

DYNAMIK MAGNETISCHER KOLLOIDE ÜBER MAGNETISCHEN BLASENGITTERN

Diplomarbeit

am

Lehrstuhl für Experimentalphysik V
der Universität Bayreuth

vorgelegt von

Christiane Jungnickel

am

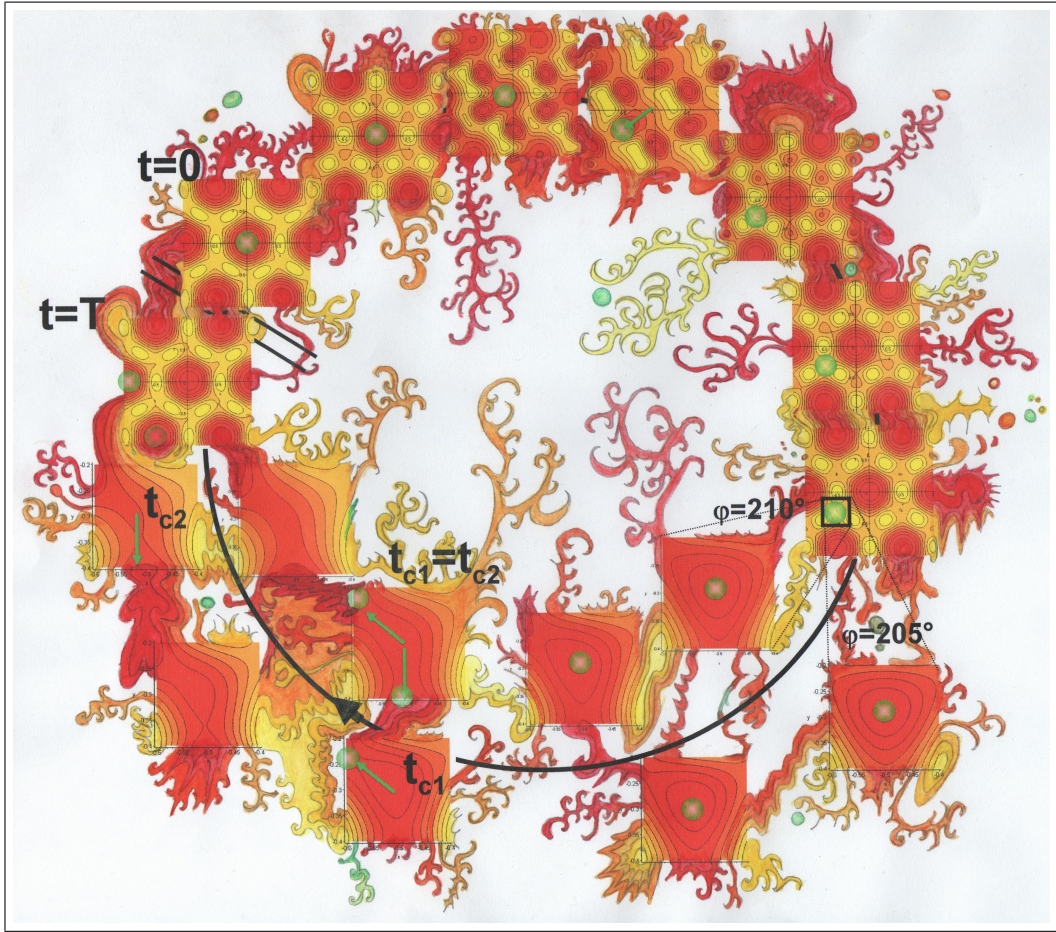
16. September 2010

1. Gutachter:

Prof. Dr. Thomas Fischer

2. Gutachter:

Prof. Dr. Werner Köhler



Inhaltsverzeichnis

1	Motivation	1
2	Theorie	6
2.1	<u>Textur in Granatfilmen</u>	6
2.2	<u>Partikel</u>	8
2.3	<u>Partikelbewegung</u>	10
2.4	<u>Polarisationsmikroskopie</u>	12
3	Versuchsdurchführung	13
3.1	<u>Aufbau</u>	13
3.2	<u>Präparation des Granatfilms</u>	15
3.3	<u>Reinigung der Granatfilme</u>	17
3.4	<u>Beschichtung der Granatfilme</u>	18
3.5	<u>Herstellung der PSS-Lösung</u>	19
3.6	<u>Herstellung der Partikellösung</u>	19
3.7	<u>Manipulation der Partikel</u>	20
3.8	<u>Auswertungssoftware</u>	24
4	Ergebnisse	29
4.1	<u>Ergebnisse-Experiment</u>	29
4.2	<u>Ergebnisse-Theorie</u>	38

5	Diskussion	45
6	Zusammenfassung und Ausblick	53
7	Danksagung	61

Abbildungsverzeichnis

1.1	links: Granatfilm mit typischem Streifenmuster, rechts: Granatfilm mit erzeugter Blasengitterstruktur und darauf pipettierten paramagnetischen Kolloiden (die verschiedenen Farben der Granatfilme sind allein durch eine unterschiedliche Beleuchtung bedingt)	3
1.2	schematische Darstellung des Blasengitters auf dem Granatfilm mit den Kristallachsen 10 und 01 , dem Blasenradius R , dem Gitterabstand d , der vom externen Magnetfeld \mathbf{H} und der Probennormalen eingeschlossene Winkel ϑ und φ , der Winkel zwischen der Tangentialkomponente des Magnetfeldes und der 10 -Blasengitterrichtung in der Probenebene	4
2.1	paramagnetische Polystyrolpartikel mit einem Durchmesser von $2a = 2,8 \mu\text{m}$ [9]	9
2.2	die Partikelverteilungsfunktion p zeigt, dass die Partikel bei $t = t_1$ und $t = t_3$ in den Energieminima des Ratschenpotentials V lokalisiert sind, während sich bei $t = t_2$ (Ratschenpotential aus) die Partikel frei bewegen können	11
3.1	Aufbau der Messanordnung: links der Schwenkarm mit zwei Spulen (1), sowie das Polarisationsmikroskop (2) mit Kamera (3) und Bildschirm (4)	14

3.2	Spulen zur Erzeugung der Blasengitterstruktur, links die Anordnung von der Seite und rechts von oben - an Spule 1 wird Wechselan Spule 2 Gleichspannung angelegt [11]	16
3.3	Gleich- und Wechselstromgenerator (1 und 2), sowie ein digitales 2-Kanal-Oszilloskop (3) und ein Verstärker (4) zur Erzeugung des Blasengitters auf dem Granatfilm	17
3.4	paramagnetische Polystyrolpartikel, die Ketten gebildet und sich im externen Magnetfeld ausgerichtet haben	21
3.5	Blasengitter, einmal mit Verstärkung der Blasendomänen und einmal der dazu entgegengesetzt ausgerichteten Domänen	22
3.6	zu untersuchender Bildausschnitt in Originalfarben und in schwarzweiß; durch Abzug des Mittelwerts bei der Bildbearbeitung werden unbewegliche und somit uninteressante Partikel herausgefiltert und im Schwarzweißbild nicht mehr angezeigt	26
4.1	Probe, bei der die Magnetfeldrichtung erst in Gitterachsenrichtung 10 und am Ende in Richtung 01 zeigt	30
4.2	Partikelbewegungen in Achsenrichtung 10 und 01 in Abhängigkeit des Winkels zwischen der Magnetfeld- und der Blasengitterrichtung - links ein kontinuierlicher Übergang und rechts theoretisch ohne thermische Diffusion der Partikel	31
4.3	schematische Darstellung des Blasengitters mit den Blasen- (B) und Zwischengitterplätzen (I und \bar{I}), sowie den beiden verschiedenen Bewegungsnetzwerken (rot und grün dargestellt)	32
4.4	Weg eines Partikels unter Einfluss eines externen Magnetfeldes, dessen Richtung entlang einer Gitterachse (links) und genau zwischen zwei Gitterachsen zeigt(rechts)	33

4.5	Wahrscheinlichkeitsverteilung der Sprungrichtungen in Abhängigkeit vom Winkel φ , a) von Blase zu den Zwischengitterplätzen I und \bar{I} , b) vom Zwischengitterplatz I zur Blase bzw. c) vom Zwischengitterplatz \bar{I} zur Blase	35
4.6	Wahrscheinlichkeitsverteilung der Sprungrichtungen von Blase zu Blase in Abhängigkeit vom Winkel φ	36
4.7	gefittete Funktion der Wahrscheinlichkeitsverteilung der -1-1-Sprungrichtung vom Zwischengitterplatz zur Blase um den Übergangswinkel $\varphi \sim 30^\circ$ bei den Frequenzen $\nu = 3$ Hz und 0,6 Hz	37
4.8	schematische Darstellung der Einheitszelle A_{unit}	39
4.9	Darstellung der ersten fünf Blasenkreise (links) und der zugehörigen Energielandschaft (rechts) mittels Maple	40
4.10	zeitliche Entwicklung der Energielandschaft für $\varphi = 0^\circ$ (t in 0,01-Schritten von 0,21 - 0,35 von links oben nach rechts unten)	41
4.11	vergrößerter Ausschnitt der Energielandschaft für t= 0,22 -0,25 in 0,01-Schritten und für $\varphi = 0^\circ$	42
4.12	Energie für t = 0,29 - 0,31 und $\varphi = 20^\circ$	43
4.13	Energieplot mit dazugehörigem Ausschnitt für t = 0,21 - 0,24 und $\varphi = 30^\circ$	44
5.1	zeitliche Veränderung der Energielandschaft des Granatfilms mit Partikel in einer Periode für die zwei Winkel $\varphi = 205^\circ$ und 210° .	49
5.2	Entstehen der Instabilitäten im Energieplot für t = 0,78 und 0,79 bei $\varphi = 25^\circ$	52
6.1	Wechsel der Energiemaxima und -minima zu den Zeiten t = 0,2 - 0,35 in 0,05-Schritten, $\varphi = 15^\circ$	54

Kapitel 1

Motivation

Vergleicht man die Ausmaße von Computern aus den fünfziger Jahren mit den heutigen, stellt man einen enormen Größenunterschied fest: Turnhallen füllende Rechenmaschinen, die mit Röhren betrieben und mit Lochkarten programmiert wurden, stehen tragbaren, mit allen Rechenoperationen ausgestatteten schnellen Taschenrechnern, Mobiltelefonen oder gar zusammenrollbaren und ebenfalls in die Tasche steckbaren Touchscreens mit integrierten Computern gegenüber. Auch bei vielen anderen technischen Geräten kann man diese starke Tendenz der Miniaturisierung beobachten. Aber erst der extreme Kenntniszuwachs im letzten und diesem Jahrhundert auf dem mikroskopischen Gebiet haben diese Entwicklungen und Erneuerungen möglich gemacht. Während anfangs der Fokus vor allem auf die Mikroelektronik gerichtet war, erfreut sich nun seit einiger Zeit die Mikrodynamik immer größeren Interesses. Man träumt von einem Lab-on-a-chip. Das heißt, man erwartet einen analogen Schritt der Größenabnahme im Analyse- und Reaktionsbereich: von einem makroskopischen Labor auf ein chipkartengroßes Westentaschenlabor, welches die gleiche Funktionalität aufweist. Unabhängig ob nun im medizinischen, z.B. für die Blutanalyse, im lebensmittelchemischen oder anderen Bereichen wäre damit die Möglichkeit gegeben, kleinste Mengen einer

Flüssigkeit zeit- und ortsnahe zu analysieren. Gerade für die medizinische Versorgung außerhalb bzw. weit entfernt von Kliniken und Arztpraxen ist diese Entwicklung sehr interessant. Eine der bis dato wenigen erfolgreichen Anwendungen ist z.B. die Chiipelektrophorese [1]. Was unter anderem fehlt, ist ein zuverlässiger Transport und die Bewegungssteuerung der Partikel- und Flüssigkeitsmengen.

In dieser Diplomarbeit werden die Bewegungen von paramagnetischen Kolloiden (Polystyrolkugeln) auf magnetischen Blasengitterstrukturen in Granatfilmen unter Einfluss externer Magnetfelder untersucht. Diese 2,8 μm großen Polystyrolkugeln bieten die Möglichkeit beladen und dann über mikroskopische Strukturen gesteuert zu werden. Die Beladung mit Proteinen oder anderen biologischen Systemen und Stoffen kann z. B. durch Andocken an funktionelle Gruppen der Partikeloberfläche erfolgen. Mit Hilfe solcher Kolloide wurden bereits erfolgreich Mausemakrophagen ([2]) und Hefezellen ([3]) über solche Granatfilme transportiert, sowie Mikrorührer betrieben ([4]). Auch das Anheften und der gezielte Transport weiterer biologisch interessanter Stoffe ist denkbar.

Die untersuchten Granatfilme (mit einer Fläche von $\sim 1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$) sind ferri-magnetisch und besitzen ursprünglich Streifenstrukturen von magnetischen Domänen mit gleicher Breite, die erst durch Behandlung mit externen Magnetfeldern in eine Blasengitterkonformation gebracht werden. Beide Muster sind in Abbildung 1.1 zu sehen. Während die Streifen ohne externen Einfluss unverändert bleiben, sind die Blasen metastabil. Das heißt, sie sind auch nach Abschalten der erzeugenden Magnetfelder stabil, relaxieren aber mit der Zeit in die Streifenstruktur zurück. Die Relaxationszeit kann mehrere Wochen betragen. Dies erlaubt es mehrere Untersuchungen, der durch externe Magnetfelder gesteuerten Partikelbewegung auf einer Blasengitterstruktur, durchzuführen. Die Domänen unterschiedlicher Helligkeit in der magnetischen Streifen- oder Blasengitterstruktur sind Bereiche unterschiedlicher Ausrichtung der magnetischen Momente. Dank dem Ein-

satz eines Polarisationsmikroskops kann man die Domänen unter Ausnutzung des optischen Faraday-Effekts sichtbar machen.

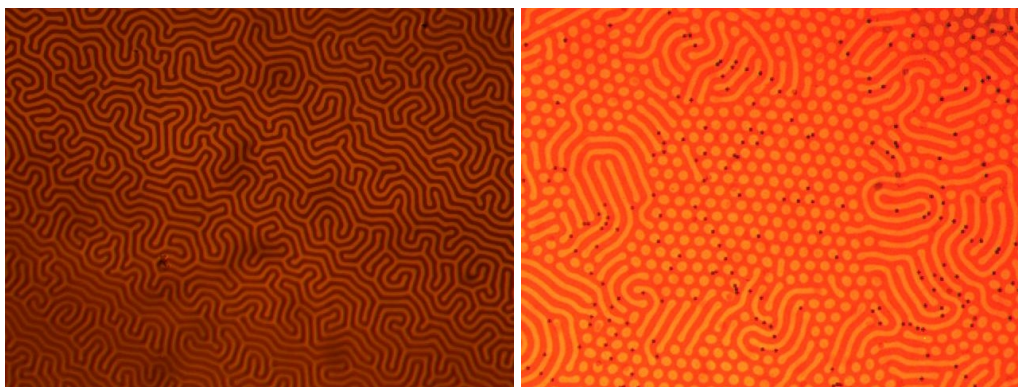


Abbildung 1.1: links: Granatfilm mit typischem Streifenmuster, rechts: Granatfilm mit erzeugter Blasengitterstruktur und darauf pipettierte paramagnetischen Kolloiden (die verschiedenen Farben der Granatfilme sind allein durch eine unterschiedliche Beleuchtung bedingt)

Die Blasengitter sind ursprünglich aus der Forschung auf der Suche nach einem Informationsspeicher für Computer bekannt [5]. Die Blasenzentren haben den doppelten Abstand d zueinander wie die Streifen. Sie sind hexagonal angeordnet und besitzen dementsprechend drei Blasengitterachsen. Entlang dieser können sich die paramagnetischen Partikel über den Granatfilm unter Einfluss externer Magnetfelder bewegen. Wie erwähnt, handelt es sich bei den Partikeln um Kolloide, die in Wasser dispergiert sind. Sie werden in μl -Mengen auf den Granatfilm pipettiert und lagern sich entsprechend ihrer magnetischen Eigenschaften über den Blasenflächen an. Durch externe periodisch variierende Magnetfelder wird die Energielandschaft verändert und die Kolloide beginnen sich zu bewegen. Je nach Stärke, Frequenz und Richtung der externen Felder bewegen sie sich nur im Kreis, triangulär zwischen den Blasen oder springen von einer zur nächsten Blase

über deren Zwischenräume [6].

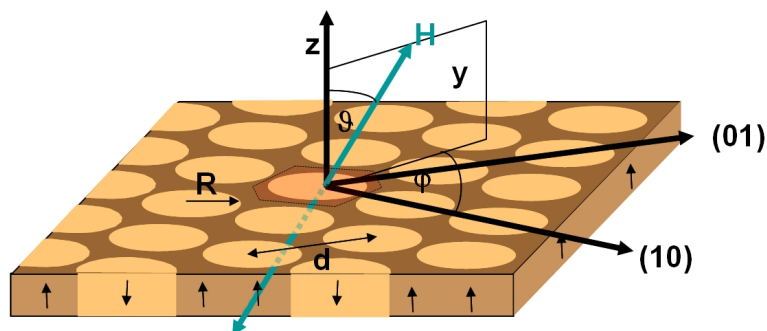


Abbildung 1.2: schematische Darstellung des Blasengitters auf dem Granatfilm mit den Kristallachsen 10 und 01 , dem Blasenradius R , dem Gitterabstand d , der vom externen Magnetfeld \mathbf{H} und der Probennormalen eingeschlossene Winkel ϑ und φ , der Winkel zwischen der Tangentialkomponente des Magnetfeldes und der 10 -Blasengitterrichtung in der Probenebene

Interessant in dieser Arbeit ist vor allem, wie die Sprungrichtung von der Richtung des externen Feldes abhängt. Dabei ist φ (siehe dazu auch Abbildung 1.2) als Winkel zwischen der Blasengitterachse 10 und der Tangentialkomponente des Magnetfeld \mathbf{H} definiert. Es soll also untersucht werden, bei welchem Winkel φ die Partikel welcher Gitterrichtung folgen und bei welchem Winkel die Bewegungsrichtungen ineinander übergehen. Außerdem besteht die Frage, ob sich der Wechsel der Richtung in einem bestimmten Winkelbereich oder nur exakt bei dem Übergangswinkel von 30° , bei dem die Magnetfeldrichtung genau zwischen zwei Kristallachsen zeigt, abspielt. Im vorliegenden Fall ist die Blasengitterstruktur, über die sich die Kolloide bewegen, hexagonal. Der Winkel zwischen zwei benachbarten Kristallachsen beträgt also 60° . Daher sind die Bereiche um die Winkel $\varphi = 0^\circ$ und 30° von besonderem Interesse. Es ist auch zu untersuchen in-

wieweit eine Veränderung der Frequenz des externen Magnetfeldes die Verweildauer der Partikel an bestimmten Blasengitterpunkten und ihr Sprungverhalten beeinflusst.

