

Fakultät für Physik und Astronomie
Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg



Diplomarbeit
im Studiengang Physik

vorgelegt von
Markus Heitz
aus Berlin

1998

**Untersuchungen
mit akustischen Oberflächenwellen
an abschreckend kondensierten Edelgasfilmen**

Die Diplomarbeit wurde von Markus Heitz ausgeführt am
Institut für Angewandte Physik
unter der Betreuung von
Herrn Prof. Dr. S. Hunklinger

Abschreckend kondensierte Edelgasfilme stellen ein einfaches Modellsystem für die Untersuchung von Tunnelsystemen in amorphen und polykristallinen Festkörpern dar. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Apparatur zur Messung der elastischen Eigenschaften solcher Adsorbate mit hochfrequenten akustischen Oberflächenwellen in Betrieb genommen und teilweise neu aufgebaut sowie erste Messungen an Filmen aus Argon, Neon und Argon-Neon-Mischungen durchgeführt. Während des Temperns oberhalb der Kondensationstemperatur treten große Schallgeschwindigkeitsänderungen auf, die auf Änderungen der elastischen Konstanten infolge von strukturellen Umlagerungsprozessen im Film beruhen. Der Temperprozeß hat außerdem einen beträchtlichen Einfluß auf die Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit und der Dämpfung, die durch die Wechselwirkung der Ultraschallwelle mit Tunnelsystemen bestimmt ist. Weiterhin werden Verfahren zur Bestimmung der Dichte und der elastischen Konstanten der Adsorbate und zur Skalierung der Rohdaten auf Werte, die Messungen mit Volumenwellen entsprechen, vorgestellt. Für die Dichte und die elastischen Konstanten wurden Werte gefunden, die deutlich unter denen der entsprechenden Volumenkristalle liegen.

Investigations on quench-condensed rare gas films with surface acoustic waves:

Quench-condensed rare gas films represent a simple model system to study tunneling states in amorphous and polycrystalline solids. Within this thesis an apparatus was set up to measure the elastic properties of thin films and first measurements on argon, neon, and mixtures of argon and neon were carried out. On annealing above the condensation temperature strong changes of the sound velocity occur indicating a drastic increase of the elastic constants which arise from a structural rearrangement of the film. The annealing procedure has also significant influence on the temperature dependence of the sound velocity and attenuation which is governed by interaction between the ultrasonic wave and tunneling states. Furthermore, methods are proposed to determine the density and the elastic constants of quench-condensed films and to scale the raw data appropriately to bulk values of the adsorbates. The density and the elastic constants are found to be considerably smaller than corresponding bulk values.

Inhalt

1.	Einleitung	1
2.	Tieftemperatureigenschaften von Gläsern	3
2.1	Spezifische Wärme und Wärmeleitfähigkeit	3
2.2	Ultraschallabsorption	4
2.3	Tunnelmodell	5
2.3.1	Grundlagen	5
2.3.2	Wechselwirkung von Tunnelsystemen mit Phononen	7
2.3.3	Ergebnisse des Tunnelmodells	9
3.	Oberflächenwellen	11
3.1	Die Bewegungsgleichung	11
3.2	Rayleighwellen	11
3.3	Piezoelektrische Substrate	13
3.4	Der Einfluß eines dünnen Films	14
3.5	Skalierung der Oberflächenwellen-Daten	15
3.6	Erzeugung von Oberflächenwellen	17
3.7	Die verwendeten Oberflächenwellenbauteile	19
4.	Experimentelles	21
4.1	Elektronik und Meßprinzip	21
4.2	Der Kryostat	23
4.3	Meßgenauigkeit	24
4.4	Der Einfluß der Ultraschallintensität	25
4.5	Das Aufdampfen der Filme	26
4.5.1	Reine Filme	27
4.5.2	Gemischte Filme	30
5.	Ergebnisse und Diskussion	32
5.1	Diskussion des Aufdampfprozesses	32
5.1.1	Lithiumtantalat-Substrat	32
5.1.2	Lithiumniobat-Substrat	34

5.2	Überblick über die durchgeführten Messungen	36
5.3	Temperverhalten der Edelgasfilme	36
5.4	Das Desorptionsverhalten	44
5.4.1	Argon	44
5.4.2	Argon-Neon-Mischung	45
5.5	Reversible Änderungen der Filmeigenschaften	46
5.5.1	Neon	46
5.5.2	Argon	48
5.5.3	Argon-Neon-Mischung	50
5.5.4	Zusammenfassende Diskussion	52
6.	Zusammenfassung	53
A.	Anhang	55
A.1	Berechnung der Korrekturfaktoren	55
A.2	Meßgeräte und Gase	59
	Literaturverzeichnis	60

1. Einleitung

Bis vor wenigen Jahrzehnten beschränkte sich die Festkörperphysik weitgehend auf die Untersuchung der Eigenschaften von Kristallen, die aufgrund ihrer periodischen Struktur vergleichsweise einfach mit theoretischen Modellen beschrieben werden können. So liefert z.B. die Debyesche Theorie mit der Debye-Temperatur Θ als einzigem materialspezifischem Parameter eine gute Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme von Kristallen [Deb12]. Man ging davon aus, daß das Tieftemperaturverhalten von Gläsern bis auf quantitative Unterschiede dem von Kristallen entspricht; da bei tiefen Temperaturen die Wellenlänge der dominanten Phononen groß gegenüber den strukturellen Unregelmäßigkeiten in Gläsern ist, sollte sich das Phononenkonzept auf amorphe Festkörper übertragen lassen. Anfang der siebziger Jahre durchgeführte Messungen der spezifischen Wärme und der Wärmeleitfähigkeit von amorphen Festkörpern zeigten jedoch, daß unterhalb von 1 K zusätzliche Anregungszustände existieren, die einen großen Beitrag zu den thermischen Eigenschaften von Gläsern liefern [Zel71]. Außerdem beobachtete man, daß das Tieftemperaturverhalten bei fast allen amorphen Substanzen sowohl qualitativ als auch quantitativ ein sehr einheitliches Verhalten zeigt — man spricht auch von der Universalität der Gläser.

Zur Erklärung der besonderen Tieftemperatureigenschaften von Gläsern wurde 1972 das Tunnelmodell vorgeschlagen, das die Annahme macht, daß einige Atome oder Atomgruppen im amorphen Festkörper verschiedene Gleichgewichtslagen besitzen, zwischen denen bei tiefen Temperaturen ein Übergang durch quantenmechanisches Tunneln möglich ist [And72, Phi72]. Dieses phänomenologische Modell liefert für viele physikalische Eigenschaften amorpher Festkörper bei tiefen Temperaturen eine befriedigende Beschreibung. Ergebnisse insbesondere aus den letzten Jahren zeigen allerdings Unzulänglichkeiten, u.a. wegen der Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander.

Weitgehend ungeklärt sind bis heute jedoch die Fragen nach der mikroskopischen Natur der Tunnelsysteme und der Ursache für die Universalität der Tieftemperatureigenschaften amorpher Festkörper. Es ist daher sinnvoll, Messungen an einem möglichst einfachen Modellsystem durchzuführen. Dazu geeignet erscheinen Edelgase, da hier zwischen den Atomen lediglich die van der Waals-Kraft wirkt, so daß auch von theoretischer Seite ein verhältnismäßig einfacher Zugang möglich ist. Röntgenstrukturuntersuchungen haben gezeigt, daß abschreckend kondensierte Filme aus einer Edelgassorte eine polykristalline Struktur aufweisen, während Mischungen aus zwei verschiedenen Edelgasen amorphe Filme bilden [Men91]. Dies steht im Einklang mit theoretischen Studien an Lennard-Jones Teilchen unterschiedlicher Größe, die die Bildung einer amorphen Struktur voraussagen, falls sich die Atomradien um mehr als 10% unterscheiden [Sch86]. Messungen der spezifischen Wärme und Ultraschallmessungen an abschreckend kondensierten Edelgasfilmen haben die Existenz von Tunnelsystemen sowohl in amorphen als auch in polykristallinen Strukturen nachgewiesen [Men91, Hor88, Hor92]. Zwischen den Atomen aller Edelgassorten wirkt die gleiche (und gut verstandene) Wechselwirkung, es ist aber ein weiter Bereich von Parame-

tern wie Masse, Bindungsenergie und Größe einstellbar (siehe Tab. 4.2). Man hat hierdurch die Möglichkeit, „maßgeschneiderte“ amorphe Festkörper herzustellen, so daß die Aussicht besteht, Hinweise auf mögliche Ursachen für die Universalität der Gläser zu finden.

Da Tunnelsysteme mit Phononen wechselwirken, stellen Ultraschallexperimente eine Möglichkeit dar, die Tieftemperatureigenschaften von Gläsern zu untersuchen. Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden Ultraschallmessungen an abschreckend kondensierten Edelgasfilmen mit Hilfe von akustischen Oberflächenwellen durchgeführt, die sich auf piezoelektrischen Substraten sehr einfach erzeugen lassen. Durch Messung der Ausbreitungsgeschwindigkeit und der Dämpfung der Schallwellen lassen sich Aussagen über die Anzahl der Tunnelsysteme treffen; die Veränderung der Meßgrößen beim Tempern der Edelgasfilme könnte möglicherweise Rückschlüsse auf die Natur der Tunnelsysteme erlauben. Durch simultane Messung bei verschiedenen Frequenzen/Wellenlängen lassen sich zudem Informationen über die auftretenden Zeitskalen (Relaxationszeiten) und Längenskalen wie z.B. die Größe von Inhomogenitäten in der Filmstruktur gewinnen. Oberflächenwellen sind sensitiv auf eine Massenbelegung der Laufstrecke, so daß sich aus den Änderungen der Schallgeschwindigkeit während der Filmpräparation die Schichtdicke in situ bestimmen läßt; eine gesonderte Anordnung zur Messung der aufgetragenen Masse — bei Messungen der thermischen Eigenschaften wird hierzu häufig ein Schwingquartz verwendet — wird nicht benötigt.

Diese Diplomarbeit stellt den Beginn des beschriebenen Projekts dar. Einen Großteil der Zeit nahm die Inbetriebnahme eines neuen Verdünnungskryostaten und die Lösung vieler experimenteller Detailprobleme in Anspruch. Es konnten erste Ergebnisse gewonnen werden, aber im Rahmen der zur Verfügung stehenden Zeit klarerweise noch kein endgültiges abgeschlossenes Bild.

In Kapitel 2 werden zunächst die Grundlagen des Tunnelmodells und die Wechselwirkung von Phononen mit Tunnelsystemen erläutert, bevor in Kapitel 3 auf die Theorie der Oberflächenwellen und ihre Erzeugung eingegangen wird. Kapitel 4 befaßt sich mit dem experimentellen Aufbau und dem Meßprinzip, während im anschließenden Kapitel 5 die durchgeführten Messungen vorgestellt und diskutiert werden. Schließlich werden in Kapitel 6 die erhaltenen Ergebnisse zusammengefaßt.

2. Tieftemperatureigenschaften von Gläsern

2.1 Spezifische Wärme und Wärmeleitfähigkeit

Zeller und Pohl konnten 1971 zeigen, daß sich das Tieftemperaturverhalten von amorphen Festkörpern beträchtlich von dem der Kristalle unterscheidet [Zel71]. Für die spezifische Wärme fanden sie unterhalb von 1 K, im Gegensatz zur nach der Debye-Theorie erwarteten T^3 -Abhängigkeit [Deb12], einen in der Temperatur annähernd linearen Verlauf. Der Betrag der spezifischen Wärme im Glas übertrifft den im Kristall um Größenordnungen (Abb. 2.1). In Gläsern existieren also niederenergetische Anregungszustände, die in Kristallen nicht vorhanden sind.

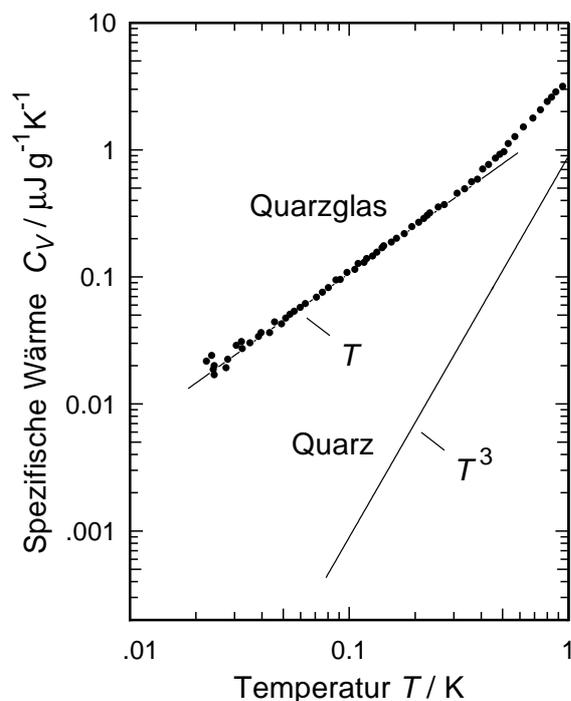


Bild 2.1: Spezifische Wärme von amorphem und kristallinem Quarz als Funktion der Temperatur (nach [Hun77]).

Die Wärmeleitfähigkeit Λ läßt sich in Analogie zur kinetischen Gastheorie mit Hilfe des Ausdrucks

$$\Lambda = \frac{1}{3} C v l \quad (2.1)$$

berechnen, da sich die wärmetransportierenden Phononen ähnlich wie diffundierende Gas-moleküle verhalten. Hierbei sind C , v und l die spezifische Wärme, die Schallgeschwindigkeit bzw. die mittlere freie Weglänge der Phononen. Im Kristall ist die freie Weglänge der Phononen bei tiefen Temperaturen durch die Probengröße bestimmt, und die Schallgeschwindigkeit ist nahezu temperaturunabhängig, so daß sich eine T^3 -Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit ergibt.

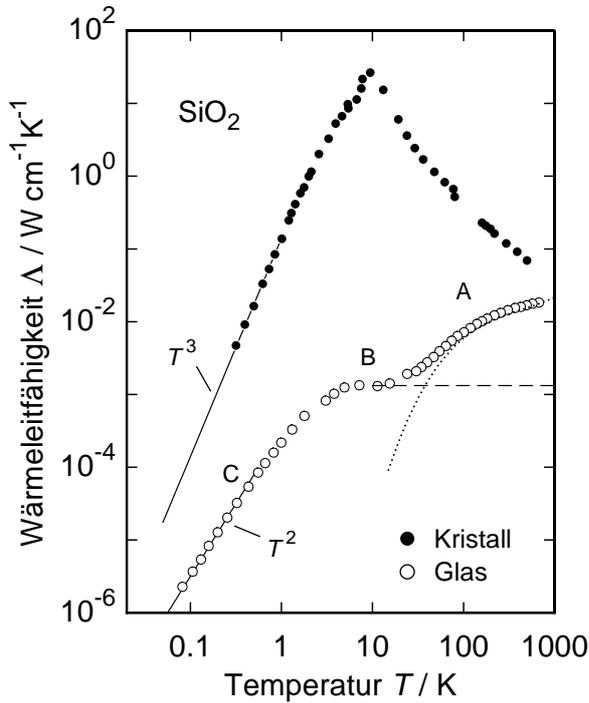


Bild 2.2: Wärmeleitfähigkeit von Quarzglas und Quarzkristall (nach [Zel71]).

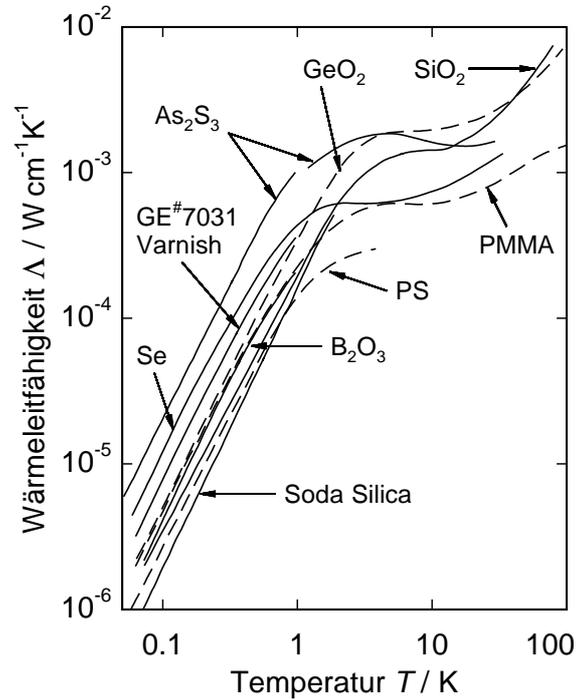


Bild 2.3: Wärmeleitfähigkeit verschiedener nichtkristalliner Substanzen (nach [Ste70]).

Gläser zeigen bei tiefen Temperaturen ein T^2 -Verhalten in der Wärmeleitfähigkeit. Der Absolutwert von Δ unterscheidet sich für verschiedene amorphe Substanzen nur innerhalb einer Größenordnung, ist aber sehr viel kleiner als in Kristallen (Abbn. 2.2, 2.3). In amorphen Substanzen wird die Wärmeleitfähigkeit außer durch die Streuung der Phononen an der Oberfläche anscheinend durch einen weiteren Mechanismus begrenzt, nämlich die Wechselwirkung der Phononen mit den oben erwähnten niederenergetischen Anregungen.

Das Tieftemperaturverhalten der spezifischen Wärme und der Wärmeleitung von Gläsern kann unter der Annahme verstanden werden, daß es sich bei diesen Anregungszuständen um Zwei-Niveau-Systeme mit einer breiten Energieverteilung handelt.

2.2 Ultraschallabsorption

Der Zwei-Niveau-Charakter der Anregungszustände wurde durch Messungen der Ultraschallabsorption bestätigt. Abb. 2.4 zeigt die Ultraschalldämpfung eines Borsilikatglases in Abhängigkeit von der eingestrahlten Intensität. Entscheidend für die Dämpfung ist in diesem Fall die resonante Wechselwirkung der Phononen mit den Zwei-Niveau-Systemen. Mit wachsender Intensität wird zunehmend die Besetzungszahldifferenz der Niveaus verringert, so daß sich die Wahrscheinlichkeiten für induzierte Emission und Absorption von Phononen angleichen. Bei hohen Ultraschalleistungen tritt somit ein Sättigungseffekt ein.

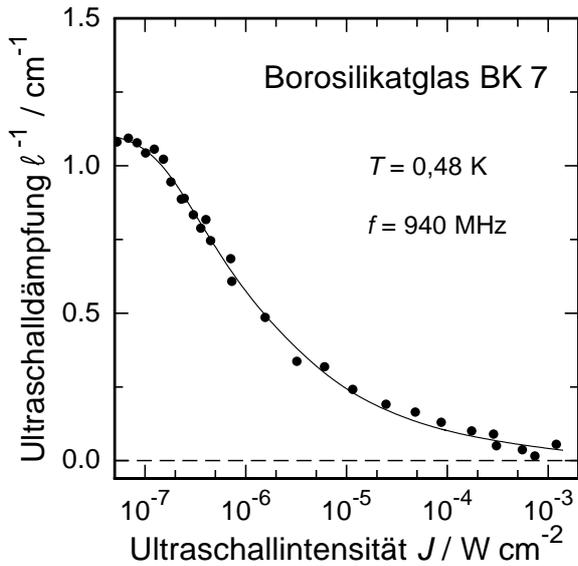


Bild 2.4: Ultraschalldämpfung in Borsilikatglas in Abhängigkeit von der eingestrahlten Ultraschallintensität. Die durchgezogene Kurve entspricht einer Rechnung nach dem Tunnelmodell (nach [Hun74]).

2.3 Tunnelmodell

Zur Erklärung der Tieftemperatureigenschaften amorpher Materialien wurde 1972 das Tunnelmodell unabhängig voneinander von Anderson *et al.* [And72] und Phillips [Phi72] vorgeschlagen. Im folgenden soll es kurz beschrieben werden.

2.3.1 Grundlagen

In der ungeordneten Struktur eines Glases können einzelne Atome oder auch ganze Gruppen von Atomen verschiedene Gleichgewichtslagen einnehmen, zwischen denen bei tiefen Temperaturen nur noch ein Übergang durch den quantenmechanischen Tunneleffekt möglich ist. Im einfachsten Fall geht man von einem Teilchen der Masse m in einem aus zwei harmonischen Potentialen bestehenden Doppelmuldenpotential aus.

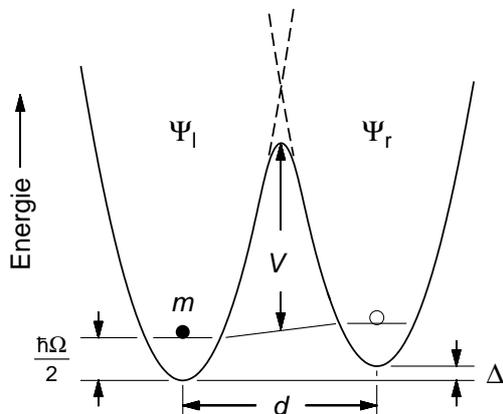


Bild 2.5: Schematische Darstellung eines Doppelmuldenpotentials.

Aufgrund der unterschiedlichen Umgebungen der beiden Positionen unterscheiden sich die Energieminima um die Asymmetrie Δ . Energetisch sind die Gleichgewichtslagen durch die Potentialbarriere V voneinander getrennt, im Konfigurationsraum durch den Abstand d , der außer Translationen beispielsweise auch Rotationen beschreiben kann. Die

Energie des Grundzustands $|\Psi_1\rangle$ bzw. $|\Psi_r\rangle$ des jeweils in einem der Potentialtöpfe lokalisierten Teilchens ist durch $\frac{1}{2}\hbar\Omega$ gegeben.

In der Basis $|\Psi_1\rangle, |\Psi_r\rangle$ läßt sich der Tunnelprozeß durch den Hamiltonoperator

$$H_0 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \quad (2.2)$$

beschreiben, wenn der Energienullpunkt in die Mitte der beiden Grundzustandsenergien gelegt wird. Δ_0 wird als Tunnelaufspaltung bezeichnet und ist ein Maß für die Tunnelwahrscheinlichkeit, die aus dem endlichen Überlapp der beiden Wellenfunktionen resultiert. Mit Hilfe der WKB-Methode erhält man näherungsweise

$$\Delta_0 \simeq \frac{\hbar\Omega}{\pi} e^{-\lambda} \quad (2.3)$$

mit dem Tunnelparameter

$$\lambda \simeq \frac{d}{2\hbar} \sqrt{2mV} \quad . \quad (2.4)$$

Die Energieaufspaltung E ist nun gerade durch die Eigenwerte $\pm\frac{1}{2}E$ des Hamiltonoperators H_0 gegeben :

$$E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2} \quad . \quad (2.5)$$

Die Energiedifferenz zwischen den beiden Zuständen im Doppelmuldenpotential ist also nicht nur durch die Asymmetrie Δ gegeben, es werden vielmehr zwei Parameter zur Beschreibung eines Tunnelsystems benötigt: Δ und Δ_0 bzw. Δ und λ . In einem Glas werden nun aber sehr viele, strukturell unterschiedliche Tunnelsysteme vorkommen, so daß man im Tunnelmodell die Annahme macht, daß die Parameter Δ und λ in einem sehr weiten Bereich gleichverteilt sind:

$$P(\Delta, \lambda) d\Delta d\lambda = \bar{P} d\Delta d\lambda \quad . \quad (2.6)$$

Diese Verteilungsfunktion läßt sich auch auf E und Δ_0 umschreiben, wobei zweckmäßigerweise die Größe $u = \Delta_0/E$ eingeführt wird:

$$P(E, u) dE du = \frac{\bar{P}}{u\sqrt{1-u^2}} dE du \quad . \quad (2.7)$$

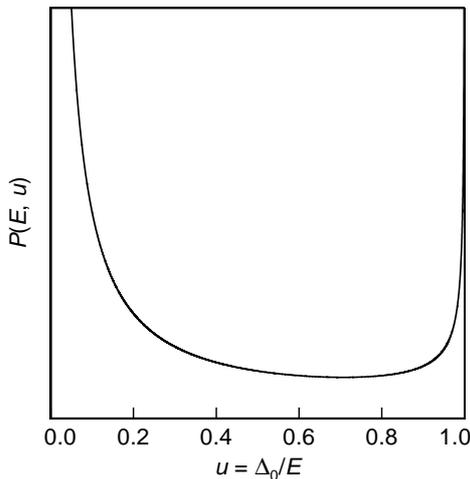


Bild 2.6: Im Tunnelmodell angenommene Verteilungsfunktion $P(E, u)$ der charakteristischen Parameter E und $u = \Delta_0/E$ für feste Energie E .

Da bei $u = 0$ eine nichtintegrale Singularität vorliegt, führt man eine minimale Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}$ ein, so daß man eine Zustandsdichte

$$D(E) = \int_{\Delta_{0,\min}}^{\infty} P(E, \Delta_0) d\Delta_0 = \bar{P} \ln \left(\frac{2E}{\Delta_{0,\min}} \right) \quad (2.8)$$

erhält, die nahezu konstant ist. Damit läßt sich der beobachtete lineare Temperaturverlauf der spezifischen Wärme von Gläsern erklären.

2.3.2 Wechselwirkung von Tunnelsystemen mit Phononen

Eine elastische Deformation e bewirkt eine Veränderung der Umgebung der Doppelmuldenpotentiale, wodurch die Asymmetrieenergie Δ moduliert wird. Der Einfluß auf die Tunnelaufspaltung Δ_0 wird i.a. als vernachlässigbar angenommen. Für kleine Störungen läßt sich die Änderung der Asymmetrie in linearer Näherung durch Einführung des Deformationspotentials $\gamma = \frac{1}{2} \frac{\partial \Delta}{\partial e}$ beschreiben:

$$\delta \Delta = 2 \gamma e \quad . \quad (2.9)$$

Hierbei ist zu beachten, daß es sich bei e und γ um Tensoren handelt.

Eine genauere Analyse zeigt, daß die Dynamik der Tunnelsysteme durch die Blochschen Gleichungen, die auch die Bewegung eines Spin 1/2-Teilchens im statischen Magnetfeld bei Einstrahlung eines dazu senkrechten oszillierenden Störfeldes beschreiben, gegeben ist [Hun76].

Die Lösung dieses Problems führt auf eine akustische Suszeptibilität, deren Realteil mit der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung $\delta v/v$ und deren Imaginärteil mit der Dämpfung α verknüpft ist. Hierbei treten typische Relaxations- und Resonanzterme auf, die im folgenden genauer betrachtet werden sollen. Bei der Bestimmung von $\delta v/v$ und α ist die breite Verteilung der Parameter Δ und λ zu berücksichtigen, die aus den Blochschen Gleichungen erhaltenen Größen für jeweils ein Mitglied eines Ensembles gleichartiger Tunnelsysteme müssen also noch über $P(\Delta, \lambda)$ integriert werden.

Resonante Absorption eines Phonons kann stattfinden, wenn die Energie $\hbar\omega$ des Phonons mit der Energieaufspaltung E des Tunnelsystems übereinstimmt und sich dieses im Grundzustand befindet. Falls das Tunnelsystem im angeregten Zustand ist, so ist der Konkurrenzprozeß der induzierten Emission eines Phonons möglich.



Bild 2.7: Schematische Darstellung von Absorption und induzierter Emission von Phononen

Damit die Absorption von Phononen überwiegt, muß die Besetzungszahldifferenz der Niveaus $\Delta N = N \tanh(E/2k_B T)$ signifikant von Null verschieden sein, was zur Bedingung

$E > k_B T$ führt. Es ergibt sich für die Dämpfung der Ausdruck

$$\alpha_{\text{res}} = \frac{\pi C \omega / v}{\sqrt{1 + I/I_c}} \tanh\left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T}\right) \quad (2.10)$$

mit der Materialkonstanten

$$C = \frac{\bar{P} \gamma^2}{\rho v^2} \quad (2.11)$$

Der Term $1/\sqrt{1 + I/I_c}$ beschreibt den in Kapitel 2.2 erwähnten Sättigungseffekt. I_c ist die sogenannte kritische Intensität, bei der die Dämpfung um den Faktor $\sqrt{2}$ kleiner als bei sehr geringen Ultraschalleistungen ist.

Zur resonanten Schallgeschwindigkeitsänderung muß die Bedingung $\hbar \omega = E$ nicht erfüllt sein, es tragen auch Tunnelsysteme mit $E \gg \hbar \omega$ bei. Man erhält

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{res}} = C \ln\left(\frac{T}{T_0}\right) \quad (2.12)$$

Phononen können auch über Relaxationsprozesse mit Tunnelsystemen wechselwirken. Durch die Ankopplung der Phononen an die Asymmetrie Δ wird die Energieaufspaltung E moduliert. Ein Ensemble von Tunnelsystemen mit $E \simeq k_B T$ — dies sind gerade die dominanten Phononen, die für die Wechselwirkung verantwortlich sind — befindet sich dadurch nicht mehr im thermischen Gleichgewicht. Dieses versuchen sie durch Absorption oder Emission von Phononen wieder zu erreichen, wozu sie aber eine gewisse Zeit, nämlich die Relaxationszeit τ , benötigen.

