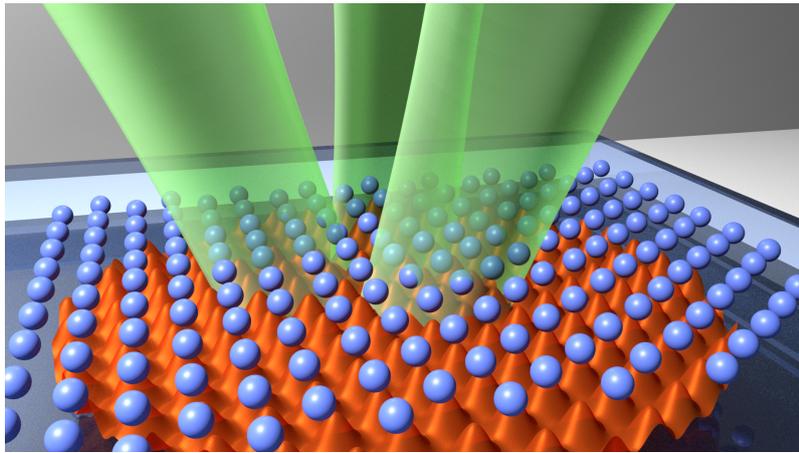


# Nanotribologie von kolloidalen Kristallen auf periodischen Substratpotenzialen



Von der Fakultät Mathematik und Physik der  
Universität Stuttgart  
zur Erlangung der Würde eines Doktors der  
Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) genehmigte Abhandlung  
vorgelegt von

Thorsten Brazda  
aus Duisburg

Hauptberichter: Prof. Dr. Clemens Bechinger  
Mitberichter: Prof. Dr. Martin Dressel

Tag der mündlichen Prüfung: 08.06.2018

2tes Physikalisches Institut der Universität Stuttgart  
2018



# Inhaltsverzeichnis

<b>Abstract</b>	<b>1</b>
<b>Einleitung</b>	<b>4</b>
<b>1 Nanotribologie</b>	<b>7</b>
1.1 Theoretische Konzepte der Nanotribologie . . . . .	8
1.1.1 Kontaktmechanik und Asperitäten . . . . .	9
1.1.2 Modelle in der Reibungstheorie . . . . .	12
1.2 Experimentelle Techniken: Ein Überblick . . . . .	19
1.2.1 Kinks: Reibung von getriebenen kolloidalen Monolagen . . . . .	25
<b>2 Experimentelle Methoden</b>	<b>30</b>
2.1 Kolloidale Monolagen . . . . .	30
2.2 Brownsche Bewegung . . . . .	31
2.3 Van-der-Waals Wechselwirkung . . . . .	33
2.4 Geladene Partikel . . . . .	34
2.5 Kolloid-Licht Wechselwirkung . . . . .	36
2.6 Das Substratpotenzial . . . . .	38
2.7 Aufbau des Experiments . . . . .	40
2.7.1 Die Probe . . . . .	41
2.7.2 Probenpräparation . . . . .	43
2.7.3 Der Strahlengang . . . . .	44
2.7.4 Videomikroskopie . . . . .	47
2.7.5 Stokesche Kraft . . . . .	49
2.7.6 Kalibration . . . . .	50
<b>3 Resultate</b>	<b>53</b>
3.1 Shapiro Steps . . . . .	53
3.1.1 Theorie und Motivation . . . . .	54
3.1.2 Experiment . . . . .	60
3.1.3 Ergebnisse . . . . .	61
3.1.4 Zusammenfassung und Ausblick . . . . .	72
3.2 Aubry Transition . . . . .	75
3.2.1 Theorie und Motivation . . . . .	75
3.2.2 Experiment . . . . .	81
3.2.3 Ergebnisse . . . . .	84
3.2.4 Zusammenfassung und Ausblick . . . . .	95
<b>4 Danksagung</b>	<b>98</b>



# Abstract

The world we live in is described by physical equations and laws. So let us begin with a common experience from our daily life. Have you ever tripped before? Things like this are happening to all of us. The reason is that our assumptions about the interaction of our feet with the ground do not match with reality. This brings us directly to the topic of my PhD thesis and that is friction. This property of our world is a part of the physical field of tribology and describes the intensity of the resistance of two connecting plains that we try to slide against each other. In the example above this resistance was much smaller than we expected and demonstrates, why it is so important to understand how friction can be manipulated.

Tribological effects were studied for centuries and are essential for the development of new products and technologies. Even though the concept behind friction is very basic, an exact description of the involved processes are hard to grasp. In general all fundamental properties of friction are set by the involved surfaces, but a more detailed investigation reveals how complex these relations can be. Some examples for this complexity are the influence of the surface roughness, micro fractures in the material, strain in the crystalline structure or the energy dissipation at the contact area.

The central building block in tribology is the contact between the surfaces of two bodies. This can transfer mechanical forces, electrical currents and heat. We will focus on the first of these mechanisms. Also the length scale on which friction occurs can vary by a large margin. From the tip of an atomic force microscope, which slides over a surface with sub nanometer resolution, up to the plate tectonics of our planet that can lead to devastating earthquakes, friction affects our daily life. Of particular interest to the industry is the aspect of wear caused by friction. The precise manipulation of this property would allow an enormous reduction in cost and energy in the production process.

The early beginnings of the field known as tribology can be traced back to the year 1495, in which Leonardo da Vinci published his Codex-Madrid I. In this work, da Vinci described two basic laws of friction:

- 1) The friction force is proportional to the normal load.
- 2) The friction force is independent from the contact area.

These results of his work were lost from the scientific memory in the coming decades until Guillaume Amontons rediscovered them in 1699. For this reason they are commonly called the Amontons Laws. In some cases these laws are also summarized with Coulombs law of friction, which states that the dynamic

friction between two solids is independent of the sliding velocity, as a first order approximation. This is especially true for metallic surfaces, not so much for those made from rubber or other polymers. This is a first hint, how different various materials influence the properties of friction. The first mathematical and fundamental formulation of dry friction was made by Leonard Euler. In his work friction is the result of the cogging of rough surfaces, which are in the shape of triangles. This model was extended and refined by Bowden and Tabor. The result was the picture of many irregular indentations and protrusions in the contact area, so called asperities, which primarily define the properties of friction. That shifted the view of the scientist from the macroscopic to the microscopic scale, since the deciding mechanism was dominated by the shear, rupture and bonding of these micro contacts. This point of view is relatively new and was experimentally confirmed at the end of the 20th century. The examples presented above show a steady advancement in the complexity in the models and descriptions used in the field of tribology over the course of time. Anyhow, many elemental contributions to friction are still unknown to us even today and a deeper exploration is necessary. One step in this direction is the analysis of a simple model system, which catches the fundamental properties of friction, but is also sufficiently manageable for an analytical understanding. Such a model was designed by J. Frenkel und T. Kontorova and is named after them. This describes an extended system of particles coupled among each other and interacting with a periodic substrate potential.

In this work we use an experimental realization of a two dimensional Frenkel-Kontorova (FK) model. With such a setup the influence of topological solitons on friction was successfully proven, as well as the melting and crystallization of two dimensional crystals. For this we create crystalline monolayers with charged colloids in an aqueous suspension. The properties of such a monolayer are defined by the repulsive interaction between the particles, which can be described by a Yukawa potential. We fabricate the substrate potential by interference of three laser beams and those generate an optical light pattern of high intensity spots. Next the monolayer is driven over the substrate potential by an external force, induced by the translation of the sample stage. This method enables us to change the parameters for each measurement easily. The interaction strength between the particles and the geometry of the light pattern are two examples for this. In addition we can observe the sample with an optical microscope, which is not possible for most other friction experiments. The goal of this work is the extension of the previous experiments, to analyze the influence of modulated substrate potentials upon a driven colloidal crystal or the mismatch between the substrate and the monolayer. This thesis is structures as followed:

In **chapter 1** we present the basic models and techniques used in this work. Additionally we demonstrate the results from some other experiments in the field of nano tribology.

**Chapter 2** explains the experimental setup and the implementation of the theoretical models for our measurements. That way we deduce the interactions involved in our experiment and calibrate the different devices.

In **chapter 3.1** we study the implications of a modulated interaction strength between the contact of two surfaces in regard to their tribological properties.

For this we pull hexagonal colloidal crystal along an optical potential landscape, which intensity is change by a sine function. One result is the synchronization of the motion of the crystal with the oscillation of the substrate potential. This leads to the appearance of characteristic steps in the slope of the colloidal velocity as a function of the driving force. These are called Shapiro Steps and are predicted for a nano tribological system under the presents of long wavelength phonons.

**Chapter 3.2** deals with the Aubry Transition, in which the static friction for two incommensurable contact areas can vanish, if the mismatch between these is sufficiently large. In its basic form the Aubry Transition describes a system consisting of a linear chain of particles interacting with a one dimensional periodic potential. In this thesis however we demonstrate that this prediction carries over to a two dimensional system. For that the type of its transition changes from a second order to a first order one. This modification emerges from an additional degree of freedom in the system, which allows the contact areas to rotate against each other.

Parts of this work have been published elsewhere.

- 1) T. Brazda, C. July, and C. Bechinger, Experimental Observation of shapiro-steps in colloidal monolayers driven across time-dependent substrate potentials, *Soft matter*, vol. 13, no. 22, pp. 4024-4028, 2017.
- 2) T. Brazda, A. Silva, N. Manini, A. Vanossi, R. Guerra, E. Tosatti, and C. Bechinger, Experimental observation of the aubry transition in twodimensional colloidal monolayers, *Physical Review X*, vol. 8, no. 1, p. 011 050, 2018.

# Einleitung

Die Physik beschreibt die Welt in der wir leben. Lasst uns also mit einer einfachen Erfahrung aus unserem Alltag beginnen. Sind sie schon einmal ausgerutscht? Das ist uns allen schon einmal passiert. Der Grund dafür ist, dass wir die Interaktion des Bodens mit unseren Füßen falsch eingeschätzt haben. Damit sind wir bereits mitten im Thema meiner Dissertation und dies ist Reibung. Diese Eigenschaft unserer Welt wird in dem Bereich der Tribologie untersucht und beschreibt, wie groß der Widerstand ist, wenn zwei Kontaktflächen gegeneinander verschoben werden. In dem oben genannten Beispiel war dieser Widerstand sehr viel kleiner als wir erwartet hatten. Dieses einfache Beispiel zeigt bereits, warum es von besonderem Interesse ist zu verstehen, wie und wodurch Reibung beeinflusst wird.

Die Phänomene der Tribologie werden schon seit Jahrhunderten untersucht und sind essenziell für die Entwicklung neuer Produkte und Technologien. Doch so grundlegend dieses Konzept ist, so schwierig ist seine exakte Beschreibung. Auch wenn alle grundlegenden Prozesse der Reibung von der Beschaffenheit der involvierten Oberflächen abhängt, so zeigt sich bei genauer Betrachtung, wie vielfältig diese Einflüsse sind. Beispiele sind die Oberflächenrauigkeit, Mikrobrüche im Material, Verspannungen im Kristallgitter oder die Energiedissipation in der Grenzfläche.

Das zentrale Konstrukt in der Tribologie ist der Kontakt zwischen zwei Körpern. Dieser kann zum Transfer von mechanischen Kräften, elektrischen Strömen und auch von Wärme genutzt werden und dem ersten Punkt widmen wir unsere Aufmerksamkeit. Auch die Längenskalen, auf denen sich tribologische Effekte abspielen, erstrecken sich über einen weiten Bereich. Von der Spitze eines Rasterkraftmikroskops die sich über eine Anordnung von Atomen bewegt bis zur Plattentektonik unseres Planeten, die verheerende Erdbeben auslösen kann, beeinflusst die Tribologie unseren Alltag. Für die Industrie ist der Aspekt des Verschleißes von besonderem Interesse, welcher durch Reibung verursacht wird. Durch die gezielte Manipulation dieser Eigenschaften würden sich enorme Einsparungen realisieren lassen.

Die frühen Anfänge der Tribologie lassen sich bis in das Jahr 1495 zurückverfolgen in dem Leonardo da Vinci seinen Codex-Madrid I veröffentlichte. In diesem Werk beschrieb da Vinci zwei Grundlegende Reibungsgesetze:

- 1) Die Reibungskraft ist proportional zur Normalkraft.
- 2) Die Reibungskraft ist unabhängig von der Kontaktfläche.

Diese Resultate verschwanden mit der Zeit aus dem Gedächtnis der Wissenschaft und wurde erst 1699 von Guillaume Amontons wieder entdeckt, weswegen

sie heute auch als die Amontonschen Gesetze bekannt sind. Manchmal werden diese auch mit dem Coulombschen Reibungsgesetz zusammengefasst, welches besagt, dass die Gleitreibung zwischen zwei Festkörpern in erster Näherung unabhängig von der Gleitgeschwindigkeit ist. Dieses Gesetz beschreibt besonders gut das Verhalten von metallischen Kontaktflächen. Für Oberflächen aus Polymeren gilt es jedoch nicht. Dies zeigt bereits wie unterschiedlich sich verschiedene Materialien verhalten können. Eine erste grundlegende mathematische Beschreibung der trockenen Reibung wurde von Leonard Euler vorgenommen. Hier wird zum ersten Mal die Reibung auf die Verzahnung von Oberflächenrauigkeiten in Form von regelmäßigen dreieckigen Profilen zurückgeführt. Dieses Modell wurde von Bowden und Tabor aufgegriffen und weiterentwickelt. Hier werden die primären Eigenschaften des Systems durch etliche unregelmäßige Unebenheiten, so genannter Asperitäten, definiert. Dadurch verlagert sich die Betrachtung der Reibung von dem makroskopischen Bild auf die mikroskopische Ebene. Denn die entscheidenden Mechanismen werden nun durch die Scherung und Bildung von Mikrokontakten bestimmt. Diese Sichtweise ist relativ neu und wurde erst um die Jahrtausendwende experimentell bestätigt. An diesen Beispielen können wir sehen, dass die Beschreibung der Reibung und die verwendeten Modelle mit der Zeit immer komplexer geworden ist. Viele der Ursachen für Reibung sind bis heute ungeklärt und benötigen eine tiefere Erforschung ihrer Zusammenhänge. Um dies zu erreichen verwenden wir ein einfaches Modell, welches die grundlegenden Eigenschaften der Reibung enthält aber hinreichend überschaubar ist, um sich nicht in Details zu verlieren. Ein solches Modell wurde von J. Frenkel und T. Kontorova entworfen und nach ihnen benannt. Dieses beschreibt ein ausgedehntes System von miteinander wechselwirkenden Partikeln, die mit einem periodischen Substratpotenzial interagieren.

Für diese Arbeit nutzen wir eine experimentelle Realisierung des zweidimensionalen getriebenen Frenkel-Kontorova (FK) Modells. Mit dieser Anordnung wurde bereits der Einfluss topologischer Solitonen auf die Reibung nachgewiesen [1], sowie das Erstarren und Schmelzen von zweidimensionalen Kristallen untersucht. Dafür werden kristalline Monolagen aus geladenen Kolloiden in einer wässrigen Suspension hergestellt. Die Eigenschaften dieser Monolage werden durch die repulsive Wechselwirkung der Partikel, die mit einem Yukawa Potenzial beschrieben werden kann, definiert. Das Substratpotenzial erzeugen wir durch die Interferenz von drei Laserstrahlen, um ein optisches Lichtgitter zu kreieren. Anschließend wird die Monolage durch die Translation des Probenhalters über dieses Lichtgitter getrieben. Diese Methode erlaubt uns die Messparameter des Experiments flexibel anzupassen, zum Beispiel die Stärke der Interaktion von Substrat zum Kristall oder die Geometrie der verwendeten Strukturen. Zudem ist die Probe mittels optischer Mikroskopie beobachtbar, was in den meisten anderen Experimenten nicht der Fall ist.

Das Ziel dieser Arbeit besteht in der Erweiterung des Experiments, zur Untersuchung der Auswirkung von modulierten Substratpotenzialen auf kolloidale Kristalle oder einer Fehlanpassung des Substrats an die Monolage. Die Arbeit ist wie folgt aufgebaut:

In **Kapitel 1** werden die grundlegenden Modelle und Techniken vorgestellt, die in dieser Arbeit genutzt werden. Zudem werden hier einige Ergebnisse aus an-

deren Arbeiten zum Thema Nanotribologie präsentiert.

**Kapitel 2** befasst sich mit dem experimentellen Aufbau und der Umsetzung der theoretischen Modelle in die Praxis. So werden die im Experiment involvierten Wechselwirkungen erläutert, und die Kalibration der Messgeräte demonstriert. In **Kapitel 3.1** betrachten wir die Auswirkungen einer modulierten Wechselwirkung zwischen zwei Kontaktflächen bezüglich ihrer tribologischen Eigenschaften. Dafür ziehen wir einen hexagonalen kolloidalen Kristall über eine optische Potenziallandschaft, deren Intensität zeitlich über eine Sinusfunktion variiert wird. Ein Resultat ist die Synchronisation der Bewegung des Kristalls mit der Oszillation des Substratpotenzials. Dies führt zu charakteristischen Stufen in dem Anstieg der Geschwindigkeit des Kristalls als Funktion der treibenden Kraft, welche als Shapiro Steps bezeichnet werden. Dieses Konzept kann in der Nanotribologie auftreten, wenn langwellige Phononen in einer der beiden Kontaktflächen auftreten und an die Bewegung der Partikel in den Flächen koppeln.

**Kapitel 3.2** behandelt den Aubry Übergang, bei dem die Haftreibung für zwei zueinander inkommensurable Kontaktflächen verschwinden kann, falls die Fehl-anpassung zwischen diesen hinreichend groß ist. Ursprünglich wurde der Aubry Übergang für eine Kette von Partikeln auf einem eindimensionalen periodischen Potenzial vorhergesagt. In dieser Arbeit zeigen wir, dass diese Vorhersage auch auf ein zweidimensionales System übertragen werden kann. Dadurch ändert sich der Typ dieses Übergangs von zweiter zur ersten Ordnung. Diese Modifikation liegt an einem zusätzlichen verfügbaren Freiheitsgrad des Systems, sodass sich die Kontaktflächen gegeneinander verdrehen können.

Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht:

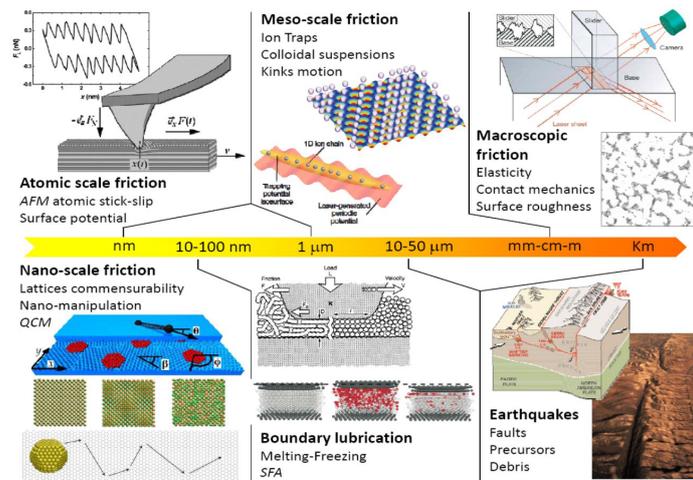
- 1) T. Brazda, C. July, and C. Bechinger, Experimental Observation of shapiro-steps in colloidal monolayers driven across time-dependent substrate potentials, *Soft matter*, vol. 13, no. 22, pp. 4024-4028, 2017.
- 2) T. Brazda, A. Silva, N. Manini, A. Vanossi, R. Guerra, E. Tosatti, and C. Bechinger, Experimental observation of the aubry transition in twodimensional colloidal monolayers, *Physical Review X*, vol. 8, no. 1, p. 011050, 2018.

# 1 Nanotribologie

Reibung spielt eine zentrale Rolle in verschiedenen Systemen, die einen weiten Bereich abdecken. Von Kontaktflächen auf der Nanometerskala, wie wir sie bei Mikro- und Nanomaschinen [2] finden, oder bei biologischen molekularen Motoren [3] bis hin zur geophysikalischen Charakteristik von Erdbeben [4]. Aufgrund ihrer offensichtlichen Tragweite wird bereits seit Jahrhunderten an diesen Phänomenen geforscht. Doch obwohl die Tribologie von herausragender technischer Bedeutung ist, so wurde ihr und ihren Teilgebieten verhältnismäßig wenig Beachtung in der Physik geschenkt, und so blieb uns ein mikroskopisches Verständnis der involvierten Prozesse lange Zeit verschlossen. In diesem Kapitel wird ein Überblick über die wichtigsten theoretischen Modell in der Tribologie vorgestellt. So wird deutlich, wo die Herausforderungen in der Erforschung der Reibungsmechanik liegen.

Erst im 20. Jahrhundert wurden ein deutlicher Fortschritt in der mikroskopischen Anschauung der Reibung erzielt [5], denn erst jetzt stehen uns die technischen Mittel zur Verfügung, um dieses Feld genauer zu untersuchen. Zu diesen gehören unter anderem die Entwicklung von Computern mit immer leistungsfähigeren Recheneinheiten. Hierdurch lassen sich zunehmend komplexere Zusammenhänge simulieren und berechnen. So stehen uns heutzutage Instrumente wie die numerische Berechnung von Reibungsmodellen und molekulardynamischen (MD) Simulationen zur Verfügung [6]. Aber auch die experimentellen Entwicklungen mögen nicht unerwähnt bleiben. Dazu gehören Werkzeuge wie das Raster Kraft Mikroskop (Atomic Force Microscope: AFM) [7], mit dem sich Kräfte im Attonewton Bereich messen und einzelne Atome räumlich auflösen lassen, ohne die zu untersuchende Oberfläche zu beschädigen. Die Quarzkristall Mikrowaage (Quartz Crystal Microbalance: QCM) [8] erlaubt uns kleinste Massenvariationen zu detektieren und gibt Einblicke in die Reibung von adsorbierten Monolagen. Mit einem Surface Force Apparatus (SFA) [9] lassen sich mesoskopische Systeme unter dem Einfluss von Stress untersuchen. Hinzu kommt die Möglichkeit wohldefinierte saubere Oberflächen auf der atomaren Ebene zu präparieren [10].

Grundlegende Aspekte in der Tribologie auf sowohl makroskopischer wie mikroskopischer Ebene sind weiterhin schwer mit den gängigen theoretischen Modellen wie der linear response Theorie oder der Hydrodynamik zu beschreiben. Dies liegt daran, dass Reibung oft durch spontane und nicht lineare Ereignisse wie der Stick-Slip Bewegung bestimmt wird. Bei dieser bewegt sich ein Objekt ruckartig um eine feste Distanz weiter, obwohl es durch eine konstante Kraft angetrieben wird. Daraus folgt, dass es in einem lokalen Bereich zu Instabilitäten kommt, die eine schnelle Änderung des Systems hervorrufen [11]. Hinzu kommt das Unvermögen, die involvierten Prozesse direkt zu beobachten. So wurden mit

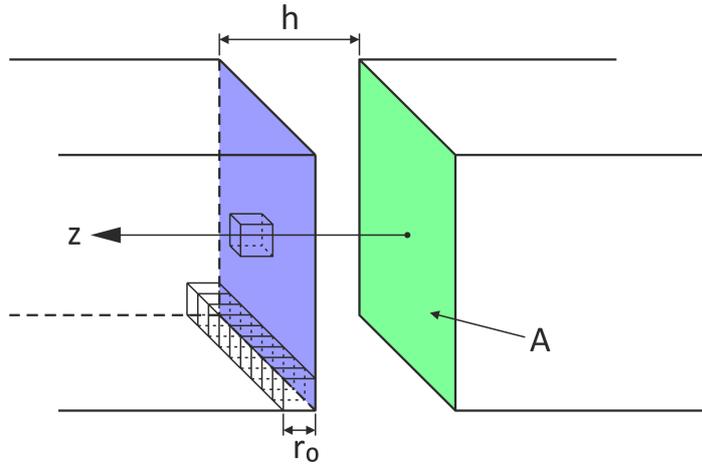


**Abbildung 1.1:** Größenskalen verschiedener Reibungsprozesse (@Andrea Vannossi)

Hilfe von AFM, QCM und SFA viele Erkenntnisse gesammelt, doch häufig unterliegen diese indirekten Messungen auch Fehlinterpretationen. Um solche zu vermeiden, benötigen wir mehr Informationen über das Ablösen und Verbinden von Tausenden von Mikrokontakten in einer reibenden Grenzschicht. Eine indirekte Messung dieser höchst nicht linearen und nicht stationären Prozesse [12] wir immer nur ein unvollständiges Bild liefern. Diese Lücke versuchen wir mit unserem Experiment zu füllen. Denn mit diesem lässt sich die Dynamik tausender Mikrokontakte in Echtzeit und im Realraum betrachten, was bereits in früheren Arbeiten bewiesen wurde [1]. Damit dies gelingt, benötigen wir ein passendes Modell, mit dem wir unsere Ergebnisse vergleichen können.

## 1.1 Theoretische Konzepte der Nanotribologie

Die Größenordnungen auf denen sich die grundlegenden Mechanismen der Reibung abspielen, liegen im atomaren Bereich und werden durch die Interaktion der Atome untereinander bestimmt. Da diese Längenskalen nur für wenige spezielle Experimente zugänglich sind, deren zeitliche Auflösung unzureichend für die schnellen Abläufe in der Reibung sind, nutzen wir Modellsysteme, um die Prozesse in diesem Bereich zu untersuchen. Dabei ist es wichtig, dass diese Modelle die Realität präzise nachbilden. In diesem Kapitel werden einige der gängigen theoretischen Modelle vorgestellt, die in der Tribologie verwendet werden. Von besonderem Interesse für diese Arbeit ist das Frenkel-Kontorova (FK) Modell, da es sich bei unserem Experiment um eine technische Realisierung des zweidimensionalen getriebenen FK Modells handelt. In den folgenden Abschnitten gehen wir näher auf die zentralen Fragestellungen der Tribologie ein, wobei wir sowohl makroskopische sowie mikroskopische Aspekte berücksichtigen.



**Abbildung 1.2:** Skizze zur Berechnung der Wechselwirkung zwischen zwei platten Kontaktflächen  $A$  im Abstand  $h$  mit der Gitterkonstanten  $r_0$ .

### 1.1.1 Kontaktmechanik und Asperitäten

Das wichtigste Konzept der Reibung ist die Kontaktfläche, denn ohne diese gäbe es schlicht keine Reibung. Dies gilt nicht nur bei der trockenen Reibung zwischen Festkörpern, sondern auch bei der inneren Reibung von Flüssigkeiten und Gasen oder wenn sich zwischen den Flächen ein Schmierfilm befindet. Im Rahmen dieser Arbeit befassen wir uns aber nur mit der trockenen Reibung.

Diese wird über die Materialeigenschaften der beteiligten Körper, wie deren Oberflächenrauigkeit, Steifigkeit und auftretenden Spannungen zwischen den reibenden Partnern definiert. Schauen wir uns zuerst einen besonders einfachen Kontakt an, mit zwei perfekt glatten Platten, die aufeinander liegen und fragen uns, wie groß muss die Kraft sein, damit wir diese voneinander trennen können? Als Beispiel nehmen wir an, dass die Platten aus Eisen bestehen und deren Kontaktfläche  $A = 1\text{cm}^2$  beträgt. Wenn sich die Platten im direkten Kontakt befinden, mit dem Abstand  $h = r_0$  und  $r_0 = 4 \cdot 10^{-10}\text{m}$  der Gitterkonstanten von Eisen entspricht [13] wird die Arbeit  $W$  zum Trennen der Körper wie folgt definiert:

$$W = \frac{q_h \cdot A}{2r_0^2} \quad (1.1)$$

Diese wird auch als Oberflächenenergie bezeichnet. Der Faktor  $q_h = \pi \frac{n^2 C}{12}$  beschreibt die Stärke der Wechselwirkung der Flächen, mit der Anzahl der Atome  $n$  in der Grenzschicht und der Konstanten  $C$ , die sich aus dem Lennard-Jones-Potenzial der Atome ergibt. Definieren wir nun noch die potenzielle Energie  $E_{pot}$  als eine Verschiebung der Flächen vom Abstand  $h$  bis  $\infty$  entlang der  $z$ -Achse (Abb. 1.2),

$$E_{pot} = - \int_h^\infty \frac{\pi n^2 C}{6z^3 A} dz = \frac{\pi n^2 C}{12h^2 A} = - \frac{q_h}{h^2 A} \quad (1.2)$$

Die Haftkraft pro Fläche  $\sigma$  wird durch die Van-der-Waals Kraft bestimmt und wird über die Ableitung von  $E_{pot}$  nach  $h$  berechnet:

$$\zeta_h = -\frac{\partial E_{pot}}{\partial h} = -\frac{2qh}{h^3} \quad (1.3)$$

Daraus folgt unter den oben genannten Bedingungen und  $W/A = 2,4J/m^2$  [13]:

$$\zeta_h = \frac{F}{A} = -\frac{2}{r_0} \frac{qh}{r_0^2} = -\frac{4W}{r_0 A} = 2,4 \cdot 10^{-10} N/m^2 \quad (1.4)$$

Somit beträgt die Kraft  $F$  zum Trennen der Platten  $2,4 \cdot 10^6 N$ , diese wird auch Adhäsionskraft genannt. Das entspricht einem Gewicht von ca. 240 Tonnen. Offensichtlich kann dieses Ergebnis nicht stimmen und das hat wie so oft mehrere Gründe. Zum einen ist der Anfangsabstand  $h$  zu gering gewählt. Wenn  $h$  in der Größenordnung der Gitterkonstanten der verwendeten Materialien ist, so sind die beiden Grenzflächen für die Atome ununterscheidbar. Realistisch betrachtet handelt es sich in diesem Fall nicht um zwei sich berührende Körper, sondern nur noch einen einzigen. Zudem gibt es keine wirklich sauberen Oberflächen, sodass wir immer annehmen müssen, dass sich irgendeine Art von Schmutz zwischen den Materialien befindet, z. B. Wasser. Bei hinreichend sauberen Oberflächen vom gleichen Material ist es aber durchaus bekannt, dass diese bei Berührung und leichtem Druck miteinander verschmelzen. Dies wird in der Technik Kaltverschweißen genannt. Auch trennen sich Oberflächen nicht homogen voneinander, sondern beginnen sich am Rand der Fläche abzulösen und es bilden sich Risse, entlang derer sich die Körper voneinander trennen. Aber auch die Berücksichtigung all dieser Effekte reicht nicht aus, um die Adhäsionskraft weit genug zu reduzieren. Ein ganz entscheidender Beitrag zur Reduzierung der Adhäsionskraft liegt darin, dass die Oberflächen nicht eben sind. In Wirklichkeit berühren sie sich nur an einigen wenigen Kontaktstellen, den sogenannten Asperitäten. Diese Asperitäten definieren die reale Kontaktfläche  $A_{real}$ , welche im Vergleich zur scheinbaren Kontaktfläche  $A_{schein}$ , die wir mit dem bloßen Auge erkennen, sehr viel kleiner ist, siehe Abb. 1.3. Nehmen wir nun an, dass die Reibungskraft dadurch verursacht wird, dass die einzelnen Asperitäten voneinander getrennt werden müssen. So erkennen wir, dass die Reibung stark von der Adhäsion dieser Bindungen abhängt. Die Asperitäten werden auch Mikrokontakte oder Schweißbrücken genant. Besonders letzterer Begriff verknüpft die Idee der Reibung mit dem Auseinanderbrechen solcher Kontakte.

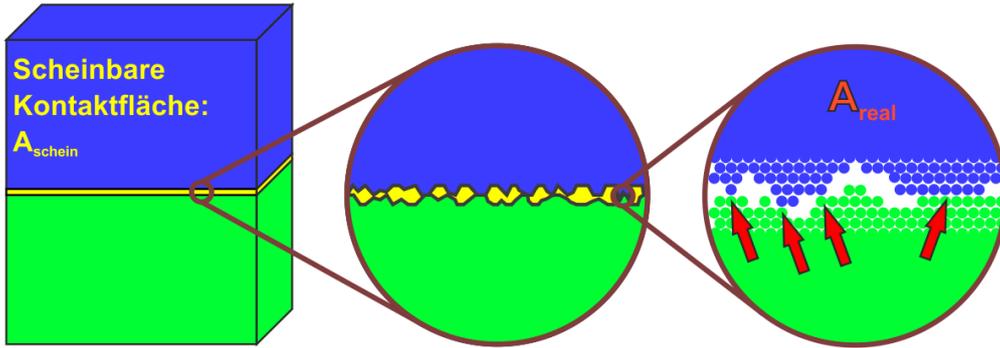
Diese Erkenntnis können wir nutzen um das Coulombsch Reibungsgesetz zu erklären. Diese lautet für die Haftreibung  $F_h$ ,

$$F_h = \mu_h F_N \quad (1.5)$$

und für die Gleitreibung  $F_g$

$$F_g = \mu_g F_N \quad (1.6)$$

In beiden Fällen ist  $F_N$  die Normalkraft und  $\mu_h, \mu_g$  sind die jeweiligen Reibungskoeffizienten. Coulomb machte bei seinen Experimenten einige bemerkenswerte



**Abbildung 1.3:** Schematische Darstellung einer Kontaktfläche zwischen zwei Körpern blau und grün. Bei starker Vergrößerung erkennen wir, dass die Körper sich nur an den Asphäritäten (rote Pfeile) berühren. Die reale Kontaktfläche  $A_{real}$  ist sehr viel kleiner als die scheinbare Kontaktfläche  $A_{schein}$ , gelber Bereich.

Beobachtungen. Der Haftreibungskoeffizient  $\mu_h$  ist immer größer oder gleich dem Gleitreibungskoeffizienten  $\mu_g$ , und  $\mu_g$  hängt nur geringfügig von der Gleitgeschwindigkeit ab. Zudem stellte Coulomb fest, dass der Reibungskoeffizient unabhängig von der Kontaktfläche und der Rauigkeit ist. Wie oben gezeigt, stimmt dies nur für die makroskopischen Eigenschaften, da die reale Kontaktfläche durch Mikrokontakte bestimmt wird. Bei konstanter Normalkraft bewirkt eine Verringerung der scheinbaren Fläche eine Zunahme der Anzahl der Mikrokontakte pro Flächenelement. Diese beiden Effekte kompensieren sich gegenseitig. Dies lässt sich für Metalle abschätzen mit der Annahme, dass alle Mikrokontakte plastisch deformiert sind, und die Spannung gleich der Eindruckhärte  $\kappa_m$  ist. Damit könne wir für die reale Kontaktfläche  $A_R$  annehmen:

$$A_R = F_N / \kappa_m \quad (1.7)$$

Benötigen wir zum aufbrechen einer einzelnen Schweißbrücke die Tangentialspannung  $\tau_s$ , so erhalten wir für die maximale Haftreibung:

$$F_h = F_N \frac{\tau_s}{\kappa_m} \quad (1.8)$$

Um das Verhältnis aus  $\tau_s$  und  $\kappa_m$  genauer zu betrachten, nehmen wir an, dass der einzelne Mikrokontakt starker Adhäsion unterliegt. Dann werden gleich viele Kontakte auf Druck und Zug beansprucht. Definieren wir deren Kontaktflächen als  $A_{Druck}$  und  $A_{Zug}$ , so können wir die Normalkraft schreiben als

$$F_N = \kappa_{mo}(3A_{Druck} - A_{Zug}) \quad (1.9)$$

mit der Zugfestigkeit  $\kappa_{mo}$  und die Kraft  $F_B$  zum Brechen der Mikrokontakte

$$F_B = F_h = \tau_s(A_{Druck} + A_{Zug}) \quad (1.10)$$

Für viele isotrope plastische Medien gilt näherungsweise  $\tau_s / \kappa_{mo} = 1 / \sqrt{3}$  [5]. Womit wir folgende Gleichung erhalten:

$$\mu = \frac{\tau_s(A_{Druck} + A_{Zug})}{\kappa_{mo}(3A_{Druck} - A_{Zug})} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left( \frac{A_{Druck} + A_{Zug}}{3A_{Druck} - A_{Zug}} \right) \quad (1.11)$$

Unter der Bedingung, dass die Adhäsion sehr stark ist können wir ferner annehmen, dass  $A_{Druck} = A_{Zug}$  ist und erhalten:

$$\mu \approx \frac{1}{\sqrt{3}} \approx 0.58 \quad (1.12)$$

Was recht gut mit dem Literaturwert für die Reibung von Stahl auf Stahl  $\mu = 0.5 - 0.8$  [14] übereinstimmt. Wir sehen also, dass wir die Reibung auf der makroskopischen Ebene sehr gut mit diesem Model erklären können. Wenn wir aber wissen wollen welche Prozesse sich auf der mikroskopischen Skala abspielen, kommen wir so nicht viel weiter. Die wichtigsten Modelle für die Nanotribologie werden im nächsten Kapitel vorgestellt.

### 1.1.2 Modelle in der Reibungstheorie

#### Prandtl-Tomlinson Modell

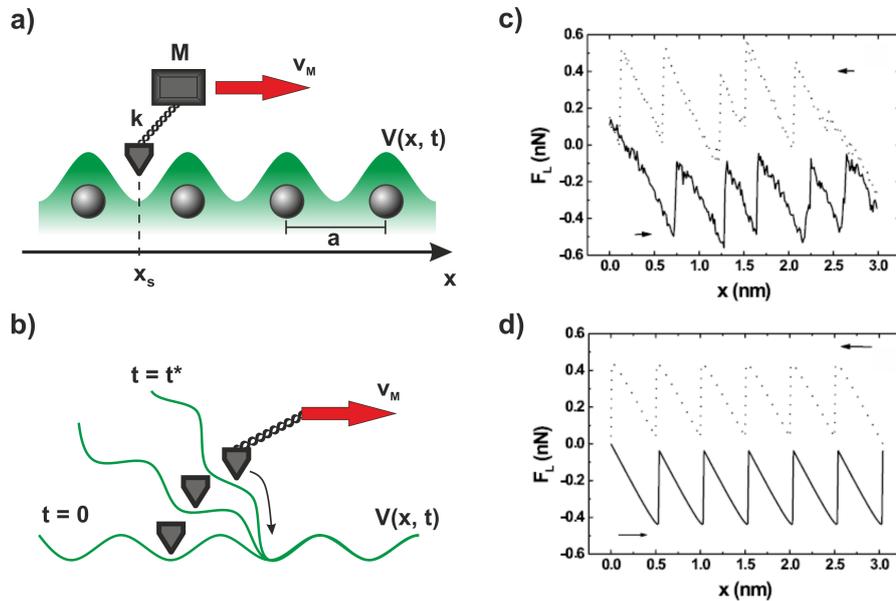
Eines der erfolgreichsten Modelle in der Tribologie ist das Prandtl-Tomlinson (PT) Modell [15]. Dieses gehört zu den minimalistischen Modellen, bei denen die Komplexität des Systems so weit wie möglich reduziert wird, ohne die zugrunde liegenden Mechanismen zu verfälschen. Sind solche Modelle erfolgreich, können sie oft erweitert werden, um neue Aspekte hinzuzufügen. Das PT-Modell erweist sich als besonders nützlich in der Simulation von AFM Experimenten. Hierbei wird die Interaktion einer bewegten punktförmigen Spitze mit der Masse  $m$  mit einem eindimensionalen periodischen Substratpotenzial simuliert, siehe Abb. 1.4 **a**). Das Substratpotenzial mit der Amplitude  $V_0$  repräsentiert dabei die Oberfläche einer kristallinen Struktur mit einer Periodizität  $a$ . Die Spitze ist über eine Feder mit der Federkonstanten  $k$  an einen Motor  $M$  gekoppelt. Dieser Motor bewegt sich mit einer konstanten Geschwindigkeit  $v_M$  entlang des Potenzials, wodurch sich die Position  $x$  der Spitze ändert. Daraus setzt sich das effektive Potenzial  $V(x, t)$  durch die Wechselwirkungsanteile Spitze-Motor und Spitze-Substrat zusammen.

$$V(x, t) = \frac{k}{2}(x - v_M t)^2 + V_0 \cos\left(\frac{2\pi}{a}x\right) \quad (1.13)$$

Dieses Modell berücksichtigt keine Energieverluste, die durch die Deformation der Spitze aufgrund ihrer Geometrie oder Materialeigenschaften verursacht werden. Anstelle dessen wird ein einfacher Dämpfungsterm  $-\gamma\dot{x}_t$  mit der Dämpfungskonstanten  $\gamma$  eingefügt, um diesem Umstand zu beschreiben. Dadurch lässt sich die Bewegungsgleichung für die Spitze wie folgt formulieren:

$$m\ddot{x} = k(x_M - x) - \frac{\partial V(x, t)}{\partial x} - \gamma\dot{x} \quad (1.14)$$

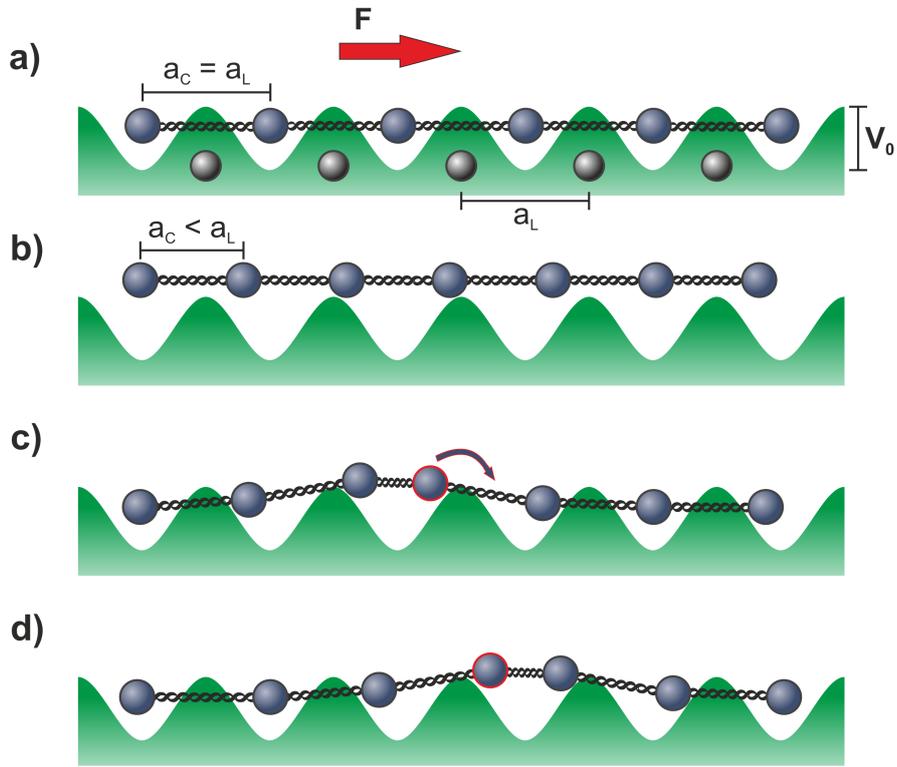
Das PT-Modell führt nun zu unterschiedlichen Resultaten abhängig von den oben genannten Parametern. Diese lassen sich zu einer dimensionslosen Konstante  $\zeta_{pt} = 4\pi^2 V_0 / (ka^2)$  zusammenfassen, die wir PT Konstante nennen. Für



**Abbildung 1.4:** a) Schematische Darstellung des PT Modells. b) Energielandschaft für eine Spitze mit kleiner Federkonstanten  $k$ . Die Deformation des effektiven Potenzials ist zu verschiedenen Zeiten dargestellt. c) und d) Vergleich zwischen den Ergebnissen von Experiment und Simulation einer bewegten AFM Spitze auf einem NaCl Substrat [16].

$\zeta_{pt} < 1$  bewegt sich die Spitze kontinuierlich über das Potenzial. Dies ändert sich, sobald  $\zeta_{pt} > 1$  wird. Nun vollzieht die Spitze eine abrupte Stick-Slip Bewegung und springt von einem Minimum zum nächsten, wie in Abb. 1.4 b) zu sehen ist. Der Grund für dieses Verhalten ist, dass bei der Bewegung des Motors elastische Energie in die Kopplung zwischen Motor und Spitze überführt wird. Dadurch wird die Potenziellandschaft in der Umgebung der Spitze deformiert, bis die Potenzialbarriere verschwunden ist und die Spitze sich abrupt zum nächsten Minimum bewegt. Die freigesetzte Energie wird bei diesem Vorgang durch den Dämpfungsterm in Wärme überführt. In Abbildung 1.4 c) und d) ist die Übereinstimmung von Experiment und Simulation gut zu sehen. Abhängig von der Stärke der Dämpfung ist es sogar möglich, dass die Spitze ein oder mehrere Minima während eines Slip-Vorgangs überspringt [17]. Im allgemeinen wird der oben verwendete Begriff Spitze durch Partikel ersetzt, da das PT-Modell für ein breites Spektrum an Systemen verwendet werden kann und nicht auf AFM-Messungen limitiert ist. Mit der gleichen Überlegung kann das Bild des Motors ebenfalls verallgemeinert werden durch eine treibende Kraft.

Dieses elementare PT-Modell kann auf verschiedene Weise erweitert werden. Um ein reales System zu simulieren, müssen thermische Fluktuationen berücksichtigt werden. Dies kann über eine zusätzliche sich zeitlich ändernde Kraft geschehen, die das Fluktuations-Dissipations Theorem erfüllt. Hierdurch kann die Reibung deutlich reduziert werden, da nun eine thermische Anregung des Systems zur Überwindung der Potenzialbarriere beitragen kann [18] [19]. Zudem kann das PT-Modell auf eine zweite räumliche Dimension erweitert [20], sowie



**Abbildung 1.5:** a) Schematische Darstellung des kommensurablen Frenkel-Kontorova Modells, in dem die Periodizitäten der Kette  $a_C$  und des Substrates  $a_L$  identisch sind. b) Inkommensurabler Zustand mit  $l \neq s$ . c) und d) Propagation eines Kinks in Richtung der äußeren Kraft  $F$ .