Ist die Partikelbewegung zufällig oder deterministisch? Gehen die Bewegungsrichtungen bei den genannten Winkeln φ , die genau zwischen zwei Blasengitterachsen und damit Bewegungsrichtungen der Kolloide zeigen, kontinuierlich oder sprunghaft ineinander über? Wie werden die Partikel transportiert? Und wie lässt sich der Partikeltransport beeinflussen und die Bewegungsrichtung dieser Kolloide gezielt umschalten?

Diese Fragestellungen sollen in dieser Arbeit geklärt werden. In diesem Zusammenhang werden Experimente mit Kolloiden auf den Blasengitterstrukturen in Granatfilmen in externen Magnetfeldern durchgeführt und deren Ergebnisse mit denen der Theorie durch Simulation der Energielandschaften der Partikel verglichen.

Kapitel 2

Theorie

2.1 Textur in Granatfilmen

Wie in Kapitel 1 geschildert, ist das Interesse in dieser Arbeit auf die Bewegungsrichtung von paramagnetischen Kolloiden auf magnetischen Blasengitterstrukturen in Granatfilmen unter Einfluss externer Magnetfelder gerichtet. Um die Textur der magnetischen Domänen im Granatfilm und die paramagnetischen Partikel beobachten zu können, wird ein Polarisationsmikroskop genutzt.

Betrachtet man den Granatfilm allein unter dem Polarisationsmikroskop, kann man magnetische Strukturen erkennen, die sogenannten Weiss'schen Bezirke. Im Normalfall findet man magnetische Streifendomänen in dem Granatfilm vor. In dieser Arbeit werden diese Streifenmuster in Blasengitterstrukturen überführt (siehe Abbildung 1.1), da auf diesen Blasenmustern die Bewegung der paramagnetischen Kolloide besonders interessant ist. Damit beobachtet man unter dem Polarisationsmikroskop Weiss'sche Bezirke, die im Fall der Magnetblasen zylinderförmig und durch eine 180° -Bloch-Wand von ihrer Umgebung abgegrenzt sind. Der Eisengranatfilm besteht aus dem ferrimagnetischen Material

$Y_{2,5}Bi_{0,5}Fe_{5-q}Ga_qO_{12}$ ($q=0,5 -1$) ([5] und [7]). Ferrimagnetismus bedeutet, dass

der Stoff Elementarmagneten besitzt, die sich ohne Einwirken von äußeren Feldern durch eine innere Wechselwirkung spontan abwechselnd antiparallel und parallel zueinander in begrenzten Domänen, den Weiss'schen Bezirken, ausrichten. Jedoch hebt sich die Magnetisierung der entgegengesetzt ausgerichteten magnetischen Momente nicht gegenseitig auf, wie es beim Antiferromagneten der Fall ist. Eine der beiden Magnetisierungsrichtungen hat ein stärkeres Moment, wodurch jeder Weiss'sche Bezirk eine Gesamtmagnetisierung besitzt. Damit unterscheidet sich der Ferrimagnet nur in der Ausrichtung der magnetischen Momente, aber nicht in der Anordnung in Weiss'sche Bezirke vom Ferromagneten. Während im Ferromagneten alle magnetischen Momente innerhalb einer Domäne in eine Richtung zeigen und somit eine starke Gesamtmagnetisierung erzeugen, weisen die Weiss'schen Bezirke der Ferrimagneten eine schwächere Magnetisierung auf.

Die Größe solcher Domänen variiert zwischen 10^{-5} und 10^{-3} m und alle Weiss'schen Bezirke sind durch Bloch-Wände von den angrenzenden, entgegengesetzt magnetisierten Domänen getrennt. Diese magnetischen Strukturen kommen beim Ferrimagneten durch eine Überlagerung von Austauschwechselwirkung und Dipol-Dipol-Wechselwirkung zustande [8]. Während die Austauschwechselwirkung kurzreichweitig ist und die elementaren magnetischen Momente parallel ausrichtet, ist die Dipolwechselwirkung sehr schwach und hat eine große Reichweite. Würde der gesamte Ferrimagnet nur aus einer einzigen Domäne bestehen, würde die Austauschenergie den günstigsten, also niedrigsten Wert annehmen, jedoch wäre die außerhalb des Ferrimagneten gespeicherte magnetische Feldenergie maximal. Mit zunehmender Domänenzahl sinkt diese Feldenergie, aber durch den Aufbau von Bloch-Wänden muss Arbeit gegen die Austauschkräfte verrichtet werden. Das System stellt sich auf das Energieminimum der Summe aus Wandenergie und magnetischer Feldenergie ein und man erhält für die verwendete Granatfilmprobe das beobachtete Streifenmuster. Die Breite $\frac{d}{2}$ der Domänen

hängt von der Zusammensetzung des Materials ab. Im vorliegenden Fall beträgt $d = 13,5 \mu\text{m}$. Bei der Streifenmusterentstehung startet die Domänenbildung an verschiedenen Stellen in der Granatfilmoberfläche. Würde die Domänenbildung nur an einem Punkt beginnen, würde man ein regelmäßiges symmetrisches Streifenmuster erhalten. Durch die verschiedenen Ausgangszentren und damit verschiedenen Ausrichtungen der Streifendomänen kommt es bei deren Verbindung zu einem Gesamtmuster zu Krümmungen und Kurvenbildung und somit zu einem unsymmetrischen Streifenmuster auf dem untersuchten Granatfilm.

Setzt man Ferrimagneten einem externen Magnetfeld aus, richten sich die elementaren magnetischen Momente nach diesem aus, wodurch die Weiss'schen Bezirke mit gleicher Ausrichtung wie das externe Feld zu wachsen beginnen. Die Bloch'schen Wände verschieben sich solange bis die Sättigungsmagnetisierung erreicht ist und alle Elementarmagneten in eine Richtung zeigen.

Benutzt man für das externe Magnetfeld ein Wechselfeld, kann der ferrimagnetische Granatfilm metastabile, kreisrunde Weiss'sche Bezirke ausbilden. Der Wert der anzulegenden Frequenz des externen Magnetfeldes bewegt sich für den hier verwendeten Granatfilm im Bereich von $\nu = 0,5$ bis 2 kHz . Überschreitet das externe Feld \mathbf{H} die Sättigungsmagnetisierung $H > M_s = 1,02 \cdot 10^4 \text{ Am}^{-1}$, wird die erzeugte Blasengitterstruktur zerstört. Die Probe erhält nach Abschalten des externen Feldes wieder ihre Weiss'schen Streifendomänen.

2.2 Partikel

Auf den in Abschnitt 2.1 beschriebenen Granatfilm werden in reinem Wasser gelöste paramagnetische Kolloide pipettiert um deren Bewegungsverhalten in Abhängigkeit der Richtung eines externen Magnetfeldes zu studieren. Die benutzten sphärischen Kolloide sind Polystyrolkugeln mit einem paramagnetischen Magnetit-

kern (siehe Abbildung 2.1). Dieser Kern erlaubt es den Kolloiden auf das externe Magnetfeld und das des magnetischen Blasengitters im Granatfilm zu reagieren und eine Partikelbewegung hervorzurufen.

Paramagnetismus bedeutet, dass der Magnetkern des Partikels mikroskopische magnetische Momente enthält, die durch die thermische Fluktuation zufällig ausgerichtet sind. Sie sind unabhängig voneinander und ein gesamt magnetisches Moment ist nicht vorhanden. Erst durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes werden die Momente ausgerichtet und ergeben in ihrer Summe eine Gesamtmagnetisierung \mathbf{M} . Diese ist proportional zum angelegten Magnetfeld \mathbf{H} :

$$\mathbf{M} = \chi \mathbf{H} \quad (2.1)$$

Die magnetische Suszeptibilität χ gibt dabei die Magnetisierbarkeit eines Stoffes an und ist für Paramagneten positiv. Je größer χ ist, desto leichter ist ein Stoff magnetisierbar. Für die im Experiment eingesetzten Polystyrolkugeln beträgt $\chi = 0,17$.

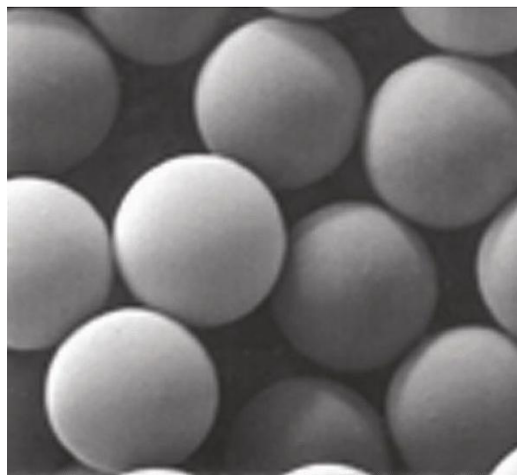


Abbildung 2.1: paramagnetische Polystyrolpartikel mit einem Durchmesser von $2a = 2,8 \mu\text{m}$ [9]

Die paramagnetischen Partikel, deren Durchmesser $2a = 2,8 \mu\text{m}$ beträgt, sind mit

dissoziierten Carboxylgruppen (COO-) beschichtet. Dadurch sind sie negativ geladen und hydrophil.

2.3 Partikelbewegung

Die Bewegung der paramagnetischen Kolloide auf dem Granatfilm folgt den Minima des Potentials der Energielandschaft. Diese Energielandschaft entsteht durch die Interaktion der paramagnetischen Partikel mit dem externen Magnetfeld und dem des Granatfilms. Durch die Änderung der Ausrichtung der Blasengitterachsen des Granatfilms (siehe Abbildung 1.2) zur Richtung des externen Magnetfeldes kann die Bewegungsrichtung der Partikel beeinflusst und teilweise gesteuert werden.

Das Gesamtmagnetfeld setzt sich zum einen aus zwei externen gleichermaßen periodisch variierenden Feldern parallel sowie senkrecht zur Granatfilmprobe und zum anderen aus dem dadurch ebenfalls periodisch schwankenden Magnetfeld der Blasengitterstruktur zusammen. Man erhält eine Art Ratschenpotential.

Ohne externe Magnetfelder befinden sich die Kolloide aufgrund ihrer paramagnetischen Eigenschaften oberhalb der Blasen [10]. Durch das Anlegen eines externen Magnetfeldes senkrecht zur Granatfilmprobe, steuert man die Größe der Blasen und die Lokalisierung der Potentialminima der Energielandschaft des Partikels. Ist die externe Magnetfeldrichtung parallel zu der Richtung der magnetischen Momente in den Blasen, vergrößern sich die Blasen und die Kolloide befinden sich über ihnen. Bei der antiparallelen Ausrichtung befindet sich das Energieminimum genau zwischen den Blasen - im Zwischengitterplatz.

Die Bewegung der paramagnetischen Partikel auf dem Blasengitter in einem externen Magnetfeld kann anhand der Abbildung 2.2 des Ratschenpotentials V beschrieben werden. So entspricht hier $t = t_1$ der parallelen Ausrichtung in der ersten

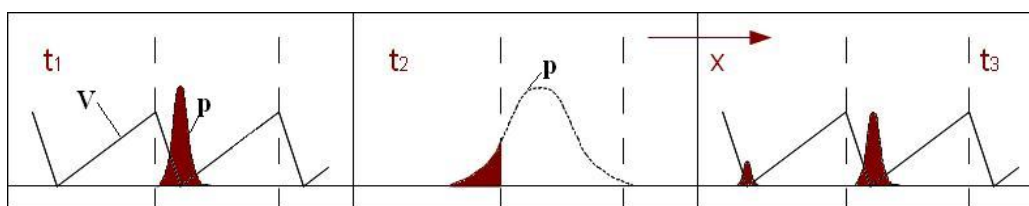


Abbildung 2.2: die Partikelverteilungsfunktion p zeigt, dass die Partikel bei $t = t_1$ und $t = t_3$ in den Energieminima des Ratschenpotentials V lokalisiert sind, während sich bei $t = t_2$ (Ratschenpotential aus) die Partikel frei bewegen können

Schwingungshalbperiode des externen Magnetfeldes: alle Partikel befinden sich über der Blase des Granatfilms. Für ein kritisches Magnetfeld (bei $t = t_2$) sind sie frei beweglich und können sich so auch in die Zwischenräume der Blasen bewegen und finden an diesen Zwischengitterplätzen für $t = t_3$ ein Energieminimum. Die Partikelverteilungsfunktion p gibt an, wo sich die Kolloide räumlich aufhalten. Man erkennt, dass durch die Partikeldiffusion bei abgeschaltetem Ratschenpotential ein gewisser Anteil der Partikel (in $t = t_2$ rot dargestellt) sich soweit von ihrem Ausgangspunkt entfernen kann, dass sich diese Partikel bei erneutem Anschalten des Potentials im nächstgelegenen Minimum befinden (linker kleiner Peak bei $t = t_3$).

Die benötigte Asymmetrie des Ratschenpotentials erhält man durch ein externes Magnetfeld, welches parallel zur Richtung der Probenebene angelegt ist. Je nach Stärke des externen Feldes und Winkel zur Blasengitterachse kann man dabei die Richtung und die Menge der hüpfenden Partikel beeinflussen. Der Fokus dieser Arbeit liegt vor allem auf dem Einfluss des Winkels φ auf die Bewegungsrichtung der Kolloide.

2.4 Polarisationsmikroskopie

Um die in 2.1 beschriebenen Streifen- und Blasenmuster auf dem Granatfilm beobachten zu können, wurde ein Polarisationsmikroskop benutzt. Das heißt, dass sowohl zwischen Lichtquelle und Probe als auch zwischen Probe und Okular eines Lichtmikroskops eine Polarisationsfolie eingebaut ist. Diese Folie lässt nur Licht einer Polarisationsrichtung passieren und filtert den Rest heraus. Der Polarisator, der sich zwischen Lichtquelle und Probe befindet, polarisiert somit das auf die Probe treffende Licht. In dem hier durchgeführten Experimenten ist die Probe ein ferrimagnetischer Granatfilm, auf den die paramagnetischen Kolloide gesetzt und anschließend darüber bewegt werden. Dieser untersuchte Granatfilm besteht aus unterschiedlich magnetisierten Domänen und weist eine optische Aktivität auf. Das bedeutet, dass beim Lichtdurchlauf durch die Probe die Polarisationssebene des Lichts gedreht wird. Dieser Sachverhalt wird als optischer Faraday-Effekt bezeichnet und wie folgt beschrieben:

$$\beta = V \cdot B \cdot d \quad (2.2)$$

Der Winkel β ist der Drehwinkel, um den die Polarisationssebene gedreht wird, V ist die von der Temperatur und Wellenlänge abhängige Verdet-Konstante des Mediums, B die magnetische Flussdichte in Strahlrichtung und d die Länge des Lichtweges durch die Probe. Je nachdem wie die magnetischen Momente des Granatfilms ausgerichtet sind, wird die Polarisationssebene in oder gegen Uhrzeigersinnrichtung gedreht. Durch die unterschiedlich magnetisierten Domänen, erhält das Licht nach Probendurchlauf zwei verschiedene Polarisationssebenen. Der Analysator, die Polarisationsfolie zwischen Probe und Okular/Kamera, lässt nur eine Polarisationsrichtung passieren. Dadurch erscheint immer die Domäne dunkel, deren Polarisationsrichtung herausgefiltert wurde, und die andere hell. Das Ergebnis ist ein sichtbares Blasen- oder Streifenmuster.

Kapitel 3

Versuchsdurchführung

3.1 Aufbau

Um die magnetischen Granatfilme mit den darauf befindlichen Kolloiden zu untersuchen und um die Abhängigkeit der Partikelbewegung von der Richtung eines externen Magnetfeldes zu beobachten, wurde ein Polarisationsmikroskop der Marke Leica (DM 2500 P) mit CCD-Kamera (Basler A300f) und angeschlossenem Computer verwendet. Durch die Polarisation des Lichtes erreicht man dank des optischen Faraday-Effektes, dass die beiden verschiedenen Magnetisierungsrichtungen der Blasengitterstruktur unterschiedlich hell auf dem zu untersuchenden Granatfilm hervortreten. Das nun sichtbare typische Streifen- oder Blasenmuster kann sowohl durch das Okular als auch per Kamera beobachtet und aufgenommen werden. In Abbildung 3.1 kann man den Versuchsaufbau erkennen, der aus dem Polarisationsmikroskop mit Kamera und daran angeschlossenem Computer besteht. Des Weiteren sieht man einen Schwenkarm mit zwei daran befestigten Spulen, mit denen man jeweils ein Magnetfeld parallel zum Objektisch des Mikroskops und damit zur Granatfilmprobe erzeugen kann.

Zur Untersuchung der Partikelbewegung auf dem Granatfilm wurde ein Objektiv

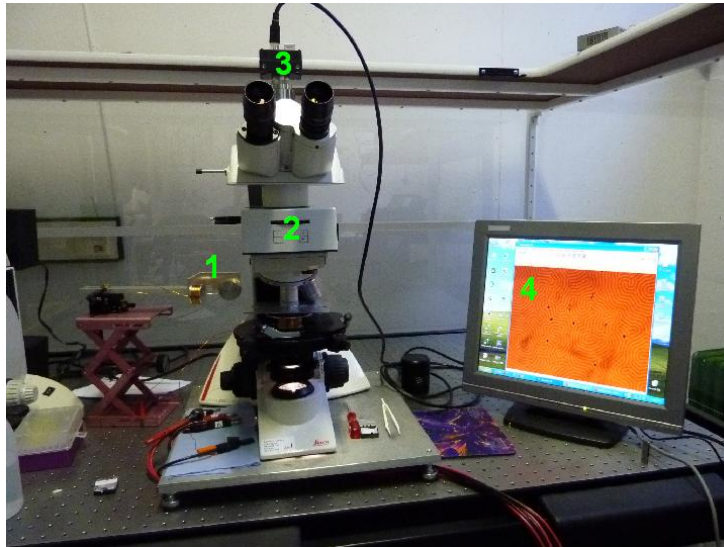


Abbildung 3.1: *Aufbau der Messanordnung: links der Schwenkarm mit zwei Spulen (1), sowie das Polarisationsmikroskop (2) mit Kamera (3) und Bildschirm (4)*

mit einer Vergrößerung von 20x oder 50x verwendet um eine gut beobachtbare Partikelgröße und einen ausreichend großen Beobachtungsbereich des Blasengitters zu erhalten. Die Manipulation der Partikelbewegung und die Erzeugung des Blasengitters erfolgte durch die von den Spulen erzeugten Magnetfelder. Dazu werden die Spulen entweder auf dem Objektisch platziert oder befinden sich an einem unabhängigen höhenverstellbaren Schwenkarm, unter dem der Objektisch einfach frei drehbar bleibt. Durch den Schwenkarm ist die Änderung der externen Magnetfeldrichtung unabhängig von der Granatfilmprobe möglich. Damit erhält man die Möglichkeit verschiedene Winkel φ (siehe dazu auch Abbildung 1.2 in Kapitel 1) zwischen der externen Magnetfeldrichtungen und den Kristallachsen des Blasengitters im Granatfilm einzustellen und so den φ -Einfluss auf die Partikelsprungrichtung zu untersuchen.

