit des Luftstroms kann die Trenngrenze eingestellt werden. Die Kanäle in dem Rad haben Zickzackform. In jedem einzelnen Bogen findet infolge von Wirbelbildung eine Korngrößentrennung statt. Durch mehrmaliges Sichten wurde das Ausgangsmaterial in 8 verschiedene Körnungen zerlegt, 5 Korngrößen wurden bei den Experimenten verwendet.

Eine Korngrößenanalyse dieses Materials wurde mithilfe eines Photosedimentometers durchgeführt: Dabei wird die Sinkgeschwindigkeit des Pulvers in einer Sedimentationsflüssigkeit (in unserem Fall Wasser mit einem Zusatz Natriumpyrophosphat) gemessen. Durch ein Proberöhrchen mit der Suspension tritt ein Lichtstrahl, dessen Intensität mit einem Fotoelement gemessen wird. Ist die Suspension zu Beginn gleichmäßig durchmischt, so läßt sich aus der zeitlichen Änderung der Lichtintensität die Verteilung der Sinkgeschwindigkeit und damit nach dem Stokes'schen Gesetz die Korngrößenverteilung ermitteln. In Abb.9 ist der Volumenanteil pro μ über der Korngröße für 4 Proben aufgetragen. Die bei jeder Kurve angegebene Zahl gibt die Korngröße mit maximalem Volumenanteil an, sie dient im folgenden gleichzeitig der Charakterisierung der einzelnen Proben. (Genau betrachtet handelt es sich bei diesen Korngrößen um den Äquivalentdurchmesser von Kugeln mit gleicher Sinkgeschwindigkeit wie die realen Teilchen.)

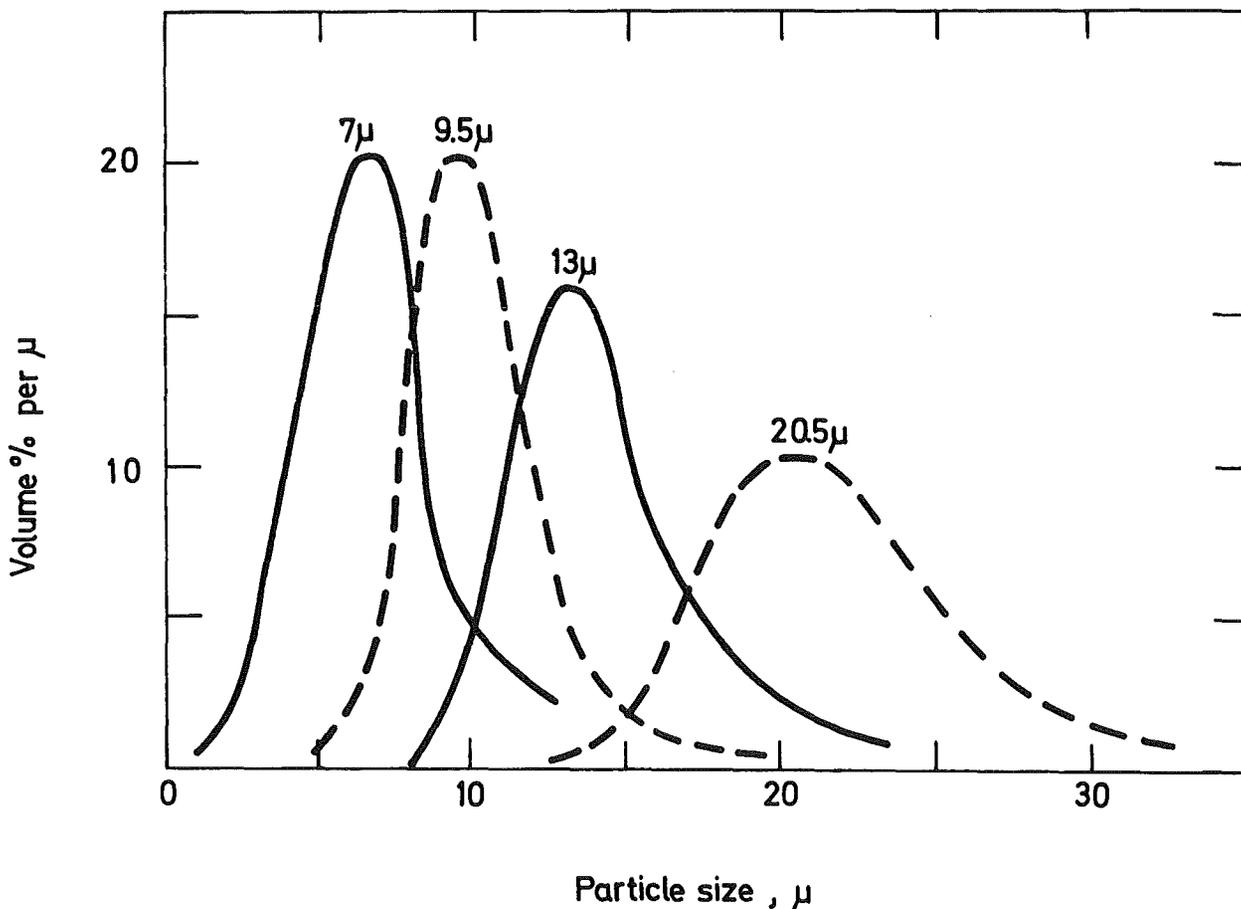


Abb. 9: Korngrößenverteilungen des für die gefüllten Epoxydharzproben verwendeten Kupferpulvers.

Für die 5. Probe (28μ) war diese Art der Korngrößenanalyse nicht mehr anwendbar, da bei zu großen Teilchen wegen der hohen Sinkgeschwindigkeit eine gleichmäßige Durchmischung praktisch nicht mehr möglich ist. (Prinzipiell ist es jedoch möglich, durch Verwendung einer Sedimentationsflüssigkeit mit größerer Viskosität auch groberes Material zu analysieren.) Die mittlere Korngröße dieser Probe konnte jedoch aus der Umdrehungszahl des Zickzacksichters bestimmt werden, für den eine Eichkurve (Trenngrenze in Abhängigkeit von der Drehzahl) für ein Material mit geringerer Dichte als Kupfer vorlag. Das Verhältnis zwischen der aus der Eichkurve abgelesenen zur wahren Korngröße war für die vier analysierten Proben jeweils gleich, so daß auf diese Weise die Korngröße mit max. Volumenanteil der 5. Probe zu 28μ bestimmt werden konnte.

Verwendet wurde ein Bisphenol-A-Harz mit der Bezeichnung CY 221 und ein aromatischer Amin-Härter HY 979 im Verhältnis 10:3. Es härtet bei $50-60^{\circ}\text{C}$ in einigen Stunden aus und verhält sich bei Zimmertemperatur etwas flexibel. Beide Komponenten wurden ca. $1/2$ h bei einem Druck von einigen Torr entgast, sodann mit einem Rührwerk vermischt und anschließend noch einmal kurz entgast. Das Gemisch bleibt bei Zimmertemperatur einige h verarbeitungsfähig, bei Lagerung im Kühlschrank etwa einen Tag.

Das Mischen mit dem Kupferpulver erfolgte in einer Vakuumapparatur, um ein Einbringen von Luftbläschen zu vermeiden (Abb. 10).

Zunächst wurde eine abgewogene Menge Kupferpulver in das Becherglas gefüllt und eine $1/2 - 1$ h mit einer Diffusionspumpe entgast. Nun wurde das Ventil zur Pumpe geschlossen und durch Öffnen des Hahnes am Meßglas die gewünschte Menge des Harz-Härter-Gemisches eingelassen. Gleichzeitig wurde das Rührwerk in Betrieb gesetzt und das Becherglas mit einem Föhn erwärmt, um die stark temperaturabhängige Viskosität des Harzes zu verringern und eine gute Durchmischung zu gewährleisten.

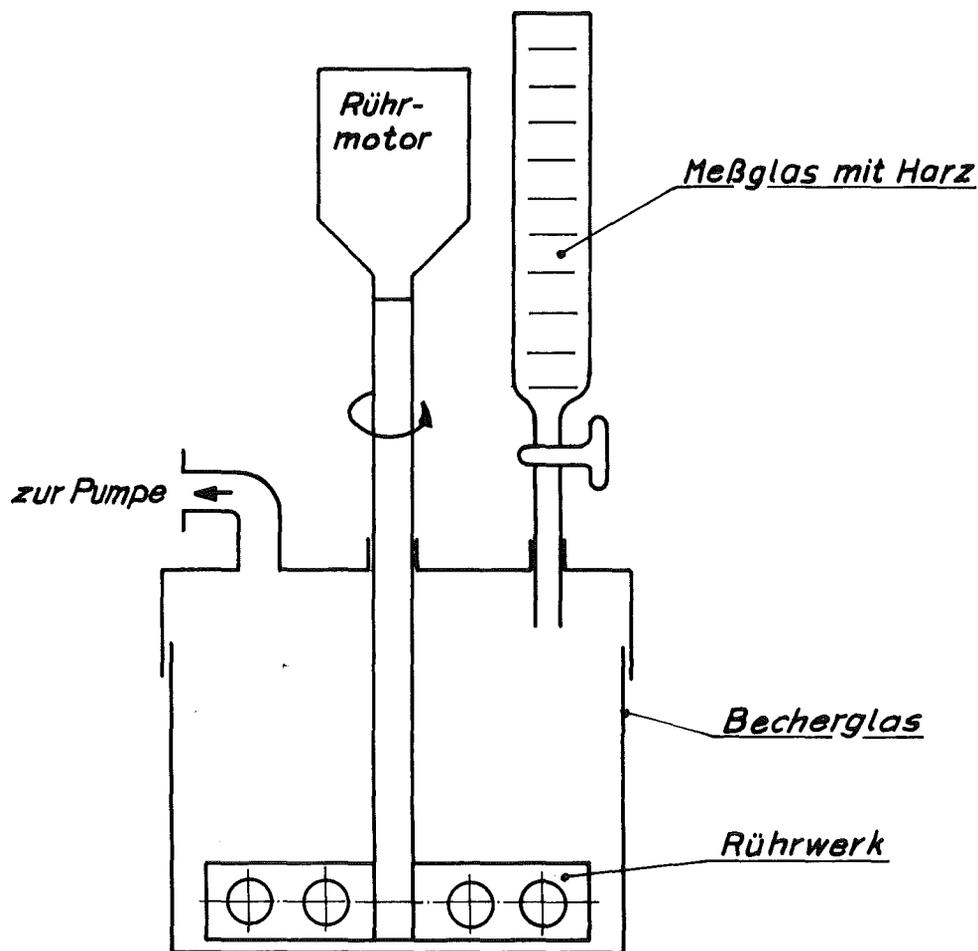


Abb. 10: Vakuumapparatur zum Anrühren gefüllter Epoxydharze (schematisch)

Nach einigen Minuten Rühren wurde das Becherglas mit Eiswasser gekühlt, denn während der Zeitspanne von etwa 1 min zwischen Abschalten des Rührwerkes bis zum Rotieren der vergossenen Proben sollte keine Sedimentation stattfinden. Die Viskosität des Harzes beträgt bei Temperaturen unter 20°C weit über 10 Poise^{30} und eine Abschätzung zeigt, daß auch bei der größten Körnung (28μ) nur ein Absinken der Teilchen von weniger als 1 mm/min zu erwarten ist.

Nach Abschalten des Rührwerks wurde also die Apparatur belüftet und geöffnet. Das Gemisch aus Harz und Kupferpulver wurde in Reagenzgläser bzw. in flache Formen abgefüllt und diese gut abgedichtet auf einer Drehvorrichtung angebracht.

Während des Aushärtens (über Nacht bei ca. 55°C) wurden die Proben mit 8 Umdr./min rotiert, um eine Sedimentation zu verhindern. Die ausgehärteten Proben hatten Zylinderform (2.5 cm Länge, 1.2 cm Ø) bzw. Quaderform (ca. 1.7×0.9×0.4 cm).

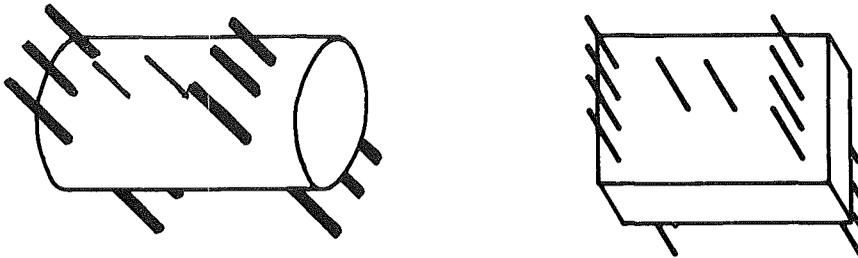


Abb. 11: Gefüllte Epoxydharzproben

Sie wurden an jedem Ende mit 3 oder 4 parallelen Bohrungen (1-2 mm Ø) versehen, in die passende Kupferdrähte mit GE 7031 Tieftemperaturkleber eingeklebt wurden (Abb. 11). Diese Drähte dienten zur Wärmezufuhr- und Abfuhr, also zur Ankopplung der Heizspule an die Probe und der Probe an den Probenträger. In zwei weitere Bohrungen von 0.4 mm Ø, die in etwa 7 mm Abstand voneinander auf dem mittleren Drittel der Probe angebracht wurden, wurden Kupferdrähte zum Ankoppeln der Widerstandsthermometer eingeklebt.

Die genaue Zusammensetzung der Proben wurde durch Abmessen und Wiegen jeder Probe (Bestimmung der mittleren Dichte) und den bekannten Werten der Dichte von Kupfer (8.96 g/cm³) und Harz (1.1 g/cm³) berechnet.

Weiter wurde untersucht, ob die Proben bei hohem Füllgrad elektrisch leitend werden. Es wurde die übliche Meßmethode zur Messung großer Widerstände angewandt: Entladung eines Kondensators über den Widerstand. Der spezifische elektrische Widerstand war bei allen Proben größer als $3 \cdot 10^{12}$ Ωcm.

Insgesamt wurden 2 Serien von Proben hergestellt: Proben gleicher Korngröße, aber mit unterschiedlichem Füllgrad, und Proben mit (fast) gleichem Füllgrad, aber verschiedener Korngröße (Tabelle I). Zusätzlich wurden 2 ungefüllte Harzproben bei den Messungen verwendet.

Tabelle I: Korngröße und Füllgrad der verwendeten Epoxydproben

Füllgrad [Vol.%] Korngröße 13 μ	12.8	20.5	24.5	45.7	53.5	Quaderform
Korngröße [μ] Füllgrad [Vol.%]	7	9.5	20.5	28	26.9	Zylinderform

2. Experimenteller Aufbau

2.1 Kryostat und Magnet

Die Experimente wurden in einem 10 l Kryostaten mit 12 cm Innendurchmesser durchgeführt. Ein Einsatzkryostat von 0.3 l Inhalt, der über ein Kaltventil aus dem äußeren Heliumvolumen gefüllt wird, kann über eine Pumpleitung auf etwa 0.95 K abgepumpt werden (Abb. 12). Der äußere Heliumkryostat für das 4.2 K Bad, der wiederum von einem Mantel mit flüssigem Stickstoff umgeben ist, ist der Übersichtlichkeit halber nicht eingezeichnet. Die Pumpleitung, die sich nach unten in mehreren Stufen verjüngt, ist unten von einer Scheibe mit einer polierten 3 mm Bohrung abgeschlossen. Durch diese Maßnahme soll der Filmfluß von He II, der wesentlich für die erreichbare Temperatur verantwortlich ist, niedrig gehalten werden. Eine Kapillare zur Druckmessung ragt bis in den Innenkryostaten hinein. Der Behälter für das innere Heliumbad besteht aus Kupfer, um Temperaturschichtungen im Helium oberhalb des λ -Punktes gering zu halten. An seine

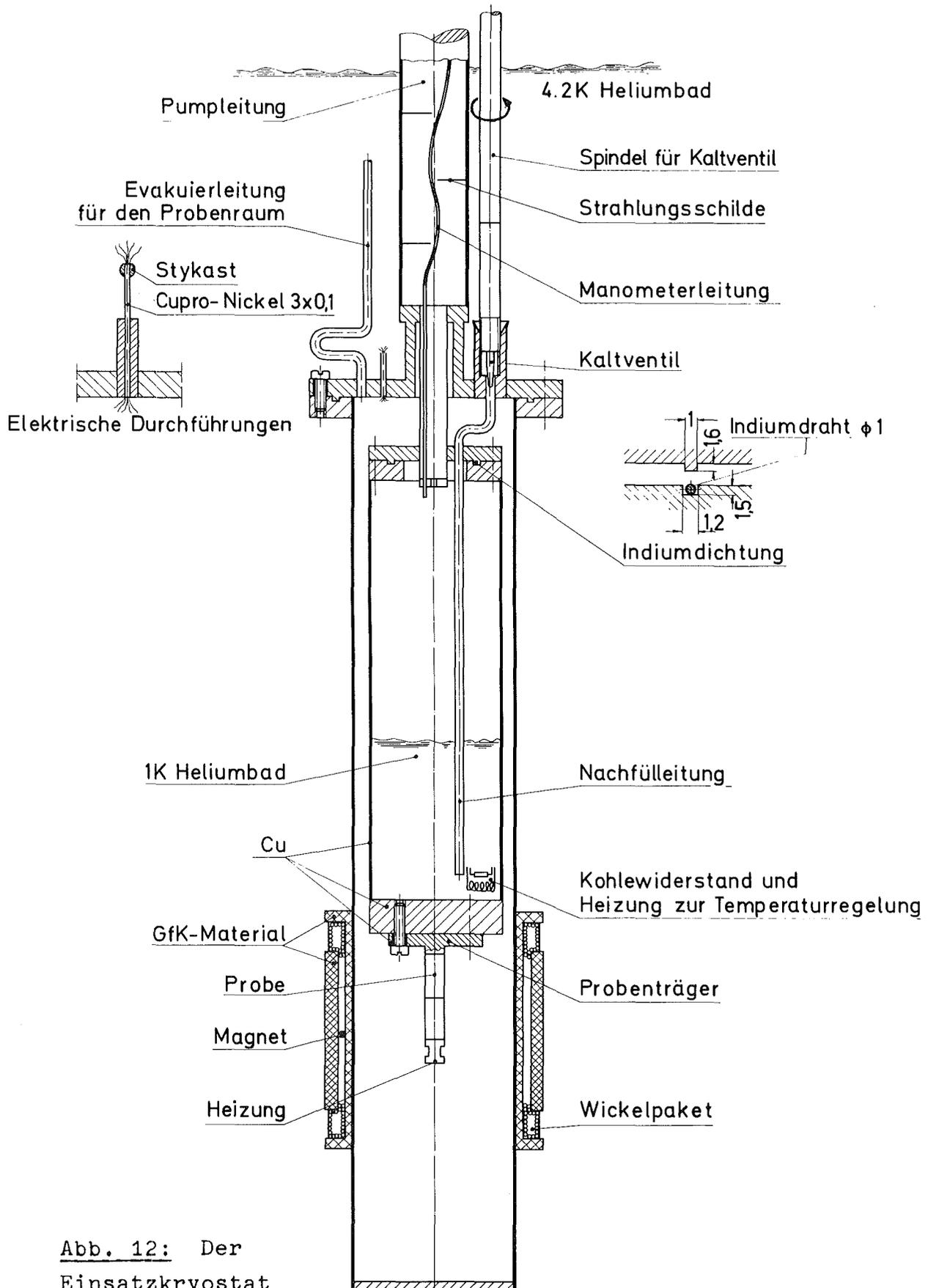


Abb. 12: Der Einsatzkryostat

Bodenplatte wurden die Probenträger angeschraubt. Um einen guten Wärmekontakt zwischen Boden und Probenträger zu gewährleisten, wurden die Oberflächen beider Teile vergoldet.

Der Zwischenvakuumraum zwischen äußerem und innerem Heliumbad dient gleichzeitig als Probenraum. Er wurde jeweils nach Einbau der Probe bei Zimmertemperatur mit einer mechanischen Pumpe evakuiert und dann das Ventil der Evakuierleitung geschlossen. Pumpen während des Experiments war nicht notwendig, da bei 4.2 K alle Restgase außer Helium vollständig ausfrieren. Die Heliumdichtigkeit der Apparatur wurde regelmäßig bei jedem 2. oder 3. Experiment getestet, indem an das Zwischenvakuum ein Lecksucher angeschlossen wurde, insbesondere, um die Zuverlässigkeit der Indiumdichtungen zu überprüfen. Mit dem Lecksucher, der eine Nachweisempfindlichkeit von etwa $4 \cdot 10^{-10}$ Torr l/sec hatte, konnte in keinem Fall ein Heliumeinstrom in das Zwischenvakuum nachgewiesen werden, auch wenn der Innenkryostat unter den λ -Punkt abgepumpt wurde.

Zum Abpumpen stand ein hauseigenes fest installiertes Heliumabsaugsystem zur Verfügung, dessen Saugleistung mithilfe von vorgeschalteten groben und feinen Ventilen beliebig eingestellt werden konnte. Zum Füllen des Innenkryostaten wurde bei geöffnetem Kaltventil gepumpt.

Für das Abkühlen des gesamten Kryostaten wurden ca. 5l flüssiges Helium benötigt, bei Vorkühlung mit flüssigem Stickstoff weniger als 2 l.

Zur Erzeugung eines Magnetfeldes im Probenraum diente ein kleiner supraleitender Solenoid aus NbTi-Multifilamentleiter in Kupfermatrix (0.2 mm Außendurchmesser). Die Spule hatte 5 Lagen, an beiden Enden zusätzlich 5 Korrekturlagen, eine Länge von 8.8 cm und eine Bohrung von 6 cm. Die Feldhomogenität des Magneten war in einem Zylinder von 2.5 cm Länge und 4 cm \emptyset besser als 1%. Beim maximalen Strom von 48 A erzeugte der Magnet im Zentrum ein Feld von 12 kOe.

Der Magnet konnte mit einem supraleitenden Schalter kurzgeschlossen werden. Der Schalterdraht war ein Einkern-NbTi-Leiter in Kupfermatrix (0.5 mm \emptyset), bei dem auf einer Länge von 80 cm das Kupfer abgeätzt wurde, da im normalleitenden

Zustand der Widerstand möglichst hoch sein soll. Der Schalterdraht wurde zusammen mit einem Heizdraht aus Manganin in einen feinen Teflonschlauch eingezogen, auf einen kleinen Spulenkörper gewickelt und mit Epoxydharz vergossen. Eine Heizleistung von 0.1 W ließ den Schalter in den normalleitenden Zustand übergehen.

2.2 Ankopplung der Proben und der Heizspulen

Die Ankopplung der Proben an das innere Heliumbad erfolgte, wie schon erwähnt, in allen Fällen über einen Probenträger aus Kupfer.

Die Saphir-Indium-Proben wurden teilweise direkt auf den Probenträger aufgepreßt, wie bei der Probenherstellung besprochen, oder der Indiumteil wurde vorsichtig auf den vorher ver"indiumten" Probenträger so aufgeschmolzen, daß das Indium nur in einer schmalen Zone am Ende flüssig wurde.

In den Fällen, in denen der Saphir am Probenträger kontaktiert werden mußte, bewährte sich das Einkleben mit GE 7031 in eine stramm passende Bohrung des Probenträgers. Die an der Klebestelle bei Wärmestrom auftretende Temperaturdifferenz lag etwa in derselben Größenordnung wie die über dem Saphir auftretende.

Einfacher waren die Nb-Cu-, NbTi-Cu und Rubin-Cu-Proben zu handhaben. Hier wurde einfach das Kupferteil mit Indium am Probenträger angelötet oder, mit einem Gewinde versehen, in den Probenträger eingeschraubt (bei der NbTi-Cu-Probe). Dieses letztere Verfahren hat noch den Vorteil, daß bei konstanter Temperatur im Heliumbad die Temperatur an der kalten Seite der Grenzfläche nicht magnetfeldabhängig ist, was bei einer zwischengeschalteten Indiumlötstelle nicht mehr gilt; die Auswertung wird also bei Vermeidung einer Indiumlötstelle erleichtert.

Für die Anbringung der Heizungen an der Rückseite der Proben gilt ähnliches: Die Heizelemente wurden an der Probe angelötet (Nb-Cu-Probe), oder bei einigen Saphir-In-Proben mit Indium auf die bedampfte Saphiroberfläche aufgepreßt. Als Heizelemente

wurden meist kleine Kupferdrehkörper mit aufgewickeltem Manganindraht (0.03 - 0.1 mm \varnothing , Widerstand 20-100 Ω) verwendet. In allen Fällen wurden die Enden des Heizdrahtes mit Kupferdrähten versehen, die mit einigen Windungen thermisch an die Heizspule angekoppelt wurden, da sonst eine unkontrollierte Erwärmung der freien Enden des Heizdrahtes erfolgt.

Bei einigen der Saphir-In-Proben (bei welchen ist aus den Skizzen in Tab. III auf Seite 65 ersichtlich) wurde der Heizdraht direkt auf den Saphir aufgewickelt. Dieselbe Methode wurde bei den Rubin-Cu-Proben und bei der Nb Ti-Cu-Probe angewandt.

Einen Sonderfall bilden die Wärmeleitfähigkeitsmessungen an Epoxyproben: Hier wurden bis zu 5 Proben an einem Probenträger befestigt und konnten gleichzeitig gemessen werden (Abb. 13).

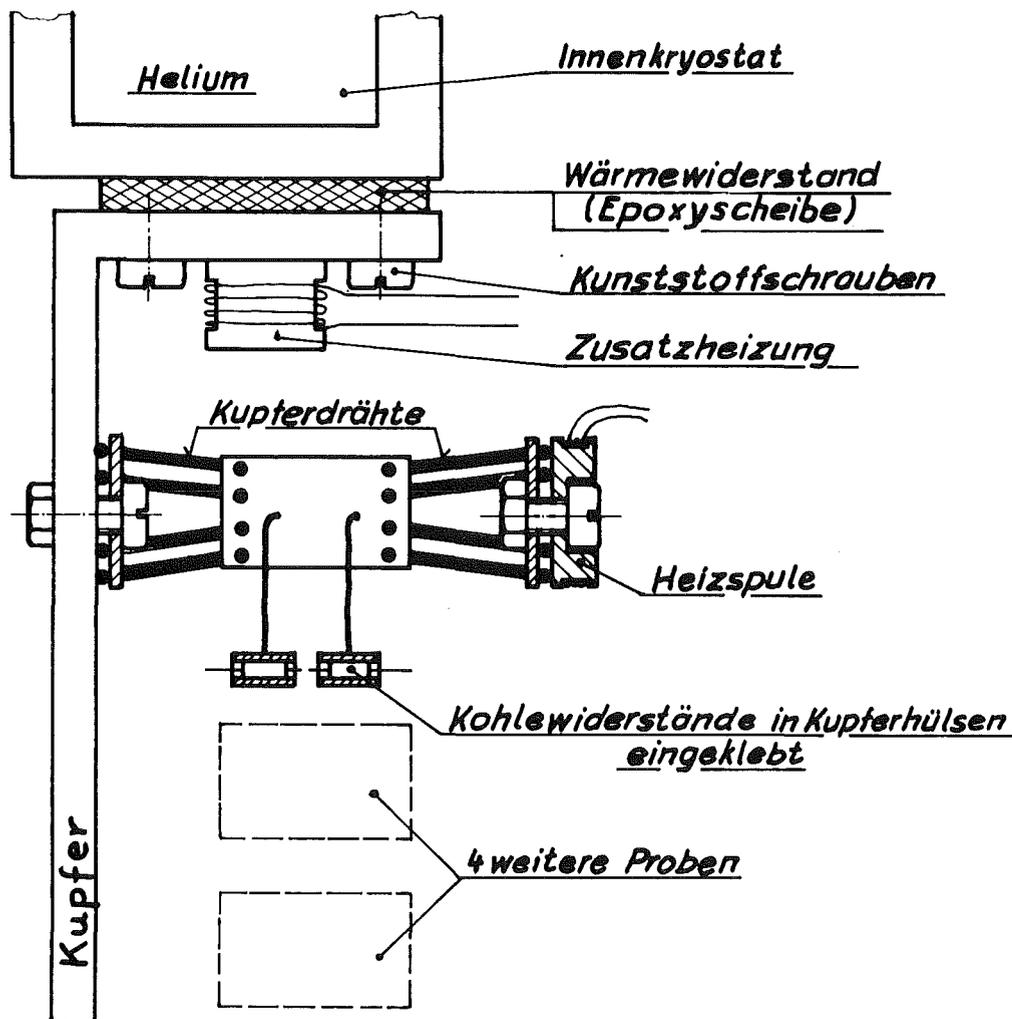


Abb. 13: Einbau der gefüllten Epoxydharzproben

Die in die Proben eingeklebten Kupferdrähte wurden dazu an dem Probenträger bzw. an flachen Heizspulen festgeklemmt. Der Probenhalter war mit einer Zusatzheizung versehen und wurde mit einer als Wärmewiderstand dienenden Epoxyscheibe an den Kryostat angeschraubt.