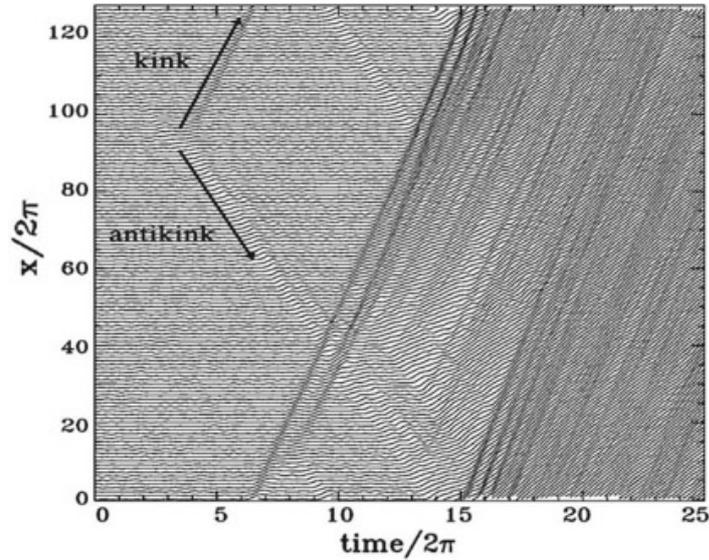
eine Kopplung der horizontalen und vertikalen Bewegung des Motors berücksichtigt werden [21].

### Frenkel-Kontorova Modell

Eine etwas aufwendigere Abwandlung des PT-Modells führt uns zum Frenkel-Kontorova (FK) Modell [22] [23]. In diesem Modell wird die einzelne Spitze durch eine eindimensionale Kette von Partikeln ersetzt, die mit ihren nächsten Nachbarn über ein harmonisches Potenzial, welches als verbindende Federn mit einer Federkonstanten  $k$  gedacht werden kann, interagieren. Diese Kette befindet sich zudem in einer äußeren periodischen Potenziellandschaft, wie in Abb. 1.5 veranschaulicht wird. Die Rolle des oben genannten Motors wird hier durch eine äußere Kraft abgelöst, die homogen an alle Partikel der Kette angreift.

Der Hamiltonian dieses Systems kann wie folgt dargestellt werden:

$$H = \sum_{n=1}^N \left\{ \frac{p_n^2}{2m} + \frac{k}{2} (x_{n+1} - x_n - a_C)^2 - V_0 \cos\left(\frac{2\pi x_n}{a_L}\right) \right\} \quad (1.15)$$



**Abbildung 1.6:** Partikeltrajektorien also Funktion der Zeit für ein kommensurables System beim Einsetzen der Gleitbewegung der Partikel. Die Entstehung eines Kink Antikink Paares ist durch Pfeile markiert. [25]

Die kinetische Energie des  $n$ -ten Partikels wird über den Term  $\frac{p_n^2}{2m} = \frac{m}{2} \frac{dx_n}{dt}$  beschrieben, wobei  $p_n$  der Impuls und  $m$  die Masse der Teilchen sind. Der zweite Term drückt die Wechselwirkung der Partikel mit ihren nächsten Nachbarn im Gitterabstand  $a_C$  und der Federkonstanten  $k$  aus. Die Periodizität des Potentials ist mit  $a_L$  und die Potenzialstärke mit  $V_0$  angegeben und beschreibt die Wechselwirkung der Partikel mit dem Substrat. Während die Steifigkeit der Federn eine gleichmäßige Verteilung der Partikel favorisiert, zwingt das Substrat diese in seine Minima. So lässt sich ein Längenskalenverhältnis  $\epsilon = a_C/a_L$  zwischen diesen beiden Strukturen definieren.

Im Fall  $\epsilon = 1$  bezeichnen wir das System als kommensurabel und im Grundzustand sitzt jedes Teilchen genau im Zentrum eines Potenzialminima. Dies ist in Abb. 1.5 a) dargestellt. Bei Anregung dieses System können sich verschiedene elementare Moden ausbilden. Dazu gehören Kinks und Antikinks, die eine nichtlineare Charakteristik aufweisen und eine besondere Art von topologischen Solitonen sind, sowie lineare Phononen. Das FK-Modell erhält seine große Bedeutung dadurch, dass es im Kontinuumslimit exakt lösbar ist und sich die Bewegungsgleichung des Systems auf die Sine-Gordon Gleichung reduziert. Dadurch eignet sich dieses Modell besonders gut zur Berechnung von Solitonen [24].

Eine anschauliche Art sich diese topologischen Anregungen vorzustellen besteht darin, ein zusätzliches Partikel der Kette hinzuzufügen oder eines zu entfernen. Dadurch wird künstlich ein Kink bzw. Antikink erzeugt. Im ersten Fall werden dadurch zwei Partikel in ein Potenzialminimum gezwungen. Somit wird eine Verzerrung der Kette verursacht, welche die restlichen Teilchen von deren Ruhpositionen verschiebt, siehe Abb. 1.5 c). Im Falle eines Antikinks entsteht eine Lücke in der Kette, und ein Minimum bleibt unbesetzt. Ist das System kommen-

surabel, kann eine äußere treibende Kraft Kinks und Antikinks erzeugen, was wir als eine Anregung des Systems betrachten. Diese können sich dann unter Einwirkung dieser Kraft leichter bewegen als der Rest der Kette, denn deren potenzielle Energie ist größer als die der anderen Partikel. Die Idee hinter der Bewegung eines Kinks ist in 1.5 c) und d) zu sehen. Wobei ein Kink sich in Richtung der treibenden Kraft bewegt und von einem Minimum zum nächsten springt. Letztendlich wird sich so die gesamte Kette mit der Zeit verschieben. Das gleiche Konzept tritt auch bei einem Antikink auf, nur dass dieser sich in die entgegengesetzte Richtung der treibenden Kraft bewegt. Dadurch werden diese topologischen Solitonen zum primären Mechanismus des Massentransportes im FK-Modell [26]. Daher nimmt die Mobilität der Kette mit der Anzahl der topologischen Solitonen zu [27]. Für die Initiierung der Bewegung der Kette im kommensurablen Zustand ist es also günstig zuerst thermisch induzierte Kink und Antikink Paare zu erzeugen, um die sonst relative große Potenzialbarriere zu überwinden, siehe Abb. 1.6.

Aus Gleichung 1.15 können wir die Bewegungsgleichung herleiten,

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \sin(x_n) - g(x_{n+1} + x_{n-1} - 2x_n) = 0 \quad (1.16)$$

in der die Abstände in der Einheit  $a_C/2\pi$  und die Zeit in  $a_C/(2\pi) * \sqrt{2m/V_0}$  gemessen werden. Daraus resultiert die dimensionslose Kopplungskonstante  $g_k = k(a_C/2\pi)^2/(V_0/2)$ . Diese drückt aus, dass die physikalischen Eigenschaften dieses Systems durch das Verhältnis zwischen der in den Federn gespeicherten Energie  $ka_C^2$  und der Potenzialstärke  $V_0$  bestimmt werden. Durch die Näherung des Kontinuumslimites mit  $x_n - na_C \rightarrow u(x, t)$ , wobei  $u(x, t)$  die Verschiebung der Partikel aus Ihrer Ruhelage ist, erhalten wir die Sine-Gordon Gleichung:

$$\frac{d^2u}{dt^2} + \sin(u) - \frac{d^2u}{dx^2} = 0 \quad (1.17)$$

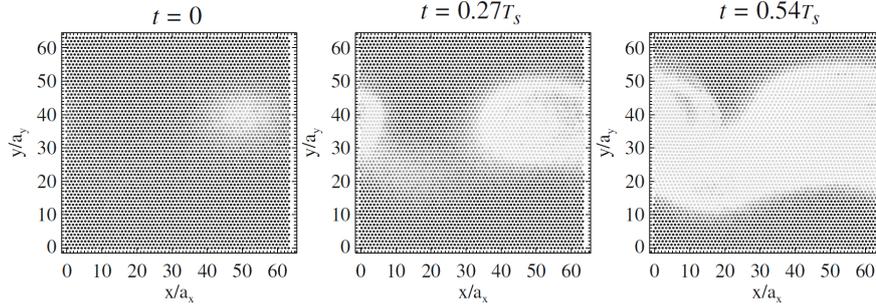
Zur Vereinfachung wurde die Ortskoordinate  $x$  nach  $x/(a_C\sqrt{g})$  transformiert. So ergibt sich als Lösung für ein Soliton die Gleichung:

$$u_\sigma(x, t) = \tan^{-1}(e^{-\sigma\beta_s(v)(x-vt)}) \quad (1.18)$$

Hier ist die Breite des Solitons  $\beta_s(v)$  eine Funktion seiner Geschwindigkeit  $v$  und  $\sigma$  ist die topologische Ladung, mit  $\sigma = +1$  für einen Kink und  $\sigma = -1$  für einen Antikink. Aufgrund der verwendeten Näherungen ist die Sine-Gordon Gleichung nicht geeignet, um diskrete Effekte des FK Modells vorauszusagen. Ein Beispiel für einen solchen Effekt ist die Peierls-Nabarro (PN) Barriere. Diese beschreibt das effektive Potenzial  $V_{PN}(\chi_k)$  welches von einem Kink an der Position  $\chi_k$  wahrgenommen wird. Definieren wir nun die allgemeine Partikelkoordinate mit  $x_n = f_k(na_C - \chi_k)$ , wobei die Funktion  $f_k$  die Form des Kinks beschreibt, so können wir den Schwerpunkt des Kinks  $\chi_k$  wie folgt formulieren:

$$\chi_k = -\frac{1}{a_C} \int dx f'_k(x - \chi_k) \quad (1.19)$$

Die PN Barriere entspricht somit dem Energieunterschied zwischen dem Grundzustand eines Kinks, wenn beide Partikel im selben Potenzialtopf sitzen und dem



**Abbildung 1.7:** Sequenz des Einsetzens der Bewegung einer 2D Monolage im FK Modell. Die unterschiedlichen Grauwerte der Partikel stellen die jeweiligen Geschwindigkeiten dar, je heller desto schneller. [34]

angeregten Zustand, bei dem ein Partikel genau auf einem Maximum des Substratpotenzials liegt.

Mit der richtigen Wahl für die Periodizitäten eines unendlich ausgedehnten Systems  $a_L$  und  $a_C$  lässt sich ein irrationales  $\epsilon$  erreichen, wodurch es inkommensurabel wird. Dies ist ein besonders interessanter Zustand, da nun ein Wettstreit zwischen zwei interagierende Termen in der Energie des Systems auftritt, der auch als Wettstreit der Längenskalen beschrieben wird [28]. Sowohl die Wechselwirkung der Partikel untereinander als auch die mit dem Substrat, versucht ein Optimum für sich zu finden. Dies führt zu nicht periodischen modulierten Strukturen, welche sich signifikant auf die dynamischen und statischen Eigenschaften des Systems auswirken. Solche Strukturen machen sich durch eine Abfolge von lokal komprimierten und dekomprimierten Bereichen bemerkbar, und sind ein Versuch der Kette sich zumindest teilweise an das Potenzial anzupassen. Solitonen mit gleicher topologischer Ladung stoßen sich dabei ab, wodurch sie sich in einem System mit schwacher Kopplung gleichmäßig verteilen.

Für das FK-Modell gibt es eine Reihe von Erweiterungen, die sich auf verschiedene Aspekte von Experimenten unter realen Bedingungen beziehen. Doch die wichtigste von ihnen ist der Schritt zum zweidimensionalen (2D) Modell, denn damit lässt sich die Kontaktfläche zwischen zwei perfekt ebenen Festkörpern elegant beschreiben [29] [30]. Beispiele für die Anwendbarkeit diese Modells unter experimentellen Bedingungen finden sich hier: [8], [31] und [32].

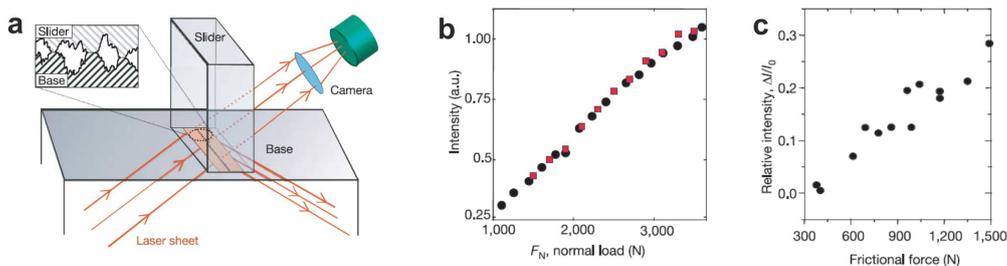
Im Besonderen lässt sich mit diesem Ansatz, das Einsetzen der Bewegung der reibenden Flächen untersuchen [33]. Diesen Zustand bezeichnen wir als den Übergang eines gepinnten zu einem gleitenden System oder kurz, den Depinning Übergang. Ein solcher wird durch die Formierung eines Bereichs mobiler Partikel gekennzeichnet, der mit zunehmender treibender Kraft schnell anwächst. In Abb. 1.7 können wir diesen Prozess beobachten. Durch die periodischen Randbedingungen in der Simulation bildet sich so ein Band aus, in dem sich die Partikel bewegen, während die Ränder im stationären Zustand verharren.

Doch das FK-Modell lässt sich nicht nur auf tribologische Fragestellungen anwenden, sondern auch auf verschiedene Effekte in unterschiedlichen Zweigen der Physik. Einige Beispiele hierfür sind der Josephson Kontakt [35] [36], bei dem es sich um eine Supraleiter-Isolator-Supraleiter Struktur handelt. In einer solchen

Struktur zeigt die Strom-Spannungskurve einen klaren stufenförmigen Anstieg. Hinzu kommen z. B. Ladungsdichtewellen (Charge-Density-Waves) [37], welche in quasi eindimensionalen Leitern auftreten können. Die Versetzungsdynamik in Metallen [29], wenn eine Schicht aus Fremdatomen in den Festkörper eingebettet wird, oder das Verhalten einer aufgedampften Monolage von Atomen auf einem Substrat [38].

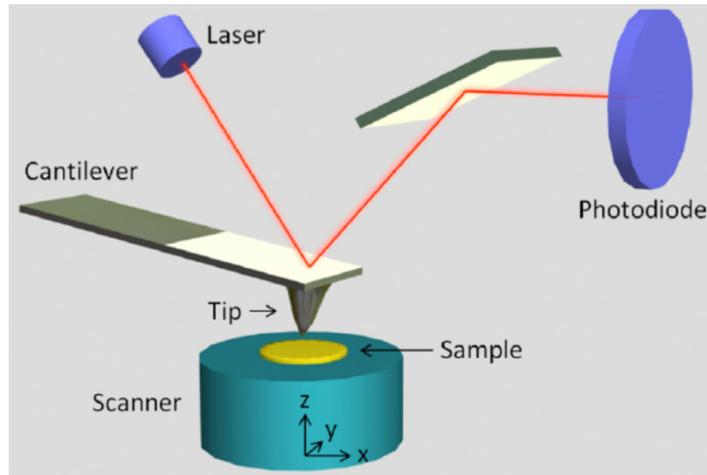
## 1.2 Experimentelle Techniken: Ein Überblick

Nachdem wir nun die wichtigsten Modelle der Tribologie kennen, möchten wir uns nun den bedeutendsten Experimenten in diesem Gebiet widmen. Wir beginnen mit dem Experiment von Rubinstein et al. [39] [40] [41]. Mit diesem wurde zuerst die Theorie von Bowden und Tabor bestätigt, dass die Reibungskraft durch Mikrorauigkeiten in der Kontaktfläche verursacht wird. Dafür lassen sie zwei transparente PMMA Quader übereinander gleiten und betrachten die Intensität eines Laserstrahls, der durch die beiden Quader hindurch tritt. Desse Einfallswinkel ist größer als der kritische Winkel für Totalreflexion an einer PMMA-Luft Grenzschicht. Aufgrund der Rauigkeit der PMMA Quader wird ein Teil des Lasers am Luftspalt zwischen den PMMA Schichten reflektiert und erreicht den Detektor nicht mehr. Dadurch ist die gemessene Intensität proportional zur echten Kontaktfläche und gibt einen Einblick in die involvierten Prozesse in der Kontaktfläche.



**Abbildung 1.8:** a) Skizze des Experiments von Rubinstein et al. [39]. b) und c) Messung der Intensität abhängig von der Normalkraft und der Haftreibungskraft.

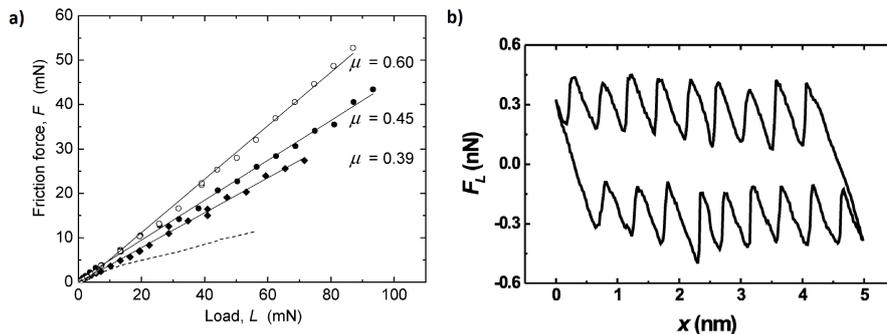
Die Messungen zeigen, dass mit zunehmender Normalkraft auf den oberen Quader, sowohl die Reibungskraft als auch die transmittierte Intensität zunehmen. Dabei ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen diesen beiden Größen, siehe Abb. 1.8 c). Durch die Theorie von Bowden und Tabor war dies bereits anzunehmen [5]. Zusätzlich zeigten die Experimente, dass die Ablösung der Reibflächen beim Einsetzen des Gleitens nicht homogen geschieht, sondern mit Spannungen und Stress in dieser verbunden ist [42]. Als Resultat daraus wurden drei unterschiedliche Typen von kohärenten Ablösefronten (detachment fronts) beobachtet, die den Ablösevorgang initiieren. Zuerst bildet sich eine Front aus, die sich mit einer Geschwindigkeit  $v$  knapp unterhalb der Schallgeschwindigkeit (Rayleigh wave speed  $V_R$  [43]) des Mediums ausbreitet und während dessen beschleunigt. Diese wird auch als sub-Rayleigh Front bezeichnet und startet immer an der hinteren Kante des Quaders, an der die Scherkraft angreift. Kurz bevor die Geschwindigkeit dieser Front  $V_R$  erreicht, spaltet sie sich auf in eine langsame Front mit sehr geringem  $v$ , über eine Größenordnung kleiner als  $V_R$ , und eine schnelle (intersonic) Front mit  $v > V_R$ . Eine makroskopische Bewegung des Quaders setzt aber erst ein, wenn mindestens eine dieser Ablösefronten die



**Abbildung 1.9:** Schematischer Aufbau eines AFMs. Die Spitze am Ende des Cantilevers rastert die Oberfläche einer Probe ab. [45]

vordere Kante des Quaders erreicht hat. In einer weiteren Studie wurde gezeigt, dass die Ausbildung von Ablösefronten und die Verteilung der erzeugten Scherspannung stark von der Verkippung der Quader zueinander abhängen [44]. Dieses Ergebnis deutet an, dass die Reibungseigenschaften stärker durch die Mikrostruktur der Kontaktflächen bestimmt werden, als durch die verwendeten Materialien an sich. Auch wenn das Experiment von Rubinstein einige wertvolle Erkenntnisse hervorgebracht hat, so sind seine Möglichkeiten im Bezug auf die Tribologie weitestgehend erschöpft. Über die mikroskopischen Abläufe, was im Detail beim Ablösen der Kontaktflächen geschieht, bringt uns dieses Experiment keine neuen Resultate. Im Folgenden werden einige experimentelle Techniken vorgestellt, die in einer Vielzahl von Untersuchungen angewendet werden.

Eines der am meisten genutzten Messgeräte zur Untersuchung tribologischer Fragestellungen ist das Raster Kraft Mikroskop (Atomic Force Microscope: AFM), welches aufgrund der Art seiner Anwendung in diesem Gebiet oft auch als Friction Force Microscop (FFM) bezeichnet wird. Mit einem AFM erreichen wir eine räumliche Auflösung im atomaren Bereich von wenigen Ångström. Dies wird erreicht, indem eine feine Spitze mit einem typischen Krümmungsradius von unter einem nm bis hin zu 100 nm [46] in die Nähe einer Oberfläche eines wohl präparierten Substrates gebracht wird und diese schrittweise abrastert. Anschließend wird die Positionsänderung der Reflexion eines Laserstrahls von der Spitze auf einem Photodetektor gemessen, siehe Abb. 1.9. Durch die Wechselwirkung der Spitze mit dem Substrat ändert sich die Position der Spitze und damit auch die des reflektierten Strahls. Je nach Anwendung kann die Geometrie der Spitze und die Art ihrer Halterung, die allgemein auch Cantilever genannt wird, stark variieren [47] [48] [49]. Für Messungen die speziell auf die Untersuchung kolloidalen Systeme ausgelegt sind, werden sogar einzelne Mikrometer kleine Kugeln an die Spitze geklebt [50]. Mit dem AFM kann nicht nur die Auslenkung der Spitze aus ihrer Ruheposition gemessen werden, sondern auch die Änderung einer von außen vorgegebenen Schwingung, oder eine Torsion des Cantilevers [51]. Die



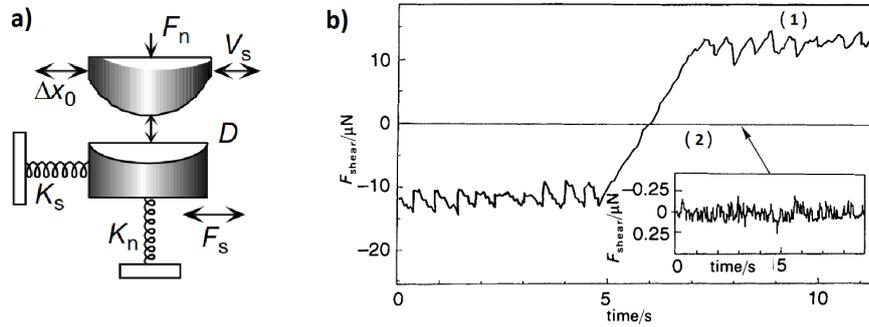
**Abbildung 1.10:** a) Beispiel einer Messung der Haftreibung als Funktion der Normalkraft mit einem AFM. [52] b) Scherkraft als Funktion des Ortes. [53]

höchste Präzision wird erreicht, wenn die Experimente unter Vakuumbedingung durchgeführt werden. Doch auch Messungen in Flüssigkeiten sind machbar.

Ein typisches Messprotokoll untersucht die Reibung in Abhängigkeit von der Normalkraft, wie in Abb. 1.10 a) gezeigt [52]. Diese ist eines von mehreren Experimenten, in dem die Gültigkeit von Amontons Gesetz auf der Nanoskala untersucht wird. Obwohl diese Frage Gegenstand vielen Arbeiten ist, gibt es bis jetzt noch keine eindeutige Antwort [54] [55] und die Ergebnisse der Untersuchungen hängen stark von den exakten Randbedingungen, unter denen das jeweilige Experiment durchgeführt wurde, ab.

Des Weiteren stellt das AFM eine nahezu ideale Verwirklichung des Prandtl-Tomlinson Modells dar, auch wenn die Spitze oft einen Durchmesser von mehreren Atomradien hat. So zeigen Messungen der Scherkraft als Funktion der Spitzenposition eine klare Stick-Slip Bewegung, siehe Abb. 1.10 b). In diesem Experiment wird die Reibung zwischen einer Siliziumspitze und einer NaCl(100) Oberfläche gemessen, um die Geschwindigkeitsabhängigkeit der Reibung auf der atomaren Skala zu untersuchen [53]. Die Abstände zwischen den Sprüngen in der Kraft entsprechen dabei der Gitterkonstanten von NaCl(100). Diese Sprünge werden dadurch ausgelöst, dass durch die Bewegung des Substrats die Kraft auf die Spitze zunimmt, bis diese so groß wird, dass die Spitze um eine bestimmte Distanz hüpf. Auch die Hysterese zwischen positiver und negativer Verschiebung, die vom PT-Modell hervorgesagt wird, ist in der Messung wieder zu finden. Interessanterweise zeigt dieses Experiment, dass die Reibung logarithmisch mit der Geschwindigkeit des Substrats verknüpft ist. Dies widerspricht dem makroskopischen Coulomb Gesetz der Reibung. Die Ergebnisse solcher Experimente hängen aber stark von der verwendeten Spitze und dem Substrat ab. So ist auch das Stick-Slip Verhalten nicht immer zu beobachten [56].

Als Nächstes beschäftigen wir uns mit dem Surface Force Apparatus (SFA). Dieser ist ein hervorragendes Hilfsmittel zur Untersuchung von Einzel- und Vielfach-Asperitäten. Die erreichte Genauigkeit bei der Messung von Normalkraft, Kontaktfläche und der Gleitgeschwindigkeit ist unübertroffen. Zudem lassen sich leicht die Oberflächen der reibenden Partner während der eigentlichen Messung nach Rauigkeit, Größe und Geometrie der Kontaktfläche sowie die Eigenschaften eines eingebrachten Schmiermittels charakterisieren. Der erste SFA wurde

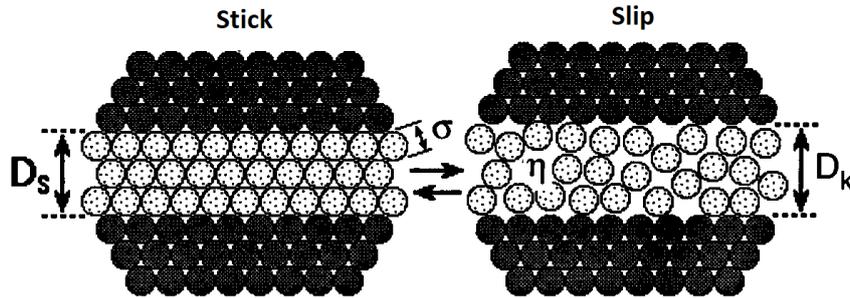


**Abbildung 1.11:** a) Schema eines Surface Force Apparatus [60]. b) Scherkraft  $F_S$  als Funktion der Zeit für zwei blanken Glimmerflächen (1) und mit Polystyrolbürsten beschichtet [61].

von Tabor und Winterton entwickelt [57] und wurde von vielen Forschern auf der ganzen Welt adaptiert.

In einem typischen SFA Experiment werden an zwei atomar glatten Glimmerzylinder dünne Filme befestigt, um diese aneinander zu pressen und deren tribologische Eigenschaften zu vermessen. Die zu untersuchenden Filme können dabei aus sehr verschiedenen Materialien bestehen. Die Längsachsen der Zylinderoberflächen werden zueinander gekreuzt montiert (Abb. 1.11 a)), da es nahezu unmöglich ist zwei parallele Ebenen ohne Versetzungen aneinander zu drücken. Zudem ist der Experimentator so flexibler in der Wahl des zu untersuchenden Abschnitts der Probe. Der Abstand der Glimmeroberflächen kann durch Vielstrahlinterferometrie auf ungefähr  $1 \text{ \AA}$  genau vermessen werden [58]. Die Normalkraft und Reibungskraft wird entweder über Federn mithilfe des Hookschen Gesetzes  $\Delta F = k\Delta x$  bestimmt, oder von kapazitiven Versatzmessfühlern aufgenommen. Durch die zweite neuere Methode werden Fehler durch Instabilitäten bei der Scherung der Feder vermieden [59]. Piezoaktuatoren sorgen für eine gleichmäßige Verschiebung der Oberflächen gegeneinander, so kann die Normalkraft und Scherkraft präzise eingestellt werden.

In Abb. 1.11 b) sehen wir eine Messung der Scherkraft  $F_S$  als Funktion der Zeit mittels eines SFAs. Hier wird demonstriert, wie sich eine Oberflächenmodifikation mit einer Schicht aus Polystyrolbürsten auf die Reibungseigenschaften auswirkt. Zusätzlich befindet sich zwischen den Kontaktflächen das Lösungsmittel Toluol, da dies die Abnutzung der Oberflächen, besonders der Bürsten, reduziert. Kurve (1) zeigt das Verhalten von blanken Glimmeroberflächen. Im Zeitintervall zwischen  $t = 5 - 7 \text{ s}$  wird die Zugrichtung des Experiments umgedreht. Sowohl davor als auch danach zeigt die sprunghafte Änderung der Scherkraft ein Stick-Slip Verhalten wie wir es bereits von verschiedenen Reibungsexperimenten her kennen. Hier wird diese Bewegung durch einen Übergang des Lösungsmittels von der festen in die flüssige Phase hervorgerufen. Dieser Vorgang wird in Abb. 1.12 gezeigt. Zu Beginn befindet sich das Lösungsmittel hervorgerufen durch den hohen Anpressdruck der Oberflächen in der festen Phase und verhindert das Gleiten. Erst wenn die Scherspannung zu groß wird, schmilzt das Toluol und der Gleiter setzt sich ruckartig in Bewegung. Die nun reduzierte Reibung

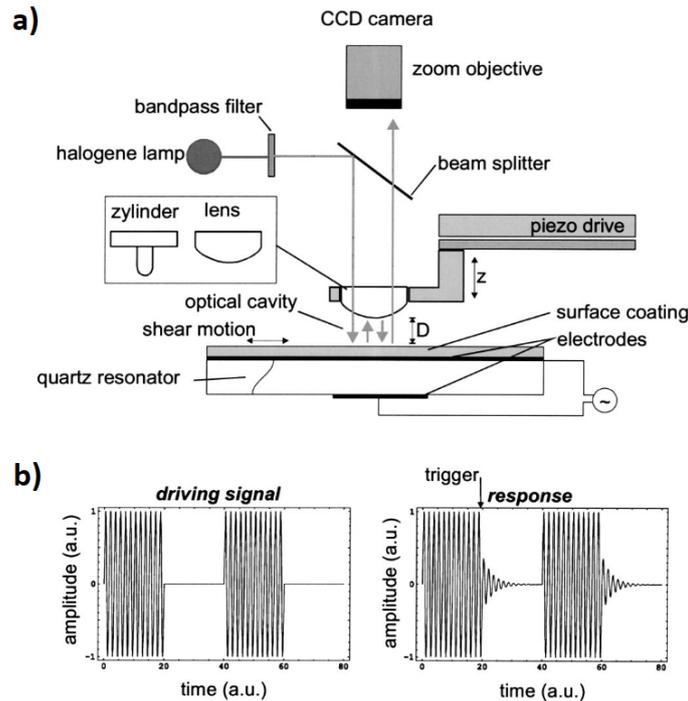


**Abbildung 1.12:** Schematische Darstellung des fest-flüssig Phasenübergangs des Stick-Slip Mechanismus bei der Reibung von geschmierten Kontaktflächen in einem SFA Experiment. Die schwarzen Punkte stellen die reibenden Festkörper dar, die hellen Punkte den Schmierfilm. [62]

sorgt für einen Abbau der Scherspannung, bis letztlich das Toluol wieder erstarrt und die Bewegung unterdrückt [62]. In der zweiten Kurve scheint die Modifizierung der Kontaktflächen die Reibung fast völlig zu unterdrücken ( $F_S = 0$ ). Selbst bei einer Vergrößerung der Darstellung, siehe Inset, ist keine Änderung der Scherkraft zu beobachten. Das Messsignal wird vollständig vom Rauschen überdeckt. So wurde gezeigt, dass die Anwesenheit von Polystyrolbürsten, die Reibung um mehrere Größenordnungen verringern kann [61].

Die Quarzkristall Mikrowaage (Quarz crystal microbalance: QCM) dient nicht nur zur Messung von kleinsten Gewichtsänderungen, sondern können vielfältig zur präzisen Bestimmung anderer Messgrößen eingesetzt werden. Der grobe Aufbau eines QCM Experiments ist in Abb. 1.13 dargestellt. Die Mikrowaage an sich ist eine Quarzscheibe, deren beiden Planflächen optisch poliert und mit dünnen Metallfilmen beschichtet sind. Diese metallischen Flächen dienen als Elektroden, und zugleich als Adsorptionsflächen. Durch eine äußere Wechselspannung zwischen den Elektroden ist es möglich den Kristall zur Resonanz zu bringen. Dabei oszillieren die beiden Planflächen in einer transversalen Scherbewegung. Dieser Mechanismus macht die QCM extrem sensitiv für Änderungen in der Kontaktfläche und resultiert in einem hohen Gütefaktor von  $\sim 10^5$ . Wird zum Beispiel ein Material von einer Elektrode adsorbiert, so ändert sich die Trägheit des Kristalls und die Resonanzfrequenz verschiebt sich. Im Falle der Dissipation ändert sich die Amplitude der Schwingung. Diese Prozesse lassen sich hervorragend detektieren. Nun können schwach gebundene Atome und Moleküle, die an den Elektroden haften, leicht durch deren Oszillation verschoben werden. Aus diesem Grund eignen sich molekulare Filme aus adsorbierten Gold- und Silberdampf besonders für diese Experimente. Doch auch die Kontaktierung der Elektroden mit einer AFM Spitze oder makroskopischen Körpern kann für tribologische Experimente verwendet werden [63].

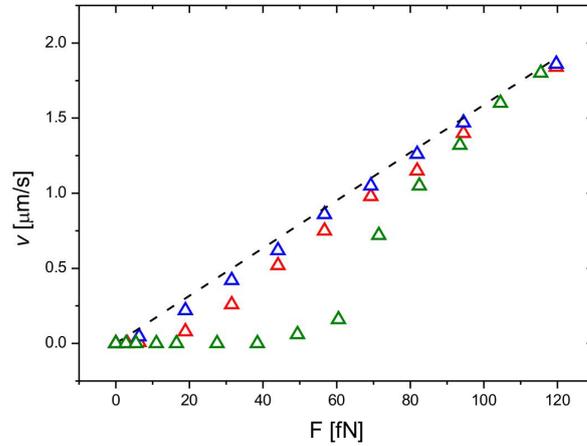
Als Beispiel für eine typische Messung mit einem QCM wird die Abhängigkeit des Reibungskoeffizienten von der Form einer Spitze untersucht. Diese wird mittels eines Piezoaktuators an die schwingende Elektrode herangeführt. So ändert sich die Abklingzeit der Resonanz bei spontanem Aussetzen der Erregerschwin-



**Abbildung 1.13:** **a)** Zeichnung eines experimentellen Aufbaus, die QCM Platte befindet sich im unteren Bereich. Der Piezotisch kontrolliert die Linse zur Abbildung des Messbereich, welche gleichzeitig die zweite Kontaktfläche in dem Reibungsexperiment darstellt. **b)** Beispiel für ein typischen Messsignal in einem QCM Experiment. Schwingung des QCMs ohne (links) und mit (rechts) Kontakt zur Linse. [63]

gung mit dem eingestellten Abstand, was wir leicht auf einem Oszilloskop beobachten können. In **Abbildung 1.13 b)** sehen wir ein solches Messsignal für den Kontakt eines Glaszylinders und einer planen mit Gold beschichteten Fläche. Im linken Graphen berühren sich die Kontaktflächen nicht und die erzwungene Schwingung des QCMs endet abrupt. Im Rechten führt die Reibung zwischen den sich berührenden Flächen zu einem abnehmenden Nachschwingen der Probe. Die dabei auftretende charakteristische Frequenzmodulation weist auf einen nicht linearen Zusammenhang zwischen dem Abstand der Spitze von der Elektrodenoberfläche, der Abklingzeit und des Reibungskoeffizientens  $\mu$  hin. Dieses Verhalten wird dadurch erklärt, dass zu Beginn bei kleinen Abständen die Kontaktflächen über Mikorrauigkeiten miteinander wechselwirken. Diese Interaktion ist zunächst rein elastisch, wodurch die Energiedissipation sehr gering ist. Dies führt zu einem nahezu konstantem  $\mu$ . Wird der Abstand weiter reduziert, unter 200 nm, so tritt eine plastische Deformation dieser Mikrokontakte auf und die Reibung vergrößert sich und  $\mu$  nimmt sprunghaft zu.

Somit wurden einige der wichtigsten Techniken in der experimentellen Nanotribologie vorgestellt. Im nächsten Abschnitt wird eine aktuelle Methode zur Beobachtung von tribologischen Phänomenen vorgestellt. Bei dieser wird eine



**Abbildung 1.14:** Mittlere Geschwindigkeit der Kolloide  $v$  als Funktion der treibenden Kraft  $F$ , für ein kommensurables ( $a_L = a_C = 5,7 \mu m$ , grün) und inkommensurables ( $a_L = 5,2 \mu m$ , rot;  $a_L = 4,8 \mu m$ , blau) Substrate. [1]

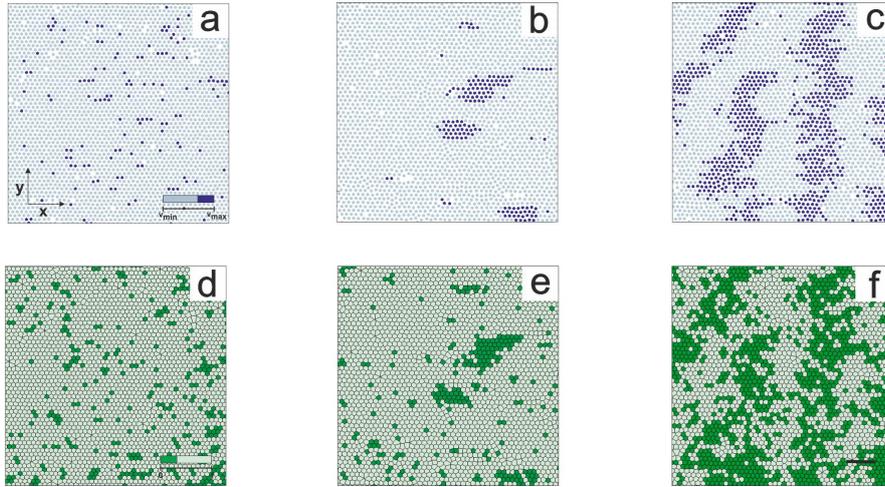
atomar glatte Kontaktfläche durch einen kolloidalen Kristall über eine optische Potenziallandschaft gezogen. So lassen sich die einzelnen Partikel in dieser Grenzfläche beobachten und deren Interaktion mit dem Potenzial analysieren.

### 1.2.1 Kinks: Reibung von getriebenen kolloidalen Monolagen

In diesem Abschnitt beschäftigen wir uns mit einer relative neuen Methode, mit der sich die dynamischen Prozesse in einer Kontaktfläche eines Reibungsexperimentes präzise beobachten lassen. Das Besondere an der hier verwendeten Technik ist die Möglichkeit, Aussagen über nanotribologische Effekte zu machen, obwohl wir ein mikroskopisches System untersuchen. Dafür betrachten wir das Verhalten einer kolloidalen Monolage, die durch eine äußere Kraft über eine periodische Potenziallandschaft getrieben wird. Dieses ist die elementare Realisierung des zweidimensionalen (2D) getriebenen FK Modells.

Dieses Experiment wurde von Thomas Bohlein durchgeführt und befasst sich mit einem der grundlegenden Phänomen der Reibung, dem Mechanismus beim Einsetzen der Bewegung eines Körpers über eine atomar glatte Oberfläche. In diesem Rahmen wird die Auswirkung einer Fehlanpassung in der Gitterstruktur zwischen den beiden reibenden Oberflächen untersucht und dabei ein entscheidender Mechanismus zur Reduzierung der Haftreibung beobachtet. Bei diesem handelt es sich um die Anregung topologischer Solitonen, auch Kinks / Antikinks genannt, und ist die erste experimentelle Bestätigung dieses Vorganges in einem 2D kolloidalen Kristalls.

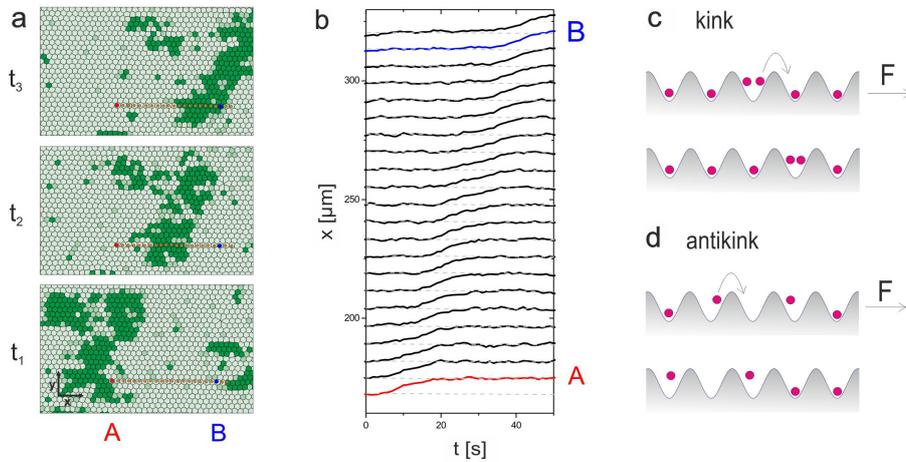
Um den kolloidalen Kristall für die Messungen zu erzeugen, werden Partikel aus Polystyrol mit einem Durchmesser von  $D = 3,9 \mu m$  verwendet, die in einer



**Abbildung 1.15:** a) bis c) Partikelgeschwindigkeiten für ein kommensurables System mit den Kräften  $F = 0, 49$  und  $82$  fN. Schnelle Partikel sind in Dunkelblau und langsame in Hellblau eingefärbt. d) bis f) Voronoi Konstruktion für die oben dargestellten Bilder. Dunkelgrün entspricht kleinen und hellgrün großen Voronoizellen. [1]

wässrigen Lösung suspendiert sind. Durch den Einfluss der Gravitation und des Lichtdrucks, formen diese einen flachen hexagonalen Kristall auf dem Boden der Probenkammer. Das Substratpotenzial, die zweite Kontaktfläche in diesem Reibungsexperiment, wird durch Interferenz mehrerer Laserstrahlen generiert. Die treibende Kraft für den Kristall wird durch die Translation der Probenzelle hervorgerufen in Form einer homogenen Stokeschen Kraft  $F$ . Diese ist proportional zur Geschwindigkeit  $v_p$  der Probenkammer. Weitere Details zu dem verwendeten Aufbau finden sie in Kapitel 2, da der in dieser Arbeit verwendete Aufbau nahezu identisch mit dem hier beschriebenen ist.

In Abbildung 1.14 ist die mittlere Geschwindigkeit  $v$  der Kolloide in einer Monolage als Funktion der Kraft  $F$  aufgetragen, die in Richtung einer der Hauptsymmetrieachsen des Substrates (x-Richtung) getrieben wird. Der Kristall hat für alle Messungen eine Gitterkonstante von  $a_C = 5,7$   $\mu m$ , die des Substrates ist variabel mit  $a_L = 5,7$   $\mu m$  für das kommensurable System, dargestellt durch grüne Dreiecke. Im inkommensurablen Fall wird die Periodizität des Substrates auf die Werte  $a_L = 5,2$  (rote Symbole) und  $a_L = 4,8$   $\mu m$  (blaue Symbole) reduziert. Die Stärke des Potenzials wurde über die Energiedichte der Laser auf  $\omega = 2,65$   $\mu W/\mu m^2$  konstant gehalten. Für kommensurable Oberflächen kann der Kristall sich nicht bewegen, bis die Kraft einen Wert von  $F = 48$  fN übersteigt. Diesen Zustand der Kolloide nennen wir auch den gepinnten Zustand oder einen gepinnten Kristall. Wird  $F$  über diesen Punkt hinaus weiter erhöht, so führt dies zu einem nichtlinearen Anstieg in der Geschwindigkeit des Kristalls  $v$ . Letztendlich nähert sich  $v$  bei kontinuierlicher Erhöhung von  $F$  immer weiter der Geschwindigkeit eines freien Partikels ohne Substratpotenzial an, schwarze gestrichelte Linie. Sind die Kontaktflächen inkommensurabel zueinander, rote und blaue Symbole, so bleibt diese Charakteristik erhalten, doch der Kristall

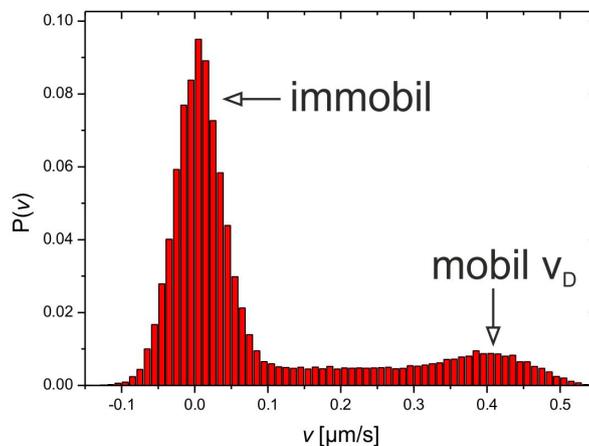


**Abbildung 1.16:** a) Voronoi Konstruktion einer Monolage für  $F = 60 \text{ fN}$  zu den Zeiten  $t_1 = 0$ ,  $t_2 = 13$  und  $t_3 = 26 \text{ s}$ . b) x-Koordinate der Partikel entlang der Strecke A, B als Funktion der Zeit  $t$ . c) und d) Schematische Darstellung eines propagierenden Kinks, bzw. Antikinks. [1]

beginnt bei deutlich geringeren Kräften zu depinnen.

Um das Verhalten der Monolage genauer zu studieren, betrachten wir in Abbildung 1.15 a) bis c) eine Geschwindigkeitskarte der Kolloide für die oben genannten Bedingungen zu den Kräften  $F = 0$ ,  $49$  und  $82 \text{ fN}$ . Diese Karte zeigt die Positionen der Partikel und färbt diese entsprechend ihrer individuellen Geschwindigkeit ein. Der Schwellwert beträgt dabei 70% der Maximalgeschwindigkeit der Partikel. Wird dieser überschritten, wechselt die Farbe von hell nach dunkelblau. Wie wir sehen, unterscheidet sich der gepinnte Kristall  $F = 0 \text{ fN}$  a) von dem ungepinnten b) darin, dass sich die schnellen Kolloide in Clustern formieren, die anschließend in Richtung der treibenden Kraft durch den Kristall wandern. Nimmt  $F$  weiter zu, so nimmt auch die Größe und Anzahl dieser schnellen Cluster zu. Vergleichen wir diese Geschwindigkeitskarte mit der lokalen Deformation des Kristallgitters. Dafür berechnen wir die Voronoi Konstruktion aus den Partikelkoordinaten. In dieser Darstellung sitzt genau ein Partikel im Zentrum jeder Zelle und deren Fläche ist proportional zum mittleren Abstand dieses Partikels zu seinen nächsten Nachbarn. So folgt, dass eine kleine Voronoi-Zelle einer hohen Dichte im Kristall (dunkelgrün eingefärbt) und eine große Zelle einer geringen Dichte (hellgrün eingefärbt) entspricht. Dies ist in Abbildung 1.15 d) bis f) für die selben Messungen wie in den Bildern 1.15 a) bis c) dargestellt. Offensichtlich gibt es einen Zusammenhang zwischen schnellen Partikeln und komprimierten Bereichen in der Monolage. Unter dem Einfluss einer hinreichend hohen Kraft, können diese Kompressionszone verschwinden und die Partikel bewegen sich mit einer einheitlichen Geschwindigkeit ungehindert über das Substrat.