3.2 Präparation des Granatfilms

Um das eigentliche Experiment, also die Untersuchung der Partikelbewegung auf dem Blasengitter des Granatfilms in externen Magnetfeldern, sowie die gezielte Steuerung der Bewegungsrichtungen, durchführen zu können, sind einige Vorbereitungen notwendig.

Der erste Schritt des Experiments, besteht darin, die zu untersuchende Blasengitterstruktur zu erzeugen. Diese Struktur ist regelmäßig hexagonal (in Abbildung 1.1 rechts zu erkennen) und besitzt damit drei Kristallachsenrichtungen.

Das Blasengitter wird in einem Eisengranatfilm erzeugt. Dieses aus $\text{Y}_{2,3}\text{Bi}_{0,5}\text{Fe}_{5-q}\text{Ga}_q\text{O}_{12}$ ($q=0,5 -1$) bestehendes Substrat ist etwa $5 \mu\text{m}$ dick, besitzt eine Sättigungsmagnetisierung M_s von $1,02 \cdot 10^4 \text{ Am}^{-1}$ ([11]) und wurde epitaktisch auf einem Gadoliniumgalliumsubstrat gezogen. Mit dem Polarisationsmikroskop können die unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen der Streifen-domänen sichtbar gemacht werden. Jeder Streifen hat eine Breite von $\frac{d}{2}$, wobei hier $d = 13,5 \mu\text{m}$ die Wellenlänge des Streifenmusters ist. Legt man senkrecht zu der Probe ein Magnetfeld an, so vergrößert man diejenigen Streifenomänen, deren Magnetisierung parallel zu dem des angelegten Feldes ist und verkleinert die, die antiparallel sind.

Um nun das Blasengitter zu erzeugen, wird der Granatfilm auf zwei übereinander gelegten Spulen platziert. Dadurch kann er zwei verschiedenen Magnetfeldern, beide senkrecht zu ihm, ausgesetzt werden.

Dazu wird zuerst Gleichspannung an die obere Spule (siehe Abbildung 3.2 links oben) angelegt und diese soweit erhöht, bis die Streifenomänen verschwunden sind, bzw. die zum Magnetfeld parallelen Streifen sich soweit verbreitert haben, dass sie die antiparallelen verdrängen. Die Höhe der Gleichspannung ist dabei von der Probe und deren Vorgeschichte abhängig und liegt zwischen $U = 4 - 6 \text{ V}$ (entspricht etwa einem Magnetfeld von $H = 1,02 \cdot 10^4 \text{ Am}^{-1}$). Zusätzlich wird in

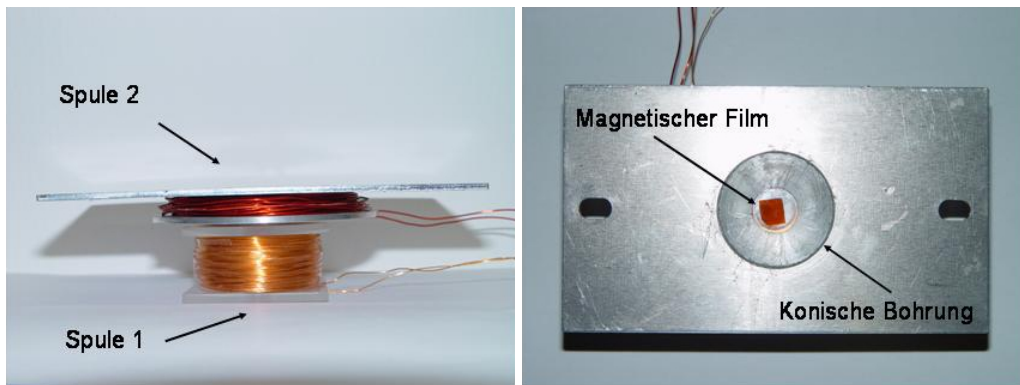


Abbildung 3.2: Spulen zur Erzeugung der Blasengitterstruktur, links die Anordnung von der Seite und rechts von oben - an Spule 1 wird Wechsel- an Spule 2 Gleichspannung angelegt [11]

diesem Zustand an die zweite Spule eine Wechselspannung als Störung angelegt ($U_{eff} = 4 - 8 \text{ V}$, entspricht einem Magnetfeld von $H = 3,2 - 5,5 \cdot 10^2 \text{ Am}^{-1}$, $\nu = 0,5 - 2 \text{ kHz}$). Während die Gleichspannung vorsichtig verringert wird, kann die Frequenz ν und die Spannung an Spule 1 (in Abbildung 3.2) so variiert werden, dass möglichst viele Blasen entstehen. Das erzeugte hexagonale Blasengitter ist relativ stabil, muss aber von Zeit zu Zeit erneuert werden.

Damit jede Veränderung der Granatfilmtextrur beobachtet und darauf reagiert werden konnte, erfolgte die Herstellung dieser Blasengitterstruktur des Granatfilms auf dem Objektisch des Polarisationsmikroskops. Zur Erzeugung der benötigten Spannungen wurden die in Abbildung 3.3 gezeigten Gleich- und Wechselspannungsgeneratoren sowie ein Verstärker genutzt. Das 2-Kanal-Oszilloskop diente der Kontrolle der angelegten Wechselspannung.



Abbildung 3.3: Gleich- und Wechselstromgenerator (1 und 2), sowie ein digitales 2-Kanal-Oszilloskop (3) und ein Verstärker (4) zur Erzeugung des Blasengitters auf dem Granatfilm

3.3 Reinigung der Granatfilme

Bei der Untersuchung wie sich paramagnetische Kolloide auf Blasengitterstrukturen in externen Magnetfeldern verhalten und steuern lassen, ist es wichtig, dass diese Kolloide in ihrer Bewegung so wenig wie möglich gestört oder durch Verunreinigungen auf dem Granatfilm beeinflusst werden. Damit die Partikel keine größeren Hindernisse in ihrer Bewegungsrichtung auf dem Granatfilm vorfinden, aber auch damit sie nicht an ihrer Unterlage haften und so immobil werden, muss die Probe gereinigt und beschichtet werden. Diese beiden Schritte erfolgen vor jeder Untersuchung.

Um die Probe zu reinigen wird diese zuerst mit hochreinem Wasser (18,2 M Ω cm, Ultra-pure water system SG-LaboStar 7-TWF-Di von Siemens) in ein kleines Glasbehältnis gegeben. Nach zehnminütiger Behandlung im Ultraschallbad (Fisher Scientific, FS20H), wird das Wasser mittels einer Vakuumpumpe abgesaugt

und 1 molare Salzsäure hinzugefügt. Es folgen wieder zehn Minuten Ultraschallbad. Danach wird die Salzsäure abgesaugt, der Granatfilm etwa fünf mal mit Reinstwasser gereinigt und nochmals in diesem zehn Minuten dem Ultraschall ausgesetzt. Die Schritte werden mit 1 molarer Natronlauge wiederholt. Am Ende wird das Wasser abgesaugt und der Granatfilm vorsichtig mit einem KIMTECH-Sience-Tuch abgetupft.

3.4 Beschichtung der Granatfilme

Wie in Abschnitt 3.3 beschrieben wurde, ist es bei der Untersuchung der Bewegung der paramagnetischen Partikel auf dem ferrimagnetischen Granatfilm unbedingt notwendig, dass die Partikel nicht auf der Granatfilmoberfläche durch Van-der-Waals-Kräfte anhaften und somit immobil werden. Darum müssen diese Probenfilme nach der Reinigung mit Polynatrium-4-Styrolsulfonat-Elektrolyten (PSS) beschichtet werden. Durch die Beschichtung des Granatfilms mit den Elektrolyten wird die Oberfläche negativ geladen, was zu einer elektrostatischen Abstoßung der ebenfalls negativ geladenen Carboxylgruppen an den Polystyrolpartikeln führt (siehe auch Kapitel 2.2). Die Partikel schweben somit über dem Film und können sich frei im Magnetfeld bewegen.

Die Beschichtung erfolgt nach dem letzten Reinigungsschritt, der Ultraschallbehandlung in Wasser. Dazu wird die Granatfilmprobe wieder in einem kleinen Glasbehältnis, welches diesmal mit der PSS-Lösung gefüllt ist, für zehn Minuten ins Ultraschallbad gegeben. Danach wird die Flüssigkeit abgesaugt, das Behältnis mehrmals mit Reinstwasser gespült, anschließend der Granatfilm herausgenommen und mit einem KIMTECH-Sience-Tuch vorsichtig abgetupft.

3.5 Herstellung der PSS-Lösung

Für die Herstellung von 1 ml PSS-Lösung benötigt man 5 mg Polynatrium-4-Styrolsulfonat ($\text{CH}_2\text{CH}(\text{C}_6\text{H}_4\text{SO}_3\text{Na})$) und 29 mg Natriumchlorid (NaCl). Zuerst wird das Polynatrium-4-Styrolsulfat in 1 ml Reinstwasser aufgelöst und anschließend das Salz hinzugegeben. Die Lösung kann im Kühlschrank, mit einem Parafilm verschlossen, längere Zeit aufbewahrt werden. Sie wird, wie in 3.4 beschrieben, zur Beschichtung des Granatfilms benutzt, damit die Bewegung der paramagnetischen Kolloide nicht durch Anhaften auf ihrer Unterlage, dem Granatfilm, beeinflusst wird.

3.6 Herstellung der Partikellösung

Die benutzten Kolloide, deren Bewegungsverhalten auf dem Granatfilm analysiert wurde, sind Polystyrolpartikel mit einem paramagnetischen Magnetkern (siehe Abbildung 2.1). Die Partikel (Dynabeads M-270 von Dynal) besitzen einen Durchmesser von $2a = 2,8 \pm 0,1 \mu\text{m}$, eine Dichte von $\rho = 1,4 \text{ g/cm}^3$ und eine effektive magnetische Suszeptibilität von $\chi = 0,17$.

Die Mutterlösung (Konzentration $c = 2 \cdot 10^9$ Partikel/ml) wird in Reinstwasser auf eine Konzentration von etwa $4 \cdot 10^6$ Partikel/ml verdünnt und durch die Anlagerung von dissoziierten Carboxylgruppen (COO^-) an der Partikeloberfläche in der Lösung stabilisiert. Diese Verdünnung ist notwendig, da sonst die Konzentration der paramagnetischen Kolloide zu groß wäre und sie sich gegenseitig in ihrer Bewegung über das Blasengitter in den externen Magnetfeldern behindern würden. Nachdem die Partikellösung auf den Granatfilm pipettiert worden ist, sinken die Kolloide infolge der Gravitation auf die Granatfilmoberfläche. Dank der Beschichtung des Granatfilms mit einer Polynatrium-4-Styrolsulfat-Lösung (siehe Abschnitt 3.4) werden die Partikel durch die elektrostatische Abstoßung davon abgehalten

sich an den Untergrund anzuheften. Stattdessen schweben sie wenige Nanometer über dem Granatfilm und lagern sich durch das Magnetfeld der unterschiedlichen magnetischen Domänen an deren Grenzen an bzw. können sich durch Einfluss externer Magnetfelder über den Granatfilm bewegen.

3.7 Manipulation der Partikel

Wenn der Granatfilm gereinigt und beschichtet, sowie ein geeignetes Blasengitter, das heißt ein großes $\sim 10 \times 10$ Blasen umfassendes Gitter ohne Störstellen, auf diesem erzeugt worden ist, kann das eigentliche Experiment der Beobachtung der Partikelbewegung auf dem Blasengitter beginnen. Die Steuerung der Partikelbewegung und deren Richtung, sowie die Größe der Magnetblasen des Granatfilms erfolgt durch externe Magnetfelder, die durch Spulen erzeugt werden.

Für das Experiment wird eine Spule auf dem Objektisch des Mikroskops platziert, auf welcher dann auf einem dünnen Glasplättchen die Probe gesetzt wird. Diese Spule sorgt für das Magnetfeld normal zum Blasengitter. Senkrecht zu dieser Spule befindet sich an einem höhenverstellbaren Schwenkarm die zweite Spule (siehe Abbildung 3.1). Entweder muss die zweite Spule, die das Magnetfeld parallel zur Probe erzeugt, unabhängig vom Rest des Aufbaus bewegbar sein oder es muss der Objektisch, auf dem sich die erste Spule mit der Probe befindet, unabhängig vom Magnetfeld der zweiten Spule gedreht werden können. So kann die Abhängigkeit der Bewegungsrichtung der Partikel von dem Winkel φ zwischen der Vorzugsrichtung im Blasengitter und dem externen zweiten Magnetfeld untersucht werden. In diesem Versuchsaufbau (Abbildung 3.1) wurde der drehbare Objektisch des Mikroskops mit der Probe und ein externer Schwenkarm mit der zweiten Spule genutzt. Die Spulen sind aus Kupfer und haben jeweils 1000 Windungen.

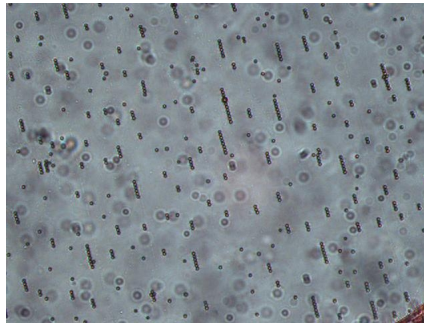


Abbildung 3.4: *paramagnetische Polystyrolpartikel, die Ketten gebildet und sich im externen Magnetfeld ausgerichtet haben*

Um die Richtung des zweiten parallel zur Probenebene verlaufenden Magnetfeldes feststellen zu können, wird auf ein dünnes Glasplättchen, welches sich auf der auf dem Objektisch platzierten Spule befindet, ein Tropfen ($\sim 100 \mu\text{l}$) der in Wasser gelösten paramagnetischen Partikel aufgetragen. Dann wird die Spannung an beide Spulen angelegt. Das Magnetfeld normal zur Probenebene wird angeschaltet, die Kolloide sinken schneller über dem Granatfilm ab und befinden sich dadurch alle in der gleichen Fokusebene des Mikroskops. Durch das Magnetfeld der zweiten Spule richten sich die paramagnetischen Partikel aus und bilden Ketten parallel zur Magnetfeldrichtung (siehe Abbildung 3.4). Mittels der Videosoftware StreamPix wird ein Bild aufgenommen und gespeichert. Damit ist die Richtung des zweiten parallel zur Probenebene verlaufenden Magnetfeldes ermittelt und kann bei den folgenden Probenaufnahmen mit den Richtungen der Blasengitterachsen und Partikelsprungrichtungen verglichen werden. Dieses Vorgehen muss für jeden neuen Experimentstart wiederholt werden, da die Kamerastellung im Bezug zum Mikroskop und die Einstellung des Schwenkarms von Untersuchung zu Untersuchung variieren können. Aus diesem Grund muss auch während der Untersuchung darauf geachtet werden, dass die Kamera- und Schwenkarmposition bezüglich des Polarisationsmikroskops nicht geändert wird, da sonst keine

Aussage über den Winkel φ zwischen der Richtung des externen Magnetfeldes und der Blasengitterachse gemacht werden kann.

Danach wird das Glasplättchen gereinigt oder ausgetauscht und der Granatfilm auf dieses gesetzt. Wieder wird ein Tropfen der Partikellösung auf die Probe gegeben, aber diesmal auf das zu untersuchende Blasengitter des Granatfilms. Das zur Probe senkrechte Magnetfeld wird angelegt und die Partikel sinken schnell in die Beobachtungsebene ab. Wie in Kapitel 3.4 beschrieben, ist die Oberfläche des Granatfilms durch die Polynatrium-4-Styrolsulfonat-Beschichtung negativ geladen und stößt die Partikel mit ihren negativ geladenen Carboxylgruppen ab. Diese Abstoßung dominiert bei kurzen Abständen und lässt die Kolloide über den Granatfilm schweben.

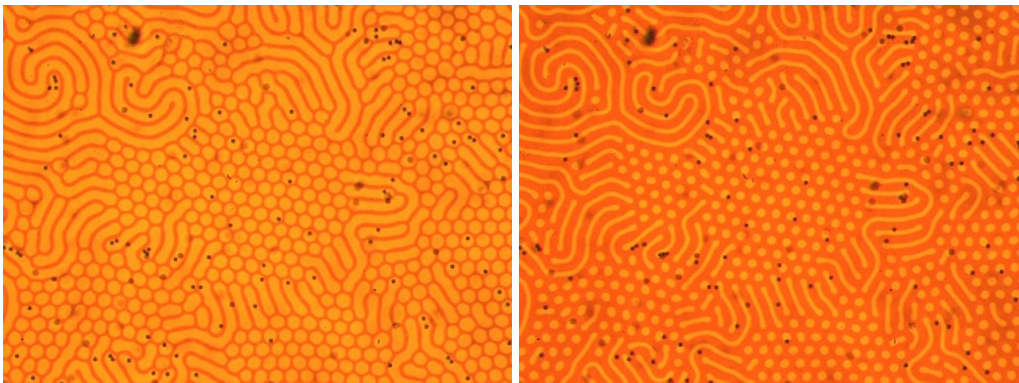


Abbildung 3.5: *Blasengitter, einmal mit Verstärkung der Blasendomänen und einmal der dazu entgegengesetzt ausgerichteten Domänen*

Nun werden beide externe Magnetfelder, also normal und parallel zur Probenebene, gleichzeitig angelegt. Es ist dabei darauf zu achten, dass man nicht mit einem zu starken Magnetfeld, welches normal zur Probe verläuft, die Blasenstruktur zerstört. Überschreitet das Magnetfeld, dessen Richtung normal zur Probe zeigt, einen kritischen Wert, werden alle magnetischen Momente im Granatfilm gleich ausgerichtet und beim Abschalten dieses externen Feldes erhält man wieder ein

Streifen-, aber kein Blasenmuster. Die Probe müsste neu präpariert werden.

Die Bildsoftware StreamPix nimmt über die Kamera Videofilme von 10-15 s Länge auf (etwa 400 Bilder) und speichert sie für die Auswertung im AVI-Format.

Die Spannungseinstellung (als Wechselspannungsquelle dient der Frequenzgenerator TTI-Thurlby Thandar TGA1242 Instruments, siehe Abbildung 3.3) beider Spulen sind wie folgt:

$$U_{\perp}(t)=U_{\perp}\cdot\sin(\omega t) \text{ und } U_{\parallel}(t)=U_{\parallel}\cdot\cos(\omega t) \text{ bzw. } U_{\parallel}(t)=U_{\parallel}\cdot\sin(\omega t).$$

Die Spannung $U_{\perp}(t)$ erzeugt das externe Magnetfeld senkrecht zum Granatfilm, welches also in z-Richtung zeigt. Das zweite externe Magnetfeld wird entweder phasengleich oder mit π -verschobener Phase zum anderen Feld betrieben und ist parallel zur Probenebene. Die Summe dieser beiden Magnetfelder ergibt das externe Gesamtfeld.