2.3 Ankopplung der Widerstände an die Proben

Die verwendeten Allen-Breadly-Kohlewiderstände wurden in Kupferklammern eingeklebt, die direkt an der Probe angeschraubt wurden (Abb. 14a). Die Klammern hatten eine scharfe Schneide, so daß der Ort der Temperaturmessung auf etwa 0.1 mm genau lokalisiert werden konnte.

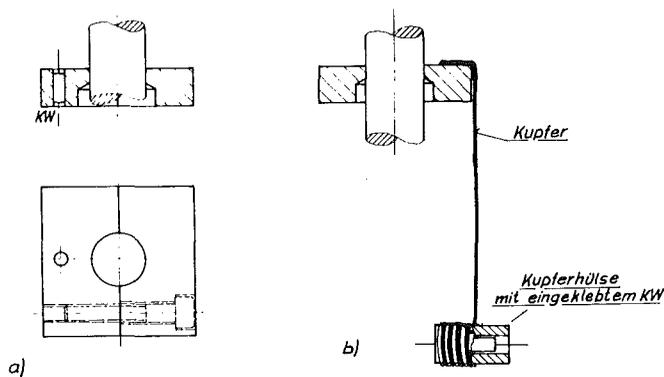


Abb. 14: Ankopplung der Kohlewiderstände an die Proben

Bei den Saphir-Indium-Proben wurden, wie schon geschildert, teilweise Kupferdrähte in das Indium mit eingepreßt, an die dann kleine Kupferhülsen angelötet wurden, in die die Kohlewiderstände eingeklebt wurden. Entsprechendes gilt auch für die Cu-Epoxy- und die gefüllten Epoxy-Proben, darauf wurde bei der Besprechung der Probenherstellung schon hingewiesen. Bei einem Teil der Messungen (NbTi-Cu, Rubin-Cu und Saphir-In-Messungen ab D) wurden die Widerstände außerhalb des Magnetfeldes angebracht (genau gesagt an Orten mit nur noch 10-15% des maximalen Feldes), um eine Veränderung der Eichcharakteristik durch das Feld zu umgehen, bzw. eine Eichung im Feld unnötig zu machen. Dazu wurden an die Klemmen 6-8 cm lange Kupferdrähte (0.6 \varnothing) mit einer Kupferhülse am Ende angelötet (Abb. 14b) bzw. die direkt an den Proben angebrachten Drähte verlängert.

Die Germaniumwiderstände wurden in eine Bohrung im Proben-träger eingesetzt. Als Kontaktmittel diente hier Apiezon N Fett. Als Maß für die Güte der Ankopplung der Widerstände kann die Einstellzeit bei Temperaturänderung gelten. Sie lag in allen Fällen in der Größenordnung 1 sec oder darunter.

3. Meßtechnik

3.1 Elektrische Stromkreise

Die an den Proben angebrachten Kohlewiderstände und der Germanium-widerstand wurden hintereinandergeschaltet und von einem Gleichstrom von 1 oder 10 μA durchflossen, der von einem Präzisionsstromgeber geliefert wurde (Abb. 15). Zusätzlich war

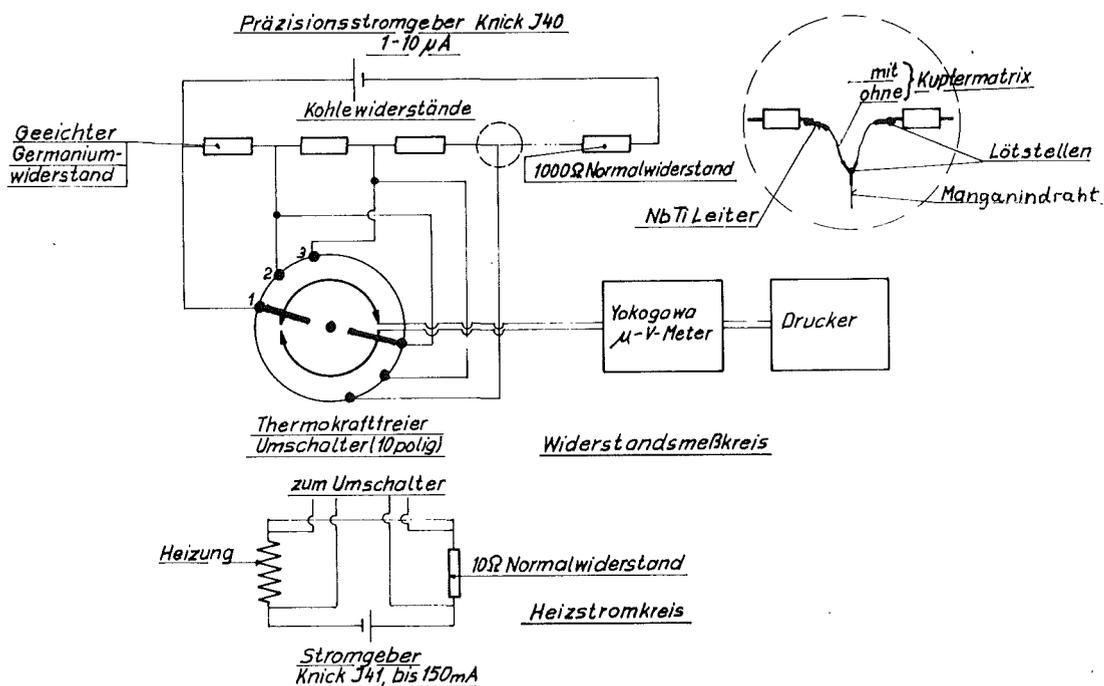


Abb. 15: Elektrische Stromkreise

im Widerstandskreis ein Normalwiderstand von 1000Ω ($\pm 0.1 \%$) eingebaut. An den Widerständen waren Spannungsabgriffe angebracht, die über einen thermokraftfreien 10-poligen Umschalter auf den Eingang eines digitalen Mikrovoltmeters (4 1/2-stellig, Empfindlichkeit $0.1 \mu\text{V}$) geschaltet werden konnten. Die Meßwerte wurden sodann mit einem Streifendrucker ausgedruckt.

Als Leitungen im kalten Teil des Widerstandskreises wurden NbTi-Einkernleiter in Kupfermatrix (0.04 mm Außen \emptyset) verwendet, bei dem das Kupfer abgeätzt wurde, so daß auf einer Länge von etwa 2 cm nur noch der NbTi-Kern (0.025 mm \emptyset) übrig blieb. Lediglich an den Stellen, an denen die Drahtstücke verlötet wurden, wurde die Kupfermatrix belassen. Ein NbTi-Leiter eignet sich vorzüglich für die Kontaktierung von Widerstandsthermometern, da er eine schlechte Wärmeleitfähigkeit (1.5 mW/cmK bei 4 K) besitzt, unterhalb von 9.5 K keinen elektrischen Widerstand hat und trotz des geringen Durchmessers noch eine ausreichende mechanische Festigkeit aufweist. Da nur ein Spannungsabgriff zwischen 2 Widerständen angebracht wurde, trat bei den Epoxy-messungen, die bis 20 K ausgedehnt wurden, bei der Sprungtemperatur von NbTi ein Sprung in den Widerstandskurven auf, da oberhalb von T_c der Widerstand des Leiters mitgemessen wurde. Dies wurde jedoch bei der Auswertung berücksichtigt. Bei dem zur Eichung benutzten Germaniumwiderstand wurde eine 4-Leiter-Messung angewandt, was in Abb.13 nicht zum Ausdruck kommt. Für die Spannungsabgriffe wurde Manganindraht von 0.1 mm \emptyset verwendet.

Auch bei den an den Proben angebrachten Heizungen wurden Zuleitungen aus Nb-Ti-Draht verwendet, um eine Joule'sche Erwärmung zu vermeiden. Der Spannungsabfall über dem Heizwiderstand wurde mit 2 Sonden abgegriffen und konnte über den Umschalter auf das Mikrovoltmeter gegeben werden. Zusätzlich wurde der Strom im Heizkreis durch den Spannungsabfall über einen 10Ω Normalwiderstand überprüft.

Bei den Epoxy-Messungen mit bis zu 5 Heizungen wurden diese ähnlich wie im Widerstandsmeßkreis hintereinander geschaltet und mit Spannungsabgriffen versehen. Auch wurden hier wegen

der Überschreitung von T_c (NbTi) Manganin-Drähte im Heizkreis verwendet. Die bei diesen Messungen verwendeten Heizwiderstände waren jedoch so hoch (ca. 1000 Ω), daß der Widerstand der Verbindungsleitungen (ca. 2-3 Ω) nicht ins Gewicht fiel, insbesondere da dieser Widerstand ja mitgemessen wurde und nur Unsymmetrien beim Wärmeabstrom nach beiden Seiten zu einem Fehler führen.

Die aus den Innenkryostaten herausgeführten Manganin- und NbTi-Drähte wurden an Kupferdrähte angelötet (Lötstellen im äußeren Heliumbad) und diese nach außen geführt. Es wurde nämlich festgestellt, daß bei einer Weiterführung der Manganindrähte bis außerhalb des Kryostaten Thermospannungen bis zu 5 μ V, offenbar infolge von Materialinhomogenitäten, auftreten, deren Größe mit dem Heliumstand variiert und die sich schädlich auf die Meßgenauigkeit auswirken. Bei Kupferzuleitungen in den Kryostaten waren derartige Thermospannungen etwa 10mal niedriger. Außerhalb des Kryostaten wurden alle Leitungen abgeschirmt weitergeführt.

3.2 Wahl der Thermometer und ihre Eichung

Als Eichnormal zur Temperaturmessung haben sich Germaniumwiderstände wegen ihrer guten Reproduzierbarkeit bewährt. Wir verwendeten einen Widerstand von Scientific Instruments (S.I.), Modell N2, der bereits vom Hersteller zwischen 1.5 und 5 K geeicht war. Die Eichkurve des Widerstandes befolgte annähernd einen linearen Zusammenhang zwischen $\log R$ und $\log T$, was die Interpolation erleichterte. Der Widerstand wurde zwischen 1.3 und 4.3 gegen den Heliumdampfdruck in der zuvor beschriebenen Apparatur neu geeicht. Zur Druckmessung wurde ein Präzisionsquecksilbermanometer mit einer Ablesegenauigkeit von 0.1 mm verwandt, bei 1.3 K resultiert daraus ein Temperaturfehler von 13 mK, bei höheren Temperaturen wird dieser Fehler rasch kleiner. Beim Vergleich mit der Hersteller-eichung zeigte sich gute Übereinstimmung im Bereich 2-4.2 K, bei geringeren Temperaturen lagen die Temperaturangaben des Herstellers bis zu 40 mK über unseren Eichwerten.

Zur Erfassung des Temperaturbereichs zwischen 0.95 und 1.3 K wurde der Widerstand mit einem gegen ^3He -Dampfdruck zwischen 0.3 und 3.2 K geeichten Germaniumwiderstand derselben Firma verglichen. Die so erhaltene Kurve schloß sich gut an unsere Eichung zwischen 1.3 und 4.3 K an.

Die auf diese Weise gewonnene Eichkurve zwischen 0.95 und 5 K setzt sich also aus 3 Bereichen zusammen:

0.95 . . . 1.3 K	Eichung gegen ^3He -Germaniumwiderstand
1.3 . . . 4.3 K	eigene Eichung gegen ^4He -Dampfdruck
4.3 . . . 5 K	Eichung des Herstellers ^4He -Dampfdruck.

Die Verarbeitung aller Eichpunkte zu einer geglätteten Eichkurve mit funktionalem Zusammenhang zwischen R und T wird in Abschnitt 3.5 beschrieben. Die Streuung der Eichpunkte, die als Maß für den Absolutfehler gelten kann, beträgt weniger als 10 mK.

Für die Epoxy-Wärmeleitfähigkeitsmessungen wurde ein von S.I. zwischen 1.5 und 40 K geeichter Widerstand mit ähnlicher Charakteristik und zur Kontrolle ein ebenfalls bis 40 K geeichter Germaniumwiderstand einer anderen Firma (Lab. Marcoussis, Modell No.105) verwendet. Unterhalb von 10 K zeigte sich befriedigende Übereinstimmung der beiden Widerstände (im Heliumbereich auch mit dem Heliumdampfdruck), zu höheren Temperaturen zeigte sich eine systematische Abweichung mit einer Differenz von 0.3 K bei 20 K. Zur Eichung der Kohlewiderstände wurden gemittelte Werte verwendet. Für die in Abschnitt D 3.4 gezeigten Wärmeleitfähigkeitskurven führt dies zu einem zusätzlichen systematischen Fehler von 2-3% im oberen Temperaturbereich.

Als Temperatursonden an den Proben wurden Allen-Breadly-Kohlewiderstände (0.1 W) mit Nominalwerten zwischen 22 und 100 Ω benutzt. Im Temperaturbereich zwischen 1 und 4 K erwiesen sich 33 Ω Widerstände bezüglich ihrer Empfindlichkeit und des Widerstandswertes bei 1 K am geeignetsten, sie wurden in der Mehrzahl der Messungen verwendet. Bei höheren Temperaturen reicht ihre Empfindlichkeit allerdings nicht mehr aus,

für die Epoxywärmeleitfähigkeitsmessungen wurden 100 Ω -Widerstände verwendet, die auch bei 20 K noch ausreichende Empfindlichkeit zeigen und bis herunter zu 1.4 K verwendet werden konnten. Abb. 16 zeigt typische Eichkurven der verwendeten Kohlewiderstände sowie des Germaniumwiderstandes von S.I.. Wie man sieht, liegen die 43 Ω -Kohlewiderstände in der Eichcharakteristik über den 47 Ω -Widerständen, eine sichere Voraussage der Eichkurve aus den Nominalwerten ist also nicht ohne weiteres möglich.

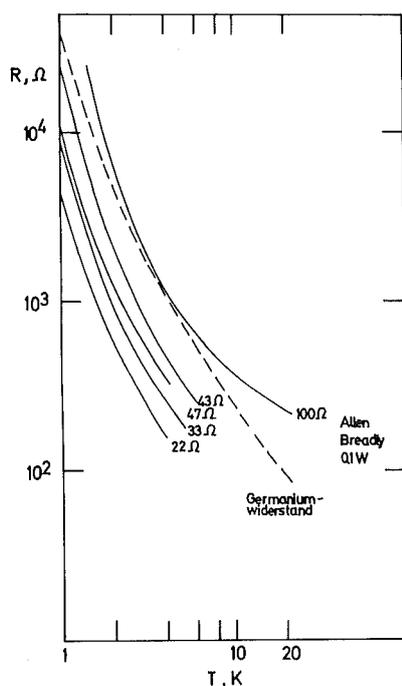


Abb. 16: Typische Eichkurven für Kohlewiderstände (angegeben ist jeweils der Nominalwert) und für den als Eichnormal verwendeten Germaniumwiderstand.

3.3 Temperaturregelung

Die Temperatur des Heliumbades, oder genauer die Temperatur des Probenträgers mußte bei den Experimenten auf 1 mK oder besser konstant gehalten werden, um eine ausreichende Meßgenauigkeit zu erzielen. Dazu wurde eine einfache elektronische Regelung angewandt (s. Abb. 17):

Im innern Heliumbad wurde ein Kohlewiderstand (Allen-Bready 100 Ω , 0.1 W) als Temperaturfühler sowie eine Widerstandsheizung angebracht. Der Kohlewiderstand wurde von einer 1.5 V Batterie über einen Vorwiderstand mit einem Strom von 5 μ A versorgt, die über ihm abfallende Spannung wurde auf den Eingang eines Kompensationsmikrovoltmeters gegeben und bis auf den

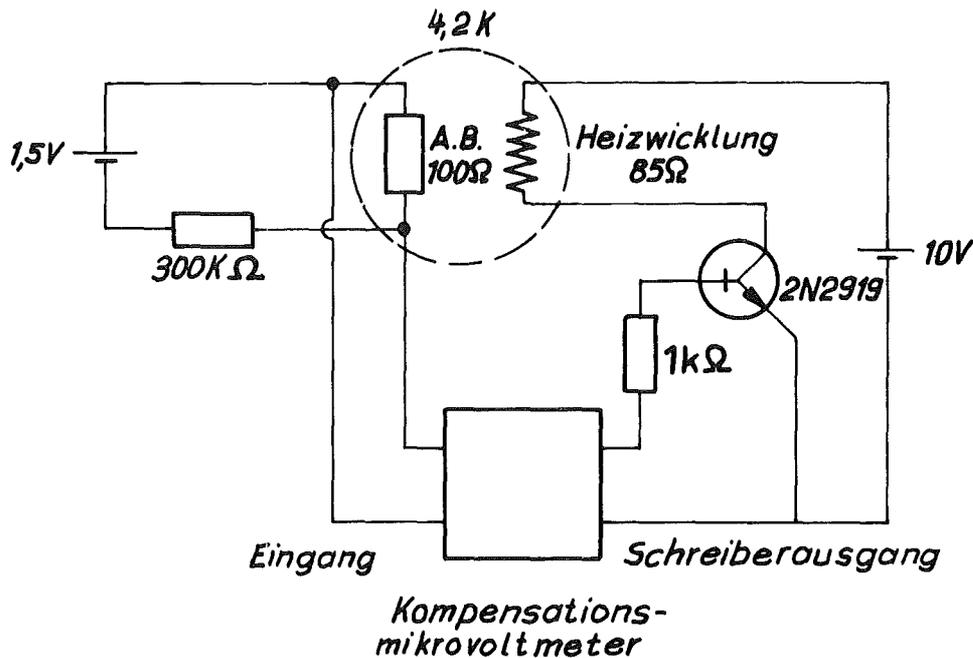


Abb. 17: Elektronische Temperaturregelung

empfindlichsten Bereich des Geräts abgeglichen. Nun noch auftretende Spannungsschwankungen konnten verstärkt dem Schreiberausgang des Geräts entnommen werden, sie steuerten über einen Verstärkertransistor den Heizstrom des aus einer zusätzlichen Stromversorgung gespeisten Heizwiderstand im Heliumbad.

Auf diese Weise konnte die Temperatur unterhalb des λ -Punktes für längere Zeit auf etwa 0.2 mK genau konstant gehalten werden. Wichtig war dabei allerdings, daß die Saugleistung der Pumpe über ein Feinventil sehr genau eingestellt wurde, so daß ohne Regelung die Temperatur sich nur langsam erniedrigte.

Es ist selbstverständlich, daß diese einfache Temperaturregelung oberhalb des λ -Punktes weniger gut funktionierte, aber eine Stabilisierung auf 0.5 mK über einen kurzen Zeitraum war auch hier möglich. Zudem erwies es sich, daß bei Temperaturen ab etwa 3 K in vielen Fällen auf eine Regelung ganz verzichtet werden konnte, da wegen der großen Wärmekapazität des Heliumbades und der meist sehr geringen Heizleistung nur eine kleine Temperaturdrift auftrat (typischer Wert: 1 mK/min), was bei kurzen Meßdauern von 20-40 sec hingenommen werden konnte. Diese Temperaturdrift wurde

überdies bei der Auswertung berücksichtigt.

Temperaturen über 4.2 K bis etwa 6 K wurden eingestellt, indem alles Helium verdampft wurde; auch in diesem Bereich konnte die Temperatur durch die Wärmekapazität des bei 6 K noch sehr dichten Heliumgases über eine kurze Zeit von 20-30 sec hinreichend stabilisiert werden.

Eine elegantere Methode zur Temperaturstabilisierung über 4.2 K besteht in der Ankopplung der Proben über einen Wärmewiderstand an das Heliumbad bei gleichzeitigem Heizen des Probenhalters mit einer Zusatzheizung. Bei den Epoxywärmeleitfähigkeitsmessungen wurde so der Probenhalter bei Temperaturen bis 22 K auf besser als 0.5 mK stabilisiert, während das Heliumbad bei 2.1 K (unterhalb T_λ) oder bei 4.2 K gehalten wurde. Das Einstellen einer neuen Temperatur geschah einfach durch Änderung des Heizstroms für die Zusatzheizung und evtl. Nachregulieren des Pumpenventils.

3.4 Durchführung der Messungen

Nach Einstellen einer bestimmten Temperatur erfolgte zunächst eine Eichmessung mit ausgeschaltetem Heizstrom (d.h. alle Widerstände sind auf gleicher Temperatur). Dazu wurde der Germaniumwiderstand gemessen, danach die einzelnen Kohlewiderstände und schließlich wieder der Germaniumwiderstand. Auf diese Weise wurden die KW gegen den Germaniumwiderstand geeicht. Sodann wurde ein Heizstrom eingeschaltet und die Prozedur wiederholt, zusätzlich wurde der Heizstrom aus dem Spannungsabfall über einen 10 Ω Normalwiderstand und die am Heizelement abgegriffene Spannung gemessen. In den meisten Fällen wurden 2 oder mehr Messungen mit etwa um einen Faktor 2 unterschiedlichen Heizleistung gemacht. Die Heizleistung wurde so gewählt, daß an der Grenzfläche Temperaturdifferenzen von ca. 50-100 mK, unterhalb des λ -Punktes von 10-30 mK auftraten. Bei den Wärmeleitfähigkeitsmessungen im oberen Temperaturbereich zwischen 10 und 20 K wurden höhere Temperaturdifferenzen von 0.5 - 1.5 K eingestellt.

Zur Messung des Kapitawiderstandes Saphir-Indium im normalleitenden Zustand des Indium wurde ein Feld von 380 Oe angelegt.

Nach jeder Messung im Feld wurde die Temperatur auf über 3.4 K (Sprungpunkt von Indium) erhöht, um eingefrorenen magnetischen Fluß aus der Probe zu entfernen. Dasselbe gilt für die Nb-Cu-Probe, hier wurde T auf 10 K erhöht. Bei der Messung der Feldabhängigkeit des Kapitza-Widerstandes wurde das Feld schrittweise hochgefahren und $R_k(H)$ punktweise gemessen, oder das Feld wurde kontinuierlich erhöht und der Widerstandswert der Meßstelle auf der warmen Seite der Grenzfläche nach Verstärkung zusammen mit dem Magnetstrom auf einen Schreiber gegeben. Diese zweite Möglichkeit führt jedoch nur zu vernünftigen Ergebnissen, wenn die kalte Seite der Grenzfläche keine Temperaturabhängigkeit im Feld zeigt. (Wie bei der NbTi-Cu-Probe oder bei Saphir-In-Proben, bei denen der Saphir im Probenhalter eingeklebt war.)

3.5 Auswertung

Die Auswertung der anfallenden Daten erfolgte mit einem Rechenprogramm*. Zunächst wurde durch die Eichpunkte des als Temperaturnormal dienenden Germaniumwiderstandes (s. 3.2) eine glatte Kurve $R(T)$ (R Widerstand, T Temperatur) mit 5 anzupassenden Konstanten gelegt. Es wurde die Funktion verwendet

$$\log T = A_1 + A_2 \cdot \log R + B_1 / \log R + B_2 (\log R)^2 + B_3 (\log R)^{1/2} \quad (1)$$

Wie bereits erwähnt, läßt sich die Eichkurve bei doppelt logarithmischer Auftragung in erster Näherung als Gerade darstellen, also

$$\log T = A_1 + A_2 \cdot \log R .$$

Die Konstanten A_1 und A_2 werden dabei so gewählt, daß die Gerade die beiden Randpunkte verbindet. Die Terme mit den 3 Konstanten B_1, B_2, B_3 geben die Abweichung der Eichkurve von dieser Geraden wieder. Die Wahl der Funktion (1) wurde dadurch wesentlich beeinflusst, daß bereits ein least-square-fit-Programm für die Funktion

*An der Aufstellung dieses Programms hat Herr F.Becker einen wesentlichen Anteil.

$$1/T = A + B \cdot \log R + C/\log R \quad (2)$$

bestand. (1) läßt sich nämlich umformen in

$$\frac{\log T - A_1 - A_2 \log R}{(\log R)^{1/2}} = B_3 + B_2 \underbrace{(\log R)^{1.5}}_{\log R^*} + B_1 (\log R)^{-1.5}$$

$1/T^*$ $\log R^*$

Durch Einführung neuer Variabler T^* , R^* wurde (1) auf die Form (2) zurückgeführt und die Konstanten B_1, B_2, B_3 konnten mit der Methode des least-square-fit (kleinste Summe der Quadrate der Abweichungen) mit dem vorhandenen Programm berechnet werden.

Mit der so bestimmten Funktion konnten die Eichpunkte des Germaniumwiderstandes zwischen 1 und 5 K auf besser als 10 mK genau wiedergegeben werden. Diese Glättung der Eichkurve bringt gegenüber der vom Hersteller gelieferten Interpolationstabelle, die eine Funktion zugrundeliegt, die durch alle Eichpunkte geht und die daher infolge der unvermeidlichen Eichfehler in Schlangenlinien verläuft, eine wesentliche Verbesserung in der Genauigkeit der Auswertung, wenn Temperaturdifferenzen ermittelt werden sollen.

Für die Germaniumwiderstände, die bis 20 K benutzt wurden, lieferte (1) keine guten Ergebnisse, hier wurde jeweils zwischen zwei Eichpunkten logarithmisch interpoliert.

Als nächster Schritt wurden die Temperaturen der einzelnen Kohlewiderstände bei den Eichmessungen (s. 3.4) durch Vergleich mit der geglätteten Kurve des Germaniumwiderstandes berechnet. Auf diese Weise entstand eine punktweise Eichkurve der Kohlewiderstände. Die Temperaturen der Kohlewiderstände bei den Messungen mit Heizstrom wurden dann folgendermaßen bestimmt: Für einen bestimmten Widerstandswert wurden aus der Eichkurve die beiden links und die beiden rechts benachbarten Eichpunkte gesucht. Sodann wurde mit der 3 Konstanten-Formel von White³¹ (Gleichung 2) die gesuchte Temperatur auf 2 verschiedene Weisen berechnet. Einmal wurden die beiden links benachbarten Punkte

und der rechts am nächsten liegende Punkt zur Berechnung benutzt, das andere Mal die beiden links und der rechts benachbarte Punkt (die Funktion (2) wird durch jeweils 3 Eichpunkte eindeutig bestimmt). Die beiden so berechneten Temperaturen wichen i.A. um weniger als 0.2 mK voneinander ab, in Ausnahmefällen erreichte die Abweichung 0.5 - 1 mK. Als endgültige Temperatur wurde der Mittelwert genommen.

Diese Art der Temperaturberechnung ergab bessere Resultate als ein least-square-fit der Eichpunkte nach der 3-Konstanten-Formel über einen größeren Temperaturbereich von ca. 2 K. Es ist noch zu bemerken, daß die Auswertung für den Temperaturbereich bis etwa 2.5 K, für den ein Meßstrom von 1 μ A verwendet wurde, und für den Temperaturbereich über 2.5 K (Meßstrom 10 μ A) gesondert vorgenommen wurde. Auf diese Weise wurde die kleine Unstetigkeit in den Eichkurven aufgrund der unterschiedlichen Eigenerwärmung der Widerstände berücksichtigt.

Schließlich wurden die so berechneten Temperaturen zu den Grenzflächen linear extrapoliert (Ausnahme: Cu-Nb-Messung), der Wärmestrom \dot{Q} wurde aus Heizstrom und -spannung berechnet und der Kapitzwiderstand nach $R_k = \Delta T \cdot A / \dot{Q}$ bestimmt. Außerdem wurde $R_k \cdot T^3$ (T gemittelte Temperatur der beiden Grenzflächen), sowie die Wärmeleitfähigkeiten der beiden Probenhälften berechnet. Die berechneten Werte wurden als Funktion der Temperatur geplottet.

Fehler

Das Programm berechnete ferner den aus der Unsicherheit der Widerstandsmessung (0.1-0.2%) resultierenden relativen Fehler in der Temperaturmessung (zwischen 0.05 mK bei 1 K und 3 mK bei 4 K). Für die gemessenen Temperaturdifferenzen und damit für R_k ergibt sich so ein Fehler von 0.5 - 3%, der in den Abbildungen von Abschn. D eingezeichnet ist. Sind keine Fehlerbalken angegeben, so liegt der Meßfehler innerhalb der Punktgröße.

Bei den in Abschn. D angegebenen Absolutfehlern sind Fehler in den Geometriefaktoren und Fehler bei der Extrapolation zur Grenzfläche enthalten. Fehler durch Eigenerwärmung der

Widerstände und Wärmeleitung der Zuleitungen sind vernachlässigbar, da die Widerstände in situ geeicht wurden.

Summation aller Fehlerquellen führt zu einem Absolutfehler in der Gegend von 5%; auf Ausnahmen wird bei der Beschreibung der Ergebnisse näher eingegangen.

D ERGEBNISSE UND DISKUSSION

1. Saphir-Indium- und Rubin-Kupfer-Messungen

1.1 Wärmeleitfähigkeit von Saphir und Rubin

Bei einigen der Saphir-Indium-Experimente wurde die Wärmeleitfähigkeit (im folgenden WLF) von Saphir bestimmt, so bei Experiment A, B, E (jeweils der gleiche Saphir) und bei Experiment C (2 Saphire), wo allerdings der Absolutwert der WLF mit einem Fehler von $\pm 10\%$ behaftet ist infolge der bei diesem Experiment geringeren Meßgenauigkeit.

