

# Wärmetransport über das Vakuum zwischen metallischen Oberflächen auf Nanometer-Distanzen

## Masterarbeit

zur Erlangung des akademischen Grades

## Master of Science

im Studiengang

## Physik

Eingereicht von:

Paul Philip Schmidt

Matrikelnummer:

771420

Angefertigt am:

Institut für Physik und Astronomie

Beurteilung:

Prof. Dr. Carsten Henkel (Betreuung)

Prof. Dr. Ralf Metzler

Potsdam, 17. Januar 2019

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen des Wärmetransports</b>	<b>3</b>
2.1	Wärmetransport im Fernfeld . . . . .	4
2.2	Wärmetransport im Nahfeld . . . . .	7
2.2.1	Fluktuierende Elektrodynamik . . . . .	8
2.2.2	Tunneln von Elektronen . . . . .	15
2.2.3	Weitere Ansätze . . . . .	16
2.3	Wärmetransport bei Kontakt . . . . .	18
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>23</b>
<b>4</b>	<b>Messresultate und Interpretation</b>	<b>27</b>
4.1	Die Messresultate . . . . .	28
4.2	Interpretation der Daten . . . . .	33
4.2.1	Wärmeübertrag nach FED . . . . .	33
4.2.2	Wärmeübertrag durch Tunneleffekte . . . . .	34
4.2.3	Wärmeübertrag durch Kontamination . . . . .	35
<b>5</b>	<b>Das Snap-In-Modell</b>	<b>38</b>
5.1	Das Modell . . . . .	38
5.2	Vergleich mit den Messdaten . . . . .	42
5.3	Kopplungsmechanismen . . . . .	43
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>45</b>
	<b>Literatur</b>	<b>47</b>

# 1 Einleitung

Zu Beginn des 20. Jahrhunderts stand die Entwicklung einer universell gültigen Formel für den Strahlungstransport nicht nur aus wissenschaftlichem Interesse im Fokus vieler Forscher. Das Plancksche Strahlungsgesetz legte unter anderem die Grundlage zur berührungsfreien Temperaturmessung, der Pyrometrie [1]. Diese war für Industrie und Wirtschaft von unmittelbarer Bedeutung, so zum Beispiel im Hüttenwesen und der in Stahlindustrie [2]. In der heutigen Wirtschaft ist das genaue Verständnis des Wärmetransports von hoher Bedeutung. Das Thema Kühlung zieht sich als roter Faden durch die Industrie. Egal ob in der Halbleiterindustrie, der IT-Branche oder der Energiewirtschaft: Eine praktische Möglichkeit zu finden, seine Systeme und Maschinen effektiv zu kühlen, ist eines der zentralen Probleme des 21. Jahrhunderts.

Für Abstände von einigen 10 nm bis zu einigen Mikrometern ist der Wärmetransport im Nahfeld experimentell untersucht worden [3] [4] [5], wobei Messungen gute Übereinstimmungen mit den gängigen Theorien [6] lieferten. Allerdings sind die Forschungsaktivitäten im Bereich des kontaktlosen Wärmetransports, besonders im extremen Nahfeld unterhalb von 10 nm, bisher gering. Die Arbeitsgruppe um Kittel in der Arbeit von Kloppstech et al. [7] sowie die Arbeitsgruppe um Reddy mit der Arbeit von Cui et al. [8] untersuchten mit als erste überhaupt den Wärmetransport für Abstände unterhalb von 10 nm. Dabei wurde eine Wärmeübertragung beobachtet, die um mehrere Größenordnungen höher ist, als von gängigen Theorien für das Nahfeld vorhergesagt wird.

Diese Masterarbeit widmet sich der Interpretation dieser Resultate. Zur Analyse der beobachteten Phänomene erfolgt zunächst eine Einführung in die Theorie des Wärmetransports. Daran angeschlossen ist eine Diskussion der wichtigsten Prozesse, die dazu beitragen. Besonderes Augenmerk liegt hierbei auf der Abstandsabhängigkeit der Vorgänge. Deshalb wird eine Fallunterscheidung für Wärmeübertragung zwischen Objekten mit großen Abstand (Fernfeld) und kleinen Abstand (Nahfeld) zueinander, sowie für Objekte in direktem Kontakt vorgenommen. Der Wärmetransport im Fern- und Nahfeld erfolgt hierbei ausschließlich durch elektromagnetische Felder. Im Fernfeld wird der maximale Strahlungstransport durch das Plancksche Strahlungsge-

setz charakterisiert. Im Nahfeld wird der Wärmetransport im Rahmen der fluktuierenden Elektrodynamik beschrieben. Sind beide Oberflächen miteinander in Kontakt, können Elektronen und Phononen Wärme zwischen den Materialien transportieren. Hier ist die Wärmeleitung der dominierende Prozess.

Nach diesem Kapitel wird der Versuchsaufbau vorgestellt, mit dem die Messergebnisse der Arbeitsgruppen Kittel beziehungsweise Reddy generiert wurden [7] [8]. Dabei wird der Aufbau und die Messmethodik vorgestellt, mit welcher der Wärmestrom im Nanometer-Bereich unterhalb von 10 nm bestimmt wurde. Auch werden Unterschiede im Vorgehen der beiden Arbeitsgruppen aufgezeigt. Zwischen beiden Arbeitsgruppen existiert ein starker Disput hinsichtlich der Interpretation der Messresultate.

In Kapitel 4 werden diese Messwerte mit Hilfe der theoretischen Grundlagen aus Kapitel 2 analysiert. In einem ersten Schritt werden dabei die Messresultate der Arbeitsgruppen präsentiert. Es wird versucht, die unterschiedlichen Resultate mit den Differenzen im Aufbau in Verbindung zu bringen. Danach erfolgt ein Vergleich der Kompatibilität von Theorie und Messwerten.

Im Anschluss daran wird das Snap-In-Modell vorgestellt, welches das im Experiment beobachtete Wärmestromverhalten beschreibt. Dieses Modell wurde bereits in der Arbeit von Henkel und Schmidt [9] zur Charakterisierung des Wärmetransports auf Nanometer-Distanzen vorgeschlagen. In Rahmen des Modells wird die Abstandsabhängigkeit des Wärmestroms durch einen quantisierten Wärmetransport resultierend aus sich öffnenden Kanälen charakterisiert.

Abschließend werden die wichtigsten Aussagen dieser Arbeit zusammengefasst. Zudem soll ein Ausblick auf aktuelle und künftige Anwendungsgebiete des Nahfeld-Wärmetransports gegeben werden.

## 2 Grundlagen des Wärmetransports

Als Wärmetransport bezeichnet man jeden Vorgang, bei dem aufgrund eines Temperaturgradienten Energie zwischen thermodynamischen Systemen ausgetauscht wird [10]. Die Energiemenge, welche in Folge eines solchen Prozesses übertragen wird, bezeichnet man in der Physik als Wärme. Als Formelzeichen wird hier im Allgemeinen  $Q$  verwendet. Jedes thermodynamische System, welches an der Übertragung von Wärme beteiligt ist, nimmt gleichzeitig Energie auf und gibt sie ab. Die Netto-Wärmemenge ergibt sich aus der Differenz von abgegebener und aufgenommener Energie. Der Wärmestrom bezeichnet dabei die Wärme, die innerhalb einer Zeit  $t$  zwischen den beobachteten Systemen übertragen wird. In dieser Masterarbeit werden dabei folgende Bezeichnungen getroffen:

$\dot{Q}$  ist definiert als Wärmeleistung zwischen den betrachteten Körpern. Im stationären Zustand gilt  $\dot{Q} = \frac{\delta Q}{\delta t}$ .

$\dot{q}$  beschreibt hingegen die Wärmeleistung je Fläche zwischen ebenen Oberflächen.

Grundsätzlich kann Wärme auf drei Arten übertragen werden:

- Zunächst besteht die Möglichkeit, Wärme durch **Materieströme** zu transportieren. Diese Transportart wird als **Wärmekonvektion** bezeichnet und ist für Flüssigkeiten und Gase meist der dominierende Prozess. Sie spielt allerdings im hier betrachteten Fall keine Rolle. Zwischen den Objekten besteht in unseren Versuchen kein Kontakt. Zudem befindet sich zwischen ihnen ein Vakuum [1] [10].
- Stehen die betrachteten Systeme in **Kontakt**, so können Elektronen und Phononen bei Streuprozessen Energie übertragen. Aus der Thermodynamik wissen wir, dass die Systeme dabei einer Gleichverteilung der Energien entgegen streben, bis zwischen ihnen keine Temperaturdifferenz mehr besteht. Da dabei der Wärmestrom von warm zu kalt höher ist als andersherum, ist der Energietransport von warm nach kalt gerichtet. Diese Art der Wärmeübertragung wird als **Wärmeleitung**

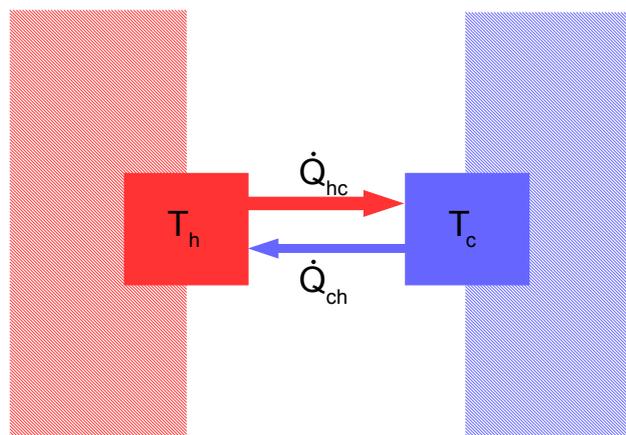
bezeichnet [10]. In Abschnitt 2.3 wird dieser Vorgang näher erläutert.

- Stehen die betrachteten Systeme **nicht in Kontakt** miteinander, sondern sind zum Beispiel durch ein Vakuum voneinander getrennt, kann kein Teilchenstrom für einen Wärmeaustausch sorgen. Wärmeübertragung findet hier ausschließlich durch **elektromagnetische Strahlung** statt. Folgerichtig wird diese Transportart als Strahlungstransport bezeichnet [10]. Von großer Bedeutung ist dieser unter anderem für den Wärmetransport bei Sternen. Hierbei wird zwischen zwei verschiedenen Abstandsregimen unterschieden, dem Fernfeld- und dem im Nahfeldverhalten. In Abschnitt 2.1 und Abschnitt 2.2 werden diese genauer betrachtet.

Es ist durchaus möglich, diese Einteilung weiter zu verfeinern. Im Rahmen dieser Arbeit ist die gewählte Unterteilung jedoch ausreichend und zweckmäßig.

## 2.1 Wärmetransport im Fernfeld

Gegeben sei ein System aus zwei Körpern unterschiedlicher Temperaturen. Beide seien jeweils an ein Wärmebad gekoppelt, sodass sich ihre Temperatur nicht ändert. Zwischen beiden Objekten wird es stets einen Wärmetransport in beide Richtungen geben. Die Wärmemenge, die von heiß nach kalt transportiert wird, ist dabei bei größer als in jene, in entgegengesetzte Richtung. In Abbildung 2.1 ist dies dargestellt.



**Abbildung 2.1:** Allgemeine Darstellung des Wärmetransports zwischen zwei Körpern. In rot der Körper mit höherer, in blau jener niedrigerer Temperatur. Schraffiert die jeweiligen Wärmebäder. Die Pfeile stellen den jeweiligen Wärmetransport zwischen den Körpern dar.

Dabei hängt es vom Abstand der Körper ab, welche Effekte den Wärmetransport bestimmen. Im Fernfeld, das heißt für 'große' Abstände  $d^1$  zwischen den Körpern, ist der Wärmetransport sehr gut verstanden. Daher soll zunächst dieser Fall diskutiert werden.

Jeder Körper endlicher Temperatur emittiert elektromagnetische Strahlung und somit Energie. Diese Strahlung propagiert, bis sie von einem anderem Körper absorbiert wird.

Für ein System aus zwei Körpern in großem Abstand ist die transportierte Wärmemenge zwischen beiden bestimmt durch das Verhältnis der vom Körper in einem gegebenen Zeitintervall absorbierten und emittierten Strahlung. Zunächst soll von idealisierten schwarzen Strahlern ausgegangen werden. Der Begriff geht auf G. Kirchhoff (1860) zurück [11]. Für einen idealen schwarzen Strahler gilt dabei, dass das Absorptionsvermögen wellenlängenunabhängig stets maximal ist. Nach dem Kirchhoffschen Gesetz sind Emission und Absorption immer proportional zueinander. Somit muss der Emissionskoeffizient  $\epsilon$  maximal, also  $\epsilon = 1$  sein. Das emittierte Spektrum hängt ausschließlich von der Temperatur des schwarzen Körpers ab [12]. Analog wird ein Körper, der gar nicht absorbiert oder emittiert, also für den  $\epsilon = 0$  gilt, als idealer weißer Körper bezeichnet.

Für reale Strahler gilt immer  $0 < \epsilon < 1$ . Sie werden graue Körper genannt, wenn Absorptions- und Emissionsvermögen dennoch unabhängig von der Wellenlänge der Strahlung sind. Das Spektrum hat dann die selbe spektrale Verteilung wie bei einem schwarzen Strahler. Die Intensität ist allerdings geringer.

Die Erklärung des Spektrums, also der Energieverteilung der Strahlung eines schwarzen Körpers in Abhängigkeit von Frequenz oder Wellenlänge, gelang Max Planck im Jahre 1900 unter Einführung der Quantenhypothese<sup>2</sup>. Das nach ihm benannte Plancksche Strahlungsgesetz beschreibt dabei das gesamte Spektrum eines schwarzen Strahlers. Damit verbindet es die Strahlungsgesetze nach Wien (1896) und nach Rayleigh und Jeans (1900<sup>3</sup>), welche jeweils nur für kleine, beziehungsweise große Wellenlängen mit experimentellen Daten übereinstimmen [12].

In Abhängigkeit von der Frequenz  $\nu$  und der Temperatur  $T$  lautet das planck-

---

<sup>1</sup>'Große' Abstände bedeuten in diesem Zusammenhang, dass für den Abstand  $d$  zwischen den Körpern gilt:

$$d \gg \lambda_{\text{th}}, \quad (2.1)$$

wobei  $\lambda_{\text{th}} = \frac{h}{\sqrt{2\pi mk_B T}}$  für die thermische Wellenlänge steht. Warum dies sinnvoll ist, wird in Abschnitt 2.2 erläutert.

<sup>2</sup>Quantenhypothese: Der Energieaustausch zwischen Oszillatoren und dem elektromagnetischen Feld erfolgt, anders als in der klassischen Physik, nicht kontinuierlich sondern in diskreten 'Quanten'. Dieses Postulat gilt als Beginn der Quantenphysik.

<sup>3</sup>J. Rayleigh veröffentlichte das Gesetz erstmals 1900, J. Jeans korrigierte Fehler bei den Vorfaktoren und veröffentlichte das überarbeitete Gesetz 1905.

sche Strahlungsgesetz:

$$U(\nu, T) = \frac{8\pi\nu^3}{c^3} \frac{1}{e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1}, \quad (2.2)$$

wobei  $U(\nu, T)$  die spektrale Energiedichte,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum ist. Eine Integration von Gleichung (2.2) über alle Frequenzen liefert dann die Strahlungsleistung des schwarzen Körpers:

$$P = \int_0^\infty U(\nu, T) d\nu = \sigma AT^4, \quad (2.3)$$

mit der Stefan-Boltzmann-Konstante  $\sigma$ .  $A$  beschreibt dabei die Gesamtoberfläche des Körpers. Dies ist das Stefan-Boltzmann-Gesetz<sup>4</sup> für schwarze Körper. Die  $T^4$ -Abhängigkeit der Strahlungsleistung führt dazu, dass der Strahlungs- und somit der Wärmetransport für hohe Temperaturen effektiver ist als für niedrige. Für graue Körper wird Gleichung (2.3) durch einen Faktor  $\epsilon(T)$  ergänzt, der den gewichteten, gemittelten Emissionsgrad beschreibt:

$$P = \epsilon(T)\sigma AT^4. \quad (2.4)$$

Für eine obere Abschätzung des Wärmetransport durch Strahlung bietet es sich an, von der Annahme eines schwarzen Strahlers auszugehen, also  $\epsilon = 1$ . Betrachten wir Oberflächen der Temperatur  $T_h$  und  $T_c$ . Es gelte  $T_h > T_c$ . Die Oberflächen seien durch ein Vakuum der Dicke  $d$  voneinander getrennt. Die abgegebene Wärmeleistung über die heiße Oberfläche  $A_h$  entspricht der Strahlungsleistung, also:

$$\dot{Q}_h = \sigma A_h T_h^4, \quad (2.5)$$

wobei  $A_h$  die Oberfläche des heißen Körpers beschreibt.

Der Wärmetransport von der warmen zur kalten Oberfläche ist allerdings von der Geometrie abhängig. Nur Strahlung, welche die kalte Oberfläche erreicht, kann auch absorbiert werden. Sei  $F_{hc} = \frac{\dot{Q}_{hc}}{\dot{Q}_h}$  der Sichtfaktor. Er ergibt sich aus dem Verhältnis der Strahlungsleistung  $\dot{Q}_{hc}$ , die vom heißen auf den kalten Körper übertragen wird, und der Gesamtstrahlungsleistung des heißen Körpers  $\dot{Q}$ . Der Transport von kalt nach warm lässt sich analog vorstellen. Für die Wärmeleistung von der warmen zur kalten Oberfläche ergibt sich

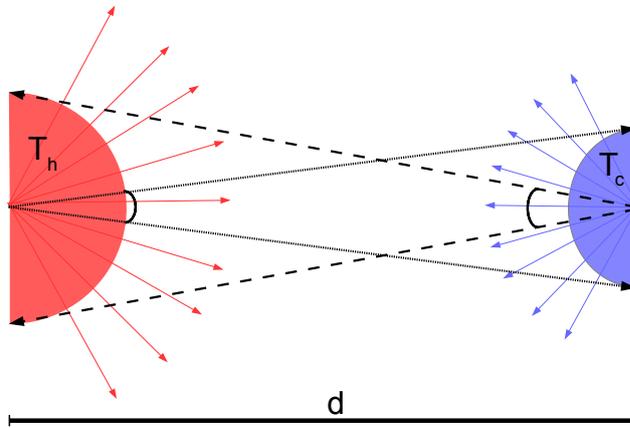
$$\dot{Q}_{hc} = \sigma A_h T_h^4 F_{hc}. \quad (2.6)$$

Analog gilt für den Strom von heiß zu kalt:

$$\dot{Q}_{ch} = \sigma A_c T_c^4 F_{ch}. \quad (2.7)$$

---

<sup>4</sup>Nach Jozef Stefan, der 1879 das Gesetz empirisch bestimmte [13] und Ludwig Boltzmann, der es 1884 aus den Maxwell-Gleichungen herleitete [14].