Die Experimente wurden für zwei verschiedene Frequenzen durchgeführt um den Einfluss der thermischen Diffusion der Partikel untersuchen zu können. Das bedeutet, dass neben der Untersuchung wie die Bewegungsrichtung der Partikel vom Winkel φ zwischen der externen Magnetfeldrichtung und der 10-Blasengitterachse (Abbildung 1.2) abhängt, auch analysiert wird, ob und welchen Einfluss die thermische Diffusion der Partikel bei deren Entscheidung der Bewegungsrichtung hat. Die thermische Diffusion der Partikel ist bei allen Untersuchungen gleich. Vergrößert man die Frequenz der externen Magnetfelder, verändert sich die Magnetblasengröße (siehe Abbildung 3.5) und damit auch die Energielandschaft der Partikel schneller. Dadurch haben die Partikel weniger Zeit, darauf zu reagieren und ihre ausgelenkte Position, die durch die thermische Diffusion hervorgerufen wurde, entscheidet über die Bewegungsrichtung. Die thermische Diffusionsbewegung spielt eine größere Rolle.

Die Frequenzen der angelegten Magnetfelder betragen $\omega = 18,9$ [3,76] Hz und die Spannung $U_{eff} = 2$ V, die jedoch noch unterschiedlich verstärkt wird (Verstärker

Omnitronic P-250): auf $U_{\perp} = (1,12 [0,67] \pm 0,01)$ V und $U_{\parallel} = (1,98 [1,29] \pm 0,01)$ V. Diese externen Magnetfelder werden angelegt und unter deren Einfluss bewegen sich die paramagnetischen Kolloide auf der Blasengitterstruktur des Granatfilms. Ihre Bewegung wird mit der Kamera aufgenommen. Nachdem die erste Aufnahme getätigt wurde, wird der Objektisch um 5° gedreht und so der Winkel φ zwischen Kristallachse des Blasengitters und Magnetfeldrichtung variiert. Es folgt ein weiterer Videofilm, der aufgenommen und gespeichert wird. Dieser Vorgang wird solange wiederholt, bis entweder die Partikellösung ausgetrocknet ist und die Partikel aus diesem Grund immobil werden bzw. auf der Oberfläche haften bleiben, die Konzentration der Partikel zu groß und damit die Übersichtlichkeit stark eingeschränkt wird oder das Blasengitter durch zu starke Magnetfelder abgebaut worden ist. Meist war ersteres der Fall, da die Spulen durch ihre Wärmeproduktion den Verdampfungsprozess der Partikellösung nicht unerheblich beschleunigten. Jedoch war es ohne weiteres möglich nach Reinigung dieser Stelle von eingetrockneten Partikellösungsresten mittels eines KIMTECH-Science-Tuchs und reinem Wasser das Experiment mit einer neuen Messreihe fortzuführen oder zu wiederholen. Nach etwa sechs bis zehn Messreihen war die Beschichtung so weit beschädigt, dass keine Experimente mehr möglich waren und die gesamte Probe erneut gereinigt und beschichtet werden musste (siehe Abschnitt 3.4).

3.8 Auswertungssoftware

Die Modulation des magnetischen Blasengitters im Granatfilm mit den externen Magnetfeldern erzeugt eine Bewegung der paramagnetischen Partikel über den Film. Diese Partikelbewegung wurde mittels einer CCD-Kamera und der Bildsoftware StreamPix (Version 3) aufgezeichnet und die aufgenommenen Videofilme mit Hilfe eines selbst geschriebenen Matlabprogramms ausgewertet. Dabei

interessiert die Bewegung und Bewegungsrichtung jedes einzelnen Partikels in Abhängigkeit der Richtung des externen Magnetfeldes. In Abbildung 1.2 kann man schematisch den Aufbau eines Granatfilms erkennen. Wegen der hexagonalen Struktur des Blasengitters haben die Partikel sechs verschiedenen Richtungen, entlang derer sie sich bewegen können. Je nach Stärke und Richtung der externen Felder sind die Bewegungsrichtungen vorgegeben. Während sich die Partikel bewegen, vollziehen sie einen Sprung auf einen Zwischengitterplatz, einen Platz genau zwischen drei Blasen, und einen weiteren Sprung zur Blase innerhalb einer Periode der externen Magnetfelder. Das Programm identifiziert jedes einzelne Partikel und verfolgt dessen Trajektorie in Abhängigkeit von der Zeit (unabhängig vom Rest der Partikel). Aus dieser Trajektorie werden die Sprungrichtungen nach jeder Periode ausgelesen und gezählt. Man erhält durch Summation über alle Partikelbewegungen eine Sprungverteilung über die sechs verschiedenen Bewegungsrichtungen. Das Ergebnis wird in Tabellenform ausgegeben und zeigt an, wie viele Partikel im gesamten Experiment in die jeweiligen Richtungen gesprungen sind. Jede Winkeleinstellung, die durch Weiterdrehen des Objektisches erzeugt wurde, liefert eine weitere Liste. Damit machen die von Matlab ausgegebenen Tabellen eine Aussage über die Bewegungsrichtung der Partikel in Abhängigkeit des Winkels φ zwischen der Richtung der 10-Blasengitterachse und der des externen Magnetfeldes (siehe Abbildung 1.2).

Der Videofilm wurde zuerst in Einzelbilder zerlegt, von denen nur die interessantesten Bildausschnitte mit dem Blasenmuster herausgeschnitten und dann weiter analysiert wurden.

Danach wurden diese von Farb- in Graustufenbilder (8 Bit, 256 Stufen: 0 = schwarz und 255 = weiß) umgewandelt und zum Schluss deren Kontrast erhöht. Dies war nötig, da man dadurch die Partikel besser vom Hintergrund abheben und somit erkennen kann.

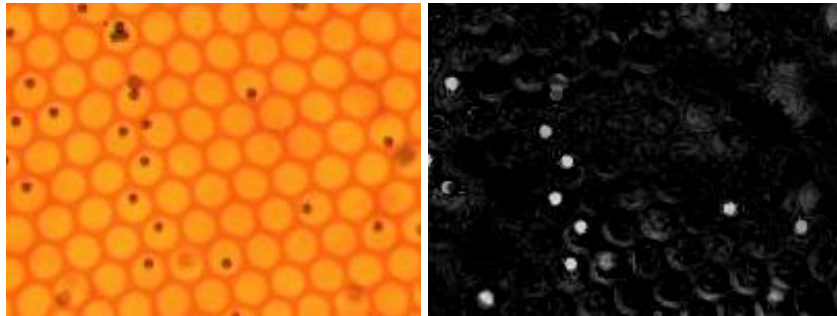


Abbildung 3.6: *zu untersuchender Bildausschnitt in Originalfarben und in schwarzweiß; durch Abzug des Mittelwerts bei der Bildbearbeitung werden unbewegliche und somit uninteressante Partikel herausgefiltert und im Schwarzweißbild nicht mehr angezeigt*

Die Kamera nimmt 30 Bilder pro Sekunde auf, während die Blasenradien mit der extern angelegten Frequenz ν von 3 [0,6] Hz schwanken. Dadurch befindet sich jedes zehnte [fünfzigste] Bild in der gleichen Phase. Das bedeutet, dass die Blasen aller 10 [50] Bilder die gleiche Größe und den gleichen Hintergrund besitzen. Aus diesem Grund muss man 10 [50] verschiedene Mittelwerte bilden und diese vom jeweiligen, zur Phase passenden Bild abziehen. Das Abziehen des Mittelwerts soll unwichtige Informationen (unbewegliche Partikel, das Blasengitter, Dreck) ausblenden und somit die Partikelverfolgung vereinfachen. Aus diesem Grund sieht man in Abbildung 3.6 auf dem rechten Schwarzweißbild weniger Partikel als auf dem linken Originalbild. Alle unbeweglichen Partikel wurden durch den Abzug des Mittelwerts herausgefiltert.

Die eigentlichen Programme zum Partikelfinden (pkfnd.m und cntrd.m von <http://softmatter.georgetown.edu/matlab/code.html> (02.02.2010)) suchen die hellsten Punkte mit einem Radius r auf einem dunklen Untergrund. Dazu wurde die gesamte Bildsequenz invertiert und ein Mindesthelligkeitswert, sowie ein Radius der Partikel eingegeben. Bildpunkte, die über diesem Schwellwert liegen, wurden

als Partikel erkannt und die Position gespeichert, soweit sie nicht in der Umgebung mit dem Radius r eines bereits schon gefunden Partikelpunktes lagen. Für jede Phase musste zum Teil ein eigener Helligkeitswert definiert werden, da durch die starke Schwankung der Blasengröße die Lichtdurchlässigkeit ebenfalls stark variiert.

Als nächster Schritt in der Analyse erfolgte die Zuordnung der Partikel von einem Videobild zu den Partikeln der darauffolgenden Videobilder bzw. der Bilder mit der gleichen Phase. Um dies zu erreichen, wurde jeder erkannte Bildpunkt mit den Partikelpositionen (jeder Partikel erhielt eine Nummer) des vorhergehenden Bildes verglichen. Die Nummerierung des Partikels im vorausgehenden Bild überträgt sich auf den Partikel des nächsten phasengleichen Bildes, dessen Abstand zum Ursprungspartikel minimal ist. Da durch Helligkeitsschwankungen, aber auch durch z.B. Blasenränder einige Partikel scheinbar verschwinden und später wieder auftauchen können, wird der Prozess der Mindestabstundsuche auf die letzten zehn Bilder (der gleichen Phase) ausgedehnt. Dabei gehen zeitnahe Bilder stärker in die Vererbung der Nummerierung des Partikels ein.

Zum Schluss, nachdem man nun die Trajektorie des einzelnen Partikels anhand seiner Nummer verfolgen kann, muss die Richtung, in der es sich mit jeder Periode bewegt, untersucht werden. Generell sind neben dem statischen Partikel „Sprünge“ in sechs Richtungen der hexagonalen Blasengitterstruktur möglich (siehe Abbildung 1.2). Mit Hilfe der x - und y -Abstände des gleichen Partikels in den verschiedenen Bildern und der Eingabe des Winkels φ (zwischen dem externen Magnetfeld und den Gitterachsenrichtung der Probe) und des Blasenabstands d , können diese Bewegungen den sechs Bewegungsrichtungen zugeordnet und gezählt werden.

Die Beschreibung der Bilderkennung bezog sich auf die Interblasensprünge. Durch leichte Modifikation der gezählten und verglichenen Bilder können damit auch

Blase-zu-Zwischengitterplatz-Sprünge und Zwischengitterplatz-zu-Blase-Sprünge analysiert und ausgewertet werden.

Je niedriger die Frequenzen der externen Magnetfelder werden, desto mehr Bilder/längere Videofilme braucht man um die gleiche Datenmenge bzw. Sprunginformation über die Partikel zu erhalten.

Kapitel 4

Ergebnisse

4.1 Ergebnisse-Experiment

Nachdem die aufgenommenen Videofilme mittels Matlab ausgewertet bzw. die Anzahl der Partikelsprünge entlang der sechs verschiedenen Bewegungsrichtungen in Abhängigkeit des Winkels φ zu der externen Magnetfeldrichtung ermittelt worden sind, wurde mit Origin Graph weiter ausgewertet. Dabei interessiert auch, wie sich der Übergang zwischen den unterschiedlichen Bewegungsrichtungen eines Partikels auf dem Granatfilm gestaltet und wie dieser Übergang von der thermischen Diffusion der Kolloide abhängt.

Die Ergebnisse zeigen, dass sich die Partikel meist entlang der Blasengitterachse bewegen, in die auch die Richtung des Magnetfeldes zeigt. Je mehr sich die Richtung des externen Magnetfeldes jedoch in Richtung der benachbarten Gitterachse dreht, desto mehr Partikel springen auch in diese Richtung, bis sich schließlich fast alle Partikel in diese Richtung bewegen. Dies erkennt man auch gut in Abbildung 4.1, in der die Anteile P der Sprungrichtungen der Partikelsprünge gegen den Winkel φ (zwischen der Richtung des externen Magnetfeldes und der 10-Blasengitterachse) aufgetragen wurden. Bei dieser Probe sieht man, dass die Ma-

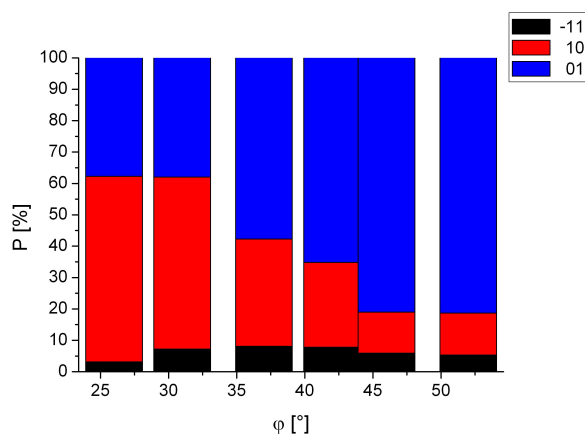


Abbildung 4.1: Probe, bei der die Magnetfeldrichtung erst in Gitterachsenrichtung 10 und am Ende in Richtung 01 zeigt

gnetfeldrichtung zuerst mehr mit der Gitterachsenrichtung 10 übereinstimmt und somit auch mehr Partikel in diese Richtung springen. Je weiter der Objektisch gedreht wird, desto größer wird φ und desto mehr Partikel bewegen sich auch in Richtung 01 dieser Probe. Zwischen $\varphi = 30^\circ$ und 35° ist keine Richtung bevorzugt, somit hüpfen etwa gleich viele Partikel entlang der Gitterachse 10 und 01. Abbildung 4.2 enthält die Messpunkte sämtlicher Messreihen einer Probe beim Übergang der Partikelbewegung in Achsenrichtung 10 zu 01 in Abhängigkeit des Winkels φ . Bei $\varphi = 0^\circ$ bewegt sich der Großteil der Partikel in Blasengitterrichtung 10 und fast keiner in Richtung 01. Je näher man dem Übergangswinkel von 30° kommt, desto mehr sind die Sprungrichtungen zwischen den Richtungen 10 und 01 gleichverteilt. Schließlich geht der Großteil der Partikel in Richtung 01 und immer weniger in Achsenrichtung 10.

Generell kann man die Auswertung von einem Partikelsprung in zwei Teile unterteilen. Zuerst bewegt sich der Partikel von einer Blase zu einem der sechs Blasenzwischen-gitterplätzen I bzw. \bar{I} und springt dann von da aus zu einer der drei erreichbaren Blasen (siehe dazu auch Abbildung 1.2 und 4.3).

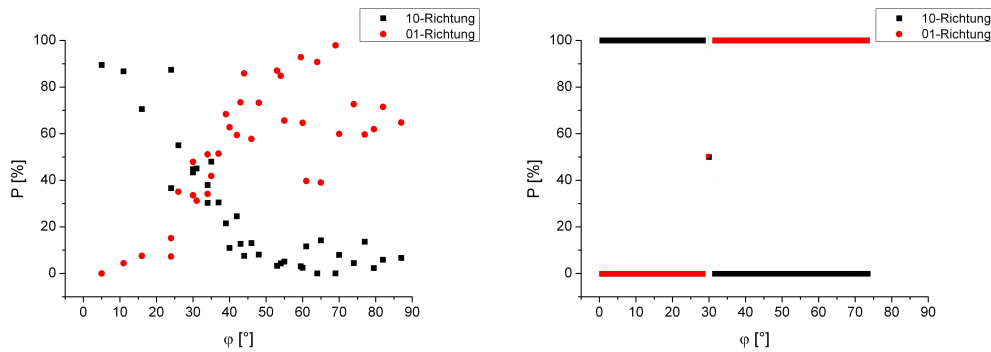


Abbildung 4.2: Partikelbewegungen in Achsenrichtung 10 und 01 in Abhängigkeit des Winkels zwischen der Magnetfeld- und der Blasengitterrichtung - links ein kontinuierlicher Übergang und rechts theoretisch ohne thermische Diffusion der Partikel

Die Richtungen der Blase-zu-Zwischengitterplatz sind dabei logischerweise um 30° zu den Blase-zu-Blasen-Richtungen verschoben.

Die Abbildung 1.2 zeigt das benutzte, an die Probe angepasste Koordinatensystem. R ist der Radius einer Blase, d der Gitterabstand, ϑ der vom externen Magnetfeld und der Probennormalen eingeschlossene Winkel und φ der Winkel zwischen der Tangentialkomponente des Magnetfeldes und der 10-Blasengitterrichtung in der Probenebene. Das benutzte Koordinatensystem ist ein kartesisches, in dem die x-Achse entlang einer Kristallgitterachse (hier die 10-Richtung) zeigt. Die zugehörigen Gittervektoren sind $\mathbf{a}_1 = d\mathbf{e}_x$ entlang der 10-Richtung und $\mathbf{a}_2 = \frac{d}{2}\mathbf{e}_x + \frac{d\sqrt{3}}{2}\mathbf{e}_y$ entlang der 01-Richtung. Eine Magnetfeldrichtung mit $\varphi = 0^\circ$ entspricht der 10-Gitterrichtung, während eine Magnetfeldrichtung mit $\varphi = 60^\circ$ in die 01-Richtung zeigt. Eine Magnetfeldrichtung mit $\varphi = 0^\circ$ zeigt eindeutig in eine Blasengitterrichtung, aber genau zwischen zwei Zwischengitterplätze. Diese beiden Zwischengitterplätze unterscheiden sich nicht nur von der Position, sondern von der Anordnung der umgebenden Blasen - einmal zeigt das Dreieck, welches die drei Blasen um den Zwischengitterplatz bilden, nach oben und einmal nach

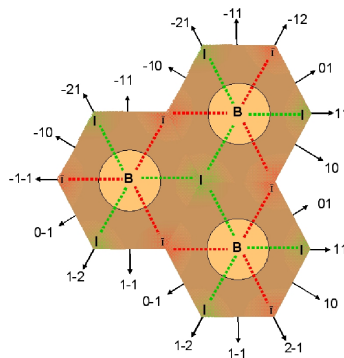


Abbildung 4.3: schematische Darstellung des Blasengitters mit den Blasen- (B) und Zwischengitterplätzen (I und \bar{I}), sowie den beiden verschiedenen Bewegungsnetzwerken (rot und grün dargestellt)

unten (Richtungsangabe bezieht sich auf Abbildung 4.3). Im gesamten Blasengitter gibt es nur die zwei verschiedenen Zwischengitterarten I und \bar{I} , die mit zwei verschiedenen Bewegungsnetzwerken verknüpft sind (siehe Abbildung 4.3). Das bedeutet, dass das Partikel zwei Möglichkeiten hat, sich entlang der Blasengitterrichtung zu bewegen: über den Zwischengitterplatz I oder über den Zwischengitterplatz \bar{I} um anschließend auf die Blase in Richtung der Blasengitterachse weiterzuspringen. Damit wird zwar eine Richtungsentscheidung getroffen, die jedoch für die Gesamtbewegungsrichtung des Partikels unwichtig ist. Das Partikel kann lediglich über das Netzwerk (in der Abbildung 4.3 grün und rot dargestellt), welches es benutzt, nicht aber über die Gesamtsprungrichtung entscheiden: entweder es benutzt den Zwischengitterplatz I und damit das grüne Netzwerk, oder den Zwischengitterplatz \bar{I} und das rote Netzwerk. Bei $\varphi = 30^\circ$ ist die Blasengitterrichtung uneindeutig, der Zwischengitterplatz aber eindeutig festgelegt. So bewegt sich das Partikel erst in die 11-Richtung auf den Zwischengitterplatz I . Aus dieser Position heraus hat es zwei absolut gleichwertige Sprungmöglichkeiten. Entweder in die 2-1-Richtung (entspricht der 10-Gesamtrichtung) oder in die -12-Richtung (entspricht einem Sprung in die 01-Gesamtrichtung).