In Abbildung 1.16 a) sehen wir die Propagation einer Kompressionszone durch einen kommensurablen Kristall zu verschiedenen Zeiten  $t_1 = 0 \text{ s}$ ,  $t_2 = 13 \text{ s}$



**Abbildung 1.17:** Histogramm der Geschwindigkeitsverteilung einer kommen-surablen Monolage für  $F = 60 \text{ fN}$ . [1]

und  $t_3 = 26 \text{ s}$ , unter dem Einfluss einer treibenden Kraft von  $F = 60 \text{ fN}$ . Diese Zone bewegt sich mit einer Geschwindigkeit von  $3,4 \mu\text{m/s}$  in die gleiche Richtung von  $F$ , ohne signifikante Änderungen in diesem Verlauf zu zeigen. In Abbildung 1.16 **b**) betrachten wir die Trajektorien der Kolloide für die in **a**) gezeigte Messung, entlang des eingezeichneten Weges (orangene Punkte) in Richtung der x-Achse. Hieran sehen wir einen sequenziellen Versatz der einzelnen Partikel um eine Gitterkonstante, wären die Kompressionszone diesen Bereich des Kristall passiert. Ein solches Verhalten entspricht den charakteristischen Eigenschaften eines Kinks [64]. Diese Art von topologischen Solitonen, zu denen Kinks und Antikinks gehören, ist schematisch in Abbildung 1.16 **c**) und **d**) für ein eindimensionales System dargestellt. In zwei Dimensionen wird ebenfalls die im Experiment beobachtete Schräglage der Kompressionszonen und deren asymmetrische Ausdehnung in y-Richtung von Simulationen vorhergesagt. Dies erlaubt uns dieses Muster mit hoher Sicherheit als Kinks zu identifizieren.

Eine weitere Vorhersage der Theorie ist, dass diese Kinks der primäre Propagationsmechanismus des Kristalls bei kleinen Kräften ist. Wir hatten bereits gesehen, dass die Kompressionszonen mit den schnellen Partikeln in der Monolage koinzidieren. In Abbildung 1.17 sehen wir ein Histogramm der Partikelgeschwindigkeit  $v$  für dieselbe Messung aus Abb. 1.16. Hieran sehen wir, dass in der Tat die meisten Kolloide vom Substrat festgehalten werden und nicht zur Bewegung der Monolage beitragen, sondern nur ein kleiner Anteil mobil ist.

Wie bereits erwähnt sind Antikinks ebenfalls ein Bestandteil des FK Modells und treten immer Paarweise mit entsprechenden Kinks auf. Hier weichen die Resultate von der Theorie ab. Dies können wir aber dadurch verstehen, dass unser Substratpotenzials eine leichte Inhomogenität aufgrund der gaußschen Intensitätsverteilung der Laserstrahlen besitzt. Dadurch schwächt sich das Potenzial zu den Rändern unseres Messbereichs hin ab. Dies führt dazu, dass die Kink / An-

antikink Paare außerhalb unseres Sichtbereichs generiert werden und nur die Kinks in diesen hineinlaufen. Die Antikinks hingegen entfernen sich vom Messbereich und sind somit für uns unsichtbar.

## 2 Experimentelle Methoden

Auch wenn sich bereits viele Phänomene in der Tribologie durch unsere Modelle gut beschreiben lassen und von verschiedenen Experimenten bestätigt wurden, bleibt uns ein mikroskopischer Blick auf die involvierten Prozesse in der Nanotribologie oft versperrt. Dies liegt vor allem daran, dass wir im gleichen Experiment nicht die notwendige zeitliche und räumliche Auflösung kombinieren können, wenn wir die Oberfläche von realen Festkörpern betrachten.

Einen Ausweg aus diesem Dilemma ermöglicht uns das weiter oben vorgestellte Frenkel-Kontorova Modell. Dieses minimalistische Modell hat bereits bewiesen, dass es hervorragend geeignet ist, um tribologische Fragestellungen zu untersuchen. Somit ist die Annahme gerechtfertigt, dass ein geeignetes experimentelles System, welches das FK Modell hinreichend imitiert auch die realen Prozesse auf der atomaren Längenskala widerspiegelt. Eine Möglichkeit besteht darin das System in seiner Größe so zu skalieren, dass es durch optische Mikroskopie beobachtbar wird. Dies können wir mithilfe kolloidaler Suspensionen erreichen, wie wir bereits in Kapitel 1.2.1 gezeigt haben.

### 2.1 Kolloidale Monolagen

Unter einer kolloidalen Suspension verstehen wir eine Lösung, in der kleine Partikel dispergiert sind. Die Größe dieser Partikel liegt zwischen wenigen  $nm$  und einigen  $\mu m$  und können sich entweder im festen oder flüssigen Zustand befinden. Bei dieser Größe sorgen ständige Stöße der Partikel mit den umgebenden Molekülen des Lösungsmittels für eine schnelle Impulsänderung, die in eine thermische Bewegung resultiert. Zudem sind sie groß genug, um das Lösungsmittel als einen homogenen Hintergrund wahrzunehmen. Der Begriff Kolloide bezeichnet sowohl die Schwebeteilchen im Lösungsmittel als auch die gesamte Suspension. Diese werden in vielen Bereichen der Industrie verwendet und kommen häufig in der Natur und unserem Alltag vor. Aus diesem Grund gibt es ein starkes Interesse an dieser Stoffklasse aus der Forschung und der Wirtschaft. Sie werden als Grundlage zur Entwicklung neuer Materialien genutzt, finden Anwendung in Präzisionsfiltern, der Humanmedizin [65] und in optischen Geräten [66].

Kolloide können zudem als effektives Modell für verschiedene atomare Systeme verwendet werden. Die brownische Bewegung der Teilchen ist das Analogon zu den thermischen Fluktuationen der Atome. Abhängig von der Stärke und Art der Paarwechselwirkung imitieren sie feste, gasförmige oder flüssige Körper. Aus diesen Gründen ermöglichen sie einen Einblick in Fragestellungen der Festkörperphysik und der statistischen Physik [67]. Durch die mesoskopische Größe

( $nm - \mu m$ ) der Partikel und die relative große Zeitskala ( $ms - s$ ) auf denen die dynamischen Prozesse stattfinden, können einfache optische Mikroskope für die Visualisierung der Probe verwendet werden. So lassen sich die Trajektorien von jedem einzelnen Kolloid aufzeichnen und geben uns ein umfangreicheres Bild als die meisten andern Messmethoden.

In den folgenden Abschnitten werden die Grundlagen zur Erzeugung kolloidaler Monolagen besprochen. Die elementaren Eigenschaften eines in wässriger Lösung suspendiertes Teilchen, so wie die relevanten Längen und Zeitskalen werden beschrieben. Im Fokus dieser Arbeit steht die Interaktion von kolloidalen Monolagen mit einem periodischen Lichtpotenzial. Aus diesem Grund erörtern wir die Mechanismen, die jener Interaktion zugrunde liegen.

## 2.2 Brownsche Bewegung

Kolloide sind kleine Partikel, die sich frei in einer Flüssigkeit bewegen können. Diese thermischen Fluktuationen werden brownsche Bewegung genannt. Die Analogie zwischen atomaren Systemen und Kolloiden fußt auf diesem eratischen Verhalten und der damit einhergehenden sprunghaften Änderung der kinetischen Energie  $E_{kin}$ . Sie durchdringen den gesamten Phasenraum und folgen somit der Boltzmann Statistik:

$$P(E_{kin}) \propto \exp\left[-\frac{E_{kin}}{k_B T}\right] \quad (2.1)$$

$k_B = 1.38 \cdot 10^{-23} J/K$  ist die Boltzmann-Konstante,  $T$  die Temperatur des Systems. Unter Verwendung des Virial Theorems können wir die Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $P(x)$  eines Partikels am Ort  $x$  unter dem Einfluss eines äußeren Potenzials  $V(x)$ , wie folgt berechnen:

$$P(x) \propto \exp\left[-\frac{V(x)}{k_B T}\right] \quad (2.2)$$

Anstelle wie üblicherweise die Energie in der Einheit *Joule* zu messen, wird auf dieser Skala die Einheit  $k_B T$  verwendet, da die thermische Energie  $E_T$  einen signifikanten Teil der gesamten Energie ausmacht. So wird der Umgang mit den Zahlen handlicher, denn bei Raumtemperatur  $T = 25^\circ C = 293,15 K$  entspricht  $E_T = 1 k_B T = 4,045 \cdot 10^{-21} J$ .

Für ein viskoses System mit der Reibungskonstanten  $\gamma$  lässt sich die Langevin-Gleichung eines Partikels mit der Ortskoordinate  $x$  und der Masse  $m$  wie folgt definieren:

$$m\ddot{x} + \gamma\dot{x} = F_z(t) \quad (2.3)$$

Wobei  $F_z(t)$  die stochastische Kraft zum Zeitpunkt  $t$  ist und durch zufälligen Stöße mit den umgebenden Molekülen verursacht wird. Für diese gilt:

$$\langle F_z(t)F_z(t') \rangle = 2\gamma k_B T \delta(t - t'), \quad \langle F_z(t) \rangle = 0 \quad (2.4)$$

Die Relaxationszeit  $\tau_p$  für freie Kolloide beträgt üblicherweise wenige  $\mu s$  bis  $ns$  [68]. Dadurch könne wir den Trägheitsterm in Gl. 2.3 in den meisten Experimenten vernachlässigen und es folgt:

$$\gamma \dot{x} = F_z(t) \quad (2.5)$$

Durch Integration erhalten wir:

$$x(t) = x(0) + \frac{1}{\gamma} \int_0^t F_z(t') dt' \quad (2.6)$$

Für das mittlere Verschiebungsquadrat  $\langle \Delta x^2 \rangle = \langle (x(t) - x(0))^2 \rangle$  ergibt sich dann:

$$\langle \Delta x^2 \rangle = \frac{1}{\gamma} \left\langle \int_0^t F_z(t') dt' \cdot \int_0^t F_z(t^*) dt^* \right\rangle = \frac{1}{\gamma} \int_0^t \int_0^t \langle F_z(t') F_z(t^*) \rangle dt' dt^* \quad (2.7)$$

Mit Gleichung 2.4 erhalten wir:

$$\langle \Delta x^2 \rangle = \frac{2k_B T}{\gamma} t \quad (2.8)$$

Ist das beobachtete Zeitintervall groß zur Relaxationszeit, so wächst das mittlere Verschiebungsquadrat linear mit der Zeit [69].

$$\langle \Delta x^2 \rangle = 2d_s D t \quad (2.9)$$

$D$  ist die Diffusionskonstante und  $d_s$  ist die Dimension des Systems. Die Stokes-Einstein Relation erhalten wir durch einsetzen von Gl. 2.9 in Gl. 2.8:

$$D = \frac{k_B T}{d_s \gamma} \quad (2.10)$$

Zudem gilt für ein freies sphärisches Kolloid mit dem Radius  $R_k$ :

$$\gamma = 6\pi\eta R_k \quad (2.11)$$

Damit lässt sich nun die Selbstdiffusionszeit  $\tau_D$  eines Kolloids in einem Lösungsmittel mit der Viskosität  $\eta$ , dass sich frei in 3 Raumrichtungen bewegen kann, berechnen:

$$\tau_D = \frac{R_k^2}{6D} \quad (2.12)$$

In unserem Experiment beträgt der Kolloiddurchmesser  $R_k = 1.95 \mu m$ . Die Viskosität von Wasser bei  $T = 300K$  ist laut [14]  $\eta = 1.002 mPa \cdot s$ . Somit ergibt sich  $\tau_D \approx 22 s$ . Dies ist im Vergleich zu Selbstdiffusion von Atomen mit  $\tau_D \sim 1 ps$  gigantisch groß und somit leicht im Experiment zu beobachten.

## 2.3 Van-der-Waals Wechselwirkung

In kolloidalen Systemen können verschieden Kräfte auf die einzelnen Partikel wirken. Auf kurzen Längenskalen von wenigen  $nm$ , wenn sich Teilchen fast berühren, spielt die Van-der-Waals (VdW) Wechselwirkung eine große Rolle. Dieser Kraft liegt ein Synchronisationsprozess zugrunde, bei dem die Dipole einer Kontaktfläche die der anderen beeinflussen. Durch die abstoßende Wirkung gleicher Ladungen zwingt die Ladungsverteilung in der einen Fläche die Atome in der anderen eine synchrone Schwingung auf. In unserem Experiment tritt diese Wechselwirkung sowohl zwischen den Oberflächen der Kolloide untereinander als auch zu den Wänden des Probenhalters auf. Das daraus resultierende Potenzial hängt von der Geometrie der beteiligten Oberflächen ab, und kann über die Dipol-Dipol Wechselwirkung integriert werden [70]. Für den Fall von zwei Kugeln erhalten wir:

$$U_{VdW}(r) = -\frac{A_H R}{6} \left( \frac{2R^2}{r^2 - 4R^2} + \frac{2R^2}{r^2} \right) - \frac{A_H}{6} \ln \left( \frac{r^2 + 4rR^2}{r^2} \right) \quad (2.13)$$

In dieser Gleichung ist  $r$  der mittlere Abstand der Schwerpunkte der Kugeln und  $A_H$  ist die Hamaker Konstante. Für ein sphärisches Partikel mit dem Radius  $R$  gegenüber einer Wand im Abstand  $h$  ergibt sich eine ganz ähnliche Gleichung:

$$U_{VdW}(r) = -\frac{A_H R}{6} \left( \frac{1}{r} - \frac{1}{r+h} \right) - \frac{A_H}{6} \ln \left( \frac{r}{r+h} \right) \quad (2.14)$$

Für die vom Material abhängige Hamaker Konstante gilt folgende Gleichung:

$$A_H = \frac{3k_B T}{4} \left( \frac{\epsilon_1 - \epsilon_3}{\epsilon_1 + \epsilon_3} \right) \left( \frac{\epsilon_2 - \epsilon_3}{\epsilon_2 + \epsilon_3} \right) + \frac{3hf_e}{8\sqrt{2}} \frac{(n_1^2 - n_3^2)(n_2^2 - n_3^2)}{\sqrt{(n_1^2 + n_3^2)(n_2^2 + n_3^2)} \left[ \sqrt{n_1^2 + n_3^2} + \sqrt{n_2^2 + n_3^2} \right]} \quad (2.15)$$

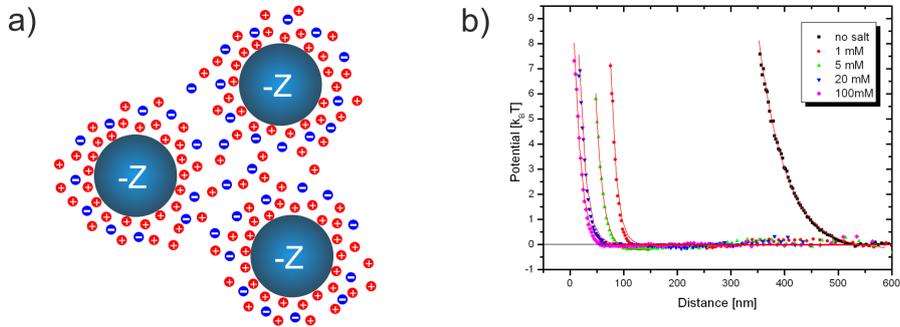
mit den Brechungsindices  $n_1$ ,  $n_2$  und  $n_3$  für die Partikel und das Lösungsmittel, sowie den zugehörigen Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_1$ ,  $\epsilon_2$  und  $\epsilon_3$ . Die Anregungsfrequenz des Systems wird mit  $f_e$  bezeichnet. Mit dieser Gleichung kann die Stärke und Art der Wechselwirkung bestimmt werden. Interessant ist, dass die VdW Kraft für den Fall  $n_2 = n_3$  vollständig unterdrückt wird und im Falle  $n_2 < n_3$  und  $n_1 > n_3$  sogar abstoßend wirkt. In unserem Experiment hingegen wirkt sie immer attraktiv, da der Brechungsindex von Polystyrol größer ist als der von Wasser. Eine Sammlung von Werten der Hamaker Konstanten für typische Materialien findet man in: [71]

Durch die attraktive Van-der-Waals Wechselwirkung neigen die Kolloide dazu zu verklumpen, was durch eine zusätzliche repulsive elektrostatische Wechselwirkung verhindert wird. Partikel mit einer solchen Eigenschaft werden auch Ladungsstabilisiert genannt. So können sich die Kolloide nicht weiter als bis zu 200 nm annähern.

## 2.4 Geladene Partikel

Oberflächen aus Polystyrol oder Glas entwickeln in einem polaren Lösungsmittel immer eine negative Oberflächenladung. Die Ursache für dieses Verhalten liegt in der Dissoziation von Ladungsträgern aus der Oberfläche in das Lösungsmittel. Im Falle von Polystyrol (PS) enthält die Oberfläche meistens Sulfonate Gruppen, bei denen ein Proton an das wässrige Lösungsmittel abgegeben wird ( $X - SO_4H \rightarrow X - SO_4^- + H^+$ ). Das Gleiche geschieht auch bei einer Glasoberfläche, nur hier wird das Proton von einer Silanol Gruppe dissoziiert ( $x - SiOH \rightarrow X - SiO^- + H^+$ ). Dies verhindert das Aneinanderhaften von Partikeln.

Über den pH Wert der Lösung lässt sich der Dissoziationsgrad der Oberflächen bestimmen und damit auch die Konzentration der  $H^+$  Ionen im Wasser. Zudem wird darüber auch die Stärke der repulsiven Wechselwirkung festgelegt. Entsprechend entstehen Gegenionen durch Verunreinigungen und Schwebstoffe im Wasser in der Nähe dieser geladenen Oberflächen. Diese Ladungszone wird auch als Doppellage bezeichnet und besteht aus einer an die Oberflächen stark gebundenen Gegenionen und einer Ladungswolke, die sich um die Partikel herum verteilt. Dies wird schematisch in Abbildung 2.1 **a)** dargestellt. Diese Wolke schirmt die geladene Oberfläche ab und reduziert die Reichweite der elektrostatischen Wechselwirkung erheblich. Die Stärke der Abschirmung lässt sich wie folgt herleiten.



**Abbildung 2.1:** **a)** Schematische Darstellung von drei Kolloiden in wässriger Lösung, umgeben von Doppellagen aus Ionen. **b)** Elektrostatische Paarwechselwirkung zwischen Kolloiden für unterschiedliche Salzkonzentrationen im Lösungsmittel [72]

Wir nehmen eine gleichmäßige und kontinuierliche Verteilung der Oberflächenladung und punktförmige freie Ladungsträger mit der Elementarladung  $e$  an. So können wir die Boltzmannverteilung verwenden, um eine Ladungsverteilung  $\rho(r)$  mit der Ladungsträgerdichte  $n_i$  der Sorte  $i$  am Ort  $r$ , dem elektrischen Potential  $\phi(r)$ , der Anzahl an Ionen  $n_{i0}$  und der Ionenwertigkeit  $Z_i$  zu bestimmen.

$$n_i = n_{i0} \exp\left(-\frac{Z_i e \phi(r)}{k_B T}\right) \quad (2.16)$$

Die Ladungsträgerdichte erhalten wir so aus:

$$\rho(r) = \sum Z_i e n_i = \sum Z_i e n_{i0} \exp\left(-\frac{Z_i e \phi(r)}{k_B T}\right) \quad (2.17)$$

Zudem wird das elektrische Potenzial mit der Ladungsdichte über die Poisson Gleichung verknüpft:

$$\nabla^2[\phi(r)] = \frac{\rho(r)}{\epsilon_r k_B T} \quad (2.18)$$

mit  $\epsilon_r$  als spezifische Dielektrizitätskonstante des Lösungsmittels.

Setzen wir nun Gleichung 2.17 in Gleichung 2.18 ein, so erhalten wir eine Differentialgleichung für das Potenzial, auch als Poisson-Boltzmann Gleichung bekannt.

$$\nabla^2[\phi(r)] = \frac{1}{\epsilon_r k_B T} \sum Z_i e n_{i0} \exp\left(-\frac{Z_i e \phi(r)}{k_B T}\right) \quad (2.19)$$

Leider gibt es keine analytische Lösung für diese Gleichung, so dass wir einige Näherungen verwenden müssen. Zuerst nehmen wir an, dass die Oberflächenladung klein ist ( $Z_i \exp\left[\frac{\phi(r)}{k_B T}\right] \ll 1$ ). Dies erlaubt uns die Poisson-Boltzmann Gleichung zu linearisieren. Die zweite Annahme ist eine symmetrische Verteilung des Elektrolyts. Dieses führt zur Debye-Hückel Näherung, bei der Gleichung 2.19 in eine Taylorreihe entwickelt wird und wir uns nur noch auf den zweiten Term konzentrieren.

$$\nabla^2[\phi(r)] = \kappa^2 \phi(r) \quad (2.20)$$

mit

$$\kappa = \sqrt{\frac{e^2}{\epsilon_r k_B T} \sum n_{i0} Z_i^2} \quad (2.21)$$

$\kappa$  ist die invertierte Debyesche Abschirmlänge  $\lambda_D$ . In unserem Experiment beträgt  $\lambda_D$  ungefähr 180 bis 300 nm, wie der Vergleich mit Simulationen gezeigt hat, siehe Kapitel 3.2.2. Sie ist ein Maß für die Reichweite der repulsiven Wechselwirkung. Die Lösung von Gleichung 2.20 ergibt das Potenzial eines geladenen Kolloids:

$$U(r) = \frac{(Z^* e)^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \left(\frac{\exp(\kappa R)}{1 + \kappa R}\right)^2 \frac{\exp(-\kappa r)}{r} \quad (2.22)$$

Diese Gleichung ist Teil der Derjaguin-Landau-Vervey-Overbeek (DLVO) Theorie [73] und beschreibt den Anteil der ionischen Doppellage an dem stabilisierenden Wechselwirkungspotenzial zwischen geladenen Partikeln einer kolloidalen Lösung. Hier ist  $Z^*$  die effektive Oberflächenladung,  $\epsilon_0$ ,  $\epsilon_r$  die Permittivität des Vakuums bzw. des Lösungsmittels und  $e$  ist die Elementarladung. Die Gleichung 2.22 lässt sich in einer vereinfachten Form darstellen, indem wir den Vorfaktor zusammenfassen in einer Konstanten  $Q_0$ .

$$U(r) = \frac{Q_0}{r} \exp(-\kappa r) = \frac{Q_0}{r} \exp\left(-\frac{r}{\lambda_D}\right) \quad (2.23)$$

Diese Schreibweise wird als das Yukawa-Potenzial bezeichnet, wobei der Vorfaktor  $Q_0$  weiterhin von  $\lambda_D$  abhängt.

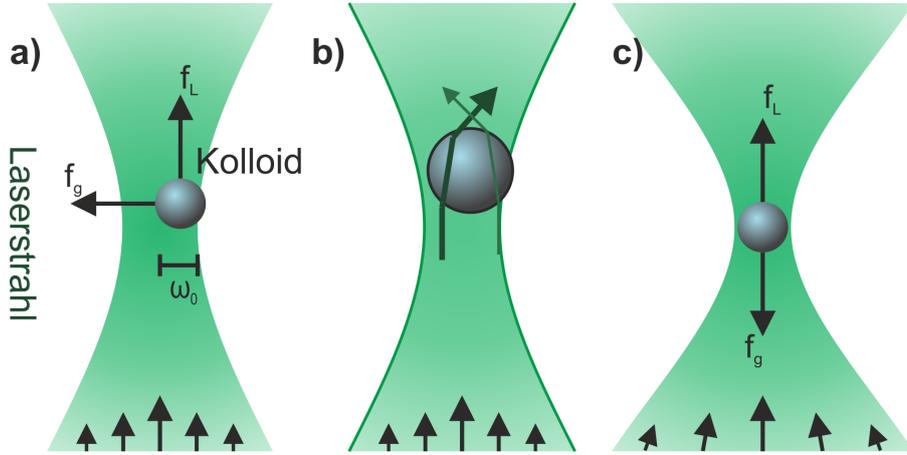
Im Experiment können wir die debyesche Abschirmlänge über die Ionenkonzentration im Wasser kontrollieren, siehe Abbildung 2.1 **b**). Diese wird über die Leitfähigkeit des Lösungsmittels gemessen. So lässt sich der mittlere Partikelabstand entsprechend einstellen. Im Experiment beträgt dieser Abstand typischerweise einige  $\mu\text{m}$  und verhindert somit die Koagulation der Partikel durch die attraktive Van-der-Waals Wechselwirkung. Die elektrostatische Paarwechselwirkung  $U(r)$  kann über die Paarverteilungsfunktion von zwei benachbarten Kolloiden mithilfe der Videomikroskopie bestimmt werden [74]. Für geladene Kolloide die in einer dichten Packung angeordnet sind müssen Effekte durch die Vielteilchenphysik berücksichtigt werden [75]. Durch das Zusammenspiel dieser repulsiven Kräfte zwischen den Kolloiden untereinander und mit den Wänden des Gefäßes der Lösung, lassen sich bei hinreichend dichter Packung der Teilchen ausgedehnte periodische Strukturen erschaffen. So lassen sich kolloidale Monolagen erstellen, die viele Gemeinsamkeiten mit Kristallen aus der Festkörperphysik aufweisen.

## 2.5 Kolloid-Licht Wechselwirkung

Licht ist in der Lage Materie auf vielfältige Weise zu beeinflussen. Für unser Experiment ist die Anwendung von Licht zur Manipulation und Kontrolle der Position von festen Körpern besonders interessant. Mithilfe einer optischen Pinzette lassen sich kleine Partikel festhalten oder versetzen, ohne die Einschränkungen in Kauf nehmen zu müssen, die durch die Nutzung von magnetischen oder elektrischen Feldern entstehen. Die einzigen Voraussetzungen, die wir bei dieser Methode benötigen sind, dass die Brechungsindizes der Kolloide  $n_c$  und des Lösungsmittels  $n_l$  unterschiedlich, sowie die Partikel für Licht mit der verwendeten Wellenlänge transparent sind. Die erste Realisierung einer optischen Pinzette geschah 1970 durch Arthur Ashkin [76]. Seit dem haben sie Einzug in viele Gebiete der Physik und Biologie gefunden, zum Beispiel zum kühlen von Atomen [77]. Typische Kräfte die mit einer optischen Pinzette auf einzelne Kolloide ausgeübt werden können liegen im Bereich von einigen Femto- bis Piconewton.

Eine dreidimensionale optische Falle wird durch einen stark fokussierten Laserstrahl erzeugt, siehe Abb. 2.2. Je größer die numerische Apertur (NA) der verwendeten Linse, desto stärker sind die erzeugten Kräfte. Diese werden durch den Impulsübertrag der Photonen, welche an den Grenzflächen zwischen dem Partikel und dem umgebenden Medium gebrochen werden hervorgerufen. Dabei müssen wir zwischen zwei verschiedenen Kräften unterscheiden. Den Gradientenkräften, welche das sphärische Objekt in den Strahlfokus ziehen und den Strahldruck, der immer in die Propagationsrichtung der Photonen wirkt. Im Folgenden gehen wir näher auf diese Komponenten ein.

Befindet sich ein polarisierbares Teilchen in einem Lichtfeld mit der Intensität  $I$ , so wird ein Dipolmoment in diesem erzeugt. Ist dieses Feld inhomogen,



**Abbildung 2.2:** a) Gauß-Strahl eines Laser mit der Strahlweite  $\omega_0$ , auf das Kolloid wirken die Gradientenkraft  $f_g$  und der Lichtdruck  $f_L$ . b) Ursprung der Gradientenkraft durch die Lichtbrechung. c) Bei hinreichend starker Fokussierung können sich Strahltrieb und Gradientenkraft kompensieren. Das Teilchen schwebt im Fokus.

verursacht die Dipol-Wechselwirkung  $W_d$  eine Gradientenkraft  $f_g = -\nabla W_d$  auf das Kolloid, welche in Richtung maximaler Intensität wirkt. Die Dipol-Wechselwirkung kann über den Maxwell'schen Spannungstensor berechnet werden [78]. Daraus ergibt sich unter der Annahme eines schwach polarisierten Teilchens in einem starken Lichtfeld:

$$W_d = -\alpha \int_V I(r) dr \quad (2.24)$$

mit  $\alpha = (n_c/n_l)^2 - 1$  und  $n_{c/l}$  die Brechungsindizes des Teilchens und des Mediums sind [79].

Für einen Laser mit gaußförmiger Intensitätsverteilung  $I(r) = I_0 e^{-r^2/2\omega_0}$  und der Strahlweite  $\omega_0$ , lässt sich  $W$  berechnen und somit auch die Gradientenkraft  $f_g$ . Es lässt sich zeigen, dass für Partikel mit kleinem Radius der Betrag von  $|f_g|$  proportional zu  $-r$  ist und somit als eine lineare Rückstellkraft betrachtet werden kann. Die Kraft wird maximal ( $f_{g,m}$ ), wenn der Schwerpunkt des Partikels sich am Rand des Gaußstrahls befindet ( $|r| = \omega_0$ ) und hängt mit dem Teilchenradius und dem Strahldurchmesser ab.

$$\begin{aligned} d \ll \omega_0 : \quad f_{g,m} &\sim 8\alpha I_0 R^3 / \omega_0, \\ d \gg \omega_0 : \quad f_{g,m} &\sim \alpha I_0 \omega_0^2 \end{aligned} \quad (2.25)$$

Zusätzlich zu Gradientenkraft wirkt auf ein Kolloid im Lichtfeld auch noch ein Strahltrieb  $f_L$ . Dieser verschiebt das Teilchen in Propagationsrichtung des Laserstrahls und sein Betrag im Fokus hängt von dem Verhältnis aus Wellenlänge  $\lambda$  und  $R$  ab.

$$\begin{aligned} d \ll \lambda : \quad f_L &\sim 64\alpha I_0 R^6 / \lambda^4, \\ d \gg \lambda : \quad f_L &\sim \alpha I_0 \lambda^2 \end{aligned} \quad (2.26)$$

Eine genauere Abschätzung für die Stärke des Strahldrucks auf ein sphärisches Partikel ergibt [79]:

$$f_L \cong 2\pi\alpha^2 I_0 \omega_0^2 \quad (2.27)$$

Nun wissen wir, dass ein Kolloid von einer optischen Pinzette festgehalten werden kann, wenn  $f_g > f_L$  gilt, siehe Abb. 2.2 c). Somit folgt für kleine Strahltaillen  $\omega_0 \approx \lambda$  aus den Formeln 2.25 und 2.26 die Abschätzung:

$$\begin{aligned} d \ll \omega_0 : \quad f_l/f_g &\sim \alpha(2R/\omega_0)^2, \\ d \gg \omega_0 : \quad f_l/f_g &\sim \alpha \end{aligned} \quad (2.28)$$

Wir sehen, dass kleine Partikel immer in den Fokus gezogen werden, da meistens  $(2R/\omega_0)^2 \ll \alpha^{-1}$  gilt. Für große Teilchen hingegen müssen die Brechungsindizes so angepasst werden, so dass  $\alpha \ll 1$  ist. Es kann gezeigt werden, dass die Dipolnäherung als Abschätzung für die Gradientenkraft für alle Partikelgrößen verwendet werden kann [79]. Für große Partikel gibt es jedoch eine einfachere Beschreibung der Gradientenkraft, in welcher der Impulsübertrag bei der Brechung der Lichtstrahlen an den Grenzflächen des Partikels berücksichtigt wird. Dies wird in Abb. 2.2 b) für ein dielektrisches Partikel mit  $n_c > n_l$  für zwei Strahlen, die das Kolloid symmetrisch durchsetzen, dargestellt. In einem solchen Szenario wirkt  $f_g$  immer in Richtung des Fokus unabhängig von der Partikelgröße.

## 2.6 Das Substratpotenzial

Das Prinzip der optischen Pinzette benutzen wir in unserem Experiment, um ausgedehnte Potenziallandschaften zu generieren. Dafür überlagern wir mehrere kohärente und fokussierte Laserstrahlen, um ein zweidimensionales Interferenzmuster zu erzeugen. Dabei dient jedes Intensitätsmaximum als eine optische Pinzette, die ein Kolloid einfangen kann. In diesem Experiment nutzen wir ausschließlich Interferenzmuster mit sechs zähliger Symmetrie, doch auch andere Geometrien sind leicht generierbar. Ein solches ist in Abbildung 2.3 a) dargestellt. Um dieses zu erzeugen, überlappen wir drei Laserstrahlen miteinander dabei gilt für das elektrische Feld der einzelnen Strahlen mit der Phase  $\varphi$ :

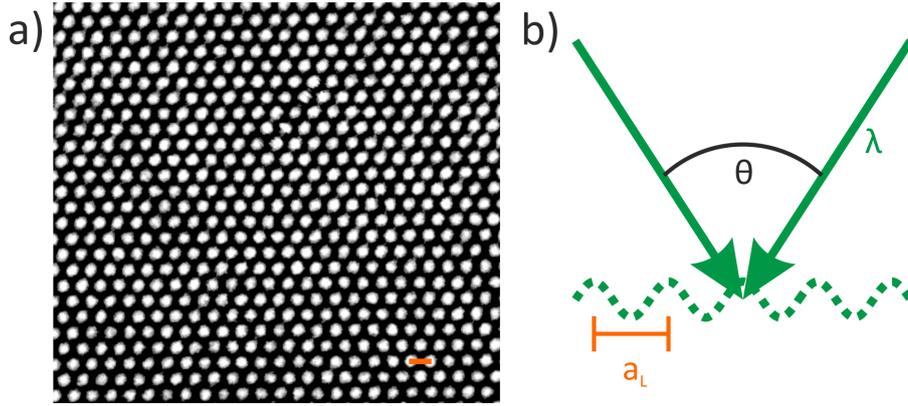
$$\vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}_0 \cos(\vec{G} \cdot \vec{r} + \varphi + \omega t) \quad (2.29)$$

Die Überlagerung der Einzelstrahlen ergibt dann die ortsabhängige Potenzialstärke  $V(\vec{r})$  des Lichtfeldes.

$$V(\vec{r}) = -\frac{V_0}{n^2} \sum_{j=0}^{n-1} \sum_{k=0}^{n-1} \cos[(\vec{G}_k - \vec{G}_j) \cdot \vec{r} + \varphi_k + \varphi_j] \quad (2.30)$$

Hier ist  $\vec{G}_k$  die Projektion des Wellenvektors  $\vec{k}_k$  des  $k$ -ten Strahls auf die Ebene,  $\varphi_k$  die Phase dieses Strahls und  $n$  ist die Anzahl der überlappenden Laserstrahlen. Der Wellenvektor ist in unserem System definiert mit

$$\vec{G}_j = \frac{c_n \pi}{a_L} \begin{pmatrix} \cos(\frac{2\pi j}{n} + \alpha_n) \\ \sin(\frac{2\pi j}{n} + \alpha_n) \end{pmatrix} \quad (2.31)$$



**Abbildung 2.3:** a) Beispiel für ein hexagonales Interferenzmuster. Der orangefarbene Skalenbalken hat eine Länge von  $6 \mu\text{m}$ . b) Schematische Darstellung der Überlagerung von zwei Laserstrahlen mit der Wellenlänge  $\lambda$ , die sich unter dem Winkel  $\Theta$  überschneiden.

für  $j = 0, 1, 2$  [80]. Zur Anpassung des Potenzials an unsere symmetrische Geometrie aus 3 Laserstrahlen, wählen wir die Parameter  $n = 3$ ,  $c_n = c_3 = 4/3$  und  $\alpha_n = \alpha_3 = 0$ . Setzen wir nun  $\vec{G}_j$  in Gleichung 2.30 ein, so erhalten wir:

$$V(\vec{r}) = -\frac{1}{9} \left( 3 + 4 \cos \left( \frac{2\pi r_y}{\sqrt{3}a_L} \right) \cos \left( \frac{2\pi r_x}{a_L} \right) + 2 \cos \left( \frac{4\pi r_y}{\sqrt{3}a_L} \right) \right) \quad (2.32)$$

Diese Formel beschreibt die räumliche Intensitätsverteilung unseres Interferenzmusters und somit auch die unseres Substratpotenzials, siehe Abb. 2.4. Die schwarzen Isopotenziallinien zeigen eine deutliche hexagonale Struktur in der Nähe der Sattelpunkte. Machen wir einen Schnitt durch diese Landschaft und schauen uns den Verlauf des Potenzials in x-Richtung an, so erhalten wir:

$$V_x(x, 0) = -\frac{1}{9} \left( 5 + 4 \cos \left( \frac{2\pi r_x}{a_L} \right) \right) \quad (2.33)$$

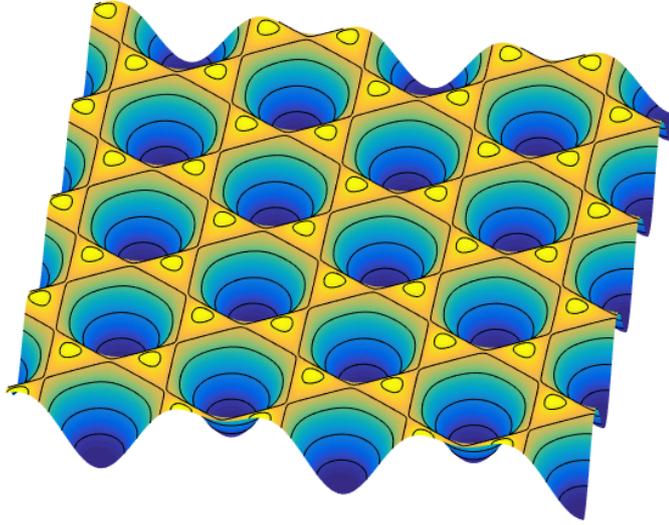
Um die Gitterkonstante  $a_L$  unseres Potenzials mit dem Einfallswinkel der Strahlen  $\theta/2$  bei gegebener Wellenlänge  $\lambda$  zu verbinden betrachten wir den Betrag des in die Einfallsebene projizierten Wellenvektors:

$$a_L = \frac{4\pi}{3G} = \frac{4\lambda}{3\theta} \quad (2.34)$$

So sehen wir sofort, dass wir  $a_L$  variieren können indem wir den Einfallswinkel der Laserstrahlen verändern. Im Experiment sind so Gitterkonstanten von  $5.5 \mu\text{m}$  bis zu  $7.0 \mu\text{m}$  möglich.

Eine Methode, um die Potenzialtiefe abschätzen zu können, besteht in der Betrachtung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $P(\vec{r})$  einzelner Kolloide, die durch die Boltzmannverteilung beschrieben wird [81].

$$P(\vec{r}) = \frac{1}{Z} e^{-\frac{V(\vec{r})}{k_B T}} \quad (2.35)$$



**Abbildung 2.4:** Berechnete Potenziallandschaft eines hexagonalen Interferenzmusters. Dieses Substratpotenzial übernimmt die Funktion einer zweiten Oberfläche in unseren Experimenten.

$Z$  ist dabei eine Konstante die über eine geeignete Normierung bestimmt werden muss. Durch Inversion der Boltzmannverteilung folgt:

$$\frac{V(\vec{r})}{k_B T} = -\ln(P(\vec{r})) + \ln(Z) \quad (2.36)$$

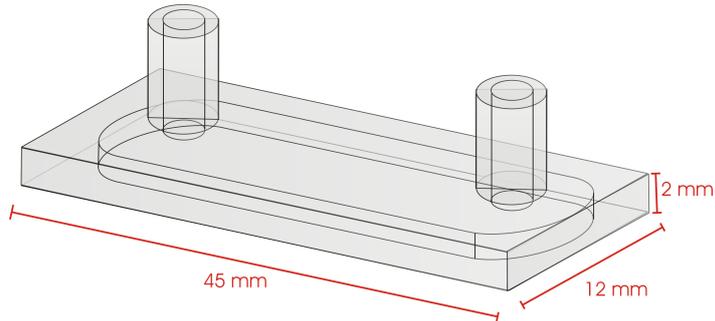
Da  $P(\vec{r})$  eine Wahrscheinlichkeitsverteilung darstellt, muss diese entsprechend normiert werden:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} P(\vec{r}) d\vec{r} = 1 \quad (2.37)$$

Der Vorfaktor  $Z$  wird über diese Normierung bestimmt. Dies ist im Experiment oft nicht möglich, da bei hohen Potenzialstärken die Kolloide im Zentrum der Minima gefangen sind. Durch diese starke Lokalisierung der Partikel wird nur ein kleiner Teil des Potenzials abgefragt, der eine Bestimmung von  $Z$  unmöglich macht. Somit genügt Gleichung 2.36 nur um relative Potenzialunterschiede zu berechnen. Eine weitere Möglichkeit wird in 2.7.6 gezeigt und wird zur Bestimmung von  $V(r)$  in dieser Arbeit verwendet.

## 2.7 Aufbau des Experiments

In diesem Abschnitt wenden wir uns der technischen Seite des Experiments zu und beantworten die Fragen, wie das Wissen aus den vorherigen Abschnitten



**Abbildung 2.5:** Die Probenhalterung, eine Durchflussküvette vom Typ 137-QS der Firma Hellma [1].

angewendet werden kann. So erzeugen wir einen kolloidalen Kristall mit hexagonaler Struktur und fangen die Partikel in unserer optischen Potenziellandschaft. Diese stellen die beiden Kontaktflächen in unserem tribologischen Experimenten dar. Zudem benötigen wir eine treibende Kraft, welche die Kontaktflächen gegeneinander scheren. Um dies zu erzeugen, nutzen wir einen Piezo-Aktuator und bewegen die Probe auf einer linearen Achse. Durch das Zusammenspiel von dabei auftretenden Stokeschen Kräften und dem Substratpotenzial wird die Monolage über das Potenzial bewegt. Durch den Strahldruck eines zweiten Laser wird die vertikale Fluktuation der Kolloide reduziert, damit sich ein zweidimensionaler Kristall ausbilden kann. Die Kolloide werden während des Experiments über ein Mikroskop beobachtet und deren Bewegung von einer CCD-Kamera aufgezeichnet.

### 2.7.1 Die Probe

Die Eigenschaften eines kolloidalen Kristalls hängen maßgeblich von der Paarwechselwirkung der Kolloide ab. Diese wird durch die Menge gelöster Ionen in dem Lösungsmittel bestimmt. In dieser Arbeit verwenden wir ladungsstabilisierte Polystyrolpartikel (PS), die in hochreinem Wasser dispergiert sind. Ist die Salzkonzentration zu hoch, so kommen sich die Partikel zu nahe und die Oberflächen spüren eine starke Van-der-Waals Wechselwirkung. Dies führt zum Verklumpen der Probe und muss vermieden werden. Dazu wird das Lösungsmittel zusätzlich deionisiert. Wie in Gleichung 2.21 gezeigt, hängt die Debye-Abschirmlänge  $\lambda_D = \kappa^{-1}$  von der Ionenkonzentration ab. Nimmt diese zu, so nimmt die Reichweite des Yukawa-Potenzials ab. Um eine konstant niedrige Ionenkonzentration zu erreichen, befindet sich die Probe während der Messung in einer Durchflussküvette aus Quarzglas der Firma Hellma (Abb. 2.5). An dieser ist ein Wasserkreislauf angeschlossen, siehe Abb. 2.6. So kann die Ionenkonzentration über einen Ionentauscher in der Zelle reguliert werden [82]. Die Schichthöhe der Zelle beträgt  $200 \mu\text{m}$ , obwohl die Kolloide sehr viel kleiner sind. Denn in einem noch dünneren Kanal würden die auftretenden Kapilarkräfte den Durchfluss des Wasserkreislaufs beeinträchtigen.

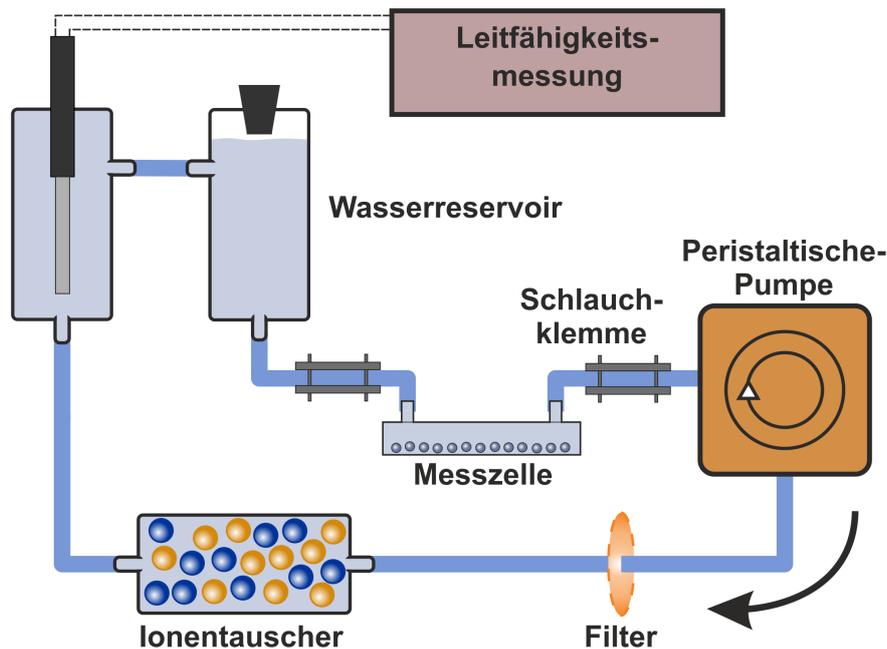
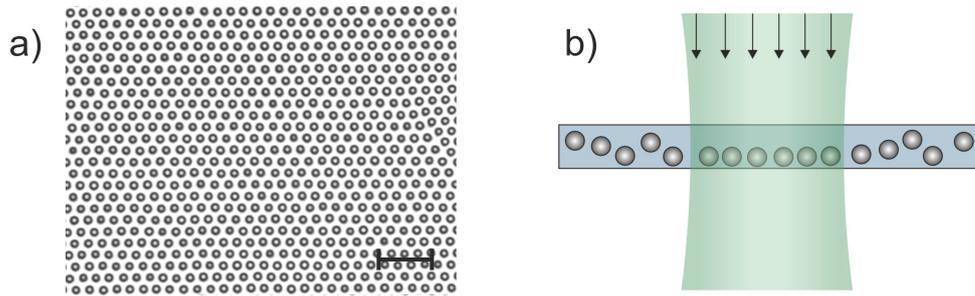


Abbildung 2.6: Schema des Deionisationskreislaufs

Der Deionisationskreislauf besteht aus mehreren Plexiglasgefäßen, die mit Schläuchen aus Teflon und Tygon verbunden werden. Diese Materialien eignen sich besonders, da sie wenige Ionen ans Wasser abgeben. Die Tygonschläuche sind weicher und biegsamer als die aus Teflon und dienen hauptsächlich als kurze Verbindungselemente. Eine peristaltische Pumpe treibt diesen Kreislauf an und drückt das Wasser durch ein Gefäß, das zu c. a. dreiviertel mit Ionentauscher befüllt ist. Dieser besteht aus einem Gemisch Namens Serdolit von der Firma Serva. Die beiden Komponenten bestehen aus blauen Partikeln und gelben Partikeln, die jeweils  $OH^-$  und  $H^+$  Ionen aus dem Wasser heraus filtern. Diese Kügelchen besitzen einen Durchmesser von 0,3 bis 1,2  $mm$  und werden von zwei Netzen die im Ionentauschergefäß sitzen eingesperrt. Dadurch befindet sich aber auch immer eine kleine Luftblase in diesem Gefäß. Diese sollte so klein wie möglich sein, was durch eine von außen einwirkende Erschütterung erreicht werden kann. Zudem ist darauf zu achten, dass die Durchflussrichtung des Wassers so gewählt wird, dass es zuerst durch die Luftblase und anschließend durch den Ionentauscher strömt. Ansonsten wird die notwendige niedrige Ionenkonzentration in der Zelle nicht erreicht. Im nächsten Gefäß befindet sich eine Elektrode zur Messung der Leitfähigkeit  $\sigma_l$  des Wassers. Diese ist proportional zur Ionenkonzentration und misst damit die Stärke der Paarwechselwirkung ( $U_{pp}$ ). Im Experiment kann unter idealen Bedingungen eine Leitfähigkeit von  $\sigma_l = 60 \text{ nS}$  erreicht werden. Die Kolloide bilden einen gleichmäßigen Kristall wenn  $\sigma_l < 90 \text{ nS}$  ist.