**Abbildung 2.2:** Veranschaulichung für Sichtfaktor und Reziprozitätsbeziehung.

Der Anteil der von heiß auf kalt übertragenen Strahlungsleistung lässt sich für einen diffusen Strahler ausdrücken durch den Raumwinkel  $\Omega_{hc} = \frac{A_c}{4\pi d^2}$  unter dem der kalte Körper der Fläche  $A_c$  dem heißen in einer Entfernung  $d$  erscheint. Abbildung 2.2 dient zur Veranschaulichung des Sachverhaltes. Damit lässt sich der Sichtfaktor schreiben als  $F_{hc} = \frac{Q_h \Omega_{hc}}{Q_h}$ . Daraus ergibt sich unmittelbar die Reziprozitätsbeziehung:

$$A_c F_{ch} = A_h F_{hc}. \quad (2.8)$$

Setzt man nun Gleichung (2.8) in Gleichung (2.7) ein und betrachtet die Differenz von Gleichung (2.6) so ergibt sich der Gesamtwärmestrom von heiß nach kalt zu:

$$\dot{Q} = \sigma A_h F_{hc} (T_h^4 - T_c^4). \quad (2.9)$$

Für eine gegebene Geometrie hängt der Wärmestrom einzig von der Temperatur der Oberflächen ab. Für reale Körper mit einem Emissionsgrad  $\epsilon < 1$  ist der resultierende Wärmestrom stets kleiner als der durch das Stefan-Boltzmann-Gesetz vorhergesagte Wert. Zudem führt ein von der Wellenlänge abhängiger Emissionsgrad zu einer veränderten Temperaturabhängigkeit. In der Praxis ist das  $T^4$ -Potenzgesetz daher nicht streng gültig.

## 2.2 Wärmetransport im Nahfeld

Für große Abstände zwischen den betrachteten Objekten ist der Wärmetransport sehr gut durch das Plancksche Strahlungsgesetz beschrieben. Dies ändert sich, wenn der Abstand  $d$  zwischen den Oberflächen vergleichbar mit

der thermischen Wellenlänge  $\lambda_{\text{th}}$  wird. Dieser Bereich wird als Nahfeld bezeichnet. Der Wärmetransport kann hier um mehrere Größenordnungen größer sein, als es durch Schwarzkörperstrahlung zu erklären wäre. Konduktion und Konvektion spielen hier weiterhin keine Rolle. Beide Effekte benötigen klassisch ein Medium. Wir konzentrieren uns hier jedoch auf Körper, welche durch ein Vakuum voneinander getrennt sind. Der sogenannte "superplancksche Wärmetransport" muss somit durch elektromagnetische Wechselwirkungen vermittelt werden. Die Beschreibung, der dabei auftretenden Effekte, erfolgt allgemein im Rahmen der fluktuierenden Elektrodynamik [6] [15]. Im ersten Teil dieses Abschnittes soll daher jene ursprünglich von Rytov, Levin und Mitarbeitern entwickelten Theorie vorgestellt werden. Es wird sich zeigen, dass evaneszente Oberflächenmoden entscheidenden Einfluss auf der Wärmetransport haben.

Auch Effekte aus der Quantenmechanik können eine Rolle spielen, wie das Tunneln von Teilchen. Hierbei können Teilchen wie zum Beispiel Elektronen durch Bereiche hindurch transportiert werden, welche klassisch undurchdringbar wären. Eine Erläuterung dieses Effekts wird in Unterabschnitt 2.2.2 gegeben.

### 2.2.1 Fluktuierende Elektrodynamik

Der Wärmetransport im Nahfeld erfolgt durch elektromagnetische Felder. Diese lassen sich durch die makroskopischen Maxwell-Gleichungen vollständig beschreiben. Im Rahmen der fluktuierenden Elektrodynamik (FED) werden die Gleichungen dabei durch fluktuierende Ströme  $\vec{j}(\omega, \vec{x})$  ergänzt. Diese beschreiben die fluktuierenden Quellen der elektrischen und magnetischen Felder innerhalb des Mediums. Es ergeben sich die stochastischen Maxwell-Gleichungen [6] [15]:

$$\begin{aligned}\nabla \times \vec{E}(\omega, \vec{x}) &= i\omega\mu_0\vec{H}(\omega, \vec{x}), \\ \nabla \times \vec{H}(\omega, \vec{x}) &= \vec{j}(\omega, \vec{x}) - i\omega\epsilon(\omega)\vec{E}(\omega, \vec{x})\end{aligned}\quad (2.10)$$

wobei  $\mu_0$  die magnetische Feldkonstante und  $\epsilon(\omega)$  die dielektrische Funktion bezeichnet. Die Stromdichte  $\vec{j}(\omega, \vec{x})$  lässt sich dabei als stationärer stochastischer Prozess betrachten. Aus dem Fluktuations-Dissipations-Theorem folgt für ein homogenes, lokales und isotropes Medium der Beziehung:

$$\langle \vec{j}_\alpha(\omega, \vec{x}), \vec{j}_\beta^*(\omega', \vec{x}') \rangle = 4\pi E_0(\omega, T)\epsilon''(\omega)\delta_{\alpha\beta}\delta(\vec{x} - \vec{x}')\delta(\omega - \omega') \quad (2.11)$$

und

$$\langle \vec{j}_\alpha(\vec{x}, \omega), \vec{j}_\beta(\vec{x}, \omega) \rangle = \langle \vec{j}_\alpha(\vec{x}, \omega)^*, \vec{j}_\beta(\vec{x}, \omega)^* \rangle = 0. \quad (2.12)$$

Hier entspricht  $\epsilon''$  dem Imaginäranteil der dielektrischen Funktion und  $E_0(\omega, T) = \frac{\hbar\omega}{2} + \frac{\hbar\omega}{e^{-\beta\hbar\omega}}$  der mittleren Energie eines harmonischen Oszillators, wobei  $\beta = \frac{1}{k_b T}$  [15].  $\langle \cdot, \cdot \rangle$  gibt dabei an, dass der Mittelwert der betrachteten

Größe zu bilden ist und Produkte zu symmetrisieren sind.

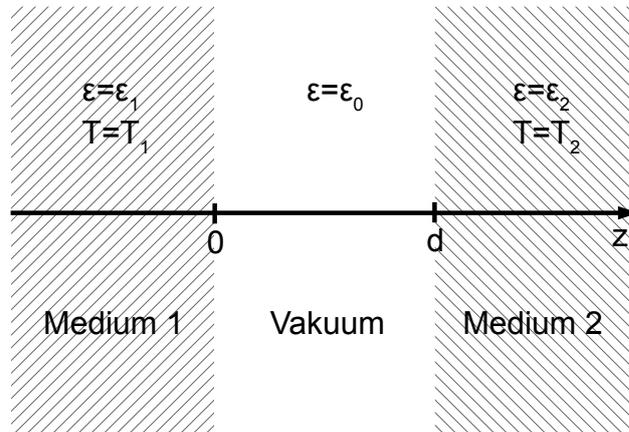
Die fluktuierenden Eigenschaften der elektrischen und magnetischen Felder  $\vec{E}$  und  $\vec{H}$  sind durch die fluktuierenden Eigenschaften der Quellströme bestimmt. Die Felder lassen sich ausdrücken als Integrale über das die Quellen enthaltende Volumen:

$$\begin{aligned}\vec{E}(\omega, \vec{x}) &= i\omega\mu_0 \int d^3x' \mathbb{G}^E(\vec{x}, \vec{x}') \vec{j}(\omega, \vec{x}'), \\ \vec{H}(\omega, \vec{x}) &= i\omega\mu_0 \int d^3x' \mathbb{G}^H(\vec{x}, \vec{x}') \vec{j}(\omega, \vec{x}').\end{aligned}\quad (2.13)$$

Dabei beschreiben die Tensoren  $\mathbb{G}^E$  und  $\mathbb{G}^H$  die dyadische elektrische beziehungsweise magnetische Greensche Funktion. Die Behandlung dieser wird ausführlich in [15] durchgeführt.

Gleichung (2.11) und Gleichung (2.13) liefern die Korrelationsfunktionen  $\langle \vec{E}_\alpha(\vec{x}, t), \vec{H}_\beta(\vec{x}', t') \rangle$ ,  $\langle \vec{E}_\alpha(\vec{x}, t), \vec{E}_\beta(\vec{x}', t') \rangle$  und  $\langle \vec{H}_\alpha(\vec{x}, t), \vec{H}_\beta(\vec{x}', t') \rangle$  der fluktuierenden Felder. Daraus lassen sich der Poynting-Vektor und die Energiedichte bestimmen. Dazu müssen Temperatur und Materialeigenschaften des Mediums bekannt sein. Zusätzlich bedarf es der Bestimmung der Greenschen Funktionen, angepasst an ein konkretes Problem [15].

Zur Beschreibung des Wärmetransports zwischen zwei Oberflächen ist der Poynting-Vektor entscheidend. Betrachten wir die Geometrie aus Abbildung 2.3.



**Abbildung 2.3:** Halbraumgeometrie: Zwei semi-unendlich ausgedehnte Medien 1 und 2, welche zwischen  $0 < z < d$  durch ein Vakuum getrennt sind.

Der Energiefluss von Medium 1 zu Medium 2 ist gegeben durch die Normalkomponente des Poynting-Vektor  $S_{12}$  von Oberfläche 1 nach 2. Der Energiefluss von Medium 2 nach 1 ist entsprechend durch jene des Poynting-Vektor  $S_{21}$  gegeben. Zur Bestimmung des Wärmetransports bietet sich folgendes Vorgehen an. Zunächst wird der Energiefluss von 1 nach 2 bestimmt.

Der Poynting-Vektor  $S_{12}$  enthält dabei alle Informationen über die Quellen des elektromagnetischen Feldes in Medium 1 bei einer Temperatur  $T_1$ . Damit kann der Wärmestrom von 1 nach 2 bei  $T_1$  charakterisiert werden. Für die gegebene Geometrie entspricht die z-Komponente des Poynting-Vektors der Wärmestromdichte  $\dot{q}$ . Für die entgegengesetzte Richtung wird mit dem Poynting-Vektor  $S_{21}$  analog vorgegangen. Der Netto-Wärmetransport ergibt sich aus der Differenz der beiden entsprechenden Komponenten der Poynting-Vektoren. Für den differentiellen Netto-Energietransfer gilt somit [6]

$$W = \lim_{T_1 \rightarrow T_2} \frac{S_{12} - S_{21}}{T_1 - T_2}. \quad (2.14)$$

Zu beachten ist dabei, dass die elektrischen und magnetischen Felder als Superposition von je einer senkrechten und zwei parallelen Polarisationskomponenten bezogen auf die Einfallsebene zu betrachten sind. Diese Komponenten werden als separate Wellen beschrieben. Die konkrete Berechnung der Poynting-Vektoren ist sowohl in [6] als auch in [15] durchgeführt. Die Normalkomponente des Poynting-Vektor  $S_{12}$  ergibt sich aus [15]:

$$\begin{aligned} \langle S_{12} \rangle &= \epsilon_{\alpha\beta z} \langle \vec{E}_\alpha, \vec{H}_\beta \rangle \\ &= \epsilon_{\alpha\beta z} \int_0^\infty d\omega E_0(\omega, T_1) \frac{\mu_0^2 \omega^3 \epsilon_1''(\omega)}{\pi} \\ &\quad \times \int_{z' < 0} d^3 x' (\mathbb{G}_{12}^E(\vec{x}, \vec{x}') \mathbb{G}_{12}^{H\dagger}(\vec{x}, \vec{x}')) + c.c. \end{aligned} \quad (2.15)$$

Hierbei steht *c.c.* für komplex konjugiert.  $E_0$  und  $\epsilon_1''$  sind dabei genauso definiert, wie in Gleichung (2.11). Das Integral über  $z' < 0$  berücksichtigt dabei alle Quellen in Medium 1. Zur Auswertung dieses Integrals ist zunächst das Integral über das Quellvolumen  $\int_{z' < 0} d^3 x' \mathbb{G}_{12}^E \mathbb{G}_{12}^{H\dagger}$  ausführen. Dazu müssen zunächst die auf das Problem angepassten Greenschen Funktionen bestimmt und eingesetzt werden<sup>5</sup>. Zur Bestimmung der Normalkomponente des Poynting-Vektors bleibt dann ein Integral über alle Wellenlängen. Dieses lässt sich in einen Integralausdruck über alle Wellenvektoren in der xy-Ebene übersetzen. Anzumerken ist, dass der Poynting-Vektor dabei additiv die Beiträge der beiden unabhängigen Polarisationsrichtungen der Felder beinhaltet [6].

Mit diesem Integralausdruck für den Poynting-Vektor lässt sich auch der differentiellen Energietransport  $W = \frac{\partial S}{\partial T}$  bilden. Dieser wird in zwei Beiträge zerlegt:

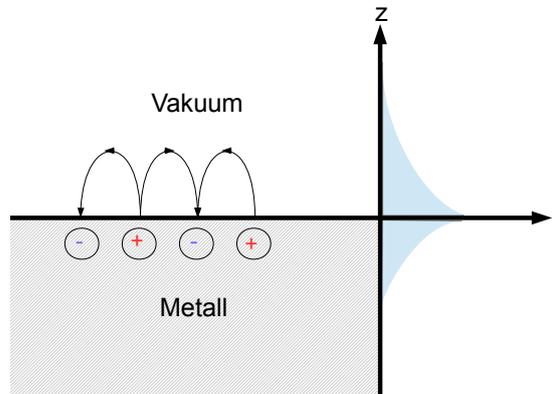
$$W = W^{\text{prop}} + W^{\text{eva}}. \quad (2.16)$$

Wir können die beiden Beiträge jeweils in ihre senkrechte und parallele Polarisation bezüglich der Einfallsebene aufteilen. Wir erhalten somit vier unabhängige Komponenten. Betrachten wir zunächst den zweidimensionalen

<sup>5</sup>Die Bestimmung der Greenschen Funktion und Auswertung ist im Detail in [15] durchgeführt.

Wellenvektor  $\vec{k}_{xy}$  parallel zur Oberfläche.  $W^{\text{prop}}$  beinhaltet das Integral über alle Wellenvektoren  $k_{xy} \in [0, \frac{\omega}{c}]$ . Damit gilt  $k_{xy}^2 = k_x^2 + k_y^2 < (\frac{\omega}{c})^2$ . Da für den Wellenvektor  $\vec{k}$  gilt  $|\vec{k}|^2 = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 = (\frac{\omega}{c})^2$ , sind alle z-Komponenten  $k_z$  des Wellvektors reell. Diese Wellen können ungedämpft ins Vakuum in z-Richtung propagieren. Der Wärmebeitrag von  $W^{\text{prop}}$  ist vom Abstand  $d$  unabhängig, solange  $d^2 \ll A$ .  $A$  ist dabei die Fläche des betrachteten Körpers. Für hinreichend große  $d$  erhalten wir einen Ausdruck für den Strahlungstransport, der dem Stefan-Boltzmann-Gesetz entspricht.

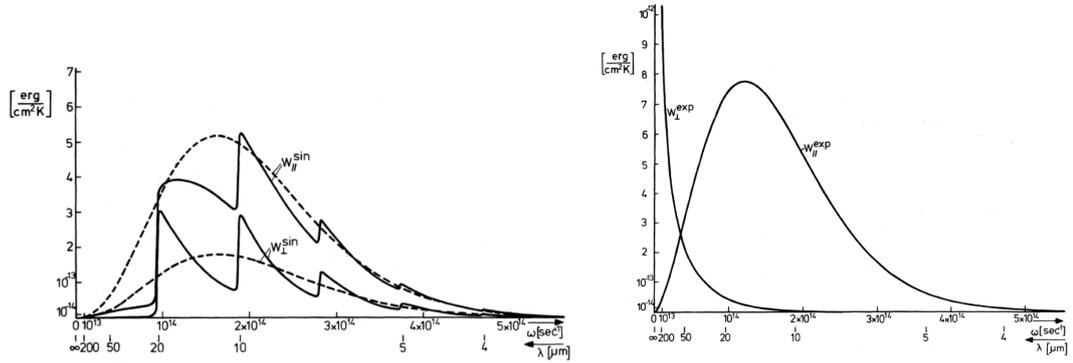
$W^{\text{eva}}$  ergibt sich aus dem Integral über alle Wellenvektoren  $k_{xy} \in [\frac{\omega}{c}, \infty[$ . Hier gilt allerdings  $k_x^2 + k_y^2 > (\frac{\omega}{c})^2$ . Es ist ersichtlich, dass damit  $k_z^2 < 0$  gilt. Die z-Komponenten des Wellenvektors ist somit rein imaginär. Die Wellen können in z-Richtung nicht propagieren und klingen im Vakuum exponentiell schnell ab. Das  $k$ -Integral liefert hier eine  $\frac{1}{d^n}$ -Abstandsabhängigkeit.  $n$  hängt dabei von den Eigenschaften der dominierenden Wellen ab. Dieser Anteil beschreibt die evaneszenten Moden an der Oberfläche des Mediums [6]. Bei evaneszenten Moden handelt es sich um Moden, welche sich parallel zur Oberfläche ausdehnen können und senkrecht zur Oberfläche exponentiell schnell abklingen. Dieses Verhalten ist in Abbildung 2.4 angedeutet für den Spezialfall eines Oberflächen-Polaritons.