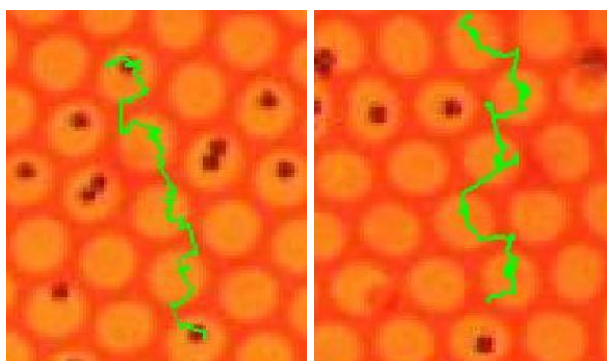


Abbildung 4.4: *Weg eines Partikels unter Einfluss eines externen Magnetfeldes, dessen Richtung entlang einer Gitterachse (links) und genau zwischen zwei Gitterachsen zeigt (rechts)*

In Abbildung 4.4 kann man das gut nachvollziehen. Da im linken Bild die Richtung des externen Magnetfeldes genau entlang der Blasengitterachse verläuft, bewegt sich das Partikel auch nur auf dieser Gitterachse. Jedoch kann man deutlich erkennen, dass unterschiedliche Netzwerke benutzt werden. Einmal verläuft der Partikelpfad über den I- (in der Abbildung links von der Blase) und das andere mal über den \bar{I} -Zwischengitterplatz (Sprung nach rechts von der Blase aus). Die Zielblase bzw. die Endrichtung bleibt von dieser Wahl unbeeinflusst. Die Partikel, die erst zum Zwischengitterplatz links von der Blase gesprungen sind, springen von da zur von ihnen rechten Blase und die anderen Partikel zeigen ein spiegelverkehrtes Sprungverhalten. Die Zielblase ist die gleiche. Zeigt die Magnetfeldrichtung genau zwischen zwei Blasengitterachsen, sieht die Partikeltrajektorie wie auf dem rechten Bild aus. Das Netzwerk und damit die Zwischengitterplatzart bleiben immer gleich, aber einmal hüpfte das Partikel vom Zwischengitterplatz nach rechts und beim nächsten Sprung nach links. Diese Sprungwahl beeinflusst die Endbewegungsrichtung des Partikels.

Um das Gesamtsystem besser beschreiben zu können, wurden die Sprungwahrscheinlichkeiten ebenso wie die Gitterrichtungen indiziert und in zwei Prozesse

unterteilt:

$$\begin{aligned}
p_{10}^{B \rightarrow B} &= p_{11}^{B \rightarrow I} p_{2-1}^{I \rightarrow B} + p_{2-1}^{B \rightarrow \bar{I}} p_{11}^{\bar{I} \rightarrow B} \\
p_{01}^{B \rightarrow B} &= p_{-12}^{B \rightarrow I} p_{11}^{I \rightarrow B} + p_{11}^{B \rightarrow \bar{I}} p_{-12}^{\bar{I} \rightarrow B} \\
p_{-11}^{B \rightarrow B} &= p_{-21}^{B \rightarrow I} p_{-12}^{I \rightarrow B} + p_{-12}^{B \rightarrow \bar{I}} p_{-21}^{\bar{I} \rightarrow B} \\
p_{-10}^{B \rightarrow B} &= p_{-1-1}^{B \rightarrow I} p_{-21}^{I \rightarrow B} + p_{-21}^{B \rightarrow \bar{I}} p_{-1-1}^{\bar{I} \rightarrow B} \\
p_{0-1}^{B \rightarrow B} &= p_{1-2}^{B \rightarrow I} p_{-1-1}^{I \rightarrow B} + p_{-1-1}^{B \rightarrow \bar{I}} p_{1-2}^{\bar{I} \rightarrow B} \\
p_{1-1}^{B \rightarrow B} &= p_{2-1}^{B \rightarrow I} p_{1-2}^{I \rightarrow B} + p_{1-2}^{B \rightarrow \bar{I}} p_{2-1}^{\bar{I} \rightarrow B}
\end{aligned} \tag{4.1}$$

Hierbei ist $p_{10}^{B \rightarrow B}$ die Wahrscheinlichkeit, dass ein Partikel sich entlang der 10-Richtung während einer vollen Modulationsperiode von einer Blase zur nächsten bewegt. Diese setzt sich aus den Wahrscheinlichkeiten, dass ein Partikel innerhalb der ersten Halbperiode erst auf den Zwischengitterplatz I in 11-Richtung und von dort aus während der zweiten Halbperiode in 2-1-Richtung wieder auf eine Blase springt oder dass das Partikel erst auf den Zwischengitterplatz \bar{I} in 21-Richtung und von dort in 11-Richtung auf den Blasengitterplatz gelangt, zusammen.

Diese Wahrscheinlichkeiten der Sprungrichtungen für eine Periodendauer ($\frac{1}{\nu}$) wurden bei den Experimenten ermittelt und in Abhängigkeit vom Winkel φ in einem Kreisdiagramm aufgetragen.

Abbildung 4.5 a) zeigt, dass die Sprungwahrscheinlichkeit eines Partikels in einer Blase-zu-Zwischengitterplatz-Richtung am größten ist, wenn das externe Magnetfeld auch in diese Richtung verläuft. Dies ist der Fall, wenn das externe Magnetfeld mit der 10-Gitterrichtung einen Winkel φ von 30° , 90° , 150° , 210° , 270° oder 330° einschließt. Liegt φ genau zwischen zwei solchen Winkeln, wie es bei $\varphi = 60^\circ$ der Fall ist, ist die Wahrscheinlichkeit auf einen Zwischengitterplatz I zu hüpfen genauso groß wie die auf einen Zwischengitterplatz \bar{I} zu hüpfen. Wie bereits beschrieben, gibt es von einem Zwischengitterplatz nur noch drei Bewegungsrichtungen zu den drei angrenzenden Blasen. Je nachdem

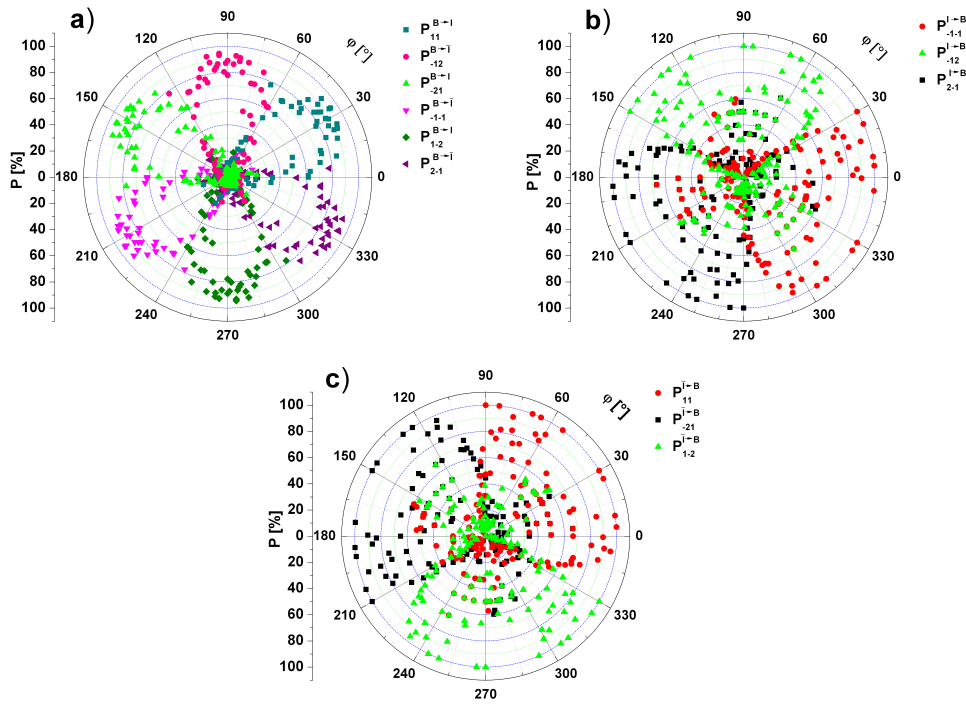


Abbildung 4.5: Wahrscheinlichkeitsverteilung der Sprungrichtungen in Abhängigkeit vom Winkel φ , a) von Blase zu den Zwischengitterplätzen I und \bar{I} , b) vom Zwischengitterplatz I zur Blase bzw. c) vom Zwischengitterplatz \bar{I} zur Blase

ob es sich um ein I - oder \bar{I} -Platz handelt sind Blasengitterplätze und damit die bevorzugten Sprungrichtungen verschieden. Während sich die Winkelbereiche bei I -Blasen-Sprüngen (Abbildung 4.5 b)) auf 30° - 150° , 150° - 270° und 270° - 30° erstrecken, sind sie bei \bar{I} -Blasen-Sprüngen um 60° verschoben. Man erkennt, dass es auch hier Winkelbereiche gibt, in denen die Sprungrichtungen der Partikel ineinander übergehen. Für die Zwischengitterplätze von der I -Art, nimmt die $p_{-1-1}^{I \rightarrow B}$ -Wahrscheinlichkeit bei $\varphi = 30^\circ$ zu Gunsten der $p_{-12}^{I \rightarrow B}$ -Wahrscheinlichkeit ab und diese wieder bei $\varphi = 150^\circ$ für $p_{2-1}^{I \rightarrow B}$. Abbildung 4.5 c) zeigt die Abnahme von $p_{11}^{I \rightarrow B}$ und Zunahme von $p_{-12}^{I \rightarrow B}$ bei $\varphi = 90^\circ$, des weiteren deren Abnahme und

das Anwachsen von $p_{1-2}^{I \rightarrow B}$ bei $\varphi = 210^\circ$, sowie den Anstieg von $p_{-1-1}^{I \rightarrow B}$ während der $p_{1-2}^{I \rightarrow B}$ -Verringerung bei $\varphi = 330^\circ$ für die \bar{I} -Zwischengitterplätze.

Das Gesamtergebnis des Blase-zu-Blase-Sprunges innerhalb einer Periode ist in Abbildung 4.6 zu erkennen. Auch hier ist eindeutig zu sehen, dass die Wahrscheinlichkeit, dass die Sprungrichtung des Partikels mit der Richtung des externen Magnetfeldes übereinstimmt, am größten ist, wenn das Magnetfeld in Richtung einer Blasengitterachse zeigt, der Winkel φ also $n \cdot 60^\circ$ (mit $0 \leq n \leq 5$) beträgt.

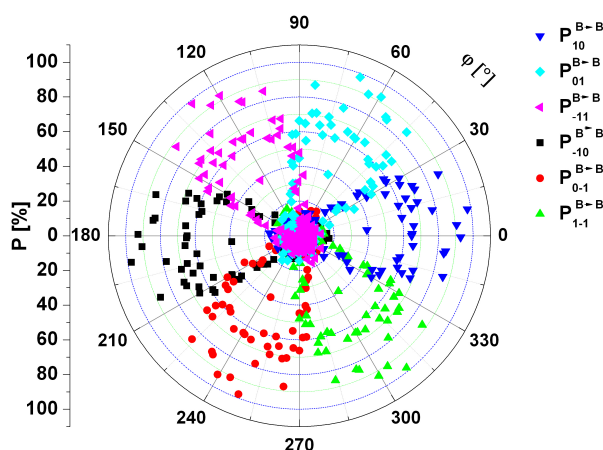


Abbildung 4.6: Wahrscheinlichkeitsverteilung der Sprungrichtungen von Blase zu Blase in Abhängigkeit vom Winkel φ

Die Versuche wurden für verschieden zusammengesetzte externe Magnetfelder und verschiedene Frequenzen durchgeführt. Die gezeigten Abbildungen 4.5 und 4.6 stammen aus den Messungen mit einem externen Magnetfeld von

$$\mathbf{H}(t) = H \cdot \sin \omega t [\sin \vartheta (\cos \varphi \mathbf{e}_x + \sin \varphi \mathbf{e}_y) + \cos \vartheta \mathbf{e}_z].$$

Es wurden auch Messungen mit externen Magnetfeldern, bei denen die x-, y- und z-Komponente phasengleich waren, durchgeführt. Die beobachteten Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Partikelsprungrichtungen zeigen jedoch keinen Unterschied zwischen den beiden Magnetfeldeinstellungen.

Außerdem wurden die Experimente für die verschiedenen Frequenzen $\nu = 3 \text{ Hz}$

und 0,6 Hz durchgeführt. Für $\omega = 2\pi \nu = 18,9$ [3,76] Hz betrug der Neigungswinkel $\vartheta = 12^\circ$ (siehe Abbildung 1.2) und die Magnetfeldamplitude $H = 1460$ [810] Am^{-1} . Für eine kleinere Frequenz erwartet man einen schärferen Übergang zwischen den verschiedenen Richtungen, weil die thermische Diffusionsbewegung der Partikel einen geringeren Einfluss auf die Wahl der Sprungrichtung hat. Wie auch in Kapitel 3.7 erwähnt, ist die thermische Diffusion der Partikel für alle Untersuchungen gleich. Verkleinert man die Frequenz des externen Magnetfeldes, variiert damit die Energielandschaft der Partikel langsamer. Dadurch hat es mehr Zeit seine durch thermische Diffusion ausgelenkte Position auszugleichen und folgt somit exakter der vorgegebenen Richtung.

Um die Übergänge zwischen den verschiedenen Bewegungsrichtungen in Abhängigkeit der Frequenz besser miteinander vergleichen zu können, wurden beide Messreihen mit den zugehörigen gefitteten Graphen in der Abbildung 4.7 dargestellt.

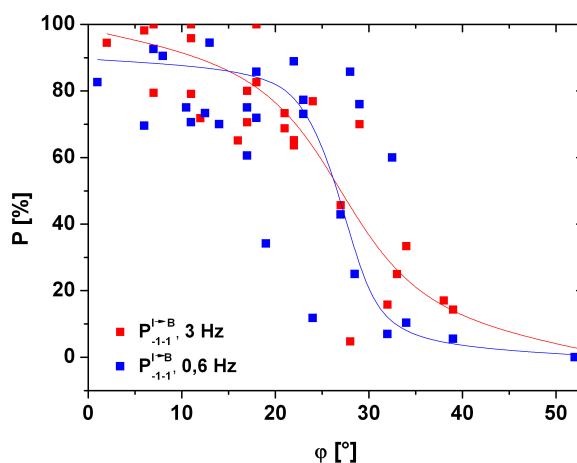


Abbildung 4.7: gefittete Funktion der Wahrscheinlichkeitsverteilung der -1-1-Sprungrichtung vom Zwischengitterplatz zur Blase um den Übergangswinkel $\varphi \sim 30^\circ$ bei den Frequenzen $\nu = 3$ Hz und 0,6 Hz

Es ist möglich daraus abzulesen, dass bei $\nu = 0,6$ Hz der Übergang steiler ist und damit in einem kleinerem Winkelbereich $\Delta \varphi = 13^\circ$ stattfindet als bei $\nu = 3$ Hz mit $\Delta \varphi = 20^\circ$.

4.2 Ergebnisse-Theorie

Wie man aus den Experimenten ersehen kann, ist der Übergang der Sprungrichtung der Partikel bei den entsprechenden Winkeln φ stetig. Simuliert man das Problem mit Maple, geht man von externen Magnetfeldern aus, die mittels der x- und z-Spulen (siehe dazu Kapitel 3.7) erzeugt werden. Des Weiteren wurde angenommen, dass die magnetischen Blasen auf dem Granatfilm unendlich scharf abgegrenzte Domänenwände besitzen, weil die Partikel im Verhältnis zur Breite der Domänenwände weit weg sind. Das Magnetfeld einer Blase wurde wie in [2] angenommen:

$$\frac{H_{m\pm,r}}{M} = \mp \frac{2}{\pi} \sqrt{\frac{R}{r}} Q_{1/2} \left(\frac{r^2 + R^2 + z^2}{2rR} \right) \quad (4.2)$$

für den radialen Anteil und für den z-Anteil:

$$\frac{H_{m\pm,z}}{M} = \pm \frac{2}{\pi} \left(\frac{(\sqrt{r^2 + z^2} - R)(\sqrt{r^2 + z^2} - r)\Pi(n_+, k_{m\pm})}{z \sqrt{(r+R)^2 + z^2}} + \frac{(\sqrt{r^2 + z^2} + R)(\sqrt{r^2 + z^2} + r)\Pi(n_-, k_{m\pm})}{z \sqrt{(r+R)^2 + z^2}} \right) \quad (4.3)$$

mit:

$$k_{m\pm} = \sqrt{\frac{4rR}{z^2 + (r+R)^2}}, \quad n_{\pm} = \frac{2r}{r \pm \sqrt{r^2 + z^2}} \quad (4.4)$$

wobei r der Abstand in der x - y -Ebene zum Blasenzentrum ist, z die Höhe über dem Granatfilm, $Q_{1/2}$ die Legendre-Funktion 2. Art und Π das vollständige elliptische Integral 3. Ordnung.

R ist der mit dem Magnetfeld variierende Blasenradius. Dabei geht man davon aus, dass das externe z -Feld

$$H_{ext}^z = 2M\left(\Phi - \frac{1}{2}\right) \quad \text{und} \quad \Phi = \frac{\pi R^2}{A_{unit}} \quad (4.5)$$

die auf die Einheitszelle A_{unit} normierte Blasenfläche Φ sind (siehe Abbildung 4.8).