Tabelle II: Wärmeleitfähigkeit von synthetischen Saphiren (Al_2O_3), Länge 3 cm, \emptyset 0.6 cm und von Rubin ($Al_2O_3 + 0.5$ at % Cr), Länge 1.5 cm, \emptyset 0.5 cm, rauhe Oberflächen, im Temperaturbereich 1 ... 5 K.

verwendet in Probe		λ (W/cmK)	λ/T^3 (W/cmK ⁴) (Theorie, s. Text)
Saphir	1 A,B,E	$0.049 \pm 0.002 \cdot T^{2.85 \pm 0.03}$	0.042
	2 C	$0.042 \pm 0.005 \cdot T^{2.82 \pm 0.05}$	
	3 C	$0.043 \pm 0.005 \cdot T^{2.9 \pm 0.05}$	
Rubin	Rubin-Cu+ 100 ppmMn	$0.046 \pm 0.002 \cdot T^{2.7 \pm 0.02}$	0.031

Die WLF von Rubinen wurde in 2 Experimenten gemessen. In Tabelle II sind die Ergebnisse in der Form $\lambda = b \cdot T^n$ zusammengestellt (im folgenden wird λ als Symbol für die WLF benutzt). Abb.18 zeigt dieselben Ergebnisse für Saphir 1 und Rubin in grafischer Darstellung. Die WLF des Rubin in der Probe Rubin-Cu + 0.3 at.% Mn war wesentlich geringer ($0.028 \cdot T^{2.78}$), jedoch zeigte sich in diesem Kristall ein Sprung etwa senkrecht zur Achse, der gut die Hälfte des Querschnitts überdeckte. Dadurch ist eine Verringerung der gemessenen effektiven WLF verständlich.

In einem nicht metallischen Kristall erfolgt die Wärmeleitung ausschließlich durch Phononen. Die WLF kann im Teilchenbild,

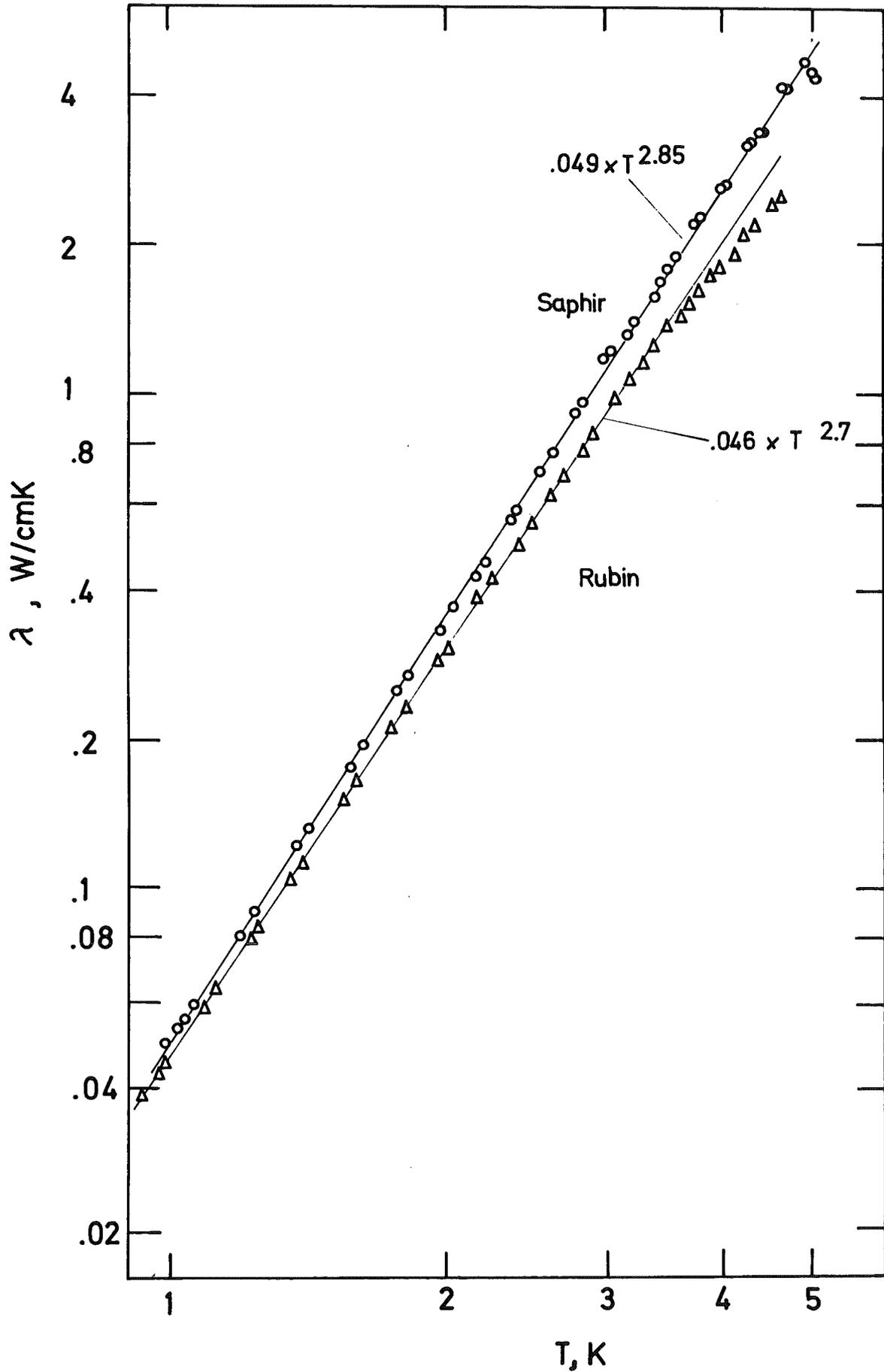


Abb. 18: Wärmeleitfähigkeit von Saphir und Rubin

bei dem man sich den Kristall mit einem "Phononengas" gefüllt denkt, mit Hilfe einer freien Weglänge ℓ für Phononen ausgedrückt werden, indem man eine Formel verwendet, die aus der kinetischen Gastheorie bekannt ist:

$$\lambda = \frac{1}{3} C \cdot c \cdot \ell \quad (1)$$

c = Phononengeschwindigkeit,

C = spezifische Wärme pro Volumen.

Dabei ist die Wärmeleitfähigkeit definiert durch die Beziehung

$$\dot{Q} = -\lambda \cdot A \cdot \text{grad } T$$

A = Querschnittsfläche

\dot{Q} = Wärmestrom

oder, wenn ΔT die Temperaturdifferenz zwischen zwei Punkten im Abstand L ist, auf dem λ konstant sei

$$\dot{Q} = -\lambda \cdot \frac{A}{L} \cdot \Delta T \quad (2)$$

Es ist jedoch zu beachten, daß die in (2) enthaltene Proportionalität von \dot{Q} und A nicht mehr gilt, wenn die freie Weglänge nicht mehr klein ist gegen die Kristallabmessungen. Dennoch benutzt man auch in diesen Fällen (2) i.A. zur Definition einer effektiven WLF, die dann allerdings von A abhängt.

Zur Diskussion der Temperaturabhängigkeit der WLF kann (1) benutzt werden: Die freie Weglänge ℓ wird begrenzt durch Streuprozesse an Gitterfehlern und an den Begrenzungsflächen des Kristalls, zum andern durch Phonon-Phonon-Wechselwirkung. Zur Begrenzung der WLF tragen im wesentlichen nur 3-Phonon-Prozesse bei, und von diesen wiederum nur Umklapp- oder U-Prozesse. Für einen U-Prozess ist es nötig, daß die Summe der Wellenvektoren der beiden ursprünglichen Phononen über die 1. Brillouinzone hinausreicht, d.h. U-Prozesse treten mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit erst ab einer bestimmten Temperatur auf.

Bei genügend hohen Temperaturen ($T > \theta_D$) ist die Anzahl der Phononen mit für U-Prozesse ausreichender Energie proportional zu T , also $\lambda \sim 1/T^{3/2}$ und, da die spezifische Wärme C in diesem Temperaturbereich konstant ist, gilt $\lambda \sim 1/T$. Zu tieferen Temperaturen hin geht die WLF über ein Maximum, das bei etwa $1/30$ der Debyetemperatur liegt. Bei genügend tiefen Temperaturen ist nach der Debye-Theorie $C \sim T^3$, während die freie Weglänge in einem perfekten Kristall nur noch durch seine Dimension begrenzt ist. Man erwartet also $\lambda \sim T^3$, und $\lambda \sim r$, wenn r der Radius eines zylinderförmigen Kristalls mit dem Wärmestrom parallel zur Achse ist.

Casimir³³ berechnete die WLF für diesen Temperaturbereich zu

$$\lambda = 2.31 \cdot r \cdot p \cdot a^{2/3} \cdot T^3 \quad (3)$$

dabei ist a die Konstante in der Beziehung für die spezifische Wärme $C = a \cdot T^3$ und p ist ein vom Verhältnis der Schallgeschwindigkeiten c_l/c_t abhängiger Faktor, der für Saphir 1.39 beträgt. Mit $a = 3.7 \cdot 10^{-7} \text{Ws/cm}^3 \text{K}^4$ (berechnet nach Messungen der spezifischen Wärme von Saphir im Bereich 5-10 K³⁴) und $r = 0.3 \text{ cm}$ ergibt sich $\lambda = 0.049 \cdot T^3$ (W/cm K). Formel (3) gilt allerdings nur für isotrope Kristalle unendlicher Länge mit perfekt rauher Oberfläche (also Ausschluß von spiegelnder Reflexion). Während die Isotropie für Saphir recht gut erfüllt ist³⁵, ist im vorliegenden Fall die Probenlänge nicht groß gegenüber dem Durchmesser. Eine Korrektur der Casimir-Theorie für Kristalle endlicher Länge von Berman et al.³⁶ führt zu einer Reduzierung der berechneten WLF, in unserem Fall (Länge 3 cm) zu

$$\lambda_{\text{Saphir}} = 0.042 \cdot T^3 \text{ (W/cmK)}, \quad (4)$$

immer noch für eine perfekt rauhe Oberfläche. Wird ein Teil der Phononen jedoch an den Seitenflächen spiegelnd reflektiert, so resultiert daraus eine erhebliche Erhöhung der WLF, da die effektive freie Weglänge vergrößert wird. Die experimentell gefundene Abweichung vom T^3 -Gesetz (vgl. Tab. III) legt den Schluß nahe, daß mit sinkender Temperatur infolge der größer werdenden Phononenwellenlänge zunehmend spiegelnde Reflexion auftritt. Betrachten wir die Absolutwerte der WLF, so zeigt

sich, daß bei 1 K Saphir 1 deutlich über dem Wert von (4) liegt (was durch teilweise spiegelnde Reflexion erklärt werden kann), während bei 5 K die WLF schon etwas unter (4) liegt. Als Erklärung bietet sich an, daß mit steigender Temperatur Streuprozesse im Saphir selbst eine Rolle zu spielen beginnen. Die vorliegenden Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit den Resultaten anderer Autoren^{2,37} für Saphire ähnlicher Dimension mit rauhen Oberflächen. Für Saphire mit glatten Oberflächen wurden jedoch Wärmeleitfähigkeiten gemessen, die bis zu einem Faktor 2 über den für perfekt rauhe Oberflächen berechneten Werten lagen³⁸.

Für die Rubinprobe ergibt die Berechnung nach ³⁶
 $\lambda = 0.031 \cdot T^3$ (W/cmK) (dabei wurde für die spezifische Wärme der gleiche Wert wie für Saphir verwendet), die gemessene WLF liegt jedoch wesentlich höher. Prinzipiell kann eine zu hohe WLF durch Berücksichtigung von spiegelnder Reflexion an den Grenzflächen erklärt werden. Allerdings war auch der Umfang des Rubinzyllinders nicht poliert, aber doch weniger rau als der der Saphire. Vergleicht man Messungen von de Goer und Dreyfus³⁹ und von Ward⁴⁰ mit den nach Berman berechneten Werten, so findet man bessere Übereinstimmung, über die Oberflächenbeschaffenheit wird jedoch von diesen Autoren keine Angabe gemacht.

Eine Feldabhängigkeit der WLF von Rubin konnte bis zu Feldern von 10 kOe im Rahmen der Meßgenauigkeit ($\pm 0.7\%$) nicht festgestellt werden, in Übereinstimmung mit den Experimenten von Ward.

1.2 Wärmeleitfähigkeit (WLF) von Indium und Kupfer

Der Wärmewiderstand der Indiumschicht zwischen Meßstelle und Grenzfläche wurde in den meisten Fällen vernachlässigt, da die WLF von sehr reinem Indium sowohl im supraleitenden als auch im normalleitenden Zustand in dem interessierenden Temperaturbereich sehr hoch ist⁴¹. Bei Probe E wurde die Temperatur an 2 Punkten des Indiumteils gemessen. Eine Abschätzung für eine untere Grenze der WLF ergab sowohl für den supraleitenden als auch für den normalleitenden Zustand bei 1.3 K 5 W/cmK. Der Wärmewiderstand einer 0.2 mm starken In-Schicht (typischer Wert für den Abstand Meßstelle - Grenzfläche) ist also bei 1.3 K

geringer als $4 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{K/W}$ und beträgt damit weniger als 0.02% des Kapitzwiderstandes. Der somit in R_k enthaltene systematische Fehler nimmt mit wachsender Temperatur zu (da λ (In) bei 4 K kleiner als bei 1.3 K sein kann gegenüber $h_k \sim T^3$), sollte jedoch auch bei 4 K nicht größer als 2% sein.

Die WLF von Kupfer wurde in 4 Experimenten gemessen. Bei der Nb-Cu-Probe zeigt die WLF eine lineare Temperaturabhängigkeit (Abb. 19a), was bei reinen Metallen für $T \ll \theta_D$ erwartet wird. Die Erhöhung der WLF im Magnetfeld war zu gering, um quantitative Aussagen über einen thermischen Magnetowiderstand zu machen. Eine ähnliche Temperaturabhängigkeit zeigte die WLF bei den Cu-Epoxy-Proben, sie betrug $1.1 \cdot T$ (W/cmK).

Bei den Rubin-Cu + Mn-Proben wurde die WLF von Cu + 100 ppm Mn nur bei 2 Temperaturen gemessen, bei 1 K (1.5 W/cmK) und bei 4.2 K (8 W/cmK). Sie lag damit trotz der Mn-Verunreinigung noch etwas höher als bei der Nb-Cu-Probe. Das ist jedoch nicht verwunderlich, da bei technischen OFHC-Kupfer (um solches handelte es sich dort) mit Verunreinigungen von 100 ppm oder mehr gerechnet werden muß und die WLF in diesem Temperaturbereich sehr empfindlich von der Reinheit abhängt. Aus diesem Grunde zeigt auch die Cu + 0.3 Gew.-%-Mn-Legierung eine um mehr als 2 Zehnerpotenzen geringere WLF (Abb. 19b).

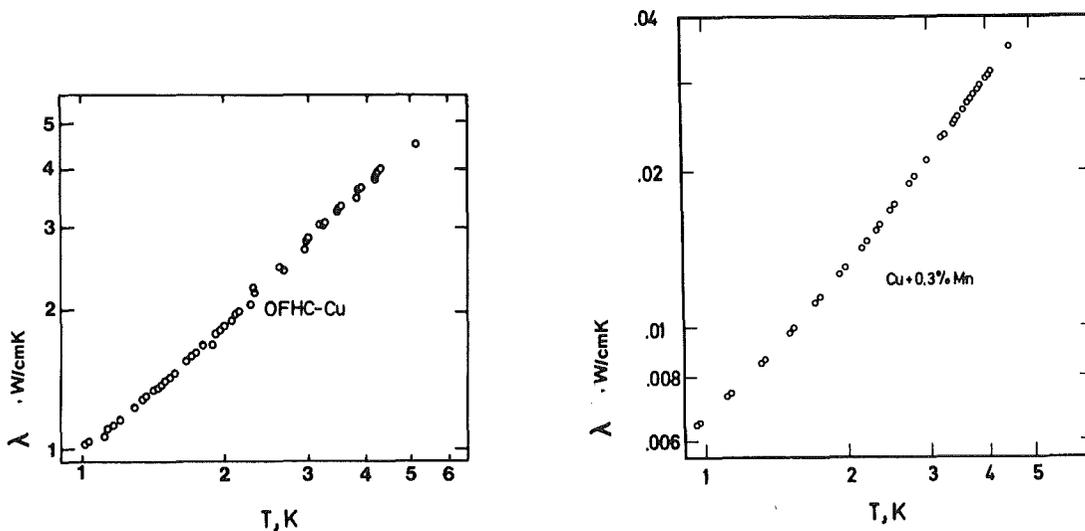


Abb. 19: Wärmeleitfähigkeit von OFHC-Kupfer und von Cu + 0.3 Gew.-% Mn

1.3 Kapitzawiderstand an einer Saphir-Indium-Grenzfläche

Bei allen Experimenten zum Kapitzawiderstand ist eine für den Experimentator leidige Erfahrung die schlechte Reproduzierbarkeit der Ergebnisse für verschiedene Proben. Besonders kraß ist die Situation für Festkörper-Helium-Grenzflächen, jedoch auch bei Festkörper-Festkörper-Grenzflächen tritt diese Schwierigkeit auf, wenn auch in geringerem Ausmaß, wie wir im folgenden sehen werden. Möglicherweise ist jedoch der Grund für die schlechte Reproduzierbarkeit in beiden Fällen nicht der gleiche. Während bei Festkörper-Helium-Grenzflächen R_k sehr empfindlich von der Oberflächenbeschaffenheit abhängt (genauso wie etwa die Wärmeleitfähigkeit in einem Kristall von der Reinheit bestimmt ist), so daß möglicherweise R_k ein Maß für die Oberflächengüte sein könnte, so kommt bei Festkörper-Festkörper-Grenzflächen noch ein weiterer Punkt hinzu, die Möglichkeit nicht perfekter Verbindung. (Bei Festkörper-Helium-Grenzflächen ist natürlich die Verbindung immer "perfekt", d.h. an jeder Stelle vorhanden.)

Wie entscheidend die Qualität der Verbindung für den Kapitzawiderstand ist, zeigen die Messungen A und B, die einen um eine Größenordnung höheren Kapitzawiderstand aufweisen als die folgenden Messungen, sie werden hier gezeigt, um den Einfluß eines schlechten Kontakts auf den Kapitzawiderstand zu zeigen (Abb. 20). Aufgetragen ist jeweils $R_k \cdot T^3$ über der Temperatur, um eine Abweichung vom T^{-3} -Gesetz besser erkennen zu können. Nach der Messung A 1 (Wärmestrom Saphir \rightarrow In) wurde die Probe umgedreht, um die Unabhängigkeit von R_k von der Wärmestromrichtung zu testen. Dabei verschlechterte sich der Kontakt jedoch noch mehr, so daß bei Experiment A 2 ein noch höherer Widerstand auftrat. Beim nochmaligen Umbau brach die Probe schließlich auseinander. Der schlechte Kontakt rührte ganz offensichtlich von der Art der Probenherstellung her, die sehr dünne aufgesputterte In-Schicht bildete, da möglicherweise oxydiert oder verunreinigt, keine richtige Verbindung mit dem übrigen Indium. Auch bei Probe B war noch kein guter Kontakt vorhanden, da die Sputterschicht vor der weiteren Bearbeitung auf dem Saphir belassen wurde. Zu bemerken ist allerdings, daß die Ergebnisse von Probe B in sich gut reproduzierbar waren; es wurden 3 Messungen B 1 - B 3 durchgeführt, zwischen denen die Probe jeweils aufgewärmt wurde.

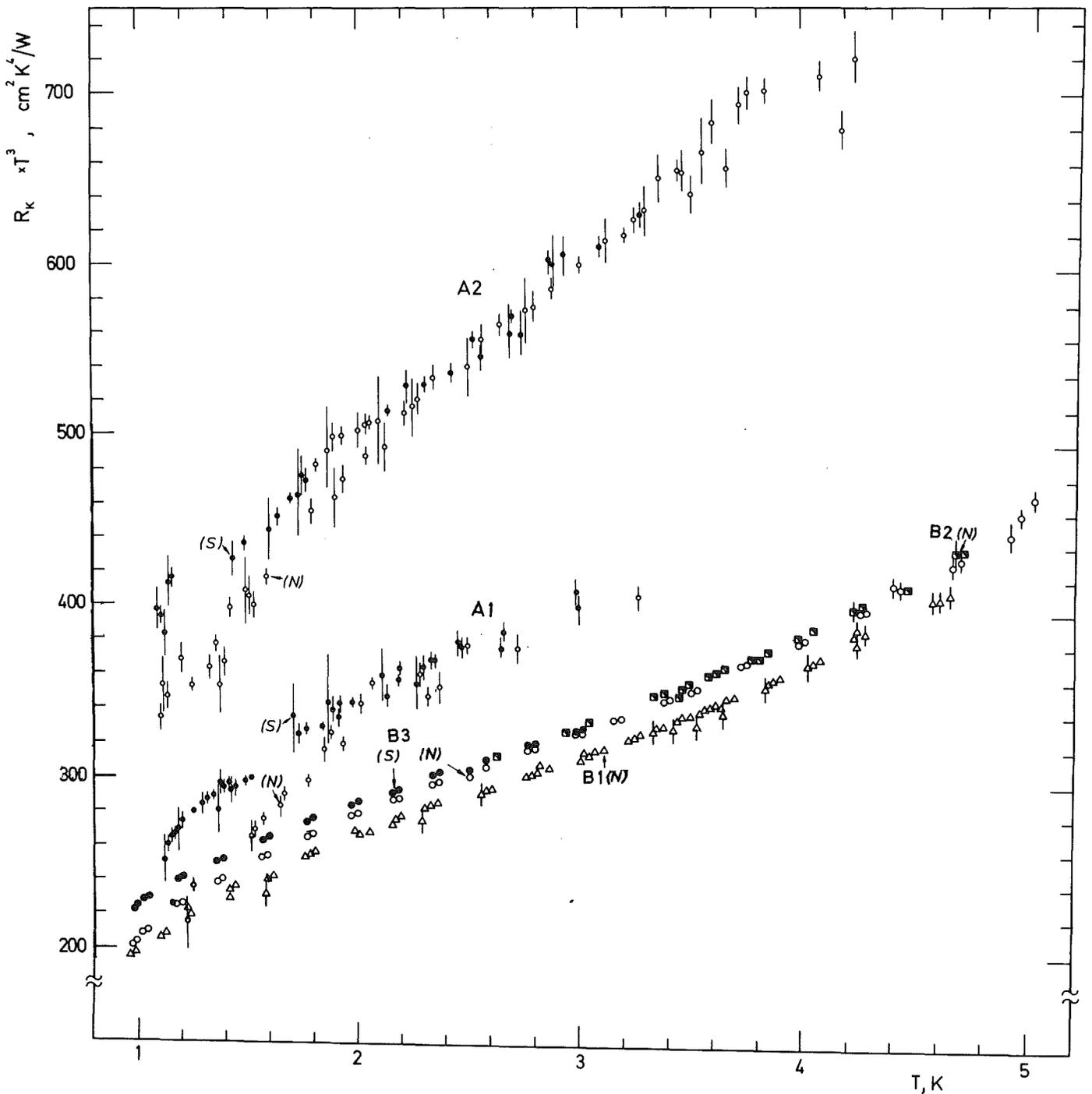


Abb. 20: Kapitza-Widerstand $\cdot T^3$ an einer Grenzfläche Saphir-Indium in Abhängigkeit der Temperatur für Probe A und B, (S) und (N) beziehen sich auf den supra- und normalleitenden Zustand des Indium. Die bei diesen Proben extrem hohen Werte für $R_k \cdot T^3$ sind auf schlechten Kontakt zurückzuführen (s. Text).

Betrachten wir die Temperaturabhängigkeit von R_k , so fällt auf, daß die Abweichung vom T^{-3} -Gesetz umso größer ist (anders ausgedrückt der Exponent n in $R_k \sim T^{-n}$ ist umso kleiner als 3), je schlechter der Kontakt ist. Genau das ist aber zu erwarten, denn mit sinkender Temperatur verschiebt sich das Phononenspektrum zu längeren Wellenlängen, für langwellige Phononen wird aber die effektive Oberfläche bei schlechtem Kontakt größer, da sie Lücken in der Verbindung, die viel kleiner als die Wellenlänge sind, nicht "sehen"¹⁴; also wird n kleiner als 3.* Diese Argumentation gilt allerdings nur, wenn die Lücken in der Verbindung klein sind gegenüber der Phononenwellenlänge, was im vorliegenden Fall bezweifelt werden muß. Wenn die schlechte Verbindung nicht direkt an der Grenzfläche, sondern zwischen der aufgesputterten Indiumschiicht und dem restlichen Indium auftritt, was vermutet wird, dann macht sich die endliche Wärmeleitfähigkeit der Indiumschiicht bemerkbar; diese steigt nicht wie $h_k = 1/R_k \sim T^3$ an und führt daher ebenfalls zu einer Abweichung des beobachteten Wärmewiderstandes vom T^{-3} -Gesetz.

Ebenfalls auf schlechten Kontakt zurückzuführen sind offenbar auch die von Wolfmeyer gemessenen hohen Werte für R_k^3 (vgl. Tab.III).

Die Proben C - F wurden mit der Aufdampf- und Preßtechnik hergestellt, sie zeigen durchweg einen geringeren Kapitza-widerstand in etwa derselben Größe (Abb. 21-24). An Probe C (Abb. 21) wurden 2 Messungen im Abstand von 6 Monaten vorgenommen, die zweite Messung deswegen, weil die Ergebnisse der ersten infolge unzureichender Meßtechnik stark streuten. Im Rahmen der Meßgenauigkeit der 1.Messung (ca. $\pm 10\%$) stimmen beide Experimente gut überein, deshalb werden im folgenden nur die Ergebnisse der 2.Messung behandelt. Mit Messung D (Abb. 22) sollte die Symmetrie von R_k bei umkehrbarem Wärmestrom getestet werden, bei E (Abb. 23) wurde derselbe Saphir wie bei A und B nochmals

*Aus demselben Grund zeigen übrigens Preßkontakte (die ja auch nichtperfekte Verbindungen sind) i.A. einen Wärmeübergangswiderstand $\sim T^{-n}$ mit n zwischen 2 und 2.5^{12} .

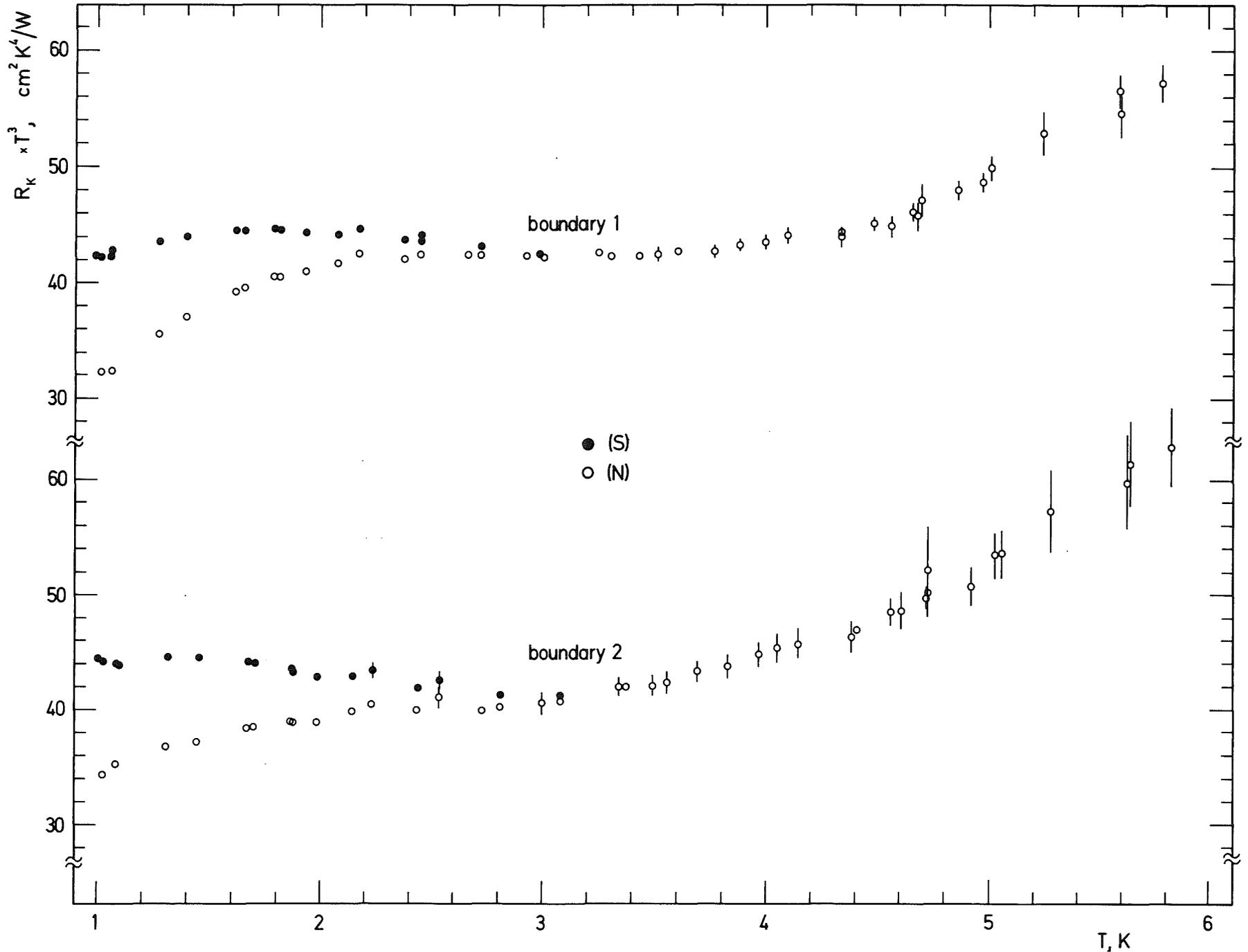


Abb. 21: $R_k \cdot T^3$ an den beiden Grenzflächen von Probe C, (S) und (N) beziehen sich auf den supraleitenden und normaleitenden Zustand des Indium.