Die Dämpfung durch Relaxation ist dann maximal, wenn die Relaxationsraten τ^{-1} vergleichbar mit der Frequenz ω des akustischen Störfeldes sind ($\omega \tau \simeq 1$). Tunnelsysteme, deren Relaxationsrate sich stark von ω unterscheidet, sind entweder zu träge, um der Verzerrungswelle zu folgen, oder aber so schnell, daß sie stets im thermischen Gleichgewicht sind, so daß keine Absorption stattfindet.

Bei Temperaturen unterhalb von 1 K dominiert der Ein-Phononen- oder direkte Prozeß, bei dem das Ensemble direkt durch Absorption oder Emission je eines Phonons das thermische Gleichgewicht zu erreichen versucht. Für die Relaxationsrate ergibt sich

$$\tau_d^{-1} = \frac{1}{2\pi\rho\hbar^4} \left(\frac{\gamma_\ell^2}{v_\ell^5} + 2 \frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right) E^3 \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 \coth\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \quad (2.13)$$

wobei die Indizes ℓ und t den longitudinalen bzw. transversalen Anteil des Deformationspotentials γ und der Schallgeschwindigkeit v kennzeichnen. An Gleichung (2.13) kann man leicht erkennen, daß symmetrische Tunnelsysteme ($\Delta_0 = E$) am schnellsten relaxieren, ihre Relaxationszeit wird daher mit τ_{min} bezeichnet.

Für zwei Grenzfälle lassen sich analytische Ausdrücke für die durch direkte Prozesse hervorgerufene Dämpfung und relative Schallgeschwindigkeitsänderung angeben:

1) $\omega \gg \tau_{\text{min}}^{-1}$

Dieser Bereich entspricht so tiefen Temperaturen, daß selbst die symmetrischen Systeme zu langsam sind, um der Verzerrungswelle zu folgen, die Dämpfung ist dann proportional zu τ_{min}^{-1} . Man erhält

$$\alpha_{\text{rel}} \propto C T^3 \quad (2.14)$$

und

$$\frac{\delta v}{v} \Big|_{\text{rel}} \simeq 0 \quad . \quad (2.15)$$

2) $\omega \ll \tau_{\text{min}}^{-1}$

Dies entspricht einem höheren Temperaturbereich, in dem immer genügend Tunnel-systeme vorhanden sind, die die Bedingung $\omega\tau \simeq 1$ erfüllen, so daß sich eine temperaturunabhängige Dämpfung ergibt. Man findet

$$\alpha_{\text{rel}} = \frac{\pi}{2} \frac{\omega}{v} C \quad (2.16)$$

und

$$\frac{\delta v}{v} \Big|_{\text{rel}} = -\frac{3}{2} C \ln \left(\frac{T}{T_0} \right) \quad . \quad (2.17)$$

Bei Temperaturen oberhalb von 1 K gewinnen Mehrphononenprozesse an Bedeutung. Für den Zwei-Phononen-Prozeß („Ramanprozeß“), bei dem der Übergang von einem Niveau zum anderen über einen — reellen oder virtuellen — Zwischenzustand erfolgt, gilt beispielsweise

$$\tau_{\text{r}}^{-1} = \text{const.} \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 T^7 \quad . \quad (2.18)$$

Ab Temperaturen von ungefähr $E_0/2k_{\text{B}}$ (E_0 ist hierbei die Grundzustandsenergie $\frac{1}{2}\hbar\Omega$ des Teilchens in einer Mulde des Doppelmuldenpotentials) treten Relaxationsprozesse auf, bei denen das Teilchen die Energiebarriere V thermisch aktiviert überwinden kann. Für die Relaxationsrate gilt hierbei das Arrhenius-Gesetz:

$$\tau_{\text{th}}^{-1} \propto \frac{E_0}{\hbar} \exp \left(-\frac{V}{k_{\text{B}}T} \right) \quad . \quad (2.19)$$

Die gesamte Relaxationsrate ergibt sich aus der Summe der Einzelraten aller beteiligten Prozesse:

$$\tau_{\text{ges}}^{-1} = \sum_i \tau_i^{-1} \quad . \quad (2.20)$$

2.3.3 Ergebnisse des Tunnelmodells

In Abb. 2.8 sind die Verläufe der Dämpfung und der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt, wie sie nach dem Standard-Tunnelmodell erwartet werden. Hierbei werden nur direkte Relaxations- und resonante Prozesse berücksichtigt. Da im Rahmen dieser Arbeit Messungen mit verhältnismäßig hohen Ultraschallintensitäten durchgeführt wurden, konnte keine resonante Absorption beobachtet werden; daher wurde in dieser Darstellung die Absorption durch resonante Prozesse vernachlässigt.

Die Dämpfung α zeigt bei tiefen Temperaturen einen T^3 -Verlauf, bei höheren Temperaturen mündet sie in ein Plateau.

In der dargestellten logarithmischen Temperaturskala weist der Verlauf von $\delta v/v$ bei tiefen und bei höheren Temperaturen jeweils ein lineares Verhalten auf, wobei die Steigungen des Anstiegs und des Abfalls ein Verhältnis von 2 : (−1) bilden. Das Maximum ist

durch die Bedingung $\omega\tau_{\min} = 1$ charakterisiert, so daß sich für die Temperatur, bei der das Maximum auftritt, mit Hilfe von Gleichung (2.13)

$$T_{\max} \propto \sqrt[3]{\rho\omega\left(\frac{\gamma_{\ell}^2}{v_{\ell}^5} + 2\frac{\gamma_t^2}{v_t^5}\right)^{-1}} \quad (2.21)$$

ergibt. Es sei allerdings angemerkt, daß der dargestellte Verlauf in hochfrequenten Messungen nicht beobachtet werden kann, da ab Temperaturen von etwa 1 K bereits andere Relaxationsprozesse wichtig werden. Dies bewirkt einen steileren Abfall der Schallgeschwindigkeit; das Dämpfungsplateau bleibt aber erhalten, solange die Relaxationsrate proportional zu $(\Delta_0/E)^2$ ist.

In Abb. 2.9 wurden zusätzlich noch thermisch aktivierte Relaxationsprozesse berücksichtigt, wobei für die Grundzustandsenergie E_0 ein Wert von 2.6 K gewählt wurde. Hierdurch ergeben sich oberhalb von etwa 1 K ein steiler Dämpfungsanstieg sowie ein sehr großer Abfall der Schallgeschwindigkeit — man beachte die unterschiedlichen Ordinalskalen der Abbn. 2.8 und 2.9.

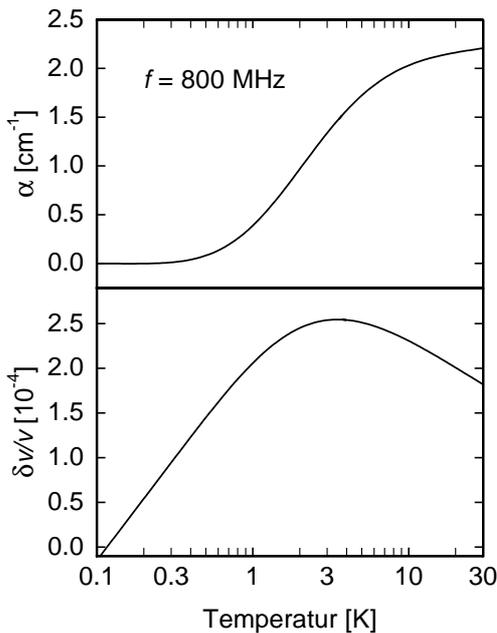


Bild 2.8: Verlauf von Dämpfung und relativer Schallgeschwindigkeitsänderung nach dem Standard-Tunnelmodell (nach [Wei98]).

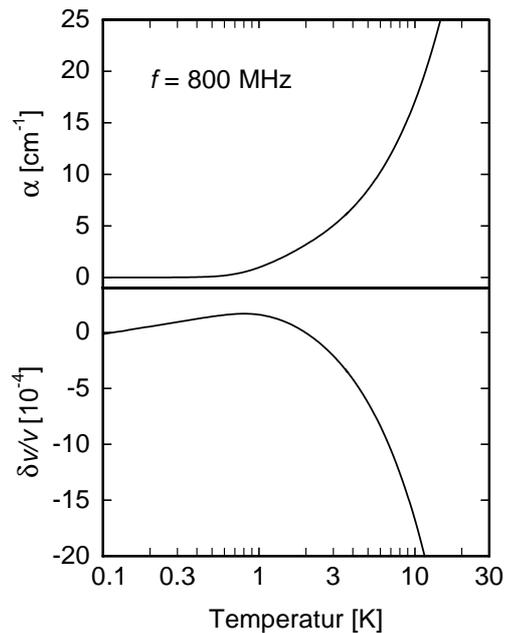


Bild 2.9: Verlauf von Dämpfung und relativer Schallgeschwindigkeitsänderung unter Berücksichtigung von thermisch aktivierten Prozessen (nach [Wei98]).

3. Oberflächenwellen

3.1 Die Bewegungsgleichung

Bei der theoretischen Beschreibung von Oberflächenwellen wird der Festkörper unter Vernachlässigung der atomaren Struktur als elastisches Kontinuum betrachtet. Bezogen auf ein infinitesimales Volumenelement der Dichte ρ nimmt das zweite Newtonsche Axiom — im folgenden ist gemäß der Einsteinschen Summenkonvention stets über doppelt auftretende Indizes zu summieren — dann die Form

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j} \quad (3.1)$$

an [Far78]. Die u_i bezeichnen hierbei die Teilchenauslenkungen und die T_{ij} die Komponenten des Spannungstensors. T_{ij} gibt die i -Komponente der Kraft auf eine Fläche, deren Normale in j -Richtung zeigt, an.

Die im Festkörper auftretenden Deformationen werden durch den Verzerrungstensor

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (3.2)$$

beschrieben¹, der in linearer Näherung durch das Hookesche Gesetz mit dem Spannungstensor verknüpft ist:

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} \quad , \quad (3.3)$$

wobei die c_{ijkl} die Komponenten des Elastizitätstensors sind.

Setzt man (3.3) in (3.1) ein, erhält man die Bewegungsgleichung

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l} \quad . \quad (3.4)$$

3.2 Rayleighwellen

Führt man als Randbedingung die freie Oberfläche ein, so erhält man als Lösung der Bewegungsgleichung (3.4) elastische Wellen, die sich an der Oberfläche des Festkörpers ausbreiten.

Die Forderung nach Kräftefreiheit im oberen Halbraum führt zur Randbedingung

$$T_{3j} = 0 \quad \text{für} \quad x_3 \geq 0 \quad . \quad (3.5)$$

Weiterhin sollen die Amplituden im Substrat exponentiell abklingen, als Ansatz werden daher Linearkombinationen von Partialwellen des Typs

$$u_i = e^{ikbx_3} e^{ik(x_1 - vt)} \quad \text{mit} \quad \text{Im}(b) < 0 \quad (3.6)$$

¹ Eigentlich tritt in S_{ij} noch der Term $\frac{1}{2} \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \frac{\partial u_k}{\partial x_j}$ auf, der für kleine Auslenkungen aber vernachlässigbar ist [Lan91].

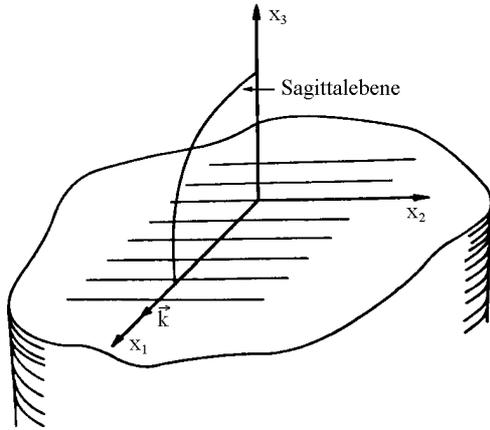


Bild 3.1: Wahl des Koordinatensystems. Die Oberflächenwelle breitet sich in x_1 -Richtung aus, durch x_1 und x_3 wird die Sagittalebene aufgespannt, die Oberfläche ist durch $x_3 = 0$ definiert (nach [Far72]).

verwendet.

Im isotropen Fall kann eine analytische Lösung angegeben werden, die zuerst von Lord Rayleigh als mögliche Form von Erdbebenwellen gefunden wurde und daher als Rayleighwelle bezeichnet wird. Für die Auslenkungen der in der Sagittalebene polarisierten Rayleighwelle erhält man

$$\begin{aligned} u_1 &= C(e^{k\beta_1 x_3} - A e^{k\beta_2 x_3}) e^{ik(x_1 - v_R t)} \\ u_2 &= 0 \\ u_3 &= -ik\beta_1 C(e^{k\beta_1 x_3} - A^{-1} e^{k\beta_2 x_3}) e^{ik(x_1 - v_R t)} \end{aligned} \quad (3.7)$$

mit $\beta_1 = \sqrt{1 - v_R^2/v_\ell^2}$, $\beta_2 = \sqrt{1 - v_R^2/v_t^2}$ und $A = \sqrt{\beta_1\beta_2}$. Hierbei sind $v_\ell = \sqrt{c_{11}/\rho}$ und $v_t = \sqrt{c_{44}/\rho}$ die longitudinale bzw. transversale Schallgeschwindigkeit von Volumenwellen², C ist ein Amplitudenfaktor, der von der Stärke der Anregung abhängt. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit v_R der Rayleighwelle ist implizit durch

$$(\beta_2^2 + 1)^2 = 4\beta_1\beta_2 \quad (3.8)$$

gegeben und stets kleiner als v_t .

Da u_1 und u_3 um $\pi/2$ phasenverschoben sind, liegt eine elliptische Polarisation vor, die Amplitude klingt innerhalb weniger Wellenlängen in das Volumen hinein ab. Das resultierende Verzerrungsbild ist in Abb. 3.2 schematisch dargestellt.

Neben den Rayleighwellen erfüllen auch in x_2 -Richtung polarisierte transversale Wellen die Randbedingung (3.5). Es handelt sich hierbei allerdings um keine richtige Oberflächenwelle; nur falls beispielsweise durch eine Beschichtung der Oberfläche die Schallgeschwindigkeit von v_t abweicht (siehe Abschnitt 3.4), wird eine unendliche Eindringtiefe der Scherwelle vermieden.

Für anisotrope Festkörper ist die Bewegungsgleichung (3.4) i.a. nur noch numerisch zu lösen. In diesem Fall hängt die Phasengeschwindigkeit von der Ausbreitungsrichtung ab, und der Poyntingvektor \mathbf{P} ist nicht notwendig parallel zum Wellenvektor \mathbf{k} wie bei Rayleighwellen. Eine Ausnahme bilden die „Reinmodenrichtungen“, die meist mit den kristallographischen Achsen zusammenfallen. Hier existieren Oberflächenwellen mit rein sagittaler oder transversaler Polarisation, für die \mathbf{P} parallel zu \mathbf{k} ist.

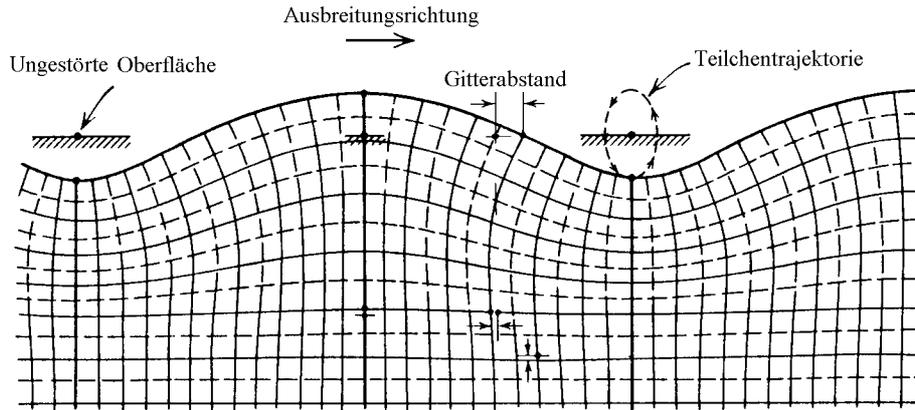


Bild 3.2: Auslenkungsprofil einer Rayleighwelle (nach [Far77]).

3.3 Piezoelektrische Substrate

Da Oberflächenwellen meist auf piezoelektrischen Materialien erzeugt werden, muß die Kopplung von mechanischen Verzerrungen und elektrischen Feldern berücksichtigt werden. Einerseits muß das Hookesche Gesetz um den inversen Piezoeffekt erweitert werden, andererseits bewirken Verzerrungen eine Ladungsverschiebung und damit ein elektrisches Feld. Dies wird beschrieben durch die Gleichungen

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} - e_{kij} E_k \quad (3.9)$$

und

$$D_i = \epsilon_{ij} E_j + e_{ijk} S_{jk} \quad (3.10)$$

mit den Komponenten des piezoelektrischen Tensors e_{ijk} , des dielektrischen Tensors ϵ_{ij} , des elektrischen Feldes E_i und der dielektrischen Verschiebung D_i .

Da man sich für elektrische Felder interessiert, die an die Schallwelle gekoppelt sind, sich also viel langsamer als Licht ausbreiten, läßt sich das elektrische Feld in quasistatischer Näherung als Gradient eines skalaren Potentials Φ ausdrücken:

$$E_i = -\frac{\partial \Phi}{\partial x_i} \quad (3.11)$$

Setzt man nun Gleichung (3.9) in (3.1) ein, leitet (3.10) nach dem Ort ab und berücksichtigt $\text{div } \mathbf{D} = 0$, so erhält man für ladungsfreie Piezoelektrika schließlich die gekoppelten Bewegungsgleichungen

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} - c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l} - e_{kij} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_j \partial x_k} = 0 \quad (3.12)$$

und

$$e_{ijk} \frac{\partial^2 u_j}{\partial x_i \partial x_k} - \epsilon_{ij} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_i \partial x_j} = 0 \quad , \quad (3.13)$$

die analytisch nicht lösbar sind.

Der Piezoeffekt bewirkt eine Vergrößerung der Schallgeschwindigkeit. Dies wird durch den Faktor K^2 beschrieben, der als

$$\frac{K^2}{2} = \frac{v_f - v_k}{v_f} \quad (3.14)$$

definiert ist. v_f und v_k sind die Schallgeschwindigkeiten einer freien bzw. kurzgeschlossenen Oberfläche.

3.4 Der Einfluß eines dünnen Films

Wird ein Film der Dicke h auf die Substratoberfläche aufgebracht, so verändert sich dadurch das Ausbreitungsverhalten von Oberflächenwellen; insbesondere tritt nun Dispersion auf, da die Verzerrungsenergie bei hohen Frequenzen stärker an der Oberfläche konzentriert ist als bei niedrigen Frequenzen und daher mehr vom Film „gesehen“ wird. Anstelle der Randbedingung (3.5) muß jetzt Stetigkeit von u_i und T_{3i} an der Grenzfläche $x_3 = 0$ und Kräftefreiheit ($T_{3i} = 0$) an der Filmoberfläche $x_3 = h$ gefordert werden.

Ist die Bedingung $kh \ll 1$ erfüllt, kann dieses Problem störungstheoretisch behandelt werden (siehe z.B. [Aul90]). Für einen isotropen Film der Dichte $\hat{\rho}$ und mit longitudinaler bzw. transversaler Schallgeschwindigkeit \hat{v}_ℓ und \hat{v}_t erhält man für die relative Änderung der Schallgeschwindigkeit in erster Näherung

$$\frac{\delta v}{v} = \frac{\omega kh \hat{\rho}}{4W} \left\{ \hat{v}_t^2 \left[4 \left(1 - \frac{\hat{v}_t^2}{\hat{v}_\ell^2} \right) u_1^2 + u_2^2 \right] - v^2 (u_1^2 + u_2^2 + u_3^2) \right\} \quad (3.15)$$

W ist hierbei der Energiefluß pro Einheitslänge senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Der erste Term in der geschweiften Klammer beschreibt den Einfluß der elastischen Konstanten des Films, der zweite die Massenbelegung des Substrats durch den Film. Für „weiche“ Filme mit $\hat{v}_t < v$ dominiert der Masseneffekt, so daß während des Aufdampfens der Adsorbate eine Erniedrigung der Schallgeschwindigkeit beobachtet wird. Für Rayleighwellen ($u_2 = 0$) und für Scherwellen ($u_1 = u_3 = 0$) läßt sich Gleichung (3.15) vereinfachen und nach der Schichtdicke h auflösen. Mit $\delta v/v = \delta f/f$ (siehe Kap. 4.1) ergibt sich für

- Rayleighwellen

$$h = \frac{\delta f}{f^2} \left\{ A_R v_R \hat{\rho} \left[\frac{\hat{v}_t^2}{v_R^2} B_R \left(1 - \frac{\hat{v}_t^2}{\hat{v}_\ell^2} \right) - 1 \right] \right\}^{-1} \quad (3.16)$$

mit $A_R = \pi/2 \cdot (\omega u_3^2/W + \omega u_1^2/W)$ und $B_R = \pi/(2A_R) \cdot \omega u_1^2/W$ und für

- Scherwellen

$$h = \frac{\delta f}{f^2} \left\{ A_S v_S \hat{\rho} \left[\frac{\hat{v}_t^2}{v_S^2} - 1 \right] \right\}^{-1} \quad (3.17)$$

mit $A_S = \pi/2 \cdot \omega u_2^2/W$.

Für isotrope Substrate existieren analytische Ausdrücke für $\omega u_i^2/W$, für anisotrope sind die Werte für viele Materialien und Kristallschnitte tabelliert [Aul90]³.

3 In [Aul90] wird ein anderes Koordinatensystem verwendet. Es gilt $u_x^2 = u_2^2$, $u_y^2 = u_3^2$ und $u_z^2 = u_1^2$ mit den dort verwendeten Indizes x, y, z .

Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Messungen war die Bedingung $kh \ll 1$ für die Grundfrequenz des Oberflächenwellenbauteils von 95 MHz immer erfüllt, so daß Gleichung (3.16) zur Bestimmung der Filmdicke verwendet werden konnte. Um auf diese Weise zuverlässige Werte für h zu erhalten, ist die Kenntnis der Dichte und der elastischen Konstanten des Films nötig. Da bei einer abschreckenden Kondensation sehr „flockige“ Schichten entstehen, können hierfür keine Werte von Volumenkristallen verwendet werden, so daß die tatsächlichen Werte in einem Selbstkonsistenzverfahren durch Vergleich der gemessenen Schallgeschwindigkeitsänderungen mit den Ergebnissen einer numerischen Berechnung bestimmt wurden (siehe Kap. 4.5).

3.5 Skalierung der Oberflächenwellen-Daten

Um Messungen an verschiedenen Filmen oder bei unterschiedlichen Frequenzen vergleichen zu können, muß berücksichtigt werden, daß sich ein großer Teil des Verzerrungsfeldes im Substrat und nicht im zu untersuchenden Film befindet und die Intensitätsverteilung dort außerdem nicht homogen und stark frequenzabhängig ist (Abb. 3.3).

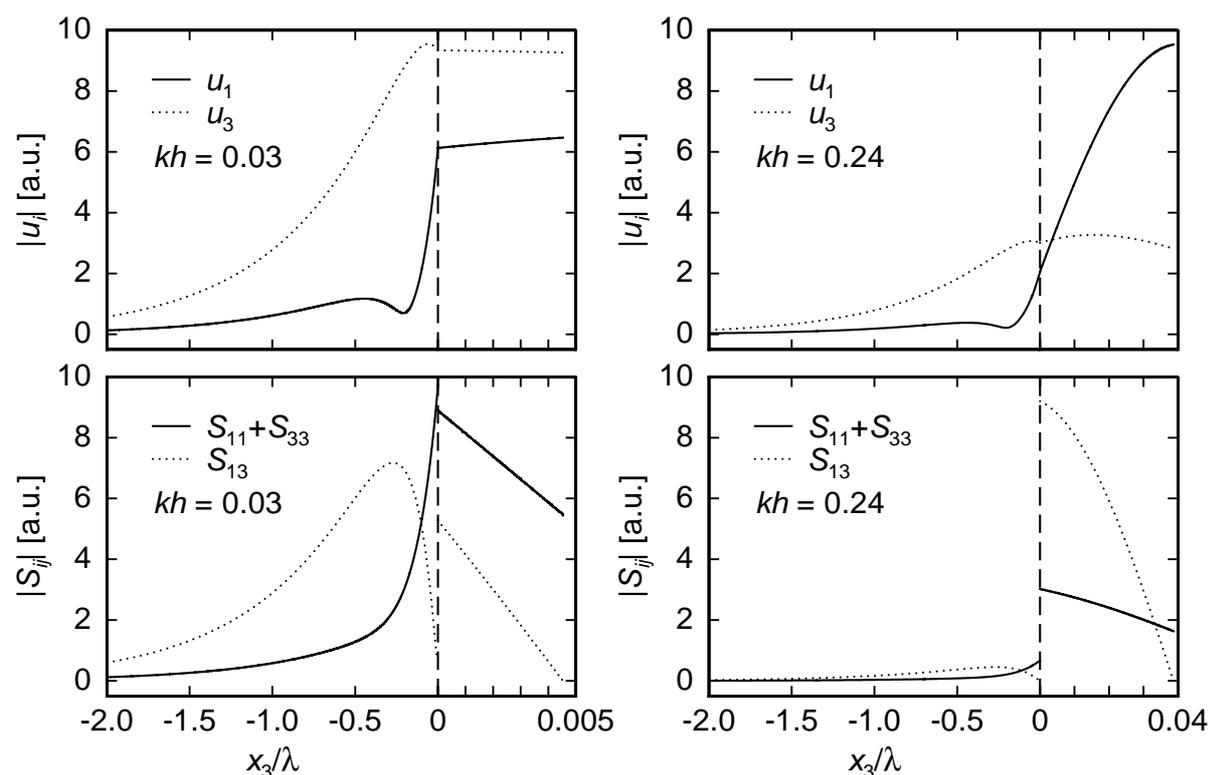


Bild 3.3: Auslenkungs- (obere Teilbilder) und Verzerrungsprofil (untere Teilbilder) einer Rayleighwelle auf einem mit Argon beschichteten LiTaO_3 -Substrat für zwei verschiedene Werte von kh . Negative x_3 liegen im Substrat, positive im Film.

Die elastische Energie pro Volumeneinheit einer Verzerrungswelle setzt sich folgendermaßen aus einem kinetischen und einem potentiellen Anteil zusammen:

$$E = \frac{1}{2} \rho \sum_{i=1}^3 |\dot{u}_i|^2 + \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^3 S_i c_{ij} S_j^* \quad (3.18)$$

Die S_i bezeichnen hierbei die verkürzte Schreibweise des Verzerrungstensors S_{ij} mit einem Index. Die für eine Rayleighwelle relevanten Komponenten sind $S_1 = S_{11}$, $S_3 = S_{33}$ und $S_5 = 2S_{13}$, alle anderen S_i verschwinden hier.

Zur Skalierung von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ muß nun das Verhältnis der Energie im Film zur gesamten Energie berechnet werden. Da Schallwellen über die Verzerrung an Tunnelsysteme koppeln (siehe Abschnitt 2.3.2), ist hierbei nur die potentielle Energie zu berücksichtigen, die sich für Rayleigh-artige Wellen ($|u_2| \ll |u_1|, |u_3|$) zu

$$E_{\text{pot}} = \frac{1}{2} [c_{11} |S_1|^2 + c_{33} |S_3|^2 + c_{55} |S_5|^2 + c_{13} (S_1 S_3^* + S_3 S_1^*) + c_{15} (S_1 S_5^* + S_5 S_1^*) + c_{35} (S_3 S_5^* + S_5 S_3^*)] \quad (3.19)$$

ergibt. Für einen isotropen Film läßt sich dieser Ausdruck noch weiter vereinfachen und in einen longitudinalen

$$E_{\text{pot}}^{\text{long}} = \frac{1}{2} [c_{11} (|S_1|^2 + |S_3|^2) + c_{12} (S_1 S_3^* + S_3 S_1^*)] \quad (3.20)$$

und einen transversalen Anteil

$$E_{\text{pot}}^{\text{trans}} = \frac{1}{2} c_{44} |S_5|^2 \quad (3.21)$$

aufspalten. Für die entsprechenden Korrekturfaktoren erhält man damit

$$K_{\text{long}} = \frac{\int_0^h E_{\text{pot}}^{\text{long}} dz}{\int_{-\infty}^h E_{\text{pot}} dz} \quad (3.22)$$

und

$$K_{\text{trans}} = \frac{\int_0^h E_{\text{pot}}^{\text{trans}} dz}{\int_{-\infty}^h E_{\text{pot}} dz} \quad (3.23)$$

Unter der vereinfachenden Annahme, daß longitudinale Verzerrungen etwa doppelt so stark an Tunnelsysteme koppeln wie transversale⁴, lassen sich die Oberflächenwellen-Daten mit dem Korrekturfaktor

$$K = K_{\text{long}} + \frac{1}{2} K_{\text{trans}} \quad (3.24)$$

auf Volumenwellen-Daten umrechnen. Die auf diese Weise berechneten Faktoren sind in Abb. 3.4 für Argon und Neon auf einem LiTaO₃-Substrat dargestellt.