**Abbildung 2.4:** Darstellung eines Oberflächen-Polaritons. Die Oberfläche liegt entlang der Oberfläche zwischen Metall (unten) und Vakuum (oben). Durch die Ladungen an der Oberfläche, entstehen exponentiell abklingende Felder. Das Intensitätsverhalten ausgehend von der Oberfläche in der xy-Ebene ist rechts zu sehen.

Für hinreichend große  $d$  konvergieren der Anteil der evaneszenten Moden gegen 0, aufgrund des exponentiellen Abklingverhaltens. Die transportierte Wärmemenge ist für diesen Fall also durch den Beitrag von  $W^{\text{prop}}$  gegeben. Somit ist die fluktuierende Elektrodynamik bei großen Abständen kompatibel mit der zuvor getroffenen Fernfeldbetrachtung [6] [15].

Für Abstände, die vergleichbar mit der thermischen Wellenlänge sind, prägt sich eine Abstandsabhängigkeit der propagierenden Wellen aus [6]. Diese entstehen durch Mehrfachreflexionen zwischen den Oberflächen. Das Vakuum wirkt hier als Resonator. Der Anteil, der die evaneszenten Moden beinhaltet, wird erst für kleine Abstände relevant. Ihr exponentielles Abklingen sorgt dafür, dass sie nur für kleinen Abständen von Bedeutung sind. Abbildung 2.5 zeigt die sich ausprägende Abstandsabhängigkeit von  $W^{\text{PROP}}$  zu kleinen Distanzen hin.



**Abbildung 2.5:** Numerisch erstellte Frequenzspektren der Beiträge der propagierenden (im Bild mit "sin" bezeichnet) und evaneszenten (im Bild mit "exp" bezeichnet) Moden zum differentiellen Netto-Wärmeübertrag zwischen zwei Körpern mit den Temperaturen  $T_1 = 315 \text{ K}$  und  $T_2 = 0 \text{ K}$ .  $\parallel$  steht dabei für die parallel polarisierten und  $\perp$  für die senkrecht polarisierten Anteile relativ zur Einfallsebene.

Links: Spektrum  $W^{\text{PROP}}$  für Abstände  $d \rightarrow \infty$  (gestrichelt) und  $d = 10 \mu\text{m}$

Rechts: Spektrum  $W^{\text{eva}}$  für  $d = 2 \mu\text{m}$

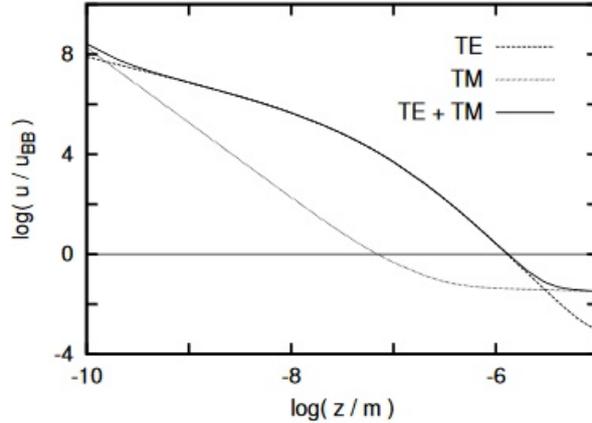
Entnommen aus Polder und van Hove, Theory of radiative heat transfer between closely spaced bodies, Abb.4/5, Physical Review B, 1971 [6], Nachdruck mit Erlaubnis der ©2018 American Physical Society

Der Beitrag der evaneszenten Moden übertrifft bereits bei  $d = 2 \mu\text{m}$  den der propagierenden [6]. Bei kleineren Abständen ist der Wärmeübertrag fast gänzlich durch die evaneszenten Moden bestimmt.

Um ein Aussage über die Größenordnung dieses Beitrags treffen zu können, ist es nützlich sich die Energiedichte  $\langle u \rangle$  oberhalb der Oberflächen anzusehen. Anzumerken ist, dass der Poynting-Vektor nur im Nahfeld Informationen über die evaneszenten Moden enthalten kann, da er nur den Energiefluss beschreibt. Es gilt [15]:

$$\langle u \rangle = \frac{\epsilon_0}{2} \langle \vec{E}^2 \rangle + \frac{\mu_0}{2} \langle \vec{H}^2 \rangle, \quad (2.17)$$

wobei  $\langle \vec{E}^2 \rangle$  und  $\langle \vec{H}^2 \rangle$  die Korrelationsfunktionen der elektrischen und magnetischen Feldanteile beschreiben. Die Berechnung erfolgt analog zu der des



**Abbildung 2.6:** Numerische Ergebnisse für die Energiedichte oberhalb eines Au-Halbraumes. Aus S.-A.Biehs Theorie Anwendung thermisch induzierter Nahfeldefekte, S.29, [15], International License: Creative Commons Attribution 4.0.

Poynting-Vektors in Gleichung (2.15). Für das Nahfeld dominiert der Beitrag der evaneszenten Moden zur Energiedichte den der Propagierenden [15]. Der Betrachtung aus [6] folgend, haben zwischen Metallen bei Distanzen im Bereich um 10 nm evaneszente TE-polarisierte Moden den größten Anteil an der Energiedichte. Dies ist in Abbildung 2.6 dargestellt. Der Beitrag dieser Feldkomponenten zur Wärmeleistungsdichte lässt sich laut Polder und van Hove [6] näherungsweise bestimmen durch

$$\dot{q}_{TE,eva} \simeq \frac{0,574}{4\pi} \frac{\mu_0 \sigma k_b^3}{\hbar} T^2 (T_2 - T_1) \quad \text{für } |T_1 - T_2| \ll T_1, T_2. \quad (2.18)$$

$T = \frac{T_1 + T_2}{2}$  ist die mittlere Temperatur im Versuchsaufbau.  $T_1$  und  $T_2$  stehen dabei für die Temperaturen der jeweiligen Oberflächen 1 und 2.  $\sigma$  bezeichnet die elektrische Leitfähigkeit und  $\mu_0$  die magnetische Feldkonstante. Für Temperaturen, wie in den Versuchen, die an späterer Stelle betrachtet werden, ergeben sich Wärmeleistungsdichten in der Größenordnung von  $10^6 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$ . Es ist daher zu erwarten, dass der Wärmetransport im Nahfeld durch diese Moden den Wärmetransport der Schwarzkörperstrahlung (im gleichen Temperaturbereich  $\sim 10^2 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$ ) deutlich übertrifft.

Es bleibt zu untersuchen, welcher Natur diese evaneszenten Oberflächenmoden sind.

In [15] wird gezeigt, dass für Gold Plasmonen eine entscheidende Rolle spielen können. Diese Quasiteilchen beschreiben die quantisierte Schwingung der Elektronen im Material. Die Schwingung entspricht der im Drude-Modell vorhergesagten Plasmaschwingung. Oberflächenplasmon sind an der Oberfläche lokalisierte Plasmaschwingungen, welche an das elektromagnetische Feld koppeln können (Vergleiche Abbildung 2.4). Anschaulich kann das ex-

ponentiell abklingende Feld, das durch Oberflächenplasmon erzeugt wird, im Nahfeld in das gegenüberliegende Medium eindringen und in diesem Plasmaschwingungen anregen. Dadurch trägt es nun auch zum Energie- und damit Wärmetransport bei. Die Kopplung der evaneszenten Oberflächenmoden kann auch als Tunneln<sup>6</sup> exponentiell gedämpfter Photonen zwischen den Oberflächen interpretiert werden [15]. Oberflächenplasmon sind jedoch für die später betrachteten Experimente nicht von Bedeutung. Grund dafür ist ihre hohe Anregungsenergie. Ein Vergleich des thermischen Spektrums  $k_B T$  bei den jeweiligen Versuchstemperaturen mit der Frequenz der Oberflächenplasmon  $\omega_{SP}$  zeigt, dass  $\hbar\omega_{SP} \gg k_B T$  ist.  $\omega_{SP}$  ist hierbei etwa im UV-Bereich, während die Frequenz der thermischen Strahlung im infraroten liegt. Oberflächenplasmon lassen sich daher in den hier später betrachteten Versuchsreihen nicht thermisch anregen.

Im Gegensatz zu ihnen können Phononen thermisch angeregt werden. Es muss zwischen akustischen und optischen Phononen unterschieden werden. Erstere bezeichnen eine quantisierte Schwingung der Kristallatome. Diese schwingen dabei in Phase. Das entspricht der Ausbreitung akustischer Wellen, was die Nomenklatur begründet [16]. Zum Wärmetransport über ein Vakuum können nur optische Phononen beitragen. Bei diesen schwingen benachbarte Kristallatome gegenphasig. Sind diese zusätzlich unterschiedlich geladen, entstehen starke Dipolmomente [16]. Im Gegensatz zu akustischen können optische Phononen daher an das elektromagnetische Feld koppeln. In diesem Fall spricht man von Phonon-Polaritonen. In Gold spielen sie für den Wärmetransport aber keine Rolle. Optische Phononen können nicht in Kristallen mit einatomarer Basis, wie Gold, angeregt werden, da die Gitteratome hier keine schwingendes Dipolmomente ausprägen können. [16].

Die Beschreibung des Wärmetransports im Rahmen der fluktuierenden Elektrodynamik ist für das Nahfeld sehr erfolgreich. Allerdings wurden vor den Versuchsreihen von Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8] unterhalb von 10 nm keine Experimente durchgeführt, um die theoretischen Vorhersagen zu überprüfen. Einerseits ist der technische Aufwand zur Realisierung solcher Messungen sehr hoch. Andererseits gab es durch die gute Übereinstimmung der FED mit den Messdaten bei größeren Abständen keinen Grund unterhalb von 10 nm etwas Anderes zu erwarten [3] [4] [5]. Dies ist insofern wichtig, als dass die Experimente, die hier diskutiert werden, genau diesen Bereich untersuchen. Auch andere Arbeitsgruppen konnten Abweichungen von der FED für sehr kleine Abstände feststellen [17].

Im Nahfeld können noch weitere Effekte beobachtet werden, welche einen Einfluss auf den Wärmetransport haben. So sind zum Beispiel auch Elektronen in der Lage durch die Vakuumbarriere zu tunneln. Im Folgenden soll dieser Effekt näher diskutiert werden.

---

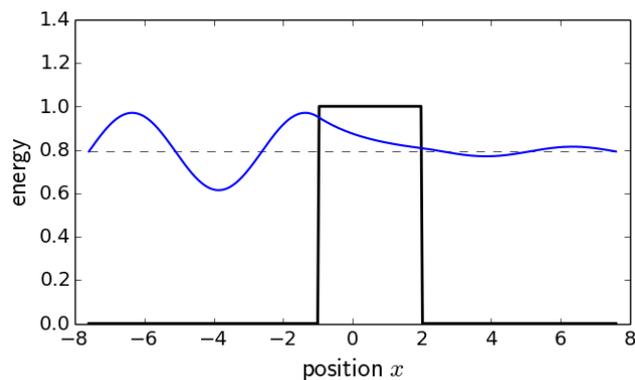
<sup>6</sup>Der Begriff Tunneln wird im folgenden Abschnitt ausführlich am Tunneln von Elektronen erklärt.

## 2.2.2 Tunneln von Elektronen

In der klassischen Physik werden Elektronen als massive Teilchen verstanden. Sind zwei Oberflächen wie im hier betrachteten Fall durch ein Vakuum voneinander getrennt, so können Elektronen nach klassischer Auffassung nicht von einer zur anderen Seite wandern. Jedoch wird für sehr kleine Abstände genau das beobachtet:

Es ist experimentell möglich, einen elektrischen Strom zwischen zwei nahe benachbarten Oberflächen zu detektieren. Dieses Phänomen wird als Tunneleffekt bezeichnet. Er lässt sich quantenphysikalisch erklären<sup>7</sup>. Jedes quantenmechanische Teilchen kann durch eine Wellenfunktion  $\Psi(x, t)$  vollständig im Ortsraum beschreiben werden. Das Betragsquadrat  $|\Psi(x, t)|^2$  der jeweiligen Wellenfunktion entspricht dabei der Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens in einem bestimmten Bereich. Das Verhalten des Realteils von  $\Psi(x)$  ist in Abbildung 2.7 dargestellt.

Nach Regeln der Quantenmechanik ist diese endlich in der Potenzialbarriere



**Abbildung 2.7:** Darstellung des Tunneleffektes: Die von links einlaufende Elektronenwelle trifft auf eine Potenzialbarriere. Hier kann sie nicht propagieren und klingt exponentiell ab. Der Realteil der Wellenfunktion am Ende der Barriere ist ungleich 0. Daher kann das Elektron rechts der Barriere weiter propagieren.

und klingt exponentiell ab. Wie in Abbildung 2.7 skizziert, kann das Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit durch die Barriere transmittiert werden.

Der zugehörige Transmissionskoeffizient  $T$  gibt die Wahrscheinlichkeit des Durchschreitens der Potenzialbarriere an. Er lässt sich aus der Schrödingergleichung herleiten. Aus der Berechnung folgt als Abhängigkeit  $T(E, d) \propto e^{-2\kappa d}$  mit  $\kappa = \frac{\sqrt{2m(V-E)}}{\hbar}$ . Dabei ist  $V$  das Potenzial der Barriere,  $E$  die Energie des Teilchens,  $m$  seine Masse und  $d$  die Dicke des Potenzials [18].

<sup>7</sup> Diese Betrachtung lässt sich für jedes Elementarteilchen und viele Quasiteilchen durchführen und wird hier beispielhaft am Elektron durchgeführt.

Dies gilt zumindest für das in Abbildung 2.7 skizzierte Kastenpotenzial. Daraus lässt sich zweierlei schlussfolgern:

#### **Abhängigkeit von $d$**

Der Transmissionskoeffizient hängt exponentiell vom Abstand der Oberflächen ab. Dies führt dazu, dass der Logarithmus der Stromstärke linear mit dem Abstand skaliert. Daher kann durch Messung der Stromstärke sehr einfach der Abstand der Oberflächen zueinander bestimmt werden. Dies ist das Grundprinzip der Rastertunnelmikroskopie. Mit dieser ist es möglich die Topografie von Oberflächen mit Ångströmauflösung zu untersuchen und darzustellen.

#### **Abhängigkeit von $E$**

Damit Elektronen tunneln können, müssen im Material, in das sie übergehen, die entsprechenden Zustände unbesetzt sein. Zwischen den Oberflächen daher eine Spannung angelegt. Diese erhöht auf einer Seite das Energieniveau der Elektronen. Da die Energie beim Tunneln nicht verändert werden und höhere Energieniveaus nicht besetzt sind, treibt die Spannung einen Tunnelstrom an.

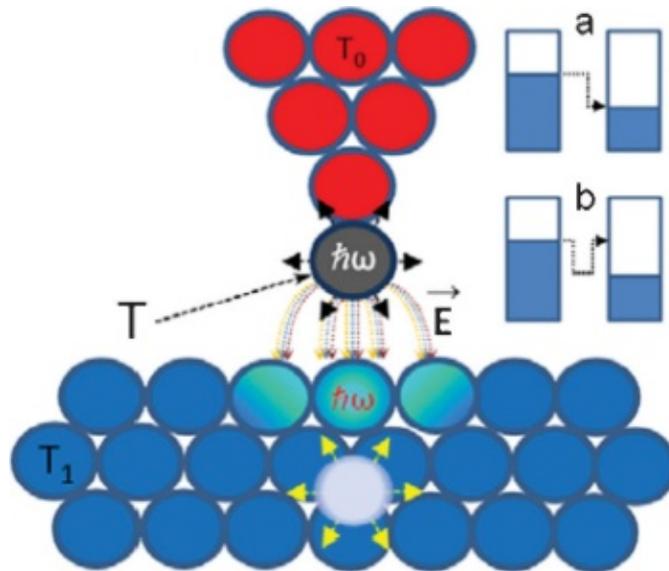
Typischerweise wird der Beitrag des Tunnelstroms zum Wärmetransport durch das Stromwärmegesetz beschrieben. Darauf wird in Unterabschnitt 4.2.2 anhand der Messdaten eingegangen.

### **2.2.3 Weitere Ansätze**

Im Folgenden werden einige andere Ansätze diskutiert, die zum Wärmestrom beitragen können.

In [7] wird angeführt, dass das **Tunneln von Phononen** den gemessenen Wärmestrom verursachen könnte. Das Phonontunneln wird in der Forschung diskutiert. Phononen machen den größten Anteil der Wärmekapazität eines Festkörpers aus. Der Wärmetransport in Festkörpern wird hauptsächlich von Elektronen und Phononen getragen [19]. Es liegt angesichts der Messergebnisse in [7] daher nahe ihre Rolle im Übergangsregime zwischen Nahfeld und Kontakt genauer zu untersuchen. Tatsächlich zeigen einige Experimente, dass für Abstände unterhalb von einem Nanometer ein sehr effektiver Wärmetransport stattfindet. Dieser übertrifft den erwartbaren Transport durch Schwarzkörperstrahlung um 10 Größenordnungen [17]. In Altfeder et al. wird diese sehr effektive Wärmeübertragung zwischen einer Platinspitze und einer Goldoberfläche durch einen als Phonontunneln bezeichneten Effekt beschrieben.