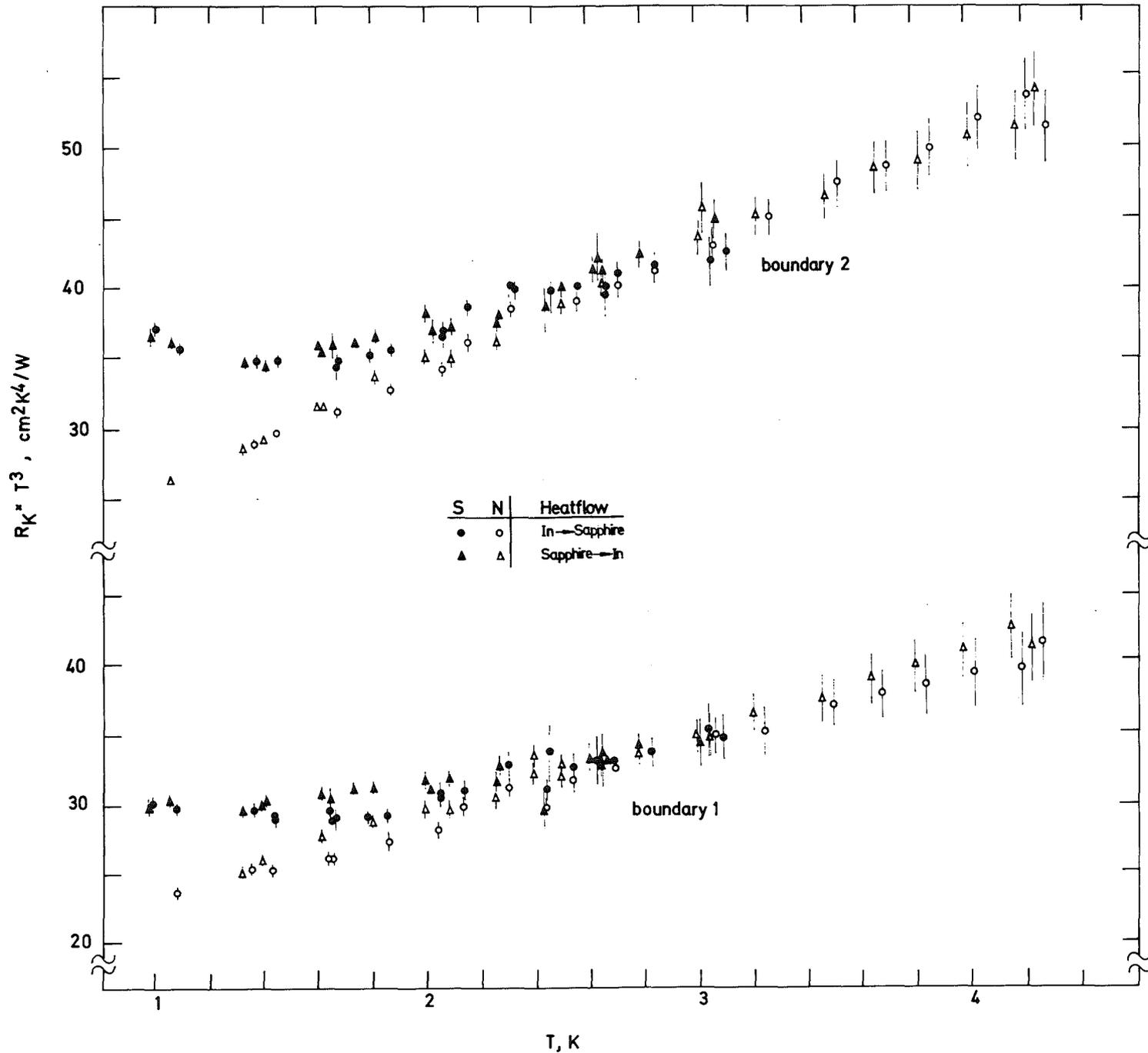


Abb. 22: Ergebnisse für die beiden Grenzflächen der Probe D, die Wärmestromrichtung konnte dabei während des Experiments umgekehrt werden.

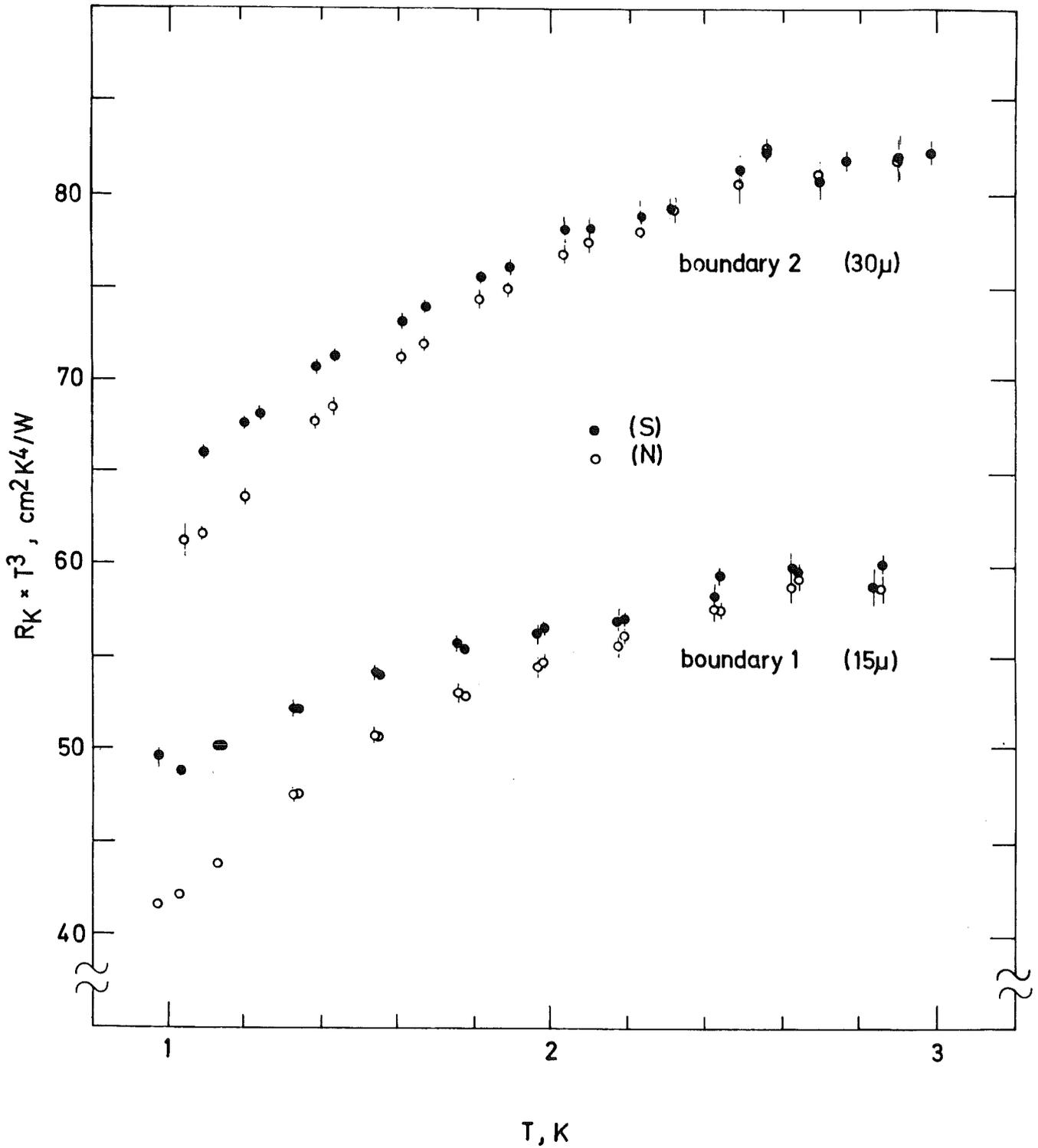


Abb. 23: Probe E, gleicher Saphir wie bei Probe A und B, zusätzlich versehen mit einer 2. Grenzfläche.

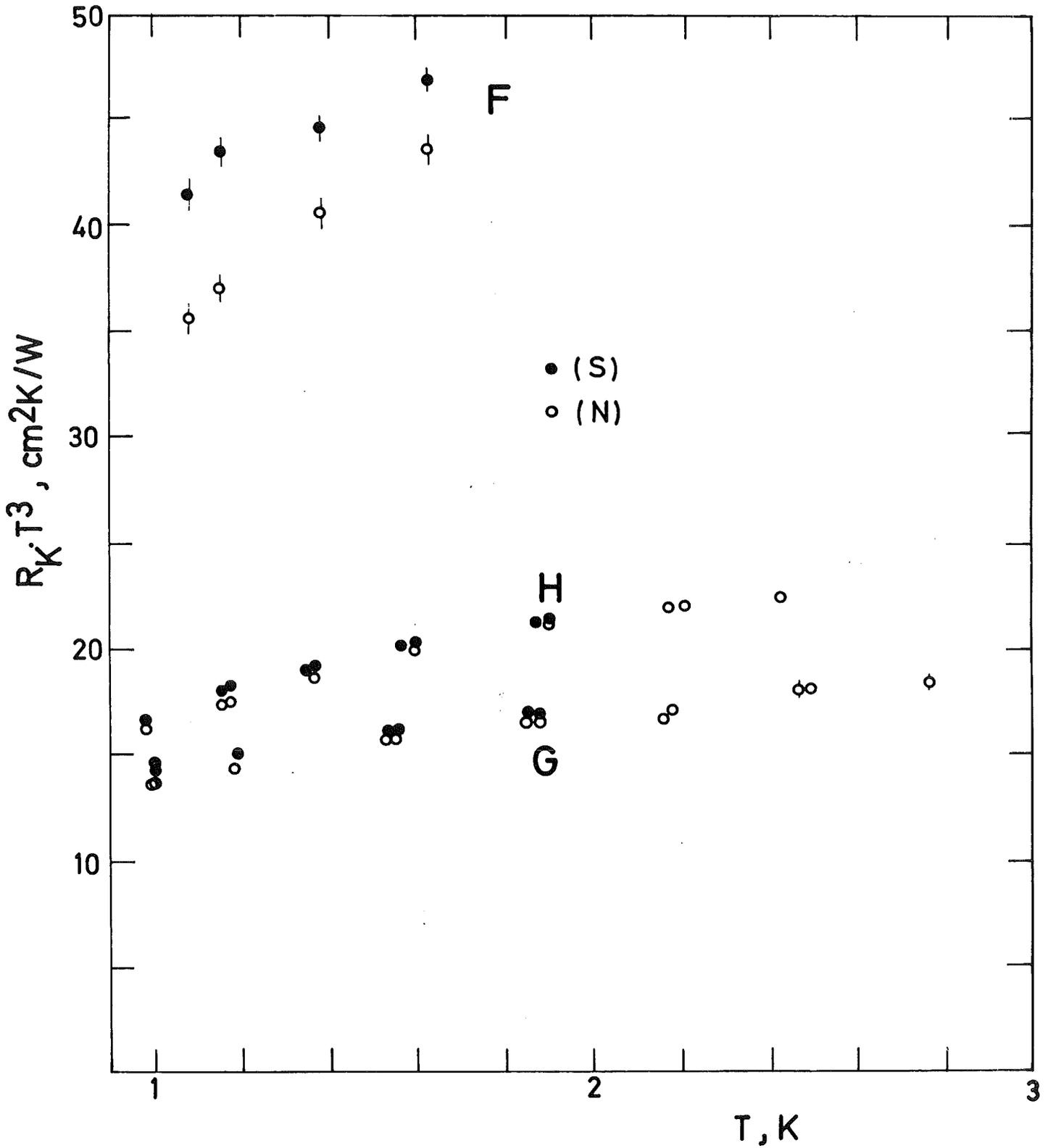


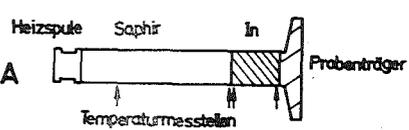
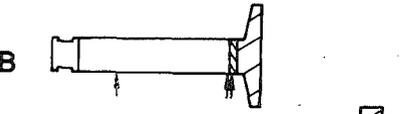
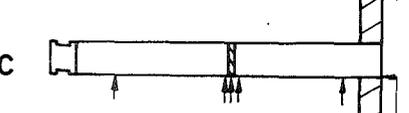
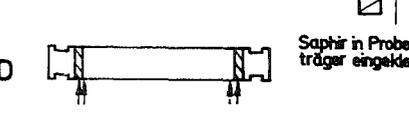
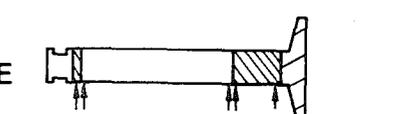
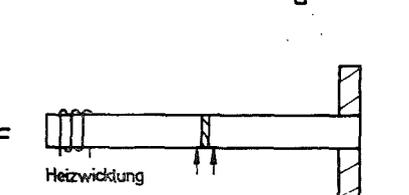
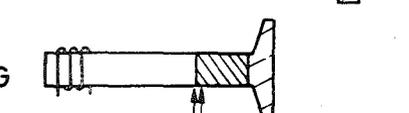
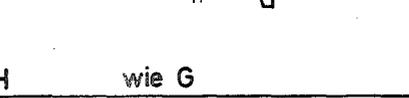
Abb. 24: Kapitza widerstand · T³ für Probe F (38μ starke Indiumschicht zwischen 2 Saphiren), und für die ultraschallgelöteten Proben H und G.

verwandt (mit einer zusätzlichen 2.Grenzfläche), um sicher zu gehen, daß der hohe Wert bei A und B auf schlechten Kontakt zurückzuführen war; bei F (Abb. 24) wurde schließlich eine sehr dünne Indiumschicht realisiert, um Fehler bei der Extrapolation der Temperatur zur Grenzfläche auszuschließen.

Wie wir sehen, laufen unterhalb von 3 K die Kurven für Indium supra- bzw. normaleitend auseinander, ein Hinweis darauf, daß die Metallelektronen am Wärmetransport über die Grenzfläche einen gewissen Anteil haben. Wir werden darauf im nächsten Abschnitt ausführlicher eingehen und diskutieren, hier nur den supraleitenden Fall. Betrachten wir die Absolutwerte von R_K bei 1 K, so sehen wir, daß die Ergebnisse für die je zwei Grenzflächen von Messung C und Messung D und der gemittelte Wert der Grenzflächen von F (bei F konnte nur ein gemittelter Wert für beide Grenzflächen gemessen werden, da an der Indiumschicht keine Temperatursonde angebracht war) recht gut übereinstimmen (s. Tab. III). Nur Messung E fällt offenbar heraus, insbesondere die 2.Grenzfläche. Eine mögliche Erklärung ist schlechter Kontakt, der sich jedoch durch eine Abweichung vom T^{-3} -Gesetz bemerkbar machen sollte. Dies ist in der Tat der Fall, wie man auf Abb.23 erkennt, und zwar ist die Abweichung für die 2.Grenzfläche größer als für die 1.Grenzfläche. Bei Probe C und D ist jedoch $R_K \sim T^{-3}$ wesentlich besser erfüllt, zumindest im Temperaturbereich zwischen 1 und 2 K. Die Abweichung vom T^{-3} -Gesetz bei Probe F läßt sich durch freie Weglänge-Effekte infolge der geringen Indiumschichtdicke erklären (s.Seite 72)

Einfluß der Oberflächenrauigkeit

Ein weiterer Punkt, der zu berücksichtigen ist, ist die Rauigkeit der Grenzfläche (bei der Probenherstellung wurden Saphire mit optisch polierter und mit aufgerauhter Stirnfläche verwandt). Bei einer nicht glatten Oberfläche ist die mikroskopische Oberfläche größer als die makroskopisch ausgemessene Oberfläche. In bestimmten Fällen kann daraus eine scheinbare Erhöhung des mit der makroskopischen Oberfläche berechneten Kapitzwiderstandes resultieren. Nach Little¹⁴ ist R_K von der Oberflächenrauigkeit unabhängig, wenn die freie Weglänge der Phononen ℓ groß ist gegenüber der mittleren "Amplitude" der Rauigkeit,

Probe	Oberflächenbeschaffenheit des Saphirs	Herstellung der Verbindung	Stärke der Indiumschicht (Länge des Indiumzylinders)	R_K (1 K) [cm ² K/W]		$\frac{h_{KN} - h_{KS}}{h_{KN}}$	
				(N)	(S)		
 <p>A</p>	15 μ	Sputtern, Aufdampfen Vakuumvergießen	8 mm				
 <p>B</p>	Saphir wie bei A	Indium aufdampfen, weiteres Indium aufpressen	0.5 mm	(200)	(220)	0.07	
 <p>C</p>	optisch poliert		0.5 mm	32 34	42 44	0.24 0.23	
 <p>D</p>	Grenzfl.1:7μ " 2:7μ		0.7 mm 0.5 mm	23.5 26	30 36	0.22 0.27	
 <p>E</p>	Grenzfl.1: wie A Grenzfl.2: 30μ		0.2 mm 6 mm	42 60	48 64	0.13 0.06	
 <p>F</p>	optisch poliert		aufdampfen, im Vakuum bei 200° C zusammendrücken	38 μ	35	41	0.15
 <p>G</p>	poliert (vor der Probenherstellung)		Ultraschalllöten, Aufschmelzen von weiterem Indium im Vakuum	7 mm	13.7	14.5	0.055
 <p>H wie G</p>					16.1	16.6	0.05
Neeper et al. ²				35 mm	27.7	28.4	0.025
Park et al. ⁴			einige mm	26.2	27.8	0.06	
Wolfmeyer et al. ³	rauh	aufdampfen Vakuumvergießen	30 mm	81	96	0.16	

Tab. III : Zusammenstellung der Saphir-Indiumproben sowie einige typische Ergebnisse im Vergleich mit den Experimenten anderer Autoren.

da dann die Anzahl der auf der Grenzfläche auftreffenden Phononen nur von der makroskopischen Oberfläche abhängig ist. In Saphir ist ℓ in jedem Fall sehr groß gegenüber der Rauigkeit, in einem Metall ist ℓ jedoch sehr viel kleiner aufgrund der Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Pippard⁴³ gibt eine Formel an zur Berechnung von ℓ longitudinaler Phononen in Metallen, danach ist für Indium bei 1 K $\ell = 1 \mu$, d.h. vergleichbar mit der Amplitude der Oberflächenrauigkeit (im supraleitenden Zustand muß jedoch mit einer erheblich größeren freien Weglänge gerechnet werden). Wir sehen also, daß nach der Argumentation von Little die effektive Oberfläche auf der Indiumseite größer ist als auf der Saphirseite. Das führt jedoch zu einem Widerspruch, da dann bereits ohne Temperaturdifferenz der Energie-transport in Richtung Saphir größer wäre als in Richtung Indium, d.h. ein Nettoenergiestrom bei gleicher Temperatur der Probenhälften vorhanden wäre. Wir müssen also annehmen, daß unabhängig von der freien Weglänge der Phononen der Kapitza-widerstand durch eine rauhe Oberfläche verringert wird, sofern nur die Phononenwellenlänge (typischer Wert in Saphir bei 1 K : 900 Å) klein ist gegenüber der Rauigkeit der Oberfläche. Diese Interpretation steht in Übereinstimmung mit einer Berechnung des Einflusses der Oberflächenrauigkeit von Adamenko und Fuks⁴⁴.

Es ist schwierig, aus den Ergebnissen von relativ wenigen Proben eine sichere Aussage zu machen über einen Zusammenhang zwischen dem Absolutwert von R_k und der Oberflächenrauigkeit. Wenn man Probe E zunächst herausläßt wegen schlechten Kontakts, so liegen tatsächlich die R_k -Werte für die beiden 7μ -Grenzflächen von D unter denen der beiden polierten Grenzflächen von Probe C, was die Absenkung von R_k bei rauher Oberfläche bestätigen würde.

Halten wir abschließend fest, daß bei den Aufdampfproben ein typisches Ergebnis für den Kapitza-widerstand im supraleitenden Zustand des Indium

$$R_{kS} = 40/T^3 \text{ (cm}^2\text{K/W)}$$

ist.

Ergebnisse der durch Ultraschallöten hergestellten Proben

Von Neeper² und von Park⁴ wurden Werte für R_k (Saphir-In) gemessen, die erheblich niedriger liegen (s. Tab.III). Allerdings erfolgte die Probenherstellung durch Ultraschalllöten. Es wurden daher ebenfalls 2 Ultraschallproben hergestellt (G und H), um einen möglichen Einfluß der Probenherstellung zu testen. Das Ergebnis war überraschend (Abb. 24): Der Kapitzawiderstand lag bei diesen Proben fast um einen Faktor 3 niedriger als bei den Aufdampfproben, und selbst noch wesentlich unter den Werten von Neeper und Park. Man könnte annehmen, bei den Ultraschallproben sei endlich ein guter Kontakt zwischen Saphir und Indium hergestellt worden und die Aufdampfproben hätten wegen schlechter Verbindung einen höheren Widerstand. Wir halten diese Möglichkeit nicht für wahrscheinlich, wegen der relativ guten Reproduzierbarkeit der Aufdampfproben, zumindest der "guten", die das T^{-3} -Gesetz erfüllen, vor allem aber aus einem anderen Grund: Beim Ultraschallöten wird die Saphiroberfläche mechanisch stark beansprucht, die Verbindung kommt wesentlich dadurch zustande, daß die Oberfläche aufgerissen wird und somit ein die Verbindung behindernder Oberflächenbelag (z.B. adsorbierte Gase) beseitigt wird. Im Mikroskop kann man beobachten, daß eine polierte Saphiroberfläche nach Behandlung mit dem UltraschalllötKolben recht zerklüftet aussieht. Wenn bei einer Ultraschall-Saphir-Indium-Probe das Indium mit Salpetersäure entfernt wurde, so blieb auf der Oberfläche ein dunkler Schimmer zurück (was bei Aufdampfproben nie der Fall war), ein Hinweis darauf, daß Indiumreste tief in der Saphiroberfläche zurückblieben.

Für den geringen Kapitzawiderstand der Ultraschallproben gibt es mehrere mögliche Erklärungen: 1. Beim Lötvorgang wird eine Übergangsschicht gebildet, die die unterschiedlichen akustischen Impedanzen von Saphir und Indium kontinuierlich anpaßt und dadurch R_k absenkt. 2. Die stark gestörte Oberflächenschicht des Saphir wirkt als Dämpfungsmechanismus für die Oberflächenwellen, die durch aus dem Indium kommende totalreflektierte Phononen entstehen (s. Abschn. B 3). 3. wird durch den Lötvorgang die effektive Oberfläche u.U. vergrößert. Möglicherweise wirken alle drei vorgeschlagenen Mechanismen zusammen.

Die Diskrepanz zwischen den vorliegenden Messungen G und H und denen von Neepier und Park lassen sich damit auch zwanglos erklären. Je nach der speziellen Art des Lötvorgangs kann die Störung der Oberflächenschicht bzw. der Grenzschicht unterschiedlich sein. Wir halten aus den angeführten Gründen die an den Ultraschallproben vorgenommenen Experimente nicht für geeignet, Theorien über den Kapitza-Widerstand zu testen.

Vergleich mit der Acoustic-Mismatch-Theorie

Der Vergleich mit der Acoustic-Mismatch-Theorie nach ¹⁴ ist nicht ganz einfach, da in dieser Arbeit die integrierten Übergangswahrscheinlichkeiten Γ_1 und Γ_t (vgl. Abschn. B 2, Formel (11)) nur für Verhältnisse $c_2/c_1 < 2$ angegeben sind, während für Saphir-Indium $c_2/c_1 = 4.15$ ist. Man muß also die dort angegebenen Konturen extrapolieren, was naturgemäß zu einer Erhöhung der Unsicherheit führt. Zudem ist die Schallgeschwindigkeit für transversale Phononen in Indium stark anisotrop und schwankt für verschiedene Richtungen um mehr als einen Faktor $2^{3.5}$. Je nach Annahme eines Verhältnisses $c_1/c_t = 2$ oder 3 in Indium (für diese beiden Fälle sind die Berechnungen von Little durchgeführt), erhält man für

$$R_k \cdot T^3 = 19.5 \text{ bzw. } 22 \text{ cm}^2 \text{K}^4 / \text{W},$$

was gut mit den von Park berechneten Werten 19.1 bzw. 20.5 übereinstimmt.

Wir halten als wichtiges Ergebnis fest, daß die experimentellen Werte für R_k rund zweimal höher liegen als die Acoustic-Mismatch-Theorie, im Gegensatz zu Festkörper-Helium-Experimenten, wo alle Theorien ein zu hohes R_k liefern.

Symmetrie des Kapitza-Widerstandes bezüglich der Wärmestromrichtung

Die Unabhängigkeit des Kapitza-Widerstandes von der Wärmestromrichtung wird in der Acoustic-Mismatch-Theorie vorausgesetzt, da der Nettoenergiestrom \dot{Q} als Differenz von Energieströmen in beide Richtungen berechnet wird, die im Falle $\dot{Q} = 0$, also im thermischen Gleichgewicht gleich sein müssen (vgl. Gl.5, Seite 9).

Experimentell ist die Symmetrie von R_k in einem Experiment mit umkehrbarem Wärmestrom bisher noch nicht überprüft worden, daher wurde mit Probe D ein derartiges Experiment vorgenommen. Die Meßmethode soll anhand von Abb.25 erläutert werden: Probe D, die an beiden Seiten mit einer Heizspule versehen war, wurde beidseitig mit Kupferdrähten, die als Wärmewiderstand dienten, an das Heliumbad angekoppelt. Bei Anschalten, sagen wir der linken Heizung, fließt der Wärmestrom teilweise durch den linken Kupferdraht und teilweise

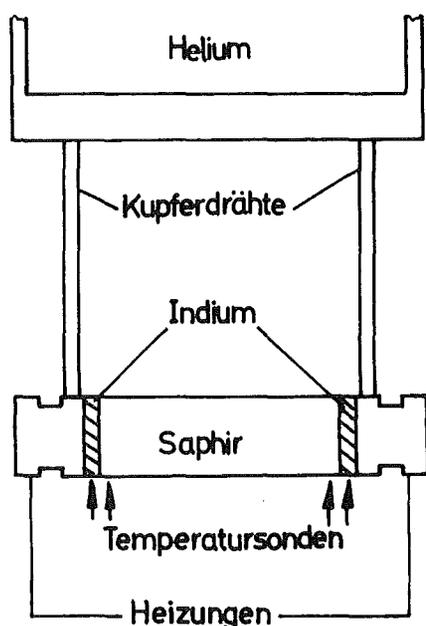


Abb. 25: Experiment zur Untersuchung der Symmetrie des Kapitza-Widerstandes.

durch die Probe (von links nach rechts) und den rechten Kupferdraht ins Heliumbad ab, schalten wir dagegen die rechte Heizung ein, so fließt der Wärmestrom in der Probe in umgekehrter Richtung. Die Größe des Wärmestroms durch die Probe wurde aus dem Temperaturabfall am Saphir und dessen bekannter Wärmeleitfähigkeit berechnet. Die (bereits unter anderen Gesichtspunkten vorgestellten) Ergebnisse in Abb.22 zeigen im Rahmen der relativen Meßgenauigkeit ($\pm 2-3\%$) keine Abweichung von der Symmetrie. (Die scheinbar systematische Abweichung bei Grenzfläche 1 zwischen 3 und 4 konnte auf den Einfluß von Thermospannungen an den Spannungsabgriffen zurückgeführt werden.)