Im Grenzfall $kh \ll 1$ ergibt sich für den Korrekturfaktor $K \propto kh$, was anschaulich auch klar ist, da Oberflächenwellen eine Eindringtiefe $d \propto \lambda$ besitzen, so daß die Sensitivität auf „Oberflächeneffekte“ proportional zu $k = 2\pi/\lambda$ ansteigen sollte. Weiterhin ist in diesem Bereich $K_{\text{trans}} \ll K_{\text{long}}$; auch dies ist plausibel, da bei einer Rayleighwelle im Grenzfall eines aus nur einer Monolage bestehenden Filmes keine transversalen Verzerrungen möglich sind.

Für sehr große Frequenzen bzw. Schichtdicken gilt $K \simeq 1$, die Verzerrungsenergie der Oberflächenwelle ist dann praktisch vollständig im Film konzentriert. Zur Untersuchung der Eigenschaften des Filmes sind also nicht zu kleine Werte von kh erforderlich. Allerdings ist hierbei zu berücksichtigen, daß bei zu großen kh eine starke Reduktion der Rayleighgeschwindigkeit und eine beträchtliche Dispersion auftritt, so daß die hier angewandte Meßmethode (siehe Kap. 4.1) versagen würde.

4 Theoretische Überlegungen ergeben für γ_1/γ_t , je nach mikroskopischer Natur der Tunnelsysteme Werte zwischen 4/3 und 3 [Heu97].

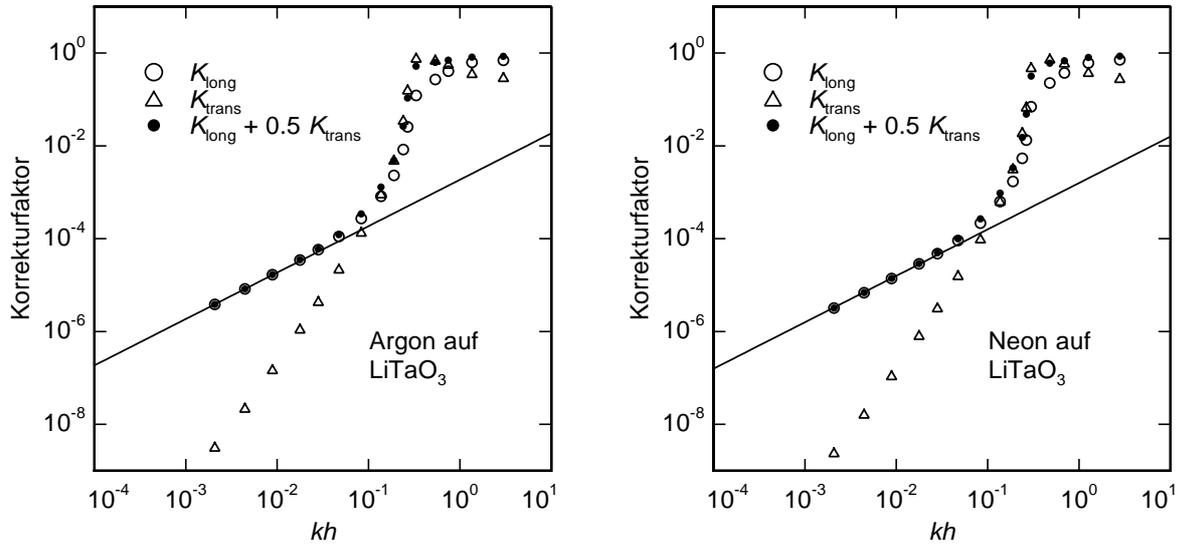


Bild 3.4: Nach Gleichung (3.22) bzw. (3.23) berechnete Korrekturfaktoren K_{ℓ} und K_t für einen Argon-Film (links) und einen Neon-Film (rechts) der Dicke h auf einem LiTaO₃-Substrat. Die durchgezogene Linie ist jeweils eine Gerade der Steigung eins.

3.6 Erzeugung von Oberflächenwellen

Die in dieser Arbeit verwendeten Oberflächenwellen wurden mit Hilfe von Interdigitaltransducern (IDTs) auf einem piezoelektrischen Substrat erzeugt und detektiert. Ein solcher IDT besteht im einfachsten Fall aus zwei ineinandergreifenden metallischen „Kämmen“, die in einem mehrstufigen Strukturierungsprozeß auf das Substrat aufgebracht werden können. Wird am Sende-IDT eine hochfrequente elektrische Spannung angelegt, so wird über den piezoelektrischen Effekt eine mechanische Verzerrung im Substrat erzeugt. Damit die auf diese Weise an jedem Fingerpaar entstehenden Partialwellen konstruktiv interferieren können, muß die Bedingung $\lambda = 2a$ erfüllt sein, wenn $\lambda = v/f$ die Wellenlänge der sich mit der Geschwindigkeit v ausbreitenden akustischen Welle und $2a$ der Abstand zwischen den Fingern gleicher Polarität ist. Die Polarisation der Oberflächenwelle ist von der Wahl des Kristallschnitts des Substrats abhängig. Am Empfangs-IDT läßt sich die Schallwelle wieder in ein elektrisches Signal wandeln.

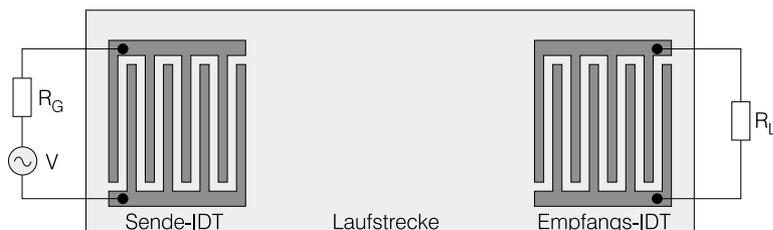


Bild 3.5: Schematische Darstellung eines Oberflächenwellenbauteils mit angedeuteter äußerer Beschaltung.

Außer der Grundmode lassen sich mit solchen Oberflächenwellenbauteilen u.U. auch höhere Moden anregen. Um das Abstrahlverhalten eines IDTs genauer zu untersuchen,

führt man eine Antwortfunktion ein, die sich als Produkt eines Elementfaktors $E(\omega)$, der das Abstrahlverhalten der einzelnen Fingerpaare beschreibt, und eines Feldfaktors $F(\omega)$, der auf der Gruppierung aller Fingerpaare zum gesamten IDT beruht, ergibt [Mil77].

Im sogenannten δ -Funktions-Modell beschreibt man die Ladungsverteilung des IDT durch δ -Funktionen in den Fingermitten. Mit dieser stark vereinfachenden Annahme findet man für einen Transducer mit N Fingerpaaren für den Feldfaktor den Ausdruck

$$F(\omega) \propto \left| \frac{\sin\left(\frac{(N+1)\pi\omega}{\omega_0}\right)}{\sin\left(\frac{\pi\omega}{\omega_0}\right)} \right|^2, \quad (3.25)$$

wobei $\omega_0 = \pi v/a$ die Frequenz der Grundmode ist, und für den Elementfaktor

$$E(\omega) \propto \left| \sin\left(\frac{\pi\omega}{2\omega_0}\right) \right|^2. \quad (3.26)$$

In Abb. 3.6 ist die Antwortfunktion eines Transducers nach dem δ -Funktions-Modell dargestellt.

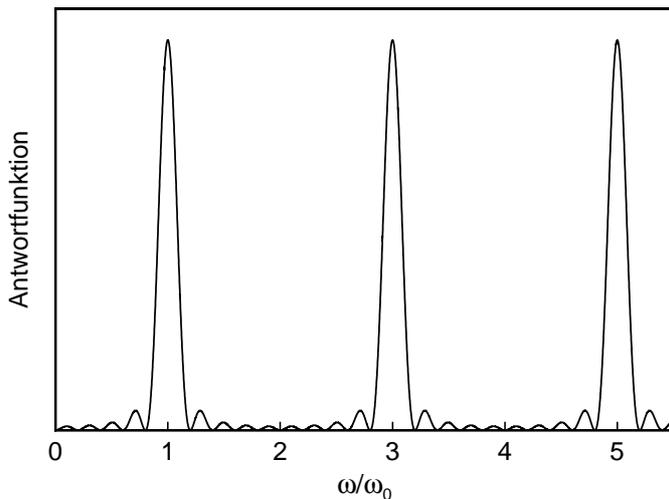


Bild 3.6: Produkt aus Element- und Feldfaktor nach dem δ -Funktions-Modell für einen IDT mit vier Fingerpaaren.

Der Elementfaktor bewirkt, daß sich nur die ungeradzahligen Vielfachen der Grundmode anregen lassen. In der Praxis beobachtet man jedoch, daß sich bei Transducern, bei denen Breite und Abstand der Finger identisch sind, auch alle Vielfachen von $3\omega_0$ nicht anregen lassen. Dieses Verhalten läßt sich verstehen, wenn man berücksichtigt, daß die Ladungsverteilung auf jedem einzelnen Finger zur Mitte und zu den Rändern hin abfällt. Ein Modell mit zwei δ -Funktionen pro Finger führt daher zu einer wesentlich besseren Beschreibung der Abstrahlcharakteristik eines Transducers.

Um eine möglichst geringe Einfügungsdämpfung des Bauteils zu erreichen, ist es wichtig, dessen Impedanz möglichst gut an den Wellenwiderstand von $50\ \Omega$ der äußeren elektronischen Beschaltung anzupassen, da Impedanzsprünge Anlaß zu Reflexionen des HF-Signals geben. Die Impedanz eines solchen Transducers ist vor allem durch seine Kapazität bestimmt, so daß ihr Wert durch Variation der Anzahl der Fingerpaare und des Überlapps

der beiden Kämmen angepaßt werden kann. Allerdings ist eine solche Impedanzanpassung natürlich nicht für alle verwendeten Meßfrequenzen gleichzeitig möglich, es muß vielmehr ein geeigneter Kompromiß gefunden werden.

In der vorliegenden Arbeit war es wichtig, möglichst viele verschiedene Frequenzen anregen zu können, da die Eindringtiefe d von Oberflächenwellen mit der Frequenz skaliert: $d \simeq \lambda \propto f^{-1}$. Je höher die Frequenz ist, desto größer ist also die Sensitivität auf Effekte, die von aufgedampften Filmen hervorgerufen werden (siehe auch Abb. 3.4). Aus der Frequenzabhängigkeit der Meßgrößen läßt sich also schließen, ob eine Eigenschaft des Films oder des Substrats gemessen wurde. Die Anregung der höheren Moden ist bei einem Bauteil mit einer Doppelfingerstruktur (*split finger device*), bei dem die elektrische Polung erst bei jedem dritten Finger wechselt, besonders effektiv [Smi81]. Ein weiterer Vorteil dieser Bauweise liegt in der Unterdrückung des sogenannten „triple transit echo“, das auf der zweimaligen Reflexion des Signals am Empfangs- bzw. Sende-IDT beruht.

3.7 Die verwendeten Oberflächenwellenbauteile

Die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurden mit zwei verschiedenen Substraten durchgeführt.

Zunächst wurde Lithiumtantalat im (36° rot YX)-Schnitt als Substratmaterial gewählt. Hier können sich in Richtung der kristallographischen X-Achse Scherwellen ausbreiten sowie in der dazu orthogonalen Richtung Rayleighwellen. Daher wurden zwei Paare von Doppelfinger-IDTs mit einer Grundfrequenz von jeweils 95 MHz verwendet, um diese beiden Wellentypen anregen zu können. Die Design-Parameter für diese beiden Oberflächenwellenbauteile sind in den Tabellen 3.1 und 3.2 zusammengefaßt.

Substrat	LiTaO ₃
Doppelfingerpaare	30
Periode	$2a = 32 \mu\text{m}$
Fingerüberlapp	1.1 mm
Fingermaterial	Gold
Metallisierung	$\eta \approx 85\%$
Laufstecke	1 cm
v_s bei 300 K	3946 m/s

Tab. 3.1: Scherwellen-Bauteil

Substrat	LiTaO ₃
Doppelfingerpaare	30
Periode	$2a = 44 \mu\text{m}$
Fingerüberlapp	1.1 mm
Fingermaterial	Gold
Metallisierung	$\eta \approx 85\%$
Laufstecke	0.812 cm
v_R bei 300 K	3148 m/s

Tab. 3.2: Rayleighwellen-Bauteil I

Neben der Grundfrequenz konnte jeweils auch die dritte, fünfte und siebte Harmonische angeregt werden. Die Einfügungsdämpfungen betragen dabei ungefähr 36 dB, 44 dB, 60 dB und 75 dB für das Rayleighwellen-Bauteil bzw. 22 dB, 36 dB, 64 dB und 72 dB für das Scherwellen-Bauteil. Auf die Scherwellen soll im folgenden allerdings nicht weiter eingegangen werden.

Das Substratmaterial zeigt eine recht starke Temperaturabhängigkeit in den beiden Meßgrößen $\delta\alpha$ und $\delta v/v$, insbesondere tritt ein Maximum in der Schallgeschwindigkeit bei etwa 6.5 K auf (Abb. 3.7). Bei der Auswertung der Daten muß dieser Untergrund von den Meßwerten abgezogen werden.

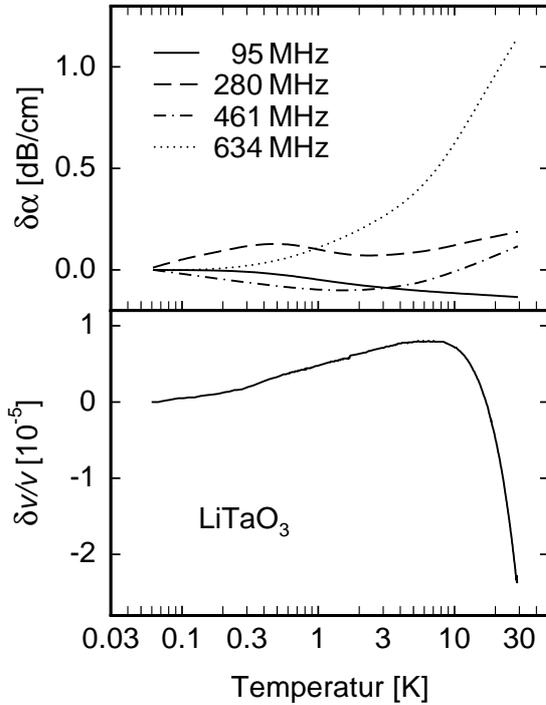


Bild 3.7: Temperaturabhängigkeit der Dämpfung und relativen Schallgeschwindigkeitsänderung von Rayleighwellen für ein LiTaO_3 -Oberflächenwellenbauteil. Die Schallgeschwindigkeit zeigt im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Frequenzabhängigkeit.

Ein weiteres Oberflächenwellenbauteil zur Erzeugung von Rayleighwellen wurde auf ein Lithiumniobat-Substrat im YZ-Schnitt aufgebracht. Hier war auch die Anregung der neunten und elften Harmonischen möglich. Die Design-Parameter dieses Bauteils sind in Tab. 3.3 aufgelistet.

Substrat	LiNbO_3
Doppelfingerpaare	30
Periode	$2a = 38.8 \mu\text{m}$
Fingerüberlapp	0.75 mm
Fingermaterial	Gold
Metallisierung	$\eta \approx 85\%$
Laufstecke	0.75 cm
v_R bei 300 K	3488 m/s

Tab. 3.3: Rayleighwellen-Bauteil II

4. Experimentelles

4.1 Elektronik und Meßprinzip

Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden mit einer phasensensitiven Meßmethode durchgeführt, mit der sowohl die relative Schallgeschwindigkeitsänderung als auch die Dämpfung der Oberflächenwellen bestimmt werden können. Der Meßaufbau ist in Abb. 4.1 schematisch dargestellt.

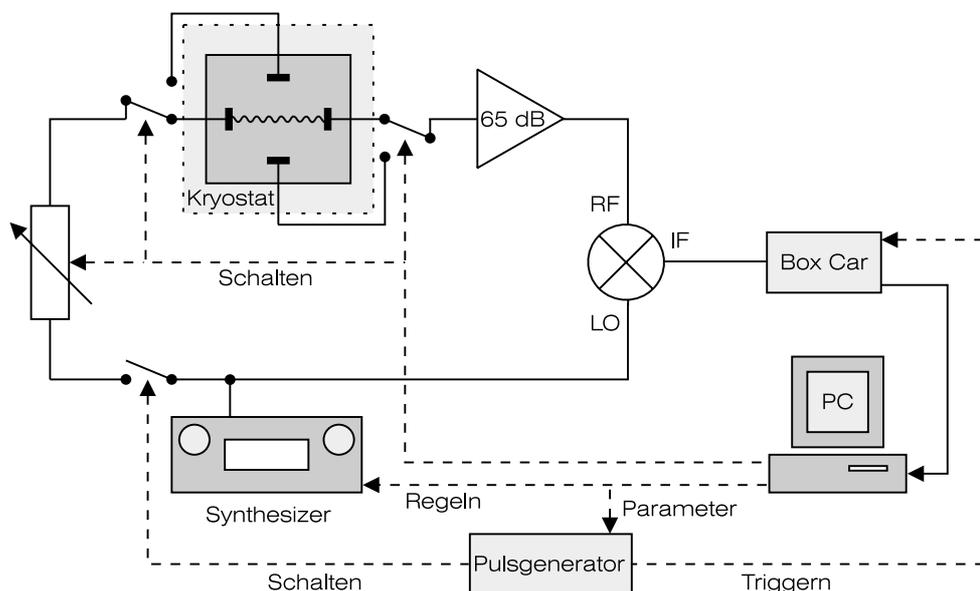


Bild 4.1: Blockschaltbild der verwendeten Meßelektronik. Der Mischer hat die zwei Eingänge LO (local oscillator) und RF (radio frequency) sowie den Ausgang IF (intermediate frequency).

Das hochfrequente CW-Signal eines Synthesizers (Leistung ca. 10 dBm) wird geteilt und zur Hälfte auf den LO-Eingang eines Mixers gegeben. Aus der anderen Hälfte werden mit Hilfe eines durch einen Pulsgenerator getakteten HF-Schalters Pulse von ungefähr $2 \mu\text{s}$ Dauer erzeugt. Die Wiederholraten betragen hierbei wenige Hz bis hin zu mehreren kHz. Nach einer Reduktion der Leistung um 0 – 40 dB zur Anpassung an die frequenzabhängige Einfügungsdämpfung werden die Pulse auf den Sende-IDT des Oberflächenwellenbauteils gegeben. Mit zwei Umschaltern läßt sich hierbei die gewünschte Laufstrecke auswählen. Das am Empfangs-IDT detektierte Signal wird nach einer Verstärkung um 65 dB zum RF-Eingang des Mixers geführt. Am IF-Ausgang läßt sich dort aufgrund der identischen Frequenz der gemischten Signale eine Gleichspannung abgreifen, die proportional zur Amplitude und zum Kosinus der Phasendifferenz der beiden Eingangssignale ist. Mit Hilfe eines Box-Car-Integrators wird ein Zeitfenster auf den am Empfangstransducer detektierten Puls gesetzt; das integrierte Signal wird schließlich von einem PC eingelesen.

In Abb. 4.2 ist schematisch die Gleichspannung am Ausgang des Mischers in Abhängigkeit von der Meßfrequenz dargestellt. Zur Messung der Schallgeschwindigkeit wird die Frequenz des Synthesizers vom PC gerade so geregelt, daß $\cos(\varphi)$ möglichst konstant bei Null bleibt (f_0 in Abb. 4.2). Die Gesamtphase ist hierbei durch

$$\varphi = 2\pi f \tau_{\text{Of}} + \varphi_{\text{El}} \quad (4.1)$$

gegeben, wobei τ_{Of} die Laufzeit der Oberflächenwelle ist und φ_{El} eine Zusatzphase aufgrund der äußeren Beschaltung darstellt. Für eine konstante Phasendifferenz ($d\varphi = 0$) folgt daraus unter der Voraussetzung $\varphi_{\text{El}} = \text{const.}$

$$\frac{df}{f} = \frac{dv}{v} \quad (4.2)$$

mit der Ausbreitungsgeschwindigkeit $v = \ell_{\text{Of}}/\tau_{\text{Of}}$ der Oberflächenwelle.

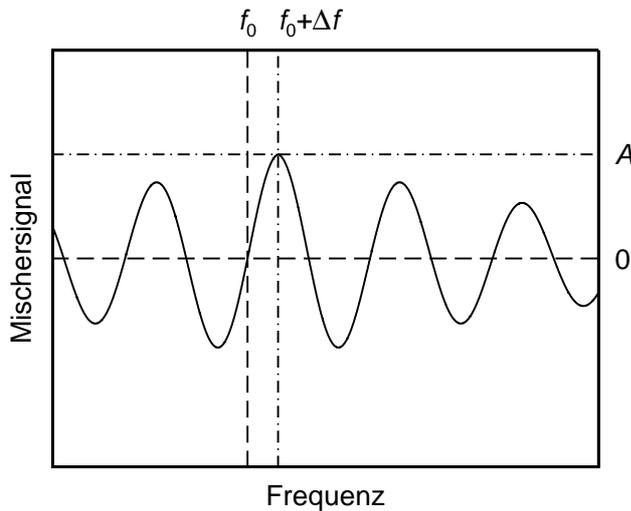


Bild 4.2: Gleichspannungssignal am Mischerausgang in Abhängigkeit von der Frequenz. f_0 ist die Frequenz, auf die zur Schallgeschwindigkeitsmessung geregelt wird. Zur Bestimmung der Amplitude A wird f_0 um Δf erhöht.

Nach der Bestimmung von $\delta v/v$ wird die Frequenz so erhöht, daß die Bedingung $\cos(\varphi) = 1$ erfüllt ist („ $\pi/2$ -Sprung“ nach $f_0 + \Delta f$). Die nötige Frequenzerhöhung ist hierbei durch

$$\Delta f = \frac{1}{4} \frac{f_0}{n_\lambda} \quad (4.3)$$

gegeben, wobei $n_\lambda = \ell_{\text{Of}}/\lambda$ die „Zahl der Wellenlängen“ zwischen Sende- und Empfangstransducer ist; es gilt also $\Delta f = (4\tau_{\text{Of}})^{-1}$, so daß Δf bei geringer Dispersion nahezu frequenzunabhängig ist. Das Mischersignal ist dann direkt proportional zur Amplitude der Oberflächenwelle. Änderungen dieser Amplitude können in die Dämpfungsänderung $\delta\alpha$ umgerechnet werden.

Aufgrund der digitalen Regelung lassen sich mit dieser Meßmethode problemlos Schallgeschwindigkeit und Dämpfung für mehrere Frequenzen und verschiedene Oberflächenwellenlaufstrecken praktisch gleichzeitig messen. Die Anzahl der möglichen Messungen ist im Prinzip nur durch die Pulswiederholrate limitiert; ist diese sehr klein, dann dauert jede

einzelne Messung so lange, daß nicht mehr von gleichzeitiger Messung gesprochen werden kann und vor allem schnelle Änderungen der Meßsignale nicht mehr verfolgt werden können.

4.2 Der Kryostat

Das Oberflächenwellenbauteil wird mit Hilfe eines vergoldeten Probenhalters aus Kupfer an der Mischkammer eines $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten angebracht (siehe Abb. 4.3). Mit einer sehr dünnen Schicht Vakuumfett wird ein fächiger thermischer Kontakt sichergestellt, so daß die Probentemperatur durch die Mischkammertemperatur gegeben ist (siehe hierzu auch Abschnitt 4.3). Die Temperaturmessung erfolgte über Widerstandsthermometer mit der Vierdrahtmethode. Hierzu wurde bei Temperaturen unterhalb von 3 K ein Kohlethermometer, bei höheren Temperaturen ein Rhodium-Eisen-Widerstandsthermometer verwendet. Die kleinste zur Verfügung stehende Spannung zur Messung der Widerstandswerte betrug $200\ \mu\text{V}$. Bei sehr tiefen Temperaturen führte dies zu einer Selbstheizung der Thermometer, deren Temperatur dann nicht mehr der Mischkammertemperatur entsprach. Außerdem verursachten noch nicht endgültig gelöste Erdungs- und Filterprobleme in diesem Temperaturbereich eine beträchtliche Meßungenauigkeit; bei höheren Temperaturen sollten die Fehler bei der Temperaturbestimmung allerdings maximal einige Prozent betragen.

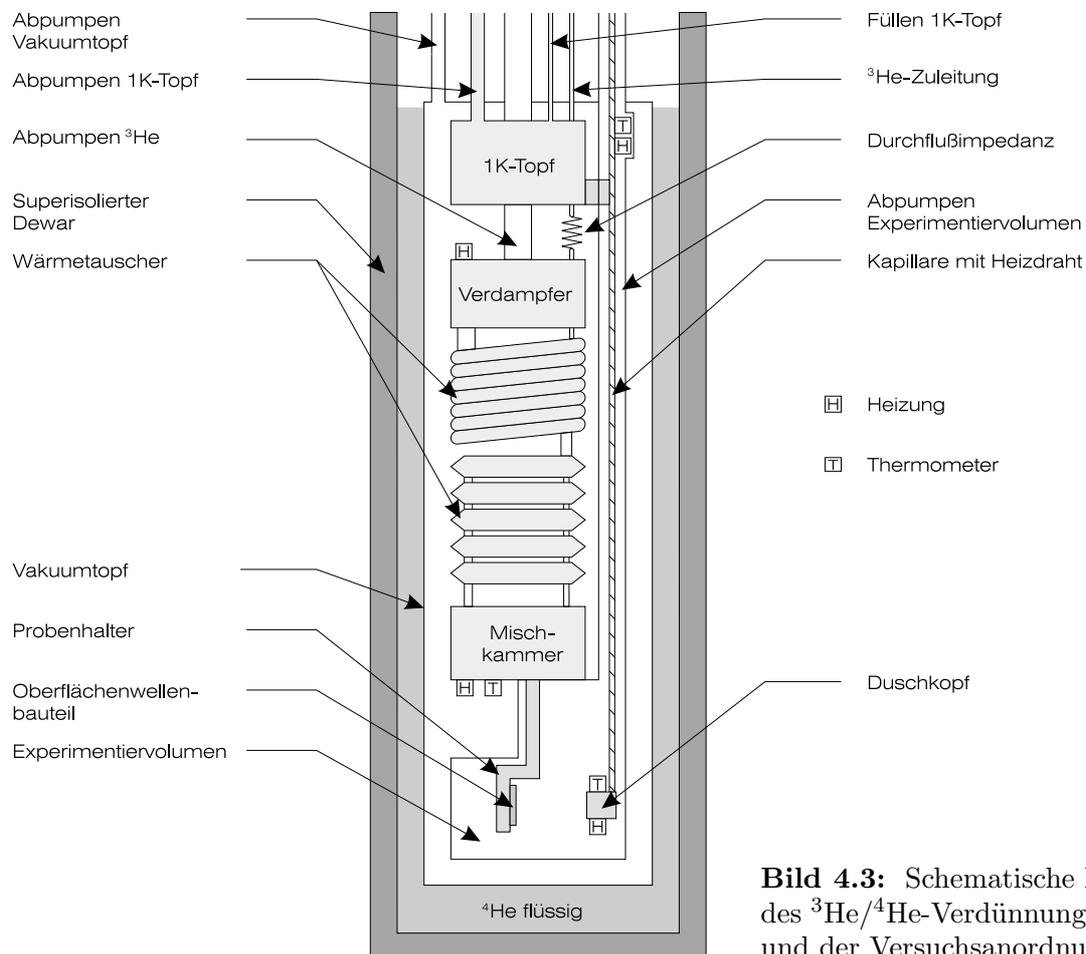


Bild 4.3: Schematische Darstellung des $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten und der Versuchsanordnung.

Messungen mit einem ^{60}Co -Kernorientierungsthermometer zeigten, daß Mischkammer-temperaturen bis zu etwa 20 mK erreicht wurden. Zur Temperaturregelung wurde ein 200 Ω -Heizwiderstand verwendet, der ebenfalls an der Mischkammer angebracht war. Die Regelung erfolgte über einen in die Widerstandsmeßbrücke integrierten PID-Regler, mit dem bei tiefen Temperaturen eine Temperaturstabilität deutlich besser als 1 mK erzielt werden konnte.