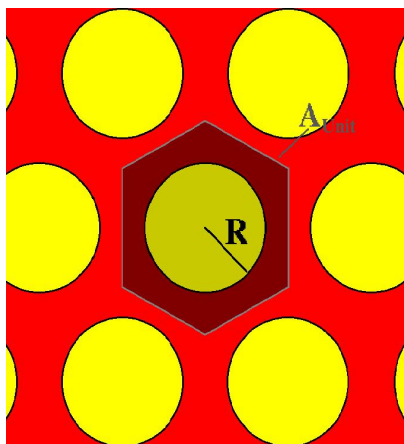


Abbildung 4.8: schematische Darstellung der Einheitszelle A_{unit}

Damit erhält man schließlich für den variierenden Blasenradius:

$$R = \sqrt{\frac{A_{unit}}{2\pi} \left(\frac{H_{ext}^z}{M} + 1 \right)} \quad (4.6)$$

Für die Berechnungen der Energielandschaft des Blasengitters wurden die ersten fünf Blasenkreise (siehe dazu 4.9 links) um die Blase im Ursprung mit einbezogen, für die Fläche darüber hinaus wurde der Mittelwert des Magnetfeldes eingesetzt.

Die Energieplots wurden in Höhe z der paramagnetischen Partikel ($z \sim 2 \cdot 10^{-6}$ m)

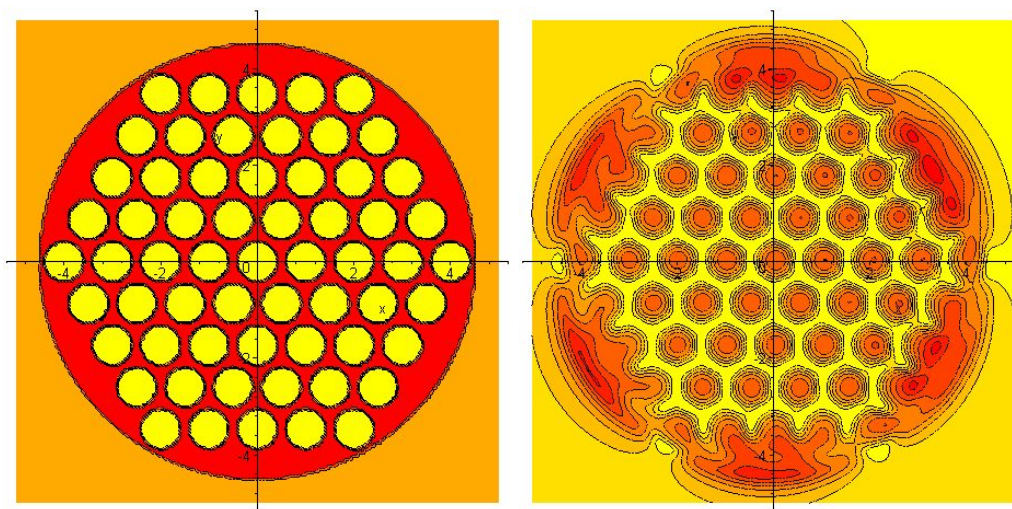


Abbildung 4.9: Darstellung der ersten fünf Blasenkreise (links) und der zugehörigen Energielandschaft (rechts) mittels Maple

für verschiedene Zeiten bzw. Phasen und Ausschnitte berechnet und dargestellt. Wie in Kapitel 3.7 beschrieben, schweben die Kolloide über der Granatfilmoberfläche, weil die Partikel einerseits durch das Magnetfeld angezogen, aber durch die Beschichtung des Granatfilms, die die gleiche Ladung wie die Carboxylgruppen an der Oberfläche der Partikel trägt, abgestoßen werden. Der Weg der Kolloide lässt sich mit Hilfe der Energielandschaft (siehe dazu 4.9 rechts) erklären und verfolgen. Je dunkler das Rot ist, desto tiefer ist das Energielevel und das Partikel bewegt sich immer zu diesem Energieminimum. Generell erwartet man drei Szenarien:

Wenn das externe Magnetfeld in Richtung der Blasengitterachse zeigt, der Winkel φ zwischen den beiden also 0° beträgt, sind die entstehenden Minima I und \bar{I} zwischen den Blasen gleichberechtigt. Die Angaben des Winkels φ beziehen sich auf die Abbildung 1.2 und die Aussagen gelten, wegen der sechs ohne externes Magnetfeld gleichberechtigten Blasengitterrichtungen, jeweils auch für die Winkel $\varphi = X^\circ + n \cdot 60^\circ$ (mit $0 \leq n \leq 5$), wenn sie für den Winkel $\varphi = X^\circ$ gelten.

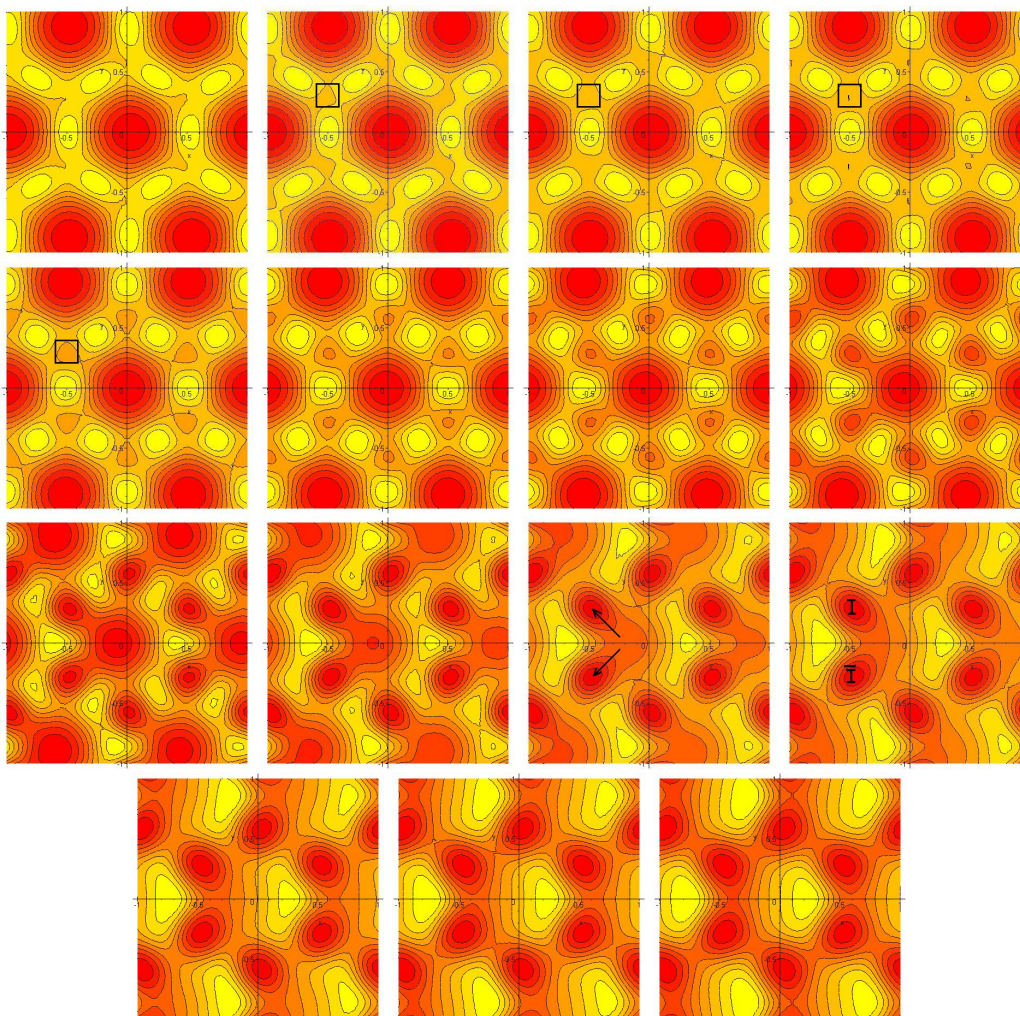


Abbildung 4.10: zeitliche Entwicklung der Energielandschaft für $\varphi = 0^\circ$
 (t in 0,01-Schritten von 0,21 - 0,35 von links oben nach rechts
 unten)

In Abbildung 4.10 kann man die zeitliche Änderung der Energielandschaft sehen. Die Pfeile zeigen die Bewegungsrichtung der Partikel an. Die zeitliche Entwicklung des externen Magnetfeldes

$$\mathbf{H}(t) = H \sin \omega t [\sin \vartheta (\cos \varphi \mathbf{e}_x + \sin \varphi \mathbf{e}_y) + \cos \vartheta \mathbf{e}_z]$$

wird durch t beschrieben. Die Kreisfrequenz ω wird einer vollen Periode von 2π

gleichgesetzt, während t dimensionslos im Bereich von 0 - 1 und damit ωt im Bereich von 0 - 2π variiert. Während im Zeitfenster $t = 0 - 0,2$ kaum eine Veränderung zu bemerken ist, folgt die in Abbildung 4.10 dargestellte starke Entwicklung von $t = 0,21 - 0,35$. Darauf erkennt man, dass anfänglich nur Energieminima bei den Blasenpositionen zu finden sind und die Maxima dazwischen (erste Zeile der Abbildung 4.10). Mit fortschreitender Zeit entstehen auf den Zwischengitterplätzen ebenfalls Minima (Zeile zwei). Die Energieminima der Blasen werden schwächer, verbinden sich mit denen der Zwischengitterplätze und verwandeln sich zu Energiemaxima (siehe Zeile drei und vier). Bis $t = 0,5$ ist die Veränderung wieder gering und danach entwickelt sich die Energielandschaft auf dem gleichen Weg zurück. Die Partikel bleiben dabei solange in den Minima I bzw. \bar{I} bis sie zur nächsten Blase gezogen werden. Da man diese Minima auf den Bildern von Abbildung 4.10 im kritischen Moment nicht genau erkennen kann, wurden die interessantesten Ausschnitte bei $t = 0,22 - 0,25$ mit einem schwarzen Quadrat markiert und in Abbildung 4.11 wiedergegeben.

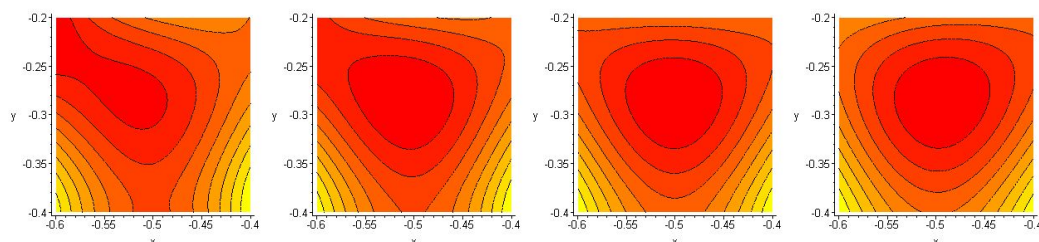


Abbildung 4.11: vergrößerter Ausschnitt der Energielandschaft für $t = 0,22 - 0,25$ in 0,01-Schritten und für $\varphi = 0^\circ$

Durch die Vergrößerung des Ausschnitts bei gleichbleibender Anzahl an Höhenlinien im Bild ändert sich die Auflösung und das Minimum erscheint in Abbildung 4.11 tiefer (dunkelroter) als in Abbildung 4.10. Dadurch kann man deutlich erkennen, dass sich das Energieminimum in Richtung der Blase links (also in Richtung

des Magnetfeldes) bewegt und das Partikel diesem folgen würde. Da in diesem Fall durch den Winkel $\varphi = 0^\circ$ die Minima I und \bar{I} gleichberechtigt sind, verschmelzen beide auch in gleicher Weise mit dem Minimum der linken Blase (auf den Abbildungen angeschnitten, am linken Rand zu sehen) wodurch das Partikel zu dieser springt. Dies bedeutet, dass man bei $\varphi = 0^\circ$ zwei gleichwahrscheinliche Wege zur nächsten (gleichen!) Blase hat und dementsprechend 50% der paramagnetischen Kugeln über I und 50% über \bar{I} zur benachbarten linken Blase gelangen.

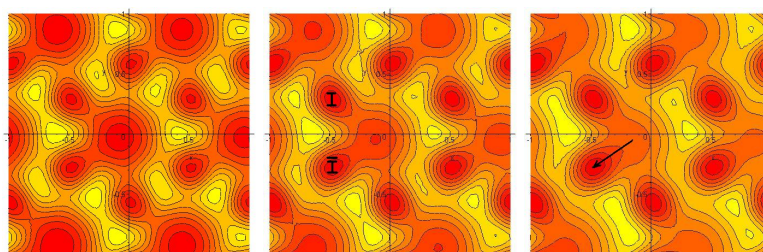


Abbildung 4.12: Energie für $t = 0,29 - 0,31$ und $\varphi = 20^\circ$

Der zweite Fall der Partikelbewegung bzw. der Wegwahl betrifft die Winkel $0^\circ < \varphi < 30^\circ$ ($+ n \cdot 60^\circ$). Wie man in Abbildung 4.12 erkennt, ist das Energieminimum I eher mit dem Blasenminimum verbunden, wodurch sich nach der Maple-simulation alle Partikel in diese Richtung und damit in die Richtung des externen Magnetfeldes bewegen würden. Die Partikel springen damit wie bei $\varphi = 0^\circ$ zur nächsten linken Blase, haben aber nur eine Wegmöglichkeit - über I - und keine zwei gleichberechtigten. Ansonsten gleicht die Änderung der Energielandschaft der bei $\varphi = 0^\circ$ in Abbildung 4.10. Für Winkel $30^\circ < \varphi < 60^\circ$ ($+ n \cdot 60^\circ$) gilt das gleiche Szenario, nur dass sich die Partikel über einen \bar{I} -Platz bewegen.

Für $\varphi = 30^\circ$ zeigt die Richtung des externen Magnetfeldes genau zwischen zwei Blasengitterachsen zum Zwischengitterplatz I. So bewegen sich die Partikel wie beim zweiten Fall in Richtung des externen Feldes zum Energieminimum I. Die

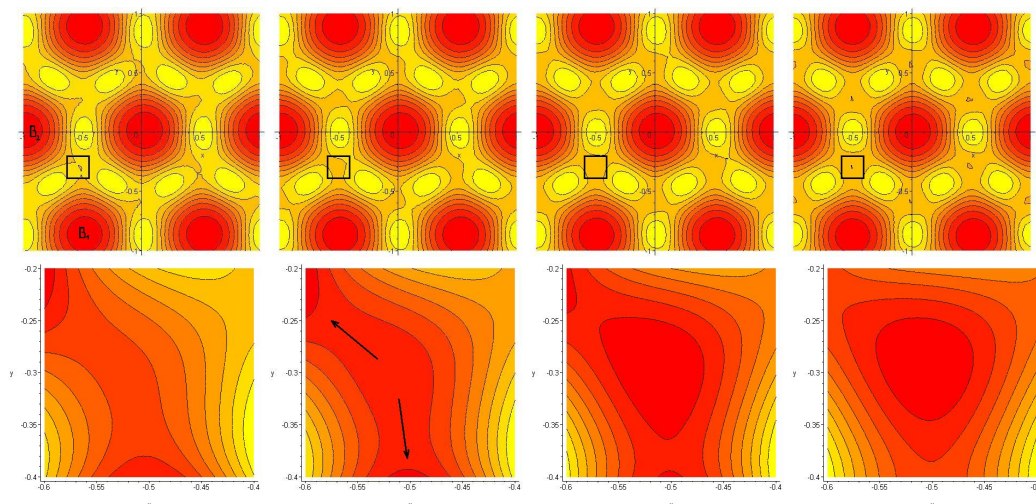


Abbildung 4.13: Energieplot mit dazugehörigem Ausschnitt für $t = 0,21 - 0,24$ und $\varphi = 30^\circ$

Energieminima der Blasen B_1 und B_2 (siehe Abbildung 4.13) verschmelzen gleichzeitig mit dem Minimum I, wodurch beide Wege gleichberechtigt sind. Verfolgt man die Bilder von Abbildung 4.13 rückwärts, sieht man dies in der zeitliche Entwicklung der Energielandschaft. Wie schon vorher beschrieben durchläuft die Energielandschaft eine periodische Änderung, so dass es legitim ist, die Bilder der Zeit $t = 0 - 0,5$ rückwärts zu durchlaufen um eine Abbildung für die zeitliche Entwicklung im Rahmen $t = 0,5 - 1$ zu erhalten. Durch die gleichberechtigten und damit gleichwahrscheinlichen Wege springen jeweils 50 % der Kolloide zur Blase B_1 und 50 % zur Blase B_2 . Wie bei $\varphi = 0^\circ$ haben die Partikel eine Wahlmöglichkeit und folgen der Wahrscheinlichkeitsverteilung. Jedoch erfolgt die Aufteilung zu einem späteren Zeitpunkt und hat als Konsequenz zwei verschiedenen Ergebnisse: Sprung zur Blase B_1 oder zur Blase B_2 . Im Vergleich erhält man bei einem Winkel $\varphi = 0^\circ$ das gleiche Ergebnis bzw. endet der Sprung bei der gleichen Endblase, nur dass die Partikel zwei verschiedenen Wegen benutzen.

Kapitel 5

Diskussion

In den Experimenten konnte man einen kontinuierlichen Übergang der Partikel-sprungrichtungen auf dem Granatfilm in Abhängigkeit des Winkels φ der externen Magnetfeldrichtung zur 10-Blasengitterachse beobachten. Die linke Grafik von Abbildung 4.2 zeigt dies für einen Blase-zu-Blase-Sprung der paramagnetischen Kolloide im Bereich um den Übergangswinkel $\varphi = 30^\circ$. In diesem Bereich geht die Gesamtsprungrichtung von der bei kleineren Winkeln dominierende 10- in die bei größeren Winkeln dominierende 01-Gitterachsenrichtung über. Man sieht, dass sich dieser Übergang kontinuierlich von $\varphi = 20^\circ$ bis 40° vollzieht. Fehler und Abweichungen im Kurvenverlauf können durch Störstellen im Blasen-gitter des Granatfilms verursacht werden. Störstellen können dabei wie bei einem Kristallgitter Stufenversetzungen sein, aber auch Schwankungen der Blasengröße, nicht parallele Gitterachsen, Teile vom Streifenmuster innerhalb des Blasen-gitters bzw. teilweise Verschmelzung von mehreren Blasen, sowie externe Störungen wie z.B. Kratzer auf dem Granatfilm. Sind solche Störungen im Blasen-gitter vorhanden, wird dementsprechend die Partikelbewegung beeinflusst. Die Partikel können nicht mehr den eigentlichen Bewegungsrichtungen folgen und daraus ergeben sich die Abweichungen bei der Datenauswertung.