1.4 Einfluß der Leitungselektronen auf den Kapitzwiderstand zwischen Saphir und Indium

Wie wir bereits gesehen haben, erniedrigt sich der Kapitzwiderstand, wenn man durch Anlegen eines Feldes den supraleitenden Zustand im Indium zerstört. Unterhalb von etwa 3 K beginnen sich die Kurven von R_{kS} und R_{kN} (die Indizes S und N beziehen sich auf supra- und normalleitend) zu trennen (Indium wird bei 3.4 K supraleitend) und laufen zu tieferen Temperaturen immer weiter auseinander. Bei 1 K beträgt der Unterschied 20-25% (s. Tab.III). Die zusätzliche Kapitzaleitfähigkeit im normalleitenden Zustand wird, wie wir annehmen müssen, durch die Leitungselektronen im Indium verursacht, deren Zahl im Suprazustand unterhalb des Sprungpunktes mit sinkender Temperatur wegen der zunehmenden Kondensation zu Cooper-Paaren exponentiell abfällt.

Auf welche Weise die Leitungselektronen des Indium mit den Gitterschwingungen im Saphir wechselwirken, ist noch nicht gut verstanden. Wie wir in Abschnitt B 3 gesehen haben, kann durch Dämpfung von Oberflächenwellen, die bei Totalreflexion entstehen, Energie übertragen werden. Als Dämpfungsmechanismus kommen in Metallen in erster Linie die Leitungselektronen infrage. Im Falle Saphir-Indium gibt es jedoch für aus dem Saphir auf die Grenzfläche auftreffende Phononen keinen kritischen Winkel, oberhalb dessen Totalreflexion eintritt, da die Schallgeschwindigkeiten in Saphir größer sind, d.h. diese Phononen regen keine Oberflächenwellen an, deren Dämpfung durch die Metallelektronen des Indium zusätzliche Energie ins Indium übertragen könnten.

Als ein weiterer möglicher Mechanismus wurde von Little die Wechselwirkung der Metallelektronen mit dem als Folge der Gitterschwingungen sich periodisch ändernden Potential der Grenzfläche vorgeschlagen¹⁹. Dieser Wärmetransportmechanismus ist nach Little sowohl für Einfallswinkel unter- als auch oberhalb des kritischen Winkels wirksam, den Ausführungen von Park zufolge⁴ trägt er jedoch in einem Fall wie Saphir-Indium, wo kein kritischer Winkel existiert, nicht zum Wärmestrom bei.

Infolge der unklaren theoretischen Situation sind Zweifel aufgetaucht, ob der beobachtete Unterschied zwischen R_{kS} und R_{kN}

ein echter Effekt ist, oder nur durch falsche Extrapolation der Temperatur zur Grenzfläche hin vorgetäuscht wird²². Von Cheeke wurde der Kapitza-Widerstand zwischen Blei und Helium gemessen⁴⁵ und für stark beschädigte Bleioberflächen fand er R_{kS} bis zu 15 mal größer als R_{kN} . Als mögliche Erklärung vermutet er eine falsche Extrapolation zur Grenzfläche, da im supraleitenden Zustand die dünne stark gestörte Bleischicht nahe der Oberfläche einen extrem hohen Wärmewiderstand haben könne und damit ein hohes R_{kS} vortäusche. Um diese Fehlerquelle auszuschalten, wurde Experiment F durchgeführt, bei dem eine nur 38μ starke Indiumschicht zwischen 2 Saphire gepreßt wurde. Bei 1 K betrug $\Delta R_k = (R_{kS} - R_{kN}) = 6 \text{ cm}^2\text{K/W}$. Wenn wir annehmen würden, daß $2 \cdot \Delta R_k$ in Wirklichkeit der Wärmewiderstand der Indiumschicht im supraleitenden Zustand wäre (der Faktor 2 resultiert daraus, daß 2 Grenzflächen vorhanden sind), dann wäre die Wärmeleitfähigkeit des Indium nur $\lambda_S = 38\mu/2\Delta R_k = 3 \cdot 10^{-3} \text{ W/cmK}$, ein Wert, der über 3 Zehnerpotenzen unter dem bulk-Wert liegt und unrealistisch klein ist, zumal wenn man bedenkt, daß die Indiumschicht zunächst nicht stark gestört ist (die Probe wurde im Vakuum zusammengeschmolzen) und nur durch die unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten von Saphir und Indium beim Abkühlen beansprucht wird. Der oben genannte Zweifel dürfte somit ausgeräumt sein.

In Tab.III sind die Werte $\Delta h_k = (h_{kN} - h_{kS})/h_{kN}$ eingetragen, die von der effektiven Oberfläche und damit von der Oberflächenrauigkeit unabhängig sein sollten. Wie wir sehen, ist die Übereinstimmung bei den vier Grenzflächen der Proben C und D recht gut, wenn wir berücksichtigen, daß die Δh_k mit einem Fehler von etwa $\pm 10\%$ behaftet sind. Bei Probe E ist Δh_k kleiner, was wir wieder auf schlechten Kontakt zurückführen. Probe F stellt infolge der geringen Indiumschichtdicke d einen Sonderfall dar. Wir müssen annehmen, daß im supraleitenden Fall die freie Weglänge der Phononen ℓ im Indium nicht mehr klein gegenüber d ist, und sich daher im Phononensystem keine Gleichgewichtsverteilung einstellt. In diesem Fall wird die Transmission der Phononen durch mehrfache Hin- und Herreflexionen an den Grenzflächen erhöht und für $\ell \gg d$ erwartet man als Gesamtwiderstand der beiden Grenzflächen⁴⁶

$$2 R_{\text{exp}} = (2 - 2\Gamma) \cdot R_k$$

dabei ist $R_{\text{exp}} = A \cdot \Delta T / \dot{Q}$ der gemessene scheinbare Kapitzwiderstand und $\Gamma \leq 0.5$ ist die Transmissionswahrscheinlichkeit. Es wird also ein zu kleiner Kapitzwiderstand gemessen. In Probe F ist Δh_k kleiner als bei den Proben C und D, das läßt sich qualitativ durch Verringerung von $R_{\text{exp}(S)}$ durch Mehrfachreflexionen infolge der großen freien Weglänge im supraleitenden Zustand erklären. Gleichzeitig wird dann auch die Abweichung vom T^{-3} -Gesetz bei Probe F verständlich, da λ mit sinkender Temperatur ansteigt. Welchen Einfluß die Schichtdicke haben kann, geht aus Experimenten von Challis und Sherlock hervor⁴⁶, die mit einer 2. Schallmethode den Kapitzwiderstand zwischen dünnen Metallfolien und Helium II gemessen haben: In vielen Fällen wurde sogar $R_{kS} < R_{kN}$ gefunden!

Ein weiterer wichtiger Punkt, der geklärt werden konnte, ist die Frage, ob der höhere Wert von R_{kS} einfach daraus resultiert, daß im supraleitenden Fall das Phononensystem im Indium nahe der Grenzfläche nicht die gleiche Temperatur hat wie das Elektronensystem, im wesentlichen aber die Temperatur des Elektronensystems gemessen wird. Dieser "Phonon-Elektron-Übergangswiderstand" ist in normalleitenden Metallen verschwindend klein gegenüber R_k ¹⁴, muß jedoch im supraleitenden Fall als wesentlich höher angesetzt werden. Eine genaue Abschätzung ist schwierig. Gerade anhand der Probe F können wir jedoch zeigen, daß dieser Effekt nicht für die Differenz $R_{kS} - R_{kN}$ verantwortlich sein kann. Wenn nämlich im supraleitenden Fall $\lambda \gg d$ ist, dann spielt der Phonon-Elektron-Übergangswiderstand keine Rolle und die Tatsache, daß trotz möglicher Mehrfachreflexion der Phononen $R_{kS} > R_{kN}$ ist, zeigt nachdrücklich, daß die Metallelektronen direkt mit dem Phononensystem im Saphir wechselwirken müssen. Für den Fall $\lambda \ll d$, ist eine starke Kopplung zwischen Elektronen- und Phononensystem vorhanden und jener Übergangswiderstand vernachlässigbar klein. Eine rohe Abschätzung zeigt übrigens, daß die gleiche Argumentation auch noch bei dickeren Indiumschichten wie etwa bei Probe C gültig ist.

Die Ultraschallproben G und H (wie auch die Proben von Neeper und Park) zeigen einen wesentlich geringeren Unterschied zwischen R_{kS} und R_{kN} , eine plausible Erklärung dafür ist: Eine Erhöhung der Kapitzaleitfähigkeit $1/R_k$ aufgrund der gestörten Oberflächenschicht im Saphir führt bei gleichbleibender Kopplung der Elektronen an das Phononensystem im Saphir zu einer Verringerung von $R_{kS} - R_{kN}$. Auch hier scheint es so, daß die Aufdampfproben repräsentativere Ergebnisse liefern können.

Feldabhängigkeit von R_k

Bei den Experimenten stellte sich heraus, daß R_k bei Überschreiten des kritischen Feldes von Indium keineswegs einen Sprung macht, sondern kontinuierlich mit steigendem Feld abfällt. Das ist nicht verwunderlich, da aufgrund der Probengeometrie schon bei Feldern unterhalb H_c magnetischer Fluß in die Probe eindringt, es liegt dann der Zwischenzustand vor. Für Indium ist $H_c(T = 0) = H_0 = 283$ Oe, für Temperaturen $\neq 0$ kann das kritische Feld nach

$$H_c \approx H_0 (1 - (T/T_c)^2)$$

näherungsweise berechnet werden. Es beträgt für Indium 260 Oe bei 1 K und 185 Oe bei 2 K. Bei Berücksichtigung des Entmagnetisierungsfaktors ergibt sich für eine dünne Scheibe mit $d \ll R$ (d Dicke, R Radius) senkrecht zum Feld⁴⁷ für das Feld H_c^0 , oberhalb dessen der Zwischenzustand einsetzt

$$H_c^0 \approx \frac{1}{2} \pi \frac{d}{R} H_c .$$

Im Zwischenzustand breiten sich die Teile der Grenzfläche, die an normalleitendes Indium angrenzen, mit steigendem Feld aus, so daß ein stetiges Absinken des über alle Bereiche gemittelten Kapitzawiderstandes zu erwarten ist. Völlig normalleitend wird die Probe erst bei H_c . Bei einer 0.5 mm dicken Indiumscheibe ist $H_c^0 = 65$ Oe bei 1 K. Bei Probe D war das Feld parallel zur Grenzfläche ($\pm 2^\circ$), hier muß mit einem etwas größeren H_c^0 gerechnet werden. Abb. 26 zeigt einige typische Ergebnisse der Feldabhängigkeit von R_k . Probe D und E verhalten sich annähernd wie erwartet, bei Probe D setzt der Abfall von R_k entsprechend dem höheren H_c^0 erst bei etwas größerem Feld ein.

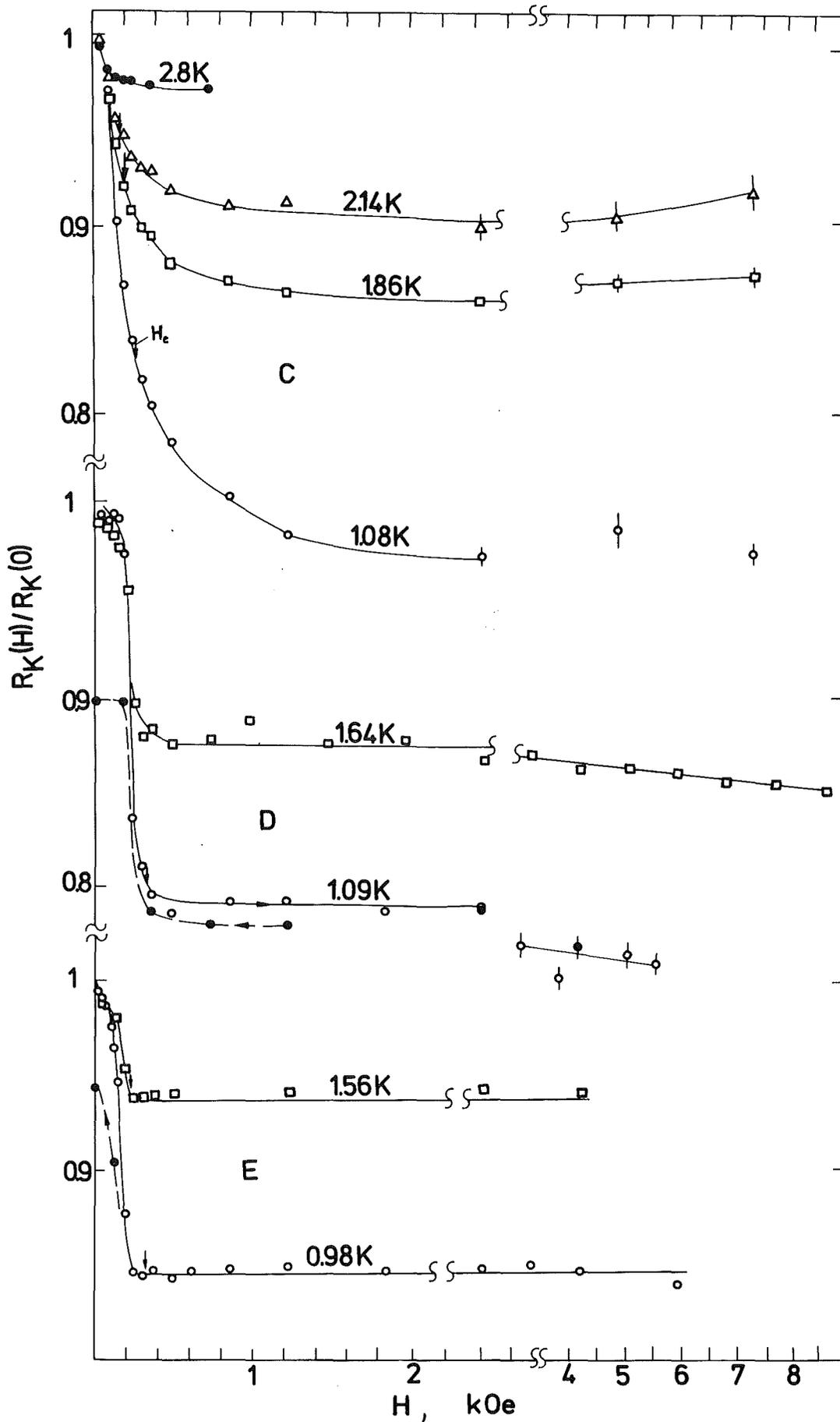


Abb. 26: Feldabhängigkeit des Kapitza widerstandes zwischen Saphir und Indium. Probe C: Grenzfläche 2, Probe D und E Grenzfläche 1. Die Pfeile geben jeweils das kritische Feld H_c für Indium an, das Magnetfeld dringt aufgrund der Probengeometrie jedoch schon bei kleineren Feldern in das Indium ein (s.Text).

Überraschend verhält sich Probe C, wo R_k noch für Felder weit über H_c weiter abfällt. Zudem scheint es, daß oberhalb von 4 kOe R_k wieder ansteigt (dieser Effekt war bei der anderen Grenzfläche von Probe C noch wesentlich ausgeprägter). Dies kann nicht auf den thermischen Magnetowiderstand von Indium zurückgeführt werden, der die Wärmeleitfähigkeit höchstens um einen Faktor 2-3 verringern kann⁴¹, was zur Erklärung des beobachteten Effekts keineswegs ausreicht. Auch bei Probe D ist der steile Abfall von R_k erst oberhalb von H_c beendet, darüber hinaus ist jedoch ein weiteres leichtes Absinken mit steigendem Feld zu beobachten.

Wir können davon ausgehen, daß die Veränderung der Elektronenbahnen im Magnetfeld den Beitrag, den die Elektronen zu h_k liefern, beeinflussen. Dieser Einfluß wird u.a. abhängig sein von der Schichtdicke des Indiums, der Kristallorientierung (in unserem Fall liegt das Indium in polykristalliner Form vor), der freien Weglänge der Elektronen und der Magnetfeldorientierung. Um zu gesicherten Aussagen zu kommen, wäre eine systematische Änderung dieser Parameter nötig, was in der vorliegenden Arbeit nicht versucht wurde. Ein starker Magnetfeldeinfluß auf R_k wurde auch an Gallium-Helium-II-Grenzflächen festgestellt, ebenfalls bei Feldern weit über H_c und speziell auch eine beträchtliche Abhängigkeit von der Kristallorientierung⁴⁸.

Eine andere mögliche Erklärung für die Feldabhängigkeit von R_k noch oberhalb H_c wäre eine starke Verunreinigung der Indiumschicht nahe der Grenzfläche, was eine Umwandlung in einen Typ II-Supraleiter mit höherem kritischem Feld zur Folge haben könnte. Wenn man berücksichtigt, daß die Rubin-Kupfer-Proben keine Feldabhängigkeit zeigen (Abschn.1.5), scheint diese Erklärung die wahrscheinlichere. Auch läßt sich dann das stark abweichende Verhalten von Probe C einfach durch größere Verunreinigung erklären.

1.5 Kapitawiderstand an einer Rubin-Cu+Mn-Grenzfläche

In diesem Experiment sollte untersucht werden, ob magnetische Verunreinigungen beiderseits der Grenzfläche einen zusätzlichen Mechanismus zum Wärmetransport durch Spinkopplung liefern

können, entsprechend dem zusätzlichen Wärmetransport durch Kopplung der Elektronenspins paramagnetischer Salze^{6,7} oder paramagnetischer Verunreinigungen in Metallen⁸ mit den Kernspins von ³He.

Kupfer mit Manganverunreinigungen ordnet magnetisch bei einer Temperatur, die etwa proportional zur Mn-Konzentration ist, und etwa 0.2 K bei 100 ppm Mn^{4,9} beträgt. Die Experimente an 2 Proben, Rubin (Al₂O₃ + 0.5 at.% Cr.) - Kupfer (+100 ppm bzw. +0.3% Mn), sollten ursprünglich in einem tieferen Temperaturbereich durchgeführt werden, denn bei ⁴He-Temperatur (1...4 K) konnte wegen der geringen magnetischen Wechselwirkung kaum ein meßbarer Effekt erwartet werden. In der Tat konnte kein anomales Verhalten des Kapitza-Widerstandes beobachtet werden, auch eine Feldabhängigkeit von R_k in Magnetfeldern bis 10 kOe wurde nicht festgestellt, bei einem relativen Meßfehler von ±0.3%. Daher werden die Ergebnisse im folgenden nur aus der Sicht des Kapitza-Widerstandes zwischen Al₂O₃ und Kupfer diskutiert, da wir die magnetischen Verunreinigungen im Heliumtemperaturbereich offenbar "vergessen" können.

Die Rubin-Cu + 100 ppm Mn-Probe zeigte einen Kapitza-Widerstand von

$$R_k = 30 \cdot T^{-2.79} \text{ cm}^2 \text{ K/W}$$

mit einem Absolutfehler von etwa 15% infolge der nicht genau bekannten Größe der Grenzfläche (s. Abb. 27). Nach der Acoustic-Mismatch-Theorie wird $R_k = 20 \cdot T^{-3}$ erwartet. Auch hier liefert also die Theorie einen zu niedrigen Wert. Die zweite Probe (Rubin-Cu + 0.3% Mn) ist zum quantitativen Vergleich mit der Theorie weniger geeignet, da bei der Probe nur ein relativ kleiner, schwer abschätzbarer Teil der Rubinoberfläche Kontakt mit dem Kupfer hatte. An den Stellen, wo Kontakt vorhanden war, waren zudem viele kleine und kleinste Hohlräume zu erkennen. Die Temperaturabhängigkeit ging $\sim T^{-2.3}$, was bereits auf mangelhaften Kontakt schließen läßt, der Absolutwert bei 1 K lag bei $50 \pm 10 \text{ cm}^2 \text{ K/W}$.

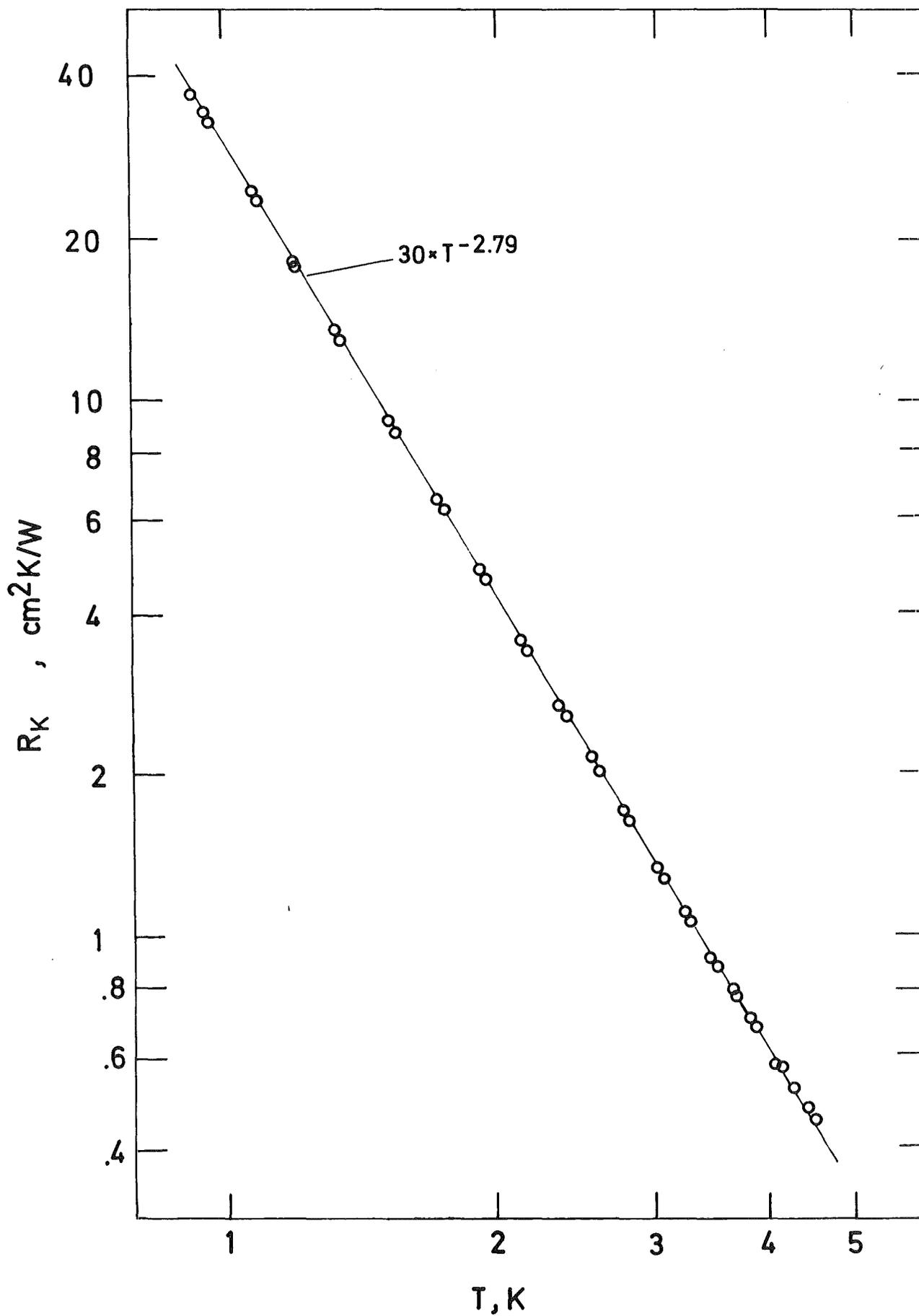


Abb. 27: Kapitza widerstand an einer Grenzfläche zwischen Al_2O_3 und Kupfer.

2. Die Niob-Kupfer und NbTi-Kupfer-Experimente

2.1 Wärmeleitfähigkeit von Niob und NbTi

Zur Charakterisierung des Niob können das Restwiderstandsverhältnis $\rho(293 \text{ K})/\rho(10 \text{ K}) = 44$ und die Magnetisierungskurve* (Abb. 28) dienen. Die Werte für H_{c2} können aus den Kurven abgelesen werden. Die Definition von H_{c1} ist bei Proben mit nichtreversiblen Magnetisierungskurven aufgrund von Oberflächen- und Volumenpinning-Effekten wenig sinnvoll, besser ist die Einführung eines Feldes H_{fp} (= flux-penetration), oberhalb dessen magnetischer Fluß in die Probe eindringt.

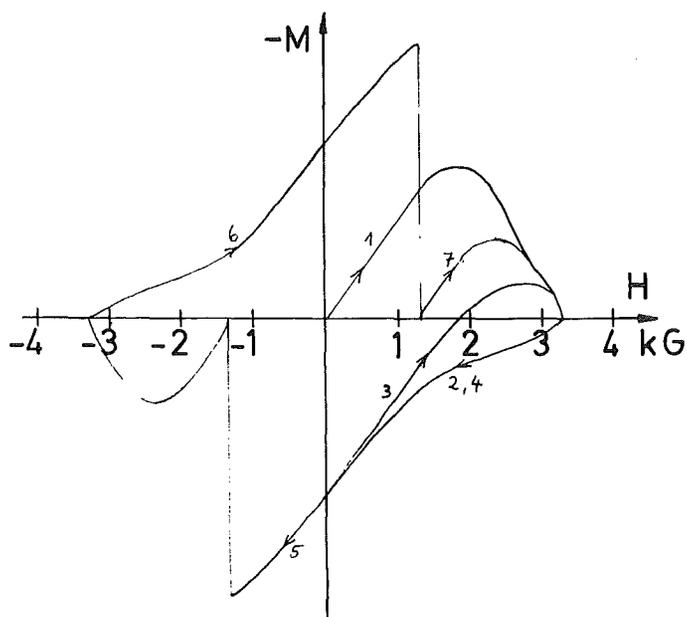


Abb. 28: Magnetisierungskurve der Nb-Probe bei 4.2 K. (Eine bei 2.1 K aufgenommene Kurve zeigt qualitativ denselben Verlauf.) Aus den Kurven liest man ab:

	4.2 K	2.1 K
H_{c2}	3.3	4.1
H_{fp} [kG]	1.4	1.7
(s. Text)		

Abb. 29 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit (WLF) mit dem Magnetfeld als Parameter (Feldrichtung parallel zum Wärmestrom): Im supraleitenden Zustand sinkt die WLF unterhalb von T_c (für Nb etwa 9.2-9.5 K) infolge der zunehmenden Kondensation der Leitungselektronen zu Cooperpaaren schnell ab. Bei Temperaturen weit unter T_c beginnt die Gitterleitfähigkeit eine Rolle zu spielen, die sich der elektronischen Leitfähigkeit überlagert. Die Gitterleitfähigkeit, die in reinen

*Die Magnetisierungskurve wurde von Herrn E.Umlauf, München gemessen

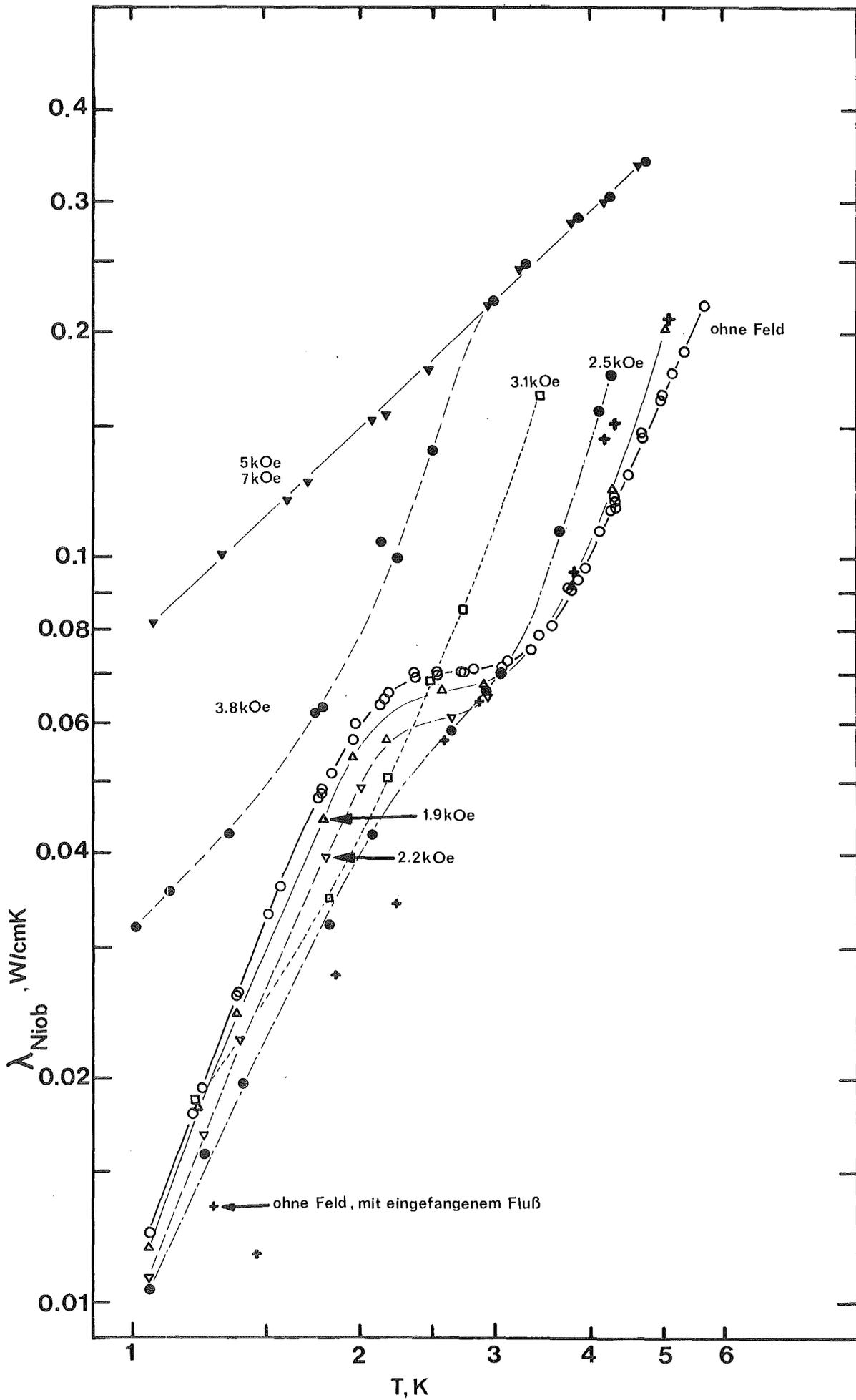


Abb. 29: Wärmeleitfähigkeit von Niob ohne Feld und im Magnetfeld (Feldrichtung || Wärmestrom)

Kristallen bei $T \ll T_c$ proportional T^3 geht, zeigt ein Maximum in der Gegend von $0.2 T_c$, da zu höheren Temperaturen hin die Phonondämpfung durch die angeregten Elektronen immer stärker wird. Dieses Phononenmaximum, dessen Höhe im wesentlichen von der Materialreinheit abhängig ist, führt zusammen mit dem ansteigenden elektronischen Anteil der WLF i.A. zum Auftreten eines Maximums und eines darauffolgenden Minimums, im vorliegenden Fall zeigt die Kurve für $H = 0$ aufgrund des nicht sehr hohen Phononenmaximums nur eine Sattelform.

