



ulm university universität
uulm

**Magnetisch basierte Systeme zur Manipulation und
Detektion von magnetischen Partikeln**

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTOR-INGENIEURS

(Dr.-Ing.)

der Fakultät für Ingenieurwissenschaften,
Informatik und Psychologie der Universität Ulm

von

**Dipl.-Ing. Benjamin Riedmüller
aus Memmingen**

Betreuer: Prof. Dr. Ulrich Herr

Zweitgutachter: Prof. Dr. Andreas Hütten

Amtierender Dekan: Prof. Dr. Frank Kargl

Promotionsdatum: 17.07.2018

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde zwar vom Autor selbstständig und ohne Mithilfe anderer verfasst, jedoch haben viele Personen zum Gelingen der Arbeit beigetragen. Da ohne diese Personen die Dissertation nicht hätte wachsen und gedeihen können, möchte ich an dieser Stelle meinen tiefsten Dank aussprechen.

Der mit Abstand größte Dank gebührt hierbei meinem Doktorvater Prof. Ulrich Herr. Ohne seinen stets positiv formulierten und zielgerichteten Input, seine unglaubliche Ruhe und Geduld auch in Stresssituationen sowie seine fachliche und menschliche Führung während der kompletten Promotionszeit hätte die Arbeit in der vorliegenden Form nicht realisiert werden können. Ich bin zudem sehr dankbar, in der Zeit am Institut neben meinem eigentlichen Promotionsthema Einblicke in andere fachliche Themenkomplexe erhalten zu haben. Hervorheben möchte ich hier insbesondere die Forschungsarbeiten in Kooperation mit der Daimler AG, aus denen sich im Anschluss ein eigenes Promotionsthema hatte entwickeln können.

Bedanken möchte ich mich auch bei Prof. Andreas Hütten für die unkomplizierte Übernahme des Zweitgutachtens. Herr Prof. Hütten ist im Bereich der magneto-resistiven Lab-On-Chip Systeme ein weltweit anerkannter Spezialist, weshalb mich seine Zusage zur Erstellung des Zweitgutachtens und sein ehrliches Interesse am Dissertationsthema sehr ehrt.

Ein besonderer Dank geht zudem an meine Studenten, die ich im Rahmen meiner Zeit am Institut während ihrer Abschlussarbeiten fachlich begleiten durfte. Hervorheben möchte ich hier insbesondere Florian Ostermaier, Felix Huber, Nicolas Hibst, Meng Li, Umme Mahmood sowie Bhaskaryoti Sarma. Die zahlreich und teils leidenschaftlich geführten Diskussionen haben sehr zum Gelingen und Verständnis dieser Arbeit beigetragen. Ich freue mich insbesondere, dass mit Florian Ostermaier ein fachlich höchst geeigneter und motivierter Kandidat für die Weiterführung des Themas gefunden werden konnte.

Ein weiterer Dank geht an dieser Stelle an alle ehemaligen Kollegen – besonders seien hier Markus Mohr, Thomas Werz, Jules Dake, Michael Mertens, Runbang Shao, Mike Haddad, Barat Kuerbanjiang, Neda Wiora, Kai Brühne und Carl Krill erwähnt. Neben zahlreichen fachlichen Diskussionen, semi-fachlichen „Gruppensitzungen“ und außerfachlichem Allerlei habe ich die Zeit am Institut stets als grundlegend positiv und außerordentlich familiär empfunden. Ich werde die Jahre am Institut niemals vergessen.

Am Ende möchte ich meiner Familie, insbesondere meiner Frau Sandra für ihre enorme Unterstützung und ihre Geduld mit mir und meinem Tun über all die Jahre hinweg größten Dank aussprechen.

Publikationsliste

Teile der vorliegenden Arbeit wurden im Rahmen von Fachzeitschriftenartikeln vorveröffentlicht. Die bereits veröffentlichten Arbeiten sind im Folgenden aufgeführt und jeweils an entsprechender Stelle in dieser Arbeit zitiert.

- 1 Riedmüller B., Herr U., Nano-Patterning of GMR Spin Valves by FIB Technique, *IEEE Transactions on Magnetics* 48:3662-3665, 2012.
- 2 Riedmüller B., Huber F., Herr U., Towards sub-200 nm nano-structuring of linear giant magneto-resistive spin valves by a direct focused ion beam milling process, *Journal of Applied Physics* 115:064307, 2014.
- 3 Riedmüller B., Sarma B., Hibst N., Herr U., Positioning of Superparamagnetic Particles by Superimposing Homogeneous Fields and Field Gradients, *IEEE Transactions on Magnetics* 50:1-4, 2014.
- 4 Riedmüller B., Ostermaier F., Herr U., Trapping of Superparamagnetic Particles With a Single Current-Conducting Micro-Ring, *IEEE Transactions on Magnetics* 53:1-6, 2017.

Inhaltsverzeichnis

	DANKSAGUNG	2
1	EINLEITUNG.....	1
2	MIKRO- UND NANOSTRUKTURIERUNG VON MR SENSOREN	5
2.1	EINLEITUNG – NANOSKALIGE GMR SENSORIK	5
2.2	GRUNDLAGEN.....	7
2.3	HERSTELLUNG UND CHARAKTERISIERUNG DES SENSORSTAPELS	15
2.4	IONENSTRAHLGESTÜTZTE STRUKTURIERUNG VON GMR SENSOREN	22
2.5	ZUSAMMENFASSUNG	44
3	POSITIONIERUNG UND MANIPULATION VON MAGNETISCHEN PARTIKELN	46
3.1	EINLEITUNG – LAB-ON-CHIP MANIPULATION VON EINZELNEN PARTIKELN	46
3.2	GRUNDLAGEN.....	50
3.3	MANIPULATION MITTELS MIKRO-STRUKTURIERTER LEITERBAHNEN UND HOMOGENEN FELDERN	57
3.4	LIMITIERUNGEN BEI DER MANIPULATION MITTELS MIKRO-STRUKTURIERTER LEITERBAHNEN.....	68
3.5	KONZEPTE ZUR MANIPULATION UND POSITIONIERUNG VON SUPERPARAMAGNETISCHEN EINZELPARTIKELN	72
3.6	MEHRPARTIKEL EXPERIMENTE IN DER MAGNETISCHEN RINGFALLE	94
3.7	ZUSAMMENFASSUNG	103
4	KOMBINATION VON SENSORIK UND AKTORIK.....	105
4.1	EINLEITUNG – MAGNETO-RESISTIVE DETEKTION VON SUPERPARAMAGNETISCHEN PARTIKELN	105
4.2	KONSTRUKTION EINES KOMBINIERTEN SENSOR/AKTORSYSTEMS	107
4.3	SENSOR-PARTIKEL-WECHSELWIRKUNG	113
4.4	ZUSAMMENFASSUNG	126
5	ZUSAMMENFASSUNG	128
6	LITERATURVERZEICHNIS	132
7	ANHANG	143

I Einleitung

Magnetische Nanopartikel (MNP) spielen eine wichtige Rolle für die Anwendung im Bereich der Lebenswissenschaften [1]. Aufgrund ihrer geringen Toxizität im menschlichen Organismus werden häufig Eisenoxid (Fe_2O_3 oder Fe_3O_4) Nanopartikel eingesetzt [2, 3]. Dabei wird beispielsweise durch geeignete chemische Oberflächenfunktionalisierung der Partikel eine lange Zirkulationszeit im Blutkreislauf erzielt, ohne dass die MNP von körpereigenen Abwehrsystemen wie der Blut-Hirn-Schranke [4] oder der Leber [5] aufgenommen und aus dem Blutkreislauf entfernt werden. Solche Funktionalisierungen können eine nachträgliche, unerwünschte Perkolation der MNP verringern [6]. Eine Besonderheit bezüglich magnetischer Nanopartikel stellt die Möglichkeit dar, diese durch magnetisch aufgebrachte Kräfte [7] in-vivo gezielt aufzukonzentrieren [8]. Dies erlaubt ein breites Spektrum an Anwendungen. Die Partikel können analog zu bisher eingesetzten, paramagnetischen Gd-Komplexverbindungen [9] zur Kontrastverstärkung in der NMR-Diagnostik eingesetzt werden. Dabei wird die zur Kontrastgebung eingesetzte T2-gewichtete Relaxationszeit (Spin-Spin-Relaxationszeit) durch die Anwesenheit von Eisenoxid Partikeln beeinflusst [10] und ändert durch deren lokal erzeugtes Magnetfeld den Absorptionskontrast. Zusätzlich zur Bildgebung lässt sich die Oberfläche von magnetischen NP gezielt modifizieren, so dass sich eine bessere Anbindung der Partikel an das jeweilige Zielgewebe ergibt [10].