4.3 Meßgenauigkeit

Bei den Messungen stellte sich die Einhaltung der Bedingung $\varphi_{\text{El}} = \text{const.}$ als ziemlich problematisch heraus. Raumtemperaturschwankungen von 0.5 K führten zu einer Frequenzänderung von ca. 10 kHz und einer scheinbaren Dämpfungsänderung von etwa 1 dB/cm. Hierfür verantwortlich waren durch die elektronischen Geräte und Koaxialkabel verursachte temperaturbedingte Phasenverschiebungen; insbesondere der Box-Car-Integrator stellte sich als sehr temperaturempfindlich heraus. Daher wurden alle elektronischen Bauteile auf einer temperaturstabilisierten Metallplatte angebracht und mit einer Plexiglashaube gegen Konvektion im Labor geschützt. Auf diese Weise konnte die Temperatur der Meßelektronik auf etwa ± 0.1 K konstant gehalten und Raumtemperatureinflüsse auf die Messung deutlich reduziert werden. Dadurch wurde schließlich eine Genauigkeit von $\Delta f \simeq 100$ Hz und $\Delta\alpha \simeq 0.01$ dB/cm erreicht. Größere Raumtemperaturänderungen, beispielsweise am Abend nach Verlassen des Labors oder durch direkte Sonneneinstrahlung, führten allerdings zu Drifteffekten von einigen 100 Hz bzw. 0.1 dB/cm. In Abb. 4.4 ist eine typische Driftmessung dargestellt.

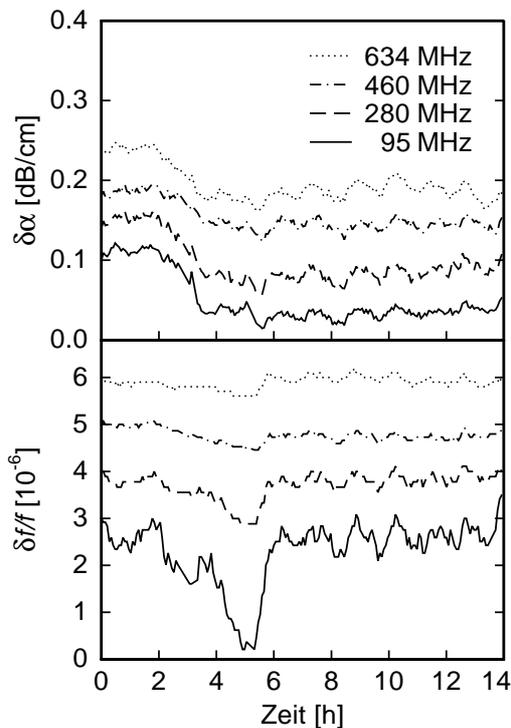


Bild 4.4: Stabilitätsmessung von Frequenz und Dämpfung bei einer Proben­temperatur von 8.5 K. Zur besseren Übersicht sind die Kurven vertikal gegeneinander verschoben. Die Oszillationen ab $t \simeq 6$ h beruhen auf einem Regelzyklus der Klimaanlage im Labor, der zu periodischen Raumtemperaturschwankungen von $\Delta T \simeq 0.5$ K führt.

4.4 Der Einfluß der Ultraschallintensität

Da es nicht möglich war, die Temperatur direkt auf dem Substrat zu bestimmen, war es wichtig zu überprüfen, inwiefern diese Temperatur mit der an der Mischkammer gemessenen übereinstimmt. Hierzu wurde ein Argonfilm auf das Oberflächenwellenbauteil aufgedampft und die Abhängigkeit des Temperaturverlaufs der Schallgeschwindigkeit von der Ultraschalleistung untersucht. Die Leistung der gepulsten Schallwelle ist bei konstanter Pulsdauer von der Leistung P_{Puls} eines Einzelpulses und der Pulswiederholrate τ_{Puls}^{-1} abhängig.

In Abb. 4.5 ist die gemessene Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ für zwei verschiedene Repetitionsraten dargestellt. Bei der Kurve mit einer hohen Wiederholrate von 200 Hz ist ein deutliches Abflachen unterhalb von etwa 150 mK zu erkennen, das bei 3 Hz wesentlich schwächer ausgeprägt ist. Dies zeigt, daß hohe Repetitionsraten eine nicht zu vernachlässigende Heizleistung im Substrat bewirken; die an der Mischkammer gemessene Temperatur stimmt dann nicht mit der Proben­temperatur überein.

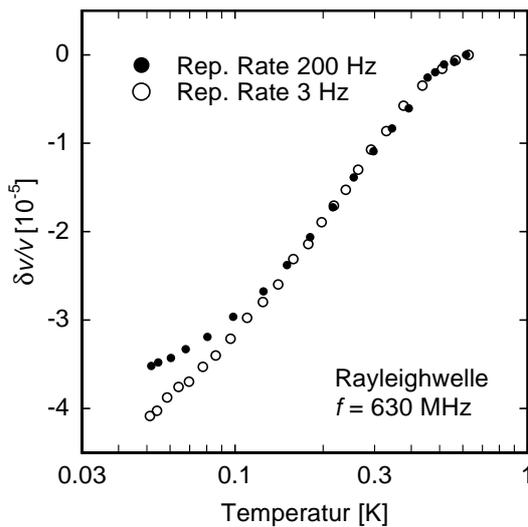


Bild 4.5: Temperaturverlauf von $\delta v/v$ für einen 150 nm dicken Argonfilm in Abhängigkeit von der Pulswiederholrate ...

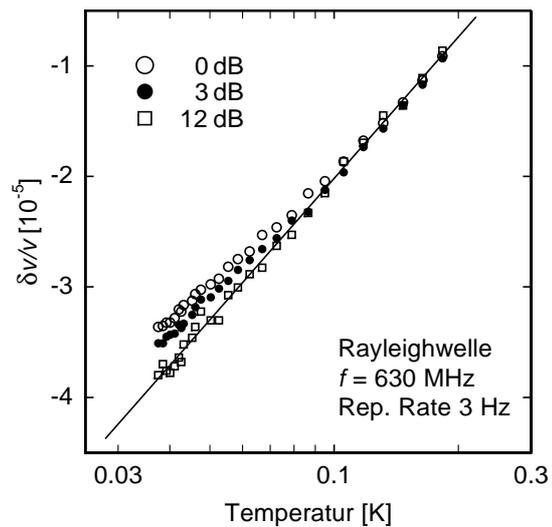


Bild 4.6: ... und der Leistung eines Einzelpulses. Die angegebenen Werte bezeichnen die jeweils gewählte Dämpfung des HF-Signals vor der Einkopplung in den IDT.

Weiterhin mußte überprüft werden, inwieweit die Energie eines einzelnen Pulses ausreicht, auch bei beliebig kleiner Repetitionsrate die Proben­temperatur zu beeinflussen. Hierzu wurden bei einer niedrigen Pulsrate von 3 Hz Messungen bei verschiedenen Pulsleistungen, die durch ein Dämpfungsglied unmittelbar vor dem Oberflächenwellenbauteil bestimmt waren, durchgeführt (Abb. 4.6). Auch hier erkennt man einen Einfluß der Leistung. Bei der mit einer Dämpfung von 12 dB durchgeführten Messung ist das Abflachen der $\delta v/v$ -Kurve bei tiefen Temperaturen nicht mehr zu beobachten. Es liegt ein logarithmisches Temperaturverhalten vor, wie man es für einen Film mit breiter Energieverteilung von Tunnelsystemen erwartet, wenn die Schallgeschwindigkeit durch resonante Wechsel-

wirkung von Phononen mit Tunnelsystemen bestimmt ist (siehe Kap. 2.3). Man erkennt aber auch, daß die Meßgenauigkeit hier aufgrund der geringen Signalamplitude deutlich reduziert ist.

Aus diesen Messungen folgt, daß bei tiefen Temperaturen mit niedrigen Repetitionsraten und geringer Pulsleistung gearbeitet werden muß. Dies bewirkt jedoch eine erhebliche Verlängerung der Meßdauer, da für eine effektive Rauschunterdrückung eine Mittelung des Signals mit dem Box-Car-Integrator über etwa 10 – 100 Pulse nötig ist. Bei einer Wiederholrate von 3 Hz bedeutet dies eine Dauer von ca. 10 s für jede einzelne Messung, ein vollständiger Meßzyklus mit mehreren Moden kann über eine Minute dauern. Es ist daher sinnvoll, die Pulsrate oberhalb von 500 mK auf etwa 200 – 500 Hz zu erhöhen.

4.5 Das Aufdampfen der Filme

Zum Aufdampfen der Edelgasfilme werden zwei dünne Edelstahlröhrchen verwendet, die durch das Pumprohr des Experimentierolumens geführt sind und an deren Enden jeweils ein kupferner Hohlzylinder als „Duschkopf“ angebracht ist. Um einen möglichst gleichmäßigen Film zu erhalten, befinden sich die Duschen einige Zentimeter vor dem Oberflächenwellenbauteil und sind von einem feinmaschigen Metallgitter bedeckt. Zur Präparation eines Filmes ist jeweils nur eine Dusche nötig, eine zweite ist aber sinnvoll, um z.B. den Einfluß der geometrischen Anordnung des Aufdampfsystems untersuchen zu können. Die weitere Beschreibung wird daher auf nur eine Dusche beschränkt sein.

Für einen konstanten Gasstrom muß die verwendete Kapillare an jeder Stelle eine deutlich höhere Temperatur als die Sublimationstemperatur des entsprechenden Gases aufweisen (bei Ne 7.5 K, bei Ar 25 K). Hierzu wurde zunächst ein Heizdraht um die gesamte Kapillare gewickelt. Da eine schwache thermische Ankopplung am 1 K-Topf besteht, um das Abkühlen der Kapillare zu ermöglichen, befindet sich dort eine weitere Heizung, um ein Ausfrieren der Gase an dieser Stelle zu vermeiden. Zusätzlich ist noch ein Heizelement am Duschkopf vorhanden, das benötigt wird, um vor Beginn des eigentlichen Aufdampfprozesses die Dusche von ausgefrorenen Gasresten zu befreien. Dies ist insbesondere dann wichtig, falls zuvor bereits Filme mit einer anderen Gassorte hergestellt wurden. Zur Temperaturkontrolle befinden sich Ruthenoxid-Thermometer neben den Heizungen auf Höhe des 1 K-Topfes und der Dusche.

Zur Vorbereitung des Aufdampfprozesses wird zunächst die Kapillare auf „Betriebstemperatur“ gebracht. Vorversuche zeigten, daß die Kapillare auf ihrer gesamten Länge für Argon durchlässig ist, sobald die Temperatur etwa 40 K an der Dusche und 200 K auf Höhe des 1 K-Topfes beträgt. Aufgrund dieses großen Wärmeeintrags ist es hier nicht möglich, den $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungsprozeß im Kryostaten aufrechtzuerhalten. Durch Zirkulation einer geringen Menge des Helium-Gemisches kann aber ein thermischer Kontakt zwischen Mischkammer und 1 K-Topf hergestellt werden, so daß die Substrattemperatur zwischen etwa 1.2 und 1.5 K konstant gehalten werden kann. Für Neon genügt eine Temperatur von etwa 15 K an der Dusche und 25 K auf Höhe des 1 K-Topfes. Hier ist der „Mischbetrieb“ des Kryostaten während des Aufdampfens möglich, so daß eine konstante Substrattemperatur von etwa 200 – 300 mK erreicht werden kann.

In ein zuvor mit einer Diffusionspumpe evakuiertes Volumen wird etwa 15 mbar des

Gases eingelassen, über ein Nadelventil gelangen dosierte Gasmengen schließlich in die Kapillare. Die Aufdampfrate läßt sich durch Variation der Nadelventileinstellung sehr genau einstellen, typische Werte liegen bei einigen Nanometern pro Minute. Die Filmdicke läßt sich dabei in situ durch Messung der Frequenzabnahme der Rayleighwellen bestimmen (siehe Kap. 3.4).

4.5.1 Reine Filme

Unter einem „reinen“ Film ist hier, im Gegensatz zu den später diskutierten „Gemischen“, ein Film zu verstehen, der lediglich aus einer einzigen Edelgassorte besteht. In der vorliegenden Arbeit wurden Neon- und Argonfilme untersucht, die Abbn. 4.7 und 4.8 zeigen typische Aufdampfvorgänge dieser beiden Edelgase. Hier sollen lediglich die Aufdampfprozesse beschrieben werden, die Diskussion der Filmdickenabhängigkeit der Meßgrößen, insbesondere der Dämpfung, erfolgt in Kap. 5.1.

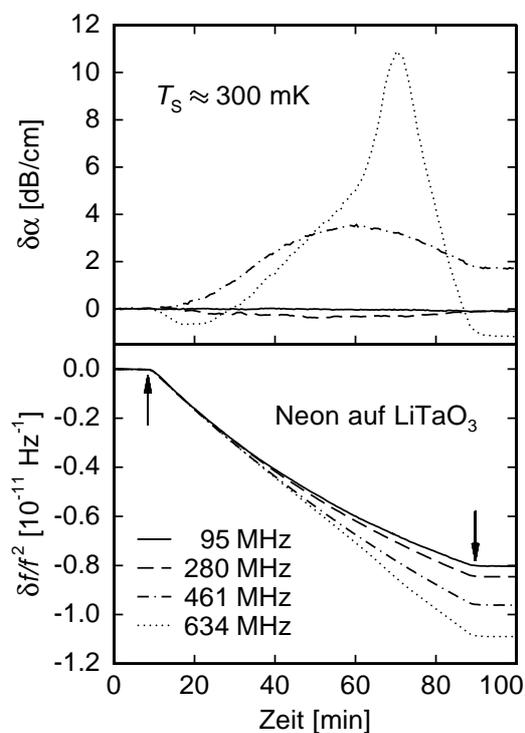


Bild 4.7: Zeitlicher Verlauf von $\delta\alpha$ und $\delta v/v$ während eines Neon-Aufdampfvorgangs bei einer Substrattemperatur von etwa 300 mK. Die Pfeile kennzeichnen das Öffnen bzw. Schließen des Nadelventils.

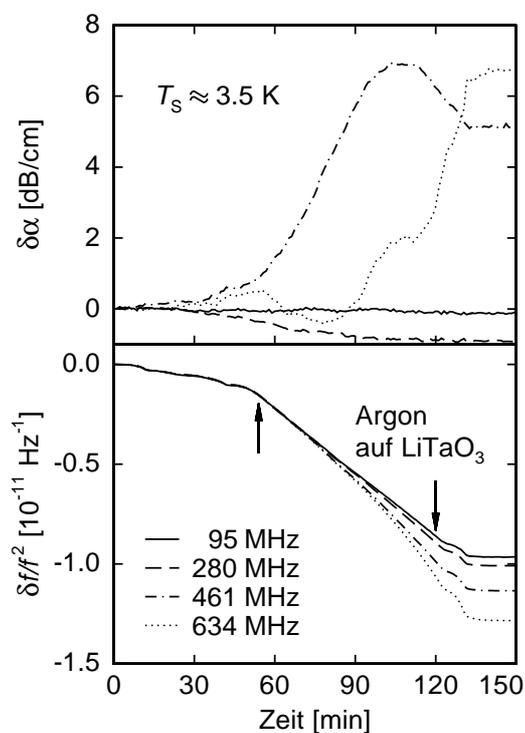


Bild 4.8: Zeitlicher Verlauf von $\delta\alpha$ und $\delta v/v$ während eines Argon-Aufdampfvorgangs bei einer Substrattemperatur von etwa 3.5 K. Zwischen den beiden Pfeilen liegt eine konstante Aufdampfrate vor.

Der Neonaufdampfprozeß in Abb. 4.7 zeigt ab dem Zeitpunkt des Öffnens des Nadelventils bei allen Frequenzen einen Abfall von $\delta f/f^2$. Die Kurven weisen hier einen linksgekrümmten Verlauf auf; dies beruht auf einer Abnahme des anliegenden Gasdrucks, die eine Verminderung der Aufdampfrate bewirkt. Andere Messungen haben gezeigt, daß die niedrigste Meßfrequenz von 95 MHz bei konstanter Aufdampfrate ein lineares Zeitverhalten von $\delta f/f^2$ aufweist. Zu Beginn zeigen die Kurven bei allen Frequenzen den

gleichen Verlauf, mit wachsender Schichtdicke trennen sich die einzelnen Kurven: Je höher die Frequenz ist, umso größer ist der Betrag von $\delta f/f^2$.

In Abb. 4.8 ist zunächst das Ausheizen von in der Kapillare festgefrorenen Argonresten eines vorherigen Aufdampfprozesses zu erkennen (bis zum ersten Pfeil). Zwischen den beiden Pfeilen beobachtet man bei 95 MHz ein lineares Verhalten von $\delta f/f^2$ gegenüber der Zeit. Da in diesem Bereich eine konstante Aufdampfprate vorliegt, wird durch diese Messung die Gültigkeit der Beziehung (3.16) für die niedrigste Meßfrequenz bestätigt. Die anderen Frequenzen weichen, wie auch schon bei dem gezeigten Neonaufdampfvorgang, mit zunehmender Schichtdicke immer stärker von diesem linearen Verhalten ab. Dies bedeutet, daß die Voraussetzung $kh \ll 1$ hier nicht mehr erfüllt ist.

Diese Messungen zeigen, daß die niedrigste Meßfrequenz geeignet ist, aus der gemessenen Frequenzänderung während der Filmherstellung mit Hilfe von Gleichung (3.16) die Schichtdicke zu bestimmen. Hierzu ist allerdings die Kenntnis der Dichte und der elastischen Konstanten des Filmmaterials nötig. Man kann jedoch nicht davon ausgehen, daß diese Größen bei der hier durchgeführten abschreckenden Kondensation mit den Werten der entsprechenden Volumenkristalle übereinstimmen. Zur Bestimmung dieser Materialparameter kann eine numerische Berechnung eines Aufdampfprozesses durchgeführt (siehe [Gen94]) und mit den experimentellen Ergebnissen verglichen werden. Durch Variation der angenommenen Werte von ρ , c_{11} und c_{44} läßt sich die Abweichung zwischen Experiment und Rechnung minimieren, so daß eine Abschätzung für diese Größen gewonnen wird. In

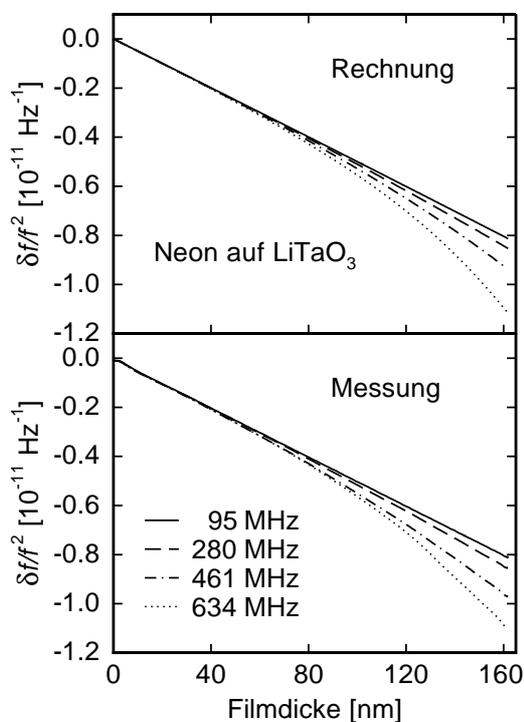


Bild 4.9: Vergleich eines gemessenen Neonaufdampfprozesses mit einem berechneten. Die Filmstärke im unteren Teilbild wurde aus der Frequenzänderung bei 95 MHz berechnet.

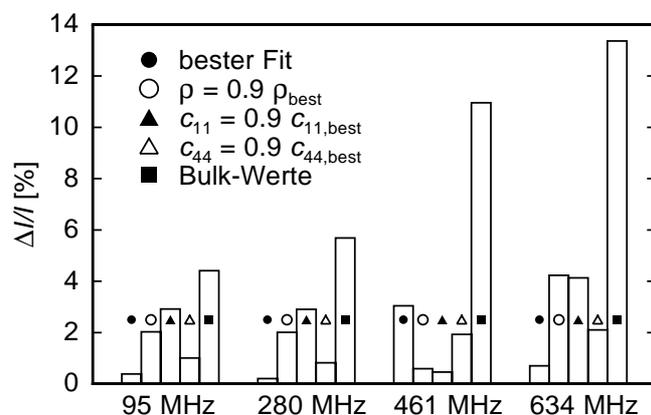


Bild 4.10: Vergleich der Übereinstimmung von berechneten und gemessenen Neonaufdampfvorgängen für verschiedene Werte der Dichte und der elastischen Konstanten des Films. Die Größe $\Delta I/I$ ist im Text erläutert.

Abb. 4.9 ist eine solche Berechnung der entsprechenden Messung an einem Neonfilm gegenübergestellt. Hierfür wurden die Materialparameter „Ne-Film“ aus Tab. 4.1 gewählt, mit denen die beste Übereinstimmung erzielt wurde. Als Maß für die Übereinstimmung von Theorie und Experiment wurde die Größe

$$\Delta I/I = \frac{\int_0^h \left| \left(\frac{\delta f}{f^2} \right)_{\text{theo}} - \left(\frac{\delta f}{f^2} \right)_{\text{exp}} \right| dz}{\int_0^h \left| \left(\frac{\delta f}{f^2} \right)_{\text{exp}} \right| dz} \quad (4.4)$$

gewählt, die eine Art normierte Standardabweichung der berechneten Werte $(\delta f/f^2)_{\text{theo}}$ von den gemessenen $(\delta f/f^2)_{\text{exp}}$ darstellt. Mit h wird die am Ende des Aufdampfvorgangs erreichte Filmdicke bezeichnet. In Abb. 4.10 ist $\Delta I/I$ für die in Abb. 4.9 verwendeten Werte der Dichte und der elastischen Konstanten, für um 10% verringerte Werte je einer dieser Größen ρ_{best} , $c_{11,\text{best}}$, $c_{44,\text{best}}$ und für Bulk-Werte dargestellt. Man erkennt, daß die Übereinstimmung für Bulk-Werte wie erwartet relativ schlecht ist, bei den „optimalen“ Beträgen der Materialkonstanten ist sie etwa um einen Faktor 10 besser. Die Genauigkeit dieser Methode zur Bestimmung von ρ , c_{11} und c_{44} dürfte etwa bei 10% liegen.

In den Abb. 4.11 und 4.12 sind die entsprechenden Größen für einen Argonaufdampfvorgang dargestellt. Der „beste Fit“ beruht auf den in Tab. 4.1 angegebenen Film-Werten für Argon, die auch für die berechneten Kurven in Abb. 4.11 verwendet wurden. Die Aussagen zum Neonaufdampfprozeß gelten hier analog.

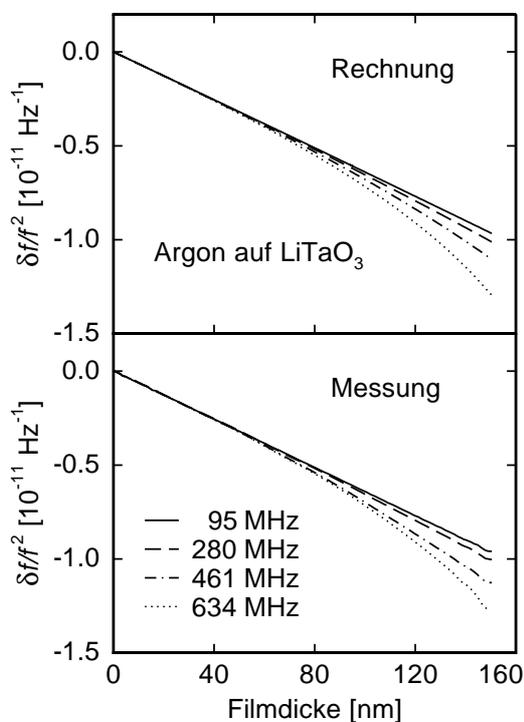


Bild 4.11: Vergleich eines gemessenen Argonaufdampfprozesses mit einem berechneten. Die Filmdicke im unteren Teilbild wurde aus der Frequenzänderung bei 95 MHz berechnet.

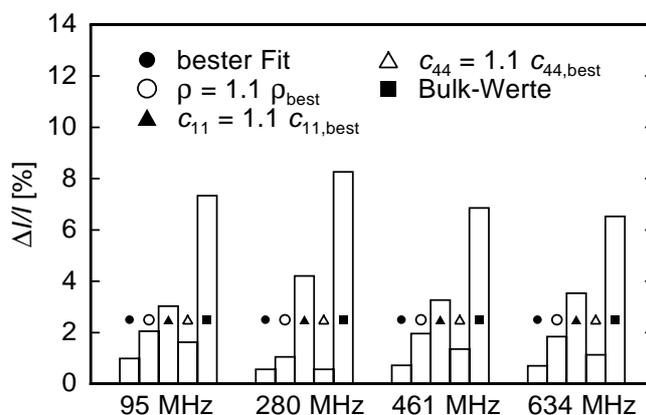


Bild 4.12: Vergleich der Übereinstimmung von berechneten und gemessenen Argonaufdampfvorgängen für verschiedene Werte der Dichte und der elastischen Konstanten des Films. Die Größe $\Delta I/I$ ist im Text erläutert.

In Tab. 4.1 sind die nach der eben beschriebenen Methode gewonnenen Beträge der Dichte und der elastischen Konstanten der abschreckend kondensierten Filme zusammengefaßt. Zum Vergleich sind auch die entsprechenden Daten von Volumenkristallen aufgelistet.

Substanz	ρ [kg/m ³]	c_{11} [10 ⁹ N/m ²]	c_{44} [10 ⁹ N/m ²]
Ne-Bulk	1500	1.98	0.65
Ne-Film	940	1.40	0.30
Ar-Bulk	1770	5.00	1.50
Ar-Film	1200	1.70	0.36

Tab. 4.1: Dichte und elastische Konstanten der verwendeten Edelgase. Es sind die Werte der abschreckend kondensierten Filme und die entsprechenden Bulk-Werte [Kor77] angegeben.

4.5.2 Gemischte Filme

Im Gegensatz zu „reinen“ Edelgasfilmen, die bei einer abschreckenden Kondensation polykristalline Strukturen bilden, entstehen bei einer Mischung von zwei verschiedenen Edelgassorten mit unterschiedlichen Atomradien bei der Kondensation amorphe Filme [Sch86, Men90, Men91]. Damit stellen Gemische ein geeignetes Modellsystem dar, um die Tieftemperatureigenschaften von Gläsern zu untersuchen. In Tab. 4.2 sind Bindungsenergie, Atommasse und Gleichgewichtsabstand im Kristallgitter für die in Frage kommenden Edelgase aufgelistet.

	Ne	Ar	Kr	Xe
E_B [eV]	0.019	0.081	0.116	0.166
m [amu]	20.2	39.9	83.8	131.3
R_0 [Å]	3.16	3.76	3.99	4.35

Tab. 4.2: Bindungsenergie E_B , Atommasse m und Gleichgewichtsabstand R_0 verschiedener Edelgase im Kristallgitter (nach [Hun94, Rie90]).

Ar- und Ne-Atome sowie Ar- und Xe-Atome weisen jeweils ein geeignetes Größenverhältnis auf, um amorphe Filme zu bilden; Xenon ist aufgrund der sehr hohen Sublimationstemperatur von etwa 50 K allerdings in der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Apparatur sehr viel schwieriger zu handhaben als Neon. Daher wurden die hier vorgestellten Messungen an Ar/Ne-Mischungen in einem Mischungsverhältnis von 1:1 durchgeführt.

Es gibt prinzipiell zwei verschiedene Methoden, um gemischte Filme herzustellen. Entweder werden die zu mischenden Gase getrennt durch die beiden vorhandenen Kapillaren geleitet, so daß erst unmittelbar vor dem Substrat eine Vermischung beider Gassorten stattfindet. Oder beide Gase werden zunächst in ein geeignetes Volumen gelassen, in dem sie sich durchmischen können, und werden dann gemeinsam durch eine Kapillare geleitet. Alle in dieser Arbeit vorgestellten Argon-Neon-Filme wurden nach der zweiten Methode aufgedampft. Vor dem Beginn der Aufdampfprozesse wurden die Gase mehr als eine Stunde im „Mischvolumen“ belassen, so daß eine vollständige Durchmischung gewährleistet war. Abb. 4.13 zeigt einen typischen Aufdampfprozeß eines Argon-Neon-Gemisches.

Die durchgeführten Aufdampfprozesse waren nicht geeignet, um auf die oben beschrie-

bene Weise die Dichte und die elastischen Konstanten zu bestimmen — entweder der Film war zu dünn, so daß die Dispersion nicht genügend ausgeprägt war, oder die Aufdampftrate war nicht konstant, so daß „Knicke“ im Frequenzverlauf auftraten. Zur Berechnung der Schichtdicke wurden daher die arithmetischen Mittel aus den Argon- und Neon-Werten verwendet.