**Abbildung 2.7:** a) Aufnahme einer kolleidalen Monolage, der Skalenbalken repräsentiert eine Länge von  $24 \mu\text{m}$ . b) Reduzierung des Systems auf zwei Raumdimensionen durch den Strahldruck eines Lasers [1]

### 2.7.2 Probenpräparation

Für eine erfolgreiche Messung benötigen wir einen homogenen zweidimensionalen Kristall, siehe Abb. 2.7 a). Diesen erzeugen wir aus Polystyrol (PS) Partikel mit einem Durchmesser von  $\varnothing = 3,9 \mu\text{m}$  von der Firma MicroParticles (Typ: PS-COOH-L1707). Deren Oberfläche ist mit einer Carboxylgruppe funktionalisiert, welche zur Ladungsstabilisierung dient. Zu Beginn der Probenpräparation wird der Deionisationskreislauf eingeschaltet, da dieser 30 bis 60 Minuten benötigt, um die Leitfähigkeit auf  $60 \text{ nS}$  zu reduzieren. Als Nächstes füllen wir  $150 \mu\text{l}$  der Stammlösung unserer PS Partikel mit einem Kolloidanteil von 10 Massenprozent in eine Eppendorfphiole. Dieser geben wir  $800 \mu\text{l}$  hochreines Wasser aus einem weiteren Deionisationskreislauf hinzu und vermischen die verdünnte Lösung in einem Ultraschallbad, bis die Kolloide gleichmäßig in dieser verteilt sind. Anschließend werde die Kolloide in einer Zentrifuge durch Sedimentation getrennt. Das Wasser kann nun mit einer Pipette abgesaugt werden und wird nicht weiter benötigt. Nun füllen wir die konzentrierte Kolloid Lösung erneut mit  $800 \mu\text{l}$  hochreinem Wasser auf. Dieser Reinigungsprozess dient zur Reduzierung der Ionenkonzentration in unserer Probe und wird 3 bis 4 mal wiederholt. Bei der letzten Spülung wird nicht das gesamte Wasser aus der Phiole entfernt, sondern nur  $700$  bis  $750 \mu\text{l}$ . Die Kolloidkonzentration in der fertigen Probe ist ein Beitrag zur Regulierung der Gitterkonstanten  $a_S$  in unserem Kristall.

Von der so präparierten Probe werden nun  $50 \mu\text{l}$  auf den Grund des Wasserreservoirs unseres Kreislaufs injiziert. Nun wird die Kolloidlösung in die Hellmazelle gepumpt. Hier bietet sich uns eine weitere Möglichkeit  $a_S$  zu manipulieren, denn die Lösung weist einen sichtbaren Konzentrationsgradienten auf. Haben wir die gewünschte Konzentration in der Zelle eingestellt verschließen wir die Öffnungen, indem wir die Schläuche abklemmen. So verhindern wir eine Änderung der Teilchenzahl in der Zelle und reduzieren die Ionenzufuhr in unsere Probe.

In der Zelle sedimentieren die Partikel langsam auf den Grund, da deren Dichte größer als die von Wasser ist ( $\rho_K = 1,05 \text{ g/cm}^3$  und  $\rho_{H_2O} = 0,998 \text{ g/cm}^3$ ). Aufgrund dieses geringen Unterschiedes reichen thermische Fluktuationen aus, sodass sich keine gleichmäßige Monolage ausbildet. Die Größenordnung dieser Fluktuationen lässt sich durch den Auftrieb  $F_A$  der Partikel abschätzen. Für

diesen gilt:

$$F_A = gV\Delta\rho = g \cdot \frac{4}{3}\pi R^3(\rho_K - \rho_{H_2O}) \quad (2.38)$$

mit der Fallbeschleunigung  $g$  und dem Partikelvolumen  $V$ . Somit ergibt sich für die Fluktuationslänge  $L_F$ :

$$L_F = \frac{k_B T}{V\Delta\rho} \quad (2.39)$$

In unserem Experiment entspricht  $F_A$  ungefähr  $16 \text{ fN}$  und die Fluktuationslänge in etwa 15% des Partikelradius ( $L_F \propto 260 \text{ nm}$ ).

Um diese Fluktuation zu unterdrücken, nutzen wir einen Verdi V2 Laser mit einer Zentralwellenlänge von  $\lambda = 532 \text{ nm}$ . In der Beobachtungsebene beträgt der Strahldurchmesser ungefähr  $1 \mu\text{m}$  und trifft in einem  $0^\circ$  Winkel auf die Probe, siehe Abb. 2.7 b). Dadurch reduziert sich  $L_F$  auf unter 2% des Partikelradius, und die Kolloide sind in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt und durch die elektrostatische Repulsion entsteht ein hexagonaler Kolloidkristall [83]. Abhängig von der Teilchendichte in der Hellmazelle und der repulsiven Wechselwirkung können Gitterkonstanten von 5 bis  $7 \mu\text{m}$  realisiert werden.

### 2.7.3 Der Strahlengang

In unserem Experiment erzeugen wir eine optische Potenziallandschaft, indem wir den Laserstrahl in drei Teilstrahlen aufspalten und diese in der Probenkammer überlagern [84]. Durch die geschickte geometrische Anordnung der Teilstrahlen lassen sich Interferenzmuster mit variabler Periodizität  $a_L$  und Struktur erzeugen. Eine Skizze des Aufbaus ist in Abbildung 2.8 zu sehen.

Der erste Laser in unserem System ist ein Verdi V18 DPSS Laser von Coherent. Seine hohe Kohärenzlänge von  $60 \text{ m}$  ergibt sich aus seiner schmalen Linienbreite von  $5 \text{ MHz}$ . Zusammen mit einer geringen Beugungsmaßzahl ( $M^2 = 1,1$ ) eignet sich dieser Laser für die Generierung der benötigten ausgedehnten Interferenzmuster. Die Strahlstabilität wird mit unter  $2 \mu\text{rad}$  angegeben, doch hier ist Vorsicht geboten. Bei einem Strahlenweg von über  $3 \text{ m}$  Länge wie in diesem Aufbau führt dies zu einer Positionsänderung von bis zu  $6 \mu\text{m}$  in der Probenebene. Dies entspricht der Gitterkonstanten des Substratpotenzials und kann zu Störungen im Experiment führen. Optische Elemente wie Linsen können bei präziser Justage zu einer passiven Reduzierung dieser Fluktuationen in der Fokusebene führen. So kann eine Positionsänderung des Lasers von unter  $3 \mu\text{m}$  erreicht werden. Aus diesem Grund ist die genaue Ausrichtung des Lasers für dieses Experiment unverzichtbar.

Der Laserstrahl wird nun über mehrere Spiegel auf einen akustooptischen Modulator gelenkt. Dieser kann dazu genutzt werden die Intensität, Richtung oder auch die Wellenlänge eines Laserstrahls zu ändern. Dafür wird eine stehende Ultraschallwelle in einem Quarzkristall erzeugt. Durch die Dichtemodulation in der Kristallstruktur entsteht so ein Gitter, an welchem der Laser gebeugt wird, siehe Abb. 2.9 a). Wir verwenden einen AOM der Firma AA Opto-Electronics (Typ:

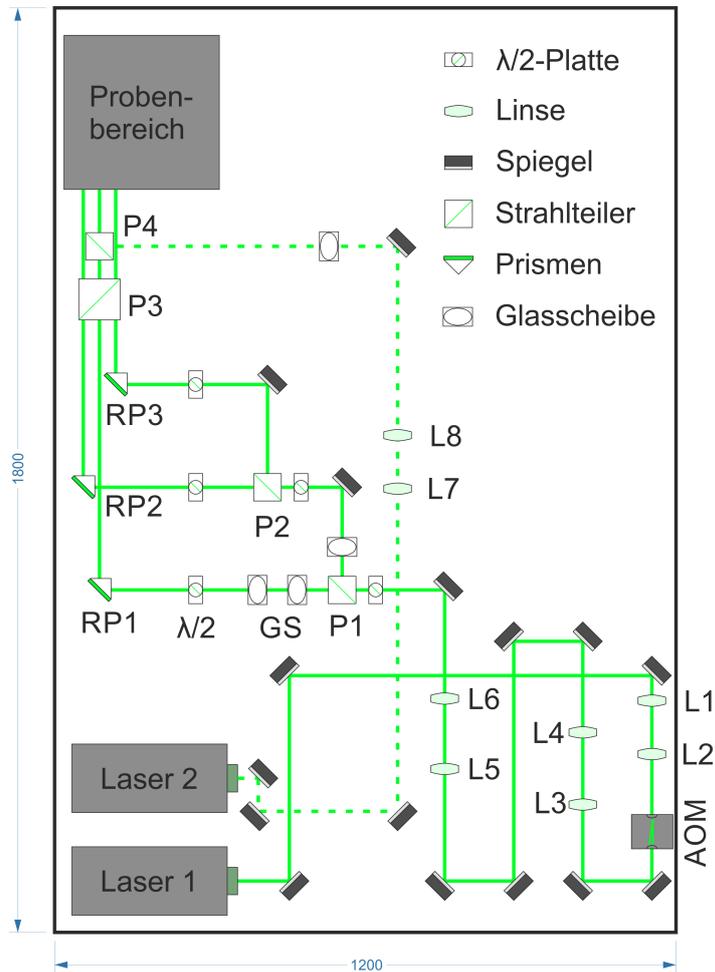


Abbildung 2.8: Skizze des optischen Aufbaus bis zum Probenbereich.

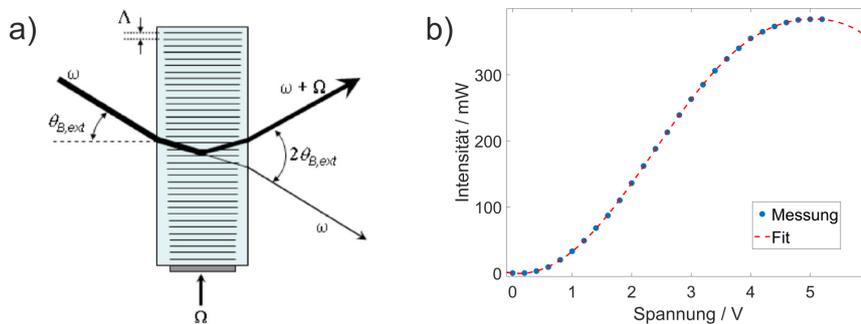
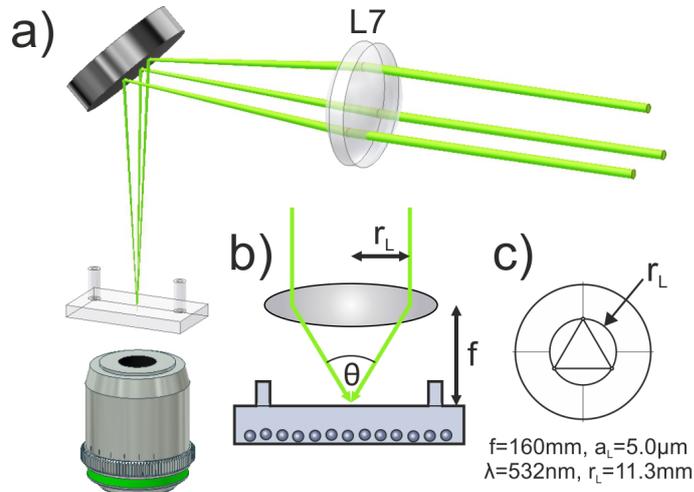


Abbildung 2.9: a) Skizze eines akustooptischen Modulators (AOM) [85]. b) Kalibrationskurve eines AOMs. Die rote gestrichelte Linie ist ein Fit an die Datenpunkte.

MCQ110-A2-Vis), bei dem die Amplitude der Schallwelle gesteuert werden kann. Dadurch können wir die Intensität der ersten Beugungsordnung variieren. Dies hat den Vorteil gegenüber der Änderung der Ausgangsleistung des Verdi-Lasers, dass keine Positionsänderung des Strahls aufgrund von thermischen Ausgleichsprozessen im Laserkopf auftritt. Die maximale Energiedichte des Lasers im AOM muss unter  $100 \text{ W/mm}^2$  liegen, da sich sonst eine thermische Linse ausbilden kann, die zu einer unkontrollierbaren Divergenz des Lasers führt. In Abbildung 2.9 **b**) ist eine typische Kalibrationskurve für einen AOM dargestellt. Da die Intensität der ersten Beugungsordnung (blaue Punkte) nicht linear mit der Eingangsspannung des AOMs zusammenhängt, verwenden wir ein Polynom siebter Ordnung (rote gestrichelte Linie) um diesen zu kalibrieren. Die Linsen L1 ( $f_1 = 200 \text{ mm}$ ) und L2 ( $f_2 = 50 \text{ mm}$ ) bilden das erste konfokale Teleskop in diesem Aufbau und dienen dazu den Strahldurchmesser  $\varnothing_S$  des Verdi-Lasers von  $2,25 \text{ mm}$  auf  $0,56 \text{ mm}$  zu reduzieren. Das verhindert ein Abschneiden des Laserstrahls durch die Apertur des AOMs von  $2 \times 2 \text{ mm}^2$ . Wenn in dieser Arbeit vom Strahldurchmesser gesprochen wird, ist damit immer die Halbwertsbreite der Intensitätsverteilung des Strahls gemeint. Hinter dem AOM befindet sich das nächste Teleskop (Linsen L3 und L4), mit dem der Strahl wieder auf seinen ursprünglichen Durchmesser aufgeweitet wird. Um den Strahldurchmesser kontrolliert für unser Experiment einzustellen, nutzen wir ein drittes Teleskop. Für die Justage des Strahlenganges liegen die Fokusse der Linsen L5 ( $f_1 = 80 \text{ mm}$ ) und L6 ( $f_1 = 200 \text{ mm}$ ) aufeinander. Für die Messungen wird dieses Teleskop aber dejustiert, sodass wir unser Interferenzmuster in der Probenebene durch einen divergenten Strahl verbreitern können.

Der nächste Teil des Aufbaus besteht aus einer Reihe von polarisierenden Strahlteilern (P1 - P3) und  $\lambda/2$  Platten, mit denen ein abgewandeltes Mach-Zehnder-Interferometer aufgebaut wird und unseren Laserstrahl in mehrere Teilstrahlen aufteilt. Die Kombination aus Strahlteilern und  $\lambda/2$  Platten ermöglicht es uns die Intensität der einzelnen Teilstrahlen aneinander anzupassen, um ein homogenes Interferenzmuster zu erzeugen. Eine Reihe von Glasscheiben mit einer Stärke von  $1 \text{ cm}$  befinden sich im Strahlengang, um durch eine geeignete Verkipfung dieser die Höhe der Teilstrahlen einstellen zu können. Zusammen mit den Reflexionsprismen (RP1 - 3) lässt sich so die Position jedes einzelnen Strahls präzise ausrichten, um verschiedene Geometrien für das Interferenzmuster zu erstellen. Da die einzelnen Strahlen auf dem Weg zum Probenbereich räumlich sehr dicht beieinander liegen, nutzen wir an dieser Stelle Reflexionsprismen anstelle von Spiegeln, da diese ohne einen Rahmen montiert werden können, der die jeweils anderen Strahlen blockieren könnte.

Im Probenbereich werden die Teilstrahlen mit einer Linse L7 ( $f = 160 \text{ mm}$ ) in die Ebene der Kolloide fokussiert, siehe Abb. 2.10 **a**). Dabei überlappen sich die Strahlen und interferieren miteinander. Durch das Zusammenspiel der Strahlaufweitung durch das dritte Teleskop (L5 und L6) zusammen mit der Linse L7 kann das Interferenzmuster auf einen Durchmesser von bis zu  $2 \text{ mm}$  ausgedehnt werden. Die Intensitätsänderung dieses Interferenzmusters aufgrund der gaußschen Intensitätsverteilung der Laserstrahlen in unserem Sichtfeld ( $400 \mu\text{m}$ ) ist somit kleiner als  $5 \%$ . Aufgrund sogenannter Speckles [86] die in kohärentem Laserlicht auftreten entstehen lokale Intensitätsänderungen von über  $10 \%$ . Was



**Abbildung 2.10:** a) Skizze des optischen Aufbaus im Probenbereich. b) Parameter für die Berechnung des Gitterkonstanten  $a_L$ . c) Schablone zur Ausrichtung der Laserstrahlen für ein hexagonales Gitter.

sich direkt auf die Stärke der optischen Pinzetten auswirkt.

In Abbildung 2.10 b) wird schematisch die Geometrie zur Erzeugung des Interferenzmusters dargestellt. Um die Laserstrahlen entsprechend zu justieren, wird eine Papierschablone vor die Linse L7 eingesetzt. Ein Beispiel für eine solche Schablone ist in Abb. 2.10 c) zu sehen. Die Laser müssen die Eckpunkte des Dreiecks präzise treffen. Die Größe des Dreieckes kann mit der Formel 2.34 aus dem Abschnitt 2.6 berechnet werden. Für die dargestellte Geometrie ergibt sich mit dem Radius  $r_L$  des Außenkreises vom Dreieck, dem Fokus der Linse L7  $f$  und dem Winkel zwischen den Teilstrahlen  $\Theta$ :

$$r_L = \frac{2f\lambda}{3a_L} \quad (2.40)$$

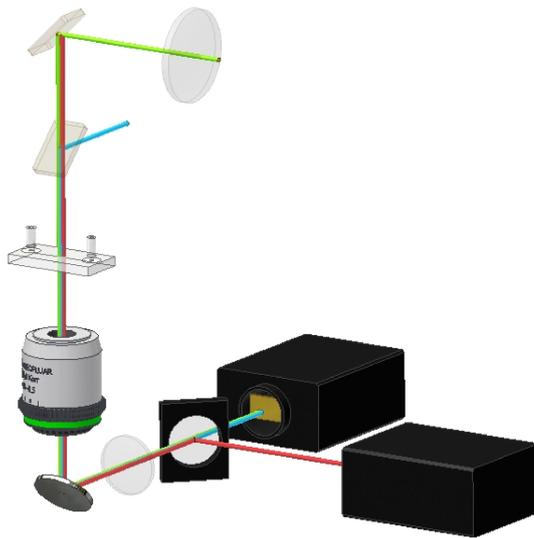
Hinter der Probenhalterung befindet sich das Objektiv, mit dem wir die Kolloide abbilden. Der Aufnahme einer Messung widmen wir uns im nächsten Abschnitt.

## 2.7.4 Videomikroskopie

Die verwendeten Kolloide haben eine Größe von einigen Mikrometern und legen durch Diffusion innerhalb von wenigen Sekunden eine Strecke die ihrem Durchmesser entspricht zurück. Dadurch ist es möglich, sie mithilfe der digitalen Videomikroskopie direkt zu beobachten. Wir verwenden zwei CCD-Kameras von IDS (Typ: USB2.0 uEye 2250 SE), um die Kolloide getrennt von dem Substratpotenzial betrachten zu können. Der CCD-Chip hat eine Auflösung von 1600x1200 Pixel, was in unserem Experiment  $364 \mu\text{m} \times 272 \mu\text{m}$  entspricht. Zur

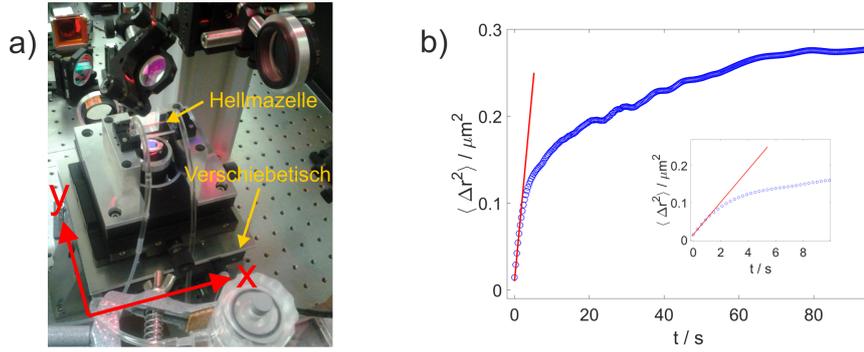
Abbildung der Probe nutzen wir ein Mikroskopobjektiv von Nikon mit einer 20 fachen Vergrößerung, einem Arbeitsabstand von 24 mm und einer numerischen Apertur von 0,4. Als Okular benutzen wir eine Linse mit einer Brennweite von  $f = 200 \text{ mm}$ . Dies erlaubt uns mehrere Tausend Partikel gleichzeitig zu beobachten. Zur Beleuchtung der Kolloide benutzen wir rotes Licht aus einer Photodiode ( $\lambda = 650 \text{ nm}$ ) welches von oben auf die Probe gestrahlt wird. Die Diode befindet sich im Fokus einer Linse, sodass unser Sichtfeld gleichmäßig ausgeleuchtet wird. Wir benutzen also ein Durchlichtmikroskop, bei dem der Strahlengang der Beleuchtung und der Laser auf der gleichen optischen Achse liegen und in die gleiche Richtung zeigen. Damit beide Lichtquellen die Probe treffen nutzen wir einen dichroitischen Spiegel, der das grüne Licht des Lasers reflektiert, aber für das rote Licht der Diode transparent ist.

Die hohe Intensität des Lasers ( $I_{max} = 18 \text{ W}$ ) ist hinreichend um das emp-



**Abbildung 2.11:** Darstellung des Mikroskops mit den beiden verwendeten CCD-Kameras.

findliche Objektive zu beschädigen. Darum befindet sich vor diesem ein weiterer dichroitischer Spiegel, der über 99,9 % der Laserleistung reflektiert. Dieser ist leicht geneigt, sodass der Strahl auf einen Beamblock trifft, wodurch eine zusätzliche Aufheizung der Probe verhindert wird. Ein dritter dichroitischer Spiegel teilt hinter dem Okular das Licht der Diode und des Lasers auf die beiden CCD-Kameras. Zusätzliche Absorptionsfilter vor den Kameras filtern Streu- und Umgebungslicht heraus, sodass nur die Kolloide auf CCD1 und nur das Interferenzmuster auf CCD 2 detektiert werden. Die Bilder der Kameras werden von einem Labviewprogramm ausgelesen und als eine Sequenz aus JPEG Dateien gespeichert. Die Positionen der Kolloide können anschließend über ein Intensitätsschwellwertverfahren ermittelt werden. Anschließend können wir die Trajektorien jedes einzelnen Partikels analysieren. Die räumliche Auflösung  $\Delta x$  mit dem die Positionen bestimmt werden können, ergibt sich aus der Anzahl



**Abbildung 2.12:** a) Photo des Probenbereichs. Die Hellmazelle sowie der Verschiebetisch sind markiert. b) Bestimmung des effektiven Reibungskoeffizienten  $\gamma_{eff}$  durch das mittlere Verschiebungsquadrat  $\langle \Delta r^2 \rangle$  als Funktion der Zeit  $t$ .

der Pixel pro Kolloid  $n_{pix}$  und der Vergrößerung  $\beta_M$  [87].

$$\Delta x = \frac{\beta_M}{\sqrt{n_{pix}}} \quad (2.41)$$

So können wir die Ortsauflösung auf c.a. 30 nm abschätzen.

### 2.7.5 Stokesche Kraft

Für Reibungsexperimente benötigen wir eine treibende Kraft, die auf eine unserer Kontaktflächen wirkt. Dies kann dadurch realisiert werden, indem wir den Probenhalter, in dem unserer Kolloide schwimmen, bewegen. Werden diese nun von dem Substratpotenzial festgehalten, so strömt das Lösungsmittel an ihnen vorbei und generiert eine Stokesche Kraft  $F$ , welche proportional zum relativen Geschwindigkeitsunterschied  $\Delta \vec{v}$  ist. Diese Kraft erhalten wir, wenn wir die Navier-Stokes-Gleichung lösen. Ihre allgemeine Form lautet:

$$\varrho \left( \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v} \cdot \nabla \right) \cdot \vec{v} = -grad(p) + \varrho \cdot \vec{g} + \eta \Delta \vec{v} \quad (2.42)$$

Hier ist  $\eta$  die Viskosität des Lösungsmittels,  $p$  der Druck und  $\varrho$  die Dichte der Flüssigkeit. Der Term  $\eta \Delta \vec{v}$  beschreibt dabei die Reibung, welche an der Kugeloberfläche auftritt und erschwert die Lösung dieser Gleichung erheblich. Für eine Kugel, die von einer inkompressiblen Flüssigkeit umströmt wird lässt sich Gleichung 2.42 für kleine Strömungsgeschwindigkeiten deutlich vereinfachen.

Ob in einer Flüssigkeit Wirbel an einer Oberfläche entstehen kann über die Reynoldszahl (Re) bestimmt werden:

$$Re = \frac{\varrho v d}{\eta} \quad (2.43)$$

Für eine Kugel ist  $d$  deren Durchmesser. Für unser System bedeutet dies mit  $\varrho(H_2O, 20^\circ) = 998 \text{ kg/m}^3$ ,  $\eta(H_2O, 20^\circ) = 1,0 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  [14],  $d = 3,9 \mu\text{m}$  und

$v = 1 \mu\text{m}/\text{s}$  eine Reynoldszahl von  $Re \approx 4 \cdot 10^{-6}$ . Dies zeigt uns, dass der problematische Trägheitsterm in Gleichung 2.42 vernachlässigt werden kann, da hier das viskose Verhalten des Systems überwiegt. Somit folgt mit  $\vec{f}$  als externe Kraft welche die Flüssigkeit antreibt:

$$\vec{f} + \eta\Delta\vec{v} - \nabla\varrho = 0 \quad (2.44)$$

Nutzen wir nun noch die Kontinuitätsgleichung

$$\frac{\partial\varrho}{\partial t} + \text{div}(\varrho\vec{v}) = 0 \quad (2.45)$$

und bedenken die oben genannten Annahmen, so gilt:

$$\varrho \cdot \text{div}(\vec{v}) = 0 \quad (2.46)$$

Damit wird die Navier-Stokes-Gleichung analytisch lösbar und wir erhalten die auf eine Kugel ausgeübte Kraft  $F$ :

$$F = 6\pi\eta Rv = \gamma v \quad (2.47)$$

$\gamma$  wird als der hydrodynamische Reibungskoeffizient bezeichnet und ist mit der Diffusionskonstanten  $D$  verknüpft, wie in Gleichung 2.10 gezeigt wurde.

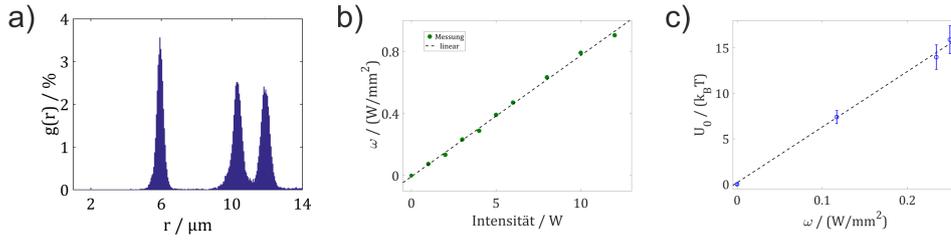
Auf diese Weise können wir dieselbe Kraft auf jedes Kolloid in unserer Monolage wirken lassen und diese über das Substratpotenzial treiben. Der Probenhalter wird mittels eines XY-Piezoverschiebetisches der Firma Physik Instrumente (PI) GmbH (Typ: P-542.2CD) bewegt, siehe Abb. 2.12 a). Der maximale Fahrweg liegt bei  $200 \mu\text{m}$  mit einer Positionsaufösung von  $0,7 \text{ nm}$ .

Da unsere Kolloide aber nicht frei in Ihrem Lösungsmittel herum schwimmen sondern sich gegenseitig beeinflussen und sich ebenso die Nähe zum Boden des Probenhalters bemerkbar macht, müssen wir diese Einflüsse berücksichtigen. Dies führt zu einem erhöhtem effektivem Reibungskoeffizienten  $\gamma_{eff} > \gamma$  in Gleichung 2.47 [88]. Die Änderung im hydrodynamischen Verhalten eines kleinen kugelförmigen Objektes in der Nähe einer Wand wurde von Brenner beschrieben in [89].

In unserem Fall bestimmen wir  $\gamma_{eff}$  über das mittlere Verschiebungsquadrat  $\langle\Delta r^2\rangle$  der freien Monolage. Dafür wird das Substratpotenzial ausgeschaltet und die treibende Kraft auf  $F = 0 \text{ fN}$  gesetzt. Nun betrachten wir die Trajektorien der Kolloide und berechnen  $\langle\Delta r^2\rangle$  als Funktion der Zeit wie es in Abbildung 2.12 b) dargestellt ist. Der effektive Reibungskoeffizient kann dann durch die Steigung eines linearen Fits an die ersten 4 bis 7 Datenpunkte berechnet werden. In diesem Anfangszeitraum von c. a. zwei Sekunden ist die Steigung der Kurve nahezu linear. Für hinreichend große Zeiten geht  $\langle\Delta r^2\rangle$  in Sättigung. Dies ist ein Maß für die Stärke der elektrostatischen Wechselwirkung zwischen den Kolloiden und zeigt deren Lokalisierung im Kristallgitter an.

## 2.7.6 Kalibration

Zu jeder gründlichen Analyse von Messdaten gehört auch eine exakte Charakterisierung der aufgezeichneten Parameter des Experimentes. Da nicht alle Messdaten direkt zugänglich sind wie zum Beispiel die Potenzialstärke, müssen wir



**Abbildung 2.13:** **a)** Paarkorrelationsfunktion zur Bestimmung der Gitterkonstanten unseres Kristalls und des Substrates. **b)** Energiedichte  $\omega$  in der Probenebene als Funktion der am gerät eingestellten Intensität. **c)** Potenzialstärke  $U_0$  als Funktion der Energiedichte  $\omega$ .

diese aus elementaren Messgrößen berechnen.

Beginnen wir mit der Skalierung unseres Systems. Zur Kalibrierung der CCD Kamera verwenden wir eine sogenannte Ronchislid oder Kalibrationsplatte. Dies ist eine Strichplatte mit einem exakt normierten Abstand zwischen den einzelnen Markierungen. Die von uns verwendete Platte besitzt 150 Linien pro mm. Mit unserer Vergrößerung beobachten wir 53 Linien auf der CCD, die sich über 1558 Pixel erstrecken. Dies führt zu einem Umrechnungsfaktor von 4,4 Pixel pro  $\mu m$ .

Die Gitterkonstante unseres kolloidalen Kristalls und des Substratpotenzials erhalten wir aus der Paarkorrelationsfunktion  $g(r)$  der jeweiligen hexagonalen Struktur, siehe Abbildung 2.13 **a)**. Dafür ermitteln wir zuerst die Positionen aller Kolloide in unserem Bild und bestimmen anschließend für jedes Kolloid die Abstände zu allen anderen. Diese stellen wir nun in einem Histogramm dar und bestimmen den Schwerpunkt des ersten Peaks. In unserem Fall nutzen wir dafür einen Gaußfit.

Werfen wir nun einen Blick auf die Kalibration der Potenzialstärke unseres Interferenzmusters. Im ersten Schritt messen wir die Intensität der Laserstrahlung direkt vor unserem Probenhalter und erhalten so einen Umrechnungsfaktor von ungefähr  $E_{eff} = 0,3$  bis  $0,4$  zwischen der eingestellten und gemessenen Leistung. Dies bedeutet, dass über 50% der Laserleistung an der Vielzahl von verwendeten optischen Komponenten verloren geht. Einen großen Teil davon macht der AOM aus, der maximal 70% der Laserleistung in die von uns benutzte erste Beugungsordnung überführt. Im zweiten Schritt bestimmen wir den Durchmesser des Lasers  $d_L$  in der Probenebene und erhalten je nach Einstellung des dritten Teleskops einen Wert von  $d_L = 1$  bis  $2$  mm. So können wir die Energiedichte  $\omega$  berechnen. In Abbildung 2.13 ist  $\omega$  als Funktion der eingestellten Laserintensität  $I_{set}$  aufgetragen mit  $d_L = 2$  mm und  $E_{eff} = 0,4$ . Die Steigung beträgt dann  $m_L = 0,078 \frac{1}{mm^2}$ .

Die Potenzialstärke  $U_0$  erhalten wir nun indem eine verdünnte Kolloidlösung über unser Substratpotenzial gezogen wird. Diese Messung wiederholen wir für verschiedene Energiedichten. Für jedes  $\omega$  erhöhen wir solange die treibende Kraft  $F$ , bis die Kolloide nicht länger vom Substrat festgehalten werden. Diese Kraft wird mit  $F_{1S}$  bezeichnet und zusammen mit der Gitterkonstanten des Substrates

$a_L$  können wir wie folgt  $U_0$  berechnen:

$$U_0 = \frac{9a_L F_{1S}}{8\pi} \quad (2.48)$$

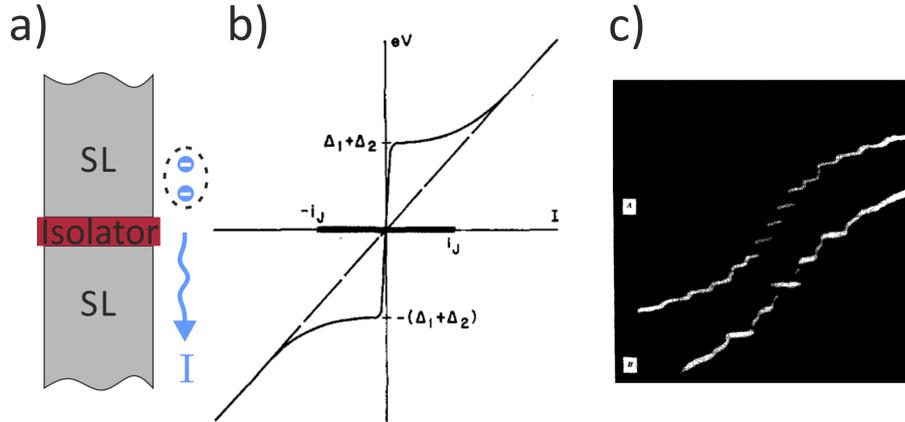
Das Ergebnis dieser Kalibrationsmessung ist in Abbildung 2.13 **c)** zu sehen. Ein linearer Fit liefert eine Steigung von  $61 \frac{k_B T \text{mm}^2}{W}$ .

## 3 Resultate

### 3.1 Shapiro Steps

In diesem Kapitel beschäftigen wir uns mit den tribologischen Eigenschaften einer kolloidalen Monolage, die über eine zeitlich variierende Potenziallandschaft getrieben wird. Ein solches Szenario entspricht einem atomar glatten Kontakt, dessen Oberflächen durch langwellige Phononen oder Ultraschallschwingungen eine zeitliche Modulation erfahren und die Wechselwirkung zwischen den Kontaktflächen keine Konstante mehr darstellt. Hierbei handelt es sich um ein nicht-lineares System, welches weit aus seinem Gleichgewichtszustand heraus betrieben wird. Solche Systeme neigen zu unerwarteten und vielfältigen Phänomenen und sind daher von hohem Interesse für die Forschung. Besonders erstaunlich ist, dass dieses Modell in seiner allgemeinen Form auch in Bereichen eine Anwendung findet, die zunächst wenig mit Reibung in Verbindung gebracht werden. Doch die kollektive Dynamik beschreibt auch Vorgänge in verschiedenen elektrischen und Quantenmechanischen Systemen, siehe 3.1.1. Dies ist auf die allgemeine Natur des Frenkel-Kontorova (FK) Modells zurückzuführen. Unser Experiment ist ideal für die Untersuchung solcher Phänomene, da wir alle Prozesse die in der Kontaktfläche ablaufen in Echtzeit beobachten können.

Wird eine Monolage über ein Substrat mit periodisch modulierter Stärke getrieben, so kann es zu einer Synchronisation zwischen der Bewegung der Partikel und dieser Modulation kommen [90]. Auf diese Weise kann die Monolage sich in der Periodendauer  $T_\omega$  der Modulation nur um ein ganzzahliges Vielfaches der Gitterkonstanten  $a_L$  propagieren. Dies führt zu einer teilweise von der treibenden Kraft  $F$  unabhängigen Geschwindigkeit  $v_d$  der Monolage, was sich in einer ausgeprägten Stufenstruktur in der Kraft-Geschwindigkeitskurve äußert. Ein Teil der durch  $F$  an den Kristall geleisteten Arbeit führt zu einer Deformation des Kristallgitters, die topologische Solitonen erzeugen und zu einem zusätzlichen Propagationsmechanismus führen [31]. Diese beiden Mechanismen konkurrieren miteinander und können sogar zur Unterdrückung des jeweils anderen führen. Dieses Szenario entspricht einem erweiterten FK-Modell, bei dem die Potenzialtiefe mit der Frequenz  $\omega$  oszilliert, wie wir es in diesem Experiment umsetzen. Ein etwas anderer Ansatz, der zu einem ähnlichen Resultat führt, ist die treibende Kraft zu modulieren anstelle von der Potenzialstärke. Auch hier kommt es zu einer Synchronisation zwischen der Teilchenbewegung und der modulierten Kraft [91].



**Abbildung 3.1:** a) Schematische Darstellung eines Josephson-Kontaktes (JK). Hier mit einem Isolator als Trennschicht zwischen den beiden Supraleitern (SL). b) Typische Strom-Spannungs-Kennlinie eines JKs. [93] c) Tunnelstrom  $I$  als Funktion der Spannung  $U$  in einem JK unter dem Einfluss eines externen elektromagnetischen Wechselfeldes. [94]

### 3.1.1 Theorie und Motivation

Wie bereits erwähnt ist das FK-Modell ein häufig genutztes Modell in der Tribologie, aber auch in anderen Bereichen der Physik. Ein Beispiel für die Nützlichkeit und Vielfältigkeit des FK-Modells zeigt sich in einer speziellen Anwendung des Josephson Effekts [92]. Hierbei handelt es sich um das Tunneln von Cooper-Paaren durch eine wenige  $nm$  dünne Trennschicht zwischen zwei Supraleitern (SL), wie es in der Abbildung 3.1 a) gezeigt ist. Ein Beispiel für eine übliche Strom-Spannungs-Kennlinie eines solchen Kontaktes ist in Abbildung 3.1 b) gezeigt. Markant ist die Sättigung der Spannung  $U_e$  bei kleinen Strömen  $I_e$ , sowie der zwischen den Grenzwerten  $-I_J$  und  $I_J$  alternierende kritische Strom  $I_c$  für  $U_e = 0 \text{ eV}$ .

Für einen JK kann der Strom über folgende Gleichung berechnet werden [95]:

$$I_e(t) = I_c \sin(\delta) \quad (3.1)$$

Hier ist  $\delta = \phi_1 - \phi_2$  die Phasendifferenz in den Wellenfunktionen des Cooper-Paares in den beiden Supraleitern. Für diese gilt mit dem magnetischen Flussquantum  $\Phi_0 = \frac{h}{2e}$ :

$$\frac{\partial \delta}{\partial t} = \frac{2eU_e}{\hbar} = 2\pi U_e / \Phi_0 \quad (3.2)$$

Betrachten wir zuerst den DC Josephson-Effekt mit einer konstanten Spannung, ohne die Einwirkung eines äußeren Feldes, dann oszilliert die Phasendifferenz mit der Frequenz  $f_0$ :

$$f_0 = \frac{2eU_0}{\hbar} \quad (3.3)$$

Somit folgt für Gleichung 3.1:

$$I_e(t) = I_c \sin(f_0 t) \quad (3.4)$$

Hieran sehen wir, dass  $I_e(t)$  mit einer hohen Frequenz von  $f_0 = U_0 \cdot 483,6 \text{ GHz/mV}$  schnell oszilliert. Dies führt zu einer Emission von Elektromagnetischer (EM) Strahlung im Mikrowellenbereich, welche leicht zu detektieren ist. Eine Folge der Dämpfung, welche die Cooper-Paare erfahren, wenn sie die Barriere überwinden. Mit einer ähnlichen Überlegung verstehen wir auch, warum JKs empfindlich auf äußere Felder reagieren und besonders präzise Detektoren für diese sind.

Der AC Josephson-Effekt unterscheidet sich vom vorherigen Fall dadurch, dass wir nun eine zusätzliche mit der Frequenz  $f$  oszillierende Spannung  $U_e(t)$  an den JK anlegen. Dadurch ändert sich Gleichung 3.1 wie folgt:

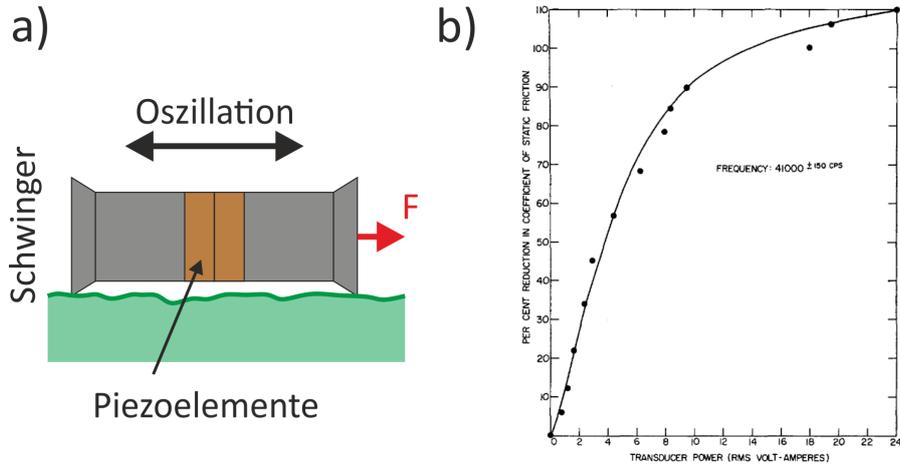
$$I_e(t) = I_c \left[ \sin(\delta_0 + f_0 t) + \frac{2eU_e}{\hbar f} \sin(ft) \cdot \cos(\delta_0 + ft) \right] \quad (3.5)$$

Der erste Term beschreibt wie zuvor einen oszillierenden Strom, der im zeitlichen Mittel verschwindet. Der zweite Term jedoch kann unter der Bedingung  $m \cdot f = f_0$  mit  $m \in \mathbb{N}$  einen endlichen Wert größer Null erreichen. Dies führt zu einem sprunghaften Anstieg von  $I_e(t)$  und wird als Shapiro Spikes bezeichnet. Ein ähnlicher Effekt tritt auf, wenn ein JK im DC Modus betrieben wird aber einem äußerem elektromagnetischem Wechselfeld ausgesetzt wird. In diesem bildet sich eine charakteristische stufenförmige Kennlinie aus, welche als erstes von Shapiro im Jahr 1962 nachgewiesen wurde. Ein Beispiel für eine solche Kurve ist in Abb. 3.1 c) dargestellt und wird auch als Devils-Staircase bezeichnet. Die Stufen in dieser Kurve werden nach ihrem Entdecker benannt, Shapiro Steps. Sowohl die Stufen als auch die Spikes können als eine Art der Synchronisation betrachtet werden. Bei der sich das System mit einer oszillierenden treibenden Kraft synchronisiert, wenn dessen Eigenfrequenz ein ganzzahliges Vielfaches von  $\frac{2e}{\hbar}$  entspricht. Solche Phänomene treten oft in Systemen mit zwei konkurrierenden Frequenzen auf. Dies ist auch in unserem Experiment der Fall in dem die Periodizität des Substratpotenzials  $a_L$  mit der Modulationsfrequenz der Stärke dieses Potenzials konkurriert. Hier sehen wir die elegante Verknüpfung von zwei völlig unterschiedlichen Systemen, die mit einem gemeinsamen einfachen Modell charakterisiert werden können.

## Nanotribologie und Ultraschall

Es ist allgemein bekannt, dass die Reibung zwischen zwei Körpern durch Vibrationen und Schwingungen der Kontaktflächen beeinflusst werden kann [96] [97]. Meisten wird die Reibung auf diese Weise reduziert, doch auch der andere Fall ist bekannt und wird im Falle des Ultraschallschweißens industriell im Bereich der Mikroelektronik genutzt.