Betrachtet man die Ergebnisse der Maplesimulationen der Energielandschaften (z.B. Abbildungen 4.11 bis 4.13), so erkennt man, dass sich nur bei dem kritischen Winkel die Energieminima gleichzeitig mit dem Sattelpunkt verbinden. Bei dem Blase-zu-Zwischengitterplatz-Sprung ist dies der Fall, wenn die externe Magnetfeldrichtung entlang einer Blasengitterachse zeigt, der Winkel φ also $0^\circ + n \cdot 60^\circ$ ($0 \leq n \leq 5$) beträgt. Bei allen anderen Winkeln erfolgt die Verschmelzung der Minima mit dem Sattelpunkt nach einander. Würde man annehmen, dass die Partikel den Minima der Energielandschaft direkt folgen würden, erhielte man einen Übergang der Bewegungsrichtungen wie in der rechten Grafik der Abbildung 4.2 dargestellt. Alle Partikel würden bis zum kritischen Sprungwinkel $\varphi = 30^\circ$ der 10-Richtung und für größer Winkel φ der 01-Gitterachsenrichtung folgen. Bei einem Winkel von genau 30° wäre die Wahrscheinlichkeit in einen der beiden Richtungen zu springen gleich groß.

Die paramagnetischen Kolloide folgen jedoch nicht direkt den Energieminima, sondern erhalten durch die thermische Diffusion einen Bewegungsspielraum. Im Normalfall, wenn ein eindeutiges stabiles Minimum vorhanden ist, kann man die thermische Diffusion vernachlässigen. Geht jedoch ein Minimum in einen Sattelpunkt über, kann das Partikel auf diesem hin- und herdiffundieren. Verschmilzt in dieser Zeit das zweite Minimum mit dem Sattelpunkt, bekommt das Partikel die Wahlmöglichkeit zwischen den beiden Richtungen, auch wenn der Winkel φ nicht genau einem kritischen Übergangswinkel entspricht. Man erhält einen kontinuierlichen Übergang.

Theoretisch erhält man die Bewegung der Partikel als Überlagerung der Änderung der potentiellen Energie eines Partikels $V(\mathbf{x}(t), t)$, der Reibungs- und einer thermischen Zufallskraft $\zeta(t)$:

$$-f\eta a\dot{\mathbf{x}}(t) - \nabla V(\mathbf{x}(t), t) + \zeta(t) = \mathbf{0} \quad (5.1)$$

wobei hier $f = 20$ der Reibungskoeffizient eines Partikels nahe der Granatfilmoberfläche [13], $\eta = 10^{-3} \text{Nsm}^{-2}$ die Viskosität von Wasser, $a = 1,4 \mu\text{m}$ der Partikelradius und $\mathbf{x}(t)$ der Abstand vom gewählten Blasenzentrum ist.

Mit Hilfe des Fluktuations-Dissipations-Theorems kann die Kraft aufgrund der thermischen Partikelbewegungen beschrieben werden als:

$$\langle \zeta(t_1) \zeta(t_2) \rangle = 2f\eta a k_B T \delta(t_1 - t_2) \mathbf{1} \quad (5.2)$$

mit den Zufallskräften $\zeta(t_1)$ und $\zeta(t_2)$, den Richtungen der Partikelbewegung zu den Zeiten t_1 und t_2 , der Boltzmann-Konstante $k_B = 1,38 \cdot 10^{-23} \text{JK}^{-1}$ und der Temperatur $T \sim 300 \text{K}$.

Da die potentielle Energie

$$V(\mathbf{x}(t), t) = -\chi \frac{4\pi}{3} a^3 \mu_0 H^2(\mathbf{x}(t), t) \quad (5.3)$$

mit der magnetischen Suszeptibilität der Kolloide $\chi = 0,17$, der magnetischen Feldkonstante $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{H m}^{-1}$ und der Magnetfeldamplitude H wesentlich größer als die thermische Energie ist, kann man die Gleichung 5.1 meist zu

$$\nabla V(\mathbf{x}_s(t), t) = \mathbf{0} \quad (5.4)$$

vereinfachen. Das Energieminimum $\mathbf{x}_s(t)$ ist zeitabhängig und entsteht durch die Überlagerung des externen Magnetfeldes mit dem des Blasengitters - wie es auch bei der Maplesimulation angenommen worden ist. Mit dem Minimum bewegt sich das Partikel, das sich dadurch nur auf vorgegebenen Bahnen bewegen kann. Je nach Höhe und Frequenz der angelegten externen Felder umrundet das Partikel die Blasen, bewegt sich triangulär zwischen ihnen oder hüpft von Blase zu Blase [6]. Die Bewegung von Blase zu Blase ist jedoch nur möglich, wenn das externe Feld einen Grenzwert überschreitet. In der hier vorgeschlagenen Theorie wird das Minimum zur kritischen Zeit t_c zu einem Sattelpunkt und das Partikel wird entweder in $+\xi_c$ - oder in $-\xi_c$ -Richtung transportiert. Die Richtung hängt vom Vor-

zeichen von $(\xi \nabla)^3 V$ ab. Die kritische Zeit t_c , zu der der Grenzwert erreicht wird, ist wie folgt definiert:

$$\nabla V(\mathbf{x}_c(t_c), t_c) = \mathbf{0} \quad \text{und} \quad \xi_c \cdot \nabla \nabla V(\mathbf{x}_c(t_c), t_c) = \mathbf{0} \quad (5.5)$$

Mit dieser Definition kann man die Änderung der potentiellen Energie $\nabla V(\mathbf{x}(t), t)$ des Partikels und damit die gesamte Gleichung 5.1 nahe dem Sattelpunkt $\mathbf{x}_s(t_c)$ angeben. Für die folgende Gleichung wurde die $+\xi_c$ -Richtung gewählt.

$$-f\eta a \dot{x}(t) - \partial_t \partial_\xi V|_{x_s(t_c), t_c} (t - t_c) + \zeta(t) = 0 \quad (5.6)$$

Die Zeiten t sind in unmittelbarer Nähe von t_c . Für die Lösung dieser Gleichung erhält man für die mittlere quadratische Abweichung des Partikels vom Sattelpunkt als Funktion der Zeit $\Delta t = t - t_c$:

$$\langle x^2(\Delta t) \rangle = \frac{1}{4} \left(\frac{\partial_t \partial_\xi V|_{x_s(t_c), t_c}}{f\eta a} \right)^2 (\Delta t)^4 + 2 \frac{k_B T}{f\eta a} \Delta t \quad (5.7)$$

Zur Lösung wurde das Fluktuations-Dissipations-Theorem 5.2 genutzt und man erkennt, dass sich die erhaltene Lösung aus dem beschleunigten Teil $\frac{1}{4} \left(\frac{\partial_t \partial_\xi V|_{x_s(t_c), t_c}}{f\eta a} \right)^2 \Delta t^4$ und dem diffusiven Teil $2 \frac{k_B T}{f\eta a} \Delta t$ zusammensetzt. Die Zeit τ_D , in der die diffusive ($\Delta t < \tau_D$) in eine beschleunigte Partikelbewegung ($\Delta t > \tau_D$) übergeht, ist die Zeit, in der sich das Partikel ziellos auf dem Sattelpunkt hin und her bewegt, bis es dem Energieminimum folgt. Diese Annahme der thermischen Diffusion der Kolloide auf dem Sattelpunkt führt dazu, dass man keinen un stetigen Übergang der Bewegungsrichtung der Partikel in Abhängigkeit von Winkel φ hat (wie in Abbildung 4.2 rechts), sondern einen kontinuierlichen (gleiche Abbildung links).

Wenn die Zeit, in der sich der Sattelpunkt zum ersten Energieminimum $\mathbf{x}_{c1}(t_{c1})$ (siehe auch Abbildung 5.1) öffnet, bis zur Entstehung des zweiten Minimums $\mathbf{x}_{s,1}(t_{c1})$ klein im Vergleich mit τ_D ist, dann sind die beiden Bewegungsrichtungen gleichberechtigt. Ist dagegen τ_D kleiner als dieses Zeitfenster, hat das Partikel

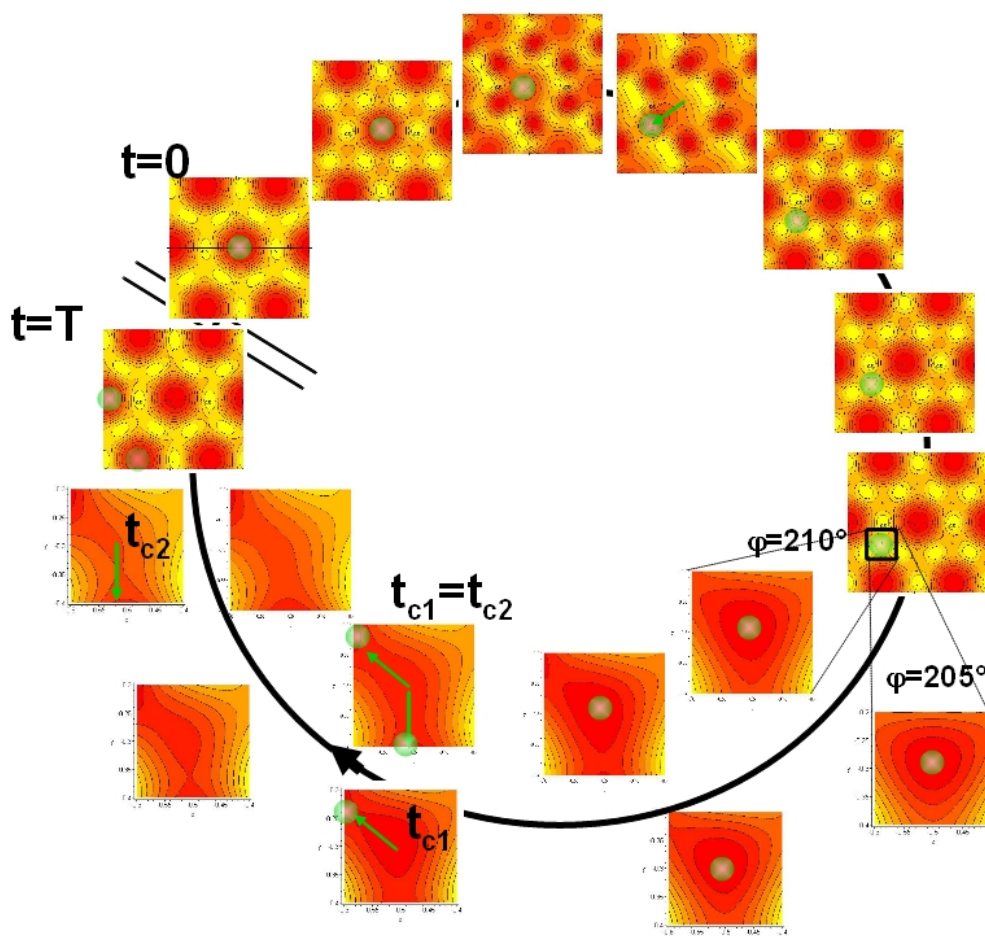


Abbildung 5.1: zeitliche Veränderung der Energielandschaft des Granatfilms mit Partikel in einer Periode für die zwei Winkel $\varphi = 205^\circ$ und 210°

bereits die Richtungswahl getroffen, bevor das zweite Energieminimum entstanden ist. Das Gleichsetzen des Beschleunigungs- und des Diffusionsterms liefert diese Übergangszeit:

$$\tau_D = \left(\frac{8\eta f a k_B T}{(\partial_t \partial_\xi V |_{x_s(t_c), t_c})^2} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (5.8)$$

Die Zeit, die ein Partikel für einen Sprung von einem Sattelpunkt braucht, kann man aus Gleichung 5.6 ablesen:

$$\tau_{hop} = \frac{\eta f a s^2}{V(\mathbf{x}_{c1}(t_{c1}), t_{c1}) - V(\mathbf{x}_{s,2}(t_{c1}), t_{c1})} \quad (5.9)$$

Hierbei ist s der Abstand Δx zwischen den beiden Energieminima $\mathbf{x}_{c1}(t_{c1})$ und $\mathbf{x}_{s,1}(t_{c1})$. Die Verschiebung vom zweiten Minimum von $\mathbf{x}_{s,1}(t_{c1})$ zu $\mathbf{x}_{s,1}(t_{c1} + \tau_{hop})$ wurde vernachlässigt.

Mit diesen Gleichungen kann der Transportweg eines Partikels in der Energielandschaft beschrieben werden. Bis jetzt ist man bei den Berechnungen davon ausgegangen, dass die Energieminima zu verschiedenen Zeiten entstehen. Wie man aber auch anhand der Abbildung 5.1 erkennen kann, öffnen sie die beiden Energietäler, wenn der Winkel φ zwischen der Gitterachse und dem externen Magnetfeld 210° (äquivalent zu $(30 + n \cdot 60)^\circ$, mit $0 \leq n \leq 5$) beträgt, zur gleichen Zeit t dem Sattelpunkt und das Partikel hat zwei wirklich gleichberechtigte Sprungrichtungen zu einer der beiden Blasen. In dem Fall ist das Potential entartet und die Wahrscheinlichkeit, dass das Partikel eine der beiden Richtung wählt, liegt genau bei $p = 50\%$. Würde man von einer rein deterministischen Betrachtungsweise ausgehen, so würde man erwarten, dass, sobald der Winkel φ von 210° abweicht und damit ein Energieminimum auch nur ein wenig früher auftritt, alle Partikel diesem Minimum folgen würden (siehe Abbildung 4.2 rechts). Durch die thermische Zufallsbewegung auf dem Sattelpunkt wird dieser scharfe deterministische Übergang in einen diffusiv beeinflussten Übergang verändert. Die Diffusionszeit auf dem Sattelpunkt ist mit τ_D durch Gleichung 5.8 gegeben. Genauso wie in Gleichung 5.5 beschrieben wird, dass das erste Energieminimum sich in Richtung ξ_{c1} zum Zeitpunkt t_{c1} dem Sattelpunkt öffnet, kann dies für das zweite Minimum in die Richtung ξ_{c2} zum Zeitpunkt t_{c2} dargestellt werden:

$$\xi_{c2} \cdot \nabla \nabla V(\mathbf{x}_{c1}(t_{c1}), t_{c2}) = \mathbf{0} \quad (5.10)$$

Das Verschmelzen zu unterschiedlichen Zeiten t_{c1} und t_{c2} der Energieminima mit dem Sattelpunkt ist ebenfalls in Abbildung 5.1 für den Winkel $\varphi = 205^\circ$ (äquivalent zu $(25 + n \cdot 60)^\circ$, mit $0 \leq n \leq 5$) dargestellt. Man sieht auf dieser Abbildung einen ganzen Zyklus der zeitlichen Veränderung der Energielandschaft des Gra-

natfilms mit der dadurch bedingten Partikelbewegung. Für den größten Teil der Zeit ist die Energielandschaft für die Kolloide ununterscheidbar für die verschiedenen Winkel φ . Zwischen den kritischen Zeiten t_{c1} und t_{c2} ist jedoch der Unterschied zwischen den hier dargestellten Winkeln $\varphi = 205^\circ$ und 210° groß und das Endsprungziel unterschiedlich.

Um die Sprungwahrscheinlichkeit zu berechnen, vergleicht man, wie schon beschrieben, das Zeitfenster $t_{c2} - t_{c1}$, in dem die beiden Richtungen ξ_{c1} und ξ_{c2} instabil werden, mit der Diffusionszeit τ_D auf dem Sattelpunkt. Das Zeitfenster $t_{c2} - t_{c1}$ hängt dabei linear von der Abweichung des Winkels φ vom eigentlichen Übergangswinkel φ_c ab. In unserem Fall zeigt die Richtung des Übergangswinkels immer genau zwischen zwei Blasengitterachsen (für Richtung 10 und 01, beträgt $\varphi_c = 30^\circ$ bzw. in Abbildung 5.1 210°). Wie oben beschrieben würde bei einer rein deterministischen Wahrscheinlichkeitsverteilung des Übergangs der Bewegungsrichtung ohne thermische Diffusion der Partikel sich die Sprungrichtung schlagartig ändern. Für $\varphi < \varphi_c$ würden alle Partikel in die 10-Richtung springen, bei $\varphi = \varphi_c$ wäre die Wahrscheinlichkeit jeweils 50 % und bei $\varphi > \varphi_c$ würden sich alle Partikel in die 01-Richtung bewegen. Durch die Diffusion der Partikel auf dem Sattelpunkt, die mit τ_D beschrieben wird, ist auch der Übergang nicht mehr scharf, sondern vollzieht sich in einem bestimmten Winkelbereich $\varphi - \varphi_c = \Delta\varphi \sim \omega(t_{c2} - t_{c1})$. Damit erhält man unter Einbeziehung der Gleichungen 5.3 und 5.8 für den Winkelbereich in der Übergangsregion eine Abhängigkeit von:

$$\Delta\varphi \sim \omega\tau_D \sim \omega^{\frac{1}{3}} \quad (5.11)$$

Diese Abhängigkeit, der Breite von $\Delta\varphi$ von der Frequenz kann man durchaus auch in Abbildung 4.7 erkennen. Mit abnehmender Frequenz nimmt die Schärfe des Richtungsübergangs zu und damit $\Delta\varphi$ ab.

Ist $\tau_D < (t_{c2} - t_{c1})$, so folgt das Partikel immer der ξ_{c1} -Richtung. Falls die Diffusionszeit dagegen groß genug ist, also $\tau_D > (t_{c2} - t_{c1})$, dann haben die beiden Bewe-

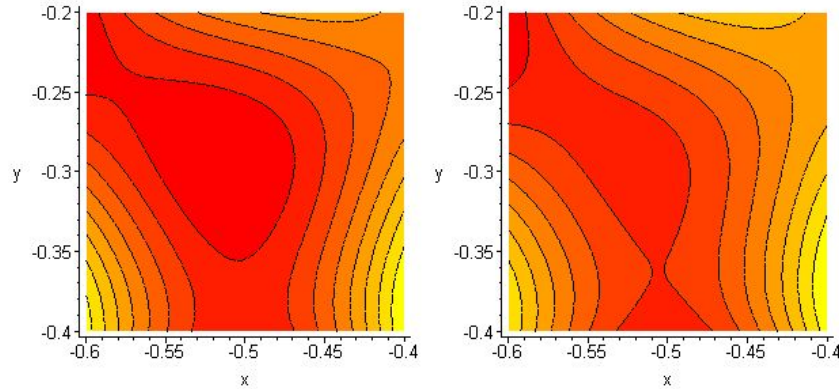


Abbildung 5.2: Entstehen der Instabilitäten im Energieplot für $t = 0,78$ und $0,79$ bei $\varphi = 25^\circ$

gungsrichtungen die gleiche Wahrscheinlichkeit. Zusammengefasst erhält man für die Wahrscheinlichkeit p_1 (p_2), dass das Partikel in Richtung 1 (oder 2) springt:

$$p_1 = \frac{1}{2} + \frac{t_{c2} - t_{c1}}{2\tau_D} \quad \text{und} \quad p_2 = \frac{1}{2} - \frac{t_{c2} - t_{c1}}{2\tau_D} \quad (5.12)$$

Fügt man nun die Werte der in Maple simulierten Energielandschaften (siehe dazu auch die Abbildungen 4.10 bis 4.13) mit der hier entwickelten theoretischen Beschreibung zusammen, so erhält man für $\partial_t \partial_\xi V |_{x_s(t_c), t_c}$ unter der Berücksichtigung von Gleichung 5.3 und dem dimensionslosen Wert von 0,4 aus Maple:

$$\partial_t \partial_\xi V |_{x_s(t_c), t_c} = 0,4 \left(\frac{4\pi \omega}{3} \frac{\chi a^3 \mu_0 M_s^2}{d} \right) \approx 28 p N s^{-1} \quad (5.13)$$

bei einer Frequenz ν von 0,6 Hz bzw. $\omega = 2\pi\nu = 3,7$ Hz. Die dazugehörige Diffusionszeit beträgt hier nach Gleichung 5.8 $\tau_D = 3,4$ ms. Die Zeit $t_{c2} - t_{c1}$ zwischen der Entstehung der beiden Energieminima beträgt für $\varphi = 25^\circ$ dimensionslos in Maple 0,01 (siehe auch die Abbildung 5.2). $t_{c2} - t_{c1} = \frac{0,01}{\omega} = 2,6$ ms liegt somit in der gleichen Größenordnung wie τ_D .