Neben der bildgebenden Diagnostik werden MNP zur Therapie im Rahmen der Hyperthermie eingesetzt. Hierbei werden im Körper injizierte MNP gezielt einem hochfrequenten Magnetfeld ausgesetzt. Die dadurch angeregte (Brown'sche) Relaxation der Partikel führt zu einer Erwärmung der Umgebung, was zur gezielten Vernichtung von tumorbehaftetem Gewebe genutzt werden kann [11]. Weiterhin können durch die in-vivo Manipulierbarkeit an die MNP gekoppelte Medikamente im Körper transportiert und gezielt verabreicht werden [12], was die unerwünschte Wechselwirkung der Medikamente mit gesundem Gewebe reduziert.

Alternativ zur in-vivo Applikation von MNP sind in den letzten Jahren vermehrt in-vitro basierte Anwendungen für MNP entwickelt worden [13]. Dabei werden MNP beispielsweise zur Aufkonzentration von Bioanalyten wie Proteinen [14] oder Nukleinsäuren (DNA) [15] eingesetzt. Der Nachweis der Analyten kann nach magnetisch basierter Aufkonzentration mittels herkömmlicher Fluoreszenzmessung durchgeführt werden [16]. Zusätzlich kann ein magnetischer Nachweis von Bioanalyten durch magnetisches Labeln der Analyten erfolgen. Dadurch lässt sich beispielsweise in-vitro durch NMR-basierte Messung der T2-Relaxation die an MNP gebundene Dopamin Konzentration vermessen [17]. Um eine hohe Integrierbarkeit solcher Systeme zu ermöglichen, wurden in den vergange-

Einleitung

nen Jahren sogenannte „Lab-On-Chip“ Systeme entwickelt, die die gewünschte Funktionalität des biotechnologischen Systems auf kleinster Fläche ermöglichen [18]. Ein hohes Maß an Parallelität kann hier durch Zuhilfenahme von Mikrofluidik-Techniken in Kombination mit MNP erreicht werden [19].

Hier spielt die kontrollierte Manipulation einzelner MNP für viele Lab-On-Chip Anwendungen eine wichtige Rolle. Die Möglichkeit, gezielt Kräfte durch das Erzeugen von lokalen Magnetfeldgradienten auf magnetische Partikel aufzubringen öffnet dabei zahlreiche Anwendungsfelder. Zum einen lassen sich spezifisch an magnetische Partikel gebundene Zellen gezielt manipulieren. Dies kann zur Konzentration oder zum Sortieren von magnetisch gelabelten Zellen benutzt werden [20]. Neben der Möglichkeit Bioanalyten gezielt zu manipulieren erlauben MNP-basierte Lab-On-Chip (LOC) Systeme eine integrierte Detektion von Bioanalyten durch ein vom magnetischen Streufeld der Partikel im Sensor erzeugtes, elektrisches Signal [21]. Hierbei werden zum einen mikro-strukturierte Hall Sensoren oder Sensoren basierend auf magneto-resistiven Effekten wie z.B. AMR [22] und GMI [23], in neueren Systemen jedoch vermehrt GMR [24] bzw. TMR [25] Effekt eingesetzt. Die On-Chip Detektion stellt dabei die Grundlage für sogenannte **Bead Array Counter** (BARC) Systeme dar, bei denen durch Kombination aus Sensor-Arrays mit lokaler Oberflächenfunktionalisierung Bioanalyten gezielt chemisch gebunden und anschließend magneto-resistiv nachgewiesen werden können [26]. Aufgrund der elektrischen Signalgebung und der Möglichkeit, das Messsignal mikromagnetisch zu modellieren, lassen sich durch den LOC Ansatz Konzentrationen von Bioanalyten auf Chipebene quantifizieren [27].

Obwohl die Manipulation von Einzelpartikeln und der magneto-resistive Nachweis seit Jahren etabliert sind, existieren nur wenige ganzheitliche Konzepte, die beide Methoden auf Lab-On-Chip Skala vereinen. Die technische Umsetzung solcher kombinierter Systeme, insbesondere die Möglichkeit, Partikel gezielt mit der Sensorfläche in Kontakt zu bringen, stellt hier eine nach wie vor interessante Fragestellung dar [28, 29].

Im Rahmen dieser Fragestellung wurde in dieser Doktorarbeit ein System entwickelt, das Manipulation und Detektion von einzelnen magnetischen Partikeln in einer integrierten mikro-strukturierten Einheit ermöglicht. Ziel war es, eine reproduzierbare und exakte Positionierung von einzelnen magnetischen Partikeln zu entwickeln, die sich mit mikro-strukturierten GMR Sensoren zum elektrischen Nachweis der Partikel kombinieren lässt. Die Arbeit umfasst im ersten Teil zunächst den Entwurf, die Herstellung und mikromagnetische Modellierung der Sensoreinheit (GMR) [30]. Hierbei wird insbesondere auf die Eignung eines speziellen Prozesses zur Nano-Strukturierung - dem gezielten Abtrag mittels fokussiertem Ionenstrahl (Focused Ion Beam, *FIB*) - eingegangen. Eine wesentliche Fragestellung der Arbeit stellt hier zum einen die mittels *FIB* technologisch erreichbare untere Grenze in der Sensordimension nach der Strukturierung dar. Zum anderen wird in der Arbeit gezielt der Einfluss der nano-skaligen Dimension des Sensors nach der *FIB*-

Einleitung

Strukturierung auf dessen elektrisches und magnetisches Verhalten experimentell untersucht und mit mikro-magnetischen Modellrechnungen verglichen.

In einem weiteren Teil der Arbeit wird die Fragestellung adressiert, wie und mit welcher Präzision einzelne superparamagnetische Partikel auf Lab-On-Chip Ebene in flüssiger Umgebung positioniert werden können. Hierzu wird ein System aus mikro-strukturierten, stromdurchflossenen Leiterbahnen in Kombination mit extern überlagerten, homogenen Feldern zur Positionierung der Partikel eingeführt [31]. Basierend auf quantitativer Modellierung aller auf das Partikel wirkenden Kräfte in flüssiger Umgebung werden zwei technische Umsetzungen demonstriert, die es erlauben, einzelne Partikel gezielt zweidimensional auf der Substratebene mit hoher Genauigkeit zu positionieren [32]. Im Rahmen von Single-Particle-Tracking Experimenten wird das Fluktuationsverhalten von in der Falle gefangenen Partikeln in wässriger Umgebung untersucht. Hierbei war eine zentrale Fragestellung, in wie weit sich aus der Beobachtung der Brown'schen Bewegung von einem oder mehreren in der Falle gefangenen Partikeln Rückschlüsse sowohl auf die Mikrorheologie der Partikelumgebung als auch zur magnetischen Energielandschaft der Falle selbst ziehen lassen.