Für makroskopische Objekte lassen sich diese Zusammenhänge an einem Stab



**Abbildung 3.2:** a) Schematische Darstellung eines oszillierenden Stabes auf einer rauhen Oberfläche. Die treibende Kraft  $F$  führt zu einer Bewegung parallel zur Schwingungsrichtung. b) Relative Reduktion des Haftreibungskoeffizient  $\mu_H$  als Funktion der Vibrationsamplitude (transducer power) [98]

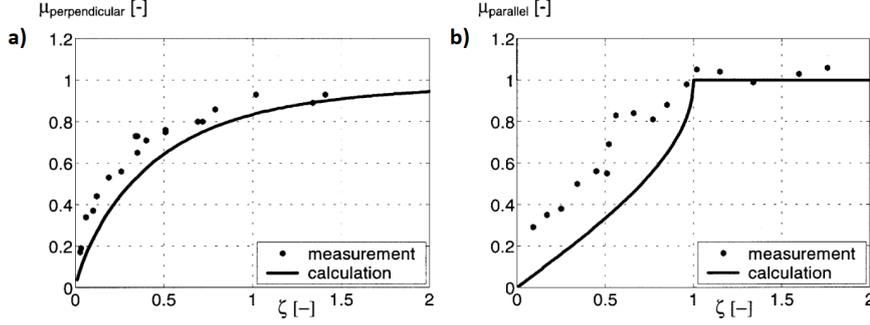
untersuchen, der an zwei Punkten auf einer Oberfläche aufliegt und dessen Länge durch eingebaute Piezoelemente oszillieren kann, siehe Abb. 3.2 a). Eine erste bemerkenswerte Beobachtung ist, dass sich die Haftreibung durch eine hinreichend große Oszillationsamplitude für viele Materialien fast vollständig unterdrücken lässt. Eine typische Messung der relativen Änderung des Haftreibungskoeffizient  $\mu_H$  hervorgerufen durch eine vibrierende Auflage ist in Abb. 3.2 b) gezeigt [98]. Hier ist die Amplitude als Ausgangsleistung des Transducers  $A_T$  aufgetragen, und zeigt, dass  $\mu_H$  für  $A_T > 18 \text{ Watt}$  bei einer Frequenz von  $40 \text{ kHz}$  gegen Null geht. Auch für den Fall der Gleitreibung ist das Verhalten von  $\mu_G$  bekannt. Die Reibkraft  $F_{Rs}$  kann aus der Frequenz  $f$  der Oszillation und der daraus resultierenden Geschwindigkeit der Kontaktpunkte  $v_0 = \frac{1}{2}l \cdot f$ , berechnet werden. Zusätzlich benötigen wir die Normalkraft  $F_N$ , welche auf den Stab einwirkt, und die Geschwindigkeit dessen Schwerpunktes  $\hat{v}$ . Da wir hier zwei Geschwindigkeiten miteinander verglichen werden, nennen wir  $v_0$  die Oszillationsgeschwindigkeit und  $\hat{v}$  die Translationsgeschwindigkeit. Schwingt der Stab senkrecht zu seiner Bewegungsrichtung und definieren wir  $\zeta = \hat{v}/v_0$ , so gilt [99]:

$$F_{Rs} = \frac{\mu_G F_N}{\sqrt{1 + (\zeta \cos(ft))^2}} = \mu_{eff} F_N \quad (3.6)$$

Wir sehen, dass  $F_{Rs}$  immer kleiner ist als die Reibkraft ohne Vibration  $F_R$ . Oszilliert der Stab parallel zu seiner Bewegungsrichtung, so gilt:

$$F_{Rp} = \begin{cases} \frac{2\mu_G F_N}{\pi} \arcsin(\zeta), & \text{für } \zeta < 1 \\ \mu_G F_N, & \text{für } \zeta \geq 1 \end{cases} \quad (3.7)$$

Dies zeigt uns, dass wir zwei Fälle unterscheiden müssen. Im ersten ist die Translationsgeschwindigkeit kleiner als die Oszillationsgeschwindigkeit und  $F_{Rp}$  wird



**Abbildung 3.3:** Reibungskoeffizient  $\mu$  als Funktion der normierten Geschwindigkeit  $\zeta$  unter Einwirkung einer Vibration **a)** senkrecht und **b)** parallel zur Bewegungsrichtung [96]

von der Vibration reduziert. Ist  $\hat{v}$  aber größer als  $v_0$  so erhalten wir das gewöhnliche Coulombsche Reibungsgesetz. In Abbildung 3.3 **a)** und **b)** sehen wir einen Vergleich zwischen den theoretischen Vorhersagen und experimentell bestimmten Werten für die beiden oben dargestellten Situationen. Auch wenn eine gewisse Abweichung offensichtlich ist, so stimmen Theorie und Experiment qualitativ gut überein.

Im oben betrachteten makroskopischen Bereich ist die Gleitreibungskraft nichts anderes als der zeitliche Mittelwert der zwischen dem Körper und seiner Unterlage wirkenden Tangentialkraft. Für hinreichend kleine Kontaktfläche sind die oben gezeigten Gleichungen nicht mehr anwendbar und wir müssen unsere Betrachtung präzisieren. Dennoch lassen sich auch für diese Größenordnungen gewisse Vorhersagen formulieren. Zur Vereinfachung betrachten wir in diesem Fall das Prandtl-Thomlinson-Modell und modifizieren es analog wie im vorherigen Beispiel. Wir nehmen zwei Massepunkte mit der Gesamtmasse  $m$ , deren Abstand  $l$  sich zeitliche ändert:

$$l(t) = l_0 \Delta l \sin(ft) \quad (3.8)$$

Hier ist  $\Delta l$  die Abstandsänderung der Massen mit einem Gleichgewichtsabstand von  $l_0$ . Beide Partikel befinden sich in einem periodischen Potenzial und die dazugehörige Bewegungsgleichung lautet:

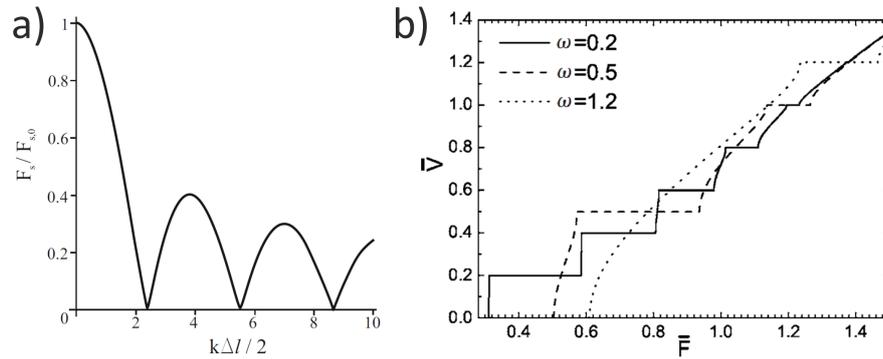
$$m\ddot{x} = F - \eta\dot{x} - \frac{F_0}{2} [\sin(k(x - l(t)/2)) + \sin(k(x + l(t)/2))] \quad (3.9)$$

Um die Massen zu Bewegen muss eine Kraft  $F_{s,0}$  an diese angreifen:

$$F_{s,0} = F_0 |\cos(kl_0/2)| \quad (3.10)$$

$F_0$  kann als die Haftreibungskraft für den Fall ohne Vibration angesehen werden und  $k = \frac{2\pi}{a_L}$  ist der reziproke Gittervektor des Potenzials. Wenn wir nun die Gleichung 3.9 über die Periode  $T_\omega = 2\pi/f$  mitteln erhalten wir:

$$m\langle\ddot{x}\rangle = F - \eta\langle\dot{x}\rangle - \frac{F_0}{2} \langle\sin(k(x - l(t)/2)) + \sin(k(x + l(t)/2))\rangle \quad (3.11)$$



**Abbildung 3.4:** a) Statische Reibungskraft als Funktion der Amplitude [100]  
b) Mittlere Geschwindigkeit einer Kette als Funktion der treibenden Kraft für verschiedene Oszillationsfrequenzen [101].

Unter der Bedingung das die Massen ihren gemeinsamen Schwerpunkt  $x_0$  nicht verlassen, können wir annehmen, dass  $\langle \ddot{x} \rangle$  und  $\langle \dot{x} \rangle$  gleich Null sind und  $x(t)$  wird zu  $x_0$ . Somit ergibt sich aus Gleichung 3.11:

$$\begin{aligned}
F &= \frac{F_0}{2} \langle \sin(k(x_0 - (l_0 + \Delta l \sin(ft))/2)) + \sin(k(x_0 + (l_0 + \Delta l \sin(ft))/2)) \rangle \\
&= F_0 \sin(kx_0) \cdot \langle \cos(k(l_0 + \Delta l \sin(ft))/2) \rangle \\
&= F_0 \sin(kx_0) \cdot \left( \cos(kl_0/2) \left\langle \cos\left(\frac{k\Delta l}{2} \sin(ft)\right) \right\rangle - \sin(kl_0/2) \left\langle \sin\left(\frac{k\Delta l}{2} \sin(ft)\right) \right\rangle \right)
\end{aligned} \tag{3.12}$$

Dieses Ergebnis lässt sich weiter vereinfachen, da der Mittelwert des zweiten Gliedes gleich Null ist und auf das erste Glied folgende Entwicklung angewendet werden kann:

$$\cos(\zeta \sin(\varphi)) = J_0(\zeta) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} J_{2n}(\zeta) \cos(2n\varphi) \tag{3.13}$$

Wobei  $J_n$  die Besselfunktion n-ter Ordnung ist.

$$J_n(\zeta) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\pi} \cos(\zeta \sin(\phi) - n\phi) \tag{3.14}$$

Daraus folgt:

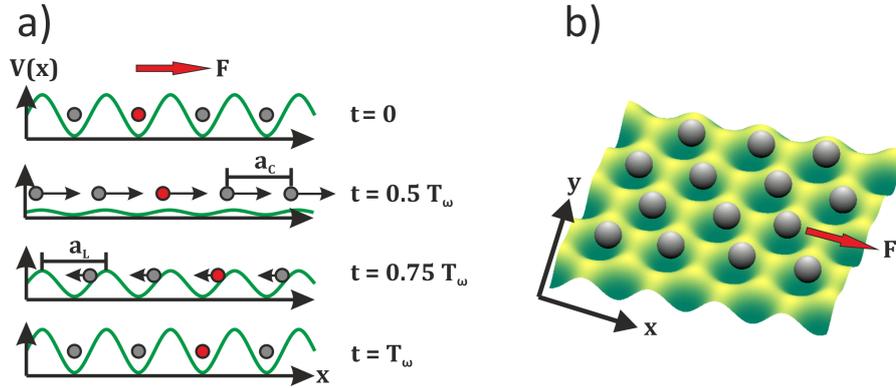
$$F = F_0 \sin(kx_0) \cos(kl_0/2) J_0(k\Delta l/2) \tag{3.15}$$

Die Haftreibung  $F_h$  ergibt sich aus dem Betrag von  $F$ :

$$F_h = F_0 \cdot |\cos(kl_0/2) J_0(k\Delta l/2)| = F_{h,0} |J_0(k\Delta l/2)| \tag{3.16}$$

Dieses Ergebnis ist in dem Graph 3.4 a) dargestellt.

Die statische Reibung nimmt also Ihr erstes Minimum für  $k\Delta l/2 = 2,405$  an,



**Abbildung 3.5:** a) Schematische Darstellung der Synchronisation in diesem Experiment zu unterschiedlichen Zeitpunkten der Modulation. b) Ein kolloidaler Kristall wird durch eine äußere Kraft über eine Potenziellandschaft gezogen.

oder wenn  $\Delta l \approx 0,77a_L$  ist.  $a_L$  ist hier die Gitterkonstante des eindimensionalen Potentials. Ist dieser Wert erreicht, so setzt die Bewegung der Massen ein und wir kommen in den Bereich der Gleitreibung. Dieser Effekt tritt nicht nur in diesem einfachen Modell auf, sondern lässt sich in modifizierter Form auf das FK Modell anwenden und behält seine Gültigkeit auch auf ausgedehnten Kontaktflächen. Dieses Szenario wurde unter verschiedenen Bedingungen durch Computersimulationen untersucht, sowohl für das ein- als auch das zweidimensionale FK Modell [101] [90] [102] [103]. Hier wird die Vibration entweder durch eine oszillierende treibende Kraft oder durch eine zeitliche Modulation der Potenzialstärke repräsentiert und beide Fälle verhalten sich qualitativ ähnlich. Betrachten wir im Anschluss das Modell eines kolloidalen Kristalls auf einem modulierten Potenzial.

In diesem Fall kann es zu einer Synchronisation zwischen der Bewegung der Monolage und der Frequenz der Modulation kommen. Dies zeigt sich in einem deutlichen stufenförmigen Anstieg der mittleren Geschwindigkeit aller Partikel mit zunehmender Kraft, wie in Abb. 3.4 b) gezeigt wird. Der Grund hierfür liegt darin, dass die Partikel sich nur eine begrenzte Zeit  $\Delta t$  lang bewegen können bevor sie wieder vom Potenzial festgehalten werden. Ist die zurückgelegte Distanz  $\Delta x$  nach der Periodendauer  $T = 2\pi/\omega$  kleiner als ein ganzzahliges Vielfaches  $n$  der Gitterperiodizität  $\Delta x < n \cdot a_L$ , so werden diese in das vorherige Potenzialminimum zurück gezwungen. Dieser Vorgang wird in Abbildung 3.5 a) schematisch für ein eindimensionales System dargestellt. Zum Zeitpunkt  $t = 0$  sind alle Kolloide in ihren Potentialmulden gefangen und können sich nicht bewegen. Der nächste Schritt zeigt das System bei minimaler Potenzialstärke ( $t = 0.5T_\omega$ ) und die Kolloide erreichen ihre maximale Geschwindigkeit. Anschließend nimmt die Potenzialbarriere wieder zu und stoppt die Bewegung der Teilchen ( $t = 0.75T_\omega$ ), bis diese letztendlich sogar ihre Bewegungsrichtung umkehren. Nach einer vollen Periode sitzt jedes Kolloid wieder im Zentrum eines Minimums. Im gezeigten Beispiel führt dies zu einer gesamten Positionsänderung von einer Gitterkonstanten. Dadurch ergibt sich eine mittlere Partikelgeschwindigkeit von  $v_d = n \cdot a_L/T_\omega$ .

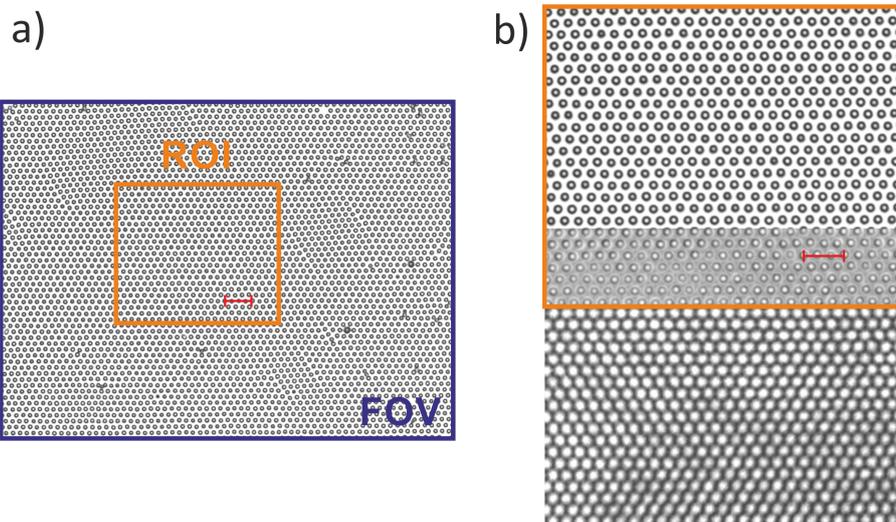
Für weiche Kristalle deren Struktur deformiert werden kann, können diese Stufen aufweichen und die Geschwindigkeit steigt eher kontinuierlich zwischen den Stufen an. Dies können wir erklären, indem die benötigte Energie zur Anregung von Phononen aber auch von Solitonen mit abnehmender Wechselwirkungsenergie kleiner wird. Dadurch können thermische Fluktuationen ausreichen, damit ein unter Stress stehender Kristall topologische Solitonen generiert, die einen zusätzlichen Transportmechanismus darstellen. So wird die Synchronisation gestört und zum Teil unterdrückt.

### 3.1.2 Experiment

Kommen wir nun zu der genauen Fragestellung des Experimentes. Welche Auswirkung hat eine zeitlich modulierte Wechselwirkung zwischen zwei Kontaktflächen auf die Eigenschaften der Reibung? Um diese Frage zu beantworten, erstellen wir eine Potenziallandschaft wie in Abschnitt 2.7.3 beschrieben und variieren die Ausgangsleistung des Lasers mit einer Sinusfunktion. Für die verschiedenen Experimente verwenden wir Modulationsfrequenzen von  $f = 5 - 25$  *mHz*. Dadurch wird die Amplitude  $U(x, y, t)$  des Potentials wie folgt moduliert:

$$U(x, y, t) = [V_0 + \Delta V \cos(2\pi t/T_\omega)]V(\vec{r}) \quad (3.17)$$

Mit der statischen Potenziallandschaft  $V(\vec{r})$ , wie sie in Gleichung 2.32 definiert wurde. Die Modulation besteht aus einem konstantem Offset  $V_0$  und einem zeitlich variablen Teil mit der Modulationsamplitude  $V$ . Der absolute räumliche und zeitliche Maximalwert dieses Potentials wird mit  $U_{max}$  bezeichnet. Diese aus Licht geformte Landschaft repräsentiert unsere erste Kontaktfläche. Die Zweite besteht aus einem zweidimensionalen Kristall arrangiert aus ladungsstabilisierten Kolloiden. Diese haben einen Durchmesser von  $3,9 \mu m$  und eine Polydispersität von  $2,7 \%$ . Deren Oberfläche ist mit Carboxylgruppen (COOH) funktionalisiert, sodass wir über die Ionenkonzentration im Lösungsmittel die Stärke der Paarwechselwirkung einstellen können. So können wir Kristalle mit einer Gitterkonstanten  $a_C$  zwischen  $5,5$  und  $7 \mu m$  untersuchen. Unter dem Einfluss des Potentials richtet sich der Kristall entsprechend den Hauptsymmetrieachsen des Potentials aus. Vor dem Start einer Messung wird das Substrat für ungefähr 10 Minuten moduliert mit  $V = V_0$  und  $F = 0$  *fN*, damit der Kristall potenzielle Verspannungen durch die erzwungene Neuausrichtung abbauen kann, (siehe Abb. 3.4 **b**). Zudem wird vor jeder Messung ein bis fünf Minuten das Substratpotential abgeschaltet und gewartet, damit das System in seinen Gleichgewichtszustand (Steady State) zurückkehren kann. Die Kraft  $F$  die den Kristall über das Potenzial treibt wird durch die Translation (in x-Richtung) des Probenhalters generiert. Die durch den Laser fixierten Kolloide erfahren dadurch eine Stokesche Kraft  $F = \gamma_{eff} \cdot v_{zelle}$  in Bewegungsrichtung der Zelle. Im Verlauf einer Messung wird die Hellmazelle mehrfach vor und zurück gefahren, da die maximale Fahrdistanz  $100 \mu m$  beträgt. Bei einer typischen Geschwindigkeit des Verschiebetisches von  $500$  *nm/s* ändert sich die Richtung von  $F$  alle



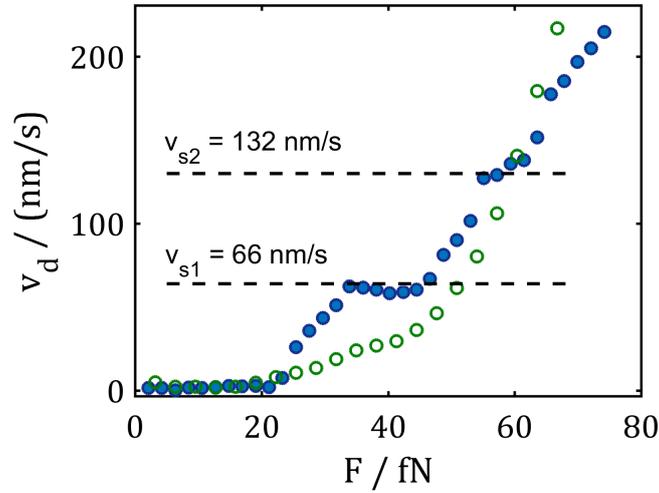
**Abbildung 3.6:** a) Aufnahme eines kolloidalen Kristalls, wie er für eine typische Messung verwendet wird. Das orange Quadrat zeigt den Auswertebereich (ROI: region of interest). Der rote Skalensymbol hat eine Länge von  $24 \mu\text{m}$  b) Vergrößerte Darstellung des ROI mit teilweiser Überlagerung eines Bildes von dem Substratpotenzial.

200 Sekunden.

In Abbildung 3.6 a) ist ein typischer kolloidaler Kristall mit einer Gitterkonstante von  $a_L = 6 \mu\text{m}$  abgebildet, wie er für die Messungen verwendet wird. Dies ist der gesamte Messbereich, auch field of view (FOV genannt) und enthält um die dreitausend Teilchen. Es sind einige Defekte zu sehen in der Form von überzähligen Kolloiden (Dublettes und Tripletts) aber auch Leerstellen, in denen ein Partikel im Gitter fehlt. Dies lässt sich nicht ganz vermeiden, aber für eine erfolgreiche Messung sollten möglichst wenige Defekte im Kristall vorhanden sein. Der orange Bereich stellt den Auswertebereich dar (region of interest: ROI). Dieser kann frei im FOV gewählt werden, doch gibt es einige sinnvolle Kriterien zu bedenken. Zum einen sollte ein Bereich mit möglichst wenigen Defekten gewählt werden und mehr als 200 Kolloide enthalten. Zudem sollte dieser möglichst mittig im FOV liegen, da so alle Kolloide während der gesamten Messdauer analysiert werden können, ohne dass diese den Sichtbereich verlassen. Zudem verringern wir so die Wahrscheinlichkeit, dass größere Fehlstellen von außerhalb des FOV unsere Messung stören. In Abbildung 3.6 b) wird die teilweise Überlagerung des Kristalls aus Abb. 3.6 a) mit dem Substratpotenzial gezeigt. Für ein kommensurables System sind die Gitterkonstanten von beiden identisch ( $a_C = a_L$ ) und jedes Kolloid passt genau in ein Intensitätsmaximum.

### 3.1.3 Ergebnisse

Wir beginnen mit einem vollständig kommensurablen System, in dem die Gitterkonstanten von Kristall und Substrat identisch sind ( $a_S = a_L = 6,0 \mu\text{m}$ ).



**Abbildung 3.7:** Mittlere Geschwindigkeit  $v_d$  der Kolloide als Funktion der Zugkraft  $F$  auf einem kommensurablen Substrat mit  $a_S = a_L = 6,0 \mu m$  (grünen Kreise: statische Messung, blauen Punkte: modulierte Messung). Die gestrichelten Linien zeigen die berechneten Geschwindigkeiten ( $v_{s1,2}$ ) für die Synchronisation.

Beide Strukturen besitzen eine hexagonale Geometrie. Abbildung 3.7 zeigt die mittlere Geschwindigkeit  $v_d = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N v_i$  der Kolloide im Messbereich als Funktion der treibenden Kraft  $F$ . Die Fehlerbalken für  $v_d$  entsprechen der Größe der gezeigten Datenpunkte und werden nicht separat dargestellt. Wir vergleichen ein System mit zeitlich konstanter Potenzialstärke (grüne Kreise: statische Messung) und eines mit einem modulierten Potenzial (blaue Punkte: modulierte Messung) und sehen einen markanten Unterschied in den beiden Kurven. Die statische Messung zeigt eine typische Depinning-Kurve, wie sie auch schon in früheren Experimenten [31][104] und Simulationen [105] beobachtet wurde. Für diese Messung wurde eine Potenzialstärke von  $V_0 = 5.6 k_B T$  verwendet. Nach einem anfänglich leichten Anstieg der Geschwindigkeit ab  $F = 22 fN$  in dem nur wenige Kinks die Monolage in Bewegung setzen, nimmt der Gradient in der Kurve bei weiter steigendem  $F$  rasant durch die zunehmende Anzahl an Kolloide in den Kompressionszonen zu. Dies ist der Übergang von einem immobilen zu einem gleitenden Kristall. Diese beiden Zonen werden auch das gepinnte Regime ( $F < F_H$ ) und das ungepinnte Regime ( $F > F_H$ ) genannt, siehe Kapitel 1.2.1.

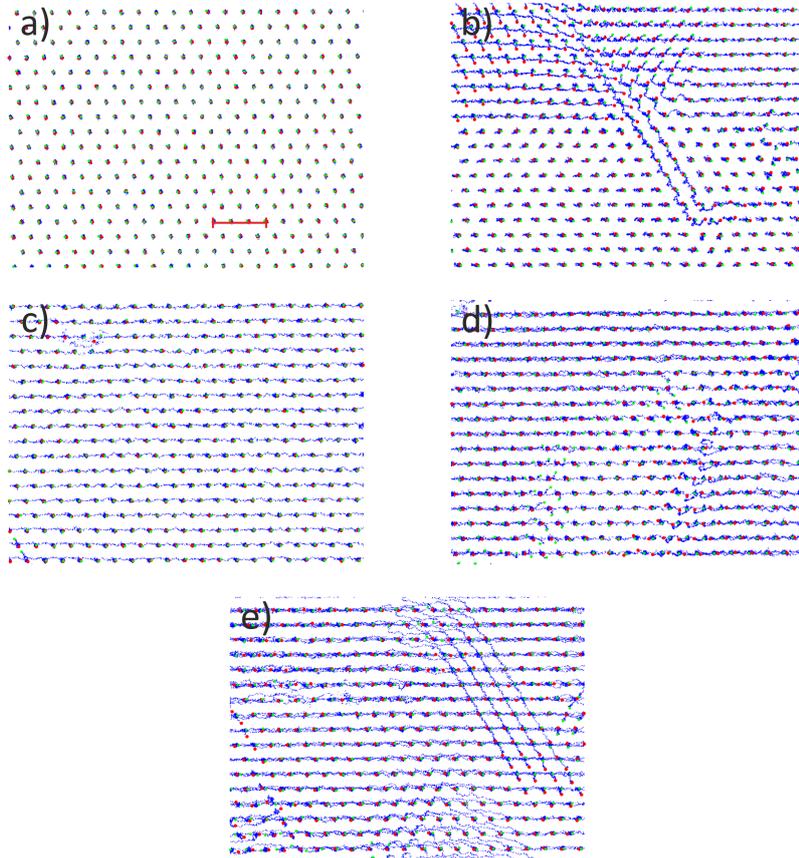
Ein deutlich komplexeres Bild zeigt der Fall des modulierten Systems. In dieser Messung wurde das Substratpotenzial mit einer Frequenz von  $f = 11 mHz$  oder  $T_\omega = \frac{1}{f} = 90,9 s$  moduliert. Für die Amplitude wurden folgende Werte  $V_0 = 23 K_B T$  und  $\Delta V = 21 k_B T$  festgelegt. Die Einstellungen für das Potenzial wurden so gewählt, dass wir eine gute Übereinstimmung mit der statischen Messung erhalten. Es ist leicht einzusehen, dass im ersten Fall die Monolage deutlich früher depinnen wird. Denn wie wir im Abschnitt 3.1.1 gesehen haben, ist zu erwarten, dass die Modulation des Potenzials die Haftreibung reduzieren wird. Hier sehen wir wie der zu Beginn schnelle Anstieg von  $v_d$  durch eine Stufe unterbrochen

wird. Diese manifestiert sich in dem Kraftintervall  $33 fN < F < 47 fN$ , darüber hinaus lassen sich keine weiteren Stufen erkennen und  $v_d$  steigt nahezu linear an.

Solche Stufen wurden bereits in ähnlichen Systemen von verschiedenen Gruppen in MD Simulationen beobachtet [90] [106] und kann wie oben beschrieben durch eine Synchronisation der Partikelbewegung mit der Oszillation des Potentials erklärt werden, siehe Abb. 3.5 a). Diese Stufen ergeben sich aus der von den Kolloiden zurückgelegten Distanz  $\Delta x$  innerhalb der Periodendauer  $T_\omega$ . Da sie bei jeder Oszillation nur ein vielfaches der Gitterkonstanten  $n \cdot a_L$  wandern können. Dadurch erwarten wir, dass die Stufen eine bestimmte Geschwindigkeit  $v_s$  erreichen:

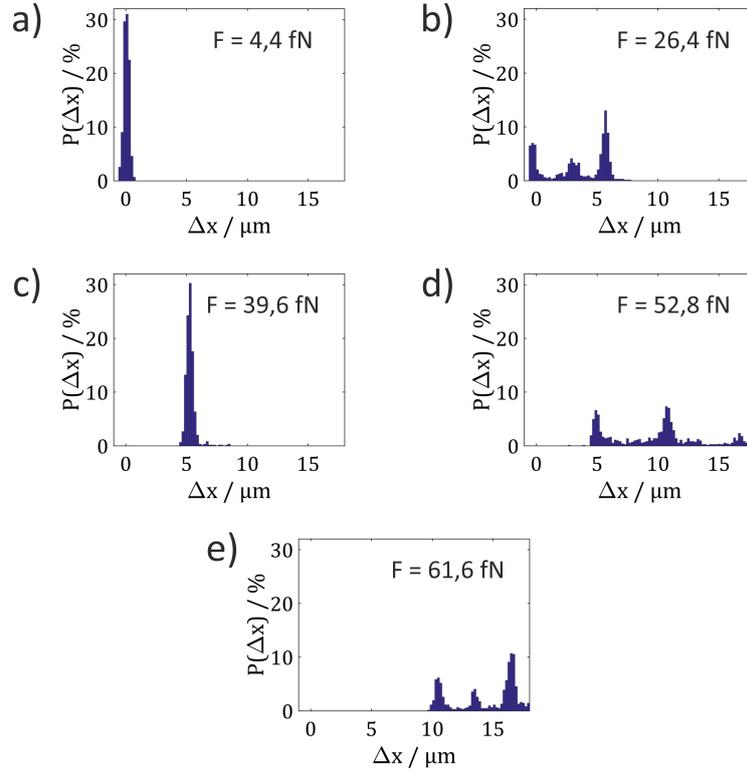
$$v_d = v_{s,n} = \frac{na_L}{T_\omega} \quad (3.18)$$

Wenn wir  $v_{s,n}$  für die ersten beiden Stufen mit den Parametern aus unserem



**Abbildung 3.8:** a) bis e) Trajektorien der Kolloide (blaue Punkte) für verschiedene Zugkräfte  $F = 4,4 / 26,2 / 39,6 / 52,8 / 61,6 fN$ . Start und Ende der Trajektorie eines Kolloids wird durch grüne und rote Punkte gekennzeichnet. Der rote Skalenbalken ist  $24 \mu m$  lang.

Experiment berechnen erhalten wir  $v_{s,1} = 66 nm/s$  und  $v_{s,2} = 134 nm/s$ . Diese sind in Abbildung 3.7 als gestrichelte horizontale Linien eingezeichnet und die



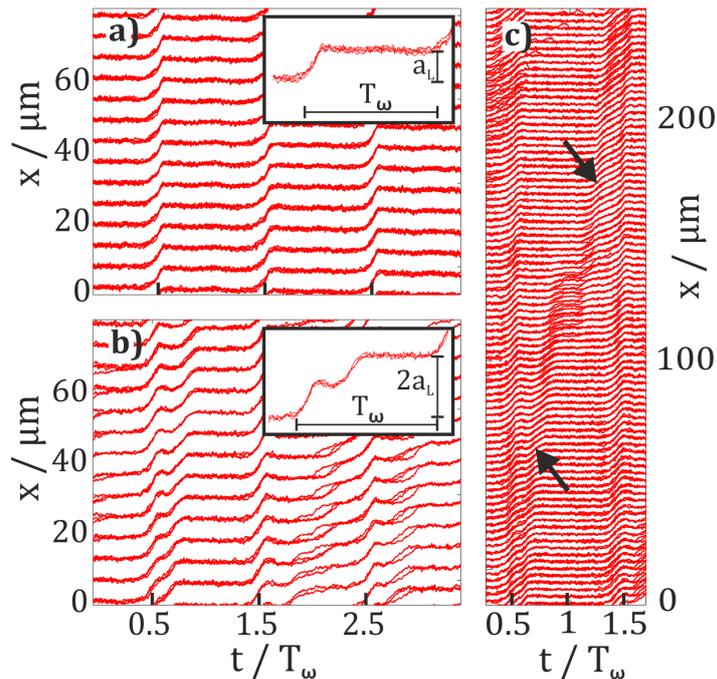
**Abbildung 3.9:** a) bis e) Histogramme der Partikelsprungweite  $\Delta x$  pro Periode  $T_\omega$  für verschiedene Zugkräfte  $F = 4,4/ 26,2/ 39,6/ 52,8/ 61,6 \text{ fN}$ .

erste Stufe stimmt mit diesem Wert gut überein. Im Gegensatz zu den meisten numerischen Simulationen sind die Stufen für  $n > 1$  aber kaum zu beobachten.

Um diese Beobachtung des Experimentes zu verstehen, betrachten wir die Bewegung der Kolloide für verschiedene Zugkräfte im Detail. Dafür schauen wir uns die Trajektorien der Partikel für einige ausgewählte Kräfte in Abbildung 3.8 an. Es wird jeweils der Zeitraum einer vollen Periode beginnend mit maximaler Potenzialstärke dargestellt. Beginnen wir bei kleinem  $F = 4,4 \text{ fN}$ . Hier sind alle Kolloide gepinnt und keine Bewegung außer thermischen Fluktuationen ist möglich (Abb. 3.8 a)). Die grünen und roten Punkte stellen dabei den Start- und Endpunkt der Trajektorien aller Kolloide dar. Die blauen Punkte stehen für die Positionen, an denen sich das Kolloid zwischen dem Start und Ende einer Oszillation befindet. Betrachten wir die Trajektorien innerhalb der ersten Stufe, so sehen wir eine sehr gleichmäßige, simultane Propagation der Kolloide in Richtung von  $F$  (Abb. 3.8 c)). Während dieses Bild für alle Zugkräfte der ersten Stufe identisch aussieht, so zeigt sich ein völlig anderes für die Bewegung der Monolage außerhalb der Stufe. Abbildung 3.8 b) stellt die Dynamik des Systems im Übergang vom gepinnten Zustand zur ersten Stufe dar. Hier ist keine simultane Bewegung zu beobachten, sondern die Geschwindigkeiten sind räumlich sehr unterschiedlich. Im unteren Teil des Kristalls bleiben die Kolloide gepinnt, während im oberen eine unregelmäßige Translation einsetzt. Zudem beobachten wir sogar einzelne Partikel, die sich nicht gradlinig in x-Richtung

bewegen, sondern auch eine Geschwindigkeitskomponente in  $y$ -Richtung aufweisen. Dieser Effekt lässt sich als eine Ausweichbewegung verstehen, welche durch langsamere Kolloide in Propagationsrichtung der mobilen Kolloide imitiert wird. Ein ähnliches Muster zeigt sich für Zugkräfte oberhalb der ersten Stufe, siehe Abbildung 3.8 **d)** und **e)**. Auch wenn hier alle Kolloide mobil sind, so ist die Geschwindigkeit  $v_p$  der einzelnen Partikel sehr individuell. Zudem kann es hier wie auch in Abbildung 3.8 **b)** zu einem Ausscheren einzelner Kolloide kommen. Dieses Ausweichverhalten kann durch mehrere Ursachen ausgelöst werden. Zum einen werden thermische Fluktuationen dazu führen, dass einige Kolloide ihre Potenzialbarriere überwinden können, während andere dadurch zurückgehalten werden. Dies allein würde aber nur zu einer leichten Dichteviation innerhalb des Kristalls führen. Bedenken wir aber zusätzlich, dass die Intensität des Interferenzmusters leichte räumliche Schwankungen aufweist (bis zu 10%) und der Kristall über einige Fehlstellen verfügt, so wird dieses Ausweichen einzelner Kolloide durch das Zusammenspiel verschiedenen Störungen verständlich. Interessant ist, dass sobald ein Partikel eine solche Ausweichbewegung durchführt, dies zu einer Kettenreaktion bei benachbarten Partikeln führt.

Da der Kristall offenbar mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten propagieren



**Abbildung 3.10:** Trajektorien der Kolloide in  $x$ -Richtung als Funktion der Zeit  $t$ . **a)** Mittig auf der ersten Stufe. **b)** Kurz nach der ersten Stufe. Die Insets zeigen eine Vergrößerung einer einzelnen Trajektorie begrenzt auf den Zeitraum einer Periodendauer  $T_\omega$ . **c)** Erweiterung der Abb. **b)** über mehrere Kolloide. Die schwarzen Pfeile zeigen auf einen Kink.

kann, betrachten wir uns im Folgenden die Verteilung  $P(\Delta x)$  für die Sprungweite  $\Delta x$  der Kolloide in  $x$ -Richtung innerhalb einer Periode für die oben dargestellten Trajektorien an, siehe Abbildung 3.9. Wir betrachten hier  $\Delta x$ , da dies eine

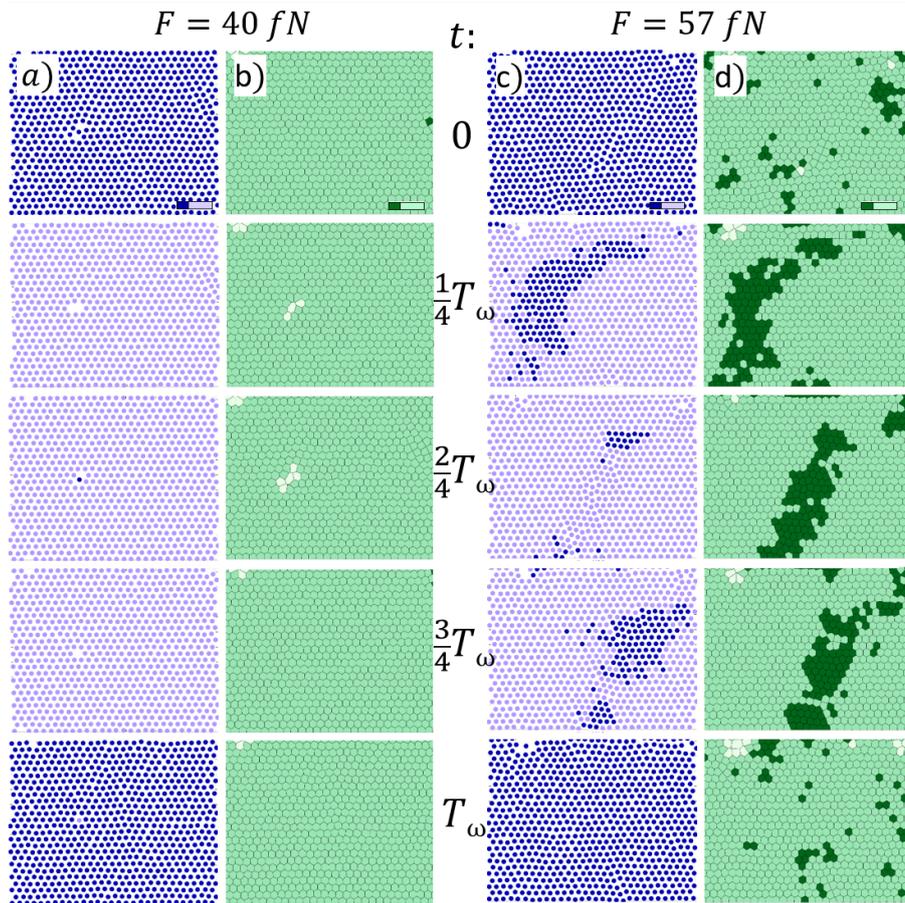
deutlich schmalere Verteilung aufweist als die Partikelgeschwindigkeiten  $v_p$ . Insgesamt bestätigt sich das Bild, welches wir bereits in den Trajektorien gesehen haben. Abbildung 3.9 **a)** und **c)** zeigen einen sehr schmalen Peak, woran wir erkennen, dass sich tatsächlich alle Partikel identisch verhalten. Entweder keines bewegt sich ( $\Delta x = 0 \mu m$ ) oder alle Springen simultan zum nächsten Gitterplatz ( $\Delta x = a_L = 6.0 \pm 0,1 \mu m$ ). Bemerkenswert sind die Histogramme aus Abb. 3.9 **b)**, **d)** und **e)**. Diese zeigen nicht nur, dass die Kolloide sich mit unterschiedlichem  $v_p$  bewegen, sondern eine Diskretisierung in bestimmte Sprungweiten. Dies äußert sich dadurch, dass die Peaks nicht nur breiter werden, sondern sich mehrere Maxima in  $P(\Delta x)$  zeigen. In Abbildung 3.9 **b)** besitzt  $P(\Delta x)$  gleich drei Maxima, für  $\Delta x = -0,2/ 3,0/ 6,2 \pm 0,2 \mu m$ . Die Sprünge bis zur halben Gitterkonstante korreliert mit der Anzahl an Partikeln, die sich diagonal bewegen. Ein ähnliches Verhalten stellt sich auch für Zugkräfte oberhalb der ersten Stufe ein, nur dass die Kolloide hier insgesamt eine größere Distanz zurücklegen, wodurch dieses Verhalten in den Trajektorien weniger offensichtlich hervortrat. Diese ungleichmäßige Bewegung führt zu einer Deformation des Kristallgitters und dem Aufbau von Stress in diesem.

Zur besseren Beschreibung der strukturellen Vorgänge im Kristall während der Bewegung betrachten wir jetzt nur die x-Komponente der Trajektorien in Abhängigkeit von der Messzeit  $t$ . In Abbildung 3.10 **a)** und **b)** vergleichen wir die Situation innerhalb der ersten Stufe für  $F = 43 fN$  mit derjenigen bei  $v_d = v_{s,2}$ . Im ersten Fall sehen wir auch hier, dass die Kolloide alle simultan von einem Potenzialminimum zum nächsten springen. Auffällig ist bereits hier der extrem kurze Zeitraum, in dem die Kolloide beweglich sind. Der Inset zeigt die vergrößerte Ansicht einer Trajektorie mit den entscheidenden Parametern,  $a_L$  und  $T_\omega$ . Hieraus schließen wir, dass die Potenzialbarriere  $U(x, y, t) < 5 k_B T$  sein muss, damit die Kolloide diese überwinden können. Dieses Verhalten ist ähnlich für alle Zugkräfte im Intervall  $33 fN < F < 47 fN$  und zeigt das typische Verhalten einer Monolage deren Bewegung mit der Oszillation des Substratpotenzials synchronisiert ist.

Wenden wir uns nun dem Fall zu, bei dem wir keinen Shapiro-Step beobachten, obwohl diese in Simulationen typischerweise auftreten. Abbildung 3.10 **b)** zeigt die Daten für  $F = 57 fN$ . Hier beträgt  $v_d = 129 nm/s \approx v_{s,2} = 132 nm/s$  und die Bewegung der Monolage sollte erneut synchronisiert sein. Das Inset in Abb. 3.10 **b)** zeigt auch, dass die Gesamtstrecke  $\Delta x$  der doppelten Gitterkonstante entspricht, das Kolloid dafür aber zwei separate Sprünge benötigt. Dies zeigt, dass die Bewegung der Kolloide teilweise synchronisiert ist, aber mit einer weiteren Komponente überlagert wird. Um eine bessere Vorstellung dieser zusätzlichen Bewegungskomponente zu erhalten, betrachten wir in Abbildung 3.10 **c)** einen räumlich vergrößerten Bereich der vorherigen Abbildung. So sehen wir besonders deutlich, dass die Störung der Synchronisation nicht zu einem bestimmten Zeitpunkt während der Modulation auftritt, sondern kontinuierlich durch den Kristall wandert. Die schwarzen Pfeile zeigen auf die asynchronen Kolloide. Es ist ebenfalls gut zu erkennen, dass deren Geschwindigkeit nicht konstant ist, sondern mit zunehmender Potenzialstärke abnimmt, bis sie vollständig einfrieren. Wenn  $U(x, y, t)$  später wieder schwächer wird, setzt auch die asynchrone Bewegung wieder ein. Dieser Vorgang kann zu lokalen Kompressionszonen führen, welche

bereit aus früheren Arbeiten mit kolloidalen Kristallen bekannt sind, und als Kinks identifiziert wurden [31]. Auf einem statischen Substrat jedoch wurde gezeigt, dass die Geschwindigkeit dieser Kinks bei fester Zugkraft konstant ist und mit der Anzahl an Kolloiden innerhalb der Kompressionszone korreliert.

Dies ist nicht mehr für ein zeitlich moduliertes Potenzial zu erwarten, da sich



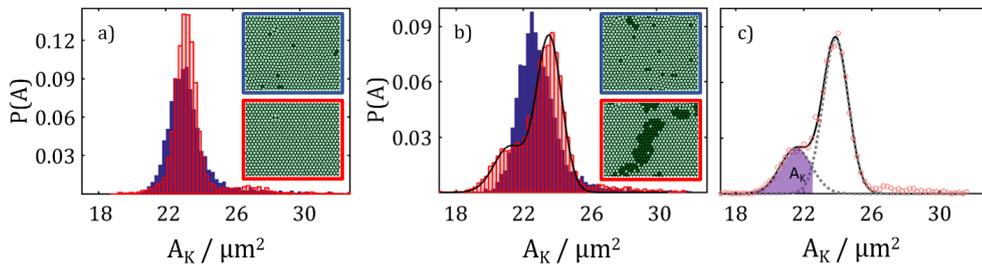
**Abbildung 3.11:** Vergleich der Partikelgeschwindigkeiten mit der Kompression des Kristallgitters für zwei verschiedenen Zugkräfte  $F = 40 \text{ fN}$  **a)** und **b)** auf der ersten Stufe und  $F = 57 \text{ fN}$  **c)** und **d)** hinter der ersten Stufe. **a)** und **c)** Geschwindigkeitskarte der Monolage für verschiedene Zeiten einer Oszillation ( $t = 0 / \frac{1}{4}T_\omega / \frac{2}{4}T_\omega / \frac{3}{4}T_\omega / T_\omega$ ). **b)** und **d)** Voronoi Parkettierung des Kristalls für die in **a)** dargestellten Szenen. Der Farbcode unterscheidet zwischen langsamen und schnellen Kolloiden (Hell- / Dunkelblau) und Regionen mit niedriger und hoher Dichte (Hell- / Dunkelgrün)

eine der Voraussetzungen für die Entstehung von Kinks ständig ändert. Eine Möglichkeit diese Kinks zu beschreiben ist über die Dichteverteilung im Kristall, die durch eine Voronoi-Parkettierung dargestellt werden kann. Hierbei werden um jedes Partikel Polygone gezogen, deren Kanten senkrecht auf den Mittelpunkten der Verbindungslinien zu den jeweiligen nächsten Nachbarn liegen. Dies bedeutet, dass die vom Polygon eingeschlossene Fläche kleiner wird, wenn die

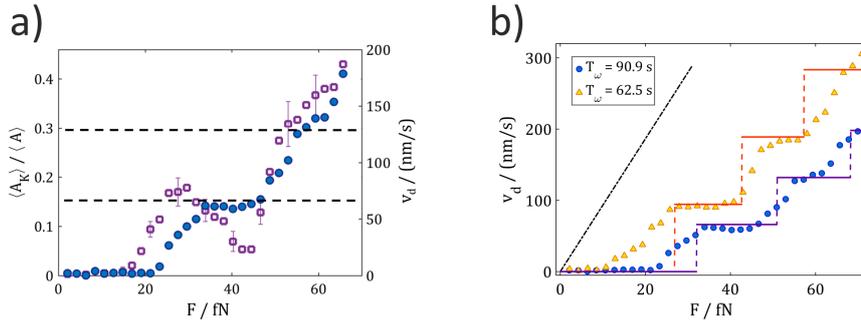
Kolloide dichter beieinanderliegen. So erhalten wir ein Bild über die lokale Dichte im Kristall. Dafür teilen wir die Voronoizellen in zwei verschiedene Größen ein. Ist die Fläche  $A$  einer Zelle kleiner als 90% des Mittelwertes aller Zellen, so wird sie dunkelgrün ansonsten hellgrün eingefärbt. Abbildung 3.11 stellt die Voronoi-Parkettierung der Partikelgeschwindigkeit gegenüber. Dafür werden zu bestimmten Zeiten der Oszillationsperiode Momentaufnahmen des Kristalls gezeigt und die Partikel entsprechend ihrer Geschwindigkeit eingefärbt. Ist ein Kolloid schneller als 30% von der Maximalgeschwindigkeit der Kolloide, so wird es dunkelblau dargestellt, ansonsten in hellblau. Um Schwankungen der Geschwindigkeit durch thermisches Rauschen zu unterdrücken, wird  $v_p$  mit einem Savitzky-Golay Filter zeitlich geglättet. Die hier verwendeten Glättungsparameter sind für das Polynom  $SG_p = 7$  und die Mittelungslänge  $SG_l = 13$ . Dies entspricht einem Zeitintervall von vier Sekunden.