Das Phänomen des Phonontunnelns als Ursache für den gigantischen Wärmestrom ist jedoch problematisch. So handelt es sich bei Phononen eben



**Abbildung 2.8:** Durch die thermische Vibration der Spitze wird eine Vibration in der Oberfläche erzwungen.

Oben rechts: Energiediagramme für inelastische Tunnelprozesse: (a) Phononenemission, (b) resonante Emissions-Reabsorption. Bild aus Igor Altfeder et al., Phys. Rev. Lett. 105 (2010) 166101 [17] Entnommen mit Genehmigung der ©2018 American Physical Society

nicht wie bei Elektronen um Teilchen, sondern um quantisierte Gitterschwingungen, die sich als Quasiteilchen beschreiben lassen. Sie benötigen ein Medium um sich auszubreiten. Der von Altfeder vorgeschlagene Mechanismus, welcher dennoch eine Art Tunneln durch das Vakuum ermöglicht, basiert auf einer starken elektromagnetischen Kopplung (vgl. Abbildung 2.8). Durch das elektrische Feld gelingt das Tunneln der Phononen über Umwege. Die thermischen Bewegungen von Ladungen in der Messsonde erzeugen dabei ein veränderliches, elektromagnetisches Feld. Dieses koppelt an die Probenoberfläche und erzeugt dort atomare Schwingungen. Das ist nur ein möglicher Ansatz für eine Kopplung von Phononen über das Vakuum hinweg. Tatsächlich werden von anderen Autoren auch andere Kopplungsmechanismen als Phonontunneln bezeichnet. So wird in der Arbeit von Mika Prunnila und Johanna Meltaus [20] gezeigt, dass akustische Phononen in piezoelektrischen Medien erheblich zum Wärmetransport im Nahfeld beitragen können. Auch können Phononen in diesen Materialien zu Ladungsdichteverchiebungen führen. Dadurch kann eine sehr effektive Kopplung über das Vakuum hinweg entstehen. Auf diese Art könnten akustische Phononen signifikant zum Wärmetransport beitragen [20]. Sellan et al. [21] hingegen beschreiben, dass für Abstände unterhalb von 1 nm Berechnungen der Gitterdynamik durchaus auch klassisch einen Phononentransport zwischen Oberflächen zulässt.

Der dadurch induzierte Wärmetransport kann um bis zu 8 Größenordnungen größer als der durch Schwarzkörperstrahlung sein [21]. Der bei Altfeder [17] beobachtete Wärmestrom, der noch zwei Größenordnungen darüber liegt, wird zurückgeführt auf einen durch Deformation verursachten Wärmestrom, wie er in [20] beschrieben ist. In [21] wird zudem der Begriff "Tunneln" für die beschriebenen Effekte kritisiert, da, nach Ansicht der Autoren, keine klassisch undurchdringliche Barriere durchdrungen wird.

Die verschiedenen Gruppen, die sich bislang mit der Rolle von Phononen beim Wärmetransport im Ultranahefeld<sup>8</sup> beschäftigt haben, kommen zusammengefasst zu sehr unterschiedlichen Ergebnissen. Einigkeit besteht vor allem darin, dass Phononen für Abstände  $< 1$  nm einen großen Einfluss auf den Wärmetransport haben können.

In Cui et al. [8] wird darüber hinaus die Möglichkeit erwogen, dass Verunreinigungen für den anormal großen Wärmestrom [7] [8] verantwortlich sind. Tatsächlich können Adsorbatschichten auf der Oberfläche den Wärmetransport erheblich erhöhen [22]. Fremdatome können thermisch Schwingen und so optische Phononen an der Oberfläche bilden. Dadurch ist es möglich, dass Oberflächenphononen ausgebildet werden. Auch kann der Tunnelstrom beeinflusst werden, was Auswirkungen auf die Abstandsmessung haben kann. Zusätzlich besitzen andere Stoffe als Gold andere Zustandsdichten an der Oberfläche. Die Betrachtung im Rahmen der FED würde daher auch zu anderen Vorhersagen für den Wärmetransport führen. Bei Cui et al. [8] wird nun sogar angenommen, dass die Adsorbaten auf den Oberflächen den geringen Spalt zwischen ihnen überbrücken. Dadurch würde eine molekulare Brücke zwischen den Oberflächen entstehen [23].

### 2.3 Wärmetransport bei Kontakt

Bisher trugen fast ausschließlich elektromagnetische Effekte zum Wärmetransport bei. Dies ändert sich, sobald die betrachteten Oberflächen in Kontakt miteinander stehen. Da im Rahmen dieser Arbeit Festkörper betrachtet werden, gibt es keine Konvektion. Jedoch setzt im Kontaktfall Wärmeleitung ein. Hauptverantwortlich für diese Art des Wärmetransports sind Elektronen und Phononen [16]. Diese können sich durch den gesamten Festkörper bewegen. Der Wärmetransport durch Teilchen und Quasiteilchen wird zum dominierenden Prozess. Dadurch kann wesentlich effektiver Wärme transportiert werden als durch Strahlung.

Betrachten wir einen Festkörper, der am linken Ende die Temperatur  $T_l$  und am rechten die Temperatur  $T_r$  besitzt. Es gelte  $T_l > T_r$ . Weiterhin sei der mittlere Teilchenstrom null, es gelte also  $J_{t,l} = J_{t,r}$ .

Da die mittlere Energie der Elektronen rechts kleiner ist als links, bewirkt der in beide Richtungen ablaufende Teilchenstrom einen Energietransport

---

<sup>8</sup>Hier: Feld zwischen zwei Objekten im Abstand unterhalb von 10 nm.

vom Ort der höheren zum Ort der niedrigeren Temperatur. Dies entspricht der Definition eines Wärmestroms. Unter den hier getroffenen Annahmen gelte also  $\dot{q}_l > \dot{q}_r$  wobei  $\dot{q}_l$  die Wärmestromdichte von links nach rechts bezeichnet.

Als Maß dafür, wie effektiv Wärme in Festkörpern transportiert wird, definieren wir die Wärmeleitfähigkeit  $\kappa$  als Proportionalitätskonstante zwischen dem treibenden Temperaturgradienten  $\nabla T$  und der resultierenden Wärmestromdichte  $\dot{q}$  [19]:

$$\dot{q} = -\kappa \nabla T. \quad (2.19)$$

Diese Definition setzen wir zunächst völlig analog für Phononen und Elektronen. Die Wärmeleitfähigkeit in drei Dimensionen lässt sich dabei bestimmen als

$$\kappa = \frac{1}{3} c_V v \ell, \quad (2.20)$$

wobei  $c_V$  die Wärmekapazität des betreffenden Teilchens beschreibt,  $\ell$  die mittlere freie Weglänge und  $v$  die mittlere Geschwindigkeit. Bei Phononen entspricht dies der Schallgeschwindigkeit, bei Elektronen der Fermi-Geschwindigkeit. Für Metalle überwiegt der elektronische Anteil zur Wärmeleitfähigkeit dem phononischen im Allgemeinen deutlich. Dies liegt einerseits daran, dass die Fermi-Geschwindigkeit ( $\sim 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ ) wesentlich größer als die Schallgeschwindigkeit ( $\sim 10^3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ ) ist [16]. Die Wärmekapazität der Phononen ist dafür im Allgemeinen viel höher als die der Elektronen [19]. Die elektronische thermische Leitfähigkeit ist für Metalle im allgemeinen um etwa  $10^2$  größer als die phononische [16].

Für Metalle wird die Wärmeleitfähigkeit durch die Elektronen bestimmt. Da dies auch für die elektrische Leitfähigkeit gilt, liegt es nahe, beide miteinander zu vergleichen. Das führt zum Wiedemann-Franz-Gesetz:

$$\frac{\kappa}{\sigma} = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e^2} T, \quad (2.21)$$

mit der temperaturunabhängigen Lorenz-Zahl  $L$

$$L \equiv \frac{\kappa}{T\sigma} = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e^2}, \quad (2.22)$$

welche für sehr hohe oder tiefe Temperaturen im Vergleich zur charakteristischen Temperatur  $\Theta_D$  in guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten steht<sup>9</sup>. Ballistischer Transport sorgt im Regime dazwischen für Abweichungen. Dass dieses Gesetz nur für Leiter zutrifft, ist ein guter Indikator dafür, dass hauptsächlich geladene Teilchen (Elektronen) zur Wärmeleitung beitragen.

---

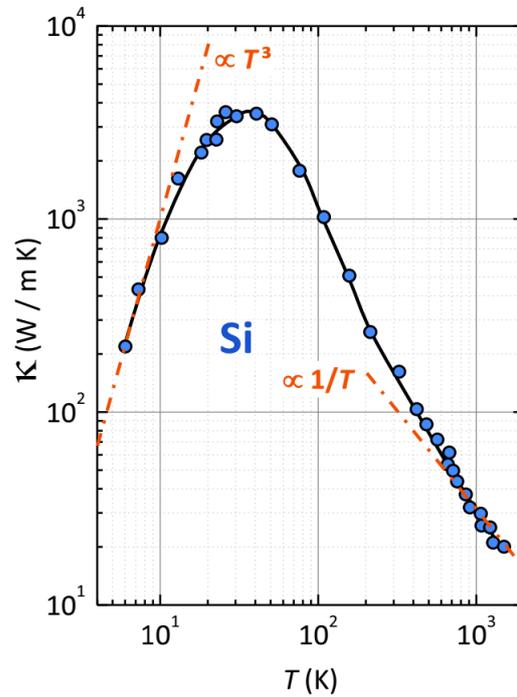
<sup>9</sup> Abweichungen entstehen durch phononische Wärmeleitung. Dieser ist für tiefe Temperaturen klein und für hohe Temperaturen temperaturunabhängig.

Die charakteristische Temperatur  $\Theta_D$  wird als Debye-Temperatur bezeichnet. Sie ist im Debye-Modell eine materialspezifische Größe. Das Debye-Modell ist eines der frühesten Quantenmodelle zur Beschreibung der Wärmekapazität eines Gitters und wurde von Peter Debye 1912 vorgeschlagen [24].  $\Theta_D$  beschreibt die Temperatur, bei der im Debye-Modell gerade alle Schwingungsmoden der Phononen besetzt sind. Darunter beginnen einzelne Moden auszufrieren. Für Metalle liegt diese typischerweise bei  $\sim 10^2$  K [19]. Das Modell selbst basiert auf der linearen Näherung der Dispersionsrelation des Schwingungsspektrums. Bis heute ist das Debye-Modell von großer Bedeutung. Für sehr hohe Temperaturen stimmt es per Konstruktion mit dem klassischen Dulong-Petit-Gesetz für die Wärmekapazität des Gitters überein. Ebenfalls beschreibt es sehr gut das Verhalten Wärmekapazität bei Temperaturen, die viel kleiner als die Debye-Temperatur sind. Im Temperaturbereich dazwischen, der auch für die hier diskutierten Daten relevant ist, stellt das Debye-Modell nur eine gute Näherung der Realität da. Dies liegt daran, dass für den mittleren Temperaturbereich die höchste angeregte Schwingungsfrequenz, die im Debye-Modell mit der Debye-Frequenz gleichgesetzt wird, von der tatsächlichen Maximalfrequenz abweicht. Diese ist allerdings entscheidend für die Berechnung der Schwingungsenergien und Zustandsdichten der Phononenzustände [19].

Aus Gleichung (2.20) folgt, dass die Wärmeleitfähigkeit von der Wärmekapazität abhängt. Da diese für Phononen temperaturabhängig ist, gilt dies auch für die Wärmeleitfähigkeit. Unter Vernachlässigung der Elektron-Phonon-Streuung ergibt sich für die Wärmeleitfähigkeit der Phononen folgendes Temperaturverhalten: In Abbildung 2.9 ist das Verhalten von Silizium gezeigt. Die experimentellen Daten stimmen mit den theoretisch erwarteten gut überein.  $\Theta_D$  steht auch hier für die Debye-Temperatur. Für sehr tiefe Temperaturen sind nur wenige Phononen angeregt. Mit steigender Temperatur steigt die Anzahl der besetzten Schwingungszustände  $\propto T^3$  an und damit auch die Wärmekapazität. Dadurch nimmt die Wärmeleitfähigkeit mit  $T^3$  zu. Für höhere Temperaturen und mehr Phononen erhöht sich allerdings auch die Streurate. Dadurch steigt die Wärmeleitfähigkeit langsamer an. Für Temperaturen oberhalb von  $\Theta_D$  sind alle Phononenzustände besetzt. Die Wärmekapazität steigt nicht weiter an. Durch die für hohe Temperaturen effektivere Phonon-Phonon-Streuung nimmt die freie Weglänge und damit die Wärmeleitfähigkeit ab [16].

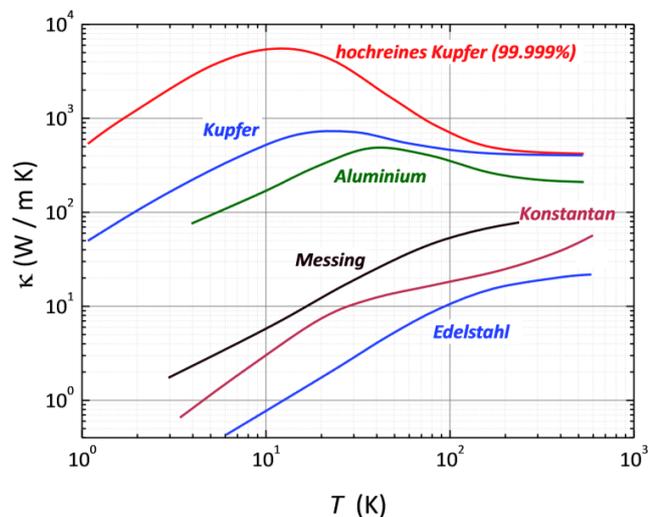
Für Metalle dominiert in der Regel die elektronische Wärmeleitfähigkeit. Auch diese zeigt eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit. Sie lassen sich aus dem Wiedemann-Franz-Gesetz und der Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit  $\sigma$  beziehungsweise des elektrischen Widerstands  $\rho$  in den verschiedenen Temperaturbereichen ableiten [16].

Zu erwarten ist, dass für sehr niedrige Temperaturen zunächst die Wärmeleitfähigkeit linear ansteigt und ein Maximum erreicht. Dies liegt an der linearen Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazität. Wird die Temperatur weiter



**Abbildung 2.9:** Wärmeleitfähigkeit von hochreinem Si ( $\Theta_D = 645 \text{ K}$ ) (nach C.J.Glassbrenner, G.A.Slack, Phys. Rev. 134, 1058 (1964)). Abb. entnommen aus Groß/Marx-Festkörperphysik, 2012, Seite 263 [16].

erhöht, nimmt steigt die Phononenzahl. Elektron-Phonon-Streuung sorgt für eine Abnahme der Wärmeleitfähigkeit. Dieses Verhalten gilt für reine Metalle. In sehr unreinen Metallen oder Legierungen dominiert die Streuung an Störstellen und unterdrückt so die elektronische thermische Leitfähigkeit, was in Abbildung 2.10 für verschiedene Stoffe dargestellt ist. Für Kupfer und Aluminium ist das erwartete Verhalten für Metalle gut erkennbar [16]. Für die Legierungen ist die Leitfähigkeit des Kristalls bedeutsamer und beeinflusst signifikant die Wärmeleitfähigkeit des Metalls.



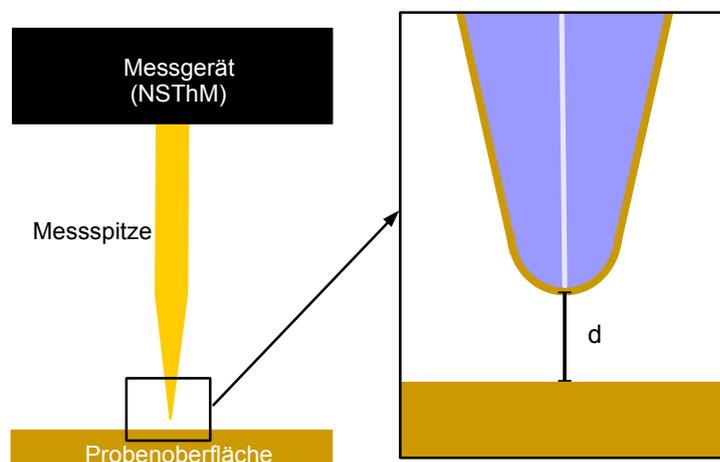
**Abbildung 2.10:** Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von reinen Metallen (Cu,Al) und Legierungen (Messing, Konstantan, Edelstahl). Entnommen aus Groß/Marx-Festkörperphysik, 2012, Seite 303 [16].

Nicht nur Phononen und Elektronen tragen zur Wärmeleitung bei. So können zum Beispiel in Materialien mit magnetischer Ordnung auch Magnonen Wärme transportieren. Andere Quasiteilchen können ebenfalls Einfluss nehmen. Im Rahmen dieser Arbeit kann jedoch auf eine tiefere Beschreibung dieser verzichtet werden. Es ist zu erwarten, dass ihr Einfluss im betrachteten Experiment zu vernachlässigen ist. Eine genauere Beschreibung der Transportmechanismen in Festkörpern kann zum Beispiel in [16] oder [19] gefunden werden.

### 3 Experimenteller Aufbau

Nachdem die grundlegenden Transportmechanismen dargelegt sind, sollen diese in Kapitel 4 auf die Messergebnisse angewendet werden, die in der Arbeitsgruppe von Kittel von Kloppstech et al. [7] und in der Arbeitsgruppe von Reddy von Cui et al. [8] generiert wurden.

Damit dies möglich ist, werden im Folgenden die beiden Versuche vorgestellt. Zunächst wird dafür das Setup von Kloppstech dargelegt. Da der Aufbau von Cui auf dem selben Messprinzip basiert, wird dieser nicht im Detail erläutert. Stattdessen werden die Unterschiede zum Aufbau von Kloppstech aufgezeigt. Der Versuchsaufbau, der bei Kloppstech et al. [7] verwendet wurde, besteht aus einem modifizierten Rastertunnelmikroskop, einem sogenannten Raster-Wärmemikroskop (NSThM<sup>1</sup>). Der Aufbau ist in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt.