In der Shubnikov-Phase des hier vorliegenden Typ II-Supraleiters, d.h. im Magnetfeld $H_{fp} < H < H_{c2}$ wird die elektronische WLF im wesentlichen durch 2 konkurrierende Prozesse bestimmt⁵⁰: Durch Streuung der thermisch angeregten Elektronen an Flußlinien wird ihre freie Weglänge, die in reinen Metallen sehr groß sein kann, auf die Größenordnung der Flußlinienabstände reduziert, was zu einem starken Abfall der WLF für $H > H_{fp}$ führt. Andererseits wird durch das Eindringen des Magnetfeldes die Anzahl der angeregten Elektronen erhöht, was einen Anstieg der WLF bis zum Wert der Normalleitung bei H_{c2} zur Folge hat. Dieses Verhalten ist in Abb.30 zu erkennen, wo dieselben Ergebnisse in Abhängigkeit des Feldes aufgetragen sind. Bis zu Feldern von 1.6kOe wurde keine Änderung der WLF im Feld festgestellt, bei höheren Feldern kommt es für Temperaturen unter etwa 2 K zuerst zu einem Abfall, dann zu einem Wiederanstieg bis zur WLF im normaleitenden Fall, die, wie es für Metalle weit unterhalb der Debyetemperatur erwartet wird, proportional mit T ansteigt (s. Abb.29). Für $T > 3$ K überwiegt bei $H > H_{fp}$ die Erhöhung der WLF durch die paarbrechende Wirkung des Magnetfeldes, so daß kein Minimum mehr auftritt. Für $T = 1.1$ K ist das Minimum nur noch wenig ausgeprägt, da für $T \ll T_c$ Phononen den Hauptanteil am Wärmetransport haben. Wie man in Abb.29 sieht, hat die Probe unterhalb 3 K die geringste WLF, wenn das Feld wieder abgeschaltet, jedoch noch magnetischer Fluß in der Probe eingefroren ist. Die Streuung der Meßpunkte läßt sich durch unterschiedliche Feldänderungsgeschwindigkeit erklären, je nachdem, ob das Feld langsam erniedrigt wurde oder durch "Quenchen" des Magneten schlagartig zusammenbrach.

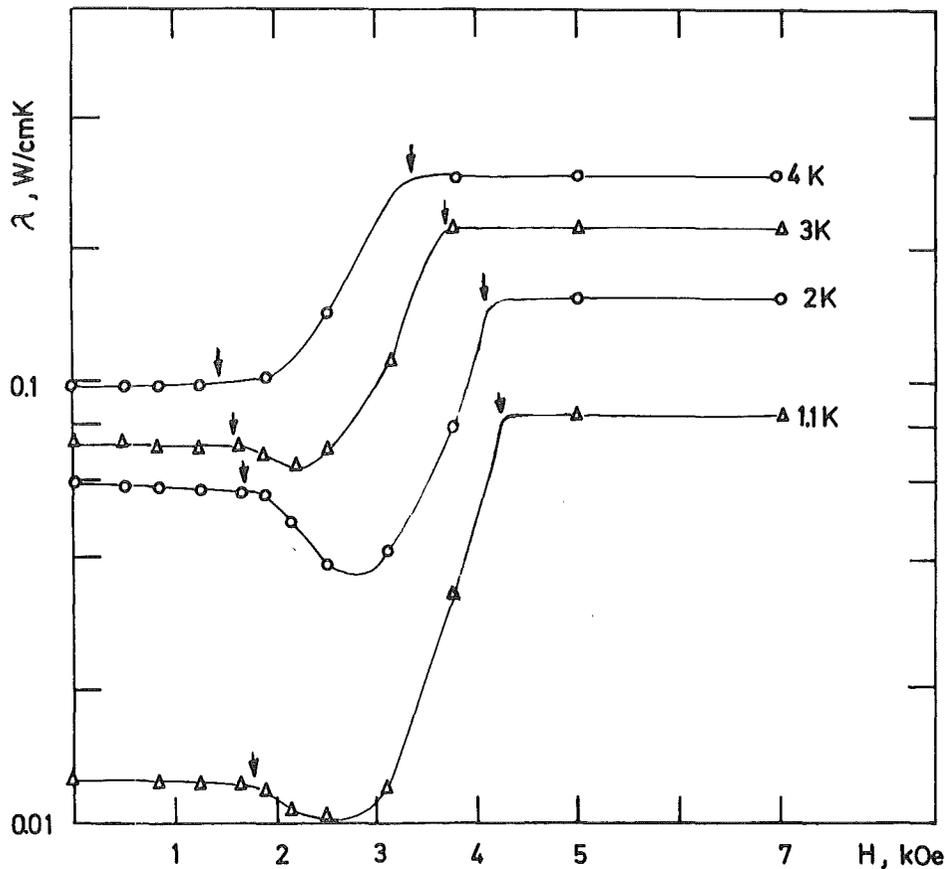


Abb. 30: Wärmeleitfähigkeit von Nb (gleiche Ergebnisse wie in Abb.29). Die Pfeile geben die Werte für H_{fp} und H_{c2} an.

Die WLF von NbTi (50 Gew.% Ti) wurde an einer 60 μ dünnen Folie gemessen. Die Enden der 6 mm langen, 4 mm breiten Folie wurden zwischen Kupferbacken eingeklemmt, die gleichzeitig der Wärmezufuhr- und -abfuhr dienten und an denen auch die Temperatur gemessen wurde. Diese Methode ist sicher nicht für eine Präzisionsmessung geeignet, es sollte jedoch nur die ungefähre WLF des vorhandenen Materials bestimmt werden, um den Wärmewiderstand der NbTi-Schicht in der Cu-NbTi-Cu-Probe abschätzen zu können. Das Ergebnis ist in Abb. 31 zu sehen und lässt sich durch

$$\lambda_{NbTi} = 0.13 \pm 0.3 \cdot T^{1.54 \pm 0.05} \text{ (mW/cmK)}$$

wiedergeben. Der relativ hohe Absolutfehler resultiert dabei aus dem unsicheren Geometriefaktor. Dieselbe Temperatur-

abhängigkeit wurde auch von anderen Autoren gefunden, die Absolutwerte schwanken jedoch um einen Faktor 2-3 (s. ⁹ und dort zitierte Literatur). Bei 1.1 K wurde eine Feldabhängigkeit der WLF festgestellt, und zwar eine Verringerung der WLF um 5% bei 7.5 kOe und um 7% bei 10 kOe (Feld \perp Wärmestrom). Im Gegensatz dazu konnte Chang bei 2 K keine Feldabhängigkeit feststellen.

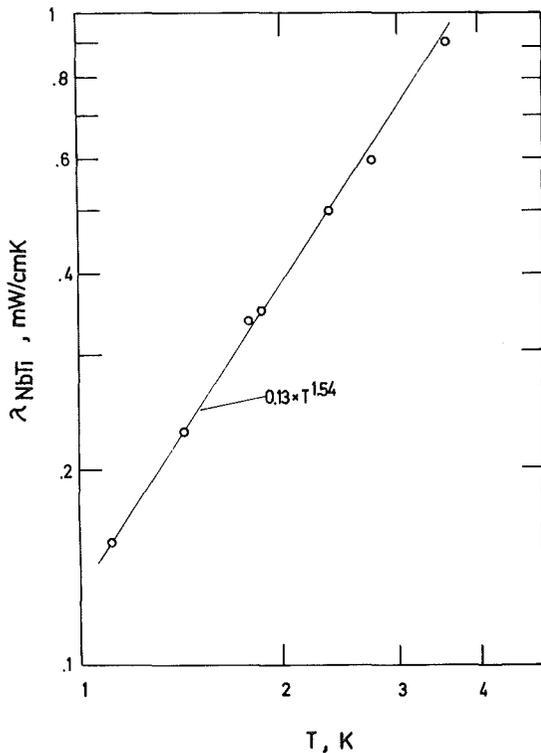


Abb. 31:
Wärmeleitfähigkeit
von NbTi im supra-
leitenden Zustand.

2.2 Kapitzwiderstand zwischen Niob und Kupfer

In reinen Metallen ist der Energietransport durch Elektronen i.A. bei weitem dominierend, daher erwartet man an der Grenzfläche zwischen zwei normalleitenden Metallen praktisch keinen Wärmeübergangswiderstand. Die Situation ändert sich, wenn zumindest eines der Metalle supraleitend wird. Unterhalb von T_c geht der Ordnungsparameter schnell gegen Eins, d.h. die Anzahl der "normalleitenden" Elektronen, die allein zum Wärmetransport beitragen können, nimmt rasch ab. Bei Temperaturen weit unterhalb T_c wird der Wärmetransport über die Grenzfläche durch Phononen dominieren und man erwartet das Auftreten eines Kapitzwiderstandes wie an einer Metall-Isolator-Grenzfläche.

Vor der Besprechung der Ergebnisse soll noch ein Wort über spezielle Probleme der Auswertung bei dieser Messung gesagt werden: Wegen der geringen Wärmeleitfähigkeit (WLF) des Niob konnte die Temperaturextrapolation zur Grenzfläche nicht linear erfolgen, vielmehr wurde die Temperatur der Grenzfläche T_G auf der Niobseite nach $T_G = T - d \cdot \dot{Q} / (A \cdot \lambda_{Nb})$ berechnet (T Temperatur im Abstand d von der Grenzfläche, \dot{Q} Wärmestrom, A Probenquerschnitt). λ_{Nb} ist die WLF bei der Temperatur $(T + T_G)/2$, die von der mittleren WLF zwischen den beiden Meßstellen am Niobzylinder beträchtlich abweichen kann. Der Wärmewiderstand zwischen der Meßstelle und der Grenzfläche war dabei vergleichbar mit dem Kapitzwiderstand an der Grenzfläche. Aus der Unsicherheit von d ($0.5 \text{ mm} \pm 10\%$) rührt daher ein systematischer Fehler in R_k her, der proportional zu $1/(R_k \cdot \lambda_{Nb})$ ist und zwischen 5% (bei $H = 0$) und 30% (bei $H > H_{c2}$) beträgt.

Abb. 32 zeigt die Ergebnisse für R_k in Abhängigkeit von der Temperatur und vom Magnetfeld. Im supraleitenden Zustand des Niob zeigt R_k unterhalb 2.5 K exakt eine T^{-3} -Abhängigkeit, wie sie nach der Acoustic-Mismatch-Theorie erwartet wird, bei höheren Temperaturen nimmt R_k weniger schnell mit T ab. Für Magnetfelder unter 1 kOe konnte noch keine Abweichung beobachtet werden. Bei weiterem Erhöhen des Feldes nimmt R_k rasch ab, und erreicht für $H > H_{c2}$ (d.h. im normaleitenden Zustand des Nb) einen Endwert, der etwa umgekehrt proportional zu T variiert.

Betrachten wir zunächst den supraleitenden Fall etwas näher: Für $T < 2.5$ ergibt sich

$$\text{experimentell } R_k = 9.5 \cdot T^{-3} \text{ (cm}^2\text{K/W),}$$

während man nach der

$$\text{Acoustic-Mismatch-Theorie } R_k = 2.3 \cdot T^{-3} \text{ (cm}^2\text{K/W)}$$

berechnet¹⁴. Dieser berechnete Wert von R_k liegt nur wenig über dem "Phonon-Radiation-Limit", der den maximalen Wärmestrom angibt, wenn die Transmissionskoeffizienten

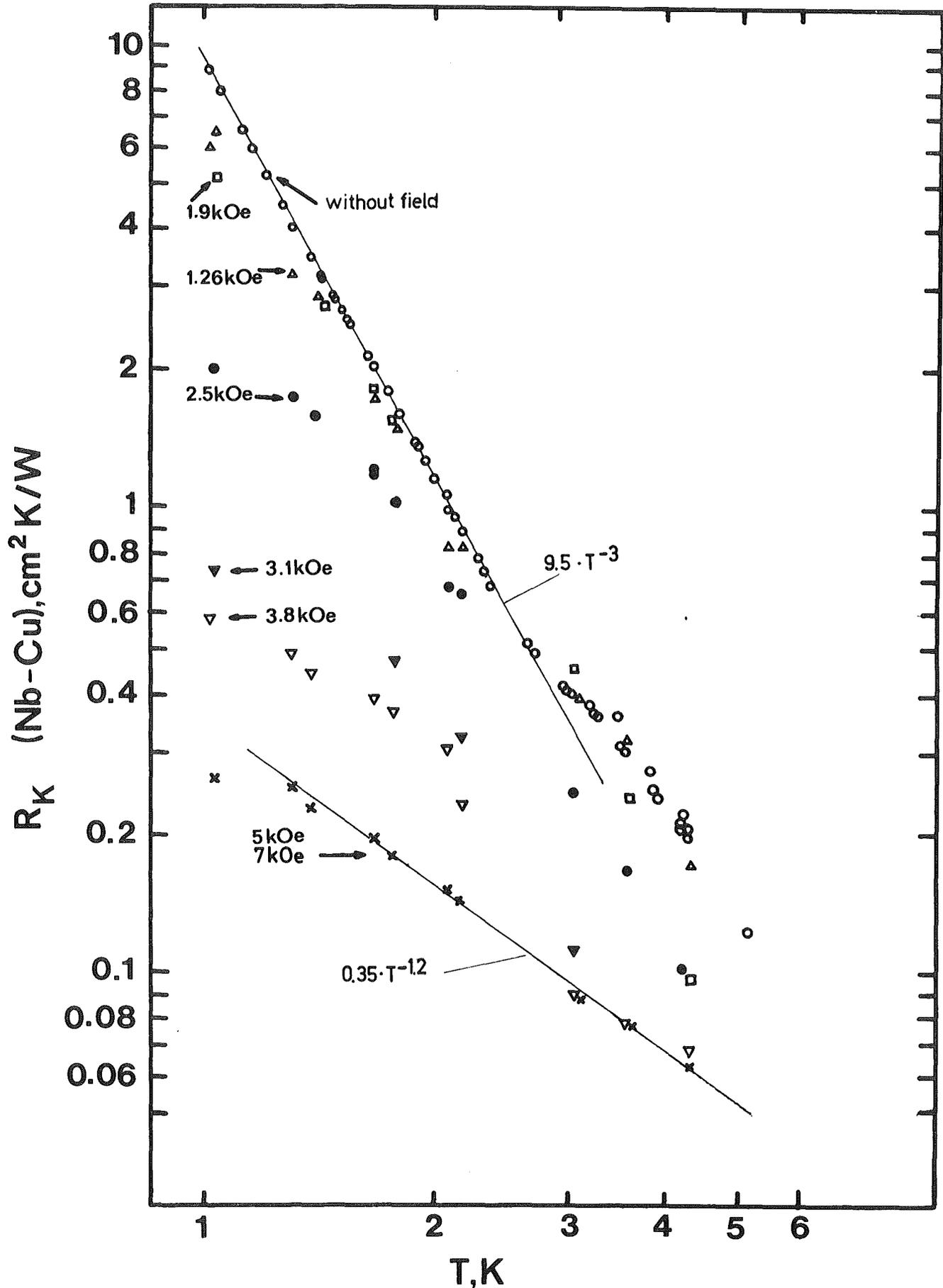


Abb. 32: Kapitza widerstand an einer Grenzfläche zwischen Cu und Nb. (Magnetfeld \perp Grenzfläche).

$w(\theta) \equiv 1$ bzw. die integrierten Transmissionswahrscheinlichkeiten $\Gamma_l = \Gamma_t = \frac{1}{2}$ sind (s. Abschn. B 2). Das liegt an den nahezu gleichen Dichten und Schallgeschwindigkeiten von Nb und Cu (vgl. Tab. IV auf S. 104). Eine Berechnung nach dem Attenuated-Phonon-Modell ist nicht verfügbar. Eine Berücksichtigung der Phononendämpfung würde jedoch den berechneten Wert von R_k kaum ändern, da der Einfluß der Dämpfung umso geringer ist, je besser die akustischen Impedanzen $\rho \cdot c$ der beiden Medien übereinstimmen²². Der experimentelle Wert liegt also um einen Faktor 4 über der Theorie. In einem derartigen Fall muß man immer die Möglichkeit eines schlechten Kontakts in Betracht ziehen. Die Probe zeigte jedoch unter dem Mikroskop keine Lücken in der Verbindung, auch wäre das Vorhandensein von Lücken kaum verständlich, da das Kupfer bei der Diffusionsschweißtemperatur von 850°C bereits leicht verformbar ist und daher eine Berührung und Diffusion über der ganzen Oberfläche erwartet werden muß.

Ein anderer Punkt ist die genaue Beschaffenheit der Grenzfläche. Da wir annehmen müssen, daß durch die Diffusion eine Zwischenschicht entstanden ist (die nach den Schliffbildern nicht dicker als 1-2 μ sein sollte), müssen wir u.U. 2 Grenzflächen berücksichtigen. Voraussetzung dafür ist, daß die Schichtdicke nicht kleiner als die Phononenwellenlänge ist, damit sich überhaupt eine Schwingung ausbilden kann. Für die angenommene Schichtdicke von 1 μ ist das erfüllt; typische Phononenwellenlängen in Kupfer bei 1 K sind 300 Å, also 30 mal weniger. Auf diese Weise könnte die Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment auf etwa einen Faktor 2 verringert werden. Allerdings ist sehr fraglich, inwieweit eine derartige Betrachtungsweise gerechtfertigt ist, denn an der Nahtstelle zwischen Kupfer und Niob ist keine homogene Zwischenschicht mit 2 genau definierten Begrenzungsflächen vorhanden, sondern es handelt sich um einen stetigen Übergang der Konzentration der beiden Metalle. Ein derartiger kontinuierlicher Übergang führt im Gegenteil, wenn die akustischen Impedanzen sehr unterschiedlich sind, zur besseren Anpassung²⁶. Die experimentellen Ergebnisse weisen jedoch darauf hin, daß eine Übergangsschicht im Fall sehr ähnlicher akustischer Impedanzen

nicht wie eine einzige Grenzfläche wirkt, sondern möglicherweise eher durch mehrere hintereinander gestellte "Strahlungsschilde" beschrieben werden kann, die den Wärmewiderstand erhöhen.*

Die Übergangsschicht selbst hat, da sie als eine Legierung zu betrachten ist, eine geringe WLF und stellt daher einen zusätzlichen Wärmewiderstand R_λ dar, der vom Kapitzwiderstand nicht zu trennen ist. Wir schreiben $R_\lambda = d/\lambda$ und setzen als Abschätzung für die Schichtdicke $d = 1\mu$ und ihre WLF $\lambda = 10^{-3}$ W/cmK. Dann erhalten wir $R_\lambda = 0.1 \text{ cm}^2 \text{ K/W}$, ein Wert, der bei 1 K nur 1% des Kapitzwiderstandes beträgt.

Für Temperaturen über 2.5 K finden wir eine merkliche Abweichung vom T^{-3} -Gesetz. In diesem Temperaturbereich erwarten wir einerseits einen zunehmenden Beitrag der angeregten Elektronen zum Wärmeübergang, zum andern kann sich jetzt wegen des mit T^{-3} abfallenden Kapitzwiderstandes der Wärmewiderstand R_λ bemerkbar machen, der sich weit weniger schnell mit der Temperatur ändert. Beide Prozesse überlagern sich und sind nicht voneinander zu trennen. Die Abweichung zu höheren Werten von R_k deutet jedoch an, daß der Einfluß von R_λ überwiegt.

Mit dem Überschreiten von H_{c1} dringt magnetischer Fluß in die Probe ein und Teile des Kupfers grenzen an normalleitendes Niob an. In diesen Bereichen, die mit wachsendem Feld größer werden, nehmen die Elektronen am Wärmetransport über die Grenzfläche teil, so daß der mittlere Wärmewiderstand R_k stetig mit dem Feld abnimmt, bis bei H_{c2} Normalleitung eintritt. Es ist interessant, daß R_k schon bei einem Feld von 1.26 kOe eine Änderung zeigt (s. Abb. 32), während die WLF von Niob bis 1.6 kOe unverändert blieb. Dies hängt mit dem Entmagnetisierungsfaktor zusammen: aufgrund der Probengeometrie dringt das (zur Probe und dem Wärmestrom parallele) Feld an den beiden Enden des Nb-Zylinders früher ein als in das bulk-Material, an dem die WLF gemessen wird.

*Vorschlag von G. Falk (private Mitteilung)

Für $H > H_{c2}$ sollte $R_k = 0$ erwartet werden, da der Wärmeübergang im wesentlichen durch Elektronenleitung vonstatten geht. Gemessen wurde jedoch ein endlicher Wert $R_k \sim T^{-1.2}$. Auch hier muß jedoch die geringe WLF der Übergangsschicht berücksichtigt werden, während bei der Berechnung von $R_k = A \cdot \Delta T / \dot{Q}$ eine konstante WLF bis zur Grenzfläche angenommen wurde. R_k ist also nicht ein Grenzflächenwiderstand, sondern der Wärmewiderstand der schlecht leitenden Übergangsschicht. (Die Bezeichnung R_k für $H > H_{c2}$ soll dennoch beibehalten werden.) Die Temperaturabhängigkeit von $1/R_k \sim T^{1.2}$ entspricht dabei in etwa dem Temperaturverhalten, das man für die WLF einer Legierung erwartet. Für eine Abschätzung der Schichtdicke setzen wir $\lambda = 1.5 \text{ mW/cmK}$ (z.Vergleich $\lambda_{\text{NbTi}} = 1.2 \text{ mW/cmK}$ bei 4 K), $R_k = 0.07$ (bei 4 K) und erhalten für $d = R_k \cdot \lambda = 1 \mu$, was ein realistischer Wert ist.

Wenn wir in Abb. 32 die Kurven für $R_k(0)$ und $R_k(H > H_{c2})$ zu höheren Temperaturen extrapolieren, dann schneiden sie sich etwa bei 9 K, das stimmt recht gut mit der Übergangstemperatur von Niob überein.

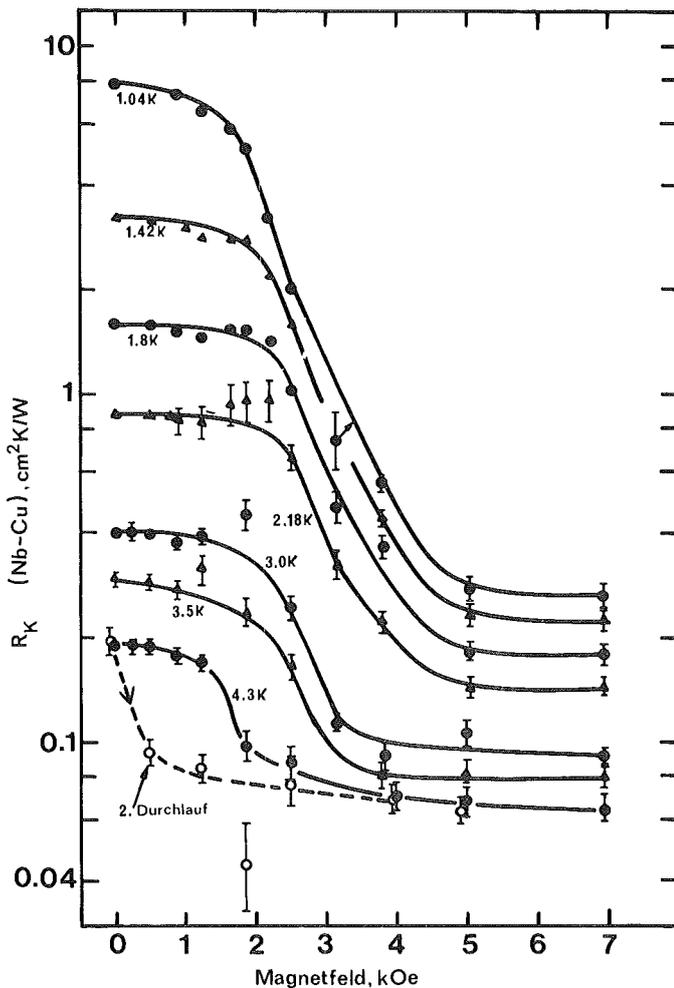


Abb. 33: Kapitza-widerstand zwischen Cu und Nb in Abhängigkeit vom Magnetfeld; gleiche Ergebnisse wie in Abb. 32.

In Abb. 33 sind dieselben Ergebnisse noch einmal in Abhängigkeit vom Magnetfeld mit T als Parameter aufgetragen. Bei 1 K sinkt der Wert von R_k beim Anlegen eines Feldes bis auf $1/30$ ab, bei 4.3 K nur noch auf rund $1/3$. Bei 4.3 K wurde das Magnetfeld ein zweites Mal hochgefahren, ohne den eingeschlossenen magnetischen Fluß im Niob durch Aufwärmen zu beseitigen. Dabei ging R_k schneller auf den Endwert herunter als beim ersten Hochfahren.

Die große Differenz von R_k im supra- und normaleitenden Zustand im unteren Temperaturbereich mag den Einsatz einer Sandwichpackung als Wärmeschalter vorteilhaft erscheinen lassen. Wenn man die Ergebnisse zu tieferen Temperaturen extrapoliert, dann würde ein derartiger Wärmeschalter bei 0.1 K schon ein Widerstandsverhältnis zwischen Auf-Zu von etwa 1700 haben.

Der Kapitawiderstand zwischen Kupfer und einigen Typ-I-Supraleitern (Sn, Pb, In) ist in einigen Experimenten untersucht worden^{51, 52, 53}, die jedoch teilweise nicht reproduzierbar waren. Messungen an einer Nb-Cu-Grenzfläche wurden kürzlich von Chang und Frederking⁹ veröffentlicht. Die an 2 Proben gemessenen Werte für R_k liegen 1-2 Zehnerpotenzen über den hier gezeigten und zeigen teilweise eine komplizierte Temperaturabhängigkeit. Am erstaunlichsten ist jedoch, daß auch für $H > H_{c2}$ eine Temperaturabhängigkeit etwa $\sim T^{-3}$ gefunden wurde. (Die Werte $R_k(H > H_{c2})$ liegen noch über unseren Werten für $H = 0$!) Das ist nur so zu erklären, daß die beiden Probenhälften keinen oder nur schlechten elektronischen Kontakt hatten. Die Ursache dafür liegt sicherlich in der Art der Probenherstellung: Die Proben wurden durch Aufgießen von Cu auf einen Niobzylinder in einem Vakuum von etwa 10^{-5} Torr, bei einer der Proben sogar in Luft, bei 1500°C hergestellt. Es ist jedoch bekannt, daß Nb bei diesen Drücken und in diesem Temperaturbereich für Gase fast völlig durchlässig ist und Verbindungen mit ihnen eingeht. Auch muß man erwarten, daß das Kupfer bei diesen Bedingungen stark oxydiert. Wahrscheinlich war also bei den Proben keine Nb-Cu-Grenzfläche vorhanden, sondern irgendeine Oxyd- oder Nitritschicht zwischen den beiden Metallen. Dies kann sowohl die hohen Absolutwerte

erklären (schlechte Verbindung) als auch die T^{-3} -Abhängigkeit für $H > H_{c2}$.