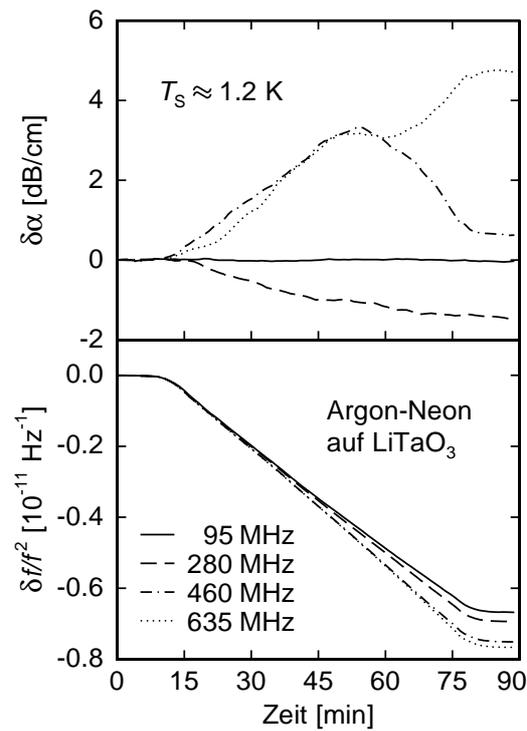


Bild 4.13: Zeitlicher Verlauf von $\delta\alpha$ und $\delta v/v$ während eines Argon-Neon-Aufdampfvorgangs bei einer Substrattemperatur von etwa 1.2 K.

5. Ergebnisse und Diskussion

5.1 Diskussion des Aufdampfprozesses

5.1.1 Lithiumtantalat-Substrat

In Kapitel 4.5 wurde bereits das zeitliche Verhalten der Aufdampfprozesse dargestellt. Ausgehend von den dort ermittelten Werten für die Dichte und die elastischen Konstanten des Filmmaterials läßt sich die gemessene Frequenzänderung mit Hilfe von Gleichung (3.16) in die entsprechende Schichtdicke umrechnen, solange bei konstanter Aufdampfrate eine lineare Abnahme von $\delta f/f^2$ mit der Zeit auftritt. Dies ist zumindest bei der niedrigsten Meßfrequenz von 95 MHz bei allen vorgestellten Filmen der Fall. Die Abbn. 5.1, 5.2 und 5.3 zeigen die Filmdickenabhängigkeit der Frequenz und der Dämpfung von Neon, Argon und Argon-Neon auf einem LiTaO₃-Substrat.

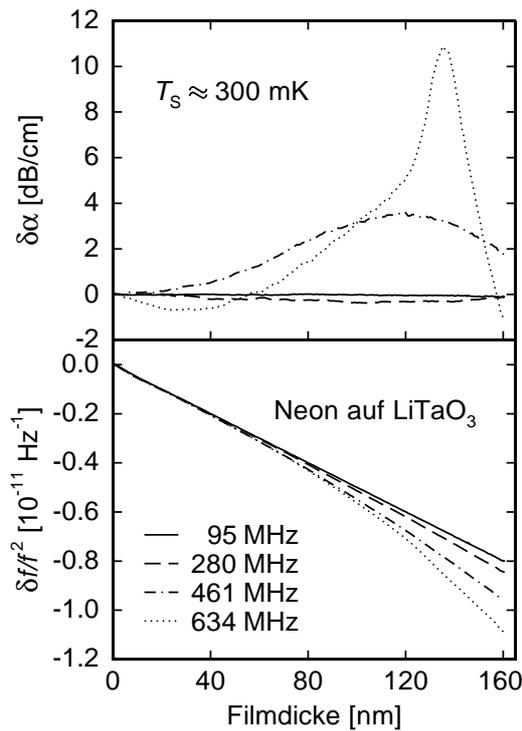


Bild 5.1: Abhängigkeit von $\delta f/f^2$ und $\delta\alpha$ von der Schichtdicke für Neon auf LiTaO₃.

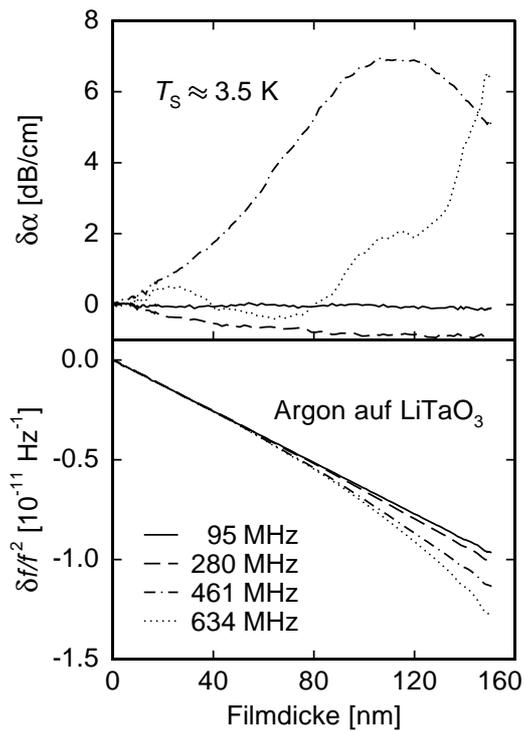


Bild 5.2: Abhängigkeit von $\delta f/f^2$ und $\delta\alpha$ von der Schichtdicke für Argon auf LiTaO₃.

Der Frequenzverlauf zeigt bei allen Filmen ein einheitliches Verhalten. Mit wachsender Filmdicke ist bei den höheren Frequenzen eine Abweichung von der Beziehung $\delta f/f^2 \propto h$ zu erkennen; je größer die Frequenz ist, um so stärker ist die Krümmung der entsprechenden Kurve. Die Bedingung $kh \ll 1$ ist in diesen Fällen immer weniger erfüllt, so daß die Näherung (3.16) nicht mehr gültig ist. Die in Abschnitt 4.5.1 beschriebenen numerischen

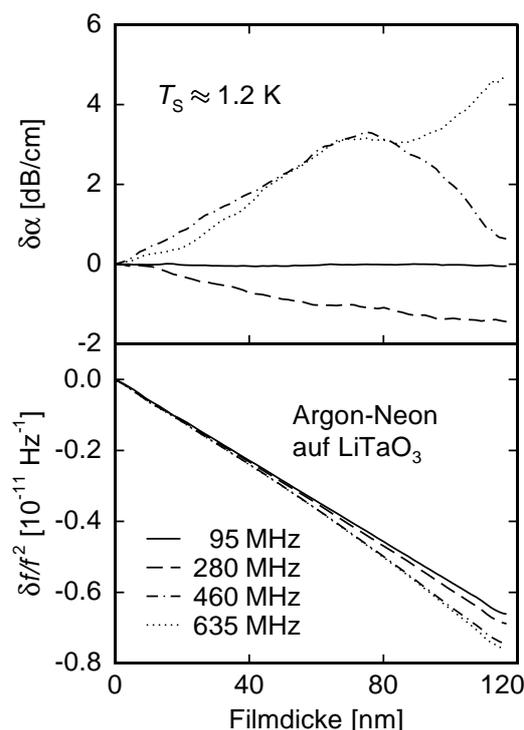


Bild 5.3: Abhängigkeit von $\delta f/f^2$ und $\delta\alpha$ von der Schichtdicke für ein Argon-Neon-Gemisch auf LiTaO₃.

Berechnungen erklären die experimentellen Ergebnisse aber — auch quantitativ — sehr gut, wenn die dort erwähnten Annahmen bzgl. der Dichte und der elastischen Konstanten gemacht werden (siehe Abb. 4.9 und 4.11).

Sehr viel komplexer ist das Verhalten der Dämpfung. Die drei niedrigsten Frequenzen zeigen bei allen vorgestellten Messungen einen ähnlichen Kurvenverlauf. Bei der 95 MHz-Mode ist im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Abhängigkeit der Dämpfung von der Schichtdicke zu erkennen. Bei 280 MHz nimmt $\delta\alpha$ mit zunehmender Filmdicke ab, bei Neon tritt allerdings oberhalb von etwa 100 nm ein Wiederanstieg auf. Bei einer Meßfrequenz von 460 MHz steigt die Dämpfung zunächst an, nimmt aber nach Durchlaufen eines Maximums wieder ab. Bei 635 MHz zeigen die verschiedenen Materialien ein unterschiedliches Verhalten. Bei Neon nimmt die Dämpfung zunächst ab, steigt dann aber wieder an zu positiven Werten von $\delta\alpha$. Bei 120 nm wird dieser Anstieg dann steiler, es wird ein schmales Maximum durchlaufen, gefolgt von einem raschen Abfall der Dämpfung bis hin zu negativen Werten. Der Argonfilm weist zu Beginn einen leichten Anstieg der Dämpfung auf, aber erst nach zwei Vorzeichenwechseln steigt $\delta\alpha$ zu größeren Werten an. Bei etwa 120 nm wird eine Schulter durchlaufen. Die Dämpfung im Argon-Neon-Gemisch folgt zunächst der 460 MHz-Kurve, anstelle des Maximums tritt aber auch hier eine Schulter auf.

Der gemessene Dämpfungsverlauf der Edelgasadsorbate auf LiTaO₃ konnte mehrfach reproduziert werden, die besonderen Merkmale wie Maxima und Vorzeichenwechsel wurden immer beobachtet. Die Ursache für dieses Verhalten ist bisher nicht richtig verstanden, vermutlich spielt hier aber die Veränderung der Modenstruktur der Oberflächenwelle durch den aufgebrachtten Film eine wichtige Rolle. Von Bedeutung könnte auch sein, daß die verwendete Oberflächenwelle sich nicht in einer Reinmodenrichtung des Substratmaterials ausbreitet und — auch ohne Film — keine „saubere“ Rayleighwelle darstellt. Die teilweise auftretenden negativen Werte von $\delta\alpha$ deuten darauf hin, daß die Welle durch den weichen

Film verhältnismäßig stark an die Oberfläche „gezogen“ wird, so daß die Einkopplung der Welle in den Empfangstransducer effektiver ist als ohne Adsorbat.

5.1.2 Lithiumniobat-Substrat

Die Abbn. 5.4 und 5.5 zeigen Aufdampfvorgänge eines Argonfilms bzw. eines Argon-Neon-Gemisches auf einem LiNbO_3 -Substrat. Die Schallgeschwindigkeit zeigt prinzipiell die gleiche Filmdickenabhängigkeit wie die oben diskutierten Messungen auf LiTaO_3 , die entsprechende Frequenzabnahme läßt sich auch hier gut durch numerische Berechnungen reproduzieren.

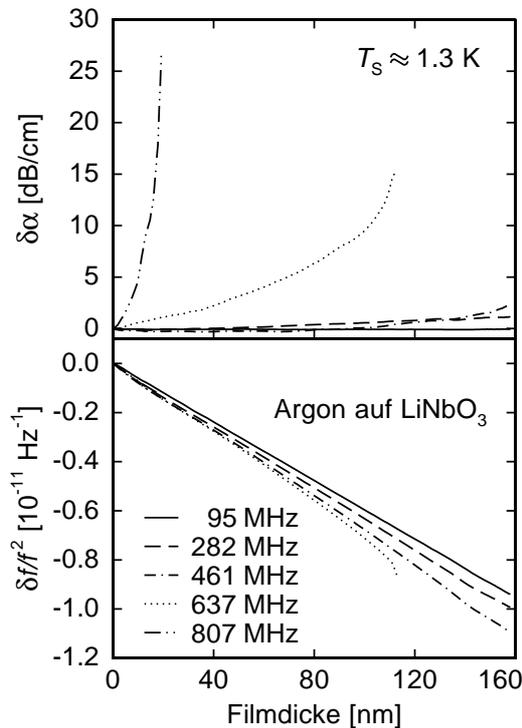


Bild 5.4: Abhängigkeit von $\delta f/f^2$ und $\delta\alpha$ von der Schichtdicke für Neon auf LiNbO_3 .

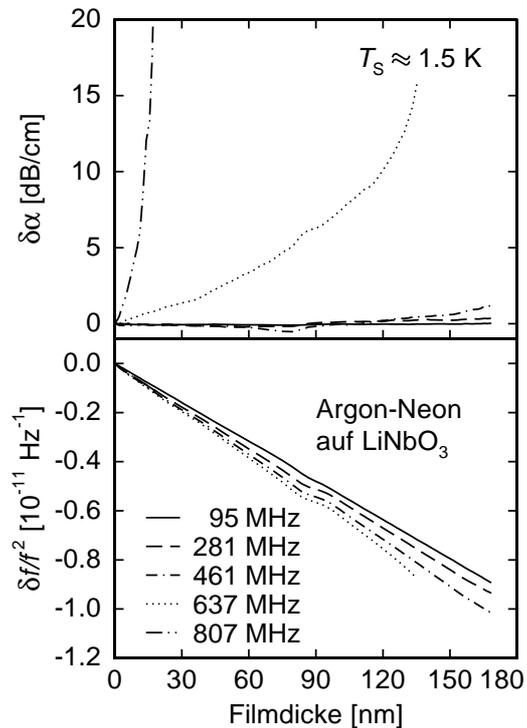


Bild 5.5: Abhängigkeit von $\delta f/f^2$ und $\delta\alpha$ von der Schichtdicke für ein Argon-Neon-Gemisch auf LiNbO_3 . Der Knick bei etwa 80 nm beruht auf einer starken Zunahme der Aufdampftrate.

Die Dämpfung zeigt allerdings ein völlig anderes Verhalten. Bei allen Frequenzen tritt mit wachsender Schichtdicke eine Zunahme der Dämpfung auf; von den im letzten Abschnitt beschriebenen Maxima ist nichts zu erkennen. Weiterhin beobachtet man eine beträchtliche Frequenzabhängigkeit; bei 807 MHz ist die Amplitude bereits bei einer Filmdicke von 20 nm so klein, daß die Frequenzregelung versagt. Bei 637 MHz läßt sich der Verlauf ebenfalls nicht bis zum Ende des Aufdampfvorgangs verfolgen.

Eine mögliche Ursache für die Dämpfung der Oberflächenwelle könnte die Ausbildung von Streuzentren während des Filmwachstums sein. Molekulardynamische Simulationen [Lea80, Müll87] haben gezeigt, daß bei niedriger kinetischer Energie der einfallenden Atome säulenartige Mikrostrukturen mit großen Zwischenräumen entstehen. Verantwortlich hierfür ist die Wechselwirkung der einfallenden Atome mit bereits vorhandenen Struk-

turen und eine mit wachsender Größe dieser Säulen zunehmende Abschattung „leerer“ Gebiete. Eine Ultraschallwelle kann an solchen Strukturen der Größe a gestreut werden; falls die Bedingung $ka \ll 1$ erfüllt ist, tritt Rayleighstreuung auf und es folgt eine f^4 -Abhängigkeit der Dämpfung:

$$\delta\alpha \propto Khf^4 \quad (5.1)$$

K bezeichnet hierbei den in Kap. 3.5 eingeführten Korrekturfaktor, der den Anteil der im Film vorhandenen Energie der Oberflächenwelle beschreibt, h ist die Filmdicke, zu der die Anzahl der Streuzentren proportional ist. In Abb. 5.6 ist der auf diese Weise berechnete Dämpfungsverlauf mit dem an einem Argonfilm gemessenen verglichen.

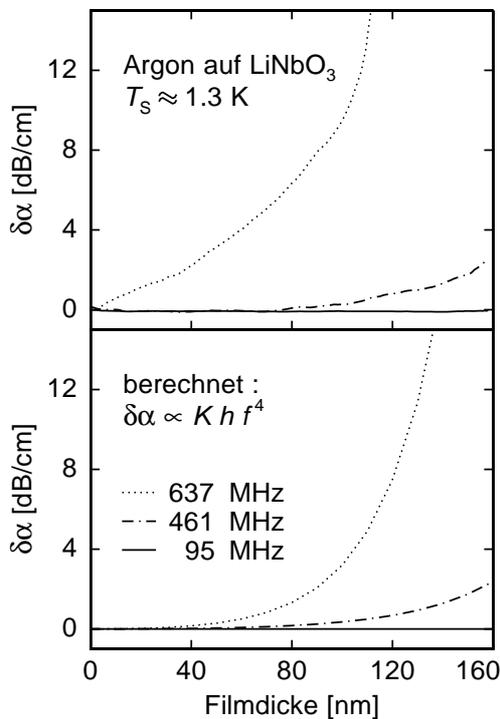


Bild 5.6: Vergleich der gemessenen (oben) Abhängigkeit der Dämpfung von der Filmdicke mit der nach Gleichung (5.1) berechneten (unten) für drei verschiedene Frequenzen.

Das Verhalten von $\delta\alpha$ wird bei den niedrigen Frequenzen gut beschrieben, die starke Dämpfungszunahme bei 637 MHz wird zumindest qualitativ richtig wiedergegeben. Ein Grund für die quantitativen Unterschiede bei hohen Frequenzen könnte sein, daß die Strukturen so groß sind, daß Mie-Streuung auftritt. Es sei allerdings erwähnt, daß bei 637 MHz während des Aufdampfens große Frequenzänderungen auftreten, so daß bei schnellem Filmwachstum der Regelparameter $\cos\varphi$ nicht nahe genug bei Null gehalten werden kann. Hierdurch erscheint der gemessene Amplitudenwert gegenüber dem tatsächlichen zu klein. Um die Beziehung (5.1) auch quantitativ überprüfen zu können, ist die Durchführung eines Aufdampfprozesses mit sehr niedriger Aufdampftrate nötig.

Das Verhalten der Oberflächenwellen auf LiNbO₃ ist sehr viel verständlicher als das auf LiTaO₃. Hierbei ist vermutlich von Bedeutung, daß die Wellenausbreitung auf Lithiumniobat in Reinmodenrichtung erfolgt; dies hat u.a. zur Folge, daß die Moden besser definiert sind, man hat es mit „richtigen“ Rayleighwellen zu tun.

5.2 Überblick über die durchgeführten Messungen

Einige der hier vorgestellten Messungen wurden bereits in [Cla98] veröffentlicht. Abb. 5.7 zeigt eine typische Abfolge der Experimente, die nach der Präparation eines Edelgasfilms durchgeführt wurden. Kurve 1 zeigt die erste Erhöhung der Temperatur bis zur Kondensationstemperatur des Films (in diesem Fall 3.6 K) nach dem Abkühlen des Kryostaten (der Verlauf von $\delta f/f$ während des ersten Abkühlens ist identisch mit Kurve 1). In diesem Bereich sind nur geringe Frequenzänderungen zu beobachten, der weitere Temperaturanstieg bis auf 7.5 K bewirkt aber eine beträchtliche irreversible Zunahme der Schallgeschwindigkeit (Kurve 2). Der hierauf folgende Abkühlvorgang (Kurve 3) zeigt nur geringe Variationen von f , die reversibel sind, solange die bisherige Maximaltemperatur von 7.5 K nicht überschritten wird (Kurve 4). Der folgende Temperaturanstieg auf 12 K (Kurve 5) führt wieder zu einer irreversiblen Frequenzzunahme, unterhalb von 12 K wird in der Folge wieder ein reversibler Verlauf der Schallgeschwindigkeit beobachtet (Kurve 6).

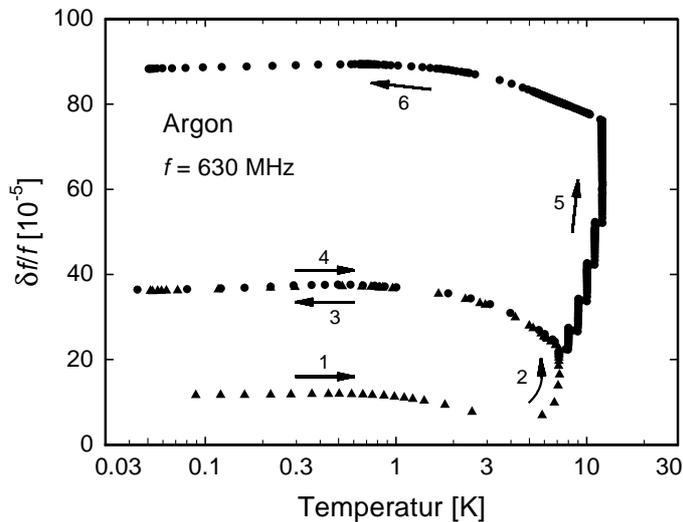


Bild 5.7: Typischer Frequenzverlauf während der durchgeführten Experimente. Die nummerierten Pfeile geben die Reihenfolge der einzelnen Messungen wieder. Dargestellt sind unskalierte Rohdaten.

Im folgenden soll zunächst auf die mit irreversiblen Prozessen verbundenen Temperaturvorgänge eingegangen werden, anschließend wird das Desorptionsverhalten der Edelgasfilme diskutiert und schließlich werden die beobachteten reversiblen Schallgeschwindigkeitsänderungen genauer untersucht. Die Messungen wurden alle auf LiTaO_3 durchgeführt. Die in den Kapiteln 5.3 und 5.4 vorgestellten Daten sind unskaliert und beinhalten den Untergrund des Substratmaterials; in Abschnitt 5.5 wurde der Untergrund stets abgezogen und die Daten wurden auf Bulk-Werte skaliert, falls nicht explizit auf unskalierte Daten hingewiesen wird.

5.3 Temperverhalten der Edelgasfilme

Abb. 5.8 zeigt den Verlauf von Schallgeschwindigkeit und Dämpfung eines 150 nm dicken Argonfilms beim ersten Hochheizen nach dem Aufdampfen. Das untere Teilbild stellt den Verlauf der Temperatur dar. Während des anfänglichen Heizens von 100 mK auf 7.1 K zeigen sich zunächst reversible Änderungen der Schallgeschwindigkeit und der Dämpfung, auf die in Abschnitt 5.5 eingegangen werden soll. Die folgende stufenweise Temperaturerhöhung auf 20 K bewirkt deutliche „Drifteffekte“, d.h. eine zeitliche Änderung

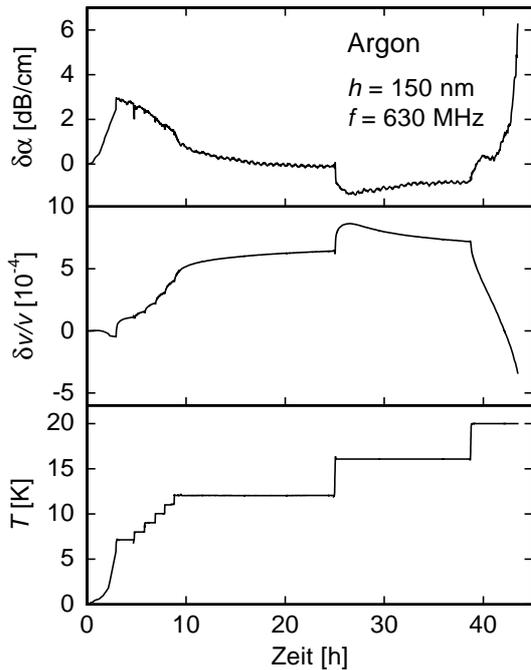


Bild 5.8: Verlauf von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ bei einer Meßfrequenz von 630 MHz für einen 150 nm dicken Argonfilm während des ersten Hochheizens nach dem Aufdampfen. Die Oszillationen in der Dämpfung beruhen auf periodischen Raumtemperaturschwankungen (siehe Kap. 4.3).

der Meßgrößen bei konstant gehaltener Temperatur. Ein qualitativ ähnliches Verhalten wurde bereits in früheren Experimenten an Edelgasfilmen beobachtet [Hor89, Cla94a].

Die ersten Temperschnitte unterhalb von 16 K führen jeweils zu einer Erhöhung von $\delta v/v$ und einer Verminderung von $\delta\alpha$. Dieses Verhalten läßt sich anhand von Abb. 5.9

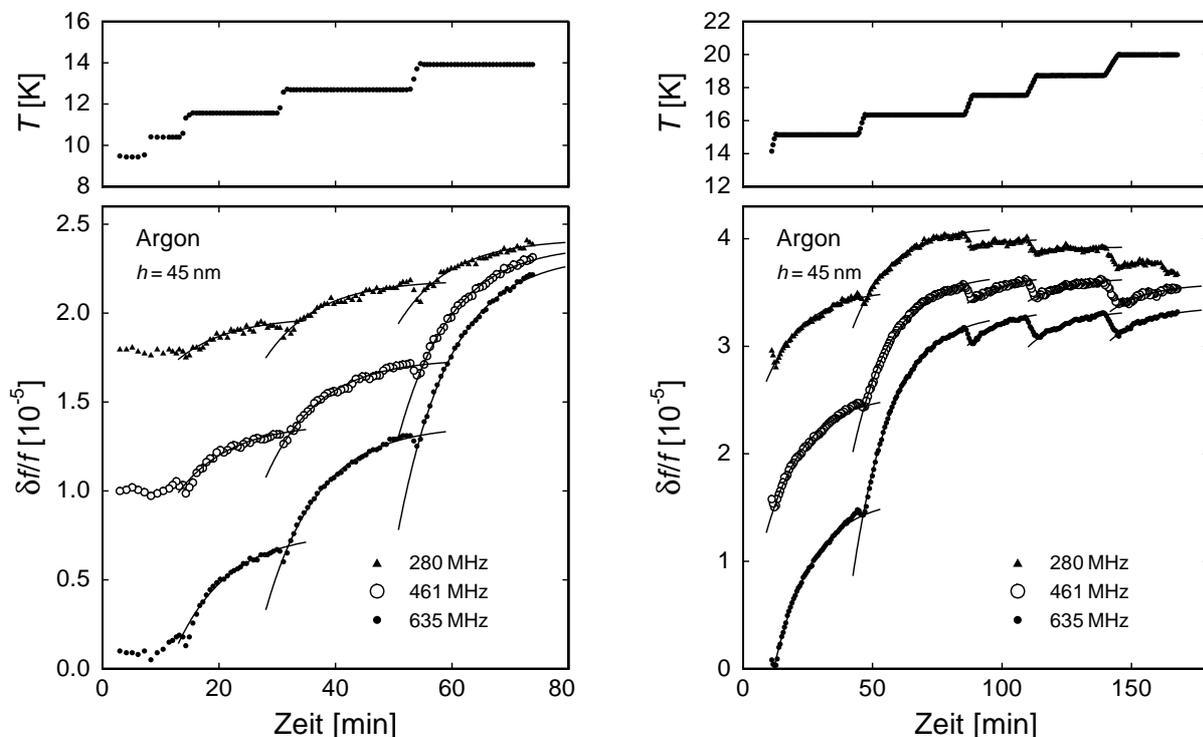


Bild 5.9: Zeitlicher Verlauf von $\delta f/f$ beim ersten Hochheizen eines 45 nm dicken Argonfilms für drei verschiedene Meßfrequenzen zwischen 9.5 K und 14 K (links) sowie zwischen 14 K und 20 K (rechts). Die durchgezogenen Linien geben Exponentialfits mit der Zeitkonstanten $\tau = 9$ min (links) bzw. $\tau = 15$ min (rechts) an.

detaillierter diskutieren. Dort ist die zeitliche Frequenzentwicklung während des Temperns eines 45 nm dicken Argonfilms bei mehreren Temperaturen (11.6, 12.7, 13.9, 15.1, 16.3, 17.5, 18.7 und 20.0 K) dargestellt. Jede Temperaturerhöhung führt zunächst zu einer Verminderung von $\delta f/f$; dies beruht auf der in diesem Bereich relativ starken Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit des LiTaO_3 -Substrats (siehe Abb. 3.7). Bei konstanter Temperatur ist ein Frequenzanstieg zu beobachten, der schließlich eine Sättigung erreicht, bevor die Temperatur erneut erhöht wird. Der Anstieg der Frequenz bei jedem einzelnen Tempersschritt lässt sich sehr gut durch eine Exponentialfunktion der Form

$$\frac{\delta f}{f}(t) = \Delta_f(T) \left[1 - \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau}\right) \right] \quad (5.2)$$

beschreiben, wobei $\Delta_f(T)$ den Anstieg von $\delta f/f$ und t_0 den Zeitpunkt der Temperaturerhöhung bezeichnet. Für die Zeitkonstante τ wurde bei allen in Abb. 5.9 dargestellten Fits ein Wert der Größenordnung 10 min verwendet (9 min im linken, 15 min im rechten Teilbild). Allerdings ist τ stark von den Filmpräparationsbedingungen und der Schichtdicke abhängig; die Zeitkonstanten in Abb. 5.8 betragen beispielsweise mehrere Stunden.

Die hier gefundene Zeitabhängigkeit der Frequenz unterscheidet sich signifikant von der, die White *et al.* [Whi98] bei der Untersuchung des Temperverhaltens von Filmen aus Argon, Neon und amorphem Eis mit einem Torsionsoszillator beobachteten und gut durch eine logarithmische Zeitabhängigkeit $\delta f(t) = a \log(t/t_0)$, wobei a eine Konstante ist, beschreiben konnten (siehe Abb. 5.10). Bei diesen Messungen wurde allerdings, im Gegensatz zu den in Abb. 5.9 dargestellten, die Temperatur abrupt von der Kondensationstemperatur auf die deutlich höhere Temper-Temperatur erhöht. Ein vergleichbares Experiment mit Oberflächenwellen wurde im Rahmen dieser Arbeit jedoch noch nicht durchgeführt.