**Abbildung 3.1:** Schema des Versuchsaufbaus nach Kloppstech.

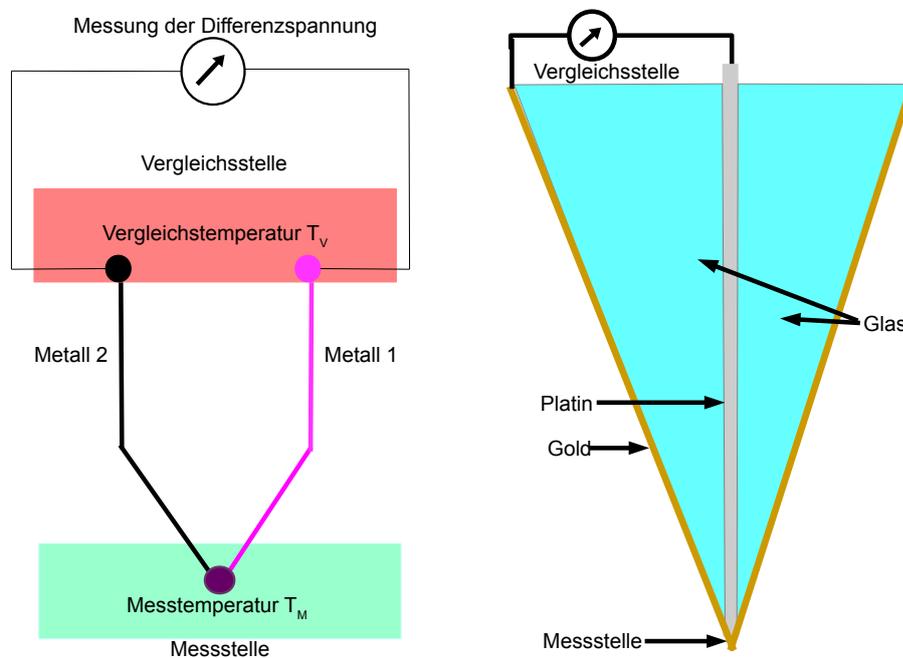
Links: Messspitze über der Probenoberfläche

Rechts: Querschnitt durch die Messspitze mit dem Thermoelement (in braun die Goldbeschichtung, in weiß der Platindraht).

<sup>1</sup>Near-field scanning thermal microscope

Die Tunnelspitze wird dabei durch ein miniaturisiertes Au-Pt-Thermoelement ersetzt. Die Oberfläche der Messspitze ist aus Gold. Sie befindet sich über einer planen Goldoberfläche, die als Probe dient. Der Abstand  $d$  zwischen der Goldspitze und der Oberfläche beträgt dabei einige Nanometer. Die Temperatur der Spitze liegt beim Versuch bei 280 K während die Probenoberfläche auf 120 K gekühlt ist [7]. Für Raumtemperatur, welche etwa der Temperatur der Spitze entspricht, liegt die charakteristische thermische Wellenlänge bei  $7,8 \mu\text{m}$  [25]. Sie ist damit größer als der Abstand der Oberflächen zueinander. Somit sind Einflüsse evaneszenter Felder auf den Wärmetransport in nicht vernachlässigbarer Größenordnung zu erwarten.

Die Bestimmung des Wärmestroms erfolgt über das Thermoelement (siehe Abbildung 3.2). Dabei wird ein Platindraht mit Glas ummantelt, welches



**Abbildung 3.2:** Links: Reduzierte Variante eines Thermoelements. Die beiden Metalle sind an der Messstelle verbunden. Da  $T_M \neq T_V$  und beide Metalle unterschiedlich sind, kann dank des Seebeck-Effekts an der Vergleichsstelle an beiden Metallen eine Differenzspannung gemessen werden. Daraus lässt sich die Temperatur an der Messstelle ableiten.

Rechts: Schematische Darstellung des im Experiment eingesetzten Thermoelements.

elektrisch und thermisch ein guter Isolator ist. Der Platindraht wird dabei aus dem Glasmantel herausgeführt und zu einer dünnen Spitze geformt. Dieser Aufbau wird anschließend mit einer Goldschicht von etwa 100 nm bedampft. Der Spitzenradius beträgt danach etwa 30 nm [7] [26]. An der Spitze entsteht so eine Verbindung zwischen Gold und Platin. Der Glasman-

tel trennt überall sonst die beiden Metalle voneinander. In Abbildung 3.2 ist dieses Thermoelement veranschaulicht. Bringt man nun die Spitze des Thermoelements in die Nähe der kälteren Probenoberfläche setzt ein Wärmestrom zwischen beiden ein. Dadurch sinkt die Temperatur an der Messstelle unter jene der Vergleichsstelle. Der Seebeck-Effekt<sup>2</sup> setzt ein. Durch ihn entsteht eine Spannungsdifferenz zwischen Mess- und Vergleichsstelle. Aus dieser lässt sich der Wärmestrom bestimmen.

Da die Abstandsabhängigkeit des Wärmestroms im Nahfeld von Interesse ist, muss zusätzlich der Abstand zwischen der Messstelle und der Probenoberfläche bestimmt werden. Das Nahfeld-Rasterwärmemikroskop wird dazu als Rastertunnelmikroskop benutzt. Die Spitze lässt sich in allen Raumrichtungen hoch präzise mittels Piezoelementen platzieren. Um den momentanen Abstand zwischen der Goldoberfläche und der Spitze des Rasterwärmemikroskops zu bestimmen, wird die exponentielle Abhängigkeit des Tunnelstroms vom Abstand der Proben ausgenutzt. Durch Messung der Stärke des Tunnelstroms kann so für gegebene Temperaturen sehr präzise der Abstand bis zu etwa 1 nm zwischen den Oberflächen bestimmt werden [7]. Für größere Abstände wird auf die Piezoaktoren vertraut. Diese Elemente nutzen den inversen Piezoeffekt<sup>3</sup> aus, um Bewegungen der Spitze im Sub-Nanometer-Bereich zu ermöglichen. Theoretisch ist damit das Auflösungsvermögen der Piezoaktoren unbegrenzt. Sie eignen sich daher perfekt zur Ausrichtung der Messspitze. Ist ein Startpunkt mit bekanntem Abstand zur Probe bestimmt, lässt sich die Spitze fast beliebig genau über der Probe für den gesamten Messbereich platzieren.

Zwingend notwendig für die Durchführung aussagekräftiger Messungen mit diesem Aufbau ist die Durchführung im Ultrahoch-Vakuum (UHV). Auch muss die Probenoberfläche hochrein sein. Wie in Abschnitt 2.2 angesprochen, beeinflussen Fremdatome auf der Oberfläche den Wärmetransport erheblich. Die Erzeugung eines Ultrahoch-Vakuums um den Versuchsaufbau ist dabei Laboralltag. Versuchsdurchführungen im UHV sind Standard für zahlreiche Experimente. Bei den Versuchen in [7] wurde bei  $10^{-10}$  mbar gearbeitet. Die Reinigung der Goldoberfläche bei Kloppstech et al. erfolgte in mehreren Zyklen durch Sputtern-Phasen mit Argon-Ionen und anschließenden Annealing-Phasen. Um die Spitze zu reinigen, wurde sie mit Elektronen beschossen. Zusätzlich wurde zur Sicherstellung der Qualität der Probenoberfläche vor jeder Messung ein Bild der Oberflächentopografie erzeugt. Eine detaillierte Beschreibung der Reinigung ist in Supplement 2 von Kloppstech et al. [7] zu finden.

Wie in der Arbeitsgruppe Kittel wurden auch in der Arbeitsgruppe Reddy

---

<sup>2</sup>Für eine Erklärung des Seebeck-Effektes sei auf entsprechende Literatur, zum Beispiel auf Groß/Marx, Festkörperphysik, Kapitel 9, Seite 432, 2012 hingewiesen [16].

<sup>3</sup>Beim inversen Piezoeffekt erzeugt eine angelegte Spannung eine Längenänderung im Piezoelement. Diese Längenänderung hängt nur von der angelegten Spannung ab Groß/Marx, Festkörperphysik, Kapitel 11, Seite 649, 2012 [16].

Versuche für Abstände kleiner als 10 nm durchgeführt. Das Messprinzip unter Nutzung eines Raster-Wärmemikroskops ist dabei in beiden Versuchsreihen dasselbe. Im Versuchsaufbau und der Präparation der Proben bestehen allerdings einige Unterschiede. Dies ist insofern überraschend, da es potenziell den Vergleich der Ergebnisse erschweren kann. Dabei geht durchaus aus der entsprechenden Arbeit [8] hervor, dass die Versuche die Richtigkeit der Resultate von Kloppstech et al. [7] prüfen sollen. Um in Kapitel 4 die Messwerte dennoch vergleichen zu können, werden die Unterschiede im Folgenden analysiert.

In Tabelle 3.1 sind die Differenzen im Versuchsaufbau gegenübergestellt.

**Tabelle 3.1:** Unterschiede im Versuchsaufbau von Kloppstech [7] und Cui [8]

	Kloppstech et al.	Cui et al.
Temperatur Probenoberfläche	120 K	343 K
Temperatur Messspitze	280 K	303 K
Material Thermoelement	Gold und Platin	Gold und Chrom
Abstand Probe-Messspitze	0,2 nm – 7 nm	0,1 nm – 5 nm
Radius der Messspitze	$R = 30$ nm	$R = 150$ nm

Besonders auffällig ist der Unterschied im Spitzenradius und bei der Temperatur. Bei Cui et al. [8] wird ein Spitzenradius verwendet, der 5 mal so groß ist wie jener bei Kloppstech et al. Festzuhalten ist ebenso, dass die mittlere Temperatur und die Temperaturdifferenz deutlich variieren. Ferner ist bei Kloppstech et al. die Messspitze wärmer als die Probenoberfläche. Bei Cui ist dies genau umgekehrt. Es ist schwer nachzuvollziehen, warum diese Unterschiede bestehen. Besonders die umgekehrte Wahl von heiß und kalt erscheint recht willkürlich. Zwischen den Arbeitsgruppen Kittel [7] und Reddy [8] besteht ein großer Disput um die Deutung von experimentellen Daten im Ultranahefeld. Insofern lässt sich die Widerlegung der Aussagen aus Kloppstech et al. durchaus als eine Absicht der Arbeitsgruppe Reddy interpretieren. Dies wird durch das unterschiedliche Setup erheblich erschwert. Nachvollziehbar hingegen sind die verschiedenen Probenpräparationen. Der Argumentation von Reddy et al. folgend, basieren die Ergebnisse in Kloppstech et al. auf einer schlechten Probenreinigung. Entsprechend wurden in Cui et al. Daten nach verschiedenen Reinigungsverfahren verglichen. Inwiefern die Messwerte dennoch vergleichbar sind, wird anhand der Ergebnisse in den folgenden Kapiteln diskutiert.

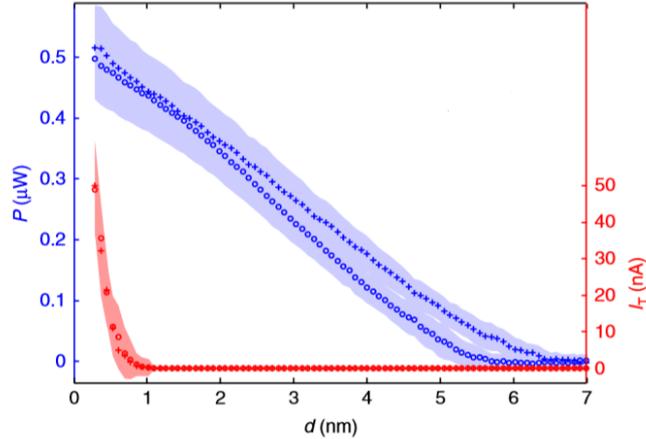
## 4 Messresultate und Interpretation

Kapitel 4 und Kapitel 5 bauen auf die Veröffentlichung von C. Henkel und P.P. Schmidt [9] auf. Wie in dieser Arbeit soll auch hier versucht werden, die experimentellen Daten theoretisch zu beschreiben. Dazu sollen die in Kapitel 2 besprochenen Grundlagen verwendet werden.

Die Arbeitsgruppen um Kittel und um Reddy erhielten in ihren Versuchen unterschiedliche Resultate. Um diese auf ein gemeinsames theoretisches Fundament zu stellen, ist zunächst die Herkunft der Unterschiede zu klären. Das soll anhand der jeweiligen Messaufbauten und Präparationen erfolgen. Damit wird geprüft, inwieweit die Messergebnisse überhaupt vergleichbar sind. Als Erstes sollen die fluktuierende Elektrodynamik und andere gut verstandene Effekte darauf angewendet werden. Sollten gängige Theorien nicht zur Erklärung des Wärmetransports ausreichen, werden stufenweise Erweiterungen eingeführt. Diese entsprechen den in Unterabschnitt 2.2.3 präsentierten Ansätzen. Ziel des Kapitels ist es, die Messergebnisse aus Kloppstech et al. und Cui et al. mit den theoretischen Erwartungen für den Wärmetransport in Einklang zu bringen.

## 4.1 Die Messresultate

Die Ergebnisse von Kloppstech et al. und Cui et al. sind in den nachfolgenden Abbildungen aufbereitet. Zusätzlich sind sie in Tabelle 4.1 nochmals zusammengefasst und gegenübergestellt. Zunächst werden die Messresultate von Kloppstech et al. in Abbildung 4.1 vorgestellt:



**Abbildung 4.1:** Abstandsabhängiger Wärmestrom und Tunnelstrom. Die Leistung des Wärmestroms (blau) steigt ab etwa 5 – 6 nm Abstand linear an. Die Daten sind der linken Skala zugeordnet. Der Tunnelstrom (rot) setzt ab etwa 1 nm Abstand ein und steigt dann exponentiell an. Die zugehörige Kurve bezieht sich auf die rechte Skala. Nach Abb. 2 aus Kloppstech et al., *Nature Commun.* **8** (2017) 14475, [7], International License: Creative Commons Attribution 4.0.

Bei einem Abstand zwischen Probenoberfläche und Spitze des Thermoelements von etwa 5 – 6 nm setzt ein Wärmetransport ein, welcher mit kleiner werdenden Abständen linear ansteigt. Für den geringsten vermessenen Abstand beträgt die Wärmeleistung etwa 500 nW. Die Stromstärke des Tunnelstroms der Elektronen ist ebenfalls gemessen worden. Er setzte bei etwa 1 nm ein und stieg anschließend exponentiell an. Beim geringsten Abstand lag die Stromstärke bei etwa  $I_T = 50$  nA. Für den Abstand  $d$  wird eine Messgenauigkeit von 90 pm angegeben. Für den kleinsten Abstand ergibt sich eine thermische Leitfähigkeit

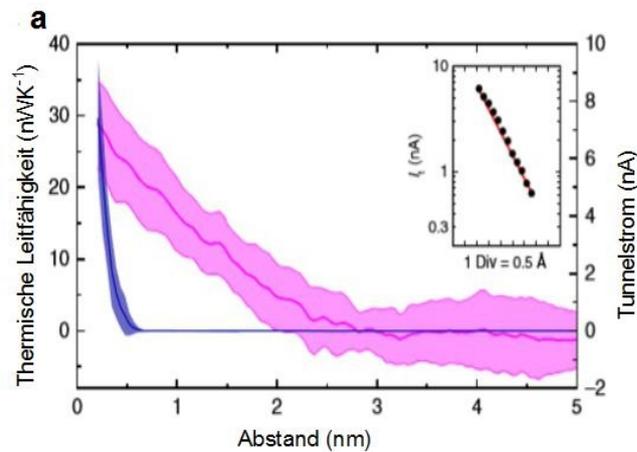
$$G = \frac{\dot{Q}}{\Delta T} \approx 3 \frac{\text{nW}}{\text{K}}. \quad (4.1)$$

Anders als in zum Beispiel Polder und van Hove [6] handelt es sich bei  $\Delta T$  nicht um eine differenzielle Leitfähigkeit. Die Temperaturdifferenz ist dafür zu groß.

Weiterhin wird eine Hysterese beobachtet. Der Einsatz des Wärmetransports beim Annähern an (blaue Kreise) und beim Entfernen von (blaue Kreuze) der

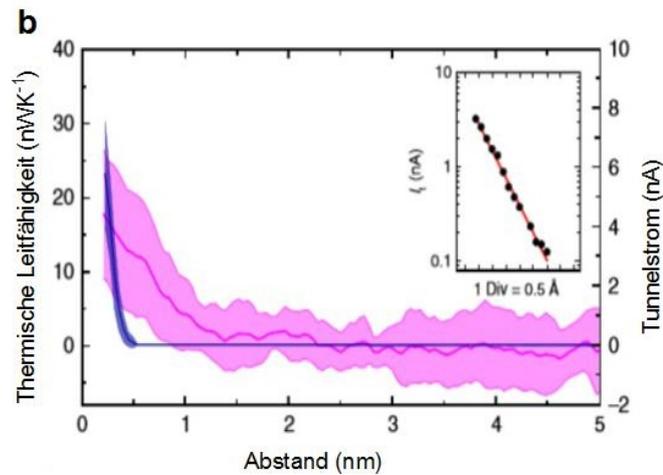
Probenoberflächen stimmen nicht überein. Die Herkunft dieser Hysterese ist schwer zu bestimmen. Allerdings ist sie nicht sehr stark ausgeprägt und wird im Folgenden nicht weiter betrachtet. Ohnehin liegt die Hysterese unterhalb der Messungsgenauigkeit (hellblau unterlegter Bereich).

Diesen Ergebnissen sollen nun die Resultate aus [8] gegenübergestellt werden. Dabei wurde die thermische Leitfähigkeit für Proben nach verschiedenen Reinigungstechniken bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.2 bis Abbildung 4.5 dargestellt. Betrachten wir die Resultate nacheinander:



**Abbildung 4.2:** Thermische Leitfähigkeit und Tunnelstrom für eine Goldoberfläche, die mit organischem Lösungsmittel gereinigt wurde. Die Temperaturdifferenz zwischen Messsonde und Probenoberfläche beträgt  $\Delta T = 40$  K. Nach Abb. 2 (a) aus Cui et al., Nature Commun. 8 (2017) 14479, [8], International License: Creative Commons Attribution 4.0.