2.3 Kapitza-widerstand zwischen NbTi und Kupfer

Diese Untersuchung wurde vorgenommen, um den Einfluß des Kapitza-widerstandes auf die Wärmeabfuhr von den stromtragenden NbTi-Filamenten zur Kupfermatrix in technischen Multifilamentleitern abzuschätzen. Der gemessene Kapitza-widerstand (Abb. 34a) betrug

$$R_k = 6 \pm 0.5 \cdot T^{-2.75 \pm 0.2} \quad (\text{cm}^2 \text{K/W}) .$$

Der Absolutfehler und der relativ große Fehler im Exponenten von T rühren daher, daß in den Temperaturabfall über der NbTi-Schicht, der bei der Auswertung berücksichtigt werden muß, die Fehler in der Schichtdicke und der WLF von NbTi eingehen. Aus diesem Grund war auch eine Ausdehnung der Messungen auf Temperaturen oberhalb von 2.5 K nicht sinnvoll.

Eine Berechnung von R_k nach der Acoustic-Mismatch-Theorie konnte nicht durchgeführt werden, da die Schallgeschwindigkeiten in NbTi nicht bekannt sind. Wenn wir annehmen, daß sie ähnlich wie die in Cu und Nb sind, dann wird das Ergebnis nicht erheblich von dem für Cu-Nb berechneten Wert abweichen, und die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment wäre nicht viel besser als dort.

Die Änderung des Kapitza-widerstandes im Magnetfeld ist in Abb. 34b zu sehen: Bei 10 kG nimmt R_k um einen Faktor 2 ab. Es zeigt sich hier ebenfalls ein Hysteresiseffekt, der auf eingeforenen magnetischen Fluß zurückgeführt werden muß.

Wir wollen jetzt eine einfache Abschätzung machen, inwieweit R_k bei der Wärmeabfuhr von einem dünnen NbTi-Leiter zur Kupfermatrix eine Rolle spielen kann. Dabei nehmen wir an, daß die Wärmeerzeugung homogen in dem NbTi-Leiter mit dem Radius r erfolgt. Daraus folgt, daß in dem Leiter selbst ein Temperaturgradient auftritt, die Temperaturdifferenz zwischen

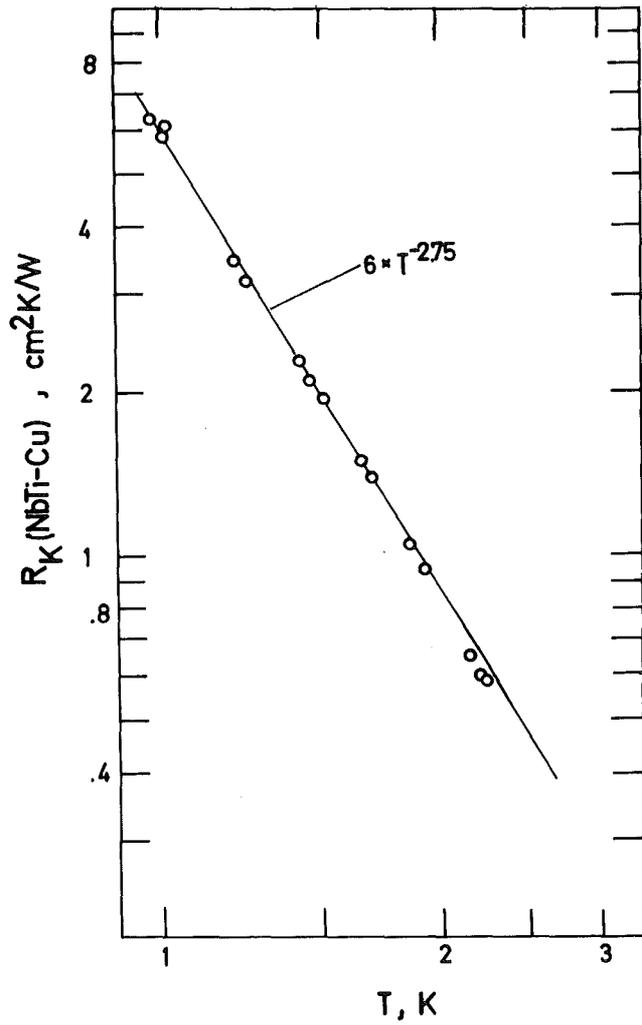


Abb. 34a:
Kapitza widerstand
an einer Grenzfläche
zwischen NbTi und
Kupfer

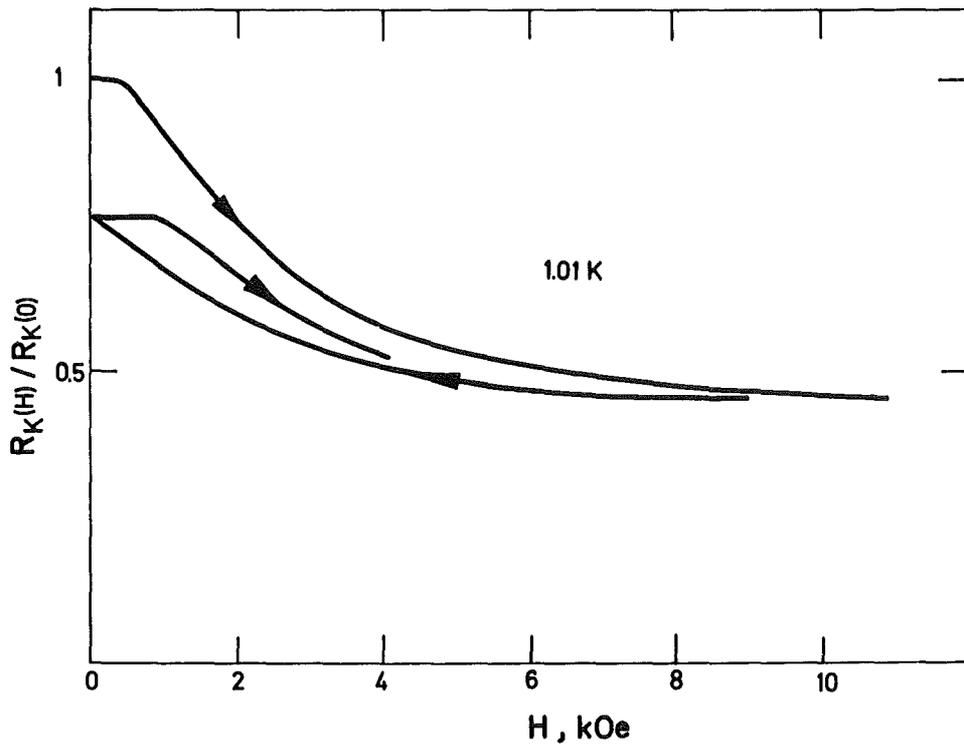


Abb. 34b: Feldabhängigkeit von R_K bei 1 K.

der Mittelachse und dem Rand sei ΔT , der Temperatursprung an der Grenzfläche zwischen NbTi und Cu sei ΔT_k . Wir interessieren uns nun für das Verhältnis $\Delta T_k / \Delta T$ und erhalten nach einer einfachen Rechnung

$$\Delta T_k / \Delta T = 2 \cdot \lambda_{\text{NbTi}} \cdot R_k / r .$$

Der Temperatursprung an der Grenzfläche wird also immer wichtiger, je dünner der Leiterdraht ist. Das Verhältnis $\Delta T_k / \Delta T$ ist von der erzeugten Wärmemenge unabhängig. Setzen wir für $\lambda_{\text{NbTi}} = 0.13 \cdot 10^{-3} \cdot T^{1.54}$ und für $R_k = 6 \cdot T^{-2.75}$ und fragen nach dem Durchmesser $2r$, bei dem $\Delta T = \Delta T_k$, dann erhalten wir bei

4 K	$2r = 6 \mu$
2 K	14μ
1 K	31μ

Bei 4 K, der Temperatur, bei der üblicherweise Magnete betrieben werden, ist also bei Filamenten von $6 \mu \varnothing$ (ein typischer Wert für NbTi-Multifilamentleiter) der Temperatursprung an der Grenzfläche bereits so groß wie die Temperaturdifferenz im Filament selbst. Im Magnetfeld wird dann $\Delta T_k / \Delta T$ auf etwa die Hälfte reduziert. Der Kapitza-Widerstand kann also bei Stabilitätsbetrachtungen von Multifilamentleitern eine gewisse Rolle spielen.

Chang⁹ gibt für R_k zwischen NbTi und Cu einen um 2 Größenordnungen höheren Wert an, die Experimente wurden an einer Probe mit einem 3 mm langen NbTi-Teil gemacht, mit den Temperaturmeßstellen einige 1/10 mm von der Grenzfläche entfernt, so daß schwer verständlich ist, wie eine Extrapolation zur Grenzfläche bei der schlechten WLF von NbTi möglich ist. Die angegebene Temperaturabhängigkeit $R_k \sim T^{-1.5}$ legt den Verdacht nahe, daß in Wirklichkeit der Wärmewiderstand von NbTi gemessen wurde; dafür spricht auch, daß keine Feldabhängigkeit von R_k gefunden wurde.

3. Kapitzzawiderstand zwischen Kupfer und Epoxydharz
und seine Auswirkungen auf die Wärmeleitfähigkeit
gefüllter Epoxydharze

3.1 Die direkte Messung von R_k (Kupfer-Epoxydharz)

Der Kapitzzawiderstand zwischen Epoxydharz und Kupfer wurde mithilfe einer Sandwich-Methode (dünne Epoxydharzschicht zwischen 2 Kupferplatten, vgl. Abb.8 auf Seite 29) an drei Proben gemessen. Die Ergebnisse für alle 3 Proben waren nahezu gleich:

$$\text{Probe 1:} \quad R_k = 11.2 \cdot T^{-1.9 \pm 0.05} \text{ (cm}^2\text{K/W)}$$

$$\text{Probe 2:} \quad R_k = 11.3 \cdot T^{-1.9 \pm 0.05} \text{ (cm}^2\text{K/W)}$$

$$\text{Probe 3:} \quad R_k = 10.7 \cdot T^{-1.88 \pm 0.05} \text{ (cm}^2\text{K/W)}$$

Probe 3 war die Probe, bei der die beiden Kupferterteile Kurzschluß hatten. Eine grobe Abschätzung nach dem Wiedemann-Franz'schen Gesetz zeigt jedoch, daß die zusätzliche elektronische Wärmeleitfähigkeit (WLF) bei dem gemessenen elektrischen Übergangswiderstand von 20 mΩ nur eine geringe Rolle spielt. Eine mögliche Fehlerquelle bei diesen Messungen liegt in der Unsicherheit der Schichtdicke des Epoxydharzes, da die über der Harzschicht auftretende Temperaturdifferenz bei der Auswertung berücksichtigt werden muß. Der Fehler ist proportional dem Verhältnis WLF zu Kapitzzawiderstand. Eine Ungenauigkeit der Schichtdicke von 20% führt zu einem Fehler in R_k von 5% bei 1 K und 15% bei 4 K. Da die Ergebnisse aller 3 Proben für R_k auch bei 4 K weniger als 6% voneinander abweichen, darf man annehmen, daß die tatsächliche Schichtdicke recht gut mit der Dicke der Abstandsfolie übereinstimmt. In Abb.35 sind die Ergebnisse für eine der Proben gezeigt, zusammen mit den Werten von R_k , die aus den WLF-Messungen abgeschätzt wurden. Die Übereinstimmung ist befriedigend, wenn man bedenkt, daß diese Werte nach einem recht einfachen Modell aus der WLF gefüllter Epoxydharze

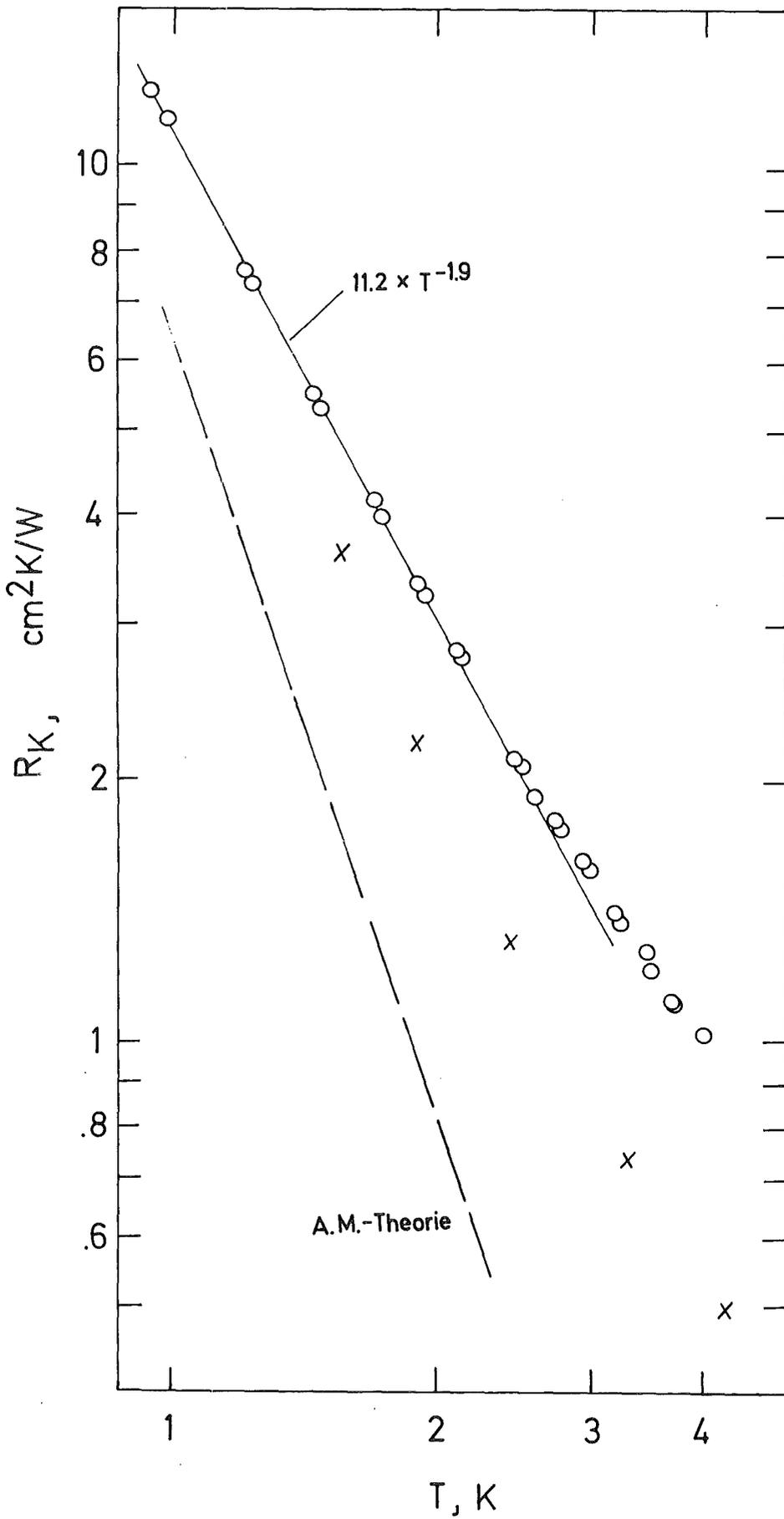


Abb. 35:

Kapitza-widerstand an der Grenzfläche Cu-Epoxy, o direkt gemessen, x aus den Wärmeleitfähigkeitsmessungen gewonnene Werte, zum Vergleich die Acoustic-Mismatch-Theorie.

gewonnen wurden (s. Abschn. 3.2), und es sich in beiden Fällen um Kupfer mit sicherlich sehr unterschiedlicher Oberflächenbeschaffenheit handelte. Allein die Tatsache, daß bei den in den WLF-Messungen verwendeten Kupferkörnern die effektive Oberfläche größer ist als die Oberfläche einer Kugel derselben Größe, könnte schon diese Verringerung von R_k erklären.

Schwieriger zu verstehen ist die beobachtete Temperaturabhängigkeit etwa $\sim T^{-2}$, während man nach der

$$\text{Acoustic-Mismatch-Theorie} \quad R_k = 6.3 \cdot T^{-3}$$

erwartet. Dabei wurden als Schallgeschwindigkeiten in Epoxydharz Werte von Athougies et al.⁵⁷ für Epibond (ebenfalls ein Epoxydharz) benutzt. Die experimentellen Ergebnisse sind also bei 1 K fast doppelt so hoch und die Abweichung wird mit steigender Temperatur immer größer. Von Peterson und Anderson²² wurde der Kapitzwiderstand zwischen Kupfer und Epoxy im Temperaturbereich zwischen 50 und 200 mK gemessen. Extrapolation der Ergebnisse von $R_k \cdot T^3$ zu $T \rightarrow 0$ liefert einen Wert, der gut mit der Acoustic-Mismatch-Theorie übereinstimmt, auch das T^{-3} -Gesetz scheint besser erfüllt, wenn auch die genaue Temperaturabhängigkeit von R_k aus den Ergebnissen nicht zu ermitteln ist, da freie Weglänge-Effekte in diesem Temperaturbereich bereits eine Rolle spielen. Bei den hier vorliegenden Messungen ist die freie Phononenweglänge (bei 1 K $< 0.1 \mu$) immer sehr klein gegen die Schichtdicke von 10μ , so daß derartige Effekte nicht berücksichtigt zu werden brauchen. Es scheint also, daß irgendwo zwischen 0.25 und 1 K die annähernde T^{-3} -Abhängigkeit in eine T^{-2} -Abhängigkeit übergeht.

Mit dem Attenuated-Phononen-Modell (Abschn. B 3) läßt sich dieses Verhalten nicht erklären. Zwar ist für Kupfer das Verhältnis Phononenwellenlänge λ zu freier Weglänge l (wir erinnern uns, daß nur die Dämpfung in dem Material mit der höheren Schallgeschwindigkeit, in diesem Fall Kupfer, eine Rolle spielt) keineswegs frequenz- und damit temperaturunabhängig²², die Rechnungen von Peterson und Anderson zeigen

jedoch, daß $R_k \cdot T^3$ für Cu-Epoxy nahezu unabhängig von λ/ℓ ist.* (Für $\lambda/\ell \rightarrow 0$ ergibt sich $R_k \cdot T^3 \approx 7$ in guter Übereinstimmung mit dem aus den Diagrammen von Little berechneten Wert von 6.3). Das beobachtete T^{-2} -Verhalten ist also mit den vorhandenen Theorien nicht zu erklären.

3.2 Wärmeleitfähigkeitsmessungen an gefüllten Epoxydharzen

Die Messungen an mit Kupferpulver gefüllten Epoxydharzen wurden durchgeführt, um den Einfluß von Füllfaktor und Korngröße zu studieren. Während bei höheren Temperaturen die Verbesserung der WLF gegenüber ungefülltem Harz nur vom Füllgrad (und von der WLF des Füllers) abhängig ist, beginnt unterhalb etwa 20 K die Korngröße einen zunehmenden Einfluß zu spielen, da der Wärmestrom an den Grenzflächen zwischen Füller und Harz den Kapitzwiderstand zu überwinden hat, der mit abnehmender Temperatur stark ansteigt. Bei hohen Temperaturen wirken die Füllpartikel als Wärmekurzschluß, bei genügend tiefen Temperaturen stellen sie jedoch Barrieren für den Wärmestrom dar, die die Gesamt-WLF verschlechtern können. Eine Erhöhung der WLF erzielt man also durch Verwendung möglichst großer Korngrößen und durch die Wahl eines Füllmaterials mit möglichst geringem Kapitzwiderstand gegenüber Harz.

Die Abhängigkeit der WLF vom Füllgrad zeigt Abb.36: Im oberen Temperaturbereich steigt die WLF mit dem Füllfaktor, unterhalb einer bestimmten Temperatur wird die WLF durch Füllen

*Die Schallgeschwindigkeit c_l in Epoxydharz ist größer als c_t in Kupfer (vgl. Tab.IV auf Seite104), so daß bei der Brechung transversaler Wellen aus dem Kupfer in longitudinale Wellen im Epoxydharz die Dämpfung in diesem eine Rolle spielen sollte. Dies wurde in den Rechnungen von Peterson und Anderson²² offenbar nicht berücksichtigt, da nur λ/ℓ von Kupfer als Variable auftritt. Die nötige Korrektur ist jedoch wahrscheinlich gering, da durch longitudinale Wellen nur ein geringer Teil der Energie übertragen wird (s. Gl.11 auf S. 10).

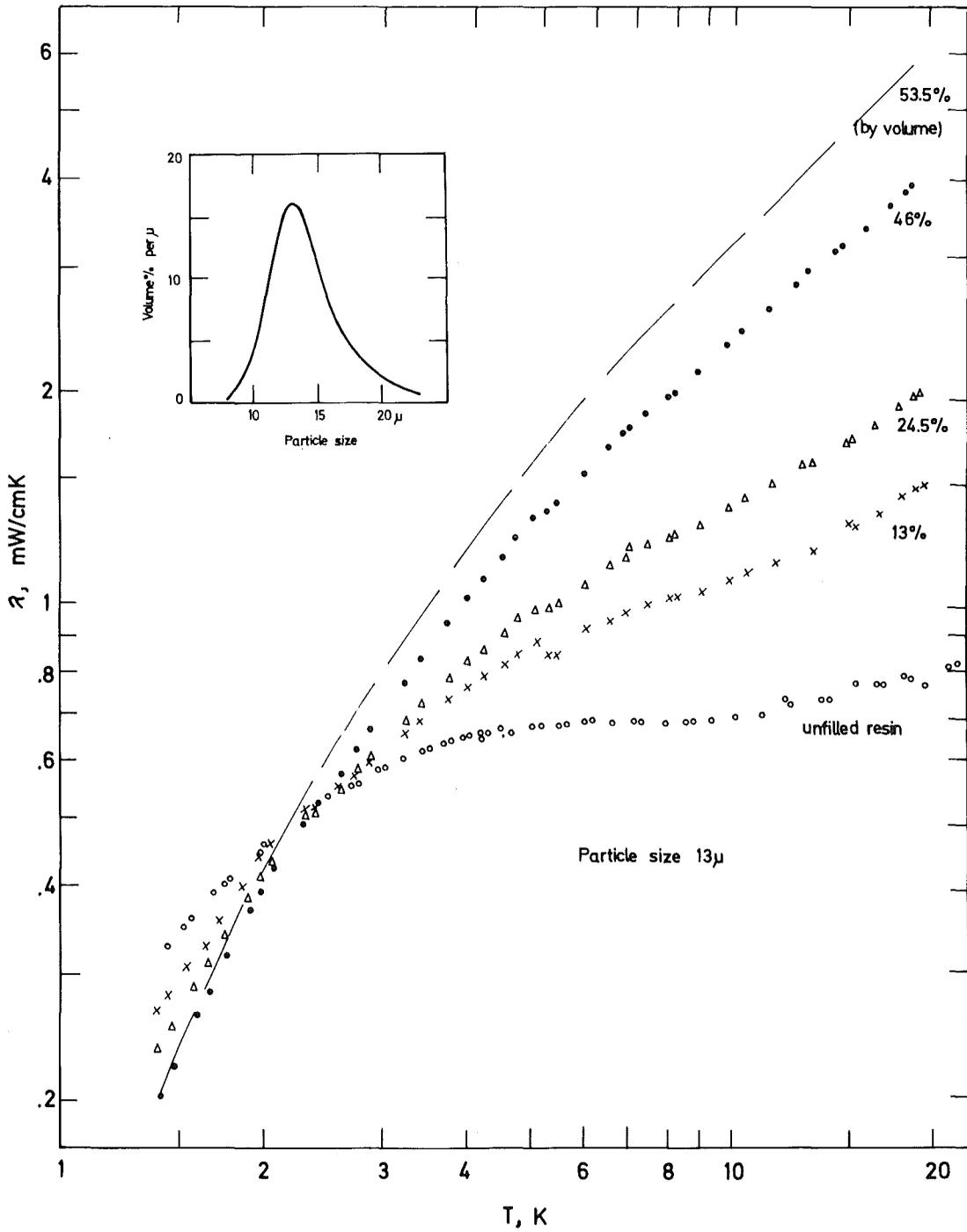


Abb. 36: Wärmeleitfähigkeit von mit Kupferpulver gefülltem Epoxydharz in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Füllgrade. Bei der 53.5%-Kurve sind der Übersichtlichkeit halber die Meßpunkte weglassen. Der Einschub zeigt eine Korngrößenanalyse.

verschlechtert. Bei der Temperatur des Kreuzungspunktes T_k der Kurven ist der Temperatursprung an den Grenzflächen eines Partikels gerade gleich der Temperaturdifferenz über eine entsprechend große Harzlänge, daher haben Proben beliebigen Füllgrades bei dieser Temperatur die gleiche WLF, nämlich die des ungefüllten Harzes. Unterhalb von T_k wirken also die gut wärmeleitenden Kupferpartikel infolge des Kapitzwiderstandes als Hindernisse für den Wärmestrom. In Abb. 37 ist das Verhältnis der WLF mit und ohne Füller über der Konzentration aufgetragen. Bis Füllerkonzentrationen von etwa 25% besteht ein linearer Zusammenhang, bei höheren Konzentrationen steigt $\lambda_{\text{gefüllt}}$ überproportional an, eine Folge der zunehmenden Wahrscheinlichkeit für die Berührung benachbarter Kupferkörner, was einen Kurzschluß durch elektronische Wärmeleitung bedeutet.

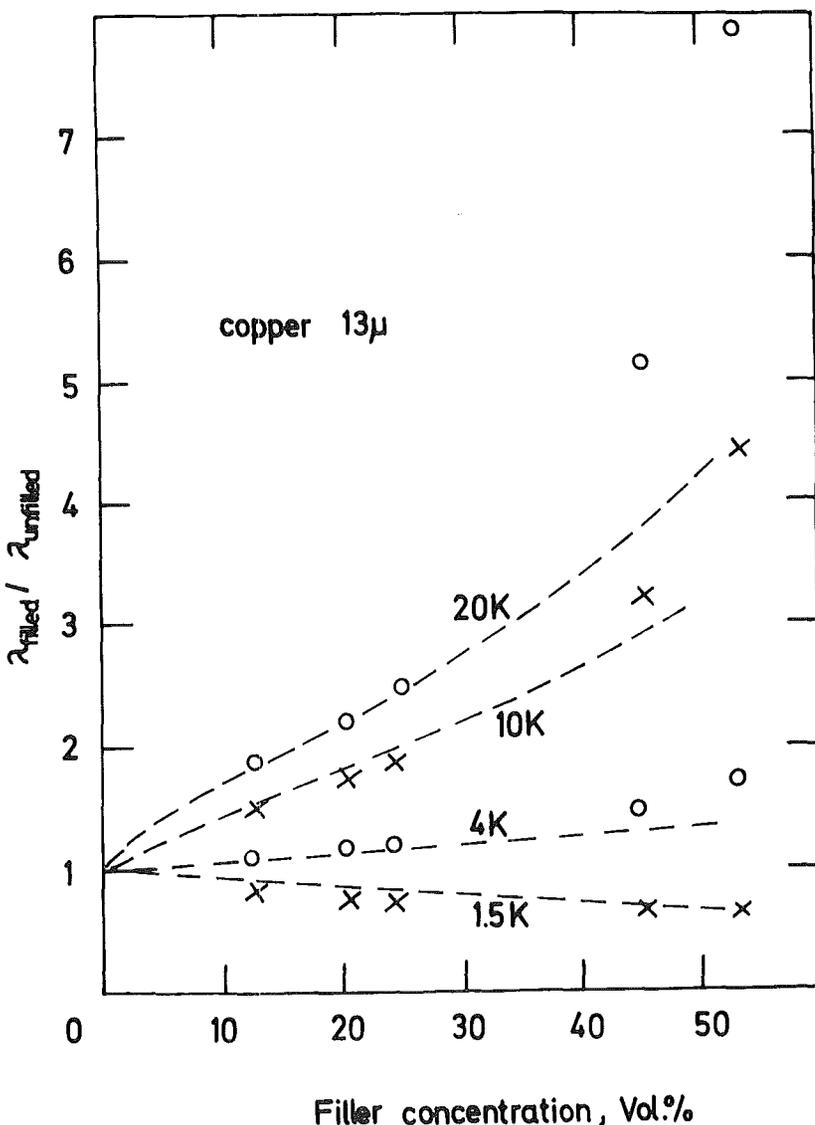


Abb. 37:

Änderung der Wärmeleitfähigkeit mit dem Füllgrad, experimentell o x, gestrichelte Linien berechnet nach dem im Text beschriebenen Modell, Korngröße 13μ

Aus diesem Grunde ist auch die 53.5% Kurve* in Abb.36 zu höheren λ -Werten hin verschoben.

*d.h. 53 Vol.% Kupferpulver in 47 Vol.% Harz.