In Abbildung 3.11 **a)** sehen wir die Geschwindigkeitskarte des Kristalls auf dem ersten Shapiro-Step. Es ist deutlich zu sehen, dass die Kolloide nur dann mobil sind, wenn das Substratpotenzial schwach ist. Die meiste Zeit sind alle Partikel gepinnt. Daneben in Abb. 3.11 **b)** ist die Größe der Voronoizellen homogen und es gibt keine komprimierten Bereiche in der Monolage. Ein ganz anderes Bild zeigt sich in Abbildung 3.11 **c)** und **d)**. Zu den Zeiten  $t = \frac{1}{4}T_\omega / \frac{2}{4}T_\omega / \frac{3}{4}T_\omega$  erkennen wir eine lokale Kompressionszone, die deckungsgleich mit den mobilen Kolloiden im Kristall ist und durch diesen hindurch wandert. Diese Kompressionszone bleibt bestehen, selbst wenn die Partikel durch das maximale Potenzial  $t = \frac{2}{4}T_\omega$  angehalten werden. Diese ist Sprichwörtlich in der Zeit eingefroren (Frozen Kink). Wir können aber noch eine weitere wichtige Beobachtung in dieser Abbildung gewinnen. Wenn die Potenzialstärke minimal wird, so nimmt die Anzahl der komprimierten Voronoizellen ab und der Kristall kann sich teilweise entspannen. Dies verdeutlicht den Zusammenhang zwischen einer synchronisierten Bewegung ohne mechanische Verspannung und der Propagation durch Kinks, die nur unter Einwirkung von Stress auf den Kristall entstehen können.

Um dieses Zusammenspiel aus Verspannung, Synchronisation und Bewegung



**Abbildung 3.12:** Histogramm der Voronoiflächenverteilung  $P(A)$  für minimale und maximale Potenzialstärken (rot und blau). **a)**  $F = 40$   $fN$  und **b)**  $F = 57$   $fN$ . Die Insets zeigen die entsprechenden Voronoiparkettierungen. **c)** Bimodaler gaußscher Fit an die Verteilung aus **b)**, schwarze Linie. Die gepunkteten Linien bilden die beiden Komponenten der Fitkurve. Die ausgefüllte Fläche repräsentiert die Verspannung des Kristalls.



**Abbildung 3.13:** **a)** Verspannung  $\langle A_K \rangle / \langle A \rangle$  und Geschwindigkeit  $v_d$  als Funktion der treibenden Kraft  $F$ . **b)** Driftgeschwindigkeit  $v_d$  als Funktion von  $F$  für zwei unterschiedliche Modulationen (blau:  $T_{\omega,1} = 90,9$  s und gelb:  $T_{\omega,2} = 62,5$  s). Die gestrichelte blaue und gelbe Linie ist der berechnete Verlauf. Die schwarze gestrichelte Linie entspricht der Bewegung eines freien Kolloids.

des Kristall genauer zu verstehen betrachten wir nun die gesamte Verteilung der Voronoizellen  $P(A)$  für unser System. Diese sehen wir in Abbildung 3.12 **a)** für  $F = 40$  fN und **b)** für  $F = 57$  fN. Im ersten Fall der rein synchronen Bewegung ist kein signifikanter Unterschied in  $P(A)$  zwischen starkem (rot  $U_{max} = 44k_B T$ ) und schwachem (blau  $U_{min} = 2k_B T$ ) Potenzial zu erkennen. In beiden Fällen kann die Verteilung durch eine einfache gaußsche Funktion beschrieben werden. Lediglich die Breite der Verteilung ändert sich, da die Kolloide bei  $U_{max}$  stärker lokalisiert sind als bei  $U_{min}$ . Abbildung 3.12 **b)** zeigt  $P(A)$  für einen Bereich in dem sich die zweite Stufe manifestieren sollte. Für  $U_{min}$  ergibt sich die gleiche Situation wie zuvor, doch nimmt die Potenzialstärke zu, so wird  $P(A)$  stark asymmetrisch. Die zuvor bereits identifizierten Kompressionszonen machen sich durch einen Ausläufer zu kleineren Flächen  $A$  hin bemerkbar. Um die Verspannung durch Kinks zu quantifizieren, fitten wir eine Überlagerung von zwei Gaußfunktionen an  $P(A)$  an, durchgezogene schwarze Linie in Abb. 3.12 **c)**. Dafür möchten wir die anteilige Fläche unseres Kristalls bestimmen, in welcher der Kristall komprimiert ist. So definieren wir zuerst die Gesamtfläche aller Kompressionszonen  $A_K$  im ROI (eingefärbter Bereich in 3.12 **c)**). Um  $A_K$  zu erhalten, bestimmen wir zuerst den Schnittpunkt zwischen linker und rechter Gaußkurve, dabei liegt der Schwerpunkt der ersten bei kleinen Voronoizellen. Anschließend integrieren wir über die linke Gaußkurve von  $-\infty$  bis zu dem ermittelten Schnittpunkt der beiden Kurven. Die so erhaltene Fläche ist unser  $A_K$ , und stellt damit ein Maß für die Verspannung innerhalb der Kompressionszone dar. Die Verspannung für den gesamten Kristall während der Messung erhalten wir durch die Mittlung der Flächen  $\langle A_K \rangle$  über den zeitlichen Verlauf der Messung und dividieren dies durch die mittlere Fläche aller Voronoizellen  $\langle A \rangle$ . Diese entspricht der gesamten Fläche in unserem ROI und stellt die Fläche unter der schwarzen Kurve (Abb. 3.12 **c)**) dar.

Die so ermittelte Verspannung  $\langle A_K \rangle / \langle A \rangle$  des Kristalls ist in Abbildung 3.13 **a)** als Funktion der Zugkraft  $F$  dargestellt (offene Quadrate) und wird mit der Driftgeschwindigkeit  $v_d$  aus Abb. 3.7 verglichen (gefüllte Kreise). Selbst für

kleine Zugkräfte  $F < 22 \text{ fN}$  für die  $v_d \approx 0$  ist, beginnt sich der Stress auf den Kristall auszuwirken und die Verspannung baut sich auf. Der Grund dafür liegt in der zunehmenden Wahrscheinlichkeit der Partikel über die Potenzialbarriere zu springen, wenn die treibende Kraft stärker wird. Als Folge überwindet eine geringe Zahl an Kolloiden, ungefähr 4%, die Barriere und erzeugt so die ersten Verspannungen in der Monolage. Mit zunehmender Kraft  $F$  nimmt auch die Verspannung zu, bis diese zum Beginn der ersten Stufe wieder signifikant zurückgeht. Wie bereits gezeigt setzt hier die Synchronisation der Kristalls mit der Oszillation des Substrates ein, was den Stress auf diesen reduziert und zu einer Reduzierung der Verspannungen führt. Nimmt  $F$  weiter zu führt dies letztlich zu einem erneuten Anstieg der Verspannungen. Diese monotone Zunahme von  $\langle A_K \rangle / \langle A \rangle$  bleibt auch im erwarteten Bereich der zweiten Stufe erhalten und bestätigt somit die teilweise asynchrone Bewegung der Partikel aus den vorherigen Analysen. Die starke Generierung von Kinks an den Flanken, sowie deren Rückgang auf den Shapiro Steps wurde für ein ungedämpftes Sine-Gordon System bereits durch numerische Simulationen bestätigt [107].

Allgemein gilt, dass mit zunehmender Paarwechselwirkung die einzelnen Shapiro-Steps deutlicher ausgeprägt sind und dadurch mehr beobachtet werden können. Im Gegensatz zu numerischen Simulationen, in denen das Verhältnis aus Gitterkonstante  $a_L$  und der Abschirmlänge  $\lambda_D$  auf den Wert  $a_{L,S}/\lambda_{D,S} = 2$  gesetzt wurde, beträgt dieser in unserem Experiment  $a_L/\lambda_D \approx 30$ . Dies erklärt, warum in unserem Experiment Stufen höherer Ordnung nur schwer zu erkennen sind und oft unterdrückt sind.

Da wir uns nun ausführlich damit befasst haben, auf welche Art die Synchronisation gestört werden kann, wenden wir uns nun der Frage zu, wie können wir die Stufen vorhersagen und somit in unseren Messungen hervorheben. Dafür kommen wir auf die Betrachtung aus Abschnitt 3.1.1 zurück, in dem wir die Auswirkung von Ultraschall auf die trockene Reibung behandelt haben. Das Resultat ergab die Gleichung 3.16 mit der sich berechnen lässt, wann die treibende Kraft die Haftreibung überwindet.

$$F_h = F_{h,0} |J_0(k\Delta l/2)|$$

In dem oben genannten Fall konkurriert die Abstandsänderung der Kontaktpunkte  $\Delta l$  mit der Wellenzahl des Substrates  $k/2$ . Die Bewegung setzt ein, wenn  $|J_0(k\Delta l/2)| = 0$  wird. Diese können wir für unser Experiment leicht anpassen, wenn wir folgende Rahmenbedingungen berücksichtigen. Das analoge Element zu  $k/2$  ist in unserem System die Gitterkonstante  $a_L$  und kann durch  $k/2 = \frac{2\pi}{a_L}$  beschrieben werden. Da es in unserem Kristall keine Abstandsänderung gibt, übertragen wir diese Annahme auf unseren Fall, indem wir uns überlegen, dass die Kolloide nur eine begrenzte Zeit haben die Potenzialbarriere zu überwinden. Während einer Periode  $t = T_\omega$  muss die Hälfte der Gitterkonstanten zurückgelegt werden, damit die Kolloide das nächste Minimum erreichen. Es gilt also:

$$\Delta l = \frac{a_L}{2} = \frac{v_p^* \cdot T_\omega}{2} = \frac{v_p \cdot \Delta\tau \cdot T_\omega}{2} \quad (3.19)$$

$\Delta\tau$  berücksichtigt in diesem Fall, dass die Partikel nur einen kleinen Teil der Periodendauer mobil sind. Fügen wir nun unsere Annahmen in Gleichung 3.16

ein und bezeichnen die erste Nullstelle der Funktion als  $\alpha$ , so lässt sich die Partikelgeschwindigkeit  $v_p$  bestimmen, die zum depinnen nötig ist:

$$v_p = \frac{\alpha \cdot a_L}{\pi \cdot T_\omega \cdot \Delta\tau} \quad (3.20)$$

Nun nehmen wir ferner an, dass die weiteren Stufen dann einsetzen, wenn der Reibungskoeffizient minimal wird. Dies ist dann der Fall, wenn die Besselfunktion  $|J_n(\alpha_n)|$   $n$ -ten Grades gleich Null wird. So können wir aus  $v_p$  mit dem effektiven stokschen Reibungskoeffizienten  $\mu_{eff}$  die Kraft  $F_{D,n}$  berechnen, bei der die erste und alle weiteren Stufen beginnen sollten:

$$F_{D,n} = \mu_{eff} \cdot v_p = \mu_{eff} \cdot \frac{\alpha_n \cdot a_L}{\pi \cdot T_\omega \cdot \Delta\tau} \quad (3.21)$$

Der einzige Parameter, der nicht direkt über die Einstellungen für die Messung definiert wird, ist somit  $\Delta\tau$ . Diesen können wir aber leicht aus den Trajektorien, wie sie in Abb. 3.10 gezeigt sind, oder mittels Histogrammen der Partikelgeschwindigkeit ermitteln. Die angegebene Messunsicherheit ergibt sich aus der Standardabweichung gemittelt über die vielfachen der Periodendauer der Messungen. Die Nullstellen der Besselfunktionen  $|J_n(\alpha_n)|$  können numerisch berechnet werden und lauten 3.1:

$\alpha_0$	$\alpha_1$	$\alpha_2$
2,41	3,83	5,14

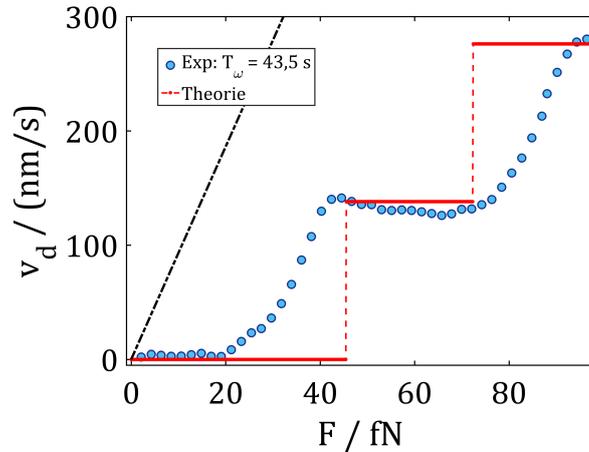
**Tabelle 3.1:** Erste Nullstelle der Besselfunktion  $|J_n(\alpha_n)|$ , für  $n = 0 / 1 / 2$

Nun können wir alle benötigten Parameter aus unserem Experiment bestimmen und die Kräfte  $F_{D,n}$  berechnen, die den Beginn einer Stufe markieren und in der folgenden Tabelle 3.2 aufgelistet sind.

$T_\omega$ [s]	$a_L$ [ $\mu m$ ]	$\Delta\tau$	$F_{D,0}$ [fN]	$F_{D,1}$ [fN]	$F_{D,2}$ [fN]
90,9	6,0 $\pm 0,1$	0,17 $\pm 0,01$	32,1 $\pm 1,7$	51,0 $\pm 2,9$	68,3 $\pm 3,5$
62,5	5,9 $\pm 0,1$	0,29 $\pm 0,02$	27,0 $\pm 1,7$	42,8 $\pm 2,7$	57,4 $\pm 3,6$
43,5	6,0 $\pm 0,1$	0,25 $\pm 0,01$	45,5 $\pm 1,8$	72,4 $\pm 2,8$	97,1 $\pm 3,7$

**Tabelle 3.2:** Berechnung von  $F_{D,n}$  für drei verschiedenen Messungen.

Die Ergebnisse aus dieser Berechnung werden in den Abbildungen 3.13 **b**) und 3.14 mit den zugehörigen Messungen verglichen. Die Übereinstimmung ist besonders für die erste Stufe und große  $T_\omega$  trotz der Störung durch Kinks hervorragend. Für kleine  $T_\omega$  oder Stufen höherer Ordnung hingegen gibt es beträchtliche Abweichungen, woran wir sehen, dass dieser Ansatz die Wirklichkeit nur begrenzt



**Abbildung 3.14:** Driftgeschwindigkeit  $v_d$  als Funktion von  $F$  für  $T_\omega = 43,5$   $fN$ . Die gestrichelte rote Linie entspricht dem idealen berechnete Verlauf der Kurve. Die schwarze gestrichelte Linie zeigt die Bewegung eines freien Kolloids.

gut erfassen kann. Dies sehen wir daran, dass die berechneten Stufen entweder zu schmal sind oder zu früh einsetzen. Eine Verbesserung könnte dadurch erzielt werden, indem wir  $\Delta\tau$  dynamisch erfassen. So nimmt die Zeit in der die Kolloide mobil sind mit steigendem  $F$  zu. In diesem Modell wird  $\Delta\tau$  aber nur als Mittelwert der Sprungzeiten der ersten Stufe berechnet. Es ist zu bedenken, dass für größere  $\Delta\tau$  die berechnete Breite der Stufe abnimmt, was die Übereinstimmung eher verschlechtert.

Während eine ähnliche Fragestellung von vielen Wissenschaftlern untersucht wurde [103] [108] [109][110], so lassen sich diese Arbeiten nur schlecht auf unser Experiment anwenden. In den meisten Fällen handelt es sich entweder um eindimensionale Systeme oder es wird die treibende Kraft moduliert und nicht die Potenzialstärke. Im zweiten Fall sind die Ergebnisse nur dann mit unserem Experiment vergleichbar, wenn die Modulation der Kraft kleiner ist als deren konstante Komponente ist.

### 3.1.4 Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel haben wir uns mit der Synchronisation einer getriebenen Monolage aus Kolloiden über ein periodisch moduliertes Substratpotenzial beschäftigt. Dabei konnten wir zum ersten mal erfolgreich die Existenz von Shapiro-Steps in einem solchen System experimentell nachweisen. Zudem haben wir einen analytischen Ausdruck hergeleitet, um die Position der Stufen vorherzusagen. Dieser stimmt teilweise hervorragend mit den Messungen überein, zeigt aber in manchen Fällen noch deutliche Abweichungen. Dies liegt vor allem daran, dass wir ein sehr simples Modell als Grundlage für unsere Herleitung verwendet haben, welches von nur zwei Kontaktpunkten und einer starren Verbindung zwischen diesen ausgeht.

Als ein weiteres Resultat dieser Arbeit wird zum ersten Mal der Einfluss von Kinks auf die Synchronisation der Bewegung von Kolloiden in einer kristallinen Phase mit einer modulierten Potenziallandschaft experimentell nachgewiesen. Dies führt zu einem deutlichen Aufweichen der Übergänge von einer Stufe zur nächsten. Wird der Stress auf den Kristall zu groß, so generiert die Verspannung im Kristall genügend Kinks um die synchrone Bewegung der Partikel komplett zu unterdrücken.

Ein erster Schritt zur Verbesserung der Experimente wäre den zugänglichen Kraftbereich für die Messungen zu erhöhen. Dieser wird primär durch zwei Komponenten begrenzt. Zum einen ist der Verfahrweg des Verschiebetisches begrenzt auf  $200 \mu\text{m}$ . Dies wird weiter eingeschränkt durch die Ausdehnung des Substratpotenzials, da nur ein Teil der Kolloide in der Probenzelle vom Potenzial festgehalten werden. Je größer die Translation des Tisches, desto mehr Kolloide drücken die freien Kolloide auf die gepinnten und verursachen zusätzlichen Stress auf den Kristall. Im Experiment hat sich so ein maximaler Versatz der Probenzelle um 100 bis zu  $120 \mu\text{m}$  als sinnvoll erwiesen. Da die treibende Kraft durch die Geschwindigkeit des Tisches verursacht wird, folgt das die Zeit bis der Tisch das Ende des Verfahrweges erreicht immer kürzer wird. So wird die Anzahl der vollständigen Oszillationen in diesem Zeitintervall mit zunehmender Kraft immer kleiner. Dieser Punkt lässt sich dadurch beheben, indem wir die Modulationsfrequenz erhöhen und gleichzeitig die Statistik für unsere Messung verbessern. Die zweite Komponente liegt in der Begrenzung des Substratpotenzials selbst. Wird dieses weiter ausgedehnt, so werden mehr Kolloide von diesem erfasst und der Verfahrweg könnte vergrößert werden. Die Aufweitung des Interferenzmusters führt aber zu einer Reduzierung der Potenzialstärke, die sich jedoch durch eine Erhöhung der Laserleistung in der Probenebene ausgleichen lassen würde.

Eine weitere interessante Fragestellung für diesen Aufbau wäre die Untersuchung von kurzwelligen Phononen auf die tribologischen Eigenschaften eines getriebenen zweidimensionalen Frenkel-Kontorova Modells. Dafür würden wir nicht die Intensität des gesamten Interferenzmusters modulieren, sondern lediglich eine lokale Variation erzeugen, die durch das Potenzial wandert. Eine Möglichkeit dies in unserem Aufbau zu realisieren ist den Strahlengang vor dem Interferometer aufzuweiten und einen Spalt in diesen einzusetzen. Dieser kann groß genug gewählt werden, damit Beugungseffekte vernachlässigbar sind und die gaußförmige Intensitätsverteilung der Laserstrahls führt zu einem Abflachen der Potenzialstärke zu den Rändern hin. Die Verschiebung des Spaltes überträgt sich auf die Intensität des Interferenzmusters im FOV, wodurch ein propagierendes Phonon simuliert wird. Alternativ kann die Blende durch eine Glasplatte mit einem bedampften Silberstreifen genutzt werden. Abhängig von der Schichtdicke des Silbers kann diese auch teilweise transparent für die Laserstrahlung sein, so dass die Potenzialstärke nicht auf Null reduziert wird. Silber oder ein anderes für  $\lambda = 532 \text{ nm}$  hoch reflektierendes Metall ist zu empfehlen. Ansonsten könnte die verwendete Blende durch die hohe Laserintensität ( $18 \text{ W}$ ) beschädigt werden. Diese Art der Intensitätsvariation wurde bereits im Labor getestet.

Als nächstes können wir ähnlich wie oben beschrieben den Strahlengang einschränken und nur einen Teil der Kolloide im FOV festhalten. Dies würde eine

lokale Druckstelle an einer Oberfläche simulieren und könnte einen interessanten Einblick in die Deformation einer Monolage durch Reibung ermöglichen. So könnten wir bestimmen bis zu welcher Zugkraft der Kristall noch über den Kontaktpunkt hin weggleitet oder aber zerreißt.

In eine ähnliche Richtung würde das folgende Experiment gehen. In diesem würde der Kristall von dem Substratpotenzial fixiert werden. Anschließend greifen wir ein einzelnes Kolloid mit einem zusätzlichen Laser und ziehen dieses durch den Kristall. Die dabei entstehende Spur des bewegten Partikels in der Monolage wäre ein geeignetes Modell zur Untersuchung von Abnutzung und das Zerkratzen einer Oberfläche durch einen Punktkontakt. Eine einfache Erweiterung dieses Experimente bestünde in der Verwendung einer bidispersen Lösung, mit unterschiedlich großen Kolloiden. Eine Partikelsorte wäre stark verdünnt, so dass sich immer nur einige wenige (1 - 3) im Kristall befinden. Auf diese Art und Weise ließe sich auch der Einfluss der Kontaktgröße auf die Abnutzung untersuchen.

## 3.2 Aubry Transition

Dieses Kapitel untersucht den Übergang eines inkommensurablen Systems vom reibungsfreien in einen reibungsbehafteten Zustand. Dabei wird der trockene Kontakt zwischen zwei hexagonalen periodischen Oberflächen modelliert und die strukturelle Antwort des Systems auf diesen Übergang beobachtet. Dafür erzeugen wir einen hexagonalen zweidimensionalen Kristall aus Kolloiden und treiben diesen über ein ebenfalls hexagonales Substratpotenzial. In diesem Fall sind die Periodizitäten des Kristalls und des Potenzials unterschiedlich. Durch diese Fehlanpassung der beiden Kontaktflächen entstehen intrinsische Verzerrungen in der Kristallstruktur auch ohne eine treibende Kraft. Diese besitzen, wie schon im vorherigen Kapitel gezeigt, eine erhöhte Mobilität und erlauben es dem Kristall schon bei geringen Zugkräften die Potenzialsbarriere zu überwinden [31] [111]. Für geeignete Fehlanpassungen kann die Haftreibung dieses Systems gänzlich verschwinden, obwohl die Stärke des Wechselwirkungspotenzials größer Null ist. Dieser Übergang wurde von Aubry vorhergesagt und wird deshalb auch als Aubry Übergang bezeichnet [112].

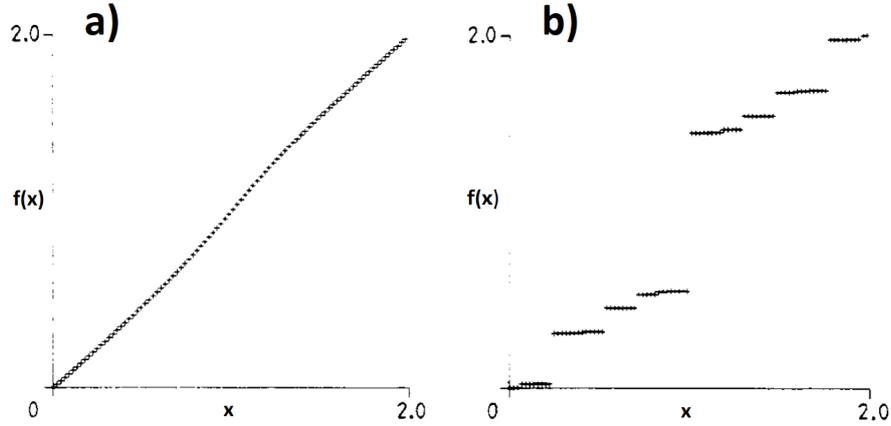
Durch mehrere vor kurzem veröffentlichte Arbeiten wurde der Aubry Übergang wieder ins Zentrum des physikalischen Interesses zurück geholt [113] [114] [115]. In dieser Arbeit erweitern wir das experimentelle Verständnis dieser Arbeiten auf ein zweidimensionales System und zeigen die dadurch hervorgerufenen Unterschiede auf. Dazu gehört das Auftreten einer strukturellen Änderung im Kristall, welche diesen Übergang begleitet. Zudem stellt diese Arbeit die erste experimentelle Bestätigung des Aubry-Überganges in einem zweidimensionalen System dar.

### 3.2.1 Theorie und Motivation

Der Aubry Übergang kann direkt aus dem Frenkel-Kontorova (FK) Modell gewonnen werden, welches wir in Kapitel 1.1.2 behandelt haben. Sind die Gitterstrukturen der Oberflächen inkommensurabel, so zeigt sich dieser Übergang als eine Funktion der Wechselwirkungsstärke  $\kappa$  und der Substratstärke  $U_0$ . Nun können wir ein kritisches Verhältnis dieser Größen definieren  $q_c = \frac{\kappa_c}{U_{0,c}} > q$ , bei dem der Aubry Übergang eintritt und die Potenziallandschaft kein Hindernis für den Kristall darstellt. Dieser Übergang von  $F_h = 0$  auf einen endlichen Wert wurde von Aubry auch als “Transition by breaking of analyticity” bezeichnet.

Auch wenn der Aubry Übergang eine dynamische Antwort des Systems auf eine äußere treibende Kraft darstellt, so ist dieser in gleichem Maße mit einem strukturellen Phasenübergang im Grundzustand des Kristalls verbunden. In diesem erreicht das System sein energetisches Minimum und wir können die Hamiltonfunktion wie folgt aufstellen:

$$H = \sum_{i=1}^N \left[ \frac{p_i^2}{2m} + \frac{\kappa}{2} (x_{i+1} - x_i - a_C)^2 + \frac{U_0}{2} \left( 1 - \cos \left( \frac{2\pi x_i}{a_L} \right) \right) \right] \quad (3.22)$$



**Abbildung 3.15:** Einhüllende  $f(x)$  eines inkommensurablen FK-Modells für **a)**  $q < q_c$  ist sie stetig und **b)**  $q > q_c$  nicht. [116]

Mit der kinetischen Energie  $\frac{p_i^2}{2m} = \frac{m}{2} \cdot \frac{d^2x_i}{dt^2}$  des  $i$ -ten Partikels am Ort  $x_i$ . Den Periodizitäten  $a_C$  und  $a_L$  für den Kristall und der Potenziallandschaft. Dann folgt für den Grundzustand:

$$\frac{\partial H(x_i)}{\partial x_i} = 0 \quad (3.23)$$

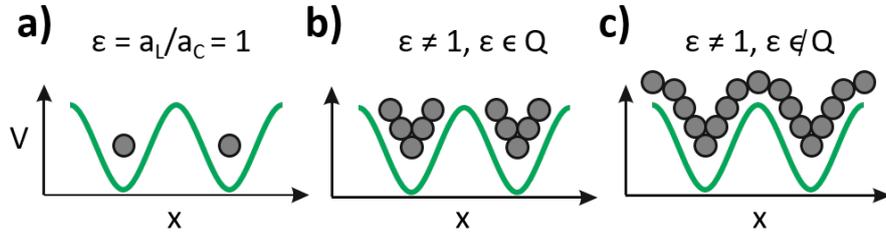
und wir erhalten:

$$U_0 \frac{\pi}{a_L} \sin\left(\frac{2\pi x_i}{a_L}\right) - \kappa(x_{i+1} + x_{i-1} + 2x_i) = 0 \quad (3.24)$$

Als Lösung der obigen Gleichung erhalten wir eine einhüllende Funktion  $f(x)$  [116], die den Grundzustand des Systems beschreibt und monoton wächst. Zudem erfüllt diese Funktion die Eigenschaft:  $f(x+1) = 1 + f(x)$ . Der Verlauf von  $f(x)$  ist in Abbildung 3.15 für zwei typische Fälle dargestellt. In **a)** ist sie stetig über den gesamten Definitionsbereich und für jeden Wert  $\alpha \in \mathbb{R}$  wird die Konfiguration des Grundzustandes definiert durch:

$$x_i = f(i\rho + \alpha) \quad (3.25)$$

Der kontinuierliche Verlauf von  $f(x)$  zeigt, dass auch die Verteilung der Partikel im Grundzustand kontinuierlich über die gesamte Energielandschaft erfolgt und dadurch frei gleiten kann. Diese Lösung überträgt sich auf beliebig viele Grundzustandskonfigurationen der Partikel. So sehen wir, dass all diese energetisch gleichberechtigt sind und durch eine Variation des Parameters  $\alpha$  erreicht werden kann. Für den Kristall bedeutet dies, dass durch die Verschiebung eines Kolloids ein anderes darauf reagiert und die Änderung der potenziellen Energie exakt kompensiert. So kann jedes Partikel über die Potenziallandschaft gleiten, ohne den Energiezustand des Kristalls zu verändern. Die Folge ist ein Verschwinden der statischen Reibung  $F_h = 0$ . In einem sehr anschaulichen Bild lässt sich dies wie folgt beschreiben. Immer wenn ein Partikel den Energieberg hinaufsteigt, steigt ein anderes um genau die gleiche Höhe diesen Berg herab. Ein



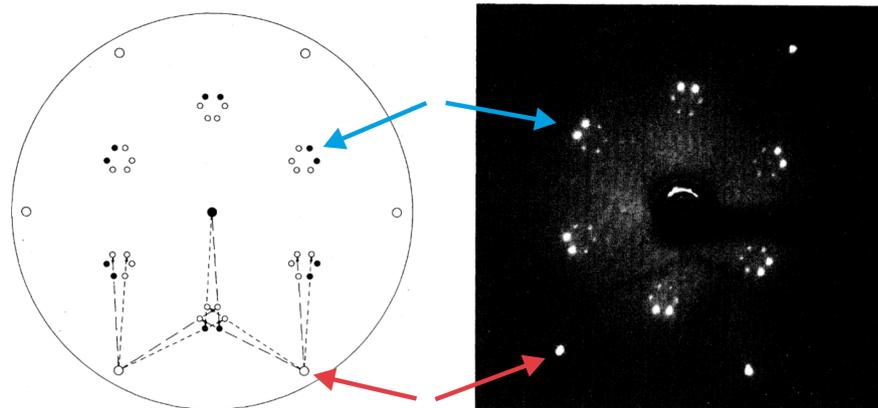
**Abbildung 3.16:** Schematische Darstellung der Verteilung von Partikeln in einer eindimensionalen Potenziellandschaft. **a)** Vollständig kommensurabler Fall. **b)** teilweise inkommensurabler Fall und **c)** vollständig inkommensurabler Fall.

ähnliches Bild kann für die Peierls-Nabarro Barriere von Kinks und Antikinks gezeichnet werden.

Betrachten wir nun den Fall  $q > q_c$ , wobei der Wert von  $q_c$  von der Fehlanpassung  $\epsilon$  der Periodizitäten im System abhängt, so ist  $f(x)$  nicht länger eine stetige Funktion, siehe Abbildung 3.15 **b)**. Sie zeigt nun das Verhalten einer Stufenfunktion, was der Grund dafür ist, warum Aubry diesen Übergang “transition by breaking of analyticity” genannt hat. In diesem nicht analytischen Zustand manifestieren sich verbotene Partikelkonfigurationen, da die Kolloide nicht mehr jeden Energiezustand innerhalb des Potentials einnehmen können. Diese können von dem System nicht mehr durch eine kontinuierliche Verschiebung der Kolloide erreicht werden, ohne die Gesamtenergie des Systems zu verändern. Dadurch kann die endliche statische Reibungskraft erklärt werden.

Dieser Vorgang kann anschaulicher durch die Einführung eines Ordnungsparameters  $\Psi$  beschrieben werden [117]. Dafür projizieren wir die Positionen aller Kolloide in die Einheitszelle des Substratpotentials. Damit der Kristall kontinuierlich von einer Konfiguration zur nächsten gleiten kann, müssen alle möglichen Positionen der Potenziellandschaft in der Einheitszelle eingenommen werden. Somit befinden sich Partikel auch auf den Maxima der Energielandschaft, solange  $q < q_c$  gilt [118]. Dies wird in Abbildung 3.16 schematisch für eine eindimensionale Potenziellandschaft dargestellt mit verschiedenen Fehlanpassungen, **a)**  $\epsilon = 1$  vollständig kommensurabel und alle Kolloide befinden sich im Zentrum der Potentialminima. **b)**  $\epsilon \neq 1$  und  $\epsilon \in \mathbb{Q}$ , die Kolloide nehmen unterschiedliche Positionen in der Einheitszelle ein, aber keines befindet sich auf den Potentialmaxima. **c)**  $\epsilon \neq 1$  und  $\epsilon \notin \mathbb{Q}$  jegliche Position ist besetzt. Dieser Zustand kann auch eintreten wenn  $T > 0$  und  $\epsilon$  hinreichend weit von 1 entfernt ist.

$\Psi$  definiert nun den kleinsten Abstand der Partikel von dem nächstgelegenen Potentialmaximum. Somit gilt  $\Psi = 0$  für den reibungslosen Zustand des Systems und  $\Psi > 0$  für den reibungsbehafteten. In der Nähe des Überganges folgt der Ordnungsparameter einem exponentiellen Abfall mit:  $\Psi \propto (q_c - q)^X$ , was typisch für einen Phasenübergang zweiter Ordnung ist [28]. Eine weitere kritische Größe für die Charakterisierung des Aubry Übergangs ist die Peierls-Nabarro Barriere. Für diese gilt das Gleiche wie für den Ordnungsparameter und es folgt auch demselben Exponentialgesetz:  $E_{pn} \propto (q_c - q)^{X_{pn}}$ .

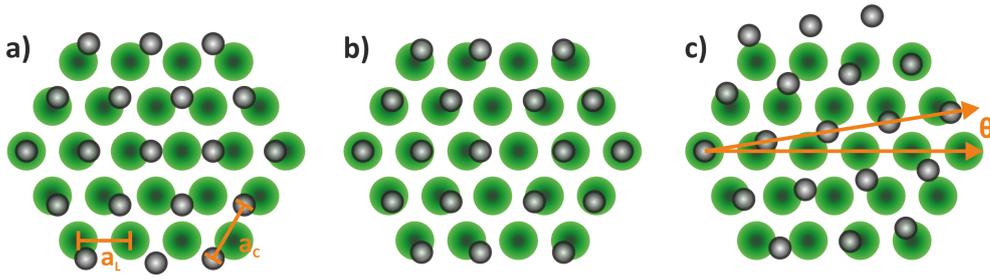


**Abbildung 3.17:** Beugungsbild einer dünnen aufgedampften Argon Schicht auf einem Graphitsubstrat (rechts). Schematische Zeichnung des Beugungsbildes (links). Die roten Pfeile zeigen auf die Beugungsmaxima erster Ordnung des Graphits und die blauen Pfeile auf die des Argons. Die Aufspaltung der Argonmaxima zeigt die zwei verschiedenen Orientierungen der Domänen in dessen Kristallstruktur. [119]

### Struktureller Übergang

In unserem Experiment untersuchen wir eine zweidimensionale (2D) Variante des normalerweise eindimensionalen (1D) FK Modells. Dadurch erhält unser System einen zusätzlichen Freiheitsgrad, der dessen Verhalten signifikant beeinflusst. Während im 1D Fall die Kette nur stark begrenzte Möglichkeiten besitzt auf äußere Einflüsse wie z.B. eine treibende Kraft oder ein Substratpotenzial zu reagieren. Darunter zählen die Translation der Partikel oder eine Variation der Partikelabstände. So kommt in einem 2D System zu diesen beiden Freiheitsgraden noch die Rotation des Kristalls bezüglich der Substratnormalen hinzu. Dieses Verhalten ist bereits aus anderen Bereichen bekannt, wie der Epitaxie von atomar dünnen Schichten auf kristallinen Substraten und wurde in diversen Arbeiten sowohl experimentell als auch theoretisch untersucht [119] [120] [121]. Abbildung 3.17 zeigt das Beugungsmuster einer auf Graphit aufgedampften Argonmonolage im LEED Verfahren (Low Energy Electron Diffraction) und links daneben eine schematische Zeichnung der berechneten Beugungsmaxima erster Ordnung. Die Aufspaltung der Argonmaxima in sechs Teilpunkte wird durch die unterschiedliche Orientierung der Argondomänen im Kristall verursacht.

Betrachten wir nun die Situation zweier inkommensurabler Kristallstrukturen. Die konkurrierenden Wechselwirkungen zwischen den Partikeln im Kristall und der mit dem Substrat führt zu einem frustrierten Gitter. Dies führt zu einer Störung der Gitterstruktur, welche den Stress des Systems ausdrückt. Dieser Stress manifestiert sich in Form einer statischen Verzerrungswelle (static distortion wave: SDW) [120], welche einen Versatz der Partikel bezüglich deren Ruhepositionen im gesamten Kristall verursacht. Diese SDWs können sich auf zwei verschiedene Arten und Weisen äußern. Zum einen führt dies zu lokalen



**Abbildung 3.18:** Schematische Darstellung eines Kristalls auf einem Substratpotenzial (grüne Bereiche) in verschiedenen inkommensurablen Konfigurationen. a) Steifer Kristall ohne Deformation. b) Weicher Kristall, die Periodizität des Gitters ist gestört. c) Kristall ist gegenüber dem Substrat um den Winkel  $\theta$  verdreht. Die Periodizität des Kristalls bleibt erhalten.

Dichteschwankungen im Gitter, ähnlich wie im 1D Fall. Zum anderen kann dieser Versatz zu einer Scherung führen, die sich durch eine Rotation des Gitters bemerkbar macht und somit zu einem Fehlanpassungswinkel  $\theta$  zwischen Kristall und Substrat führt. Dieser Zustand ist in Abbildung 3.18 c) schematisch dargestellt. Der Kristall, symbolisiert durch graue Punkte, ist gegenüber dem Substrat (grüne Flächen) um den Winkel  $\theta$  verdreht, um die Fehlanpassung der Gitterkonstanten  $a_C$  und  $a_L$  auszugleichen. Dieser Winkel wird auch Novaco-McTague Winkel genannt, wenn er die Energie des System minimiert. Zum Vergleich zeigen die Abbildungen 3.18 a) und b) ein System mit  $\theta = 0$  für einen vollständig unelastischen und einen elastischen Kristall. Im zweiten Fall wird die Periodizität des Kristalls gestört, und die Partikel werden vom Substrat aus ihren Ruhepositionen ausgelenkt.

Werfen wir nun einen genaueren Blick auf die Prozesse hinter dieser Erscheinung. Dafür nehmen wir zum einen ein unendlich starres Substrat an und ignorieren thermische Fluktuationen ( $T = 0$ ). Durch die Rotation des Kristalls gegenüber dem Substrat kann das System, wie weiter oben Beschrieben, seine Energie minimieren. Die Energiedifferenz gegenüber dem unrotierten System beträgt pro Partikel [120]:

$$E = -\frac{n}{2} \sum_l u_g \frac{(G_L \cdot e(\beta_g))^2}{m\omega_l^2(\beta_g)} \quad (3.26)$$

Summiert wird über die longitudinalen und transversalen Polarisierungen  $l$  der SDW und  $e(\beta_g)$  ist deren Polarisationsvektor. Die Amplitude wird mit  $u_g$  bezeichnet und die Frequenz mit  $\omega_l^2(\beta_g)$ .  $n$  ist die Dimension der Rotationssymmetrie von Kristall und Substrat mit den Gittervektoren  $G_C$  und  $G_L$ . Aus diesen Berechnet sich auch der Vektor  $\beta_g = G_C - G_L$ . Da eine Erhöhung der Frequenz zu einer Energieminimierung führt und somit  $\theta$  gegen Null geht, neigt das System dazu langwellige Deformationen auszubilden. Die auch als Phononen mit geringer Frequenz betrachtet werden können. Berücksichtigen wir jetzt, dass die Phononen des System mit verschiedenen Gewichten versehen sind  $G \cdot e(\beta_g)$ , die wiederum von  $\theta$  abhängen. So können wir annehmen, dass ein kleiner Fehlanpassungswinkel im System verbleibt, da  $\partial_\theta |\beta_g| = 0$  gilt und somit in bestimmten

Bereichen von  $\omega_l^2$  die Energie reduziert werden kann ohne eine signifikante Auswirkung auf  $\beta_g$  zu haben. Auf diesem Weg wird die Symmetrie des Systems gebrochen und für die Energie gilt nun:

$$E = -\frac{nu_g^2}{2m} \left[ \frac{a_C^2}{c_L^2 \beta_g^2} + \frac{a_C^2 a_L^2}{\beta_g^4} \sin^2 \theta \left( \frac{1}{c_T^2} - \frac{1}{c_L^2} \right) \right] \quad (3.27)$$

Die Abhängigkeit von  $\theta$  ist in  $q$  enthalten und die longitudinale und transversale Schallgeschwindigkeit wird mit  $c_L$  und  $c_T$  bezeichnet. Wenn wir diese zu einem Parameter  $\delta_a = (c_L/c_T)^2 - 1$  zusammenfassen und wie gewohnt die Fehlanpassung als  $\epsilon = a_C/a_L$  definieren, so erhalten wir aus Gleichung 3.27:

$$\cos \theta = \frac{1 + \epsilon^2(1 + 2\delta_a)}{\epsilon[2 + \delta_a(1 + \epsilon^2)]} \quad (3.28)$$

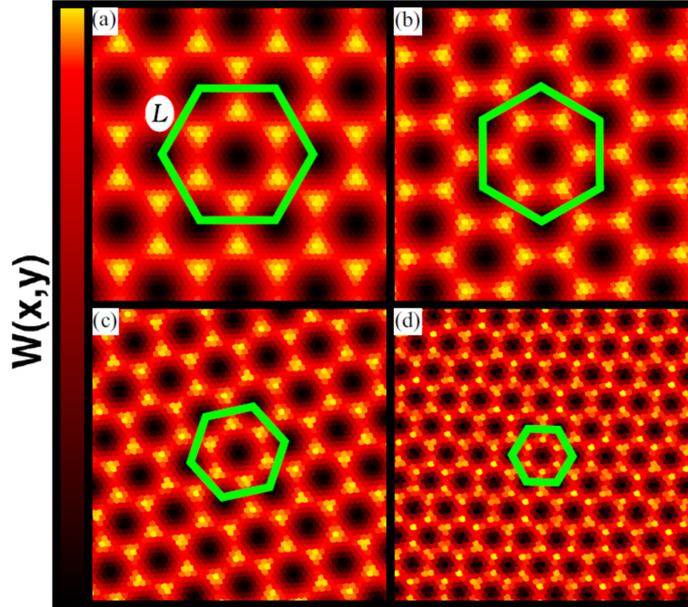
Der so berechnete Winkel genügt der Bedingung minimaler Energie und ist der theoretische Wert für den Novaco-McTague Winkel  $\theta_{NM}^{teo}$ . Diese Annahme bleibt so lange gültig, bis die transversale Schallgeschwindigkeit größer ist, als die longitudinale. Zudem muss folgende Bedingung erfüllt sein [120] [118]:  $\delta_a < \epsilon^{-1}$ . Das Zusammenspiel aus Rotation und Verzerrung des Gitters ist in der Lage den Anstieg der elastischen Energie durch die Translation des Kristalls auszugleichen oder sogar zu überkompensieren [122].

In den meisten Fällen ist der Winkel, welcher aus der Fehlanpassung resultiert, gering. Doch er lässt sich verstärken durch den Moiré-Effekt. Dieser entsteht, wenn zwei periodische Strukturen mit einer leichten Abweichung überlagert werden. Für zwei gegeneinander verdrehte Punktgitter lässt sich zeigen, dass sich eindeutig identifizierbare Domänen in diesem Muster bilden [123]. Diese Domänen sind ebenfalls gegenüber dem Substrat verdreht mit einem Winkel  $\phi_N$  für den gilt:

$$\cos \theta_{NM}^{theo} = \frac{\sin^2 \phi_N}{\epsilon} + \cos \phi_N \sqrt{1 - \frac{\sin^2 \phi_N}{\epsilon^2}} \quad (3.29)$$

In Abbildung 3.19 sind einige Moiré-Muster für verschiedenen Fehlanpassungswinkel  $\theta = 0/ 2,54/ 5/ 10^\circ$  zur Veranschaulichung dargestellt. Jedes Partikel wird durch einen Punkt repräsentiert und ist dunkel eingefärbt, wenn es sich im Zentrum eines Potenzialminimums befindet. Je heller der Punkt wird, desto größer ist seine Entfernung zum nächstgelegenen Minimum. In dieser Simulation beträgt die Fehlanpassung  $\epsilon = 0.927$  und der optimale Fehlanpassungswinkel ist  $\theta_{NM}^{teo} = 2,54^\circ$ . Es ist gut zu beobachten, wie stark das Moiré-Muster auf eine Änderung von  $\theta$  reagiert. Dies ist aber auch eine Schwachstelle dieser Analyse, denn geringe Verzerrungen in der Aufnahme von Kristall oder Substrat wirken sich in ebenso starkem Verhältnis auf dieses Muster aus, wie die Verdrehung. Für ein Experiment bedeutet dies einen immensen Aufwand etwaige optische Fehler in dem bildgebenden Verfahren auszugleichen.