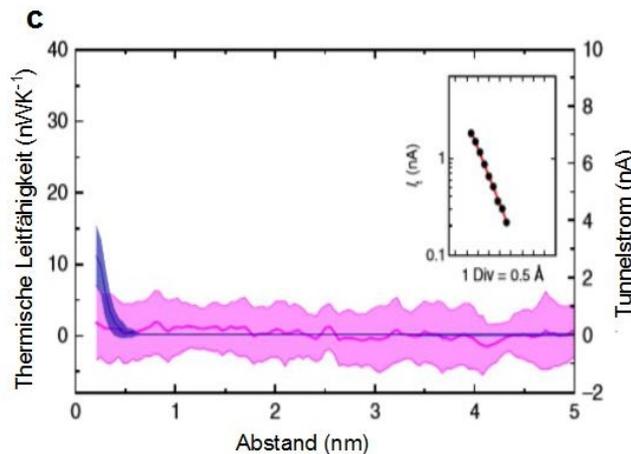
In Abbildung 4.2 wurde nach der Reinigung der Probe mit einem organischen Lösungsmittel ein linearer Anstieg der thermischen Leitfähigkeit zu kleiner werdenden Abständen hin festgestellt. Der Anstieg setzt bei einem Abstand ein, der etwa um die Hälfte kleiner ist, als bei den Daten von Kloppstech et al. in Abbildung 4.1. Die thermische Leitfähigkeit ist zehn mal größer als bei Kloppstech et al. Bei einer Temperaturdifferenz  $\Delta T = 40$  K entspricht dies nach Gleichung (4.1) einer Wärmeleistung von 1200 nW und damit doppelt so viel, wie bei Kloppstech et al. [7].



**Abbildung 4.3:** Ergebnisse nach einmaliger Reinigung mit Sauerstoffplasma. Nach Abb. 2 (b) aus Cui et al., Nature Commun. 8 (2017) 14479, [8], International License: Creative Commons Attribution 4.0.

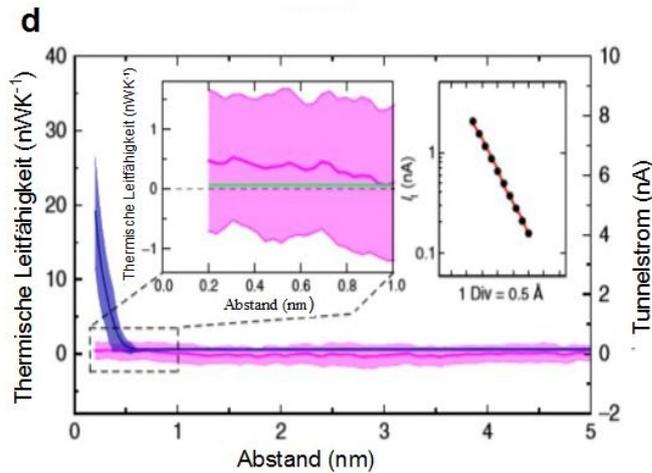
Für die mit Sauerstoffplasma gereinigte Oberfläche in Abbildung 4.3 setzt der Wärmetransport erst bei einem halb so großen Abstand ein wie für die mit organischem Lösungsmittel gereinigten. Die thermische Leitfähigkeit ist ebenfalls maximal halb so groß. Dies entspricht einer Wärmeleistung  $Q = 600 \text{ nW}$ , was etwa vergleichbar mit den Wert aus Kloppstech et al. ist. Auch der Tunnelstrom nimmt ab. Es werden nur noch  $8 \text{ nA}$  bei größter Annäherung festgestellt.

Für die mehrfach mit Sauerstoffplasma gereinigte Probenoberfläche in Ab-



**Abbildung 4.4:** Ergebnisse nach mehrfacher Reinigung mit Sauerstoffplasma. Nach Abb. 2 (c) aus Cui et al., Nature Commun. 8 (2017) 14479, [8], International License: Creative Commons Attribution 4.0.

bildung 4.4 lässt sich kein Anstieg der thermischen Leitfähigkeit mehr feststellen. Allerdings ist die Standardabweichung so groß, dass mit Sicherheit nur eine thermische Leitfähigkeit von  $G > 2,5 \frac{\text{nW}}{\text{K}}$  auszuschließen ist. Die Tunnelstromstärke bei größter Annäherung beträgt  $I_T = 3 \text{ nA}$ . Um für die



**Abbildung 4.5:** Ergebnisse nach mehrfacher Reinigung mit Sauerstoffplasma. Die Temperaturdifferenz zwischen Messsonde und Probenoberfläche beträgt hier  $\Delta T = 130 \text{ K}$ . Nach Abb. 2 (d) aus Cui et al., Nature Commun. 8 (2017) 14479, [8], International License: Creative Commons Attribution 4.0.

Ergebnisse aus Abbildung 4.4 eine signifikantere Aussage treffen zu können, wurde die Temperaturdifferenz zwischen Probenoberfläche und Messspitze vergrößert. Die Oberfläche wurde dazu auf  $T_O = 445 \text{ K}$  erhöht, die der Spitze auf  $T_S = 315 \text{ K}$ . Damit beträgt die Temperaturdifferenz hier  $130 \text{ K}$  statt  $40 \text{ K}$ . Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessert sich dabei, da der Wärmetransport linear mit der Temperatur zunimmt, während das Rauschen temperaturunabhängig ist. Auch in Abbildung 4.5 kann kein Anstieg der thermischen Leitfähigkeit beobachtet werden. Der Tunnelstrom ist stärker als bei der ansonsten identischen Probenpräparation in Abbildung 4.4. Gemessen wird ein Tunnelstrom von  $I_T = 6 \text{ nA}$  [8]. Grund für die Anwendung verschiedener Reinigungsverfahren ist die Annahme, dass die erhöhte thermische Leitfähigkeit, die in Abbildung 4.2 dargestellt ist, aufgrund von Verunreinigungen entsteht.

Sollte diese Hypothese richtig sein, so müssten die Messwerte aus [7] mit jenen der Messreihe aus [8], bei welcher die Probenoberfläche nur durch organisches Lösungsmittel gereinigt wurde, gut vergleichbar sein. Dies soll zunächst grob phänomenologisch in diesem Abschnitt geprüft werden.

Tatsächlich zeigt sich ein linearer Anstieg der thermischen Leitfähigkeit in beiden Versuchen, jeweils aufgrund einer linearen Zunahme der Wärmeleistung bei sich verringernden Abständen. Die maximale thermische Leitfähig-

keit ist dabei jedoch bei Cui et al. etwa um den Faktor 10 größer, als bei Kloppstech et al. Der Grund dafür ist im Versuchsaufbau zu vermuten. Wie in Tabelle 3.1 bereits aufgeführt, ist der Radius der Messspitze bei Cui et al. um etwa den Faktor 5 größer. Dadurch vergrößert sich auch die Fläche, über welche Wärme übertragen wird. Eine größere Wärmeleistung und damit verbunden eine höhere thermische Leitfähigkeit ist daher zu erwarten. Auffällig ist, dass sich die Distanz zwischen den Oberflächen unterscheidet, ab welcher der Wärmetransport einsetzt. Dieser Unterschied ist nicht aus den Aufbauten herzuleiten. Dennoch sind beide Werte in derselben Größenordnung.

Zusammengefasst stellten beide Arbeitsgruppen einen Wärmestrom in der Größenordnung von einigen 100 nW fest, der für Abstände unterhalb von 10 nm einsetzt. Dieser zeigt in beiden Experimenten dieselbe Abstandsabhängigkeit. Zudem konnte nach Cui et al. [8] gezeigt werden, dass sich dieser Effekt scheinbar durch eine andere Präparation der Probenoberfläche unterdrücken lässt.

**Tabelle 4.1:** Ergebnisse der Versuche von Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8] Die Daten von Cui et al. beziehen sich auf das Setup, bei dem die Probenoberfläche sowie die Messspitzenoberfläche mit Aceton gereinigt wurden (vordere Spalte) beziehungsweise nach einfacher Plasmareinigung (hintere Spalte). Die vordere Spalte bei Kloppstech et al. bezieht sich auf die Messung beim Annähern an die Probenoberfläche, die hintere auf das Entfernen von ihr.

	Kloppstech et al.		Cui et al.	
Radius R der Messspitze	30 nm		150 nm	
Mittlere Temperatur T	200 K		323 K	
Temperaturdifferenz dT	160 K		−40 K	
Kritische Entfernung $d_c$	5 nm	6 nm	2,5 nm	1,5 nm
maximale Wärmeleistung $\dot{Q}_0$	500 nW	500 nW	1200 nW	800 nW
Tunnelstromstärke $I_T$ bei $d_0$	50 nA	50 nA	10 nA	3 nA
Einsetzen des Tunnelstroms $d_T$	1 nm	1 nm	0,45 nm	0,35 nm

## 4.2 Interpretation der Daten

Da wir nun die Beobachtungen beider Gruppen isoliert haben, setzen wir diese in einen physikalischen Kontext. Gemäß der Argumentation in Abschnitt 2.2 soll in folgenden Schritten vorgegangen werden:

### Wärmeübertragung nach FED

Die Experimente untersuchten den Wärmetransport im Nahfeld. Standardmäßig wird dieser durch die fluktuierende Elektrodynamik beschrieben. Das soll auch hier zunächst versucht werden.

### Wärmeübertrag durch Tunneleffekte

Sollte die FED den Wärmestrom nicht erklären, liegt es nahe, Effekte wie das Tunneln von Elektronen und Phononen in Betracht zu ziehen.

### Wärmeübertrag durch Kontamination

Liefern diese bekannten Phänomene keine Erklärung für den Wärmestrom, sollte der Aufbau untersucht werden. Daher soll für diesen Fall der Ansatz aus Cui et al. [8] verfolgt werden. Hier werden Kontaminationen, also ein fehlerhaft präparierter Versuchsaufbau, für den Wärmestrom verantwortlich gemacht.

Beginnen wir mit der fluktuierenden Elektrodynamik.

### 4.2.1 Wärmeübertrag nach FED

Im Nahfeld kann im Rahmen der fluktuierenden Elektrodynamik nach Polder und van Hove [6] ein im Vergleich zum Stefan-Boltzmann-Gesetz um mehrere Größenordnungen erhöhter Wärmestrom erwartet werden. Verantwortlich dafür sind die Kopplung evaneszenter Felder zwischen den Oberflächen. In Unterabschnitt 2.2.1 wurde die Theorie der fluktuierenden Elektrodynamik bereits vorgestellt.

Die Wärmeleistungsdichte, welche die FED vorhersagt, ist bezogen auf die Arbeiten von Kloppstech [7] und Cui [8] um zwei Größenordnungen zu klein. Zudem sollte der Wärmestrom für Distanzen unterhalb von einigen 10 nm in Metallen nicht ansteigen, da die Anzahl der zum Wärmestrom beitragenden evaneszenten Moden nicht weiter zunehmen sollte [27].

Um diesen Unterschied zu verdeutlichen: Für Gold sollten Oberflächenplasmon-Zustände und andere evaneszente Moden erst ab etwa 600 K hinreichend thermisch angeregt sein, um den Wärmetransport zu erklären [22]. Dies liegt deutlich über dem Temperaturbereich bei Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8]. Hierbei ist allerdings zu erwähnen, dass sich die fluktuierende Elektrodynamik, wie sie Polder und van Hove [6] herleiten, sich nicht einfach auf die vorgestellten Messergebnisse anwenden lässt. Bei Polder und van Hove wird, wie in Unterabschnitt 2.2.1 beschrieben, von einer Halbraumgeometrie ausgegangen. Diese ist am einfachsten theoretisch zu beschreiben. Die

sich dafür ergebenden Zusammenhänge lassen sich nicht unmittelbar auf die Platte-Spitze-Geometrie übertragen. Die Anwendung der Theorie erfordert zudem Kenntnisse über die Materialeigenschaften der Probe, insbesondere der dielektrischen Eigenschaften [27]. Bei Kloppstech et al. wurden daher dielektrische Eigenschaften und Probengeometrie innerhalb der Theorie für eine besser Annäherung an das Experiment angepasst. Die entstehenden komplexen Gleichungen wurden numerisch gelöst. Dennoch ließen sich Theorie und Messergebnisse nicht miteinander in Einklang bringen [7]. Insgesamt kann die FED den anomalen Wärmestrom nicht erklären, der in [7] und [8] beobachtet wurde.

#### 4.2.2 Wärmeübertrag durch Tunneleffekte

Da die fluktuierende Elektrodynamik allein nicht ausreicht, um den Wärmestrom zu erklären, werden weitere Effekte betrachtet. In diesen Abschnitt folgt daher eine Diskussion über die Einflüsse des Tunnelns von Elektronen und Phononen auf den Wärmestrom. Als Erstes soll das besser verstandene Elektronentunneln besprochen werden.

Der Tunnelstrom setzt in beiden Versuchsreihen erst bei Abständen unter einem Nanometer ein und zeigt dann eine exponentielle Abstandsabhängigkeit. Beides kann nicht den linearen Anstieg des Wärmestroms erklären, der schon bei mehreren Nanometern einsetzt. Damit kann das Tunneln von Elektronen nicht für den gemessenen Wärmestrom verantwortlich sein.

Auch ist sein Beitrag zur Wärmeübertragung nachdem er einsetzt zu klein, um diesen entscheidend zu beeinflussen. In Unterabschnitt 2.2.2 wurden die theoretischen Grundlagen bereits ausgeführt. Der Wärmeübertrag durch den Tunnelstrom kann wie bei jedem beliebigen elektrischen Strom betrachtet werden. Beim Tunneln verlieren Elektronen im Vakuum keine Energie. Im Medium, in das sie hineintunneln, verhält sich der Tunnelstrom so wie jeder anders erzeugte elektrische Strom. Das Stromwärmegesetz findet daher auch hier Anwendung. Durch den elektrischen Widerstand im Material wird elektrische Energie in Wärmeenergie umgewandelt. Mathematisch lässt sich diese  $Q$  als Integral der elektrischen Leistung  $P_{el}$  über die Zeit berechnen, also:

$$Q = \int_0^{t_{max}} P_{el}(t) dt. \quad (4.2)$$

In Kombination mit dem Ohmschen Gesetz  $U = RI$  und der elektrischen Leistung  $P_{el} = UI$ , wobei  $U$  für die elektrische Spannung,  $I$  für die Stromstärke und  $R$  für den elektrischen Widerstand steht, folgt aus Gleichung (4.2) für die Wärmeleistung  $\dot{Q}$  bei gleichmäßiger Erwärmung

$$\dot{Q} = P_{el} = UI = I^2 R. \quad (4.3)$$

Für beide Arbeitsgruppen wurde die Stromstärke des Tunnelstroms gemessen. Für Kloppstech et al. betrug die maximale gemessene Stromstärke  $I_{max} =$

50 nA. In der Arbeit wird zusätzlich eine Tunnelspannung von  $U_T = 500$  mV angegeben [7]. Daraus folgt nach Gleichung (4.3) eine Wärmeleistung von  $\dot{Q} = 25$  nW. Damit ist der Wärmetransport durch Tunnelelektronen kleiner als die Messunsicherheit des Wärmestroms in Kloppstech et al. [26].

Bei Cui et al. ergibt sich für den Tunnelstrom in der Messreihe mit der durch organische Lösungsmittel gesäuberten Probe bei maximal 10 nA eine Wärmeleistung von  $\dot{Q} = 5$  pW [8]. Hier lässt sich der Beitrag zum Wärmetransport vernachlässigen.

In Unterabschnitt 2.2.3 wurde zudem die in Altfeder et al. [17] angeführte Möglichkeit des Tunnelns von Phononen beschrieben. Altfeder erklärt dies durch einen sehr effektiven Kopplungsmechanismus. Dabei koppeln die thermischen Schwingungen eines Fremdatoms an der Messspitze an jene der Probenoberfläche. Dadurch können Phononen von der Probe über das Vakuum auf die Messspitze übertragen werden. Dieser Tunneleffekt setzt laut Altfeder et al. aber erst bei Abständen unter einem Nanometer ein. Als Grund für den anormalen Wärmestrom wäre es damit ausgeschlossen. Allerdings ist die Beschreibung nach Altfeder die erste ihrer Art. Das Phonontunneln ist bisher als physikalischer Effekt kontrovers diskutiert. Bemerkenswert ist, dass der Effekt in den Versuchen von Kloppstech und Cui scheinbar nicht zu beobachten ist. In Kloppstech et al. wird daher der Gedanke geäußert, dass der gigantische Wärmestrom eben durch das Tunneln von Phononen verursacht wird.

Zumindest in der Art, wie in Altfeder et al. [17] beschrieben, ist dies nicht möglich. Auch andere Arbeitsgruppen diskutieren die Möglichkeit, dass Phononen zum Wärmestrom über ein Vakuum beitragen [20] [21]. Jedoch passen auch hier die Abstandsabhängigkeiten nicht zu den hier diskutierten Messdaten. Ob ein ähnlicher Effekt tatsächlich zu dem Wärmestrom führt, kann nicht ausgeschlossen werden. Zu diesem Zeitpunkt ist es jedoch nicht belegbar.

### 4.2.3 Wärmeübertrag durch Kontamination

Der Versuch, den Wärmestrom aus [7] und [8] durch bekannte Nahfeldeffekte zu beschreiben, ist damit nicht zufriedenstellend. Somit muss die Möglichkeit eines fehlerhaften Versuchsaufbaus erwogen werden.

In Cui et al. [8] wird angeführt, dass der Wärmestrom durch Kontamination verursacht wird. Die Effekte von Kontaminationen sind in Unterabschnitt 2.2.3 bereits diskutiert. Gegenmaßnahmen, um Verschmutzungen zu verhindern, sind teilweise in Kapitel 3 beschrieben.