In abschließenden Experimenten wird die prinzipielle Kombinierbarkeit der entwickelten Positioniereinheiten mit den zuvor entwickelten, mikro-skaligen Sensoreinheiten betrachtet. Dabei war es eine wesentliche Fragestellung in wie weit sich Wechselwirkungen zwischen den manipulierten Partikeln und der Sensoreinheit beobachten und mittels Modellierung der relevanten, magnetischen Kräfte in Sensornähe vorhersagen lassen. Nach erfolgreichem, magneto-resistivem Nachweis der Partikel mittels GMR Sensorik sollte abschließend geklärt werden, in wie weit sich aus dem messbaren Echtzeitsignal Aussagen zur Dynamik als auch zu den magnetischen Eigenschaften der verwendeten Partikel ziehen lassen.

In zweiten Kapitel werden die Ergebnisse zur Mikro- und Nanostrukturierung von MR Sensoren mittels fokussiertem Ionenstrahl (Focused Ion Beam, FIB) vorgestellt. Zunächst wird auf die mikro-magnetischen Grundlagen eingegangen, die zur Diskussion der Ergebnisse benötigt werden. Anschließend wird die Herstellung von mikro-strukturierten Sensoren mittels optischer Lithographie und Ergebnisse zur flächigen Bestrahlung der Sensoren mit 30 keV Ga^+ Ionen vorgestellt. Neben einer quantitativen Untersuchung der Schädigung der Sensoren durch 30 keV Ga^+ Bestrahlung erfolgt eine Simulation der Ionenstreuprozesse in den geschädigten Bereichen des Sensorstapels mit Hilfe des SRIM Softwarepakets. Anschließend werden Ergebnisse zur Nanostrukturierbarkeit der Sensoren mittels FIB gezeigt. Die Ergebnisse lassen auf eine Degradation der elektrischen und magneto-resistiven Eigenschaften der MR Sensoren nach FIB Strukturierung durch seitlich aus dem Primärstrahl gestreute Ga Ionen schließen. Dieser Einfluss kann durch geeigneten Schutz der aktiven Sensorfläche während des Schneidens vermindert werden, was ein Strukturieren von Sensorbreiten bis hinunter zu 300 nm ohne Reduktion des GMR Ratios erlaubt. Der durch die Nanostrukturierung experimentell beobachtete Einfluss der

Einleitung

reduzierten Sensorbreite auf das magneto-resistive Verhalten (Feldverschiebung der MR Kurve und geringere Sensitivität bei reduzierter Breite) wird im Anschluss mikro-magnetisch mit guter Übereinstimmung zu den experimentellen Daten modelliert.

In Kapitel 3 wird die in der Arbeit entwickelte Manipulationsmethode für einzelne superparamagnetische Partikel vorgestellt. Zunächst werden die relevanten, magnetischen Kräfte auf das Partikel in einem mikro-magnetischen Modell beschrieben und berechnet. Daraus wird ein für Lab-On-Chip Anwendung optimales System abgeleitet und darauf basierend zwei realisierte Konzepte zum Transport und zur Positionierung von einzelnen Partikel eingeführt. Die entwickelten magnetischen Fallen erlauben es, gezielt einzelne Partikel über eine Längenskala $> 100 \mu\text{m}$ zu manipulieren und mit einer Genauigkeit von $< 1 \mu\text{m}$ zu positionieren. Weiterhin wird die thermisch verursachte Fluktuation (Brown'sche Bewegung) von Partikeln um das Potentialminimum der Falle untersucht. Die Ergebnisse zeigen hierbei, dass durch Messung der Trajektorie von einzelnen oder mehreren Partikeln in der Falle die Viskosität der Partikelumgebung sowie die Stärke der Falle extrahiert werden kann. Die langzeitige Beobachtung der Bewegung eines einzelnen Partikels oder eines magnetisch wechselwirkenden Partikelpaars in der Falle erlaubt dabei eine Bestimmung des magnetischen Moments der verwendeten Partikel mit einer Genauigkeit besser als 10 %.

Im vierten Kapitel wird die Kombination aus dem entwickelten Aktor- und Sensorsystem behandelt. Dabei wird zunächst auf die Wechselwirkung zwischen den Positionierbahnen und dem mikro-strukturierten Sensor eingegangen. Anschließend wird die Wechselwirkung zwischen Sensor und Partikel betrachtet, die sich durch das vom Sensor erzeugte, das Partikel durchsetzende Sensorstreufeld ergibt. Hierbei spielt, wie in der Arbeit gezeigt wird, die geometrische Form des Sensors eine entscheidende Rolle für die Ausprägung der Kräfte auf sich in der Nähe zum Sensor befindliche Partikel. In ersten Experimenten werden gezielt Partikel auf die aktive Fläche des Sensors transportiert und deren Anwesenheit magneto-resistiv in Echtzeit nachgewiesen. Durch geeignete Wahl des extern angelegten, homogenen Feldes lässt sich die Bewegung des Partikels in Sensornähe gezielt beeinflussen. Die beobachteten, zeitabhängigen Sensorsignale werden mikro-magnetisch modelliert, was bei Vergleich mit den experimentellen Daten eine Aussage zum dynamischen Verhalten und zu den magnetischen Eigenschaften des Partikels erlaubt.

Den Abschluss der Arbeit bilden die Zusammenfassung der Ergebnisse und ein Ausblick auf zukünftige, interessante Anwendungsfelder, die sich aus den in der Arbeit gewonnenen Erkenntnissen ableiten lassen.

2 Mikro- und Nanostrukturierung von MR Sensoren

2.1 Einleitung – Nanoskalige GMR Sensorik

Seit der Einführung des ersten GMR Sensors in einer kommerziellen Magnetfestplatte im Jahr 1997 durch IBM [33] haben sich die Anforderungen an MR Bauelemente zur Messung von kleinsten magnetischen Momenten stark geändert. Betrug die Bitspeicherdichte zur Einführung des ersten GMR Leseköpfe noch ca. 1 GBit/in² mit einer Bitgröße von 1 μm , so erreichen modernste Festplatten heute Speicherdichten von 1Tbit/inch², was einer Baugröße von 25 nm entspricht. Da die Dimension des Lesekopfes mit geringer werdender Bitgröße in gleichem Maß verringert werden muss, weisen moderne GMR/TMR Leseköpfe sowie die dazugehörigen Schreibköpfe laterale Ausdehnungen von < 50 nm auf [34]. Auch für die Detektion kleinster magnetischer Nanoteilchen werden Sensoren mit Dimensionen von 200 nm und darunter verwendet, was die Detektion einzelner ferromagnetischer Nanopartikel ermöglicht [35].

Konventionelle Photolithographie ist dabei bei typischem Einsatz von UV-Licht einer Quecksilberdampflampe (im Wellenlängenbereich von $\lambda = 365$ nm (i-Linie) nm bis $\lambda = 436$ nm (g-Linie)) beugungsbegrenzt auf Strukturen mit Ausmaßen von minimal ca. 400 nm limitiert [36], was alternative Methoden zur Erzeugung von Nanostrukturen erfordert. Das heutzutage überwiegend eingesetzte Verfahren zur Nanostrukturierung von MR Sensoren stellt hierbei die Elektronenstrahlolithographie (EBL) dar [27, 37, 38]. Dabei wird ein auf wenige nm fokussierter Elektronenstrahl eingesetzt, um elektronensensitive, zuvor aufgetragene Fotolacke lokal zu belichten. Die belichteten Stellen werden anschließend nasschemisch entfernt. Die so entstehenden Lacköffnungen können dann gezielt durch Ätzen des darunterliegenden Materials oder Abscheidung von zusätzlichem Material mit anschließendem Lift-Off Prozess übertragen werden. Die Technologie erlaubt aufgrund der Verwendung eines rasternden, stark fokussierten Elektronenstrahls prinzipiell keine sehr hohen Durchsätze [39]. Dies konnte zwar im Laufe der technologischen Entwicklung beispielsweise durch variable Anpassung der Strahlform während des Schreibens [40] oder der Verwendung von mehreren, parallel eingesetzten Strahlen [41] verbessert werden, jedoch weist die EBL bis heute klare Nachteile in punkto Durchsatz gegenüber der optischen Lithographie auf [39]. Katine et al. konnten 2003 erstmals erfolgreich die Herstellung von GMR Sensoren mit Dimensionen von ~ 30 nm mittels EBL zeigen [42]. Dabei konnte die potentiell untere Grenze bedingt durch parasitäre Effekte bei der Herstellung zu ~ 10 nm abgeschätzt werden. Limitiert wird das Verfahren nicht direkt durch die Auflösung der EBL Schreibereinheit sondern durch den für die EBL notwendigen Plasma-Ätzprozess, der eine unvermeidbare Schädigung der Randzonen der nano-strukturierten Bauteile mit sich bringt. Eine in den 90er Jahren entwickelte Technologie zur Nanostrukturierung stellt das Schreiben mittels fokussiertem Ionenstrahl **Focused Ion**