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Aus dem Ergebnisteil 4.1 und 4.2 kann man ersehen, dass man die experimentell erhaltenen Werte der Partikelbewegungen auf dem Blasengitter im Granatfilm unter dem Einfluss eines externen Magnetfeldes nicht allein durch die theoretischen Mapleergebnisse erklären kann. Während die Simulationen der Energielandschaften und somit die Bewegungspfade der Partikel ein deterministisches System suggerieren, zeigen die gemessenen und in Matlab und Origin analysierten Werte einen kontinuierlichen Übergang der Sprungrichtungen in einem gewissen Winkelbereich $\Delta\varphi$.

Wie in Kapitel 3.2 beschrieben, wurde die hexagonale Blasengitterstruktur auf dem Granatfilm durch Überlagerung eines statischen mit einem zeitlich variierenden Magnetfeld erzeugt. Dazu wurde das statische Magnetfeld bis zur Sättigungsmagnetisierung erhöht um das normalerweise vorhandene Streifenmuster der Probe aufzulösen. Das zweite ebenfalls zum Granatfilm senkrechte Feld wurde als Störung genutzt, die die Blasenbildung provozierte. Der Abstand d der Blasenzentren betrug für die verwendete Probe $13,5 \mu\text{m}$ und war damit doppelt so groß wie die Streifenbreite. Nach der Reinigung und Beschichtung konnten die paramagnetischen Kolloide mit einem Durchmesser von $2a = 2,8 \mu\text{m}$ auf diese

kristallgitterähnliche Blasenstruktur pipettiert werden. Reinigung und Beschichtung waren notwendig um Verunreinigungen und das Haften der Partikel auf der Filmoberfläche zu vermeiden.

Die Experimente wurden, um die verschiedenen magnetisierten Bereiche des Blasengitters sichtbar zu machen, mit einem Polarisationsmikroskop durchgeführt. Die gewonnenen Bilder wurden aufgezeichnet und mittels Matlab die Sprungrichtungen ausgezählt.

Diese Sprungrichtungen der paramagnetischen Kolloide waren von einem zusätzlich variierenden parallel zur Probenebene verlaufenden Magnetfeld abhängig. Um die Partikel zu bewegen, wurde ein variierendes z-Feld –also senkrecht zur Probenebene des Granatfilms– angelegt. Damit wechselten die Energiemaxima und -minima mit der Frequenz ν periodisch die Plätze (siehe Abbildung 6.1).

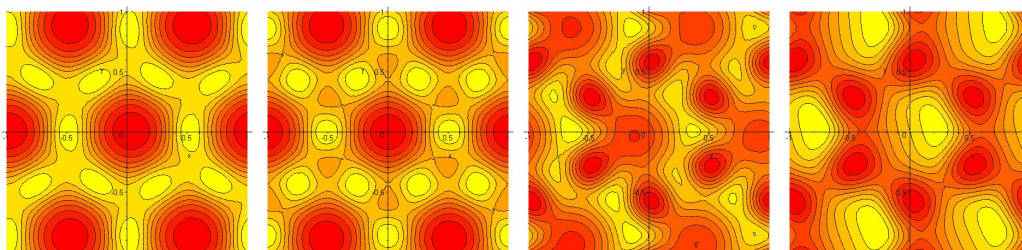


Abbildung 6.1: Wechsel der Energiemaxima und -minima zu den Zeiten $t = 0,2 - 0,35$ in $0,05$ -Schritten, $\varphi = 15^\circ$

Die Partikel folgen aufgrund ihrer magnetischen Eigenschaften diesen Veränderungen und hüpfen ungerichtet zwischen den Blasen hin und her. Wird zusätzlich das zweite mit der gleichen Frequenz variierende Magnetfeld angelegt und übersteigt die Stärke einen Grenzwert, so folgen die Partikel der Richtung dieses Feldes. Inwieweit sie genau dieser Richtung folgen bzw. folgen können, hängt vom Winkel φ zwischen der Blasengitterachse und dem externen Magnetfeld ab. Zeigt das Magnetfeld entlang einer Gitterachsenrichtung, bewegen sich die Parti-

kel auch in diese (siehe Abbildung 4.4 links). Wenn aber die Magnetfeldrichtung genau zwischen zwei Kristallgitterachsen zeigt, muss sich das Partikel bei jedem Sprung für eine der beiden Gitterachsen mit einer Wahrscheinlichkeit von $p = 50\%$ entscheiden, kann jedoch nicht genau dem Magnetfeld folgen (Abbildung 4.4 rechts). Im Winkelbereich zwischen diesen beiden beschriebenen Fällen folgen die meisten Partikel der Gitterachsenrichtung, die der Magnetfeldrichtung am nächsten kommt.

Das Wort meisten bezieht sich dabei auf die Ergebnisse der Experimente. Wie man in den Abbildungen 4.2 und 4.5 erkennen kann, gibt es einen breiteren Winkelbereich $\Delta\varphi$, in dem die Partikel kontinuierlich die Gitterachsenrichtung wechseln und somit nicht der dem Magnetfeld nächsten Blasenrichtung folgen. Das heißt, es gibt keinen deterministischen Übergang, bei dem die Wahrscheinlichkeit für eine Bewegungsrichtung von $p = 100\%$ unterhalb des Übergangswinkels auf $p = 50\%$ genau bei diesem Winkel und schließlich auf $p = 0\%$ für größere Winkelwerte springt. Der Übergangswinkel ist nach der hier verwendeten Definition des Koordinatensystems $\varphi = 30^\circ + n \cdot 60^\circ$ (mit $0 \leq n \leq 5$ für die 6 verschiedenen Kristallachsen), während $\varphi = 0^\circ + n \cdot 60^\circ$ den Richtungen der Gitterachsen entspricht. Des Weiteren ist es durchaus möglich eine Frequenzabhängigkeit des Winkelbereichs $\Delta\varphi$, wie in Abbildung 4.7, zu erkennen. Für kleine Frequenzen ν des externen Magnetfeldes wird auch $\Delta\varphi$ kleiner und damit der Übergang zwischen den Bewegungsrichtungen schärfer.

Die Energielandschaft allein kann das experimentell beobachtete stochastische bzw. deterministische Verhalten nicht erklären. Denn nur bei genau dem Winkel $\varphi = 30^\circ$ werden die beiden Energieminima zur gleichen Zeit instabil, während bei allen anderen Winkeln dies nacheinander geschieht (vergleiche hierzu Abbildung 4.11 mit 4.13). Bezieht man jedoch in 5.1 zur Beschreibung der Partikelbewegung und zur Berechnung der Sprungzeiten eine thermische Zufallskraft $\xi(t)$ mit

ein, kann man die Experimente theoretisch zufriedenstellend erklären. Den Großteil der Zeit ist diese thermische Energie, wegen ihrer verschwindenden Größe zur potentiellen Energie, vernachlässigbar. Beim Übergang der Minima zum Sattelpunkt in der Energielandschaft wird die thermische Energie wichtig und beschreibt die Zeit τ_D des Umherdiffundierens des Partikels auf dieser Fläche.

Die Sattelpunkte und die damit verbundene Diffusionszeit treten bei der Bewegung der Kolloide an zwei Stellen auf. Einmal beim Sprung von der Blase zu einem der Zwischengitterplätze (I oder \bar{I}) und bei der nächsten Wahlmöglichkeit vom Zwischengitterplatz zur Blase. Zeigt das externe Magnetfeld in eine der Blasengitterrichtungen, so sind in diesem Fall die Zwischengitterplatzarten I und \bar{I} und die darüber definierten Netzwerke gleichberechtigt (siehe Abbildung 4.3). Die Wahrscheinlichkeiten, dass das Partikel sich über I oder \bar{I} bewegt, sind gleich groß und werden bei jedem Sprung neu gewählt, wie in Abbildung 4.4 gut zu erkennen ist (einmal Sprung nach rechts und einmal Sprung nach links). Stimmen die Richtungen des Magnetfeldes mit der der Kristallachse nicht ganz überein, gibt es einen Winkelbereich $\Delta\varphi$, in dem ebenfalls diese Wahlmöglichkeit für die Partikel besteht. Die Wahrscheinlichkeit p dieser Wahlmöglichkeit in $\Delta\varphi$ beträgt jedoch nicht 50 %. Dieser Winkelbereich hängt von τ_D und damit von der Frequenz des Magnetfeldes ab. Außerhalb dieses Winkelbereichs gibt es keine Wahlmöglichkeit, bzw. der Zeitunterschied, in dem die Energieminima instabil werden und sich mit dem Sattelpunkt verbinden, ist zu groß um durch die Diffusionszeit überbrückt zu werden. Alle Partikel bewegen sich dann nur über einen Zwischengitterplatz. Diese Wahlmöglichkeit ist für das Endergebnis, auf welche Blase das Partikel insgesamt springt, unwichtig. Denn wenn das Magnetfeld (etwa) in Richtung der Blasengitterachse zeigt, ist die Hauptsprungrichtung vorgegeben und die einzige Wahlmöglichkeit ist der Weg bzw. der Zwischengitterplatz, über welches das Partikel dahin gelangt.

Beträgt der Winkel $\varphi = 30^\circ + n \cdot 60^\circ$, gibt es keine Wahl des Netzwerks, aber eine Wahl der Endrichtung zu welcher Blase das Partikel von seinem Zwischengitterplatz springt. In einem gewissen Winkelbereich gibt es auch hier einen, durch die thermische Diffusionsbewegung des Partikels hervorgerufenen, kontinuierlichen Übergang der Sprungrichtungen. Es besteht der folgende Zusammenhang zwischen der gewählten Frequenz ω bzw. der Diffusionszeit τ_D und der Größe des Winkelbereichs: $\Delta\varphi \sim \omega\tau_D \sim \omega^{\frac{1}{3}}$ (siehe Gleichung 5.11). Damit stimmen die experimentellen mit den theoretischen Ergebnissen gut überein.

In dieser Arbeit wurde die Bewegungsrichtung paramagnetischer Kolloide in einer modulierten Energielandschaft der Blasengitterstruktur auf einem Granatfilm untersucht. Stärke und Frequenz des extern angelegten Magnetfeldes wurden als Stellparameter eingesetzt. Mittels des Winkels φ zwischen einer Blasengitterrichtung und dem Feld konnte die Zeitdifferenz zwischen dem Auftreten der Energieminima, die sich mit dem entstandenen Sattelpunkt verbanden, gesteuert werden. Sowohl im Experiment als auch in der Theorie konnte gezeigt werden, dass man einen Übergang der Sprungrichtung von deterministisch zu völlig stochastisch durch Variation des Winkels von $0^\circ - 30^\circ$ erhält. Für große Zeitfenster $t_{c2} - t_{c1}$ zwischen den auftretenden Energieminima und kleine Diffusionszeiten τ_D , ist der Prozess deterministisch, während für gleichzeitig auftretende Minima die Wahrscheinlichkeiten für die beiden möglichen Partikelpfade mit $p = 50\%$ genau gleich groß sind.

Desweiteren wurde in dieser Arbeit beschrieben, dass man den Sprungvorgang in zwei Schritte zerlegen kann: die Bewegung von der Blase zum Zwischengitterplatz und von diesem zur nächsten benachbarten Blase. Je nach Richtung des externen Feldes und somit Größe des Winkels φ findet ein stochastischer Prozess bei der Wegwahl im ersten oder zweiten Schritt oder in keinem von beiden statt. Nur,

wenn im zweiten Schritt die Wahl der nächsten Blase nichtdeterministisch ist, hat dies auf die Endrichtung des Partikelsprungs eine Auswirkung. Tritt der stochastische Prozess der Richtungswahl im ersten Schritt des Sprungs auf, so findet eine Auswahl der Zwischengitterplatzart (I oder \bar{I}) und damit die Wahl des benutzten Netzwerks statt. Die Zielblase bleibt jedoch die gleiche.

Dieses Wissen über die Abhängigkeiten der Richtungswahl und dem nichtdeterministischen Übergang der Sprungrichtungen in einem gewissen Winkelbereich sind für die bewusste Steuerung und Manipulation des Partikeltransports Grundvoraussetzungen. Erst mit diesem Verständnis wird es möglich z.B. Polyelektrolytkapseln mit magnetischen Nanopartikeln zu beladen, über ein solches Blasengitter zu transportieren und an einer definierten Endstelle zu entladen, oder gar das in Kapitel 1 angesprochene Lab-on-a-chip-Projekt zu verwirklichen.

Literaturverzeichnis

- [1] D. Belder; Auf dem Weg zum Chip-Labor ; Tätigkeitsbericht (2005), Max-Planck-Institut für Kohlenforschung, Mülheim an der Ruhr, 321-325
- [2] P. Dhar, P. Tierno, J. Hare, T.H. Johansen, T.M. Fischer; Curvature Driven Transport of Mouse Macrophages in a Pulsating Magnetic Garnet Film; J. Phys. Chem. B, **111** (2007), 13097-13100
- [3] P. Tierno, S.V. Reddy, J. Yuan, T.H. Johansen, T.M. Fischer; Transport of Loaded and Unloaded Microcarriers in a Colloidal Magnetic Shift Register; J. Phys. Chem. B, **111** (2007), 13479-13482
- [4] P. Tierno, T.H. Johansen, T.M. Fischer; Magnetically Driven Colloidal Microstirrer; J. Phys. Chem. B, **111** (2007), 3077-3080
- [5] W. Metzdorf; Informationsspeicherung mit Magnetblasen; J. Magn. Magn. Mater., **4** (1977), 145-158
- [6] P. Tierno, T.H. Johansen, T.M. Fischer; Localized and Delocalized Motion of Colloidal Particles on a Magnetic Bubble Lattice; Phys. Rev. Lett., **99** (2007), 038303
- [7] L.E. Helseth, T. Backus, T.H. Johansen, T.M. Fischer; Colloidal Crystallization and Transport in Stripes and Mazes; Langmuir, **21** (2005), 7518-7523

- [8] H. Stöcker; Taschenbuch der Physik; Verlag Harri Deutsch, 4. Auflage, Frankfurt am Main (2000)
- [9] <http://tools.invitrogen.com/content/sfs/gallery/high/3604.jpg>
(16.08.2010)
- [10] C. Gerthsen, D. Meschede; Gerthsen Physik; Springer-Verlag, 22. Auflage, Berlin (2004)
- [11] T. Bohlein; Dynamik an Grenzflächen; Diplomarbeit, Bayreuth (2009), 11
- [12] K. Kopitzki; Einführung in die Festkörperphysik; Teubner Studienbücher, 3. Auflage, Stuttgart (1993)
- [13] L.E. Helseth, H.Z. Wen, T.M. Fischer; Particle diffusion in a field-guided microfluidic channel; J. Appl. Phys., **99** (2006), 024909

Kapitel 7

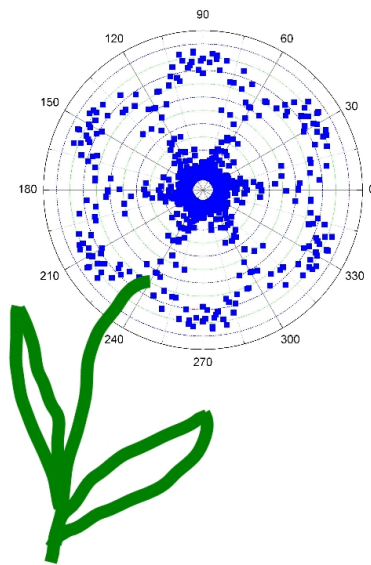
Danksagung

An dieser Stelle ist es üblich sich bei allen, die einen geholfen, unterstützt, gestützt, begleitet und zur Fertigung dieser Diplomarbeit immer ein offenes Ohr hatten, zu danken. Aber auch bei denen, die das Leben schöner, interessanter, diskussionsreicher und lustiger gemacht haben und auch zur Motivation beigetragen haben. Ich möchte diese Danksagung nicht schreiben, weil es üblich und Standard ist, sondern weil die Atmosphäre und Unterstützung, mit und unter der diese Diplomarbeit entstanden ist, nicht selbstverständlich sind.

So richtet sich an erster Stelle mein Dank an Prof. Thomas Fischer, der zu jeder Zeit bereit war Fragen zur Diplomarbeit zu diskutieren und auch bei vielen „außerdiplomären“ Projekten zu unterstützen. Ebenfalls hätte ohne Saeedeh, Natalia, Uli, Ayan, Ziad, Tobi und „Master of coffee“ Nebojsa diese Arbeit nicht so viel Spaß gemacht und wäre (auch kulturell) nicht so interessant gewesen. Ich werde wohl mal einen großen Kuchen backen müssen. Nicht zuletzt danke ich auch meinen Eltern, Georg und Cloud für ihre Unterstützung und aufmunternden Worte.

Aber genauso wäre, diese Arbeit nicht möglich gewesen ohne die gesamte Uni mit all ihren Mitarbeitern (ich denke da z.B. an die „Werkstädtler“, Reinigungskräfte, „Mensaianer“, ...).

Dem nicht genug, ich bin auch glücklich darüber, dass ich überhaupt studieren konnte und durfte. Man nimmt es als gegeben hin, dass man in einer Gesellschaft geboren wird, in der man zur Schule und auf die Universität gehen kann, ... Natürlich gibt es viel zu verbessern (z. B. die Abschaffung der Studiengebühren) und es klingt vielleicht auch etwas abgehoben und erscheint für eine Danksagung einer Diplomarbeit unüblich, aber ich bin sehr froh, dass in der Vergangenheit viele Leute gab, die für Bildung, Gleichberechtigung, Menschenrechte,... gekämpft haben und sich tiefgreifend damit auseinander gesetzt haben.



Erklärung

Ich versichere, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen Hilfsmittel als die angegebenen benutzt habe.

Christiane Jungnickel