Aufgrund des geringen Abstands zwischen der Messspitze des NSThM und der Probenoberfläche in den Versuchen [7] [8] können bereits kleine Verunreinigungen die Messresultate signifikant beeinflussen. Sie können den Abstand variieren oder sogar Brücken zwischen den Oberflächen bilden lassen. Deshalb wurden die Experimente im UHV bei  $10^{-10}$  mbar durchgeführt. In [22]

konnte jedoch gezeigt werden, dass sich selbst bei diesen Bedingungen eine Adsorbatschicht auf der Probenoberfläche absetzt. Die Menge des kondensierenden Restgases lässt sich durch die Hertz-Knudsen-Gleichung bestimmen, insofern der Restdruck  $p$  des Gases sowie dessen Temperatur  $T_0$  und seine Bestandteile mit ihrer Masse  $M$  bekannt sind [22] [28]. Die Anzahl  $N$  der Moleküle, die sich dann pro Zeit und Fläche auf der Oberfläche absetzen, lautet [28]:

$$\dot{N} = \frac{\alpha(p - p_{eq})}{\sqrt{2\pi k_B T_0 M}}. \quad (4.4)$$

$\alpha$  entspricht dabei dem Kondensationskoeffizienten,  $k_B$  ist die Boltzmann-Konstante und  $p_{eq}$  beschreibt den Gleichgewichtsdruck des Kondensats an der Oberfläche. Da das Restgas an der Probenoberfläche abgelagert, muss die Reinigung möglichst unmittelbar vor der Messung stattfinden. In [7] wird beschrieben, dass die Probe nach der Reinigung unter UHV-Bedingungen gelagert und vor der eigentlichen Messung untersucht wurde. Konnten dabei "Inseln" auf topografischen Aufnahmen gefunden werden, welche durch Kontamination entstanden, wurde der Reinigungszyklus wiederholt. Gemessen wurde erst, wenn die Aufnahmen keine Verunreinigungen mehr zeigten. Es ist bekannt, dass solche Verunreinigungen den Wärmestrom verdoppeln können, auch wenn kein direkter Kontakt der Oberflächen entsteht. Selbst ohne die Entstehung eines direkten Kontaktes können Fremdatome die Kopplungsmechanismen zwischen den Oberflächen beeinflussen [22]. Wie in Abschnitt 2.2 bemerkt, beträgt die Diskrepanz zwischen der gängigen Theorie der fluktuierenden Elektrodynamik und den Messwerten mehrere Größenordnungen. Um diese zu erklären, müssten die Verunreinigungen tatsächlich Brücken zwischen der Messsonde und der Probenoberfläche bilden.

Bei Cui et al. [8] wurden verschiedene Reinigungstechniken verwendet. Dadurch sollte nachgewiesen werden, dass der Wärmestrom auf schlechte Reinigung zurückzuführen ist.

In Cui et al. [8] werden dazu Messungen der thermischen Leitfähigkeit in einem Setup unternommen, in welchem nur die Reinigungsmethode der Probenoberfläche verändert wird (vgl. Abbildung 4.2 bis Abbildung 4.4). Die Messergebnisse lassen eindeutig einen Zusammenhang zwischen dem verwendeten Reinigungsverfahren und den Messergebnissen für die Wärmeleitfähigkeit beziehungsweise die Stromstärke des Tunnelstroms erkennen. Das weist allerdings nur nach, dass die Probenpräparation die Messergebnisse beeinflusst.

Die Theorie hat zudem auch Schwächen. Die topografischen Aufnahmen für die Probenoberfläche in den Versuchen bei Kloppstech et al. [7] belegen, dass die Oberfläche zum Zeitpunkt der Aufnahme frei von Verschmutzungen war. Sollten Fremdatome also die Lücke überbrückt haben, müssten diese sich in der Zeit zwischen der topografischen Aufnahme und der eigentlichen Messung abgesetzt haben. Aus Gleichung (4.4) lässt sich eine obere Grenze für

die Menge der an der Oberfläche adsorbierenden Teilchen ableiten. Das Restgas sollte wie Luft zusammengesetzt sein. Wir betrachten in guter Näherung daher das Restgas als  $N_2$ . Nehmen wir zusätzlich an, dass jedes Molekül, das die Oberfläche berührt, an ihr kondensiert ( $\alpha = 1$ ) und kein Molekül von der Oberfläche verdunstet beziehungsweise sublimiert ( $p_{eq} = 0$ ). Nach Gleichung (4.4) adsorbiert pro Stunde und Quadratnanometer im Schnitt ein Molekül<sup>1</sup>. Dies ist zu wenig, um in der Zeit zwischen topografischer Aufnahme und Wärmestrommessung durch Adsorbaten 5 nm zu überbrücken. Damit es zu einem Kontakt kommt, müsste nach der topografischen Untersuchung bereits eine mehrere Nanometer starke Verunreinigung auf der Oberfläche sein. Es ist zumindest erstaunlich, dass diese auf den topografischen Aufnahmen nicht zu sehen sind. Dies lässt erhebliche Zweifel an der Richtigkeit der Theorie zu.

---

<sup>1</sup>Für  $T = 200$  K und  $p = 10^{-10}$  mbar.

# 5 Das Snap-In-Modell

Es zeigt sich, dass keine der beschriebenen Ansätze den anormalen Wärmestrom zufriedenstellend erklärt. Das Tunneln von Phononen und Kontamination sind plausible Erklärungen für die Messergebnisse. Jedoch weisen beide Ansätze auch Schwächen auf und lassen sich mit den aktuell vorliegenden Daten nicht eindeutig beweisen. Der Versuch, den Wärmestrom theoretisch zu beschreiben, muss damit fürs Erste als gescheitert betrachtet werden.

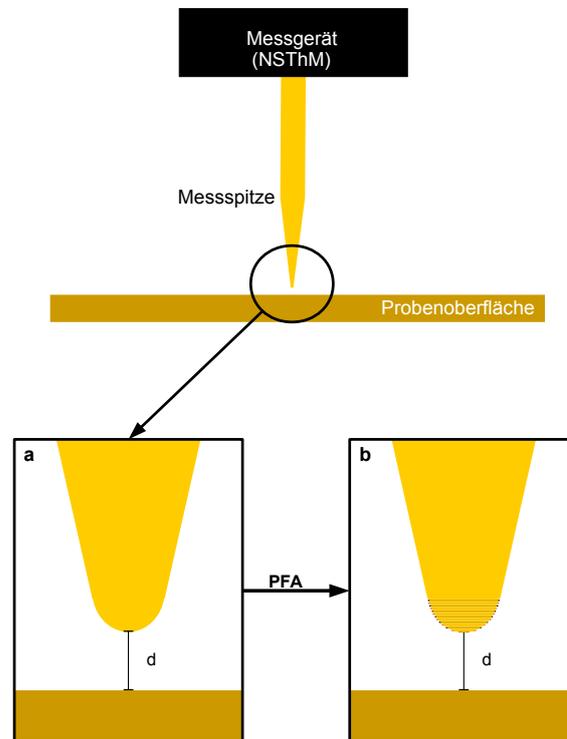
In diesem Abschnitt soll daher zumindest phänomenologisch beschrieben werden, was in den Messungen zu beobachten ist. Dazu soll das Snap-In-Modell dienen. Das Modell wird zunächst in seinen Grundzügen vorgestellt und danach auf die vorliegenden Messdaten angewandt. Es soll überprüft werden, wie Modellparameter aus den experimentellen Daten bestimmt werden können. Abschließend sollen mögliche Kopplungsmechanismen diskutiert werden, welche den Wärmetransport tragen könnten.

## 5.1 Das Modell

In diesem Abschnitt soll die Grundidee des Modells erläutert werden. Grundlage ist die *proximity force approximation*, auch bekannt als *Derjaguin approximation*. Sie erleichtert es erheblich, theoretische Aussagen bei der experimentell vorliegenden Geometrie zu treffen. Die in der Theorie am einfachsten zu beschreibende Geometrie wäre ein Aufbau aus zwei parallelen Platten im Abstand  $d$  zueinander. Ein solcher Versuchsaufbau lässt sich jedoch selbst bei größeren Abständen schwer umsetzen. Eine Platte-Platte-Geometrie mit Abständen von wenigen Nanometern würden eine extrem genaue Ausrichtung der Platten zueinander erfordern. Selbst kleine Abweichungen von der perfekt parallelen Positionierung der Oberflächen zueinander würden zu großen Abstandsunterschieden zwischen verschiedenen Stellen an der Oberfläche führen. Um im Nanometer-Bereich zu messen, dürfte zudem nichts zwischen den Platten sein, das einen Kontakt herstellt. Dadurch würde unmittelbar Wärmeleitung einsetzen. Dennoch müsste man sicherstellen, dass die Oberflächen stabil und parallel zueinander bleiben<sup>1</sup>. In den Experimenten nach Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8] wurde stattdessen der ebenen Pro-

---

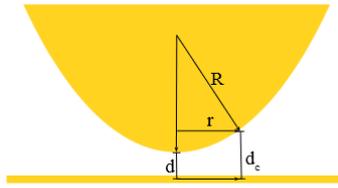
<sup>1</sup>In anderen Versuchen wurde diese Geometrie dennoch realisiert, so zum Beispiel in [5].



**Abbildung 5.1:** Oben: Versuchsgeometrie aus Messspitze des NSThM und der Probenoberfläche. (a) zeigt die Spitze, welche sich in guter Näherung durch einen Kegel mit sphärischem Ende beschreiben lässt. (b) veranschaulicht die *proximity force approximation* (PFA). Das sphärische Ende des Kegels wird in kleine dünne Schichten zerlegt. Zur Wärmeleitung trägt nur der Teil der Scheibe bei, der nicht durch die darunterliegenden Schichten verdeckt ist. In beiden unteren Bildern ist der kleinste Abstand  $d$  eingetragen.

benoberfläche eine Spitze gegenüber gesetzt. Durch diese wird an einem Ort der Probe für einen wohldefinierten Abstand der Wärmestrom detektiert. Der genaue Versuchsaufbau sowie das Messprinzip für den Wärmetransport sind bereits in Kapitel 3 erläutert. Zur Visualisierung des Folgenden sei der Versuchsaufbau in Abbildung 5.1 nochmals skizziert. Diese Anordnung ist experimentell verhältnismäßig einfach. Die Spitze lässt sich als spitzer Kegel annähern, welcher ein sphärisches Ende besitzt. In der Theorie ist diese Halbkugel-Platte-Geometrie schwer zu beschreiben. Die *proximity force approximation* wird nun verwendet, um die Spitze-Platte-Geometrie mit einer Platte-Platte-Geometrie anzunähern. Dabei wird die gekrümmte Oberfläche der Spitze durch ebene Schichten approximiert. In Abbildung 5.1 ist dies veranschaulicht. Dadurch lässt sich die Messgröße theoretisch durch die Addition der Beiträge der einzelnen ebenen Platten beschreiben.

Diese Beschreibung dient als Grundlage für das Snap-In-Modell. Hier wird davon ausgegangen, dass ab einem kritischen Abstand  $d_c$  der Wärmestrom spontan einsetzt. Für alle Abstände  $d > d_c$  ist der Wärmetransport dann zu vernachlässigen. Damit trägt nur die Fläche  $A_c$  zum Wärmetransport bei, die einen geringeren Abstand als  $d_c$  zwischen Spitze und Probenoberfläche aufweist. Nach *proximity force approximation* wird die gekrümmte durch eine ebene Oberfläche angenähert. Die Projektion der Spitzenoberfläche auf die Probenoberfläche wird mit der aktiv am Wärmestrom beteiligten Oberfläche gleichgesetzt. Damit ergibt sich für die Fläche:



$$\begin{aligned}
 A_c &= \pi r^2 \\
 &= \pi(R^2 - (R - (d_c - d))^2) \\
 &= \pi(2R + d - d_c)(d_c - d) \\
 &\approx 2\pi R(d_c - d), \quad R \gg d_c - d
 \end{aligned}$$

**Abbildung 5.2:** Skizze zur Spitzenspitzenoberfläche, welche im Snap-In-Modell zum Wärmetransport beiträgt

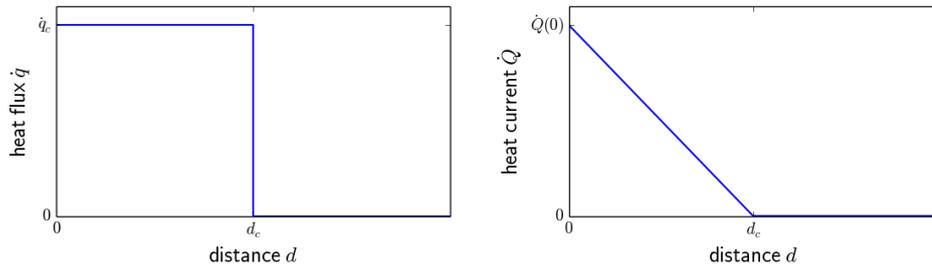
Die Fläche  $A_c$  hängt somit linear vom Abstand  $d$  zwischen Oberfläche und Messspitze ab.

Betrachten wir nun das Verhalten der Wärmestromdichte  $\dot{q}_c$ , also des Wärmestroms, der je Fläche  $A_c$  übertragen wird. Die Wärmestromdichte selbst ist nicht abstandsabhängig. Sind die Oberflächen nahe genug, dass der Wärmestrom einsetzt, so ist dieser auf der aktiv beteiligten Fläche sofort maximal. Der Gesamtwärmetransport wird danach größer mit abnehmendem Abstand, da die aktive Fläche größer wird. Der detektierte Wärmestrom sollte sich dann ergeben zu

$$\dot{Q} = \dot{q}_c A_c = \dot{q}_c 2\pi R(d_c - d). \quad (5.1)$$

Das Modell sagt somit einen linearen Zusammenhang zwischen dem Wärmestrom  $\dot{Q}$  und dem Abstand  $d$  der Oberflächen für Abstände kleiner als  $d_c$  voraus. Dieses Verhalten der Wärmestromdichte  $\dot{q}_c$  ist in Abbildung 5.3 auf der linken Seite dargestellt, rechts das Verhalten des Gesamtwärmestroms  $\dot{Q}$ .

Für die nachfolgenden Betrachtungen ist fernerhin die Kanaldichte, beziehungsweise die Anzahl an geöffneten Kanälen, von Bedeutung. Dazu ist es zweckmäßig den Wärmestrom zu quantisieren. Dies ist sinnvoll, da im Snap-In-Modell die Annahme gilt, dass jeder offene Kanal denselben Beitrag zum Wärmestrom liefert. Dieser ist dann nur von der Temperatur abhängig. Das Wärmeleitquantum  $G'$  ist definiert als die maximal durch eine ballistische Phononenmode transportierte Wärmemenge [29]. Für den Wärmestrom  $\dot{Q}_k$



**Abbildung 5.3:** Links: Wärmeleistung je Fläche. Im Snap-In-Modell nimmt man an, dass die Wärmestromdichte  $\dot{q}_c$  nicht vom Abstand  $d$  abhängt, sobald  $d \leq d_c$ . Für  $d > d_c$  gilt  $\dot{q}_c = 0$ . Rechts: Wärmestrom  $\dot{Q}$  als Produkt aus Wärmeleistung je Fläche  $\dot{q}$  und beteiligter Fläche  $A_c$ . Zwischen  $\dot{Q}$  und  $d$  besteht für  $d \leq d_c$  ein linearer Zusammenhang.

je Kanal gilt dann:

$$\dot{Q}_k = G' \Delta T = \frac{\pi^2 k_b^2 T}{3h} \Delta T. \quad (5.2)$$

Dieser Zusammenhang ist korrekt, wenn die Temperaturdifferenz zwischen der Messspitze und der Probenoberfläche hinreichend klein ist. Mit Gleichung (5.2) ergibt sich als Zusammenhang zwischen Wärmestromdichte  $\dot{q}_c$  und Kanaldichte  $n_c$ :

$$\dot{q}_c \approx G' \Delta T n_c. \quad (5.3)$$

Vergleichen wir diese Vorhersagen des Modells im nächsten Abschnitt mit den Messergebnissen der beiden Gruppen.

## 5.2 Vergleich mit den Messdaten

Bei Betrachtung der Messwerte in Abbildung 4.1 bis Abbildung 4.3 fällt der lineare Zusammenhang zwischen Wärmestrom und Abstand auf. Dies passt sehr gut zu den Vorhersagen des Modells (siehe Gleichung (5.1)). Die experimentellen Daten seien nochmals in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Obwohl die Temperaturen bei den Experimenten, die Temperaturdifferenzen und Spitzenradien sehr unterschiedlich sind, liegen die Werte für die Kanal- und Wärmeleistungsdichte in vergleichbaren Größenordnungen.

Die Kanaldichte ist je Quadratängström gegeben. Eine Einheitszelle in Gold hat eine Fläche von etwa  $16,6 \text{ \AA}^2$ . Das bedeutet, dass für eine Einheitszelle 50 und mehr Kanäle geöffnet sein müssten. Es sollten allerdings nur wenige pro Einheitszelle sein. Es bleiben zwei Dinge festzuhalten: Erstens sind die Kanaldichte für alle betrachteten Messungen in derselben Größenordnung. Zweitens ist der Wärmestrom gigantisch und kann kaum mit Kanälen abgezählt werden.

Die Unterschiede in den Werten von Kloppstech et al. und Cui et al. spiegeln vor allem den unterschiedlichen Abstand wider, bei dem der Wärmestrom einsetzt. Hier unterscheiden sich die Ergebnisse aus Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8] um einen Faktor von 2 bis 4.

**Tabelle 5.1:** Mess- und Setupwerte für die Versuche von Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8] und daraus im Rahmen des Snap-In-Modell abgeleitete Größen.

Die Daten von Cui et al. beziehen sich auf das Setup, bei dem mit Aceton gereinigt wurde (vordere Spalte) beziehungsweise nach einfacher Plasmareinigung (hintere Spalte). Die vordere Spalte bei Kloppstech et al. bezieht sich auf die Messung beim Annähern an die Probenoberfläche, die hintere auf das Entfernen von ihr.