Beam, kurz: FIB dar [43]. Diese Technologie ermöglicht durch die sehr gute Fokussierbarkeit eines Ionenstrahls mit prinzipiell erzielbaren Strahldurchmessern von $w < 20$ nm eine hochaufgelöste Strukturierung von Nanobauteilen [44]. Ein großer Vorteil gegenüber der Herstellung mittels EBL ist die Tatsache, dass durch das direkte Schreiben mit dem Ionenstrahl keine weiteren Prozessschritte (bspw. Plasmaätzen) erforderlich sind, was gerade bei der Herstellung von Prototypen von Vorteil ist. Die Strukturen werden durch direktes Abtragen des nicht erwünschten Bereichs strukturiert. Zudem können mittels ionenunterstütztem Abscheiden von Metallen aus metallorganischen Precursorgasen bspw. die für GMR/TMR Sensoren benötigten elektrischen Zuleitungen direkt im FIB abgeschieden werden, was sowohl Strukturierung als auch Kontaktierung in einem Arbeitsschritt ermöglicht [45]. Neben den diskutierten Vorteilen des FIB gegenüber alternativen Strukturierungsverfahren können sich jedoch bei der Präparation mittels fokussiertem Ionenstrahl durch die Verwendung von hochenergetischen schweren Ionen auch Nachteile ergeben, die zum Teil zu parasitären Schäden innerhalb der herausgearbeiteten Nanostrukturen führen. Durch den Ioneneintrag kann es insbesondere bei dünnen Schichten zur Durchmischung an den Grenzflächen sowie zur unerwünschten Implantation von Ga Ionen in den Dünnschichtstrukturen kommen.

In diesem Kapitel soll gezielt die Möglichkeit der Nanostrukturierung von MR Sensoren mittels eines FIB Mikroskops untersucht werden. Dabei sollen insbesondere mögliche Grenzen und die relevanten Einflüsse bezüglich erreichbarer Strukturgrößen diskutiert werden. Anschließend soll untersucht werden, welche Auswirkungen die Nanostrukturierung auf das Ummagnetisierungsverhalten der MR Sensoren hat und in wie weit dies Einfluss auf den Einsatz der Sensoren für die empfindliche Detektion kleinster Magnetfelder hat.

Im ersten Teil des Kapitels wird die Herstellung der magneto-resistiven Sensoren mittels DC Magnetron Sputtern eingeführt. Im Anschluss wird auf die röntgenographische sowie auf die magnetische Charakterisierung des GMR Sensorstapels eingegangen. Im nächsten Teilkapitel wird kurz auf die lithographische Mikrostrukturierung der Sensoren sowie deren elektrische Kontaktierung eingegangen. Da die Sensoren während der FIB Nanostrukturierung Ionenbestrahlung (hier 30 kV Ga⁺) ausgesetzt sind, wird die Wechselwirkung der Ionen mit dem Sensorstapel im Folgenden genauer untersucht. Die beobachteten Einflüsse der Ionenbestrahlung auf elektrische und magneto-resistive Eigenschaften der Sensoren werden mittels SRIM basierter Simulation quantitativ modelliert. Im Anschluss werden Maßnahmen zur Passivierung der Sensoren durch eine dünne Schutzschicht vorgestellt, die eine Nanostrukturierung der Sensoren mittels FIB bis zu Strukturgrößen von 150 nm erlauben. Den Abschluss des Kapitels bildet eine Untersuchung des durch die Nanostrukturierung geänderten Ummagnetisierungsverhaltens der Sensoren. Das Magnetisierungsverhalten wird mittels eines Stoner-Wohlfarth Modells in guter Übereinstimmung zu den experimentellen Ergebnissen modelliert.

Teile der Ergebnisse dieses Kapitels wurden im Vorfeld in zwei Publikationen vorveröffentlicht [30, 46].

2.2 Grundlagen

2.2.1 Der GMR Effekt

Der Giant-Magneto-Resistive (GMR) Effekt (auch Riesenmagnetowiderstand genannt) beruht auf der spinabhängigen Streuung von spinpolarisierten Elektronen in magnetischen Dünnschichtsystemen. Er hat nach seiner Entdeckung Ende der 80er Jahre durch Peter Grünberg [47] und Albert Fert [48] schnell Anwendung in Leseköpfen von magnetischen Datenspeichern gefunden. Phänomenologisch beschreibt der GMR Effekt die Änderung des elektrischen Widerstands im Bezug zur relativen magnetischen Ausrichtung zweier ferromagnetischer Schichten, die durch eine nicht-ferromagnetische Schicht getrennt sind. Er lässt sich vereinfacht im sogenannten Zweistrommodell nach Mott beschreiben, bei dem die spinabhängige Streuung mittels eines Widerstands-Ersatzschaltbildes beschrieben werden kann [49]. Abbildung 1 veranschaulicht die Situation für eine parallele und eine antiparallele Ausrichtung der beiden magnetischen Schichten. Hierfür wird angenommen, dass der Spin der Elektronen, die durch einen Strom in das GMR Bauelement injiziert werden, entweder parallel oder anti-parallel zu den jeweiligen Magnetisierungen in den ferromagnetischen Schichten orientiert ist und sich während des Durchgangs durch das Bauelement nicht ändert.

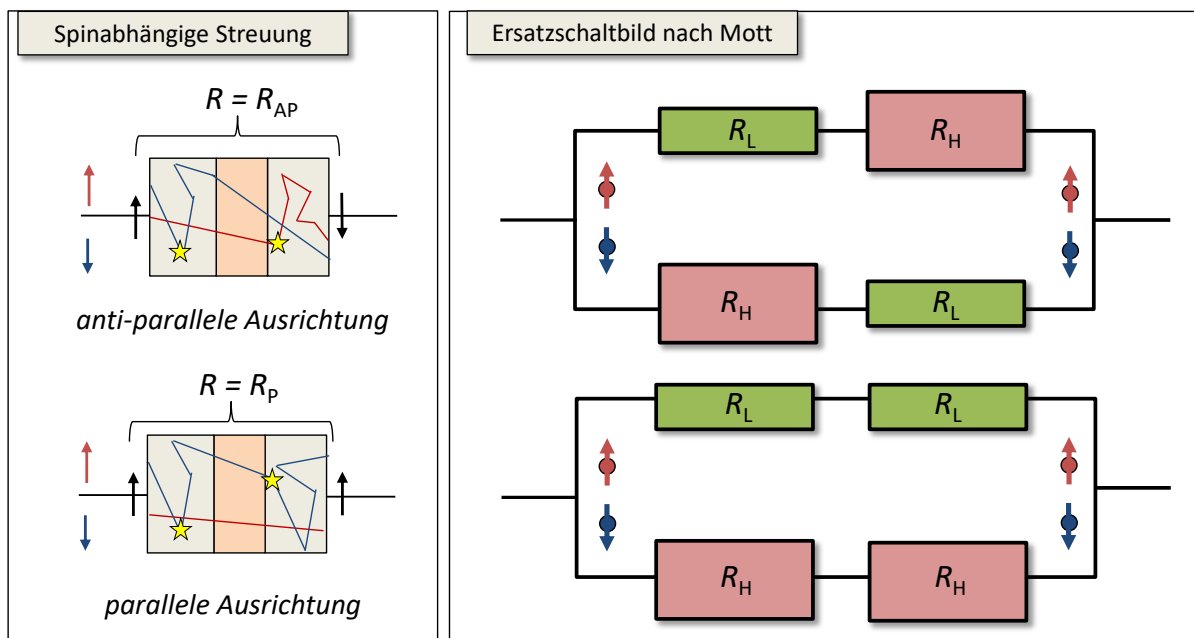


Abbildung 1: Beschreibung des GMR Effekts im Rahmen von spinabhängiger Streuung (links). Die farbigen Pfeile stellen schematisch die Spinausrichtung der Elektronen dar. Die schwarzen Pfeile repräsentieren die Magnetisierungsrichtungen in den ferromagnetischen Schichten (grau). Das äquivalente Ersatzschaltbild für die Fälle von Parallel- und Antiparallelstellung ist rechts gezeigt. R_L bezeichnet dabei den Widerstand mit niedriger Streuwahrscheinlichkeit, R_H den Widerstand mit hoher Streuwahrscheinlichkeit.