Wir werden sehen, dass diese Verdrehung des Kristalls direkt mit dem Aubry Übergang in einem zweidimensionalen System verknüpft ist. Oberhalb einer kritischen Potenzialstärke  $U_c$  orientiert sich der Kristall an dem Substrat und



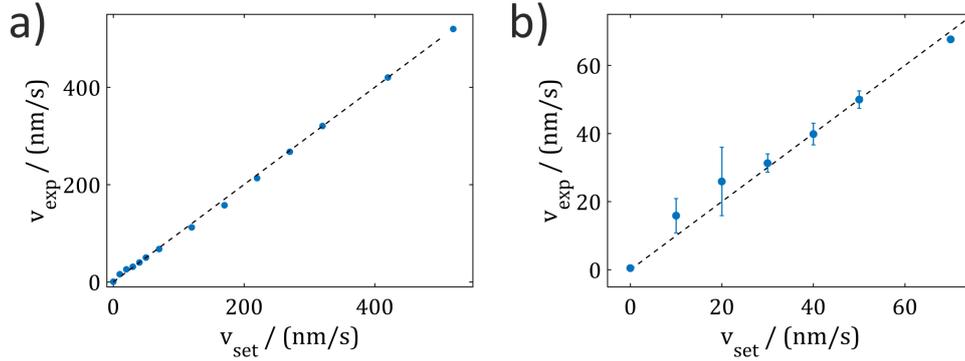
**Abbildung 3.19:** Vier Moiré Bilder für einen bezüglich seines Substrats rotierten Kristalls, die Fehlanpassung beträgt  $\epsilon = 0.927$ . **a)**  $\theta = 0^\circ$ , **b)**  $\theta^{opt} = 2,54^\circ$  **c)**  $\theta = 5^\circ$  und **d)**  $\theta = 10^\circ$  Jeder Punkt steht für ein Partikel und ist bezüglich seines Abstandes zum Potenzialminimum eingefärbt. Das grüne Sechseck veranschaulicht die Ausrichtung des Musters. [118]

richtet sich gänzlich daran aus und wir beobachten einen stark gepinnten Zustand. Unterhalb von  $U_c$  verschwindet die Haftreibung und der Kristall zeigt seine Fehlanpassung durch  $\theta > 0$ . Simulationen zeigen, dass die Anpassung bei hohen Potenzialstärken aber nur lokal erfolgt. Global betrachtet bleibt die Verdrehung des Kristalls gegenüber dem Substrat erhalten [124].

### 3.2.2 Experiment

Der Aufbau dieses Experimentes entspricht im wesentlichen dem aus Kapitel 3.1.2. Dies gilt auch für die verwendete Probe. Die zwei wichtigsten Unterschiede zu den vorherigen Messungen, bestehen in der Kommensurabilität des System und dem zeitlichen Verhalten des Substratpotenzials. Hier beobachten wir einen Kristall dessen Gitterkonstante  $a_C$  inkommensurabel zu der des Substrats  $a_L$  ist. Das Substratpotenzial für diese Messungen wird nur räumlich moduliert aber bleibt zeitlich konstant.

Ein wichtiger Aspekt dieses Experimentes, welcher in den vorherigen Messungen vernachlässigt werden konnte, besteht in der detaillierten Betrachtung der Ereignisse bei kleinen Zugkräften  $F$ . Aus diesem Grund ist es von besonderer Bedeutung  $F$  in diesem Bereich so genau wie möglich zu bestimmen. Da dies über die Geschwindigkeit  $v$  des Probestisches geschieht, betrachten wir in Abbildung 3.20 eine Kalibrationsmessung für  $v$ . In dieser messen wir die Geschwindigkeit



**Abbildung 3.20:** a) Gemessene Geschwindigkeit  $v_{exp}$  des Probenhalter als Funktion der eingestellten Geschwindigkeit  $v_{set}$ . Die gestrichelte Linie zeigt den idealen theoretischen Verlauf der Kurve. b) Vergrößerter Ausschnitt aus a).

von Partikeln, die an dem Probenhalter festkleben, typisch sind fünf bis zehn Kolloide im FOV. Da diese Kolloide keinen thermischen Fluktuationen unterworfen sind, lässt sich mit dieser Methode  $v_{exp}$  sehr präzise bestimmen. Diese experimentell bestimmte Geschwindigkeit  $v_{exp}$  wird dann als Funktion der eingestellten Geschwindigkeit  $v_{set}$  aufgetragen, Abb. 3.20 a). Die schwarze gestrichelte Linie zeigt dabei die Identität von  $v_{exp}$  und  $v_{set}$ , also dem theoretischen idealen Verlauf der Kurve. Für große Werte von  $v_{set}$  stimmen die Datenpunkte sehr gut mit dieser Erwartung über ein, und ein linearer Fit liefert als Ergebnis  $v_{exp} = 0,994 \cdot v_{set} \pm 0,03$ . Die Fehlerbalken sind im Allgemeinen kleiner als die Datenpunkte. Doch gerade in dem für uns interessantem Bereich von kleinen Geschwindigkeiten bemerken wir eine signifikante Abweichung. In Abbildung 3.20 b) sehen wir einen vergrößerten Ausschnitt dieser Messung. Die Fehlerbalken berechnen sich aus der Standardabweichung mehrere Einzelmessungen. In Tabelle 3.3 sind die Abweichung für die 5 kleinsten Geschwindigkeiten in der Kalibrierung aufgetragen. So erhalten wir einen Korrekturfaktor  $\Upsilon = (v_{exp} - v_{set})/v_{set}$  für die tatsächliche an die Kolloide angreifende Kraft. Relevant für eine Korrektur sind

$v_{set}/(nm/s)$	0	10	20	30	40
$v_{exp}/(nm/s)$	0,47	15,84	25,93	31,29	39,83
$\Upsilon$	$\infty$	0,58	0,30	0,04	-0,004

**Tabelle 3.3:** Abweichung der eingestellten Geschwindigkeit gegenüber der realen.

nur die Einstellungen für  $v_{set} = 10, 20$  und  $30$  nm/s. Darüber ist  $\Upsilon$  geringer als die Messgenauigkeit. Ebenso lässt sich die Abweichung für  $v_{set} = 0$  ignorieren, da der Tisch sich hier nicht bewegt und diese somit durch die begrenzte Auflösung unseres Mikroskops entsteht. Deshalb können wir die Varianz der Messung dieses Wertes als Genauigkeit für die Geschwindigkeitsmessung verstehen.

## Vergleich mit Simulationen

Zur Unterstützung in diesem Projekt haben wir eng mit der Gruppe von Erio Tosatti und Nicola Manini zusammen gearbeitet. Deren Expertise in theoretischer Physik und numerischen Simulationen hilft uns die Ergebnisse des Experiments besser zu verstehen und in einen allgemeineren Kontext zu überführen. Damit dies gelingt, müssen die Parameter des Experiments so genau wie möglich auf die molekulardynamischen (MD) Simulationen übertragen werden. Da die Gitterkonstante unseres Kristalls bereits durch das  $g(r)$  bekannt ist, was wir in Kapitel 2.7.6 behandelt haben, siehe Abb. 2.13 **a**), stehen uns diese Daten als Ausgangspunkt für die MD Simulationen zur Verfügung. Um den Kristall vollständig zu charakterisieren fehlen uns noch die Abschirmlänge  $\lambda_D$  und der Potenzialparameter  $Q$ , siehe Abschnitt 2.4. Diese erhalten wir aus dem Vergleich des  $g(r)$  von den Experimenten und den Simulationen.

Für  $T = 0 \text{ K}$  würde das  $g(r)$  eine Reihe von Deltapeaks zeigen, da es keine thermischen Fluktuationen in den Positionen der Partikel geben würde. In unserem Fall sind diese Peaks aber aufgeweitet und wir können annehmen, dass potentielle und thermische Energie im Gleichgewicht sind. Definieren wir nun die potentielle Energie ( $U_p = \frac{1}{2}k_s\langle x^2 \rangle$ ) des Kristalls in Form einer Feder mit er Steifigkeit oder Federkonstanten  $k_s$  so folgt:

$$\frac{1}{2}k_s\langle x^2 \rangle = \frac{1}{2}k_B T \quad (3.30)$$

Zudem gilt für die Steifigkeit des Kristall:  $k_s = \frac{\partial^2 U(r)}{\partial r^2}$ . Setzen wir hier das Yukawa-Potenzial, wie wir es in Gleichung 2.23 definiert haben ein, so folgt für die Gleichgewichtsposition  $r_{eq}$  der Kolloide:

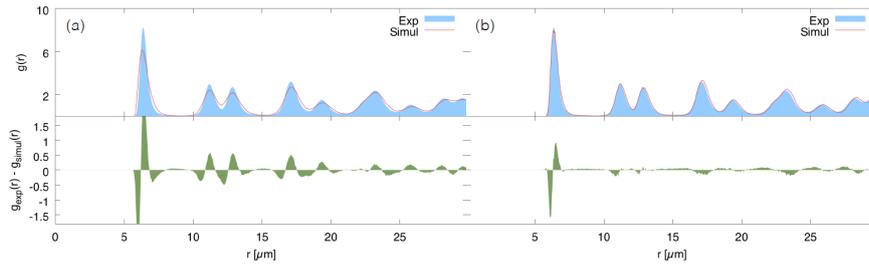
$$k_s = \left. \frac{\partial^2 U(r)}{\partial r^2} \right|_{r_{eq}} = Q e^{-\frac{r}{\lambda_D}} \left( \frac{2}{r^3} + \frac{2}{r^2 \lambda_D} + \frac{2}{r \lambda_D} \right) \Big|_{r_{eq}} \quad (3.31)$$

Hiermit können wir nun anfangen unsere Parameter  $Q$  und  $\lambda_D$  zu optimieren. Dazu mitteln wir die Ergebnisse aus mehreren hundert Einzelmessungen zur Glättung des Graphen und bestimmen die Abstände über alle Paarung im FOV. Das Histogramm über die Partikel-Partikel Abstände  $r_{i,j}$  ergibt dann das  $g(r)$ . Die so gewonnenen  $g(r)$  aus dem Experiment und der Simulation werden anschließend übereinander gelegt und die Abweichungen in diesen Kurven stellen ein Maß für die Übereinstimmung der Systeme dar. Dabei wird der erste Peak während der Optimierung stärker gewichtet als die übrigen, da sich das stark abfallende Yukawa Potenzial auf diesen am meisten auswirkt. Abbildung 3.21 zeigt den Vergleich zwischen den Paarkorrelationsfunktionen  $g(r)$  des Experiments und der Simulation. In **a**) sind die beiden Systeme noch nicht aufeinander Abgestimmt und die Simulation nutzt die Startwerte für die Optimierung  $Q_0$  und  $\lambda_{D,0}$ . Der untere Graph zeigt die Differenz zwischen Experiment und Simulation. Eine deutlich verbesserte Übereinstimmung zeigt Abbildung 3.21 **b**). Dies ist besonders deutlich in der Differenzdarstellung (unterer Graph) zu beobachten.

Die so gewonnenen Parameter für unser Experiment sind in Tabelle 3.4 für

$a_C/\mu m$	$N_p$	$Q/(k_B T \cdot \mu m)$	$\lambda_D/\mu m$	$k_s/(k_B T/\mu m)$	$E_{int}^{ideal} / k_B T$
7,2	2588	$9,90 \cdot 10^{10}$	0,29	4,05	1,54
6,7	3003	$1,67 \cdot 10^{14}$	0,20	6,37	1,23
6,6	3065	$2,95 \cdot 10^{15}$	0,18	3,95	0,61

**Tabelle 3.4:** Parameter für die Partikel-Partikel Wechselwirkung ( $U_{pp}$ ) im Experiment für drei unterschiedliche kolloidale Kristalle. Die Gitterkonstante für das System beträgt in allen Fällen  $a_L = 6,0 \mu m$



**Abbildung 3.21:** Paarverteilungsfunktionen  $g(r)$  für aus dem Experiment und der Simulation im Vergleich (oben), zusammen mit der Differenzfunktion (unten). **a)** Mit den Startwerten für die Optimierung. **b)** Angepasste Werte mit bester Übereinstimmung [124].

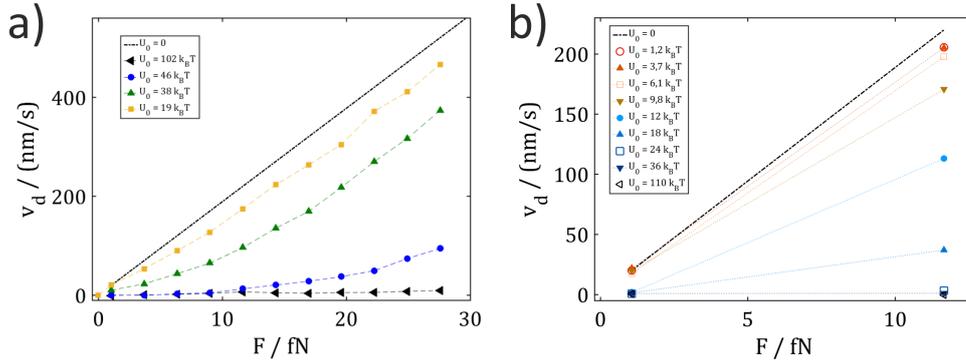
drei unterschiedliche Konfigurationen des Kristalls aufgelistet. Die angegebene potentielle Energie des Kristalls  $E_{int}^{ideal}$  wird unter der Annahme eines perfekten (idealen) Kristalls berechnet und berücksichtigt nur die Wechselwirkung der nächsten Nachbarn:

$$E_{pp} = \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} V_{ij}(|r_i - r_j|) \approx \frac{N_p}{2} 6V(a_C) = N_p E_{int}^{ideal} \quad (3.32)$$

Im folgenden Abschnitt werden die Ergebnisse der Messungen präsentiert und mit den oben genannten MD Simulationen verglichen. In diesen werden die Kolloide als punktförmige Objekte behandelt. Die Dynamik des Systems wird durch eine entsprechende Langevin Gleichung beschrieben unter periodischen Randbedingungen betrachtet [124].

### 3.2.3 Ergebnisse

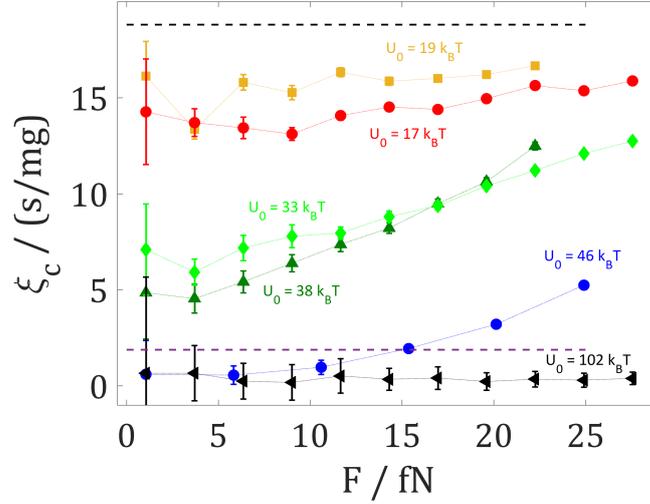
In diesem Abschnitt werfen wir einen Blick auf die experimentelle Untersuchung des Aubry Überganges und vergleichen die Ergebnisse mit den oben beschriebenen MD Simulationen. Da dieser Übergang den Punkt markiert, an dem die Haftreibung  $F_h$  vollständig verschwindet, ist diese die entscheidende Größe für unsere Beobachtung. Auch wenn  $F_h$  eine statische Größe ist, wird sie doch über das Einsetzen der Bewegung eines Körper beschrieben. Aus diesem Grund untersuchen wir zuerst, unter welchen Bedingungen das Gleiten eines kolloidalen



**Abbildung 3.22:**  $v_d$  als Funktion der Kraft  $F$ , **a)** über einen großen Kraftbereich mit  $\epsilon = 0.84$ , **b)** Fokussierung auf kleine Zugkräfte mit  $\epsilon = 0.87$ . Die schwarze gestrichelte Linie zeigt die Geschwindigkeit der Kolloide ohne Substratpotenzial dar. Die bunten Linien sind eine optische Führung für den Betrachter.

Kristalls einsetzt. Im Folgenden definieren wir den Zustand eines Systems mit  $F_h = 0$  als den superlubric Zustand, und für den Fall  $F_h > 0$  als den haftenden Zustand. Wie im vorherigen Abschnitt erklärt, können wir einen kritischen Parameter einführen  $q_c = \frac{\kappa_c}{U_{0,c}}$ , über den der Übergang vom ruhenden zum bewegten System definiert wird. Dies gibt uns nun zwei Möglichkeiten unser System zu manipulieren, die Partikel-Partikel Wechselwirkung ( $U_{pp}$ ) über  $\kappa_c$  oder die Potenzialstärke  $U_{0,c}$ . Wir entscheiden uns für  $U_{0,c}$ , da dieser Parameter leicht im Experiment variiert werden kann, wohingegen  $\kappa_c$  für eine einmal generierte Monolage konstant ist.

Im ersten Schritt betrachten wir dabei das Verhalten des kolloidalen Kristalls unter dem Einfluss einer homogenen treibenden Kraft  $F$ . Unter dieser Bedingung verlässt das System seinen Gleichgewichtszustand. Für uns ist entscheidend, dass wir dem System genügend Zeit geben einen stationären Zustand zu erreichen, in dem die von uns betrachteten Größen im Mittel zeitlich konstant bleiben. Dies ist in unserem Fall die mittlere Geschwindigkeit  $v_d$  der Kolloide in der Monolage, die in Abbildung 3.22 als Funktion von  $F$  gezeigt wird. Als Erstes fällt uns in **a)** auf, dass mit sinkendem  $U_0 = 19 - 102 k_B T$  die Monolage sich früher in Bewegung setzt, was wir offensichtlich erwartet haben. Hier wird ein großer Kraftbereich bis zu  $F = 28 fN$  abgefragt, um dieses fundamentale Verhalten der Monolage zu bestätigen. Dennoch sehen wir bereits hier, dass zwischen  $U_0 = 38 k_B T$  und  $U_0 = 46 k_B T$  ein gewisser Sprung in der Geschwindigkeit auftritt. Für hohe  $U_0$  ist der Kristall recht lange gepinnt, bis zu  $F = 18 fN$ . Wohingegen bei kleinen Potenzialstärken nicht genau gesagt werden kann an welchem Punkt sich die Kolloide von dem Substrat lösen. Zudem nähert sich hier  $v_d$  rasant der Bewegung eines freien Kristalls ohne Potenzial an, die durch eine schwarze gestrichelte Linie dargestellt wird. Da wir uns hier aber besonders für den Bereich kleiner Zugkräfte interessieren, betrachten wir diese Situation in Abbildung 3.22 **b)** im Detail. Damit wir mehr unterschiedliche Potenzialstärken abfragen können, zeigt diese Messung immer nur zwei verschiedene Einstellungen für  $F$  pro  $U_0$ . Wenn wir uns hier im besonderen die



**Abbildung 3.23:** Die Mobilität  $\xi_c$  als Funktion der Kraft  $F$  für verschiedene Werte von  $U_0$ . Die schwarze gestrichelte Linie zeigt die Beweglichkeit der Kolloide ohne Substratpotenzial. Die bunten Linien sind eine optische Führung für den Betrachter.

kleinste im Experiment realisierbare Zugkraft  $F_{min} = 1,05 \text{ fN}$  anschauen, fällt uns erneut ein Sprung in  $v_d$  auf. In dieser Darstellung ist er besonders deutlich zu sehen und liegt zwischen  $U_0 = 12$  und  $9,8 \text{ k}_B T$ . Die einzelnen  $v_d$  für diese Messung sind in Tabelle 3.5 aufgelistet. Die Geschwindigkeit eines freien Partikels beträgt  $v_{d,f} = 20 \text{ nm/s}$ . Damit liegen alle  $v_d$  mit  $U_0 < 10 \text{ k}_B T$  im Rahmen der Messgenauigkeit ( $\sigma_v = 2 \text{ nm/s}$ ) auf der eines Kolloids ohne Potenzial. Die Fehlerbalken sind nur unwesentlich größer als die Symbole in dem Graphen. Der Unterschied in der Potenzialstärke, bei der dieser Sprung auftritt, liegt an der schwächeren Fehlanpassung mit  $\epsilon = 0,87$  in dieser Messung gegenüber der in **a**) von  $\epsilon = 0,84$ . Um die Änderung der Beweglichkeit des Kristalls hervorzuheben

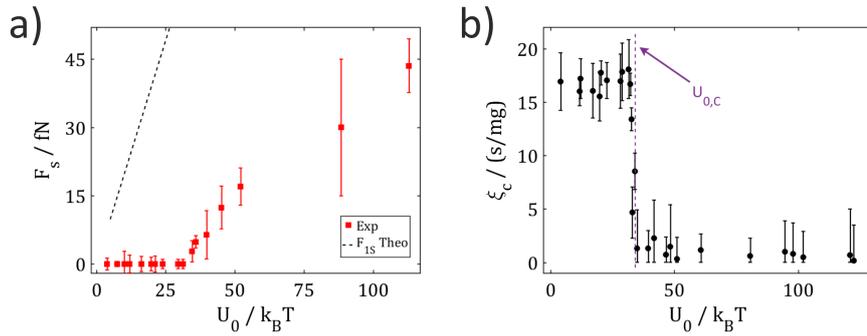
$U_0 / k_B T$	1,2	3,7	6,1	9,8	12	18	24	36	110
$v_d / (\text{nm/s})$	20	22	18	20	1,7	1,4	0,7	0,8	0,4

**Tabelle 3.5:** Geschwindigkeit  $v_d$  für die kleinste Zugkraft  $F_{min}$  bei verschiedenen Potenzialstärken mit  $\epsilon = 0,87$ .

betrachten wir im folgenden die Mobilität  $\xi_c$  der Kolloide. Diese ist für unser System definiert als:

$$\xi_c = \frac{v_d}{F} \quad (3.33)$$

Somit wird sie in den Einheiten  $\text{s/kg}$  gemessen, oder in unserem Fall zur besseren Skalierung der Messdaten in  $\text{s/mg}$ . In Abbildung 3.23 sehen wir die Mobilität als Funktion der treibenden Kraft für verschiedenen Werte von  $U_0 = 17$  bis  $102 \text{ k}_B T$ . Die Aussage aus den vorherigen Abbildungen bleibt auch hier gültig.



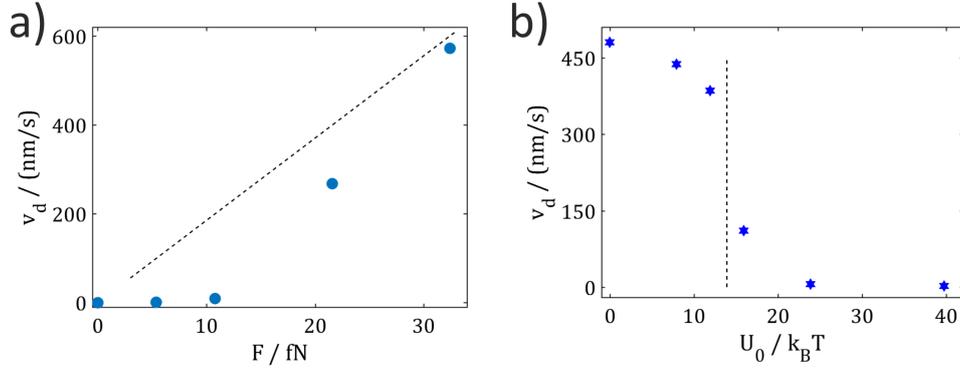
**Abbildung 3.24:** a) Haftreibung  $F_h$  als Funktion der Potenzialstärke  $W_0$ . Die schwarze gestrichelte Linie zeigt die Kraft  $F_{1S}$ , bei der ein einzelnes Kolloid depinnt. b) Mobilität  $\xi_c$  als Funktion der Potenzialstärke  $U_0$ , zur Bestimmung von  $U_{0,c}$ . Die gestrichelte lila Linie zeigt die kritische Potenzialstärke  $U_{0,c}$  für den Aubry Übergang an.

Ist die Potenzialstärke groß genug, in diesem Fall  $U_0 > 45 k_B T$ , so ist der Kristall zunächst stark gepinnt und die Beweglichkeit ist nahe Null. Erst wenn die Zugkraft  $F$  die Haftreibung des Substrats  $F_h$  überwindet, setzt die Bewegung der Monolage ein. Bei kleineren Potenzialstärken  $U_0 = 17$  und  $19 k_B T$  liegt  $\xi_c$  selbst für  $F_{min}$  nahe der eines freien Teilchens, was für unser System einen Wert von  $\xi_{c,0} = 18,8 s/mg$  entspricht. Dies wird durch eine schwarze gestrichelte Linie dargestellt. Dadurch wird gezeigt, dass unser Substrat nicht mehr in der Lage ist, den Kristall festzuhalten und dadurch mit einer Haftreibung von Null übereinstimmt. Somit sind diese Datenpunkte ein deutliches Anzeichen dafür, dass wir hier den Aubry Übergang erreicht haben. Dennoch müssen wir hier unser Augenmerk auf eine weitere Eigenschaft des Systems richten. Für  $U_0 = 33$  und  $38 k_B T$  ist die Frage, in welchem Zustand sich das System befindet, nicht eindeutig zu beantworten. In diesem Bereich der Potenzialstärke scheint der Kristall weder vollständig gepinnt noch vollständig frei zu sein. Das deutet darauf hin, dass wir es hier mit einem Mischzustand zu tun haben, der entweder beide Eigenschaften des Aubry Übergangs besitzt oder keines. Es sollte zudem gesagt werden, dass in Abbildung 3.23 die Anzahl der Messungen in diesem Mischzustand überrepräsentiert sind. Für diese Abbildung wurden Graphen aus verschiedenen Messungen zusammengestellt, um diese miteinander zu vergleichen. Es ist dabei äußerst selten, dass die Mobilität bei  $F_{min}$  zwischen  $\xi_c = 12$  und  $2 s/mg$  liegt. Was darauf hindeutet, dass dieses Ereignis nur in einem sehr kleinen Intervall von  $U_0$  auftritt.

Eine weitere Erkenntnis aus Abbildung 3.23 ist, dass die Mobilität für kleine Zugkräfte nie den Wert der freien Mobilität  $\xi_{c,0}$  erreicht. Diese Tatsache können wir dadurch erklären, dass der Aubry Übergang ein statisches Phänomen ist. Im Grunde genommen gelten dessen Rahmenbedingungen hier nicht mehr, da das System sich nun bewegt. So sind wir hier im Bereich der dynamischen Reibung, die einen Teil ihrer Energie durch die Bewegung über das Substrat dissipiert. Interessanterweise bedeutet dies, dass unterhalb des Aubry Übergangs die statische Reibung  $F_h$  kleiner als die dynamische  $F_g$  ist. Zum Schluss sollte

noch erwähnt werden, dass in dieser Abbildung Messungen mit verschiedenem  $\epsilon = 0,84$  und  $0,85$  zusammen aufgetragen wurden, was die unterschiedliche Mobilität im reibungsfreiem Zustand erklärt.

Im nächsten Schritt werten wir die dynamischen Daten aus und bestimmen



**Abbildung 3.25:** a) Partikelgeschwindigkeit  $v_d$  als Funktion der treibenden Kraft  $F$  mit  $U_0 = 9,1 k_B T$  und  $a_L = 6,5 \mu m$ . Die schwarze gestrichelte Linie entspricht der Bewegung eines freien Kolloids. b)  $v_d$  als Funktion von  $U_0$  mit  $F = 17 fN$  und  $a_L = 6,0 \mu m$ . Die gestrichelte Linie zeigt die Potenzialstärke an, mit der  $F_{1S}$  berechnet wird.

die Haftreibung  $F_h$  unserer Monolage. Dafür legen wir einen Schwellwert für die Geschwindigkeit  $v_d$  der Monolage fest. Wenn  $v_d$  10% des Wertes eines freien Kolloids  $v_{d,f}$  zum ersten Mal übersteigt, dann definieren wir diese Kraft als  $F_h$ . Sollte  $v_d$  auch für  $F_{min} = 1,05 fN$  über diesen Schwellwert liegen, so definieren wir  $F_h = 0 fN$ . Das Resultat sehen wir in Abbildung 3.24 a), in der  $F_h$  als Funktion der Potenzialstärke  $U_0$  aufgetragen wird. Wie wir bereits vermutet haben, verschwindet die Haftreibung vollständig für  $U_0 < 34 k_B T$ . Um unsere Daten besser mit denen aus den Simulationen vergleichen zu können, ist es sinnvoll die Achsen zu normieren. Für die Abszisse eignet sich die kritische Potenzialstärke  $U_{0,c}$ , die den Aubry Übergang charakterisiert. Um diese so genau wie möglich zu bestimmen, tragen wir in Abbildung 3.24 b) die Mobilität  $\xi_c$  als Funktion der Potenzialstärke auf. Hier sehen wir einen sehr abrupten Übergang von einer beweglichen zu einer immobilen Phase, und erhalten einen hinreichend exakten Wert für  $U_{0,c} = 33,8 \pm 1,2 k_B T$ . Für die Ordinate nutzen wir zur Normierung die Kraft  $F_{1S}$ , bei der ein einzelnes Kolloid sich vom Substrat löst. Diese erhalten wir, wenn wir eine verdünnte Lösung nehmen, in der die Partikel-Partikel Wechselwirkung aufgrund der großen Entfernung der Kolloide zueinander vernachlässigt werden kann. In Abbildung 3.25 sind zwei unterschiedliche Messungen dargestellt, um  $F_{1S}$  zu gewinnen. Dafür wird in a) die mittlere Geschwindigkeit  $v_d$  der Kolloide als Funktion der treibenden Kraft dargestellt.  $v_d$  wird über fünf Kolloide gemittelt, die sich an verschiedenen Positionen des Substratpotenzials befinden, um eventuelle Inhomogenitäten in diesem auszugleichen. Nun schauen wir, bei welcher Kraft die Kolloide sich zum ersten mal vom Substrat lösen.  $F_{1S}$  erhalten wir aus dem Mittelwert dieser Kraft und derjenigen, bei der die Kolloide als letztes noch gepinnt waren. So erhalten wir

für  $F_{1S} = 16,2 \pm 5,4 \text{ fN}$ . Aufgrund der wenigen Datenpunkte in dieser Messung ist die Genauigkeit dieses Wertes sehr gering.

Eine weitere Methode zur Bestimmung von  $F_{1S}$  sehen wir in Abbildung 3.25 **b**). Hier variieren wir die Potenzialstärke und ziehen mit einer konstanten Kraft von  $F = 27 \text{ fN}$  an den Kolloiden. Auch in dieser Messung wird die Geschwindigkeit  $v_d$  über fünf Partikel gemittelt und über  $U_0$  aufgetragen. Die schwarze gestrichelte Linie markiert die Potenzialstärke, an welcher die Kolloide depinnen. Somit ist  $F_{1S} = 27 \text{ fN}$  für  $U_0 = 13,9 \pm 2 \text{ k}_B T$ . Die unterschiedlichen Ergebnisse für  $F_{1S}$  aus den beiden Methoden zeigen nur, dass der Wert für  $F_{1S}$  von  $U_0$  abhängt.

Die Kraft  $F_{1S}$  lässt sich leicht berechnen aus der Gleichung 2.33. Diese ergibt sich aus dem Verlauf des Substratpotenzials projiziert auf die x-Richtung unseres Koordinatensystems. Denn die treibende Kraft  $F$  zeigt in x-Richtung. In dieser Projektion  $V_x(x, 0)$  liegt das Maximum des Potentials auf dem Sattelpunkt von  $U(x, y)$ . Das Maximum der Steigung von  $V_x(x, 0)$ , liefert uns den Ausdruck zur Berechnung von  $F_{1S}$ .

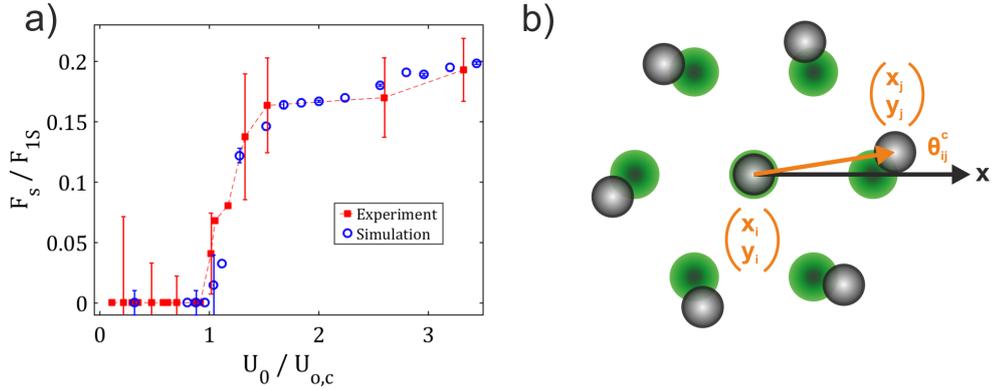
$$F_{1S} = V_0 \max_x [\partial_x V_x(x, 0)] = \frac{8\pi}{9a_L} U_0 \sin\left(\frac{2\pi}{a_L}\right) \Big|_{x=a_L/4} = \frac{8\pi U_0}{9a_L} \quad (3.34)$$

Hier haben wir zusätzlich berücksichtigt, dass die Potenzialstärke im Sattelpunkt  $V_0$  um einen Faktor  $8/9$  kleiner ist als im Maximum  $U_0$  von  $U(x, y)$ . Nun können wir  $F_{1S}$  in Abhängigkeit von  $U_0$  und  $a_L$  berechnen und so unsere Messwerte normieren. Die schwarze gestrichelte Linie in Abbildung 3.24 **a**) wurde mit Formel 3.34 berechnet.

In Abbildung 3.26 werden nun die Ergebnisse aus den Experimenten mit denen aus den MD Simulationen verglichen. Wie wir sehen liegen die Daten für die Haftkraft als Funktion der Potenzialstärke nahezu perfekt aufeinander. Selbst das Abflachen des Anstiegs der Haftreibung stimmt für  $U_0/U_{o,c} > 1,5$  in beiden Datensätzen überein. Der abrupte Anstieg der Haftreibung oberhalb von  $U_{o,c}$  ist zudem ein erstes Indiz dafür, dass der Aubry Übergang in einem zweidimensionalen System ein Phasenübergang erster Ordnung ist. Ein weiteres Indiz für diese These hatten wir bereits weiter oben gesehen in Abb. 3.23, da die Geschwindigkeit der Monolage in der Nähe von  $U_{c,0}$  weder eindeutig der reibungslosen noch der reibungsbehafteten Phase zugeordnet werden konnte.

Wie schon weiter oben beschrieben, ist der Aubry Übergang ebenfalls mit einem strukturellen Übergang verknüpft und vielleicht können wir in diesem eindeutig klären, um was für einen Phasenübergang es sich hier handelt. Es sollte erwähnt werden, dass der Aubry Übergang in einem eindimensionalen System ein Phasenübergang zweiter Ordnung ist. Um diese Eigenschaft besser untersuchen zu können, betrachten wir nun unser System ohne eine treibende Kraft. Auf diese Art befindet sich unser Kristall in seinem Grundzustand, was die Ermittlung struktureller Parameter deutlich vereinfacht.

Um die strukturelle Änderung des Kristalls bei zunehmendem  $U_0$  quantifizieren zu können, bestimmen wir den lokalen Winkel der Monolage gegenüber des Substrats. Dafür müssen wir diesen Winkel  $\theta$  vernünftig definieren. Dies geschieht über die Verbindungslinie des Partikels  $i$  mit den Koordinaten  $(x_i, y_i)$  zu seinen



**Abbildung 3.26:** (a) Haftreibung  $F_h$  als Funktion der Potenzialstärke  $U_0$  in normierten Einheiten. Die roten Quadrate zeigen die Daten aus dem Experiment, die blauen Kreise die der MD Simulation. **b)** Schema zur Berechnung des lokalen Fehlanpassungswinkels  $\theta_{ij}^c$  zwischen Kolloiden (grau) und Potenzial (grün).

jeweiligen nächsten Nachbarn  $j$ . So können wir für jedes Kolloid einen Winkel  $\theta_{ij}^c$  bezüglich der Abszisse berechnen:

$$\theta_{ij}^c = \tan^{-1} \left( \frac{y_j - y_i}{x_j - x_i} \right) \quad (3.35)$$

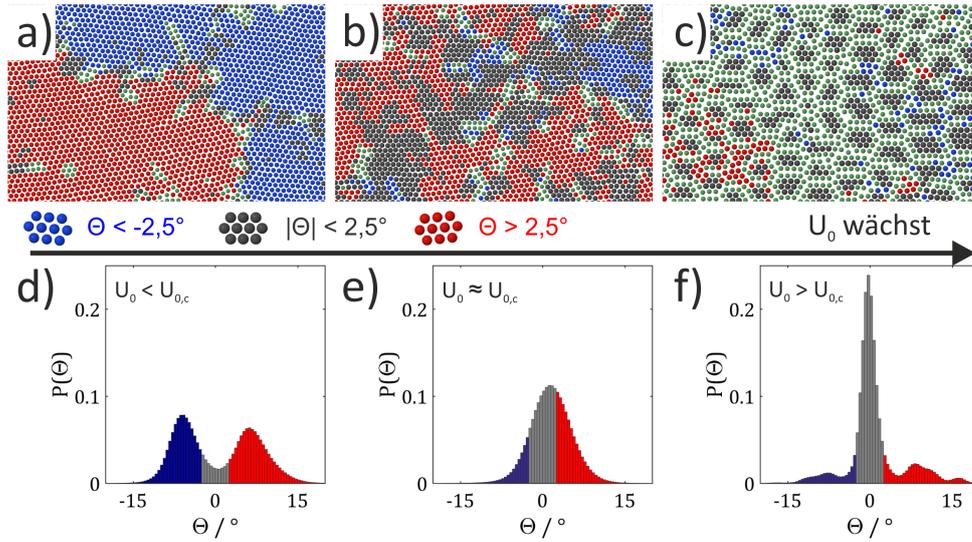
Berücksichtigen wir zudem, dass die so ermittelten Winkel eine sechszählige Rotationssymmetrie besitzen und projizieren wir diese alle auf das Intervall  $(-30^\circ, +30^\circ]$ . So resultiert für den mittleren Winkel  $\theta_i^c$  eines Kolloids mit  $N_i$  nächsten Nachbarn:

$$\theta_i^c = \frac{1}{N_i} \sum_{j=1}^{N_i} \theta_{ij}^c \quad (3.36)$$

In einem perfektem Kristall gäbe es exakt sechs nächste Nachbarn für jedes Kolloid. Da wir aber sowohl thermische Fluktuationen als auch verschiedene Defektstrukturen in unserem Kristall berücksichtigen müssen, benötigen wir ein Auswahlkriterium, damit wir nicht aus versehen zu viele Kolloide in unsere Berechnung integrieren. Dafür legen wir einen maximalen Abstand  $d_{max}$  fest, den die Kolloide zueinander haben dürfen  $d_{ij} < d_{max}$ , damit diese noch für unsere Auswertung berücksichtigt werden. Da der mittlere Abstand der Kolloide der Gitterkonstanten  $a_C$  entspricht und der zu den übernächsten Nachbarn in einem hexagonalem Kristall  $\sqrt{3} \cdot a_C$ , legen wir für  $d_{max}$  den Wert  $1,35 \cdot a_C$  fest.

Zudem kann unser Substrat ebenfalls gegenüber der x-Achse verdreht sein, so müssen wir auch diesen Winkel  $\theta_i^l$  bestimmen und von  $\theta_i^c$  abziehen. Dies geschieht mit derselben Methode wie für die Kolloide und wir erhalten den korrigierten Winkel  $\theta$  für die lokale Orientierung unseres Kristalls am Ort des  $i$ -ten Kolloids bezüglich des Substrats.

Nun müssen wir noch ein Kriterium festlegen, wodurch wir die verschiedenen

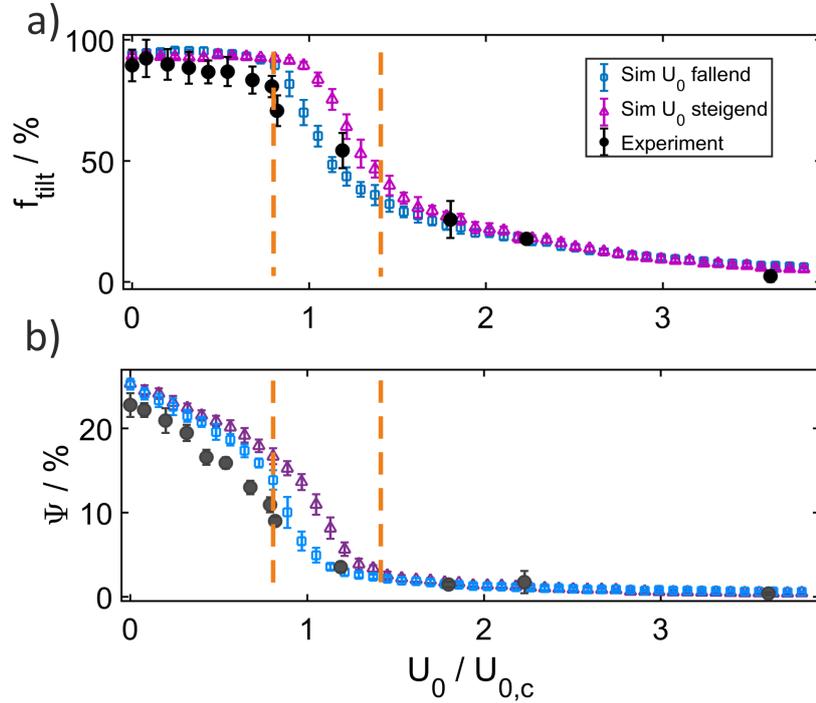


**Abbildung 3.27:** (a) bis (c)) Partikelpositionen des kolloidalen Kristalls für verschiedene Werte von  $U_0$ . Die Partikel sind entsprechend des lokalen Winkels  $\theta$  des Kristalls bezüglich der Orientierung des Substratpotenzials eingefärbt mit rot / blau  $|\theta| > 2,5^\circ$  und grau  $|\theta| < 2,5^\circ$ . **a)** Reibungsfreie Phase mit  $U_0 = 0,63 \cdot U_{0,c}$  **b)** Koexistenzbereich mit  $U_0 = 1,25 \cdot U_{0,c}$  **c)** gepinnte Phase mit  $U_0 = 11,3 \cdot U_{0,c}$ . **(d) bis f)** Verteilung des lokalen Winkels für die in **a)** bis **c)** dargestellten Partikelkonfigurationen.

Phasen des Kristalls unterscheiden können. Dafür betrachten wir zunächst einen unendlich steifen Kristall. Nach der Theorie von Novaco und McTague [120] sollte der ideale Winkel, für ein System mit dem in unserem Experiment verwendeten Parameter  $\epsilon = 0,84$ , nach Gleichung 3.28 berechnet werden können. Dies ergibt dann den Winkel  $\theta_{ideal} = 5,5^\circ$ . Im Fall eines schwachen Potenzials mit  $U_0 \ll U_{pp}$  sollte unser Kristall einen ähnlichen Wert für  $\theta$  annehmen. Da die Winkelverteilung im Experiment recht breit ist, entscheiden wir uns für einen Schwellwert von  $\theta_{th} = 2,5^\circ$ , der etwas kleiner ist als die Hälfte von  $\theta_{ideal}$ . So vermeiden wir eine Fehlzuordnung von Partikeln zu den verschiedenen Phasen des Kristalls.

Da der Kristall nun sowohl eine positive als auch negative Drehrichtung besitzen kann, wählen wir zur Unterscheidung der verschiedenen Domänen in unserer Monolage  $\theta > \theta_{th}$  und  $\theta < -\theta_{th}$ , wenn dieser verdreht ist. Partikel in diesem Zustand werden der reibungsfreien Phase zugeordnet und in rot oder blau eingefärbt. Ist der Winkel  $|\theta| \leq \theta_{th}$ , so werden die Kolloide der gepinnten Phase zugeteilt und in grau dargestellt.

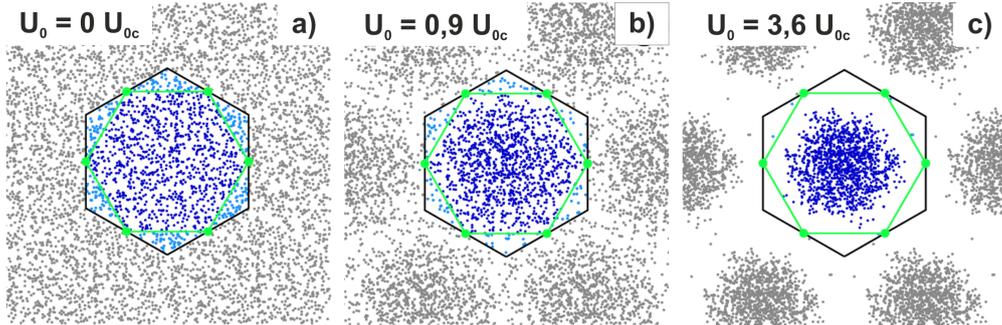
Betrachten wir nun die Situation in Abbildung 3.27 **a)**, in der die Potenzialstärke  $U_0$  unterhalb von  $U_{0,c}$  liegt. Aus den Resultaten der dynamischen Messungen wissen wir, dass sich hier unser System in der reibungsfreien Phase befindet. Nahezu alle Bereiche des Kristalls sind entweder in positive (rot) oder negative Richtung (blau) gegenüber dem Substrat verdreht. Interessant ist hier, dass beide Drehrichtungen ungefähr in gleichem Maße vertreten sind. Dies variiert je



**Abbildung 3.28:** **a)** Anteil der Partikel im reibungsfreiem Zustand  $f_{\text{tilt}}$  als Funktion der normierten Potenzialstärke  $U_0/U_{0,c}$ . Die gestrichelten Linien zeigen den Koexistenzbereich an. **b)** Anteil der Partikel in der Nähe des Potentialsattelpunktes  $\Psi$  als Funktion der normierten Potenzialstärke  $U_0/U_{0,c}$ .

nach Messung, da unser FOV nur einen kleinen Bereich des gesamten Kristalls abbildet. So gibt es ebenso Messungen, bei denen im FOV fast ausschließlich eine Orientierung vorherrscht. Abbildung 3.27 **f)** zeigt die entsprechende Winkelverteilung der Monolage und bestätigt den optischen Eindruck aus Bild **a)**. In den Abbildungen 3.27 **b)** und **c)** wird die Potenzialstärke nun schrittweise erhöht und **e)** und **f)** zeigen die passenden Winkelverteilungen zu den Partikelkonfigurationen. Hier sehen wir, wie die Verdrehung des Kristalls zurückgeht und dieser sich immer stärker an dem Substrat ausrichtet. Somit betrachten wir hier direkt den Aubry Übergang. Zudem wird an dieser Darstellung klar, um welche Art von Phasenübergang es sich in diesem Fall handelt. Ist  $U_0 \approx U_{0,c}$  so wird deutlich, dass beide Phasen in gleichem Maße koexistieren. Ein solcher Zustand ist mit einem Phasenübergang erster Ordnung verknüpft. Schauen wir uns nun an, ob wir dies noch ein wenig hervorheben können.