	Kloppstech et al.		Cui et al.	
Radius R der Messspitze	30 nm		150 nm	
Temperatur $T_S$ der Messspitze	280 K		303 K	
Temperatur $T_O$ der Probenoberfläche	120 K		343 K	
Kritische Entfernung $d_c$	5 nm	6 nm	2,5 nm	1,5 nm
Maximale Wärmeleistung $\dot{Q}_0$	500 nW	500 nW	1200 nW	800 nW
Wärmestromdichte $\dot{q}_0$	$5,3 * 10^8 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$	$4,4 * 10^8 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$	$5,1 * 10^8 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$	$5,7 * 10^8 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$
Wärmestromdichte $\dot{q}_{FED}$ nach FED	$2,3 * 10^6 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$		$3,8 * 10^6 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$	
Kanaldichte $n_c$	$1,75 \text{ \AA}^{-2}$	$1,46 \text{ \AA}^{-2}$	$4,17 \text{ \AA}^{-2}$	$4,63 \text{ \AA}^{-2}$

Im Rahmen des Modells liegen die Werte in den betrachteten Versuchsreihen sehr nahe beieinander. Das Snap-In-Modell scheint insgesamt eine gute Beschreibung für die Daten der Experimente darzustellen.

Der größte Unterschied zwischen den Experimenten liegt eindeutig im kritischen Abstand. Dies pflanzt sich in abgeschwächter Form in den übrigen Werten fort. Das Snap-In-Modell trifft keine Aussagen über den Kopplungsmechanismus, der den Wärmetransport trägt. Die verschiedenen kritischen Abstände könnten daher auch auf verschiedene Kopplungsmechanismen hindeuten. Es wäre vorstellbar, dass nicht nur ein Effekt den Wärmetransport trägt, sondern eine Überlagerung mehrerer Effekte den anormalen, linear ansteigenden Wärmestrom verursacht. Dazu sollen im Folgenden ein paar Überlegungen stattfinden.

### 5.3 Kopplungsmechanismen

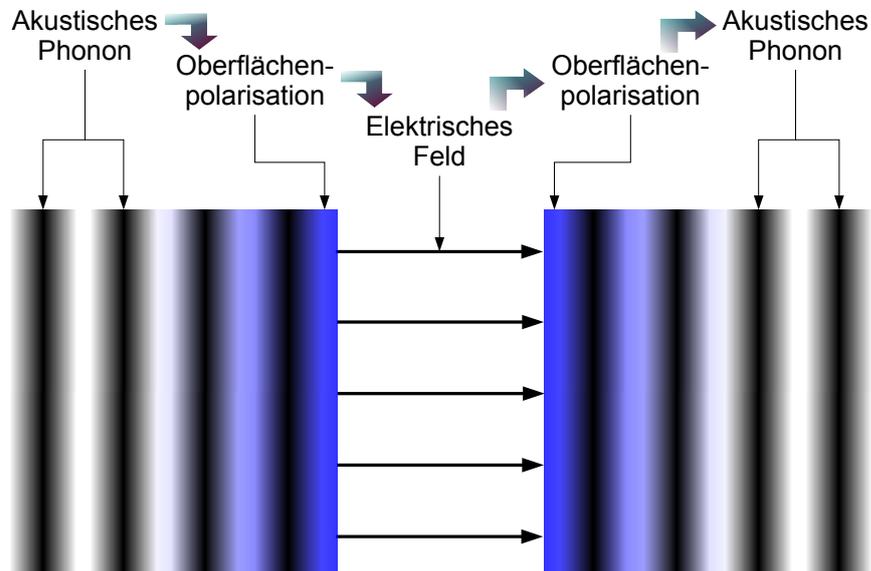
Nachfolgend soll über das eigentliche Snap-In-Modell hinausgegangen werden. Im Rahmen des Modells wird keine Aussage getroffen, wie der Wärmestrom entsteht. Daher sollen in diesem Abschnitt verschiedene Kopplungsmechanismen diskutiert werden, die den riesigen Wärmetransport verursachen könnten. Die Kopplung muss sehr stark sein, damit eine Wärmeleistungsdichte in der Größenordnung von  $10^8 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$  zu Stande kommen kann.

Unter Beachtung der sehr kleinen Abstände zwischen Messspitze und Probenoberfläche muss die Rauheit der Oberflächen beachtet werden. Für sehr raue Oberflächen, wie in [30], wäre es vorstellbar, dass sich mehrere "Spitzen" innerhalb des kritischen Abstands befinden. Zur besseren Vorstellung kann als Analogie eine Gebirgslandschaft herangezogen werden, bei der es nicht nur einen Berggipfel gibt, von dem aus betrachtet das Gelände nur noch abfällt. Vielmehr entsteht durch die Rauheit ein "Gelände" mit mehreren Gipfeln. Die aktive Fläche wäre damit größer als in der Theorie angenommen.

Ein in letzter Zeit viel diskutierter Ansatz nennt Phononen als mögliche Erklärung für den anormalen Wärmetransport. In Gold können aufgrund der fcc-Kristallstruktur keine optischen Phononen angeregt werden (vgl. Unterabschnitt 2.2.1). Nur diese können an das elektromagnetische Feld koppeln. Dies schließt Phononen allerdings nicht zwingend als Wärmeleiter aus.

So ist in den vorliegenden Experimenten nicht gesichert, dass die fcc-Struktur auch tatsächlich streng vorliegt. Beim Bedampfen der Messsonde mit einer dünnen Schicht Gold könnte das Metall auch amorph statt kristallin auf der Sonde ablagern. Für die Probenoberfläche ist zudem bekannt, dass Gold dazu neigt zu rekonstruieren [31]. Bulk-Phononen könnten dann durch Streuung an der Oberfläche optische Moden anregen, da die fcc-Struktur nicht mehr streng gültig ist.

Ebenfalls erwähnenswert ist eine Überlegung, welche auf Andersson et al. [32] zurückgeht. Ein Elektronengas reagiert mit Oszillationen auf ein elektromagnetisches Feld. Diese führen zu einer Ladungsdichterverschiebung. Auch in Metallen lässt sich dieser Effekt bis in eine Tiefe von einigen Atomla-



**Abbildung 5.4:** Möglicher Mechanismus hinter dem anomalen Wärmetransport: Akustische Phononen im Volumen erzeugen eine endliche Polarisation an der Oberfläche. Diese entsteht, da die Kerne gegen die Elektronen schwingen und so ein optisches Phonon getrieben wird. Das optische Phonon erzeugt ein elektrisches Feld, welches auf der gegenüberliegenden Oberfläche eine Polarisation erzeugt die ihrerseits wieder in Volumen-Phononen zerfällt.

gen beobachten. Aus der Ladungsverschiebung resultiert eine Kraft auf die Atomkerne. Dadurch wiederum werden optische Phononen angeregt, welche ihrerseits in Volumenphononen zerfallen. Umgekehrt könnte dieser Mechanismus eine Oberflächenpolarisation erzeugen. Diese kann elektrostatisch an eine nahe Oberfläche koppeln und so Volumenphononen "aktivieren". Veranschaulicht wird dies in Abbildung 5.4.

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Masterarbeit beschäftigt sich mit der Wärmeübertragung zwischen zwei durch ein Vakuum getrennte Metalloberflächen. Wir betrachten dabei Abstände unterhalb von 10 nm. Für solch kleine Distanzen kann der Wärmetransport den durch Planck-Strahlung um mehrere Größenordnungen übertreffen. Dies sagt bereits die Rytovsche Theorie der fluktuierenden Elektrodynamik voraus [6]. Die Experimente von Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8] untersuchten erstmals explizit den Wärmetransport für Abstände unterhalb von 10 nm. Die Messergebnisse übertreffen jedoch selbst die von der FED vorhergesagten Werte zum Teil um mehrere Größenordnungen.

Die durch diese Versuchsreihen von Kloppstech et al. [7] und Cui et al. [8] ausgelöste Diskussion zeigt, dass bei weitem kein Konsens besteht, wie die Wärmeübertragung für solch kleine Entfernungen funktioniert. Während bei Kloppstech et al. ein neuer Mechanismus vermutet wird, der bisher in Theorien zum Wärmetransport unberücksichtigt ist, wird bei Cui et al. eine fehlerhafte Probenreinigung vermutet. Andererseits zeigt der Verlauf der Debatte auch, dass bisher deutlich zu wenig belastbare Daten vorliegen. Eine fundierte theoretische Beschreibung, die universell das Verhalten im Ultranahefeld beschreibt, ist so nur schwer möglich.

Sollten sich die Vermutungen von Kloppstech et al. [7] für die Messergebnisse bestätigen, hätte die sehr effektive kontaktlose Wärmeübertragung durchaus große Relevanz für Wissenschaft und Industrie. Zunächst muss dafür allerdings geklärt werden, wie diese Wärmeübertragung funktioniert.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte festgestellt werden, dass ein Teil der experimentellen Daten von den zwei Experimenten zahlenmäßig durch eine Fit-Formel mit relativ konsistenten Parametern beschrieben werden kann. Trotz der großen Abweichungen im Versuchsaufbau sind die Messresultate also tatsächlich überraschend gut vergleichbar.

Zum jetzigen Zeitpunkt ist es nicht möglich, eine fundamentale Beschreibung der Physik hinter dem anormalen Wärmetransport zu treffen, der nach den Ergebnissen von Kloppstech den theoretisch erwarteten Wert nach der Rytovschen fluktuierenden Elektrodynamik um drei Größenordnungen über-

trifft [7]. Daher wird in dieser Arbeit versucht, ein Modell zu bilden, das zumindest die Phänomenologie der Beobachtungen von Kloppstech et al. und Cui et al. gut wiedergibt. Hierfür dient das Snap-In-Modell.

Versucht wird, den Wärmetransport im extremen Nahfeld durch das Öffnen von Kanälen unterhalb einer kritischen Distanz zu beschreiben. Das Modell liefert den linearen Zusammenhang zwischen dem Abstand der Messspitze von der Probenoberfläche und dem gemessenen Wärmestrom. Dabei bleibt offen, wie Wärme durch die Kanäle übertragen wird. Die hier vorgestellten Überlegungen stellen Ansätze dar, wie der Transport funktionieren könnte. Ob eine Beschreibung durch sich öffnende Kanäle tatsächlich sinnvoll ist und welcher Natur diese Kanäle sind, muss erst in weiteren Untersuchungen geklärt werden. Auf Grundlage der verfügbaren Daten scheint die Beschreibung ein guter Ansatz zu sein.

Das Snap-In-Modell hat die Intention, die Debatte um die physikalische Beschreibung des extremen Nahfeldes anzuregen. Es soll am Anfang und nicht am Ende der Forschung in diesem Bereich stehen. Die Daten aus [7] und [8] sowie der daraus resultierende Disput der beiden Arbeitsgruppen zeigen, dass eine solche Debatte überfällig ist.

# Literaturverzeichnis

- [1] C. Gerthsen, D. Meschede, and H. Vogel. *Physik, 23. Auflage*. Berlin: Springer, 2006.
- [2] J. Hartmann and F. Bernhard. *Strahlungstemperaturmessung*, pages 1161–1393. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2014.
- [3] S. Shen, A. Narayanaswamy, and G. Chen. Surface phonon polaritons mediated energy transfer between nanoscale gaps. *Nano Letters*, 9(8):2909–2913, 2009.
- [4] R.S. Ottens, V. Quetschke, S. Wise, A.A. Alemi, R. Lundock, G. Mueller, D.H. Reitze, D.B. Tanner, and B.F. Whiting. Near-field radiative heat transfer between macroscopic planar surfaces. *Physical Review Letters*, 107(1):014301, 2011.
- [5] T. Kralik, P. Hanzelka, M. Zobac, V. Musilova, T. Fort, and M. Horak. Strong near-field enhancement of radiative heat transfer between metallic surfaces. *Physical Review Letters*, 109(22):224302, 2012.
- [6] D.V.H.M. Polder and M. Van Hove. Theory of radiative heat transfer between closely spaced bodies. *Physical Review B*, 4(10):3303, 1971.
- [7] K. Klopstech, N. Köhne, S.-A. Biehs, A.W. Rodriguez, L. Worbes, D. Hellmann, and A. Kittel. Giant heat transfer in the crossover regime between conduction and radiation. *Nature Communications*, 8, 14457, 2017.
- [8] L. Cui, W. Jeong, V. Fernández-Hurtado, J. Feist, F.J. García-Vidal, J.C. Cuevas, E. Meyhofer, and P. Reddy. Study of radiative heat transfer in ångström- and nanometre-sized gaps. *Nature Communications*, 8, 14479, 2017.
- [9] C. Henkel and P.P. Schmidt. On anomalously large nano-scale heat transfer between metals. *Journal of the Optical Society of America B* (2019 in press) *arXiv:1812.05171*, 2018.

- [10] H.D. Baehr and K. Stephan. *Einführung. Technische Anwendungen*, pages 1–119. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2016.
- [11] G. Kirchhoff. Ueber das Verhältniss zwischen dem Emissionsvermögen und dem Absorptionsvermögen der Körper für Wärme und Licht. *Annalen der Physik*, 185(2):275–301, 1860.
- [12] M. Planck. Ueber das Gesetz der Energieverteilung im Normalspectrum. *Annalen der Physik*, 309(3):553–563, 1901.
- [13] J. Stefan. Über die Beziehung zwischen der Wärmestrahlung und der Temperatur. *Sitzungsberichte der mathematisch-naturwissenschaftlichen Classe der kaiserlichen Akademie der Wissenschaften Wien*, 79:S. 391, 1879.
- [14] L. Boltzmann. Ableitung des Stefan’schen Gesetzes, betreffend die Abhängigkeit der Wärmestrahlung von der Temperatur aus der electromagnetischen Lichttheorie. *Annalen der Physik*, 258(6):291–294, 1884.
- [15] S.-A. Biehs. *Theorie und Anwendung thermisch induzierter Nahfelddefekte*. PhD thesis, Universität Oldenburg, 2008.
- [16] R. Gross and A. Marx. *Festkörperphysik*. Walter de Gruyter GmbH & Co KG, 2012.
- [17] I. Altfeder, A.A. Voevodin, and A.K. Roy. Vacuum phonon tunneling. *Physical Review Letters*, 105(16):166101, 2010.
- [18] W. Demtröder. Grundlagen der Quantenmechanik. *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*, pages 117–143, 2005.
- [19] N.W. Ashcroft and D.N. Mermin. *Festkörperphysik*. Oldenbourg, 2013.
- [20] M. Prunnila and J. Meltaus. Acoustic phonon tunneling and heat transport due to evanescent electric fields. *Physical Review Letters*, 105(12):125501, 2010.
- [21] D.P. Sellan, E.S. Landry, K. Sasihithlu, A. Narayanaswamy, A.J.H. McGaughey, and C.H. Amon. Phonon transport across a vacuum gap. *Physical Review B*, 85(2):024118, 2012.
- [22] N. Köhne. *Molekularer Wärmetransport einzelner Moleküle*. PhD thesis, Universität Oldenburg, 2016.
- [23] L. Cui, W. Jeong, S. Hur, M. Matt, J.C. Klöckner, F. Pauly, P. Nielaba, J.C. Cuevas, E. Meyhofer, and P. Reddy. Quantized thermal transport in single-atom junctions. *Science*, 355(6330):1192–1195, 2017.

- [24] P. Debye. Zur theorie der spezifischen wärmen. *Annalen der Physik*, 344(14):789–839, 1912.
- [25] A. Kittel, D. Hellmann, L. Worbes, and M. Holthaus. Das Nahfeld-Rasterwärmemikroskop. *Physik in unserer Zeit*, 42(1):10–11, 2011.
- [26] K. Kloppstech, N. Könné, L. Worbes, D. Hellmann, and A. Kittel. Dancing the tight rope on the nanoscale—Calibrating a heat flux sensor of a scanning thermal microscope. *Review of Scientific Instruments*, 86(11):114902, 2015.
- [27] W. Müller-Hirsch. *Wärmeübertrag in der Ultra-Hochvakuum-Rasterwärmespektroskopie*. PhD thesis, Universität Oldenburg, 2000.
- [28] R. Hołyst, M. Litniewski, and D. Jakubczyk. A molecular dynamics test of the Hertz–Knudsen equation for evaporating liquids. *Soft Matter*, 11(36):7201–7206, 2015.
- [29] K. Schwab, E.A. Henriksen, J.M. Worlock, and M.L. Roukes. Measurement of the quantum of thermal conductance. *Nature*, 404(6781):974, 2000.
- [30] K. Kim, B. Song, V. Fernández-Hurtado, W. Lee, W. Jeong, L. Cui, D. Thompson, J. Feist, M.T.H. Reid, F.J. García-Vidal, et al. Radiative heat transfer in the extreme near field. *Nature*, 528(7582):387, 2015.
- [31] C.G. Schlaup. *In situ STM-Untersuchungen ultradünner Münzmetallchalkogenidfilme auf Au (100) und Au (111)-Elektrodenoberflächen*. PhD thesis, Universität Bonn, 2010.
- [32] S. Andersson, B.N.J. Persson, M. Persson, and N.D. Lang. Long-range electron-phonon coupling at metal surfaces. *Physical Review Letters*, 52(23):2073, 1984.

# Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, Paul Philip Schmidt, dass ich die vorliegende Masterarbeit ohne Hilfe Dritter und ohne Zuhilfenahme anderer als der angegebenen Quellen und Hilfsmittel angefertigt habe. Die den benutzten Quellen wörtlich oder inhaltlich entnommenen Stellen sind als solche kenntlich gemacht. Die „Richtlinie zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis für Studierende an der Universität Potsdam (Plagiatsrichtlinie) - Vom 20. Oktober 2010“, im Internet unter <http://uni-potsdam.de/ambek/ambek2011/1/Seite7.pdf>, habe ich zur Kenntnis genommen.

Ort, Datum

Unterschrift