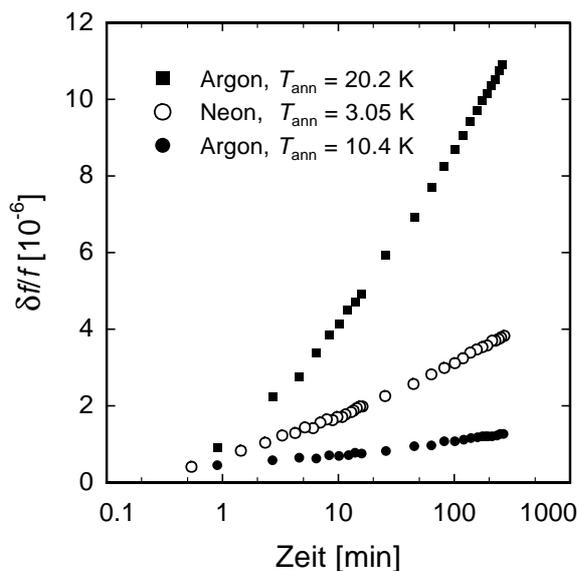


Bild 5.10: Von White *et al.* gefundener Frequenzanstieg während des Temperns von etwa $1 \mu\text{m}$ dicken Argon- und Neon-Filmen bei den angegebenen Temperaturen [Whi98].

In Abb. 5.11 ist der aus den in Abb. 5.9 dargestellten Fits gewonnene Frequenzhub Δ_f über der Temperatur aufgetragen. Hierbei wurde Δ_f auf die jeweilige Temperaturänderung ΔT beim Tempern normiert. Trotz des recht großen Fehlers bei der Bestimmung von

Δ_f ist eindeutig eine Zunahme des Frequenzhubs mit steigender Temperatur zu erkennen sowie das Durchlaufen eines Maximums bei etwa 16 K, gefolgt von einem starken Abfall zu noch höheren Temperaturen hin. Die Lage des Maximums ist durch $T \simeq 0.65 T_{\text{Sub}}$ charakterisiert, wobei T_{Sub} die Sublimationstemperatur bezeichnet (für Argon etwa 25 K). Dies steht im Einklang mit Messungen von Claßen an Argon- und Neonfilmen [Cla94a]. Für die Lage des Maximums wurde dort der Bereich $0.4 - 0.7 T_{\text{Sub}}$ gefunden.

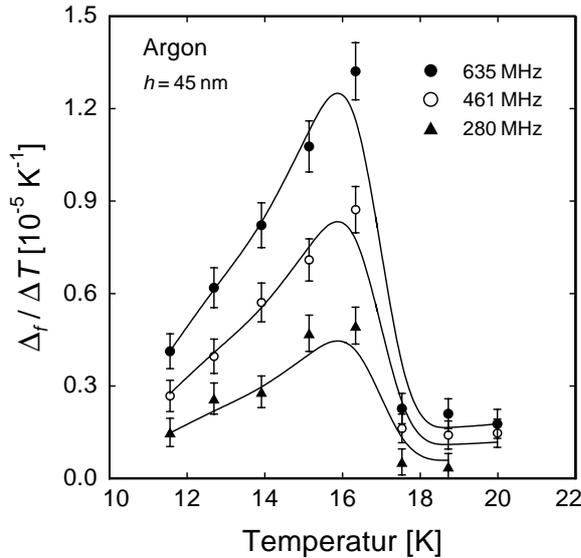


Bild 5.11: Aus den Fits in Abb. 5.9 gewonnener auf die Temperaturänderung ΔT normierter Frequenzhub Δ_f beim Tempern in Abhängigkeit von der Temperatur. Die durchgezogenen Linien dienen lediglich der optischen Führung.

Während des Temperns treten strukturelle Umlagerungsprozesse auf, d.h. es findet ein Übergang von der zunächst porösen Struktur in eine kompaktere statt. In Computersimulationen konnte gezeigt werden, daß sich beim Tempern Leerstellen und Poren zu größeren Poren zusammenschließen [Mül85]. Diese Umordnung bewirkt eine Vergrößerung der elastischen Konstanten, die vermutlich für den beobachteten Schallgeschwindigkeitsanstieg verantwortlich ist. Um diese Hypothese quantitativ zu untersuchen, wurde in numerischen Berechnungen der Verlauf der elastischen Konstanten bestimmt, der nötig ist, um die beobachteten Frequenzänderungen zu reproduzieren. Hierbei wurden der Einfachheit halber alle Komponenten des Elastizitätstensors gleichermaßen variiert; zudem wurde die sicherlich auch auftretende Änderung der Dichte nicht berücksichtigt.

Durch den in Abb. 5.12 dargestellten Verlauf der elastischen Konstanten lassen sich die Frequenzänderungen aller in Abb. 5.11 dargestellten Meßfrequenzen beschreiben (siehe Abb. 5.13). Auch wenn den Berechnungen beträchtliche Vereinfachungen zugrunde liegen — neben einer Änderung der Dichte kann beim Tempern auch eine unterschiedliche Veränderung der einzelnen Komponenten des Elastizitätstensors auftreten —, so läßt die gute Konsistenz des gemessenen mit dem berechneten Frequenzhub bei allen Meßfrequenzen den erhaltenen Verlauf der elastischen Konstanten zumindest qualitativ glaubwürdig erscheinen.

Die elastischen Konstanten zeigen nach dem Tempern bei 20 K etwa eine Verdoppelung gegenüber den Werten des frisch aufgedampften Filmes bei 3 K, für die die „Film-Werte“ aus Tab. 4.1 angenommen wurden. Die entsprechenden Werte von Volumenkristallen sind aber immer noch um einen Faktor 1.5 – 2 größer.

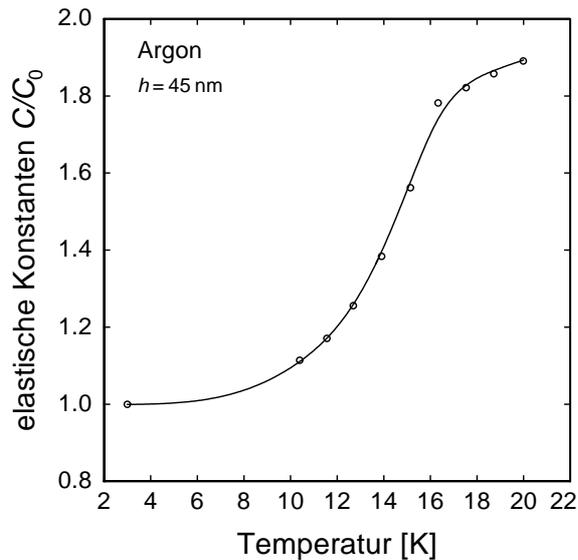


Bild 5.12: Angenommener Temperaturverlauf der elastischen Konstanten eines 45 nm dicken Argonfilms. C_0 bezeichnet die elastischen Konstanten des frisch aufgedampften Films.

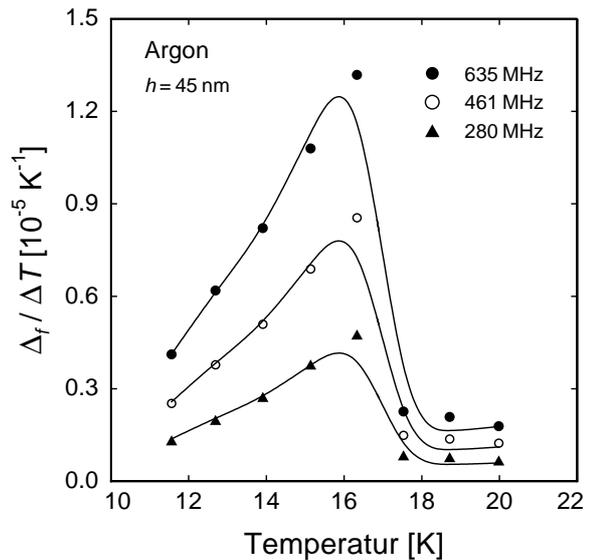


Bild 5.13: Numerisch berechneter Frequenzhub Δ_f , der sich für den in Abb. 5.12 dargestellten Verlauf der elastischen Konstanten ergibt.

Die vorgestellten Messungen weisen darauf hin, daß mit den auftretenden Strukturveränderungen ein breites Spektrum von Aktivierungsenergien verbunden ist. Je stärker die Temperatur erhöht wird, umso größere Energiebarrieren können bei der Umbildung der atomaren Struktur überwunden werden. Der Frequenzhub Δ_f kann in erster Näherung als Maß für die Anzahl der an den Umlagerungen beteiligten Systeme angesehen werden, so daß die Kurven in Abb. 5.11 als ein allerdings völlig unskaliertes Abbild der Verteilung der Aktivierungsenergien betrachtet werden können.

Der in Abb. 5.8 dargestellte 150 nm dicke Argonfilm zeigt bei hohen Temperaturen ein völlig anderes Verhalten als der eben diskutierte Film. Hierbei ist zu beachten, daß dieser Film sehr lange getempert wurde; die Temperzeiten bei 12 und 16 K betragen über 12 h. Zu Beginn des Temperns bei 16 K ist wie auch bei den tieferen Temperaturen ein Schallgeschwindigkeitszuwachs und eine Dämpfungsabnahme zu beobachten. Dieses Verhalten kehrt sich allerdings schnell um: Es tritt eine Abnahme der Schallgeschwindigkeit und eine Zunahme der Dämpfung auf, wobei auch hier eine Sättigung erreicht wird. Das folgende Tempern bei 20 K führt zu einem steilen Abfall von $\delta v/v$ und einem starken Anstieg von $\delta \alpha$. Die Dämpfung wird schließlich so groß, daß die Frequenzregelung versagt und das Signal „verloren“ wird.

Ein ähnliches Verhalten wurde bereits von Claßen beim Tempern von Wasserstofffilmen beobachtet [Cla94a]. Zur Erklärung dieser Effekte wurden dort zwei verschiedene Modelle verwendet, die beide von der Grundannahme ausgehen, daß während des Temperns ein Übergang von einer zunächst relativ glatten Filmoberfläche in eine Struktur mit größeren Inhomogenitäten der Ausdehnung a stattfindet.

Das erste Modell geht von einer statistischen Verteilung dieser Inhomogenitäten aus. Eine aufwendige Rechnung [Egu83] liefert für die Streuung einer Rayleighwelle auf einer

dreidimensional statistisch rauhen Oberfläche die Frequenzverschiebung

$$\delta f(k) = f \frac{\delta^2}{a^2} \xi_1(ka) \quad (5.3)$$

und die inverse freie Weglänge

$$\ell^{-1}(k) = 2k \frac{\delta^2}{a^2} \xi_2(ka) \quad (5.4)$$

mit der mittleren quadratischen Amplitude δ^2 der Rauigkeit. Die Funktionen $\xi_1(ka)$ und $\xi_2(ka)$ lassen sich numerisch auswerten und sind in Abb. 5.14 für den Fall $v_\ell^2 = 3v_t^2$ dargestellt.

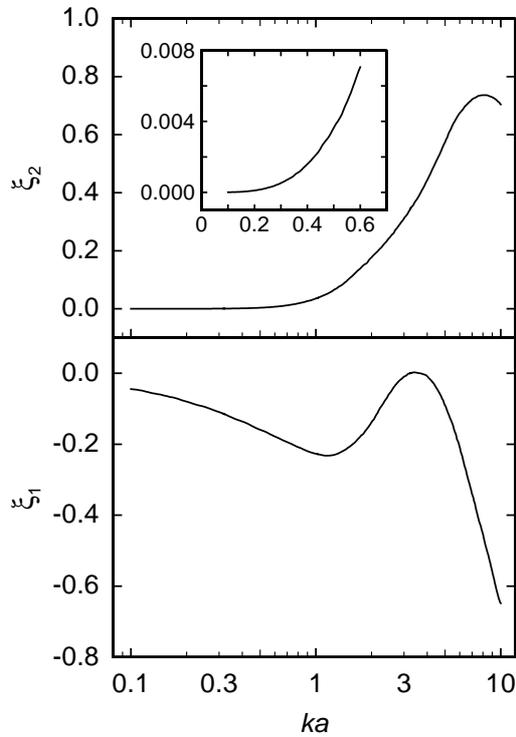


Bild 5.14: Die numerisch berechneten Funktionen $\xi_1(ka)$ und $\xi_2(ka)$ für den Fall $v_\ell^2 = 3v_t^2$ (nach [Egu83]).

Der zweite Ansatz geht von einzelnen aus der ansonsten glatten Unterlage herausragenden Kristalliten aus. Diese Erhebungen besitzen Eigenmoden, deren Frequenzen in einem Bereich $f_0 \sim v/a$ liegen. Falls die Masse dieser Resonatoren sehr viel kleiner als die sich effektiv mitbewegende Substratmasse ist, läßt sich die relative Schallgeschwindigkeitsänderung $\delta v/v$ und die Dämpfungsänderung $\delta\alpha$ einer Rayleighwelle durch resonante Anregung solcher Strukturen näherungsweise durch Real- und Imaginärteil einer komplexwertigen Lorentz-Kurve beschreiben, wobei durch einen zusätzlichen Faktor f die frequenzabhängige Eindringtiefe der Welle in das Substrat berücksichtigt wird [Ple91, Cla94a]:

$$\delta\alpha \propto \frac{\gamma f^3}{(f_0^2 - f^2)^2 + \gamma^2 f^2} \quad (5.5)$$

$$\frac{\delta v}{v} \propto -\frac{(f_0^2 - f^2)f}{(f_0^2 - f^2)^2 + \gamma^2 f^2} \quad (5.6)$$

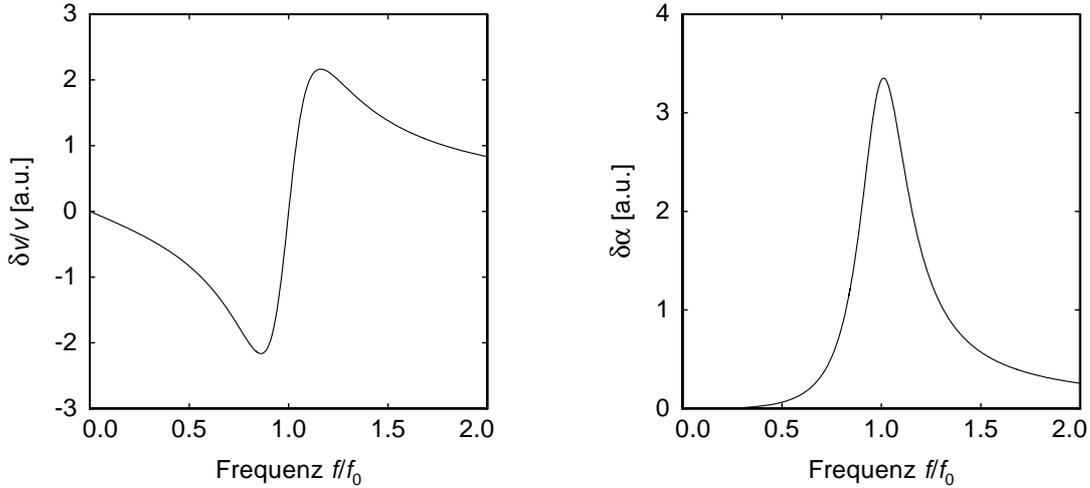


Bild 5.15: Verlauf von relativer Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und Dämpfungsänderung (rechts) einer Rayleighwelle bei Wechselwirkung mit einem Resonator, dessen Masse sehr viel kleiner als die sich effektiv mitbewegende Substratmasse ist.

Mit γ wird die Halbwertsbreite der Resonanzkurve bezeichnet. Der Verlauf von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ ist für $\gamma = 0.3 f_0$ in Abb. 5.15 dargestellt.

Beide Modelle liefern für nicht zu große Werte von a (man beachte $f_0 \propto a^{-1}$) qualitativ das gleiche Resultat: Mit zunehmender Ausdehnung der Inhomogenitäten auf der Oberfläche ergibt sich eine Schallgeschwindigkeitsabnahme und eine Zunahme der Dämpfung. Bei Cläßen wurde insbesondere mit dem zweiten Modell eine gute quantitative Beschreibung des Temperverhaltens von Wasserstofffilmen erreicht; eine numerische Anpassung an die hier untersuchten Edelgasfilme würde allerdings den Rahmen dieser Arbeit sprengen, die Diskussion soll daher auf einige qualitative Aussagen beschränkt bleiben.

Der beobachtete Abfall von $\delta v/v$ und der Dämpfungsanstieg bei 16 und 20 K des Argonfilms in Abb. 5.8 deuten darauf hin, daß sich bei hohen Substrattemperaturen Kristallite bilden, deren Ausdehnung während des Temperns einige 100 nm bis zu einigen μm erreicht. Auffallend sind die großen Zeitkonstanten, die bei der Ausbildung der Oberflächeninhomogenitäten auftreten. Erst nach mehrstündigem Tempern bei relativ hohen Temperaturen zeigen sich die ersten meßbaren Anzeichen der Ausbildung von Kristalliten. Da Argonatome sehr viel mehr Elektronen enthalten als H_2 -Moleküle und daher eine größere Polarisierbarkeit, durch die die Stärke der van der Waals-Wechselwirkung bestimmt ist, aufweisen, ist die Potentialbarriere, die bei der Oberflächendiffusion von den Atomen überwunden werden muß, bei Argon größer als bei Wasserstoff. Um für den Umlagerungsprozeß in Argonfilmen ähnlich kurze Zeitkonstanten wie bei H_2 -Filmen zu erhalten, sind also höhere Temperaturen, offensichtlich jenseits der Sublimationstemperatur, notwendig.

Die Ausbildung von Kristalliten läßt sich auch während des Aufdampfens beobachten. In Abb. 5.16 ist der Dämpfungsverlauf während des Aufdampfens eines Argonfilms bei einer Substrattemperatur von 26 K dargestellt. Es ist eine starke Zunahme der Dämpfung mit wachsender Filmdicke zu beobachten. Schon bei einer Schichtdicke von $h \simeq 3 \text{ nm}$ beobachtet man eine Halbierung der Amplitude ($\delta\alpha = 6 \text{ dB}$), bei $h = 20 \text{ nm}$ ist das Signal wegen $\delta\alpha \simeq 40 \text{ dB}$ fast unmessbar klein. Der in Abb. 5.2 gezeigte Aufdampfvorgang bei

einer Substrattemperatur von 3.5 K hingegen zeigt bei $h = 20$ nm erst einen Anstieg der Dämpfung um 1 dB/cm.

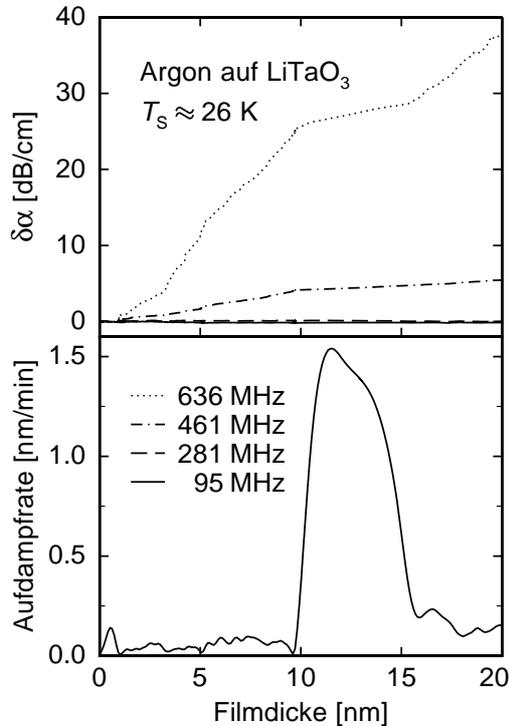


Bild 5.16: Verlauf der Dämpfung während eines Argonaufdampfvorgangs bei einer Substrattemperatur von $T_S \approx 26$ K (oben). Das untere Teilbild zeigt die Aufdampfrate.

Bei der hier gewählten verhältnismäßig hohen Substrattemperatur tritt bereits eine merkliche Sublimation von Argon auf. Außerdem besitzen die Atome eine sehr viel größere laterale Mobilität als bei tiefen Temperaturen; hierdurch wird der Zusammenschluß der frisch aufgedampften Atome zu größeren Kristalliten besonders begünstigt. Durch die zunächst niedrig gewählte Aufdampfrate von etwa 0.1 nm/min wird die Oberflächendiffusion zusätzlich unterstützt, da die einzelnen Atome genügend Zeit haben, sich aufeinander zuzubewegen, bevor sie von nachfolgenden Atomen bedeckt werden. Dies zeigt sich eindrucksvoll an der in Abb. 5.16 erkennbaren Abhängigkeit der Dämpfungszunahme von der Aufdampfrate: Eine Erhöhung der Aufdampfrate auf 1.5 nm/min führt zu einem Absinken der Dämpfungszunahme von etwa 2.9 dB/(cm nm) auf 0.5 dB/(cm nm).

Die Ursache für die Bildung von Kristalliten liegt in dem unvollständigen Benetzungsverhalten der Edelgasadsorbate. Nicht- oder unvollständiges Benetzen ist i.a. dann bevorzugt, wenn die Wechselwirkung zwischen den Adsorbatteilchen größer ist als zwischen Adsorbat und Substrat [Pan82]; eine wichtige Rolle spielt zudem die strukturelle Fehlanpassung zwischen Substrat und Adsorbat [Bie84]. Bei einer abschreckenden Kondensation mit Drücken weit oberhalb des Sättigungsdampfdrucks wird jedoch auch bei unvollständiger Benetzung ein schichtweises Wachstum erzwungen, so daß sich der entstehende Film nicht im thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Während des Temperns kann sich das System durch die zugeführte thermische Energie dem Gleichgewichtszustand nähern, so daß Kristallite entstehen. Für die Untersuchung des Benetzungsverhaltens von Argon und Neon z.B. auf Gold bzw. Silber sei auf [Kri84] und [Mig86] verwiesen.

5.4 Das Desorptionsverhalten

5.4.1 Argon

In Abb. 5.17 ist der zeitliche Verlauf der Frequenz während des Heizens eines 45 nm dicken Argonfilms oberhalb der Sublimationstemperatur dargestellt. Die relative Frequenzänderung $\delta f/f$ nimmt bei konstanter Substrattemperatur linear mit der Zeit zu; die Steigung dieses Anstiegs wächst mit zunehmender Temperatur an. Zu Beginn des Desorptionsprozesses wurde $\delta f/f = 0$ gewählt, so daß — im Gegensatz zu den gezeigten Aufdampfprozessen — positive Werte von $\delta f/f$ auftreten.

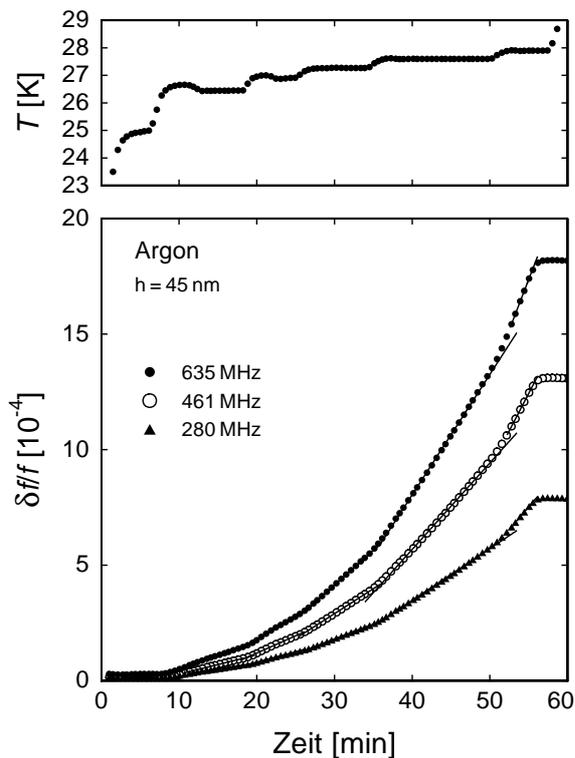


Bild 5.17: Zeitlicher Verlauf der Frequenz während der Desorption eines 45 nm dicken Argonfilms bei drei verschiedenen Meßfrequenzen.

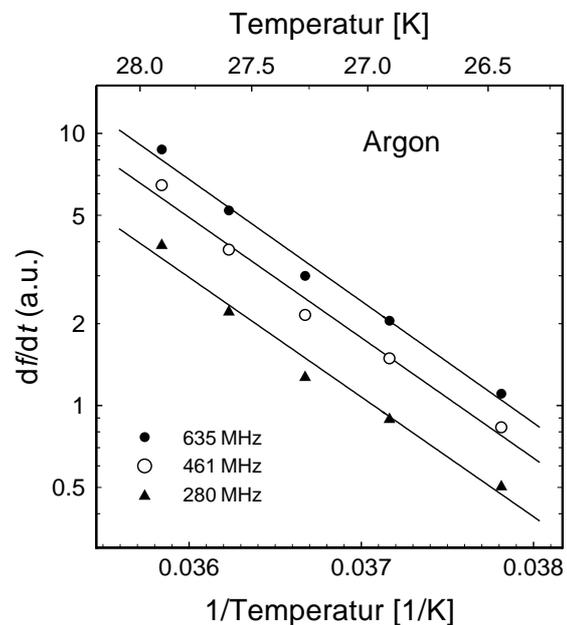


Bild 5.18: Arrhenius-Plot der Desorptionsrate df/dt als Funktion der inversen Temperatur während der Sublimation eines 45 nm dicken Argonfilms.

Da δf proportional zur Filmmasse ist (siehe Gleichung (3.16)), ist die zeitliche Ableitung df/dt ein Maß für die Desorptionsrate. In Abb. 5.18 ist in einem Arrhenius-Plot df/dt logarithmisch über der inversen Temperatur aufgetragen. Man erkennt, daß sich der Desorptionsprozeß gut durch ein Arrhenius-Gesetz

$$\frac{df}{dt} \propto \exp\left(-\frac{E_s}{k_B T}\right) \quad (5.7)$$

beschreiben läßt. E_s bezeichnet die Sublimationsenergie, die aus den Geradensteigungen in Abb. 5.18 ermittelt werden kann. Man findet $E_s \simeq 1020$ K; dies stimmt im Rahmen der Meßgenauigkeit von etwa 10% mit dem Wert 944 K für die Bindungsenergie E_B aus Tabelle 4.2 überein.

5.4.2 Argon-Neon-Mischung

Aus dem Desorptionsverhalten eines Edelgas-Gemisches lassen sich wichtige Informationen über die Zusammensetzung des Films gewinnen. In Abb. 5.19 ist die Frequenzänderung dargestellt, die beim Heizen bis auf 32 K an einem Argon-Neon-Film, der mit gleichen Partialdrücken von Argon und Neon hergestellt worden war, gemessen wurde. Bei etwa 7 – 8 K treten die ersten Schallgeschwindigkeitsänderungen auf, die deutlich über typische „Temperänderungen“ hinausgehen. Dies ist ein klares Indiz für die Desorption von Neon. Nach einigen Minuten bei 9.5 K konstant gehaltener Temperatur erreicht die Schallgeschwindigkeitszunahme eine Sättigung; $\delta f/f$ beträgt etwa ein Drittel des nach der Desorption des gesamten Films erreichten Werts. Da Argon-Atome zweimal schwerer als Neon-Atome sind, kann daraus — falls der Neonanteil des Films vollständig sublimiert ist — geschlossen werden, daß der Film zu gleichen Teilen aus Argon und Neon bestand. Der folgende geringe Schallgeschwindigkeitsanstieg Δ_f zwischen 10 und 25 K beruht auf strukturellen Umlagerungen des verbliebenen Argons; der Knick bei 20 K tritt auf, da die Temperatur in diesem Bereich langsamer erhöht wurde. Erst oberhalb von 25 K setzt wieder ein starker Anstieg von $\delta v/v$ ein, der auf das Abdampfen von Argon zurückzuführen ist; bei einer Temperatur von 32 K dauert die vollständige Desorption etwa drei Stunden.

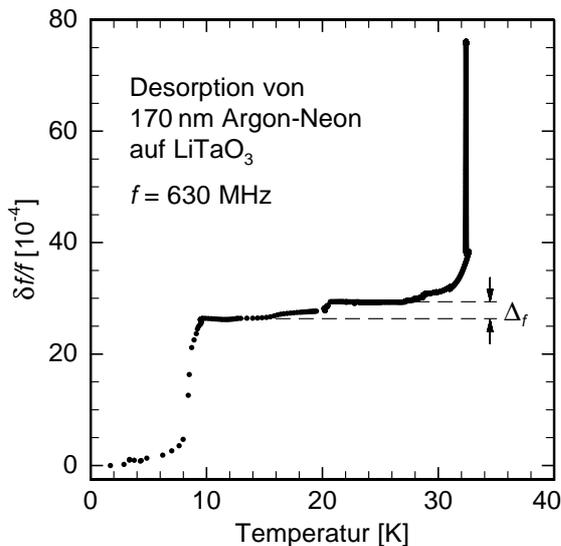


Bild 5.19: Verlauf von $\delta f/f$ während der Desorption eines 170 nm dicken Argon-Neon-Films, der mit gleichen Partialdrücken von Argon und Neon hergestellt wurde.