In Abbildung 3.28 **a)** sehen wir den Anteil der Kolloide die bezüglich des Substrats verdreht sind ( $f_{\text{tilt}}$ ) als Funktion der normierten Potenzialstärke  $U_0/U_{0,c}$ . Es werden die Daten aus MD Simulationen (rote und blaue offene Symbole) mit denen aus dem Experiment (schwarze Punkte) verglichen. Bis zur kritischen Potenzialstärke  $U_{0,c}$  bleibt  $f_{\text{tilt}}$  nahezu konstant bei 100%. Anschließend beobachten wir einen schnellen Abfall in  $f_{\text{tilt}}$  bis für  $U_0 \gg U_{0,c}$  fast der gesamte Kristall an dem Substrat ausgerichtet ist. An den Daten aus der Simulation erkennen



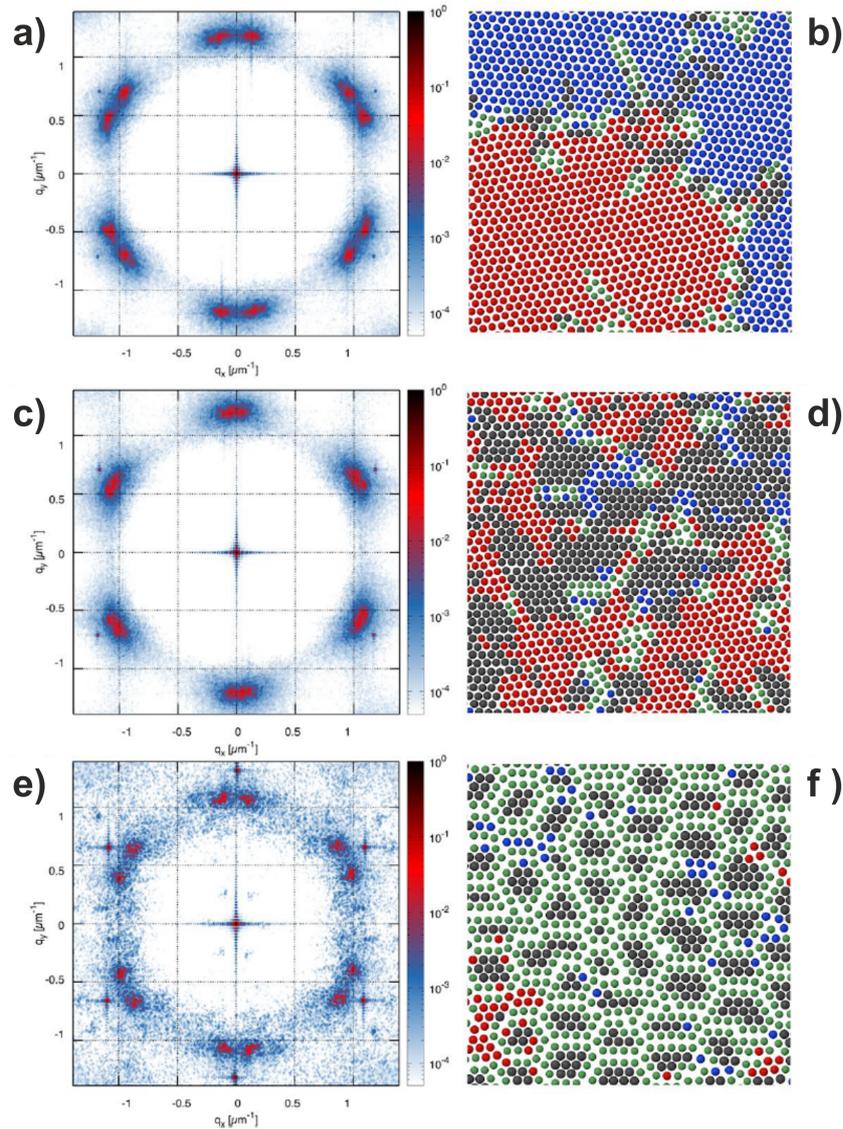
**Abbildung 3.29:** Faltung der Partikelpositionen in die Wigner-Seitz Zelle des Substrates für verschiedenen  $W_0$ .

wir eine Hysterese, je nachdem in welcher Richtung der Übergang durchlaufen wird. Dies ist ein weiterer Hinweis dafür, dass wir hier einen Phasenübergang erster Ordnung beobachten. Diese Hysterese lässt sich in den experimentellen Daten leider nicht beobachten. Der Grund dafür liegt zum einen in den deutlich größeren Schwankungen der Messdaten. Zum Anderen aber auch darin, dass wir im Experiment nach einer Änderung von  $U_0$  zu lange gewartet haben, bis das System in seinen Gleichgewichtszustand relaxiert ist. Dadurch verschwindet die Charakteristik dieser Hysterese im Experiment. Der Koexistenzbereich wird durch die gelben gestrichelten Linien angezeigt. Diese werden bestimmt, indem wir das  $U_0$  suchen, bei dem die Fehlerbalken in den Daten der Simulation sich zum ersten Mal nicht mehr überlappen.

Die Orientierung der Monolage wollen wir nun mit der Energielandschaft der Kolloide vergleichen. Im eindimensionalen Fall hatte Aubry diesen Übergang mit einem Wandel in der energetischen Landschaft der Partikel verbunden, dem sogenannten “breaking of analyticity”. Um diese Eigenschaft zu überprüfen müssen wir einen geeigneten Ordnungsparameter  $\Psi$  definieren. Dieser ist die Anzahl der Kolloide in der Nähe der Potenzialmaxima und wurde in Abschnitt 3.2.1 bereits ausführlich beschrieben. In Abbildung 3.28 **b)** ist  $\Psi$  als Funktion von  $U_0/U_{0,c}$  aufgetragen. Auch dieses mal vergleichen wir die Daten aus dem Experiment (schwarze Punkte) mit denen der Simulation (rote und blaue offene Symbole). In der direkten Gegenüberstellung mit Abb. 3.28 **a)** werden die Gemeinsamkeiten und Unterschiede zwischen  $\Psi$  und  $f_{\text{tilt}}$  hervorgehoben. In beiden Parametern beobachten wir eine Hysterese und beide gehen gegen Null für hinreichend starke Substratpotenziale. Zudem stimmen die experimentellen Daten unter Berücksichtigung der Messgenauigkeit hervorragend mit denen aus der Simulation überein. Dies gilt auch für den Koexistenzbereich. Ein deutlicher Unterschied zeichnet sich aber im Verhalten der beiden Parameter für  $U_0 < U_{0,c}$  ab. Hier fällt  $\Psi$  signifikant ab im Vergleich zu  $f_{\text{tilt}}$ . Dies zeigt, dass  $\Psi$  besonders sensibel auf eine Änderung von  $U_0$  reagiert. Dies ist aber nicht sonderlich überraschend, da  $\Psi$  eine sehr lokale Eigenschaft des Kristalls ist und bereit eine geringe Änderung die Kolloide von den energetisch ungünstigen Positionen in der Energielandschaft vertreibt. Wohingegen der Winkel  $\theta$  einen Flächenparameter darstellt. Nur weil einige wenige Partikel ihre Position geändert haben,

bleibt die insgesamt sehr breite Winkelverteilung der Monolage fast vollständig erhalten. Dies macht sich auch für höhere Potenzialstärken bemerkbar. Selbst nach verlassen des Koexistenzbereichs bei  $U_0 \approx 1,2 \cdot U_{0,c}$  bleiben einige lokale Fehlansichtungen bestehen. Diese reichen aber nicht mehr aus, um den reibungsfreien Zustand aufrecht zu erhalten, da hier keine Kolloide mehr auf den Sattelpunkten des Substrats sitzen.

Beide Parameter zusammen eignen sich aber hervorragend zur Charakterisie-



**Abbildung 3.30:** Vergleich des Strukturfaktors unseres Kristalls (a), c), e)) mit der Konfiguration der Partikel (b), d), f)) für verschiedene  $U_0$ . Die Kolloide sind entsprechend ihres lokalen Drehwinkels eingefärbt, siehe Abb. 3.27 a), b)  $U_0 = 0 \cdot U_{0,c}$ , c), d)  $U_0 = 0,9 \cdot U_{0,c}$  und e), f)  $U_0 = 1,2 \cdot U_{0,c}$ .

rung der einzelnen Phasen des Übergang. Das Ende der reibungsfreien Phase

und der Übergang in den Koexistenzbereich wird deutlich durch  $f_{\text{tilt}}$  gekennzeichnet. Wohingegen der Übergang vom Koexistenzbereich zur gepinnten Phase präzise durch  $\Psi$  eingeleitet wird.

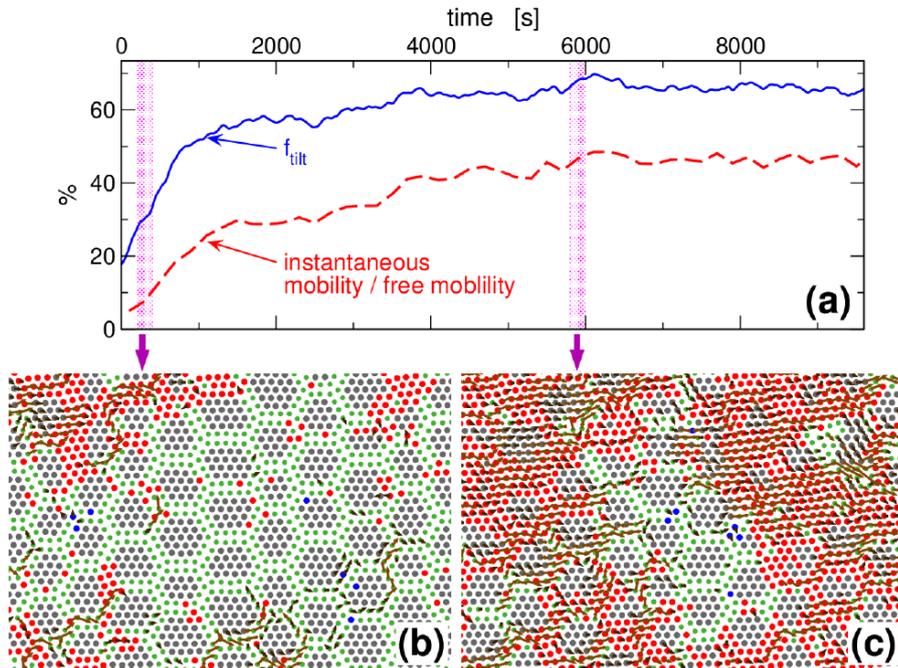
Das Verdrängen der Kolloide von den Potenzialmaxima wird in Abbildung 3.29 besonders anschaulich dargestellt. Hier sehen wir eine Projektion der Partikelpositionen in die Wigner-Seitz Zelle des Substrates. Diese wird durch ein schwarzes Hexagon dargestellt. Das kleinere grüne Hexagon stellt die Äquipotentiallinie des Substrates dar, welche als Abfragekriterium für unser  $\Psi$  verwendet wurde. Mit zunehmendem  $U_0$  vermeiden die Kolloide immer stärker die Positionen nahe dem schwarzen Hexagon. Dies bedeutet, dass diese Energiezustände nicht mehr besetzt sind und nun durch anlegen einer äußeren Kraft überwunden werden müssen, damit eine Bewegung des Kristalls initiiert werden kann.

Die einzelnen Phasen können auch durch den Strukturfaktor dargestellt werden, was in Abbildung 3.30 geschieht. Mit zunehmender Potenzialstärke verblassen die Intensitätsmaxima der ersten Ordnung des Kristalls und die Struktur des Substrat wird immer deutlicher. Zudem lässt sich in dieser Darstellung noch die Periodizität der Cluster, die sich aufgrund der Fehlanpassung im Kristall bilden, erkennen. Diese lässt sich bei hohem  $U_0$  in Abb. 3.29 e durch die Position der Maxima nahe dem Zentrum ablesen.

### 3.2.4 Zusammenfassung und Ausblick

Die vorgestellten Messungen sind der erst experimentelle Nachweis des Aubry Übergangs in einem zweidimensionalen (2D) System. Die mesoskopische Natur unseres Aufbaus gibt uns dadurch die Möglichkeit die mikroskopischen Vorgänge, die diesen Übergang begleiten, im Detail zu beobachten. So konnten wir eindeutig nachweisen, dass der Aubry Übergang in einer zweidimensionalen Grenzfläche auch bei Raumtemperatur erhalten bleibt und sogar ein Phasenübergang erster Ordnung ist. Dies steht im Kontrast zu dem eindimensionalen Modell, in dem dieser Übergang nur von zweiter Ordnung ist. Dieser Unterschied liegt an dem in 2D vorhandenem zusätzlichen Freiheitsgrad, der Rotation des Kristalls gegenüber seines Substrates. Ist dieser Freiheitsgrad nicht zugänglich, zum Beispiel durch eine zu hohe Steifigkeit der Monolage, so könnte sich die Charakteristik des Phasenübergangs erster Ordnung abschwächen oder sogar komplett verschwinden. Diese Erkenntnis ist für Mikrokontakte von besonderem Interesse, da sich hier ideale Kontaktflächen leicht realisieren lassen und aus diesem Grund ein ähnliches Verhalten zeigen könnten wie unser Experiment.

Die erste und einfachste Möglichkeit unsere Messungen zu erweitern wäre sich gezielt auf den Koexistenzbereich zu konzentrieren, um hier eine bessere Datenglage zu erhalten. Die Simulationen haben gezeigt, dass es sich hierbei um einen instabilen Zustand handelt, der durch anlegen einer äußeren Kraft verändert werden kann. Dies sehen wir in Abbildung 3.31. Ohne treibende Kraft befindet sich das System am Rand des Koexistenzbereich mit  $U_0 = 1, 2 \cdot U_{0,c}$ . Der überwiegende Teil des Kristalls ist am Substrat ausgerichtet und befindet sich im gepinnten Zustand,  $t = 0$  s **b**). Wird nun eine kleine äußere Kraft  $F = 1, 07 \text{ fN}$



**Abbildung 3.31:** **a)** Entwicklung des Anteils der Partikel mit unangepasster Orientierung  $f_{\text{tilt}}$  (blaue Linie) und der Mobilität  $\xi_c$  (gestrichelte rote Linie) als Funktion der Zeit für eine treibende Kraft  $F = 1,07 fN$  und  $U_0 = 1,2U_{0,c}$ . **b)** und **c)** Konfiguration des Kristalls mit eingezeichneter Beweglichkeit der Kolloide (Pfeile). **b)** Gepinnter Kristall nach  $t = 200 s$ , erster lila schraffierter Bereich. **c)** Nach  $t = 2900 s$  beginnt der Kristall zu depinnen und geht in seine Verdrehte Orientierung über, zweiter lila schraffierter Bereich [124].

angelegt, so ändert sich dieser Zustand mit der Zeit  $t$ . In Abbildung 3.31 **a)** sehen wir diese Entwicklung in Abhängigkeit der Parameter  $f_{\text{tilt}}$  und der Mobilität  $\xi_c$  der Kolloide. Dies zeigt, dass mit zunehmendem  $\xi_c$  die Monolage immer stärker gegenüber dem Substrat verdreht wird und so der Anteil der Partikel in der reibungsfreien Phase steigt. In gewisser Hinsicht wird der durch das erhöhte Potenzial initiierte Phasenübergang wieder teilweise zurückgedreht. Die Abbildung 3.31 **c)** zeigt, dass nach ungefähr  $t = 6000 s$  ein neuer Gleichgewichtszustand eingenommen wurde und nun ein großer Teil des Kristalls sich in der reibungsfreien Phase befindet [124].

Diese Beobachtung der Simulation würde sich leicht im Experiment überprüfen lassen, wenn wir gezielt Messungen in diesem Bereich durchführen und die Monolage über einen hinreichend langen Zeitraum observieren. Dies würde uns zudem die Möglichkeit geben die zeitliche Entwicklung dieses neuen Gleichgewichtszustandes zu untersuchen und dessen Dynamik zu ergründen. Dies führt schließlich auf die Frage, warum wir im Aubry Übergang eine verschwindende Haftreibung  $F_h$  beobachten, die Gleitreibung  $F_g$  einen endlichen Wert größer Null behält. Zurzeit wird vermutet, dass dies mit der Dissipation von Energie in Phononen und Solitonen zusammenhängt, dies ist aber noch nicht im Experiment bestätigt worden.

Eine weitere interessante Fragestellung für diesen Aufbau wäre die Untersuchung von Kristallen mit endlicher Ausdehnung. Durch die Ausnutzung von Kräften, die durch Verarmungszonen in Lösungen mit verschiedenen Partikeldurchmessern (multidispersen Lösungen) wirken, können kolloidale Kristalle mit einem begrenzten Durchmesser von wenigen Gitterkonstanten erzeugt werden. Experimente an diesen Systemen könnten Antworten auf die Frage geben, inwieweit die bisherigen Erkenntnisse auch für diese endlichen Systeme erhalten bleiben. Ein letzter Punkt zur Erweiterung des Experimentes bestünde darin, eine strukturierte Oberfläche in der Probenkammer zu erzeugen. Diese könnte durch Photolithographie hergestellt werden. Damit könnten wir entweder Geometrien erzeugen, die mit optischen Interferenzmustern unmöglich sind, oder wir nutzen diese Strukturierung als eine weitere Kontaktfläche. So würden die Kolloide nicht mehr diese Rolle übernehmen, sondern als eine Art Schmierfilm zwischen zwei Oberflächen dienen.

## 4 Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen Bedanken, die mich und meine Arbeit in den letzten vier Jahren begleitet und unterstützt haben. Dazu gehören vor allem Prof. Clemens Bechinger, ohne ihm hätte es diese Doktorarbeit nicht gegeben. Seine Tür war stets für seine Doktoranden geöffnet und er hat sich auch die Zeit genommen, die Anliegen seiner Mitarbeiter ernst zu nehmen. Mit ihm konnte ich meine Ergebnisse diskutieren und er hat mit seiner akkuraten Art meine oft schludrige Ausdrucksweise korrigiert.

Als nächstes möchte ich mich bei den Gruppen von Prof. Tosatti und Prof. Manini bedanken, die die Simulationen für Kapitel 3.2 durchgeführt haben. Zudem haben sie mich umfangreich bei der Auswertung meiner Messdaten unterstützt und viele positive Beiträge zu dem gesamten Projekt geleistet. Ein besonderer Dank in diesem Zusammenhang geht an Andrea Silva, dem Masterstudenten von Nikola Manini. Er hat die meisten Simulationen durchgeführt und sich unermüdlich und erfolgreich in das Projekt eingebracht.

Dann wären da noch die technischen Mitarbeiter der Gruppe, Hans-Jürgen Kümmerer und Uwe Rau, die immer ein offenes Ohr und die nötigen Fähigkeiten besaßen, um mir mit meiner Arbeit zu helfen. Egal ob es Probleme mit den Rechnern, der Software oder den mechanischen Geräten gab, die mich schon fast verzweifeln ließen. Sie waren zur Stelle und haben sich der Sache angenommen. Vielen Dank für euren Beistand.

Jetzt muss ich mich noch bei der guten Fee unserer Arbeitsgruppe bedanken, Ulrike Offenbeck. Ohne deine aufopferungsvolle Arbeit im Sekretariat würden wir Physiker in dem ganzen Papierkram untergehen und im Chaos der Verwaltung versinken.

Für nützliche Diskussionen und Simulationen zum Thema Shapiro Steps danke ich Sascha Gerloff. Schade, dass am Ende nicht mehr genügend Zeit für ein gemeinsames Projekt vorhanden war. Dennoch hat mir deine Arbeit sehr weitergeholfen.

Für die Einarbeitung und den Start in die Kolloidphysik bedanke ich mich bei Christoph July. Durch seine Programmierkenntnisse habe ich viel neues gelehrt. Besonders über Matlab, mit dem ich zu Beginn meiner Arbeit fast keine Erfahrung hatte.

Nun komme ich zu allen jetzigen und ehemaligen Mitgliedern der Gruppe Bechinger, die mich direkt oder indirekt unterstützt und zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Zu Beginn hatte ich keine Ahnung von der weichen Materie, und vieles, was ich nun weiß, habe ich von euch gelernt.

Zum Schluss bedanke ich mich noch bei meiner Familie, die mich immer unterstützt hat, wo immer es ihr möglich war. Auch wenn ihr selbst eine schwere Zeit durchmacht. Danke für Alles!

# Bibliography

- [1] T. Bohlein, “Getriebene kolloidale monolagen auf lichtinduzierten substratpotentialen,” PhD thesis, 2013.
- [2] M. Urbakh, J. Klatter, D. Gourdon, and J. Israelachvili, “The nonlinear nature of friction,” *Nature*, vol. 430, no. 6999, pp. 525–528, 2004.
- [3] V. Bormuth, V. Varga, J. Howard, and E. Schäffer, “Protein friction limits diffusive and directed movements of kinesin motors on microtubules,” *Science*, vol. 325, no. 5942, pp. 870–873, 2009.
- [4] C. Scholz, “Earthquakes and friction laws,” *Nature*, vol. 391, no. 6662, pp. 37–42, 1998.
- [5] F. P. Bowden and D. Tabor, *The friction and lubrication of solids*. 2001.
- [6] A. Vanossi, N. Manini, M. Urbakh, S. Zapperi, and E. Tosatti, “Modeling friction: From nano, to meso scales,” *Rev Mod Phys*, vol. 85, p. 529, 2013.
- [7] G. Binnig, C. F. Quate, and C. Gerber, “Atomic force microscope,” *Phys Rev Lett*, vol. 56, p. 930, 1986.
- [8] J. Krim and A. Widom, “Damping of a crystal oscillator by an adsorbed monolayer and its relation to interfacial viscosity,” *Phys Rev B*, vol. 38, p. 12 184, 1988.
- [9] J. Israelachvili, “Adhesion forces between surfaces in liquids and condensable vapours,” *Surf Sci Rep*, vol. 14, p. 109, 1992.
- [10] R. T. Tung and F. Schrey, “Growth of epitaxial NiSi on Si at room temperature,” *Appl Phys Lett*, vol. 55, p. 256, 1989.
- [11] B. Bhushan, *Nanotribology and Nanomechanics: An introduction*. 2005.
- [12] E. Gerde and M. Marder, “Friction and fracture,” *Nature*, vol. 413, pp. 285–288, 2001.
- [13] V. L. Popov, *Kontaktmechanik und Reibung: von der Nanotribologie bis zur Erdbebendynamik*. Springer-Verlag, 2016.
- [14] W. Demtröder, *Experimentalphysik 1: Mechanik und Wärme*. Springer, 2005, vol. 2.
- [15] L. Prandtl, “A conceptual model to kinetic theory of solid bodies,” *Z. Angew. Math. Mech*, vol. 8, pp. 85–106, 1928.
- [16] A. Socolius, R. Bennewitz, and E. Meyer, “Transition from stick-slip to continuous sliding in atomic friction: Entering a new regime of ultralow friction,” *Physical Review Letters*, vol. 92, p. 4, 2004.

- [17] S. Medyanik, W. Liu, I.-H. Sung, and R. W. Carpick, “Predictions and observations of multiple slip modes in atomic-scale friction,” *Physical Review Letters*, vol. 97, p. 136 106, 2006.
- [18] S. Y. Krylov, K. B. Jinesh, H. Valk, M. Dienwiebel, and J. W. M. Frenken, “Thermally induced suppression of friction at the atomic scale,” *Phys. Rev. E*, vol. 71, 065101(R), 2005.
- [19] Y. Sang, M. Dubé, and M. Grant, “Thermal effects on atomic friction,” *Physical Review Letters*, vol. 87, p. 17, 2001.
- [20] T. Gyalog, M. Bammerlin, R. Lüthi, E. Meyer, and H. Thomas, “Mechanism of atomic friction,” *EPL*, vol. 31, no. 5-6, p. 269, 1995.
- [21] M. G. Rozman, M. Urbakh, and J. Klafter, “Controlling chaotic frictional forces,” *Phys. Rev. E*, vol. 57, p. 7340, 1998.
- [22] J. Frenkel and T. Kontorova, “The model of dislocation in solid body,” *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, vol. 8, no. 1340, 1938.
- [23] T. Kontorova and J. Frenkel, “On the theory of plastic deformation and twinning. ii,” *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, vol. 8, pp. 1340–1348, 1938.
- [24] O. M. Braun and Y. S. Kivshar, “Nonlinear dynamics of the frenkel kontorova model,” *Physics Reports*, vol. 306, no. 1, pp. 1–108, 1998.
- [25] O. M. Braun, A. R. Bishop, and J. Röder, “Hysteresis in the underdamped driven frenkel-kontorova model,” *Physical Review Letters*, vol. 79, p. 3692, 1997.
- [26] N. Manini, O. M. Braun, E. Tosatti, R. Guerra, and A. Vanossi, “Friction and nonlinear dynamics,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 28, no. 29, p. 293 001, 2016.
- [27] A. Vanossi, J. Röder, A. R. Bishop, and V. Bortolani, “Underdamped commensurate dynamics in a driven frenkel-kontorova type model,” *Phys. Rev. Es*, vol. 67, p. 016 605, 2003.
- [28] L. M. Floria and J. J. Mazo, *Dissipative dynamics of the Frenkel-Kontorova model*, 6. 1996, vol. 45, pp. 505–598.
- [29] O. M. Braun and Y. Kivshar, *The Frenkel-Kontorova model: concepts, methods, and applications*. Springer Science Business Media, 2013.
- [30] J. Hammerberg, B. Holian, J. Röder, A. Bishop, and S. Zhou, “Nonlinear dynamics and the problem of slip at material interfaces,” *Physica D: Nonlinear Phenomena*, vol. 123, no. 1, pp. 330–340, 1998.
- [31] T. Bohlein, J. Mikhael, and C. Bechinger, “Observation of kinks and antikinks in colloidal monolayers driven across ordered surfaces,” *Nature materials*, vol. 11, no. 2, pp. 126–130, 2012.
- [32] T. Bohlein and C. Bechinger, “Experimental observation of directional locking and dynamical ordering of colloidal monolayers driven across quasiperiodic substrates,” *Physical review letters*, vol. 109, no. 5, p. 058 301, 2012.

- [33] O. M. Braun, M. V. Paliy, J. Röder, and A. R. Bishop, “Locked-to-running transition in the two-dimensional underdamped driven frenkel-kontorova model,” *Physical Review E*, vol. 63, no. 3, p. 036 129, 2001.
- [34] E. Gnecco and E. Meyer, *Fundamentals of Friction and Wear on the Nanoscale*. Springer, 2015.
- [35] S. Watanabe, H. S. van der Zant, S. H. Strogatz, and T. P. Orlando, “Dynamics of circular arrays of josephson junctions and the discrete sine-gordon equation,” *Physica D: Nonlinear Phenomena*, vol. 97, no. 4, pp. 429–470, 1996.
- [36] D. W. McLaughlin and A. C. Scott, “Perturbation analysis of fluxon dynamics,” *Physical Review A*, vol. 18, no. 4, p. 1652, 1978.
- [37] P. Lee and T. Rice, “Electric field depinning of charge density waves,” *Physical Review B*, vol. 19, no. 8, p. 3970, 1979.
- [38] P. Franzosi, G. Salvati, M. Scaffardi, F. Genova, S. Pellegrino, and A. Stano, “Cracks in inp-based heterostructures,” *Journal of crystal growth*, vol. 88, no. 1, pp. 135–142, 1988.
- [39] S. M. Rubinstein, G. Cohen, and J. Fineberg, “Detachment fronts and the onset of dynamic friction,” *Nature*, vol. 430, no. 7003, pp. 1005–1009, 2004.
- [40] S. Rubinstein, G. Cohen, and J. Fineberg, “Dynamics of precursors to frictional sliding,” *Physical review letters*, vol. 98, no. 22, p. 226 103, 2007.
- [41] O. Braun, I. Barel, and M. Urbakh, “Dynamics of transition from static to kinetic friction,” *Physical review letters*, vol. 103, no. 19, p. 194 301, 2009.
- [42] O. Ben-David, G. Cohen, and J. Fineberg, “The dynamics of the onset of frictional slip,” *Science*, vol. 330, no. 6001, pp. 211–214, 2010.
- [43] E. G. C. RodopoulosA and J. R. Yates, *Problems of fracture mechanics and fatigue: a solution guide*. Springer Science & Business Media, 2013.
- [44] O. Ben-David and J. Fineberg, “Static friction coefficient is not a material constant,” *Physical review letters*, vol. 106, no. 25, p. 254 301, 2011.
- [45] G. Zeng, Y. Duan, F. Besenbacher, and M. Dong, “Nanomechanics of amyloid materials studied by atomic force microscopy,” in *Atomic Force Microscopy Investigations into Biology-From Cell to Protein*, InTech, 2012.
- [46] F. F. Abraham, I. P. Batra, and S. Ciraci, “Effect of tip profile on atomic-force microscope images: A model study,” *Physical review letters*, vol. 60, no. 13, p. 1314, 1988.
- [47] M. Dienwiebel, E. D. Kuyper, L. Crama, J. Frenken, . T. Zijlstra, and E. van der Drift, “Design and performance of a high-resolution frictional force microscope with quantitative three-dimensional force sensitivity,” *Review of scientific instruments*, vol. 76, no. 4, p. 043 704, 2005.

- [48] T. Gotszalk, P. Grabiec, and I. W. Rangelow, “Piezoresistive sensors for scanning probe microscopy,” *Ultramicroscopy*, vol. 82, no. 1, pp. 39–48, 2000.
- [49] R. Bennewitz, “Friction force microscopy,” in *Fundamentals of Friction and Wear on the Nanoscale*, Springer, 2015, pp. 3–16.
- [50] W. A. Ducker, T. J. Senden, and R. M. Pashley, “Direct measurement of colloidal forces using an atomic force microscope,” *nature*, vol. 353, no. 6341, p. 239, 1991.
- [51] M. Reinstaedtler, U. Rabe, V. Scherer, J. A. Turner, and W. Arnold, “Imaging of flexural and torsional resonance modes of atomic force microscopy cantilevers using optical interferometry,” *Surface Science*, vol. 532, pp. 1152–1158, 2003.
- [52] M. Ruths, N. Alcantar, and J. Israelachvili, “Boundary friction of aromatic silane self-assembled monolayers measured with the surface forces apparatus and friction force microscopy,” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 107, no. 40, pp. 11 149–11 157, 2003.
- [53] E. Gnecco, R. Bennewitz, T. Gyalog, C. Loppacher, M. Bammerlin, E. Meyer, and H.-J. Güntherodt, “Velocity dependence of atomic friction,” *Physical Review Letters*, vol. 84, no. 6, p. 1172, 2000.
- [54] R. Álvarez-Asencio, J. Pan, E. Thormann, and M. W. Rutland, “Tribological properties mapping: Local variation in friction coefficient and adhesion,” *Tribology letters*, vol. 50, no. 3, pp. 387–395, 2013.
- [55] E. Meyer, R. Lüthi, L. Howald, M. Bammerlin, M. Guggisberg, and H.-J. Güntherodt, “Site-specific friction force spectroscopy,” *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, vol. 14, no. 2, pp. 1285–1288, 1996.
- [56] R. W. Carpick and M. Salmeron, “Scratching the surface: Fundamental investigations of tribology with atomic force microscopy,” *Chemical reviews*, vol. 97, no. 4, pp. 1163–1194, 1997.
- [57] D. Tabor and R. H. S. Winterton, “The direct measurement of normal and retarded van der waals forces,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, pp. 435–450, 1969.
- [58] J. Israelachvili, “Thin film studies using multiple-beam interferometry,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 44, no. 2, pp. 259–272, 1973.
- [59] GustavoLuengo, M. Heuberge, and J. Israelachvili, “Tribology of shearing polymer surfaces. 2. polymer (pnbma) sliding on mica,” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 104, no. 33, pp. 7944–7950, 2000.
- [60] U. Raviv, P. Laurat, and J. Klein, “Fluidity of water confined to subnanometre films,” *Nature*, vol. 413, no. 6851, pp. 51–54, 2001.

- [61] J. Klein, E. Kumacheva, D. Perahia, D. Mahalu, and S. Warburg, “Interfacial sliding of polymer-bearing surfaces,” *Faraday Discussions*, vol. 98, pp. 173–188, 1994.
- [62] B. Bhushan, J. N. Israelachvili, and U. Landman, “Nanotribology: Friction, wear and,” *Nature*, vol. 374, p. 13, 1995.
- [63] S. Berg, T. Prellberg, and D. Johannsmann, “Nonlinear contact mechanics based on ring-down experiments with quartz crystal resonators,” *Review of scientific instruments*, vol. 74, no. 1, pp. 118–126, 2003.
- [64] A. Vanossi and O. Braun, “Driven dynamics of simplified tribological models,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 19, no. 30, p. 305 017, 2007.
- [65] A. C. Anselmo and S. Mitragotri, “Impact of particle elasticity on particle-based drug delivery systems,” *Advanced drug delivery reviews*, vol. 108, pp. 51–67, 2017.
- [66] D. A. Weitz and W. B. Russel, “New developments in colloid science,” *Mrs Bulletin*, vol. 29, no. 2, pp. 82–84, 2004.
- [67] W. Poon, “Colloids as big atoms,” *Science*, vol. 304, no. 5672, pp. 830–831, 2004.
- [68] J. K. Dhont, *An introduction to dynamics of colloids*. Elsevier, 1996, vol. 2.
- [69] A. Einstein, “Über die von der molekularkinetischen theorie der wärme geforderte bewegung von in ruhenden flüssigkeiten suspendierten teilchen,” *Annalen der physik*, vol. 322, no. 8, pp. 549–560, 1905.
- [70] R. Tadmor, “The london-van der waals interaction energy between objects of various geometries,” *Journal of physics: Condensed matter*, vol. 13, no. 9, p. L195, 2001.
- [71] G. Findenegg, “Jn israelachvili: Intermolecular and surface forces (with applications to colloidal and biological systems),” *Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie*, vol. 90, no. 12, pp. 1241–1242, 1986.
- [72] J. Mikhael, “Depletion forces in binary colloidal systems,” Master’s thesis, Universität Suttgart, 2005.
- [73] E. J. W. Verwey, J. T. G. Overbeek, and J. T. G. Overbeek, *Theory of the stability of lyophobic colloids*. Courier Corporation, 1999.
- [74] J. Baumgartl, J. L. Arauz-Lara, and C. Bechinger, “Like-charge attraction in confinement: Myth or truth?” *Soft Matter*, vol. 2, no. 8, pp. 631–635, 2006.
- [75] J. Dobnikar, M. Brunner, von Hans-Hennig Grünberg, and C. Bechinger, “Three-body interactions in colloidal systems,” *Physical Review E*, vol. 69, no. 3, p. 031 402, 2004.
- [76] A. Ashkin, “Acceleration and trapping of particles by radiation pressure,” *Physical review letters*, vol. 24, no. 4, p. 156, 1970.

- [77] A. M. Kaufman, B. J. Lester, and C. A. Regal, “Cooling a single atom in an optical tweezer to its quantum ground state,” *Physical Review X*, vol. 2, no. 4, p. 041 014, 2012.
- [78] L. Landau and E. Lifschitz, *Lehrbuch der theoretischen Physik, Band VIII: Elektrodynamik der Kontinua*. Akademie-Verlag, 1967.
- [79] T. Tlusty, A. Meller, and B.-R. Ziv, “Optical gradient forces of strongly localized fields,” *Physical review letters*, vol. 81, no. 8, p. 1738, 1998.
- [80] S. P. Gorkhali, J. Qi, and G. P. Crawford, “Switchable quasi-crystal structures with five-, seven-, and ninefold symmetries,” *JOSA B*, vol. 23, no. 1, pp. 149–158, 2006.
- [81] C. Bechinger, M. Brunner, and P. Leiderer, “Phase behavior of two-dimensional colloidal systems in the presence of periodic light fields,” *Physical review letters*, vol. 86, no. 5, p. 930, 2001.
- [82] T. Palberg, W. Härtl, U. Wittig, H. Versmold, M. Würth, and E. Simnacher, “Continuous deionization of latex suspensions,” *The Journal of Physical Chemistry*, vol. 96, no. 20, pp. 8180–8183, 1992.
- [83] E. Sirota, H. Ou-Yang, S. Sinha, P. Chaikin, J. Axe, and Y. Fujii, “Complete phase diagram of a charged colloidal system: A synchro-tron x-ray scattering study,” *Physical review letters*, vol. 62, no. 13, p. 1524, 1989.
- [84] J. Mikhael, “Colloidal monolayers on quasiperiodic light fields,” PhD thesis, 2010.
- [85] E. A. Donley, T. P. Heavner, F. Levi, M. Tataw, and S. R. Jefferts, “Double-pass acousto-optic modulator system,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 76, no. 6, p. 063 112, 2005.
- [86] L. Wang, T. Tschudi, T. Halldorsson, and P. R. Petursson, “Speckle reduction in laser projection systems by diffractive optical elements,” *Applied optics*, vol. 37, no. 10, pp. 1770–1775, 1998.
- [87] J. C. Crocker and D. G. Grier, “Methods of digital video microscopy for colloidal studies,” *Journal of colloid and interface science*, vol. 179, no. 1, pp. 298–310, 1996.
- [88] E. Falck, J. Lahtinen, I. Vattulainen, and T. Ala-Nissila, “Influence of hydrodynamics on many-particle diffusion in 2d colloidal suspensions,” *The European Physical Journal E*, vol. 13, no. 3, pp. 267–275, 2004.
- [89] H. Brenner, “The slow motion of a sphere through a viscous fluid towards a plane surface,” *Chemical engineering science*, vol. 16, no. 3-4, pp. 242–251, 1961.
- [90] A. Libal, C. Reichhardt, B. Janko, and C. O. Reichhardt, “Dynamics, rectification, and fractionation for colloids on flashing substrates,” *Physical review letters*, vol. 96, no. 18, p. 188 301, 2006.
- [91] M. P. Juniper, A. V. Straube, R. Besseling, D. G. Aarts, and R. P. Dullens, “Microscopic dynamics of synchronization in driven colloids,” *Nature communications*, vol. 6, p. 7187, 2015.

- [92] B. D. Josephson, “Possible new effects in superconductive tunnelling,” *Physics letters*, vol. 1, no. 7, pp. 251–253, 1962.
- [93] D. McCumber, “Effect of ac impedance on dc voltage-current characteristics of superconductor weak-link junctions,” *Journal of Applied Physics*, vol. 39, no. 7, pp. 3113–3118, 1968.
- [94] S. Shapiro, “Josephson currents in superconducting tunneling: The effect of microwaves and other observations,” *Physical Review Letters*, vol. 11, no. 2, p. 80, 1963.
- [95] R. Feynman, R. Leighton, and M. Sands, *The feynman lectures on physics, the definitive edition volume 3 (feynman lectures on physics (hard-cover))*, 2005.
- [96] H. Storck, W. Littmann, J. Wallaschek, and M. Mracek, “The effect of friction reduction in presence of ultrasonic vibrations and its relevance to travelling wave ultrasonic motors,” *Ultrasonics*, vol. 40, no. 1-8, pp. 379–383, 2002.
- [97] V. Kumar and I. Hutchings, “Reduction of the sliding friction of metals by the application of longitudinal or transverse ultrasonic vibration,” *Tribology International*, vol. 37, no. 10, pp. 833–840, 2004.
- [98] H. D. Fridman and P. Levesque, “Reduction of static friction by sonic vibrations,” *Journal of applied physics*, vol. 30, no. 10, pp. 1572–1575, 1959.
- [99] V. Severdenko, V. Klubovich, and A. V. Stepanenko, *Ultrasonic rolling and drawing of metals*. Consultants Bureau, 1972.
- [100] J. Starčević, “Tribospektroskopie als neue methode zur untersuchung von reibungsmechanismen: Theoretische grundlagen und experiment,” PhD thesis, 2008.
- [101] B. Hu and J. Tekić, “Frequency oscillations of the shapiro steps,” *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 10, p. 102 119, 2007.
- [102] —, “Amplitude and frequency dependence of the shapiro steps in the dc-and ac-driven overdamped frenkel-kontorova model,” *Physical Review E*, vol. 75, no. 5, p. 056 608, 2007.
- [103] Y. Yang, W.-S. Duan, L. Yang, J.-M. Chen, and M.-M. Lin, “Rectification and phase locking in overdamped two-dimensional frenkel-kontorova model,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 93, no. 1, p. 16 001, 2011.
- [104] M. P. Juniper, U. Zimmermann, A. V. Straube, R. Besseling, D. G. Aarts, H. Löwen, and R. P. Dullens, “Dynamic mode locking in a driven colloidal system: Experiments and theory,” *New Journal of Physics*, vol. 19, no. 1, p. 013 010, 2017.
- [105] J. Hasnain, S. Jungblut, and C. Dellago, “Dynamic phases of colloidal monolayers sliding on commensurate substrates,” *Soft Matter*, vol. 9, no. 25, pp. 5867–5873, 2013.

- [106] S. V. P. Ticco, G. Fornasier, N. Manini, G. E. Santoro, E. Tosatti, and A. Vanossi, “Subharmonic shapiro steps of sliding colloidal monolayers in optical lattices,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 28, no. 13, p. 134006, 2016.
- [107] V. Zharnitsky, I. Mitkov, and N. Grønbech-Jensen, “ $\pi$  kinks in strongly ac driven sine-gordon systems,” *Physical Review E*, vol. 58, no. 1, R52, 1998.
- [108] C. Reichhardt, R. T. Scalettar, G. T. Zimányi, and N. Grønbech-Jensen, “Phase-locking of vortex lattices interacting with periodic pinning,” *Physical Review B*, vol. 61, no. 18, R11914, 2000.
- [109] R. Thorne, J. Hubacek, W. Lyons, H. Lyding, and J. Tucker, “Ac-dc interference, complete mode locking, and origin of coherent oscillations in sliding charge-density-wave systems,” *Physical Review B*, vol. 37, no. 17, p. 10055, 1988.
- [110] J. Tekić and B. Hu, “Properties of the shapiro steps in the ac driven frenkel-kontorova model with deformable substrate potential,” *Physical Review E*, vol. 81, no. 3, p. 036604, 2010.
- [111] O. M. Braun, T. Dauxois, M. V. Paliy, and M. Peyrard, “Nonlinear mobility of the generalized frenkel-kontorova model,” *Physical Review E*, vol. 55, no. 3, p. 3598, 1997.
- [112] M. Peyrard and S. Aubry, “Critical behaviour at the transition by breaking of analyticity in the discrete frenkel-kontorova model,” *Journal of Physics C: Solid State Physics*, vol. 16, no. 9, p. 1593, 1983.
- [113] D. Mandelli, A. Vanossi, N. Manini, and E. Tosatti, “Finite-temperature phase diagram and critical point of the aubry pinned-sliding transition in a two-dimensional monolayer,” *Physical Review B*, vol. 95, no. 24, p. 245403, 2017.
- [114] J. Kiethe, R. Nigmatullin, D. Kalincev, T. Schmirander, and T. Mehlstäubler, “Probing nanofriction and aubry-type signatures in a finite self-organized system,” *Nature communications*, vol. 8, p. 15364, 2017.
- [115] A. Bylinskii, D. Gangloff, I. Counts, and V. Vuletić, “Observation of aubry-type transition in finite atom chains via friction,” *Nature materials*, vol. 15, no. 7, p. 717, 2016.
- [116] M. Peyrard and S. Aubry, “Critical behaviour at the transition by breaking of analyticity in the discrete frenkel-kontorova model,” *Journal of Physics C: Solid State Physics*, vol. 16, no. 9, p. 1593, 1983.
- [117] S. Coppersmith and D. Fisher, “Pinning transition of the discrete sine-gordon equation,” *Physical Review B*, vol. 28, no. 5, p. 2566, 1983.
- [118] D. Mandelli, A. Vanossi, M. Invernizzi, S. Paronuzzi, N. Manini, and E. Tosatti, “Superlubric-pinned transition in sliding incommensurate colloidal monolayers,” *Physical Review B*, vol. 92, no. 13, p. 134306, 2015.

- [119] C. G. Shaw, S. F. Jr, and M. Chinn, “Observation of orientational ordering of incommensurate argon monolayers on graphite,” *Physical Review Letters*, vol. 41, no. 14, p. 955, 1978.
- [120] J. McTague and A. Novaco, “Substrate-induced strain and orientational ordering in adsorbed monolayers,” *Physical Review B*, vol. 19, no. 10, p. 5299, 1979.
- [121] C. C. Vu, S. Zhang, M. Urbakh, Q. Li, Q.-C. He, and Q. Zheng, “Observation of normal-force-independent superlubricity in mesoscopic graphite contacts,” *Physical Review B*, vol. 94, no. 8, p. 081405, 2016.
- [122] D. Mandelli, A. Vanossi, N. Manini, and E. Tosatti, “Friction boosted by equilibrium misalignment of incommensurate two-dimensional colloid monolayers,” *Physical review letters*, vol. 114, no. 10, p. 108302, 2015.
- [123] F. Grey and J. Bohr, “A symmetry principle for epitaxial rotation,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 18, no. 8, p. 717, 1992.
- [124] A. Silva, “Simulation of depinning transition in a 2d colloidal layer,” Master’s thesis, Università Degli Studi Di Milano, 2017.

# Erklärung

angemeldeter Arbeitstitel:

Nanotribologie an 2D kolloidalen Kristallen auf oszillierenden Substratpotenzialen

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Stuttgart, den 12.06.2018

Thorsten Brazda