Dabei führt eine anti-parallele Ausrichtung des Elektronenspins zur Magnetisierungsrichtung zu einer erhöhten Streuung (R_H), während die parallele Ausrichtung eine geringere Streuung hervorruft (R_L). In Summe führt dies zu einem niedrigeren Widerstand (R_P) für eine parallele Anordnung der Magnetisierungen im Vergleich zur anti-parallelen Ausrichtung (R_{AP}). Man definiert man den GMR Effekt als relative Differenz zwischen anti-paralleler Ausrichtung und paralleler Ausrichtung:

$$GMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{(R_L + R_H)^2}{4R_L R_H} - 1 \quad (1)$$

2.2.2 Der Exchange Bias Effekt

Der Exchange Bias Effekt beschreibt eine unidirektionale Anisotropie, die sich in einer Verschiebung der Hysteresekurve entlang der Feldachse bemerkbar macht. Diese tritt dann auf, wenn ein Antiferromagnet (AFM) und ein Ferromagnet (FM) in direktem Kontakt zueinander stehen. Der Effekt wurde zunächst durch Meiklejohn und Bean an partiell oxidierten Co(FM)/CoO(AFM) Nanopartikeln gefunden [50], wird aber in vielen für GMR Sensoren typischerweise verwendeten Schichtsystemen eingesetzt [51]. Hierbei koppeln die magnetischen Momente des AFM über die Austauschwechselwirkung an der gemeinsamen Grenzfläche an den FM. Durch die Kopplung werden die magnetischen Momente des FM entlang einer Vorzugsrichtung „festgehalten“ und lassen sich entgegen dieser Richtung schwer ummagnetisieren, was sich in der Asymmetrie der Hysteresekurve widerspiegelt (siehe Abbildung 2). Der Effekt wird üblicherweise für GMR Sensoren benutzt, um eine der beiden ferromagnetischen Schichten magnetisch zu fixieren. Dies bewirkt für geringe externe Magnetfelder, dass die nicht fixierte Schicht (auch freie Schicht genannt) sich unabhängig von der fixierten Schicht (auch gepinnte Schicht genannt) ummagnetisieren lässt. Dies ermöglicht eine Antiparallelstellung der beiden Schichten. Die magnetischen Momente des AFM sind an der Grenzfläche zum FM direkt nach der Abscheidung beider Schichten nicht automatisch zur Magnetisierung des Ferromagneten ausgerichtet. Aufgrund dessen muss eine sogenannte „Field-Cooling“ Prozedur (in Abbildung 2 dargestellt) angewandt werden, mittels der die Ausrichtung der magnetischen Momente an der AFM/FM Grenzfläche eingestellt und dadurch die Richtung des Exchange Bias Feldes H_{ex} definiert wird.

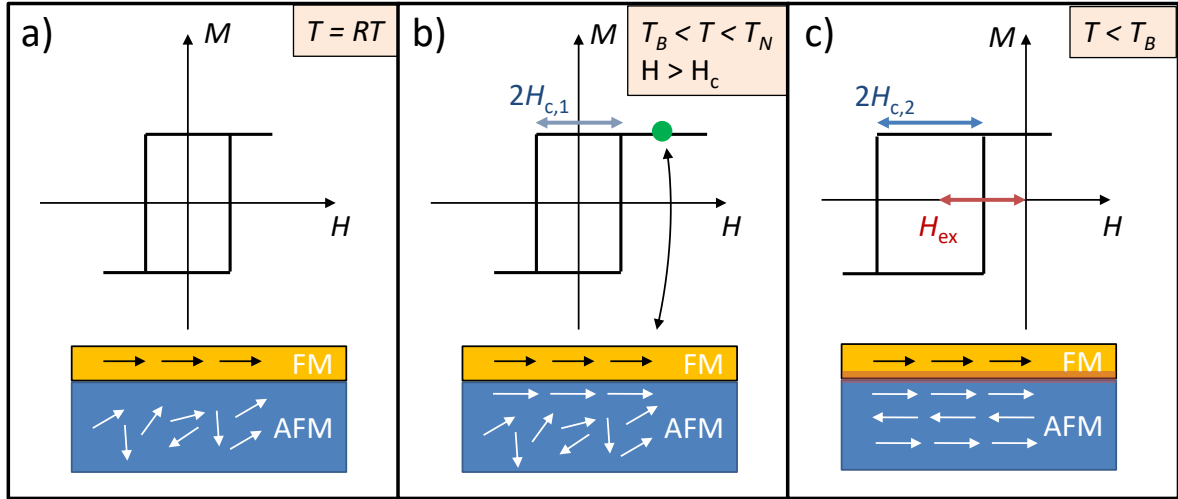


Abbildung 2: Schematische Darstellung einer Field-Cooling Prozedur. Eine detaillierte Erklärung der Prozedur findet sich im Haupttext. Die Abbildung zeigt die Anordnung der Momente des AFM vor (a)) und während der Field-Cooling Prozedur (b)). In (c)) ist die durch die Field-Cooling Prozedur resultierende Magnetisierungskurve für $T < T_N$ gezeigt.

Zunächst wird der AFM bei ausgerichtetem FM über die Blocking-Temperatur T_B des AFM aufgeheizt. Die Ausrichtung des FM erfolgt entweder über eine vorgegebene Anisotropie des FM oder durch ein extern angelegtes Feld. Hierbei richten sich die Momente des AFM an der AFM/FM Grenzfläche durch die Austauschwechselwirkung parallel zum FM aus. Anschließend wird der FM/AFM Stapel wieder auf Raumtemperatur abgekühlt, wobei die Ausrichtung des FM beibehalten wird. Nach dem Abkühlen unterhalb T_B sind die magnetischen Momente des AFM ausgerichtet und fixiert und bewirken die gewünschte Verschiebung der Hysteresekurve des FM entlang der Feldrichtung um das Exchange Bias Feld H_{ex} . Dieses lässt sich quantitativ aus der Konkurrenz der Zeeman Energie E_Z im FM und der an der AFM/FM Grenzfläche wirksamen Grenzflächenanisotropie $E_j = -J\cos(\varphi)$ ableiten. Hierbei beschreibt φ den Winkel zwischen Magnetisierung des FM und Ausprägungsrichtung der unidirektionalen Anisotropie, sowie J der für die AFM/FM Grenzfläche charakteristischen Grenzflächenkopplungskonstante (in J/m^2). Man erhält nach [51]:

$$H_{ex} = \frac{J}{\mu_0 M_s t_f} \quad (2)$$

M_s ist dabei die Magnetisierung der FM Schicht und t_f die Dicke der FM Schicht. Wie in Abbildung 2c) angedeutet, wird durch diese Prozedur zusätzlich zur Feldverschiebung H_{ex} ein durch die Kopplung induzierter Anstieg der Koerzitivfeldstärke H_c ($H_{c,1} < H_{c,2}$) der gepinnten Schicht eingepreßt. Dies kann durch eine endliche Steifigkeit der Grenzflächenmagnetisierung des AFM verstanden werden. Für genügend hohe Felder werden die Momente des AFM an der AFM/FM Grenzfläche mit dem Ferromagneten „mitgeschleppt“. Die bei diesem Vorgang dissipierte Energie äußert sich in der Erhöhung der Koerzitivfeldstärke H_c .