Im Prinzip läßt sich analog zu den Überlegungen, die zu dem in Abb. 5.12 dargestellten Verlauf von C/C_0 führten, die Veränderung der elastischen Konstanten berechnen, die nötig ist, um den Frequenzhub Δ_f zu erklären. Da sich die Dichte und die elastischen Konstanten vermutlich beträchtlich von den Werten eines entsprechenden reinen Argonfilms unterscheiden, ist es jedoch schwierig, vernünftige Annahmen über diese Werte zu machen, die als Grundlage für die nötigen numerischen Berechnungen dienen können. Ausichtsreicher erscheint, einen reinen Argonfilm mit einem Argon-Neon-Film zu vergleichen, dessen Masse nach der Desorption des Neonanteils mit der des reinen Films übereinstimmt. Zwei auf diese Weise präparierte Filme sollten nach langem Tempern knapp unterhalb der Sublimationstemperatur von Argon nahezu die gleichen Materialkonstanten aufweisen, so daß ein Referenzpunkt existiert, der den Vergleich beider Filme ermöglicht. Eine derartige

Vergleichsmessung konnte im Rahmen der zur Verfügung stehenden Zeit allerdings nicht durchgeführt werden.

5.5 Reversible Änderungen der Filmeigenschaften

5.5.1 Neon

Der diskutierte Neonfilm wurde bei einer Substrattemperatur von etwa 300 mK aufgedampft, die Filmdicke betrug 160 nm. Unmittelbar nach dem Aufdampfen des Films wurde der Temperaturverlauf von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ gemessen, bis bei einer Temperatur von etwa 1.5 K eine starke Schallgeschwindigkeitszunahme die ersten irreversiblen Strukturveränderungen des Films anzeigte. Danach wurde die Probe jeweils etwa eine Stunde bei 2.5 K und 3.2 K getempert sowie etwa 15 Stunden bei 4.2 K. Nach jedem Temperprozeß wurde erneut der Temperaturverlauf von Schallgeschwindigkeit und Dämpfung bis zur jeweiligen Temper-Temperatur gemessen, oberhalb dieser Temperatur setzten wieder Umlagerungsprozesse ein.

Der qualitative Verlauf dieser Messungen entspricht genau dem in Abb 5.7 für Argon dargestellten: Unterhalb der jeweiligen Temper-Temperatur erkennt man eine vollständig reversible Temperaturabhängigkeit der Meßgrößen. Eine weitere Temperaturerhöhung führt dann aber zu einer um mehr als eine Größenordnung höheren irreversiblen Zunahme der Schallgeschwindigkeit.

In Abb. 5.20 sind die reversiblen Temperaturverläufe nach den verschiedenen Temperstufen dargestellt. Die Daten wurden mit Hilfe des in Kap. 3.5 beschriebenen Skalierungsverfahrens auf Bulk-Werte umgerechnet.

Sowohl für den frisch aufgedampften als auch den bei 2.6 bzw. 3.2 K getemperten Film steigt die Schallgeschwindigkeit mit zunehmender Temperatur an, durchläuft ein Maximum und fällt bei höheren Temperaturen schließlich wieder ab. Das Abflachen bei tiefen Temperaturen beruht auf Selbstheizung des Oberflächenwellenbauteils aufgrund zu hoher Repetitionsraten und Intensitäten der Ultraschallpulse; bei niedrigeren Ultraschallleistungen findet man auch bei sehr tiefer Temperatur in guter Näherung eine logarithmische Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit von der Temperatur. Eine solche Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ ist typisch für Festkörper mit ungeordneter Struktur, die Tunnelsysteme mit einer breiten Energieverteilung aufweisen.

Bei sehr tiefen Temperaturen ist der Schallgeschwindigkeitsverlauf durch resonante Wechselwirkung von Phononen mit Tunnelsystemen bestimmt (siehe Gleichungen (2.12) und (2.15)); dies führt zu der beobachteten logarithmischen Temperaturabhängigkeit. Mit wachsender Temperatur wird die Wechselwirkung zwischen Phononen und Tunnelsystemen über Relaxationsprozesse zunehmend von Bedeutung, so daß sich nach Durchlaufen eines Maximums schließlich ein Abfall von $\delta v/v$ ergibt. Das Standardtunnelmodell für Gläser, das nur Ein-Phononen-Prozesse berücksichtigt, sagt auch hier eine logarithmische Temperaturabhängigkeit voraus, wobei sich die Steigungen bei einer logarithmischen Auftragung wie $2 : (-1)$ verhalten (experimentell wurde in niederfrequenten Messungen allerdings ein Verhältnis von $1 : (-1)$ gefunden (siehe z.B. [Cla94b, Rau95]); eine mögliche Erklärung

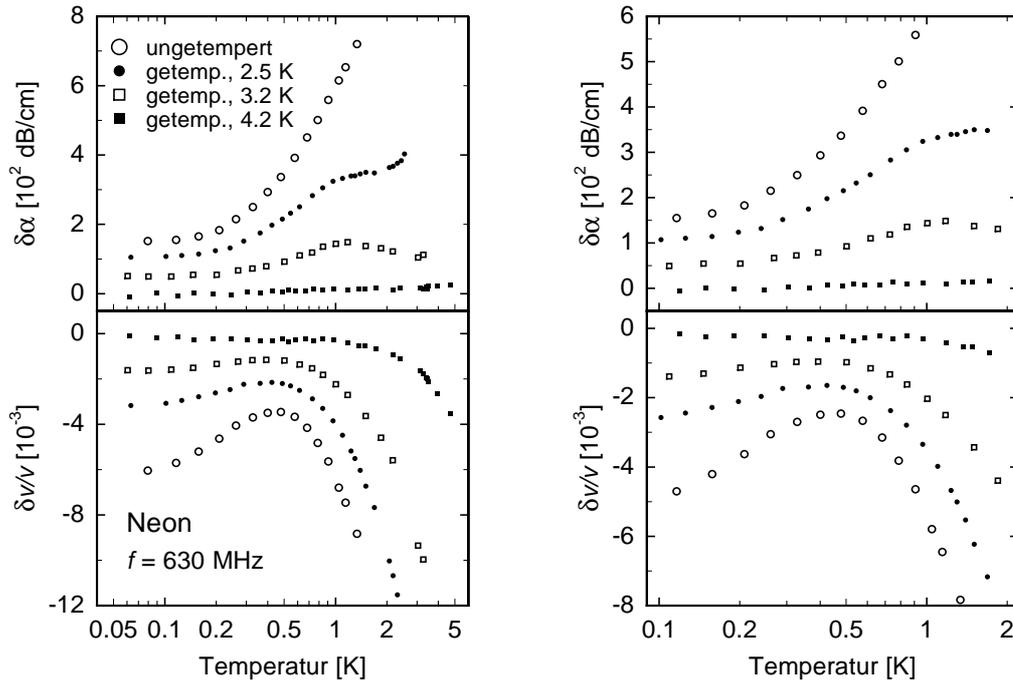


Bild 5.20: Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ für einen 160 nm dicken Neonfilm nach der Durchführung mehrerer Temperschnitte. Das linke Teilbild zeigt den gesamten gemessenen Temperaturbereich, das rechte den Bereich um das Schallgeschwindigkeitsmaximum. Die Substrattemperatur betrug während des Aufdampfens 300 mK. Die Kurven sind zur besseren Übersicht vertikal gegeneinander verschoben. Die Daten sind auf Bulk-Werte skaliert.

hierfür ist die Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander [Ens97]). Aus dem beobachteten Temperaturverlauf läßt sich schließen, daß neben dem direkten auch andere Relaxationsprozesse bereits bei relativ niedrigen Temperaturen wirksam sind.

Weiss *et al.* versuchten, dieses Verhalten der Edelgasfilme durch Berücksichtigung von thermisch aktivierten Prozessen zu beschreiben [Wei98]. Um ein Maximum von $\delta v/v$ bei etwa 1 K zu erhalten, muß eine Grundzustandsenergie E_0 des tunnelnden „Teilchens“ in einer Mulde des Doppelmuldenpotentials von 2.6 K angenommen werden (siehe Abb. 2.9). Um die hier beobachtete Maximumstemperatur von etwa 500 mK zu beschreiben, müßte ein noch kleinerer Wert von E_0 angenommen werden. Eine derartige Grundzustandsenergie besäße ein Teilchen in einer Potentialmulde von einigen Ångström Breite. Es scheint also plausibel anzunehmen, daß der Tunnelprozeß einer Translationsbewegung eines Atoms zwischen räumlich nahe beieinanderliegenden Gleichgewichtszuständen entspricht. Zum Vergleich sei erwähnt, daß in Quarzglas für E_0 ein Wert von etwa 12 K gefunden wurde [Tie92]. Eine physikalisch und numerisch vollauf befriedigende Beschreibung der Daten konnte bislang nicht gefunden werden; vermutlich müssen auch Mehr-Phononen-Relaxationsprozesse in Betracht gezogen werden, um die Meßergebnisse zu beschreiben.

Die Temperprozesse bei 2.6 K und 3.2 K führen jeweils zu einer Verringerung der Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit. Aus der Steigung des Anstiegs von $\delta v/v$ läßt sich die Konstante C (siehe Kap. 2.3.2) ermitteln. Dies ist bei den vorliegenden Daten nicht unproblematisch, da man zur Bestimmung der Steigung einerseits weit genug vom

Maximum entfernt sein muß, andererseits bei zu tiefen Temperaturen die Daten durch den Selbstheizungseffekt verfälscht sind, so daß die erhaltenen Werte von C mit einem verhältnismäßig großen Fehler behaftet sind. Es ergibt sich $C \simeq 5 \times 10^{-3}$, 2×10^{-3} und 1×10^{-3} für den ungetemperten Film bzw. nach dem Tempern bei 2.6 K und 3.2 K. Diese Werte sind alle vergleichsweise groß gegenüber dem in Gläsern gefundenen Wert von typischerweise 2×10^{-4} . Die Ursache hierfür könnten die niedrigen Werte der Dichte und der elastischen Konstanten der abschreckend kondensierten Filme sein (man beachte $C = \overline{P}\gamma^2/\rho v^2$). Die „Film-Werte“ von Neon aus Tab. 4.1 ergeben z.B. für die transversale Schallgeschwindigkeit einen Wert von nur 565 m/s. Nachdem der Film (sehr lange) bei einer Temperatur von 4.2 K gehalten wurde, scheint es (fast) keine Tunnelsysteme mehr zu geben, erst oberhalb von 1 K tritt ein signifikanter Abfall von $\delta v/v$ auf.

Die Dämpfung wird durch die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Phononen über Relaxationsprozesse bestimmt, resonante Wechselwirkung spielt bei den hier verwendeten relativ hohen Ultraschalleistungen keine Rolle. Es wird ein Anstieg von $\delta\alpha$ mit wachsender Temperatur beobachtet, der durch das Tempern immer schwächer wird. Durch das Tempern bei 2.6 K bildet sich eine Schulter im Temperaturverlauf aus, der im nächsten Tempersschritt bei 3.2 K schließlich in ein schwach ausgeprägtes Maximum übergeht. Der bei 4.2 K getemperte Film zeigt nur noch eine geringfügige Temperaturabhängigkeit der Dämpfung.

Offensichtlich wird durch das Tempern nicht nur die Zahl der Tunnelsysteme verringert, sondern es treten auch qualitative Veränderungen im Spektrum auf. Asymmetrische Tunnelsysteme mit größeren Werten von Δ scheinen besonders stark „weggetempert“ zu werden; eine quantitative Auswertung zur Bestimmung der Verteilungsfunktion der Tunnelparameter wurde allerdings nicht gemacht.

5.5.2 Argon

Abb. 5.21 zeigt die reversiblen Temperaturverläufe der Schallgeschwindigkeit und der Dämpfung eines bei 1.3 K aufgedampften 150 nm dicken Argonfilms unmittelbar nach dem Aufdampfen sowie nach Tempern bei 4 K, 7 K, 12 K und 20 K.

Auch hier wird der Verlauf von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ durch Wechselwirkung von Phononen mit Tunnelsystemen bestimmt. Die Schallgeschwindigkeit nimmt zunächst aufgrund resonanter Wechselwirkung logarithmisch mit der Temperatur zu (das Abflachen der Kurven beruht wieder auf zu hohen Ultraschallintensitäten), erreicht ein Maximum, wenn Relaxationsprozesse an Bedeutung gewinnen, und nimmt schließlich wieder ab. Die Dämpfung nimmt mit steigender Temperatur zu, bei dem bei 12 K getemperten Film wird (wie auch bei Neon nach Tempern bei 3.2 K) ein Maximum durchlaufen.

Bemerkenswert ist der Einfluß des Temperns auf die Meßgrößen. Die Steigung des logarithmischen Anstiegs von $\delta v/v$ wird zunächst größer, dann aber wieder kleiner. Man findet für C die Werte 4×10^{-3} (○), 9×10^{-3} (●), 8×10^{-3} (□) und 8×10^{-3} (■), die, wie schon bei Neon, deutlich über Glaswerten liegen (es sei nochmals an die oben erwähnte Problematik bei der Bestimmung von C erinnert). Gleichzeitig verschiebt sich die Temperatur des Maximums zu immer höheren Werten, und die Stärke des Abfalls von $\delta v/v$ nach dem Maximum wird immer geringer. Der Schallgeschwindigkeitsverlauf der bei 20 K getemperten

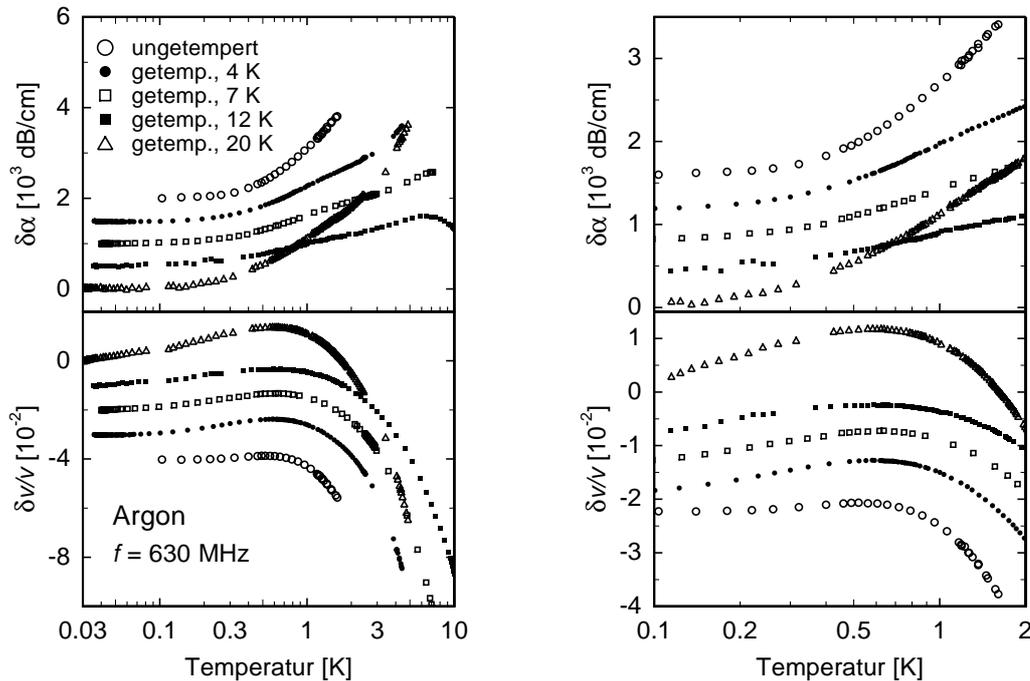


Bild 5.21: Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ für einen 150 nm dicken Argonfilm nach der Durchführung mehrerer Tempersschritte. Das linke Teilbild zeigt den gesamten gemessenen Temperaturbereich, das rechte den Bereich um das Schallgeschwindigkeitsmaximum. Die Substrattemperatur betrug während des Aufdampfens 1.3 K. Die Kurven sind zur besseren Übersicht vertikal gegeneinander verschoben. Die Daten sind auf Bulk-Werte skaliert.

Probe zeigt jedoch ein anderes Verhalten; es wird eine starke Zunahme der Steigungen auf beiden Seiten des Maximums, das sich zudem wieder zu tieferen Temperaturen verschiebt, beobachtet.

Die Temperaturabhängigkeit der Dämpfung wird durch das Tempern immer schwächer. Dies steht im Einklang mit der geringer werdenden Steigung des Verlaufs von $\delta v/v$ oberhalb des Maximums, da in diesem Temperaturbereich die Schallgeschwindigkeit ebenso wie die Dämpfung durch Relaxationsprozesse bestimmt ist. Nach dem Tempern bei 12 K durchläuft $\delta\alpha$ ein Maximum, ähnlich wie bei Neon nach Tempern bei 3.2 K. Die letzte Kurve (Δ) zeigt wieder ein gegenläufiges Verhalten, es tritt eine starke Zunahme der Dämpfung auf. Es sei allerdings bemerkt, daß schon während des Temprens bei 20 K eine Dämpfungszunahme auftritt (siehe Abb. 5.8), die, wie schon in Abschnitt 5.3 diskutiert, vermutlich auf der Ausbildung von Kristalliten beruht. Eine (fast) resonante Anregung von solchen Oberflächenstrukturen bewirkt eine „Verstärkung“ der beobachteten Effekte; eine Zunahme der Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ scheint also plausibel zu sein.

In Abb. 5.22 ist die Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ eines bei 12 K getemperten Argonfilms bei drei verschiedenen Meßfrequenzen dargestellt. Die unskalierten Meßgrößen zeigen eine starke Frequenzabhängigkeit. Die Temperaturabhängigkeit von Schallgeschwindigkeit und Dämpfung ist bei der 280 MHz-Mode gegenüber der bei 630 MHz gemessenen kaum wahrnehmbar. Nach der Durchführung des in Kap. 3.5 vor-

gestellten Skalierungsverfahrens sind die Effekte bei allen in Abb. 5.22 dargestellten Frequenzen von gleicher Größenordnung; die Steigung des logarithmischen Schallgeschwindigkeitsanstiegs ist frequenzunabhängig, wie es bei resonanter Wechselwirkung zwischen Phononen und Tunnelsystemen erwartet wird.

Der Anstieg von $\delta\alpha$ und $\delta v/v$ bei 280 MHz mit abnehmender Temperatur unterhalb von 100 mK beruht vermutlich auf durch Raumtemperaturschwankungen bedingten Drifteffekten, die bei niedrigen Frequenzen gegenüber den „Filmeffekten“ größeren Einfluß haben als bei höheren Frequenzen ($\delta\alpha_{\text{Drift}}$ ist frequenzunabhängig und $(\delta v/v)_{\text{Drift}}$ nimmt mit wachsender Frequenz ab, siehe Abb. 4.4; die „Filmeffekte“ sind bei hohen Frequenzen jedoch wesentlich ausgeprägter, siehe Abb. 5.22 (links)). Nicht ganz auszuschließen ist, daß der Dämpfungsanstieg mit abnehmender Temperatur durch resonante Absorption von Phononen verursacht wird, da bei dieser Frequenz mit einer kleineren Eingangsleistung gearbeitet wurde. Da aber auch in der Schallgeschwindigkeit ein Anstieg beobachtet wird, erscheinen Drifteffekte wahrscheinlicher.

Das Maximum in der Dämpfung zeigt, daß keine glasartige Verteilung der Tunnelparameter vorliegt.

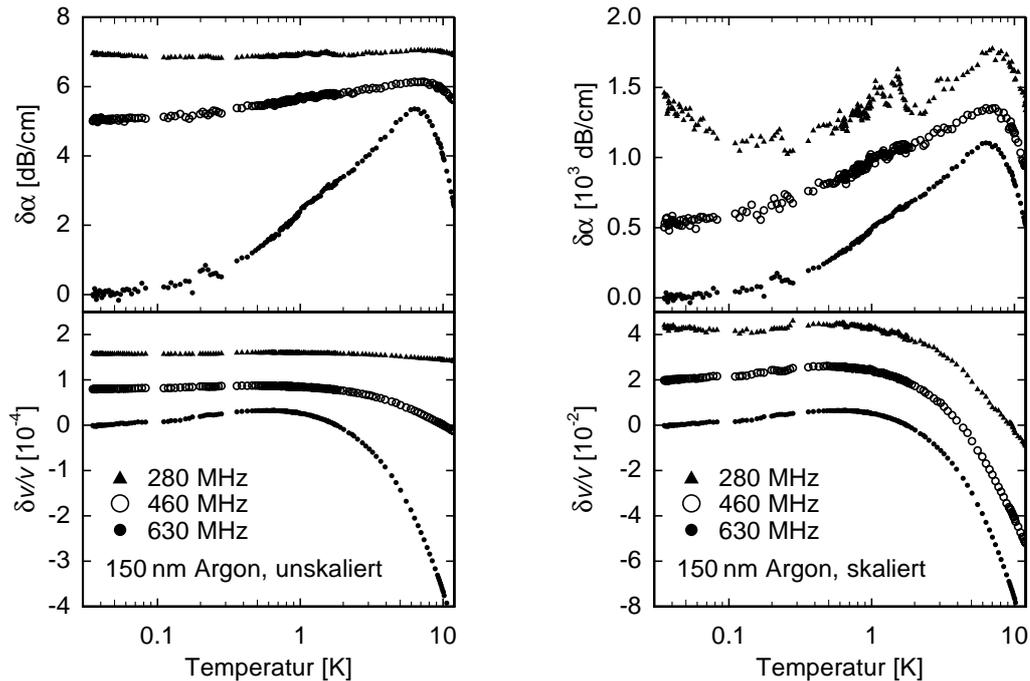


Bild 5.22: Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ für einen 150 nm dicken Argonfilm bei drei verschiedenen Frequenzen nach Tempern bei 12 K. Die Kurven sind vertikal gegeneinander verschoben. Das linke Teilbild zeigt die unskalierten Rohdaten, rechts sind die auf Bulk-Werte skalierten Daten dargestellt.

5.5.3 Argon-Neon-Mischung

Abb. 5.23 zeigt den reversiblen Teil des Temperaturverlaufs von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ eines 170 nm dicken Argon-Neon-Films, der zu gleichen Teilen aus Argon und Neon besteht (siehe Abschnitt 5.4.2), unmittelbar nach dem Aufdampfen sowie nach Tempern bei 4.3 K, 9.5 K,

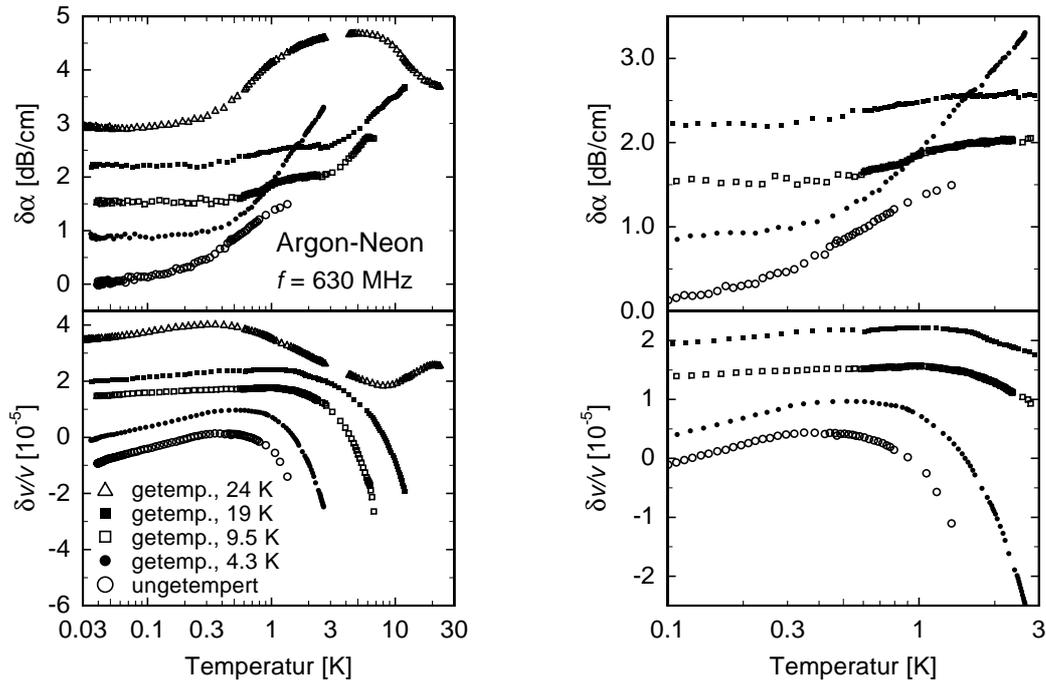


Bild 5.23: Temperaturabhängigkeit von $\delta v/v$ und $\delta\alpha$ für einen 170 nm dicken Argon-Neon-Film nach der Durchführung mehrerer Temperschnitte. Das linke Teilbild zeigt den gesamten gemessenen Temperaturbereich, das rechte den Bereich um das Schallgeschwindigkeitsmaximum. Die Substrattemperatur betrug während des Aufdampfens 1.4 K. Die Kurven sind zur besseren Übersicht vertikal gegeneinander verschoben. Dargestellt sind unskalierte Rohdaten.

19 K und 24 K.

Man beachte, daß in Abb. 5.23 unskalierte Daten dargestellt sind, da aus den durchgeführten Aufdampfvorgängen von Argon-Neon-Mischungen die für die Skalierung benötigten Werte der elastischen Konstanten und der Filmdichte nicht ermittelt werden konnten. Der frisch aufgedampfte und der bei 4.3 K getemperte Film bestehen zu gleichen Teilen aus Argon und Neon, so daß er im Gegensatz zu den bisher diskutierten reinen Neon- und Argonfilmen eine amorphe Struktur aufweist. Qualitativ beobachtet man die gleiche, durch Wechselwirkung von Phononen mit Tunnelsystemen bestimmte Temperaturabhängigkeit der Meßgrößen wie bei den reinen Edelgasfilmen. Die Schallgeschwindigkeit steigt logarithmisch mit der Temperatur an, durchläuft ein Maximum und fällt schließlich wieder ab; es wird jedoch — wie bei den reinen Filmen — kein logarithmischer Abfall beobachtet, wie man es bei Gläsern in diesem Temperaturbereich erwartet, falls direkte Relaxationsprozesse dominieren. Die Dämpfung nimmt mit wachsender Temperatur zu.

Der erste Tempervorgang bei 4.3 K bewirkt nur verhältnismäßig geringe Veränderungen; die Steigung C' des durch resonante Wechselwirkung bestimmten Anstiegs der Schallgeschwindigkeit verringert sich von 1.1×10^{-5} auf 1.0×10^{-5} . Die Temperaturabhängigkeit der Dämpfung wird unterhalb von 500 mK schwächer, bei höheren Temperaturen nimmt sie zu.

Da während des Temperns bei 9.5 K das im Film enthaltene Neon desorbiert, verringert sich die Filmmasse etwa um ein Drittel. Dies bewirkt eine starke Reduktion der auftretenden

den Effekte, die Steigung des Schallgeschwindigkeitsanstiegs beträgt nur noch 2.4×10^{-6} . Die Relaxationseffekte setzen „später“ ein, das Maximum von $\delta v/v$ wird erst oberhalb von 1 K erreicht (bei reinen Argonfilmen lag das Maximum stets unterhalb von 1 K). Auch die Temperaturabhängigkeit von $\delta\alpha$ wird schwächer; auffallend ist die Schulter bei etwa 3 K, der bei reinen Argonfilmen nicht beobachtet wurde. Hierbei könnte es sich um das nach dem Tunnelmodell erwartete Dämpfungsplateau und den Anstieg aufgrund von thermisch aktivierten Prozessen handeln. Diese Beobachtungen liefern Hinweise auf Strukturunterschiede zwischen Argonfilmen, die durch Desorption von Neon aus gemischten Filmen entstanden, und solchen, die nur mit Argon präpariert wurden.

Durch das Tempern bei 19 K wächst C' auf 3.7×10^{-6} an, der Schallgeschwindigkeitsabfall nach Durchlaufen des Maximums ist jedoch schwächer ausgeprägt als nach dem Tempern bei 9.5 K. Am Dämpfungsverlauf ändert sich wenig, lediglich der Anstieg nach der Schulter ist etwas flacher.

Der letzte Tempervorgang bei 24 K bewirkt, ähnlich wie bei dem im letzten Abschnitt beschriebenen Argonfilm nach Tempern bei 20 K, eine Zunahme der Schallgeschwindigkeitsänderungen auf beiden Seiten des Maximums, das beträchtlich nach „links“ verschoben wurde; für C' findet man den Wert 6.7×10^{-6} . Bei 8 K tritt ein Wiederanstieg von $\delta v/v$ auf, der bisher aber noch nicht verstanden ist. Die Temperaturabhängigkeit der Dämpfung ist unterhalb von 3 K wesentlich ausgeprägter, anstelle der Schulter liegt nun allerdings ein Maximum bei etwa 5 K vor.