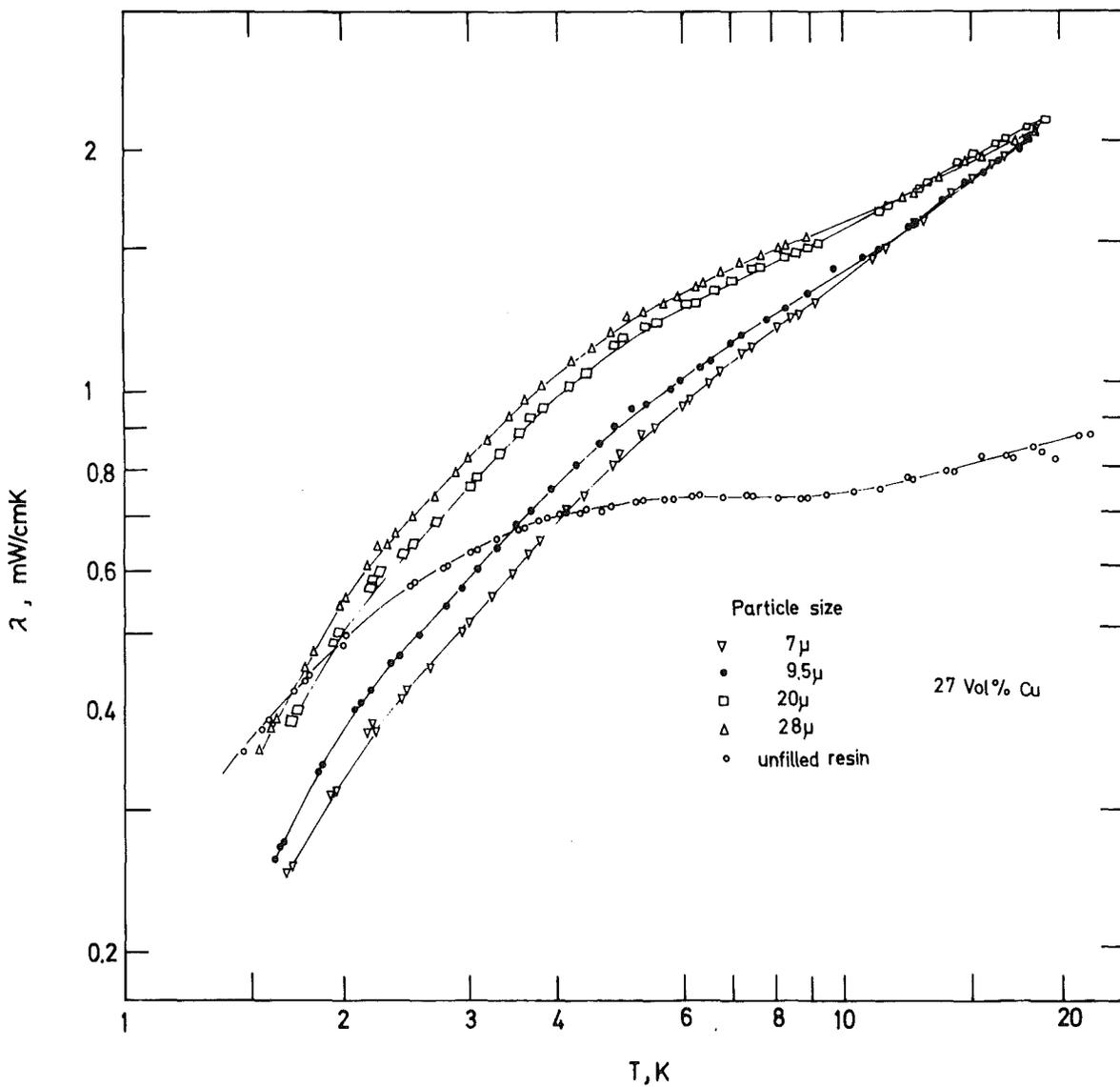


Abb. 38: Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Korngröße bei konstantem Füllfaktor, Korngrößenanalyse s. S. 30.

Abb. 38 zeigt Ergebnisse für Gemische mit gleichem Füllfaktor, aber verschiedenen Korngrößen. Bei 20 K zeigen alle Proben im Rahmen der absoluten Meßgenauigkeit von 5% die gleiche WLF, bei tiefen Temperaturen macht sich die Korngröße infolge des Kapitzawiderstandes bemerkbar; je geringer die Korngröße, desto mehr Grenzflächen hat der Wärmestrom zu überwinden und desto schlechter wird die WLF. Aus der Temperatur der Kreuzungspunkte T_k der Kurven der gefüllten Proben mit der Kurve des ungefüllten Harzes läßt sich durch ein einfaches Modell der Kapitzawiderstand zwischen Füller und Harz abschätzen: Der Temperatursprung an beiden Grenzflächen ist gleich dem Temperaturabfall über eine Länge Harz, die gleich groß ist wie die Korngröße, also:

$$2 R_k(T_k) = d/\lambda_H(T_k)$$

d Korngröße, λ_H Wärmeleitfähigkeit des ungefüllten Harzes.

Die auf diese Weise gewonnenen Werte für R_k sind in Abb.35 auf S. 93 eingezeichnet. Es ist klar, daß es sich hierbei nur um Näherungswerte handeln kann, da eine genaue Berechnung die unbekannte Geometrie und die Korngrößenverteilung der Partikel berücksichtigen müßte.

Berechnung der Wärmeleitfähigkeit eines gefüllten Harzes

Ein wichtiges Problem ist die Berechnung der WLF gefüllter Harze aus λ_H , R_k , d und dem Volumenfüllfaktor f . Die WLF des Füllmaterials spielt dann keine Rolle, wenn sie, wie im vorliegenden Fall, sehr groß ist gegen die WLF des Harzes, $1/\lambda_{\text{Füller}}$ kann dann Null gesetzt werden. Bei den Versuchen, die effektive Leitfähigkeit eines 2-Komponenten-Gemisches zu berechnen, bei dem eine Komponente diskrete Bereiche bekannter Geometrie ausfüllt, wird i.A. der Kapitzawiderstand nicht berücksichtigt⁵⁴. Anderson und Rauch⁵⁵ haben die WLF von einem Kupferpulver-Fett-Gemisch im Milligradbereich gemessen und geben zur Berechnung eine Formel an, die den Kapitzawiderstand berücksichtigt. Mit dieser Formel lassen sich die vorliegenden Ergebnisse jedoch nicht wiedergeben.

Es wurde daher versucht, mit einem sehr einfachen Modell zumindest eine Abschätzung für die Wärmeleitfähigkeit eines gefüllten Harzes zu gewinnen.

Betrachten wir eine würfelförmige "Elementarzelle" Harz mit einem einzigen würfelförmigen Korn (Abb. 39). Die Seitenlänge der "Elementarzelle" x ist durch die Korngröße d und den Füllfaktor gegeben. Der Wärmewiderstand der Zelle wird durch Zerlegen in 3 Bereiche gemäß dem angegebenen Ersatzschaltbild berechnet*. Dabei sind R_H , \tilde{R}_H Wärmewiderstände der entsprechenden Harzvolumen und R_k der Kapitzwiderstand der Grenzfläche.

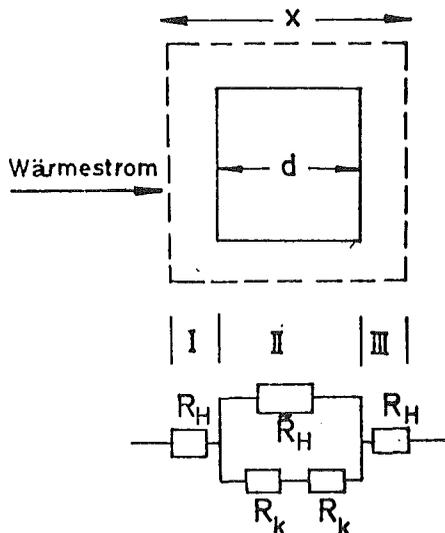


Abb. 39:

Modell zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit gefüllter Epoxyharze.

Die Wärmeleitfähigkeit des Gemisches ergibt sich dann zu

$$\lambda_{\text{gefüllt}} = \frac{1}{x} / \left[2R_H + \left(\frac{1}{R_H} + \frac{d^2}{2R_k} \right)^{-1} \right] \quad (1)$$

dabei ist

$$2R_H = \frac{x-d}{\lambda_H \cdot x^2} ; \quad \tilde{R}_H = \frac{d}{\lambda_H (x^2 - d^2)} \quad \text{und} \quad x = d / \sqrt[3]{f}$$

f = Volumenfüllfaktor.

*Die Berechnung nach dem Ersatzschaltbild stellt eine weitere Vereinfachung dar, der Widerstand der "Elementarzelle" wird damit nur näherungsweise berechnet.

Diese einfache Formel gibt die experimentellen Ergebnisse zwischen 1.5 und 20 K überraschend gut wieder. In Abb. 37 sind die gestrichelten Linien nach Gl.(1) berechnet. Bei nicht zu hohen Füllgraden werden die Meßwerte auf besser als 10% genau wiedergegeben. Dasselbe gilt auch für die Proben mit anderen Korngrößen als den in Abb. 37. Unterhalb T_k ergibt die Rechnung zu große Werte mit Tendenz zu größerer Abweichung als 10% zu Temperaturen unter 1.5 K hin. Das liegt daran, daß bei tiefen Temperaturen der Wärmestrom zur Umgehung der Füllkörner in Wirklichkeit gewundene Wege nehmen muß, während in dem einfachen Modell gerade Wege durch das Harzvolumen existieren. Sehr groß werden die Abweichungen auch bei hohen Füllgraden, da elektronische Kurzschlüsse zwischen Körnern in der Rechnung nicht berücksichtigt werden.

Zur Berechnung der in Abb.37 gestrichelt gezeichneten Linien wurden für $R_k(T)$ die aus den WLF-Messungen gewonnenen Werte eingesetzt (s. Abb.35). Für $T > 4$ K wurde die $R_k(T)$ -Kurve so extrapoliert, daß $R_k \sim T^{-2}$ ist. Es mag auf den ersten Blick bedenklich erscheinen, eine zwischen 1.5 und 4 K durch 4 Meßpunkte gegebene Kurve bis 20 K zu extrapolieren, jedoch ist zu bedenken, daß der Kapitzwiderstand zu höheren Temperaturen hin eine immer geringere Rolle spielt. Eine Verdoppelung von R_k bei 20 K beispielsweise verringert den berechneten Wert von $\lambda_{\text{gefüllt}}$ nur um 6-8%.

Wir haben gesehen, daß für die WLF eines gefüllten Harzes bei tiefen Temperaturen neben dem Füllfaktor in erster Linie die Korngröße eine Rolle spielt. Von Garrett und Rosenberg werden WLF-Messungen an gefüllten Harzen mit Quarz- und Saphirpulver beschrieben⁵⁶. Sie kommen zu qualitativ ähnlichen Ergebnissen, die sich ebenfalls recht gut mit Gleichung (1) wiedergeben lassen. Die dazu nötigen Werte von R_k können wieder aus den WLF-Messungen selbst gewonnen werden. Beim Vergleich der verschiedenen Füllmaterialien scheint es, daß Quarz- und Kupferpulver in etwa zu derselben Änderung in der Wärmeleitfähigkeit führen, während Saphirpulver infolge des höheren Kapitzwiderstandes zu einer geringeren WLF bei tiefen Temperaturen führt.

Bei der Wahl des geeigneten Füllmaterials spielen außer der WLF noch andere Gesichtspunkte eine Rolle, wie Anpassung des Ausdehnungskoeffizienten, mögliche Verletzung von Lackisolierschichten durch zu scharfe Körner, Durchschlagsfestigkeit beim Auftreten hoher Spannungen usw., auf die jedoch hier nicht näher eingegangen werden soll. Nur ein Punkt soll noch kurz erörtert werden: In Fällen nichtstationärer Wärmeleitung ist für die Ausbreitung von Wärme nicht die WLF ausschlaggebend, sondern die Temperaturleitfähigkeit $\lambda/(\rho \cdot C)$, ρ ist die Dichte, C die spezifische Wärme. Kupfer hat bei tiefen Temperaturen ein höheres $\rho \cdot C$ als dielektrische Füllmaterialien, da die spezifische Wärme von Metallen außer dem Gitteranteil (bei tiefen Temperaturen $\sim T^3$) noch einen zu T proportionalen elektronischen Anteil enthält, der bei genügend tiefen Temperaturen dominiert. Kupfergefüllte Harze haben dann eine größere spezifische Wärme pro Volumeneinheit und können damit kurzzeitig eine größere Wärmemenge bei einer bestimmten Temperaturerhöhung aufnehmen als beispielsweise quarzgefüllte Harze.

Schließlich soll noch auf die Möglichkeit hingewiesen werden, durch Beigeben eines geeigneten Füllers die WLF bei tiefen Temperaturen gezielt zu verkleinern, d.h. also auf die Verwendung gefüllter Harze als thermisches Isoliermaterial. Diese Möglichkeit mag für manche Anwendungen unterhalb von 4 K von Interesse sein. Man hätte ein Isoliermaterial von hoher mechanischer Festigkeit, dabei leicht zu verarbeiten und im Ausdehnungskoeffizienten an andere Materialien anzupassen, mit dem Vorzug einer sehr geringen Wärmeleitfähigkeit etwa wie Nylon oder noch geringer.

E) ZUSAMMENFASSEND E DARSTELLUNG DER ERGEBNISSE

Der Kapitza widerstand wurde an einer Reihe von Grenzflächen zwischen Metall und Isolator und zwischen zwei Metallen gemessen. Bei den Saphir-Indium-Experimenten gelang es bei gleicher Probenpräparation, reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten. Die Abweichung zwischen den Meßergebnissen verschiedener Autoren^{2,3,4} konnte durch die Art der Probenherstellung erklärt werden. Durch ein Experiment mit einer dünnen In-Schicht zwischen 2 Saphiren konnten Zweifel ausgeräumt werden^{2,2}, ob die Erniedrigung des Kapitza widerstandes beim Übergang zum normalleitenden Zustand des Indium (um rund 25% bei 1 K) nur durch eine Änderung des Wärmewiderstandes im Indium nahe der Grenzfläche vorgetäuscht werde. Diese experimentell beobachtete Veränderung von R_k ist theoretisch noch nicht gut verstanden.

Die Untersuchungen an Nb-Cu- und NbTi-Cu-Grenzflächen zeigten, daß für den Wärmeübergang von einem normal- zu einem supraleitenden Metall für $T \ll T_c$ der Kapitza widerstand dieselbe Rolle spielt wie zwischen Metall-Isolator. Die von einer anderen Gruppe⁹ gemessenen extrem hohen Werte für R_k konnten nicht bestätigt werden und müssen auf schlechten Kontakt der beiden Metalle zurückgeführt werden. Dennoch wurde gezeigt, daß der Wärmewiderstand zwischen NbTi und Cu bei technischen Multifilamentleitern (und dasselbe gilt qualitativ auch für Multifilamentleiter mit anderem supraleitenden Material) nicht zu vernachlässigen ist und z.B. bei Stabilitätsbetrachtungen berücksichtigt werden muß. Sandwich-Packungen von normal- und supraleitenden Metallen könnten als wirksame Wärmeschalter bei Temperaturen unter 1 K eingesetzt werden.

Ein eindrucksvolles Beispiel dafür, daß der Kapitza widerstand noch bis Temperaturen von 20 K eine Rolle spielen kann, geben die Wärmeleitfähigkeitsmessungen an gefüllten Epoxydharzen, wo die Wärmeleitfähigkeit empfindlich von der Korngröße des Füllmaterials abhängig ist. Unterhalb einer bestimmten Temperatur

verschlechtert sich die Wärmeleitfähigkeit mit dem Füllfaktor auch bei Verwendung eines gut wärmeleitenden Füllers als Folge des Kapitzwiderstandes. Dies ist für die meisten Anwendungen von Nachteil, kann jedoch andererseits zur Herstellung eines thermischen Isoliermaterials bei tiefen Temperaturen gezielt ausgenutzt werden. Zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von gefüllten Epoxydharzen wurde eine einfache Formel angegeben.

Die durchgeführten Experimente haben gezeigt, daß in allen Fällen der gemessene Kapitzwiderstand an Festkörper-Festkörper-Grenzflächen über der Vorhersage der Acoustic-Mismatch-Theorie liegt, während im Gegensatz hierzu bei Festkörper-Helium-Experimenten alle Theorien einen zu hohen Wert für R_K liefern. Betrachten wir die Zusammenstellung der Ergebnisse in Tab. IV, so sehen wir, daß die Diskrepanz typisch einen Faktor 2 beträgt.

Probe	c_l [10^5 cm/sec]	c_t	ρ [g/cm ³]	A.M.-Theorie	Experimente
				$R_K \cdot T^3$ [cm ² K ⁴ /W]	R_K (T) [cm ² K/W]
Saphir- Indium	10.8 2.6	6.4 0.7...1.5	4.0 7.47	19.5...22 nach ⁴ 19.1...20.5	$40 \cdot T^{-3}$ * (Mittelwert)
Rubin- Kupfer	wie Saphir 4.73	2.3	8.96	20	$30 \cdot T^{-2.8}$
Niob Cu	4.91	2.23	8.57	2.3	$9.5 \cdot T^{-3}$ *
NbTi-Cu					$6 \cdot T^{-2.75}$ *
Epoxy- Cu	3.22	1.64	1.1	6.3, nach ^{2,2} 7	$11 \cdot T^{-1.9}$

Tab. IV Nach der Acoustic-Mismatch-Theorie^{1,4} berechnete Werte für $R_K \cdot T^3$ im Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen. Die dabei verwendeten Schallgeschwindigkeiten für Epoxy sind aus^{5,7}, für Indium aus^{5,8}, für Saphir aus^{3,5}, die übrigen aus^{5,9} entnommen.

*Indium, Niob und NbTi jeweils supraleitend

Die T^{-3} -Abhängigkeit des Kapitza-Widerstandes, die von der Acoustic-Mismatch-Theorie vorausgesagt wird, war bei dem Saphir-Indium- und bei dem Nb-Cu-Experiment gut, bei dem NbTi-Cu und dem Rubin-Cu-Experiment annähernd erfüllt.

Die direkte Messung des Kapitza-Widerstandes an Kupfer-Epoxydharz-Grenzflächen zeigte dagegen eine T^{-2} -Abhängigkeit, die experimentell durch die Werte bestätigt wurde, die aus den Wärmeleitfähigkeits-Messungen der mit Kupferpulver gefüllten Harze gewonnen wurden. Im Milligradbereich wurde von Peterson und Anderson²² eine bessere Übereinstimmung mit dem erwarteten T^{-3} -Verhalten gefunden, offenbar wird erst bei höheren Temperaturen ein Mechanismus wirksam, der die Abweichung von der Theorie bewirkt. Diese Abweichung gegenüber der Acoustic-Mismatch-Theorie läßt sich nach den Rechnungen dieser Autoren auch nicht durch Berücksichtigung der Phononendämpfung in Kupfer erklären. Auch Experimente, bei denen die Einstellzeit von pulsformig geheizten, auf einen Isolator aufgedampften Metallschichten gemessen wird, zeigen umso bessere Übereinstimmung mit der Acoustic-Mismatch-Theorie, je tiefer die Temperatur des als "Phononenstrahlers" dienenden Metallfilms ist⁶⁰.

Bei der Acoustic-Mismatch-Theorie handelt es sich um eine halb klassische Theorie. Die Transmissionskoeffizienten werden mithilfe der klassischen Wellentheorie berechnet, während die Quantisierung der Gitterschwingungen durch Annahme eines "Phononengases" beschrieben wird, dessen Energieverteilung im thermischen Gleichgewicht durch die Debye-Zustandsdichte und die Bose-Verteilung gegeben ist. Die "wahre" Zustandsdichte sollte in dem interessierenden Temperaturbereich durch das Debye-Modell gut beschrieben werden, jedoch gilt dies nur für die über alle Raumrichtungen integrierte Zustandsdichte. In realen Kristallen ist die Zustandsdichte i.A. wegen der Anisotropie der Schallgeschwindigkeiten richtungsabhängig, während in der Acoustic-Mismatch-Theorie eine isotrope Phononenverteilung über alle Raumrichtungen angenommen wird (vgl. Gl.1 auf S.7). Eine schwerwiegendere Fehlerquelle liegt möglicherweise in der Berechnung der Transmissionskoeffizienten. Die klassische Theorie wurde für langwellige akustische Schwingungen aufgestellt,

beispielsweise erfolgte die Berechnung von Oberflächenwellen an Festkörpergrenzflächen durch Stoneley,⁶⁰ um die Ausbreitung von Erdbebenwellen besser zu verstehen. Die Übertragung dieser Theorie auf thermische Phononen ist nicht unproblematisch, insbesondere dadurch, daß die Wellenlänge thermischer Phononen nicht mehr sehr groß ist gegenüber den Oberflächenunebenheiten oder allgemeiner gesagt, gegenüber der Ausdehnung einer immer vorhandenen Grenzschicht, die sich physikalisch anders verhält als die bulk-Materialien. Bei den Energien thermischer Phononen muß zudem mit der Anregung lokalisierter Zustände in der Grenzschicht gerechnet werden, was Auswirkungen auf den Wärmeübergang haben kann.

Schwierigkeiten bringt auch die Verbesserung der Acoustic-Mismatch-Theorie durch Berücksichtigung der Phonondämpfung mit sich, durch die nur der Wärmestrom in die Richtung des Mediums mit der höheren Schallgeschwindigkeit erhöht wird. Im Gleichgewicht muß jedoch der Wärmestrom in beiden Richtungen gleich sein, ohne daß leicht ersichtlich ist, wie der Wärmestrom in umgekehrter Richtung, für den es keinen kritischen Winkel gibt, durch Dämpfung verändert würde⁶¹. Hier ist also sicherlich noch viel theoretische Arbeit zu leisten, entweder durch weitere Verfeinerung der halbklassischen Acoustic-Mismatch-Theorie, oder durch Verbesserung der schon bestehenden Ansätze einer mikroskopischen Theorie (s. z.B.⁶²), d.h. einer quantenmechanischen Behandlung des Problems.

Auf der experimentellen Seite wird es nützlich sein, weitere Untersuchungen an Festkörper-Festkörper-Grenzflächen vorzunehmen, mit denen das Konzept der akustischen Fehlanpassung besser getestet werden kann als an Festkörper-Helium-Grenzflächen, wo Quanteneffekte eine weit größere Rolle spielen. Das Hauptgewicht sollte dabei darauf gelegt werden, möglichst gut definierte und reproduzierbare Grenzflächen herzustellen, also beispielsweise auch die Kristallorientierungen zu berücksichtigen. Eine zunehmende Bedeutung wird in Zukunft auch Experimenten mit monochromatischen Phononen zukommen, die die direkte Messung der Transmissionskoeffizienten gestatten.

Literatur

- 1 P.L. Kapitza J.Phys. U.S.S.R. 4, 181 (1941)
- 2 D.A. Neepser and J.R. Dillinger Phys.Rev. 135 A, 1028 (1964)
- 3 M.W. Wolfmeyer et al. Phys.Letters 31A, 401 (1970)
- 4 B.S. Park and Y. Narahara J.Phys.Soc.Japan 30, 760 (1971)
- 5 J.I. Gittleman Phys.Rev. 128, 646 (1962)
- 6 W.R. Abel et al. Phys.Rev.Letters 15, 273 (1966)
- 7 A.J. Leggett and M. Vuorio J.Low Temp.Phys. 3, 359 (1970)
- 8 O. Avenel et al. Phys.Rev.Letters 31, 76 (1973)
- 9 Y.W. Chang, Ph.D. Thesis Univ. of California, Los Angeles (1971)
und
Y.W. Chang and T.H.K. Frederking Proc.ASC Annapolis (1972),
p. 500 (IEEE Publ. No. 72CHO682-5-TABSC)
- 10 G.L. Pollack Rev.Mod.Phys. 41, 48 (1969)
- 11 N.S. Snyder NBS Technical Note 385 (1969)
- 12 L.J. Challis J.Phys. C 7, 481 (1974)
- 13 I.M. Khalatnikov Zh.Eksp.Theor.Fiz. 22, 687 (1952)
- 14 W.A. Little Can.J.Phys. 37, 334 (1959)
- 15 A.C. Anderson and W.L. Johnson J.Low Temp.Phys. 7, 1 (1972)
- 16 R.E. Peterson Ph.D. Thesis, University of Illinois (1973)
- 17 I.M. Khalatnikov "An Introduction of the Theorie of Superfluidity" p. 138, W.A. Benjamin Inc.N.York (1965)
- 18 R. Stoneley Proc. Roy.Soc. A 106, 416 (1924)
- 19 W.A. Little Phys.Rev. 123, 435 (1961)
- 20 A.F. Andreev Sov.Phys. JETP 16, 1084 (1963)
- 21 H. Haug and K. Weiss Phys.Lett. A 40, 19 (1972)
- 22 R.E. Peterson and A.C. Anderson J.Low.Temp.Phys. 11, 639 (1973)
- 23 H. Kinder Phys.Rev.Letters 28, 1564 (1972)
- 24 H. Kinder and W. Dietsche "Strong Phonon Conversion at the Helium-Solid Interface", to be published
- 25 J. Wolter und T.J.B. Swanenburg Verhandl.DPG (VI) 8, 813 (1974)
- 26 L.J. Challis, K. Dransfeld and J. Wilks Proc.Roy.Soc. A 260,
31 (1960)
- 27 A.C. Anderson et al. Phys.Rev. 135A, 910 (1964)
- 28 J.L. Opsal and G.L. Pollack Phys.Lett.46A, 465 (1974)
- 29 I.M. Gerken and W.A. Owczarski Welding Research Council
Bulletin No. 109, 1 (1965)
- 30 B. Kneifel Diplomarbeit, Universität Karlsruhe 1973
- 31 G.K. White "Experimental Techniques in Low Temp. Physics",
Oxford Univ. Press (1968)

- 32 R. Berman *Contemp.Phys.* 14, 101 (1973)
- 33 H.B.G. Casimir *Physica* 5, 495 (1938)
- 34 D.C. Ginnings and G.T. Furukawa *J.Am.Chem.Soc.* 75, 522 (1953)
- 35 B.T. Bernstein *J.Appl.Phys.* 34, 169 (1963)
- 36 R. Berman, E.L. Foster and J.M. Ziman *Proc.Roy.Soc.* 220, 171 (1953)
- 37 W.M. Wolfmeyer and J.R. Dillinger *Phys.Lett.* 34A, 247 (1971)
- 38 R. Berman et al. *Proc.Roy.Soc.* A 231, 130 (1955)
- 39 A.M. de Goehr and B. Dreyfus *Phys.Stat.Sol.* 22, 77 (1967)
- 40 R.G. Ward Ph.D.thesis, Univ. of Nottingham (1970)
- 41 M.E. de la Cruz et al. *Phys.Rev.* 176, 871 (1968)
- 42 R. Berman *Nature* 182, 1661 (1958)
- 43 A.B. Pippard *J.Phys.Chem.Solids* 3, 175 (1957)
- 44 I.N. Adamenko and I.M. Fuks *Sov.Phys.JETP* 32, 1123 (1971)
- 45 J.D.N. Cheeke *Cryogenics* 10, 463 (1970)
- 46 L.J. Challis and R.A. Sherlock *J.Phys.* C 3, 1193 (1970)
- 47 R.D. Parks "Superconductivity" 2, p. 842
M. Dekker Inc., New York (1969)
- 48 F. Wagner, F.J. Kollarits and M. Yaqub *Phys.Rev.Lett.* 32, 1117
(1974)
- 49 E.C. Hirschhoff et al. *Phys.Lett.* 33 A, 19 (1970)
- 50 E. Schmidbauer, H. Wenzl und E. Umlauf *Z.Phys.* 240, 30 (1970)
- 51 L.J. Barnes and J.R. Dillinger *Phys.Rev.Lett.* 10, 287 (1963)
und *Phys.Rev.* 141, 615 (1966)
- 52 L.J. Challis and J.D.N. Cheeke, *Phys.Lett.* 5, 305 (1963)
und *Proc.Phys.Soc.* 83, 109 (1964)
- 53 M. Suomi et al. *Physica* 38, 67 (1968)
- 54 R.E. Meredith and C.W. Tobias *J.Appl.Phys.* 31, 1270 (1960)
- 55 A.C. Anderson and R.B. Rauch *J.Appl.Phys.* 41, 3648 (1970)
- 56 K.W. Garrett and H.M. Rosenberg *ICEC* 4, p. 267, Eindhoven (1972)
- 57 A.D. Athougies et al. *Cryogenics*, April 1972, p. 125
- 58 B.S. Chandrasekhar and J.A. Rayne *Phys.Rev.* 124, 1011 (1961)
- 59 W.P. Mason *Physical Acoustics* 3, B p. 84, Academic Press 1965
- 60 P. Herth und O. Weis *Z.angew.Phys.* 29, 101 (1970)
- 61 M. Vuorio, *J.Low Temp.Phys.* 10, 781 (1973)
- 62 F.W. Sheard, R.M. Bowley and G.A. Toombs *Phys.Rev.* A 8, 3135 (1973)