2.2.3 Das Stoner Wohlfarth Modell

Das Stoner-Wohlfarth Modell [52] stellt eine mikromagnetische Modellierung des Umagnetisierungsvorgangs eines eindomänen Partikels mit uniaxialer Anisotropie dar und wird wegen seiner Einfachheit häufig herangezogen, um magneto-resistive Sensoren zu beschreiben. Das Modell basiert auf zwei grundlegenden Annahmen. Zum einen wird davon ausgegangen, dass ein Eindomänenzustand vorliegt, d.h., dass alle magnetischen Momente sich stets parallel ausrichten und bei Beaufschlagung mit einem externen Feld eine gemeinsame, kohärente Rotation durchführen. Zum anderen wird von einer uniaxialen Anisotropie (zusammengefasst in der Anisotropiekonstanten K) ausgegangen, welche die leichte Richtung innerhalb des Partikels vorgibt. Die Gesamtenergie des Systems lässt sich bei angelegtem Feld H gemäß Abbildung 3 unter den eingeführten Voraussetzungen aus der Summe der Zeeman Energie E_Z und der Anisotropieenergie E_A berechnen. Man erhält:

$$E = E_Z + E_A = -\mu_0 M_S H \cos(\beta) + K \sin^2(\alpha) \quad (3)$$

Aus dieser Gleichung lässt sich bei gegebenem festem Winkel zwischen externem Feld und leichter Richtung (β) die absolute Lage der Magnetisierung und somit die Komponente der Magnetisierung parallel zum externen Feld $M_{||}H$ in Abhängigkeit des angelegten Feldes H bestimmen, was anhand von zwei Spezialfällen in Abbildung 3 dargestellt ist.

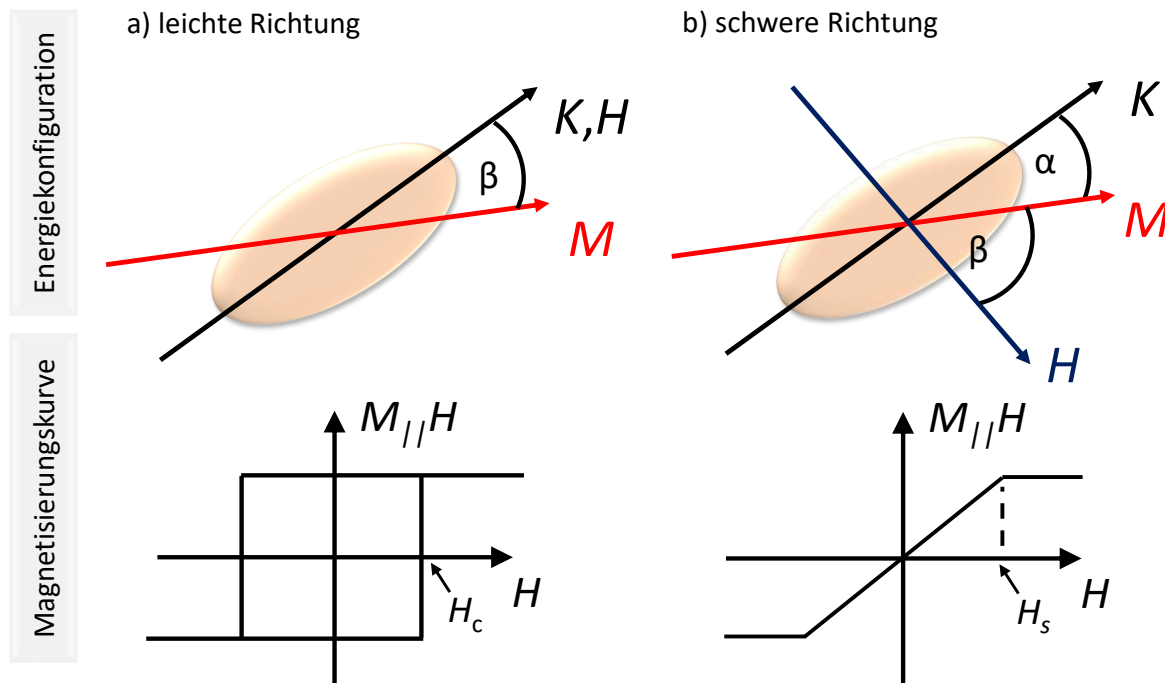


Abbildung 3: Schematische Darstellung des Magnetisierungsverhaltens des Stoner-Wohlfarth Ellipsoiden für ein angelegtes Feld parallel zur leichten Richtung (a)) und Feld senkrecht zur leichten Richtung (b)). Die unten gezeigten Kurven entsprechen dem beobachtbaren Magnetisierungsverhalten in entsprechender Richtung. H_c ist die Koerzitivfeldstärke, H_s die Sättigungsfeldstärke und M_s die Sättigungsmagnetisierung des Materials.

Wird das Magnetfeld wie in a) parallel zur leichten Richtung angelegt, ergibt sich eine

rechteckige Hystereseschleife. Die Magnetisierung springt bei einer Feldstärke von $H = H_c$ zwischen den beiden Zuständen $M = \pm M_s$. Diese Ausprägung der Magnetisierungskurve eignet sich für Anwendungen, bei denen zwei stabile Zustände eingestellt werden sollen, beispielweise Speichermedien oder Logikbausteine. Legt man das Magnetfeld senkrecht zur leichten Richtung an, ergibt sich eine komplett reversible Magnetisierungskurve, bei der die Magnetisierung mit steigender Feldstärke bis zur Sättigungsfeldstärke H_s linear zunimmt. Aus Gleichung (3) lassen sich sowohl die Koerzitivfeldstärke H_c und die Sättigungsfeldstärke H_s (ohne Rechnung!) ableiten zu:

$$H_c = \frac{2K}{\mu_0 M_s} \quad (4)$$

$$H_s = \frac{2K}{\mu_0 M_s} \quad (5)$$

2.2.4 Kopplungsmechanismen in magnetischen Dünnschichtsystem

Da für den späteren Sensoraufbau magnetische Dünnschichten verwendet werden, die durch eine wenige nm dünne Cu Schicht getrennt sind, können die verwendeten Schichten magnetisch koppeln und sich gegenseitig beeinflussen. Die drei wichtigsten Kopplungsmechanismen werden im Folgenden erklärt.

Néel-Kopplung

Die Néel-Kopplung (NC) beschreibt die Dipol-Dipol Wechselwirkung zweier dünner, durch eine dünne Zwischenlage getrennten, ferromagnetischer Schichten, die über korrelierte Rauigkeit miteinander wechselwirken [53]. Diese Situation ist schematisch in Abbildung 4a) dargestellt. Hierbei ergibt sich zwischen den beiden Schichten eine Wechselwirkung, die durch die erzeugten, offenen magnetischen Pole an den Grenzflächen (hier durch + und – symbolisiert) hervorgerufen wird. Die Néel Kopplung hängt sowohl von der Ausprägung der Rauigkeit [54], als auch von der Dicke der Zwischenschicht und der Dicke der magnetischen Lagen ab [55], begünstigt jedoch immer eine Parallelstellung der beiden durch den Spacer getrennten Schichten.