5.5.4 Zusammenfassende Diskussion

Sowohl in den polykristallinen reinen Edelgasfilmen als auch in den amorphen Mischungen ist die Temperaturabhängigkeit von Schallgeschwindigkeit und Dämpfung vorwiegend durch Wechselwirkung von Phononen mit Tunnelsystemen bestimmt. Bei allen Filmen wurde ein durch resonante Wechselwirkung bedingter logarithmischer Anstieg von $\delta v/v$ beobachtet sowie ein Maximum, wenn Relaxationsprozesse an Bedeutung gewinnen. Es folgt ein nicht-logarithmischer Abfall der Schallgeschwindigkeit; dies bedeutet, daß bereits bei verhältnismäßig tiefen Temperaturen thermisch aktivierte Prozesse und/oder Mehrphononenprozesse berücksichtigt werden müssen. Die Dämpfung wächst mit zunehmender Temperatur an, teilweise wird auch eine Schulter oder ein Maximum durchlaufen.

Durch Tempern wird in den meisten Fällen der Einfluß der Tunnelsysteme auf die Meßgrößen verringert; dies ist z.B. erklärbar durch Tunnelsysteme in Kongruenzen, die während des Temperns nach und nach verschwinden. Teilweise wurde jedoch eine Vergrößerung der Effekte beim Tempern beobachtet; dies ist zunächst überraschend und bisher noch unverstanden. Es wurden auch Hinweise darauf gefunden, daß sich die Verteilungsfunktion (2.6) während der strukturellen Umlagerungen der Edelgasfilme ändert. Tunnelsysteme mit größeren Asymmetrieenergien scheinen durch den Temperprozeß bevorzugt „vernichtet“ zu werden. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt können jedoch nur Vermutungen geäußert werden; um weitergehende (und vor allem quantitative) Aussagen treffen zu können, sind noch weitere, systematische Messungen nötig.

6. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden akustische Untersuchungen an abschreckend kondensierten Edelgasfilmen durchgeführt. Solche Filme stellen ein einfaches Modellsystem für amorphe und polykristalline Festkörper dar. Durch Verwendung verschiedener Edelgase und deren Mischungen lassen sich Systeme unterschiedlicher Struktur sowie verschiedenen Werten für Parameter wie Masse, Bindungsenergie und Größe der Atome herstellen, ohne die Natur der Bindung zu ändern. Es besteht daher die Zuversicht, durch Untersuchungen dieser Filme beispielsweise Hinweise auf die Ursache für die Universalität der Gläser zu finden.

Die Messungen erfolgten in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten, der das Erreichen von Probertemperaturen bis zu etwa 20 mK ermöglichte. Die Probenpräparation erfolgte mit Hilfe eines geeigneten Kapillarsystems aus der Gasphase. Nach der Durchführung der Messungen konnte der Film durch Heizen vom Substrat entfernt werden; dies erlaubte die Messung an verschiedenen Proben — auch unterschiedlicher Zusammensetzung — ohne den Kryostaten zum Probenwechsel öffnen zu müssen.

Die Untersuchungen wurden mit akustischen Oberflächenwellen durchgeführt. Dazu wurde eine Ultraschallapparatur in Betrieb genommen und teilweise neu aufgebaut. Durch ein geeignet gewähltes Transducer-Design der Oberflächenwellenbauteile war es möglich, außer der Grundmode von 95 MHz auch die höheren Harmonischen bei 280 MHz, 460 MHz und 630 MHz zu nutzen. Zu diesem Zweck wurde eine Software entwickelt, die die simultane Messung der Schallgeschwindigkeit und der Dämpfung bei jeweils bis zu sechs Meßfrequenzen auf zwei verschiedenen Oberflächenwellen-Laufstrecken ermöglicht; hierdurch konnten Änderungen der Adsorbatstruktur auf unterschiedlichen Längen- und Zeitskalen beobachtet werden. Die Frequenzabhängigkeit der Meßgrößen erlaubte außerdem, zwischen „Substrat-“ und „Filmeffekten“ zu unterscheiden, da je nach Eindringtiefe der Oberflächenwelle in das Substrat eine unterschiedliche Sensitivität auf Einflüsse des Adsorbats besteht.

Um Messungen bei verschiedenen Frequenzen miteinander vergleichen zu können, wurde ein Skalierungsverfahren vorgestellt, das, ausgehend von einer numerischen Berechnung der durch die Oberflächenwelle bedingten Teilchenauslenkungen, eine Umrechnung der Meßdaten auf Werte erlaubt, die Experimente mit Volumenwellen ergeben hätten. Die Voraussetzung für eine zuverlässige Skalierung ist die Kenntnis der Dichte und der elastischen Konstanten des Adsorbats. Diese wurden in einem Selbstkonsistenz-Verfahren durch den Vergleich des experimentell bestimmten Schallgeschwindigkeitsverlaufs während des Film-Aufdampfprozesses mit den Ergebnissen einer numerischen Berechnung bestimmt. Gegenüber den Werten von Volumenkristallen wurde bei den untersuchten Filmen eine deutliche Reduktion der Dichte (um etwa 30%) und der elastischen Konstanten, insbesondere bei c_{44} (um bis zu 70%), gefunden.

Es wurden Messungen an reinen Neon- und Argonfilmen mit einer polykristallinen Struktur sowie an amorphen Filmen aus Mischungen von Argon und Neon durchgeführt.

In allen Filmen konnte die Existenz von Tunnelsystemen gezeigt werden. Die Anzahl der Tunnelsysteme wurde durch Tempern bei immer höheren Temperaturen fortwährend verkleinert. Hierbei sind vermutlich im Film vorhandene Korngrenzen und Poren wichtig, die Tunnelsysteme enthalten. Der Temperprozeß führt zu einer kompakteren Struktur, die wahrscheinlich weniger Tunnelsysteme enthält. Überraschenderweise wurde jedoch z.B. bei reinen Argonfilmen zunächst eine Zunahme der Zahl der Tunnelsysteme beim Tempern beobachtet. Um eine genaue Beschreibung dieser Effekte geben zu können und evtl. sogar zu einem mikroskopischen Bild der Tunnelsysteme in den Edelgasadsorbaten zu kommen, sind allerdings noch viele weiterführende systematische Untersuchungen der bisher aufgedeckten Effekte nötig.

Während des Temporns von Argonfilmen wurden zwei Prozesse gefunden, die den zeitlichen Verlauf von Schallgeschwindigkeit und Dämpfung bei konstanter Temperatur bestimmen. Bei verhältnismäßig tiefen Temperaturen trat eine Zunahme der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung $\delta v/v$ auf, die sich durch ein Wachstum der elastischen Konstanten erklären läßt. Numerische Berechnungen zeigten, daß sich die elastischen Konstanten beim Tempern bei 20 K (die Sublimationstemperatur von Argon liegt etwa bei 25 K) gegenüber den Werten des frisch aufgedampften Films fast verdoppeln, aber immer noch um einen Faktor 1.5 – 2 unter den Werten von Volumenkristallen liegen. Bei höheren Temperaturen wurde bei langen Temperprozessen eine Abnahme von $\delta v/v$ sowie eine Zunahme der Dämpfung beobachtet; hierfür ist vermutlich die Ausbildung von Kristalliten von bis zu einigen μm Ausdehnung verantwortlich, die resonant an Oberflächenwellen ankoppeln können und/oder Streuzentren darstellen.

Die Grenze der verwendeten Meßmethode ist sicherlich darin zu sehen, daß der Anteil der Verzerrungsenergie der Schallwelle im Adsorbat stark frequenzabhängig ist. Wird die Schichtdicke so gewählt, daß man bei der 630 MHz-Mode eine gute Sensitivität erhält, so ist bei 95 MHz fast nichts zu messen. Bei einer auf 95 MHz abgestimmten Filmdicke ist jedoch die Dämpfung bei 630 MHz so groß, daß keine Messung mehr möglich ist. Daher können im Hinblick auf die Zahl und Dynamik der Tunnelsysteme i.a. nur aus zwei oder maximal drei Moden brauchbare Informationen gewonnen werden, sofern nicht die Empfindlichkeit und Stabilität der Messung deutlich gesteigert werden kann. Erste Messungen mit einem Speicheroszilloskop haben hierbei bereits erfolgversprechende Ergebnisse geliefert. Hilfreich könnte auch die Verwendung eines zweiten Oberflächenwellenbauteils mit einer höheren Grundfrequenz sein, um die Einfügungsdämpfung bei den hohen Meßfrequenzen zu reduzieren.

A. Anhang

A.1 Berechnung der Korrekturfaktoren

Hier soll kurz die Berechnung der in Kap. 3.5 eingeführten Skalierungsfaktoren mit Hilfe der Programme „Wellen“ [Gen94] und „Genplot“ [Tho98] beschrieben werden.

Das Programm „Wellen“ berechnet Schallgeschwindigkeit und Teilchenauslenkungen von akustischen Wellen in piezoelektrischen Schichtstrukturen. Die im folgenden benötigten Größen werden bei Berechnung einer „Einzellösung“ in der „Protokoll“-Datei abgespeichert. Den ersten Zeilen dieser Datei kann u.a. die Schallgeschwindigkeit v entnommen werden:

```
v                = 3145.05911
det M(v)         = 8.6209295e-26
Probe            = 8.18517441e-12
Dimension von M : 12 x 12
```

Der Rest der Datei enthält für jede Schicht des berechneten Systems acht Partialwellen, deren Summe die vollständige Teilchenauslenkung in der entsprechenden Schicht ergibt. Die Partialwellen sind komplexe Größen und enthalten Betrag und Phase der Teilchenauslenkung. u_1 – u_3 bezeichnen hierbei die drei räumlichen Komponenten, u_4 ist das elektrische Feld.

Auslenkungen in AR_ISOTR.MAT

1. Partialwelle

```
u1 = 4.75174481e-14 * exp(i*3.14159265      )
u2 = 0              * exp(i*0                )
u3 = 8.40374388e-15 * exp(i*7.97314426e-13   )
u4 = 0              * exp(i*0                )
* exp(i*189790.584   *z*(5.65431894       +i*0      ))
```

2. Partialw ...

⋮

Auslenkungen in R_LITA03.MAT

1. Partialwelle

```
u1 = 7.789 ...
```

Die Daten der „Protokoll“-Datei müssen in das folgende „Genplot“-Makro, das die Berechnung von K_{long} und K_{trans} durchführt, übernommen werden:

```

setv v 3145.05911          /* Schallgeschwindigkeit
setv frequenz 95e6        /* Frequenz
setv filmdicke 150e-9     /* Filmdicke
setv substrattiefe 100e-6 /* Tiefe, bis zu der gerechnet werden soll
setv lambda v/frequenz    /* Wellenlänge
setv k 2*pi/lambda        /* Wellenvektor
setv sub_pts 5000         /* Zahl der berechneten Punkte im Substrat
setv film_pts 500         /* Zahl der berechneten Punkte im Film
alloc i complex           /* Wellen verwendet „i“ für die imaginäre Einheit,
let i j                   /* Genplot aber „j“.

```

Die Daten der 1-Komponente der ersten Partialwelle im Film werden zur Definition der Funktion $\text{film11}(z)$ verwendet:

```

def film11(z) = 4.75174481e-14*exp(i*3.14159265)
               *exp(i*189790.584*z*(5.65431894+i*0))

```

Entsprechend werden die Funktionen $\text{film12}(z)$ – $\text{film18}(z)$ definiert; die Summe aller Partialwellen ergibt schließlich die Teilchenauslenkung u_1 im Film:

```

def filmu1(z) = film11(z)+film12(z)+film13(z)+film14(z)
               +film15(z)+film16(z)+film17(z)+film18(z)

```

Auf die gleiche Weise werden die Funktionen $\text{filmu3}(z)$, $\text{subu1}(z)$ und $\text{subu3}(z)$ definiert, die u_3 im Film bzw. u_1 und u_3 im Substrat beschreiben (u_2 verschwindet bei Rayleighwellen):

```

def filmu3(z) = film31(z)+film32(z)+film33(z)+ ...
def subu1(z) = sub11(z)+sub12(z)+sub13(z)+ ...
def subu3(z) = sub31(z)+sub32(z)+sub33(z)+ ...

```

Diesen Funktionen liegt folgende Bedeutung der z -Koordinate zugrunde: Im Film bezeichnet $z = 0$ die Oberfläche der Schicht und $z = \text{filmdicke}$ die Grenze zwischen Film und Substrat. Im Substrat, das sich bis $z = +\infty$ erstreckt, gibt $z = 0$ die Grenzfläche an.

Es sollen jetzt Datensätze angelegt werden, die sich auf eine „einheitliche“ z -Koordinate beziehen. Das Substrat erstreckt sich von $z = -\text{substrattiefe}$ bis $z = 0$, der Film von $z = 0$ bis $z = \text{filmdicke}$:

```

alloc sub_u1 c_array sub_pts /* Teilchenauslenkung  $u_1$  im Substrat
alloc sub_u3 c_array sub_pts /* Teilchenauslenkung  $u_3$  im Substrat
alloc sub_d array sub_pts    /*  $x_3$ -Koordinate im Substrat
alloc sub_d1u3 c_array sub_pts /* Ableitung  $\partial u_3 / \partial x_1$  im Substrat
alloc sub_d3u1 c_array sub_pts /* Ableitung  $\partial u_1 / \partial x_3$  im Substrat
alloc sub_s11 c_array sub_pts /* Verzerrung  $S_{11}$  im Substrat
alloc sub_s33 c_array sub_pts /* Verzerrung  $S_{33}$  im Substrat

```

```

alloc sub_s13 c_array sub_pts      /* Verzerrung  $S_{13}$  im Substrat
alloc sub_real array sub_pts       /* Realteil für Zwischenrechnungen
alloc sub_imag array sub_pts       /* Imaginärteil für Zwischenrechnungen

alloc film_u1 c_array film_pts     /* Teilchenauslenkung  $u_1$  im Film
alloc film_u3 c_array film_pts     /* Teilchenauslenkung  $u_3$  im Film
alloc film_d array film_pts        /*  $x_3$ -Koordinate im Film
alloc film_d1u3 c_array film_pts   /* Ableitung  $\partial u_3/\partial x_1$  im Film
alloc film_d3u1 c_array film_pts   /* Ableitung  $\partial u_1/\partial x_3$  im Film
alloc film_s11 c_array film_pts    /* Verzerrung  $S_{11}$  im Film
alloc film_s33 c_array film_pts    /* Verzerrung  $S_{33}$  im Film
alloc film_s13 c_array film_pts    /* Verzerrung  $S_{13}$  im Film
alloc film_real array film_pts     /* Realteil für Zwischenrechnungen
alloc film_imag array film_pts     /* Imaginärteil für Zwischenrechnungen

create x -range 0 filmdicke -points film_pts
let film_u1 filmu1(filmdicke-x)
let film_u3 -filmu3(filmdicke-x)

```

An dieser Stelle sei auf das Minuszeichen in der letzten Zeile hingewiesen. Es ist nötig, um die richtige Phasendifferenz zwischen u_1 und u_3 zu erhalten, wie sie auch in der Teilchenauslenkungsdatei von „Wellen“ abgespeichert wird.

```

let film_d x
let film_s11 j*k*film_u1          /*  $\partial/\partial x_1$  bedeutet gerade Multiplikation mit  $ik$ 
let y real(film_u1)              /*  $\partial/\partial x_3$  wird numerisch berechnet
transform dy/dx
let film_real y
let y imag(film_u1)
transform dy/dx
let film_imag y
let film_d3u1 film_real+j*film_imag

let film_d1u3 j*k*film_u3
let y real(film_u3)
transform dy/dx
let film_real y
let y imag(film_u3)
transform dy/dx
let film_imag y
let film_s33 film_real+j*film_imag

let film_s13 0.5*(film_d1u3+film_d3u1)

```

```

create x -range -substrattiefe 0 -points sub_pts
let sub_u1 subu1(-x)
let sub_u3 -subu3(-x)

let sub_d x

let sub_s11 j*k*sub_u1

let y real(sub_u1)
transform dy/dx
let sub_real y
let y imag(sub_u1)
transform dy/dx
let sub_imag y
let sub_d3u1 sub_real+j*sub_imag

let sub_d1u3 j*k*sub_u3

let y real(sub_u3)
transform dy/dx
let sub_real y
let y imag(sub_u3)
transform dy/dx
let sub_imag y
let sub_s33 sub_real+j*sub_imag

let sub_s13 0.5*(sub_d1u3+sub_d3u1)

```

Mit Hilfe der Verzerrungen S_{11} , S_{33} und S_{13} lassen sich die potentielle Energie berechnen und die Gleichungen (3.22) und (3.23) zur Bestimmung der Korrekturfaktoren auswerten. Das Integral über die Energie der longitudinalen Verzerrungen im Film wird beispielsweise folgendermaßen berechnet:

```

setv film_c11 1.7e9 /* elastische Konstanten im isotropen Film
setv film_c44 3.6e8
setv film_c12 film_c11-2*film_c44

alloc film_pot_l c_array film_pts /* Auswertung von (3.20)
let film_pot_l film_c11*abs(film_s11)^2
let film_pot_l film_pot_l+film_c12*film_s11*conj(film_s33)
let film_pot_l film_pot_l+film_c12*film_s33*conj(film_s11)
let film_pot_l film_pot_l+film_c11*abs(film_s33)^2
let film_pot_l film_pot_l*0.5

let npt film_pts /* Berechnung des Integrals über  $E_{\text{pot}}^{\text{long}}$ 
let x film_d
let y film_pot_l
transform integral
setv int_film_pot_l y(npt-1)

```

A.2 Meßgeräte und Gase

Gerät	Marke und Modell	Spezifikation
Signal Generator	Hewlett Packard 8648 A	100 kHz – 1000 MHz
Synthesizer (als Pulsgenerator)	Stanford Research Systems DS 345	10 MHz, 40 MHz sampl.
Box-Car-Integrator	Stanford Research Systems SR 250	
2 Schalter	General Microwave M 864BH, O. 25	0.1 – 18 GHz
Dämpfungsglied (variabel)	Wavetek P 1106	0 – 63 dB
2 Umschalter	General Microwave F 9220	0.2 – 4 GHz
2 Verstärker	Miteq AFS-00100200-15-ULN	0.1 – 2 GHz, 36 dB
Dämpfungsglied (fest)	Radiall 416303	0 – 12.4 GHz, 3 dB
Dämpfungsglied (fest)	Radiall 416306	0 – 12.4 GHz, 6 dB
Leistungsteiler	Macom T-1000-SMA	10 – 1000 MHz
Mischer	Pulsar Microwave X2L-08-411	10 – 1500 MHz
Tiefpaß	Institut für Angewandte Physik	1 MHz
Oszilloskop	Hameg HM 1005	

Tab. A.1: Auflistung der verwendeten Meßelektronik

Gerät	Marke und Modell
Widerstandsmeßbrücke	Linear Research Inc. LR-700
Multiplexer	Linear Research Inc. LR-720-8
Power Booster	Linear Research Inc. LR-730-50 W

Tab. A.2: Auflistung der verwendeten Thermometrie-Geräte

Gas	Reinheit	Hersteller
Argon	5.0	Messer Griesheim
Neon	4.8	Messer Griesheim

Tab. A.3: Auflistung der verwendeten Gase

Literaturverzeichnis

- [And72] P. W. Anderson, B. I. Halperin, C. M. Varma, *Anomalous low-temperature thermal properties of glasses and spin glasses*, *Philos. Mag.* **25** (1972) 1.
- [Aul90] B. A. Auld, *Acoustic fields and waves in solids* **2**, 2. Auflage (Robert E. Krieger Publ. Comp., Malabar, Florida, 1990).
- [Bie84] M. Bienfait, J. L. Seguin, J. Suzanne, E. Lerner, J. Krim, J. G. Dash, *Complete and incomplete wetting of krypton and oxygen on graphite: Reentrant type-2 growth on a scale of substrate strength*, *Phys. Rev. B* **29** (1984) 983.
- [Cla94a] J. Claßen, *Strukturelle Relaxation in physisorbierten Wasserstoff- und Edelgasfilmen — Untersuchungen mit akustischen Oberflächenwellen*, Dissertation, Universität Heidelberg (1994).
- [Cla94b] J. Classen, C. Enss, C. Bechinger, G. Weiss, S. Hunklinger, *Low frequency acoustic and dielectric measurements on glasses*, *Ann. Phys.* **3** (1994) 315.
- [Cla98] J. Classen, J. Meier, M. Heitz, S. Hunklinger, *Annealing effects in quench-condensed neon and argon films*, erscheint in *Physica B* (1999), Beitrag zur *Ninth international conference on phonon scattering in condensed matter*, Lancaster, England, 26. – 31. Juli 1998.
- [Deb12] P. Debye, *Zur Theorie der spezifischen Wärmen*, *Ann. Phys.* **39** (1912) 788.
- [Egu83] A. G. Eguiluz, A. A. Maradudin, *Frequency shift and attenuation length of a Rayleigh wave due to surface roughness*, *Phys. Rev. B* **28** (1983) 728.
- [Ens97] C. Enss, S. Hunklinger, *Incoherent tunneling in glasses at very low temperatures*, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 2831.
- [Far72] G. W. Farnell, E. T. Adler, *Elastic wave propagation in thin layers*, in *Physical Acoustics — Principles and Methods* **9**, Ed.: R. N. Thurston, W. P. Mason (Academic Press, New York, 1972) 35.
- [Far77] G. W. Farnell, *Elastic surface waves* in *Surface wave filters — Design, construction and use*, Ed.: H. Matthews (Wiley& Sons, New York, 1977) 1.
- [Far78] G. W. Farnell, *Types and properties of surface waves*, in *Topics in applied physics* **24**, Ed.: A. A. Oliner (Springer, Berlin, 1978) 13.
- [Gen94] W. Gentes, *Numerische Berechnung von Schallwellen in piezoelektrischen Mehrschichtsystemen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (1994).
- [Heu97] A. Heuer, *Deformation potential in glasses as a measure for disorder*, *Phys. Rev. B* **56** (1997) 161.

-
- [Hor88] L. Hornig, N. Schnur, G. Weiss, S. Hunklinger, F. Baumann, *Acoustic measurements on vapour condensed Xe-films*, *Phys. Lett. A* **132** (1988) 55.
- [Hor89] L. Hornig, *Untersuchungen akustischer Eigenschaften an kondensierten Argon-Xenon-Mischungen bei tiefen Temperaturen*, Dissertation, Universität Heidelberg (1989).
- [Hor92] L. Hornig, G. Weiss, S. Hunklinger, F. Baumann, *Low temperature ultrasonic properties of vapour condensed films of argon-xenon mixtures*, *Z. Phys. B* **86** (1992) 217.
- [Hun74] S. Hunklinger, *Proc. Ultrasonic Symp. (IEEE)* (1974) 443.
- [Hun76] S. Hunklinger, W. Arnold, *Ultrasonic properties of glasses at low temperatures in Physical Acoustics* **12**, Ed.: R. N. Thurston, W. P. Mason (Academic Press, New York, 1976) 155.
- [Hun77] S. Hunklinger, *Adv. Solid State Physics XVII*, Ed.: J. Treusch (Vieweg, Braunschweig, 1977) 1.
- [Hun94] S. Hunklinger, *Festkörperphysik, Notizen zur Vorlesung, WS 94/95*, Universität Heidelberg (1994).
- [Kor77] P. Korpiun, E. Lüscher, *Thermal and elastic properties at low pressure*, in *Rare gas solids* **2**, Ed.: M. L. Klein, J. A. Venables (Academic Press, London, 1977) 729.
- [Kri84] J. Krim, J. G. Dash, J. Suzanne, *Triple-point wetting of light molecular gases on Au(111) surfaces*, *Phys. Rev. Lett.* **52** (1984) 640.
- [Lan91] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Lehrbuch der theoretischen Physik Band VII, Elastizitätstheorie* (Akademie-Verlag Berlin, 7. Auflage, 1991)
- [Lea80] H. J. Leamy, G. H. Gilmer, A. G. Dirks, *The microstructure of vapour deposited thin films*, in *Current topics in material science* **6**, Ed.: E. Kaldis (North-Holland Publ. Comp., Amsterdam, 1980) 309.
- [Men90] H. Menges, *Spezifische Wärme von stark gestörten und amorphen van der Waals-Festkörpern: abschreckend kondensierte Edelgase und Edelgasmischungen*, Dissertation, Universität Karlsruhe (1990).
- [Men91] H. Menges, H. v. Löhneysen, *Specific heat of disordered and amorphous rare-gas solids: quench-condensed pure and binary films*, *J. Low Temp. Phys.* **84** (1991) 237.
- [Mig86] A. D. Migone, J. G. Dash, M. Schick, O. E. Vilches, *Triple-point wetting of neon films*, *Phys. Rev. B* **34** (1986) 6322.
- [Mil77] R. R. Milsom, M. Redwood, N. H. C. Reilly, *The Interdigital Transducer in Surface wave filters — Design, construction and use*, Ed.: H. Matthews (Wiley & Sons, New York, 1977) 55.

- [Mül85] K. H. Müller, *A computer model for postdeposition annealing of porous thin films*, *J. Vac. Sci. Technol. A* **3** (1985) 2089.
- [Mül87] K. H. Müller, *Stress and microstructure of sputter-deposited thin films: Molecular dynamics investigations*, *J. Appl. Phys* **62** (1987) 1796.
- [Pan82] R. Pandit, M. Schick, M. Wortis, *Systematics of multilayer adsorption phenomena on attractive substrates*, *Phys. Rev. B* **26** (1982) 5112.
- [Phi72] W. A. Phillips, *Tunneling states in amorphous solids*, *J. Low Temp. Phys.* **7** (1972) 351.
- [Ple91] V. P. Plessky, A. W. Simonian, *Rayleigh wave reflection and scattering on a resonator*, *Phys. Lett. A* **155** (1991) 281.
- [Rau95] S. Rau, C. Enss, S. Hunklinger, *Acoustic properties of oxide glasses at low temperatures*, *Phys. Rev. B* **52** (1995) 7179.
- [Rie90] E. Riedel, *Allgemeine und Anorganische Chemie*, Walter de Gruyter, Berlin (1990).
- [Sch86] M. Schneider, A. Rahman, I. K. Schuller, *Vapour-phase growth of amorphous materials: a molecular-dynamics study*, *Phys. Rev. B* **34** (1986) 1802.
- [Smi81] W. R. Smith, *Circuit-model analysis and design of interdigital transducers for surface acoustic wave devices*, in *Physical Acoustics* **15**, Ed.: R. N. Thurston, W. P. Mason (Academic Press, New York, 1981) 99.
- [Ste70] R. B. Stephens, *Phys. Rev. B* **8** (1970) 201.
- [Tho98] M. Thompson, *Data analysis and plotting package for scientists and engineers*, Computer Graphic Service, New York (1998).
- [Tie92] D. Tielbörger, R. Merz, R. Ehrenfels, S. Hunklinger, *Thermally activated relaxation processes in vitreous silica: An investigation by Brillouin scattering at high pressures*, *Phys. Rev. B* **45** (1992) 2750.
- [Wei98] G. Weiss, K. Eschenröder, J. Classen, S. Hunklinger, *Ultrasonic measurements on quench-condensed noble gas films*, *J. Low Temp. Phys.* **111** (1998) 321.
- [Whi98] B. E. White, Jr., J. Hessinger, R. O. Pohl, *Annealing and Sublimation of Noble Gas and Water Ice Films*, *J. Low Temp. Phys.* **111** (1998) 233.
- [Zel71] R. C. Zeller, R. O. Pohl, *Thermal conductivity and specific heat of noncrystalline solids*, *Phys. Rev. B* **4** (1971) 2029.

Danksagung

Zum Abschluß möchte ich all jenen danken, die mir beim Zustandekommen dieser Arbeit mit Rat und Tat zur Seite standen.

Insbesondere gilt mein Dank

- Herrn Prof. Dr. S. Hunklinger für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die interessante Aufgabenstellung.
- Herrn Priv. Doz. Dr. C. Enss für die Zweitkorrektur dieser Arbeit.
- Herrn Dr. J. Claßen für sein stets offenes Ohr bei allen kleinen und großen Problemen sowie die sorgfältige und kritische Korrektur dieser Arbeit. Seine Erfahrungen mit Oberflächenwellen und Edelgasadsorbaten bildeten eine wichtige Grundlage für das Gelingen dieser Arbeit.
- Herrn Dipl. Phys. J. Meier für die sehr gute Zusammenarbeit und viele Tips und Anregungen bei der Durchführung und Vorbereitung der Experimente sowie die aufmerksame und kritische Durchsicht des Manuskripts.
- Herrn Dr. R. Weis für seine kompetente Hilfe bei Fragen aller Art, insbesondere rund um den Computer.
- Herrn D. Hertel für die lückenlose Versorgung mit flüssigem Helium.
- Herrn P. Frauenfeld, der für alle elektronischen Probleme eine Lösung fand.
- den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt für die sorgfältige Herstellung der zum Aufbau der Versuchsanordnung benötigten Einzelteile.
- allen Diplomanden und Doktoranden in der Tieftemperaturphysik, insbesondere Herrn Dipl. Phys. D. Wehnes, Herrn Dipl. Phys. A. Wachowiak und Herrn T. Kramer, deren Rastertunnelmikroskop so manche Erschütterung hinnehmen mußte.
- meinen Eltern, die mir dieses Studium ermöglicht haben.

Erklärung:

Ich versichere, daß ich diese Arbeit selbständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den

.....

(Unterschrift)