Dipol-Dipol-Kopplung

Die Dipol-Dipol Kopplung zweier Schichten beschreibt die gegenseitige Beeinflussung der Schichten über das an den Kanten der Schicht erzeugte Streufeld. Dabei wird wie in Abbildung 4b) gezeigt, das Streufeld (beispielsweise der oberen Schicht) durch die untere magnetische Schicht geführt. Dies bewirkt durch die in der unteren magnetischen Schicht wirkende Zeeman-Energie eine zur oberen Schicht anti-parallele Ausrichtung der unteren Schicht. Der Effekt tritt vor allem dann auf, wenn die Quellen des Streufelds an den Kanten (symbolisiert durch + und -) einen geringen Abstand zueinander aufweisen, was die

Polstärke erhöht. Aufgrund dessen spielt die Kopplung vor allem bei mikro-skaligen Bauteilen eine Rolle.

Zwischenlagen Austauschkopplung

Zwischenlagen Austauschkopplung (engl.: Interlayer Exchange Coupling (IEC)), dargestellt in Abbildung 4b), entsteht durch die Kopplung der Leitungsbandelektronen der ferromagnetischen Schichten durch die dünne Zwischenschicht, welche unter dem Namen RKKY Wechselwirkung (nach **R**uderman, **K**ittel, **K**asuya und **Y**osida) zusammengefasst wird. Dabei kann die Kopplung je nach Dicke der Zwischenschicht entweder antiferromagnetisch oder ferromagnetisch wirken und nimmt mit zunehmender Dicke der Zwischenschicht stark ab [56]. Phänomenologisch beschrieben wird die Kopplung über die Energie $E_{IEC} = J_{IEC} \cdot \cos(\varphi)$, wobei J_{IEC} die Kopplungskonstante (als Energie pro Grenzfläche) und φ den Winkel zwischen beiden Magnetisierungen darstellt.

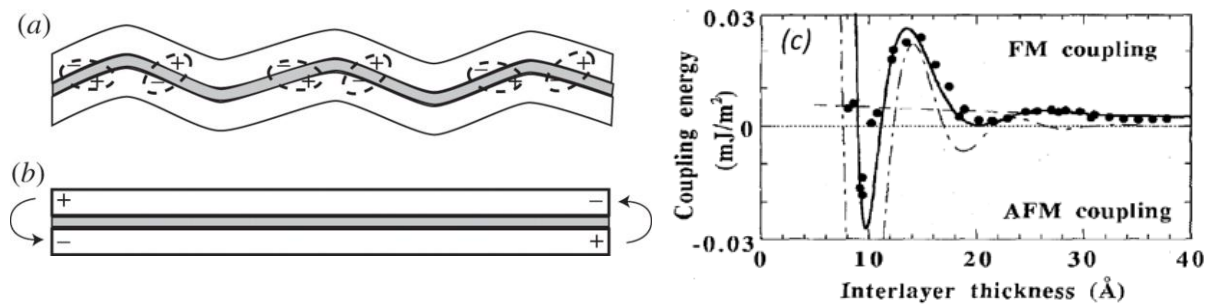


Abbildung 4: Relevante magnetische Wechselwirkung zwischen durch einen Spacer getrennten Dünnschichten im Falle von Néel-Kopplung (a)), Dipol-Kopplung (b)) (beide Abbildungen sind jeweils [57] entnommen) und Interlagen-Austauschkopplung (c)). In c) ist die berechnete (durchgezogene Linie) und gemessene (Punkte) Kopplungsenergie für ein NiFe/Cu/NiFe System in Abhängigkeit der Cu Schichtdicke nach [55] gezeigt. Die gestrichelte Linie zeigt die Wechselwirkung aus Néel Kopplung, während die punkt-strichlierte Kurve die Kopplung aus RKKY Wechselwirkung zeigt.

Abbildung 4c) zeigt exemplarisch den Verlauf der gesamten Kopplungsenergie in Abhängigkeit der Zwischenschicht für ein NiFe/Cu/NiFe Schichtsystem in Abhängigkeit der Cu Schichtdicke. Während für Zwischenschichtdicken $t_{Cu} < 1.5$ nm die RKKY Kopplung (gestrichelt-gepunktete Kurve) die Kopplungsenergie (durchgezogenen Linie) dominiert, spielt bei einer Dicke von $t_{Cu} > 3$ nm, wie sie für alle Sensoren in dieser Arbeit hergestellten Sensoren verwendet wurde, nur noch die Néel Kopplung (gestrichelte Linie) eine Rolle.

2.2.5 Superparamagnetismus

Der Effekt des Superparamagnetismus lässt sich vor allem bei nano-skaligen magnetischen Partikeln beobachten. Eine anschauliche Erklärung des Phänomens ist in Abbildung 5 dargestellt.

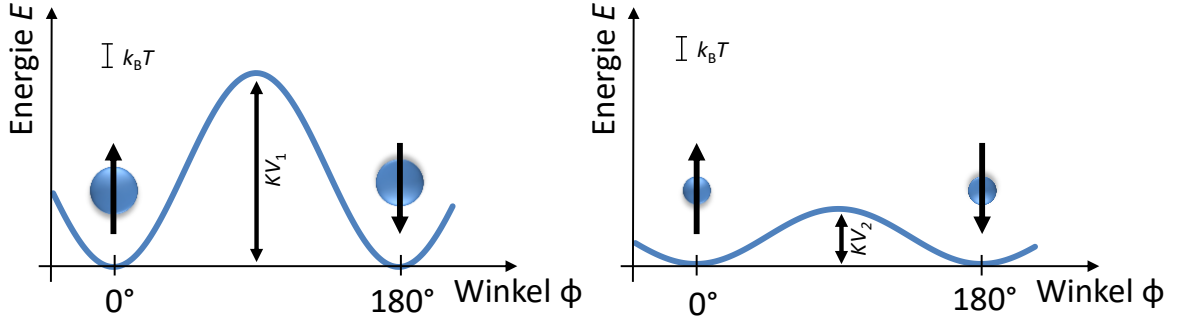


Abbildung 5: Anschauliche Darstellung der Energielandschaft bei unterschiedlicher Partikelgröße zur Erklärung des Superparamagnetismus. Der Winkel bezieht sich in beiden Fällen jeweils auf die Ausrichtung der Magnetisierung im Bezug zur leichten Richtung. V_1 bzw. V_2 bezeichnet das Volumen des betrachteten Partikels, wobei gilt: $V_2 < V_1$.

Die Magnetisierung unterliegt in der Realität stets thermischen Fluktuationen. Dabei stabilisiert bei ferromagnetischen Materialien die Anisotropieenergie KV (mit dem Partikelvolumen V) die Lage der Magnetisierung ohne ein von außen angelegtes Feld. Die Magnetisierung nimmt eine feste Ausrichtung (hier: $\theta = 0^\circ, 180^\circ$) bezüglich der leichten Richtung ein. Wird das Volumen für nano-skalige Partikel sehr klein, nähert sich die Anisotropieenergie KV der thermischen Energie $k_B T$. Dadurch kann, angeregt durch die thermische Energie, die Magnetisierung die Anisotropiebarriere überwinden und wird zeitlich instabil. Die mittlere Zeit, innerhalb derer ein Wechseln der Magnetisierung von einer zur anderen stabilen Lage beobachtet werden kann wird als Néel Zeit τ_N bezeichnet. Sie ergibt sich empirisch nach [58] zu:

$$\tau_N = (1/f_0) \cdot e^{KV/k_B T} = \tau_0 e^{KV/k_B T} \quad (6)$$

Hier stellt τ_0 eine empirisch ermittelte Zeitkonstante dar, deren Wert typischerweise zu $\tau_0 = 1$ ns angegeben wird [59]. Für die in der Arbeit verwendeten Nanopartikel aus Eisenoxid mit einem mittleren Radius von 4 nm und einer Anisotropie von $K = 1.3 \cdot 10^5$ J/m³ ergibt sich eine Néel Relaxationszeit bei $T = 300$ K von $\tau_N = 4.5$ μ s.

Betrachtet man während einer Messung den Partikel über wesentlich längere Zeiträume $t_{\text{mess}} \gg \tau_N$ so sieht der Partikel für die Messung paramagnetisch aus. Wird ein externes Feld H aufgebracht ergibt sich aus der Konkurrenz der Zeeman Energie und der thermischen Energie eine Netto-Magnetisierung $M(H)$, die sich über den kompletten Feldbereich durch die Langevin-Funktion $L(H)$ beschreiben lässt. Es gilt (ohne Ableitung!):

$$M(H) = M_s \left(\coth \left(\frac{\mu_0 m H}{k_B T} \right) - \frac{k_B T}{\mu_0 m H} \right) = M_s L(x) \text{ mit } x = \frac{\mu_0 m H}{k_B T} \quad (7)$$

Hierbei bezeichnet M_s die Sättigungsmagnetisierung des Partikelmaterials, T die absolute Temperatur, k_B die Boltzmannkonstante und H das extern angelegte Feld. Für geringe Felder bzw. hohe Temperaturen ($\mu_0 m H < k_B T$) kann die Abhängigkeit der Magnetisierung

als linear vom Feld angenommen werden und es ergibt sich:

$$M(H) \cong M_s \frac{\mu_0 m H}{3 k_B T} = \chi H \quad (8)$$

Lässt man eine maximale Abweichung von 1% zwischen linearer Näherung und exakter Beschreibung mittels $L(H)$ zu, was der Bedingung $\mu_0 m H < 0.38 k_B T$ entspricht, so gilt dies für die verwendeten superparamagnetischen Eisenoxid Partikel mit einem Radius von $r_p = 4$ nm unter der Annahme von $M_s = 3.4 \cdot 10^5$ A/m und $T = 300$ K bis zu einer Feldstärke von $H = 1.37 \cdot 10^4$ A/m bzw. $H = 172$ Oe.

2.2.6 Ionen-Festkörper-Wechselwirkung

In dieser Arbeit wurden Sensoren mittels eines fokussierten Ionenstrahls abgetragen. Die Ionen werden dazu in Richtung der Probe beschleunigt und tragen durch Sputtern die Probenoberfläche ab. Aufgrund der hohen Energien von 30 keV dringen die Ionen oberflächennah in das abzutragende Material ein, wo es zum Energieübertrag der Ionen auf die Targetatome (nuklearer Energieverlust) kommt. Dieser Prozess dominiert die Wechselwirkung zwischen Ionen und Target bei niedrigen Ionenergien bis zu einigen keV/amu (amu = atomic mass unit), während für höhere Energien zusätzlich der elektronische Energieverlust zur Wechselwirkung beiträgt [60]. Die Ionen weisen beim Eindringen in den Sensorstapel mit 30 keV ein Vielfaches der typischen Deplatzierungsenergie der Targetatome (~ 25 eV) auf. Aufgrund dessen kann ein Ion während einer Stoßkaskade viele Deplatzierungen und damit evtl. Schädigung im GMR Sensor hervorrufen. Um die Auswirkungen von Ionenbestrahlung auf die in der Arbeit verwendeten GMR Sensoren besser deuten zu können, wurde mittels eines frei verfügbaren Simulationsprogramms die Ionen-Festkörper-Wechselwirkung simuliert.

SRIM Simulation

Die Wechselwirkung zwischen Ionen und Festkörperatomen kann mittels des frei verfügbaren Software Pakets SRIM [61] („**S**topping and **R**ange of **I**ons in **M**atter“) simuliert werden. Neben charakteristischen Eindringtiefen der Ionen ins Material lässt sich die induzierte Strahlenschädigung berechnen. Das Programm bedient sich dem Prinzip der „Binary-Collision-Näherung“ (BCA), bei dem die Kollision als Folge von elastischen Zweierstößen modelliert wird. Der Festkörper wird in der Simulation mit den material-spezifischen Parametern Dichte ρ und seinem Atomgewicht m_{amu} beschrieben. Da der Festkörper in der Simulation als amorph betrachtet wird, können Phänomene, die bei kristallinen Festkörpern auftreten (beispielsweise Ionenchanneling [62]), nicht berücksichtigt werden. Diese spielen jedoch bei den im GMR Sensor vorliegenden, nanokristallinen

Schichten eine untergeordnete Rolle. Abbildung 6 zeigt vier simulierte Ionentrajektorien. Vor jedem Stoß eines Ions mit einem Targetatom wird mittels einer Zufallszahl der sogenannte Stoßparameter bestimmt, aus dem Ablenkrichtung und Energieverlust berechnet werden. Dies wird solange fortgesetzt, bis die Ionenenergie einen festgelegten Wert von $E_{\text{ion}} < 5 \text{ eV}$ erreicht. Die Position des letzten Stoßes wird als finaler Implantationsort festgelegt und bestimmt die Reichweite des Ions. Für die gesamte Trajektorie des Ions wird festgehalten, an welcher Atomsorte und an welchem Ort im Festkörper die Stöße stattgefunden haben, so dass die komplette Stoßkaskade rekonstruiert werden kann. Die bei der Stoßkaskade entstehenden Materialschäden hängen von der Gitterbindungsenergie („lattice binding energy“) und der Verschiebungsenergie („displacement energy“) ab, die beschreibt, wieviel Energie zur Umlagerung eines Atoms an einen neuen Gitterplatz benötigt wird. Beide Energien müssen elementspezifisch beziehungsweise schichtspezifisch festgelegt werden. Die dynamische Veränderung des Materials (durch Umlagerung von Atomen) wird während der Simulation nicht berücksichtigt, so dass jedes Ion beim Auftreffen den gleichen Aufbau der Probe vorfindet. Streng genommen gelten die Ergebnisse dadurch nur für geringe Strahlungsdosen, bei denen die strukturelle Veränderung der Probe noch vernachlässigbar ist.

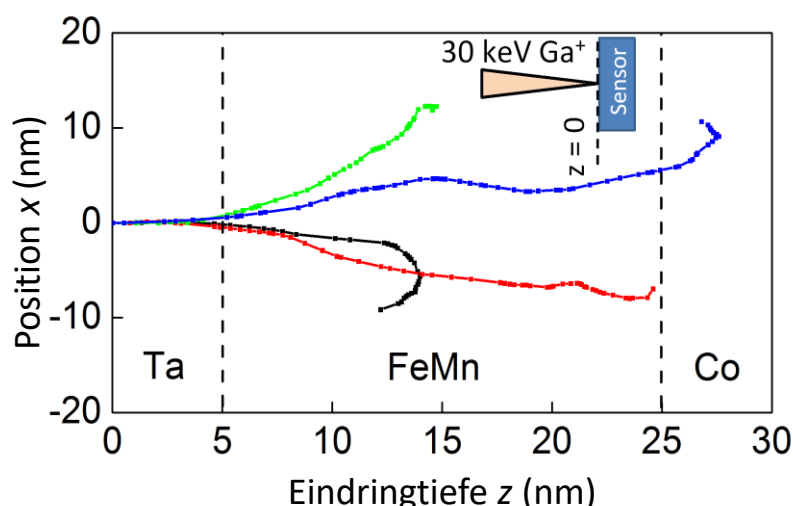


Abbildung 6: Exemplarische, simulierte Trajektorien (bei 30 keV Beschleunigungsspannung unter senkrechtem Einfall bei $z = 0$). Jeder Datenpunkt innerhalb der Trajektorien stellt ein Stoßereignis innerhalb des Sensorstapels mit einem Atom des Stapels dar. Es werden nur Stöße dargestellt, die zu Umlagerung oder zum Auslösen eines Targetatoms führen. Die gestrichelten Linien stellen die Grenzflächen zwischen den einzelnen Schichten des Stapels dar.

2.3 Herstellung und Charakterisierung des Sensorstapels

DC-Magnetron-Sputtern (auch Kathodenzerstäubung genannt) gehört zur Gruppe der physikalischen Gasphasenabscheidungsprozesse und ist schematisch in Abbildung 7 dargestellt.

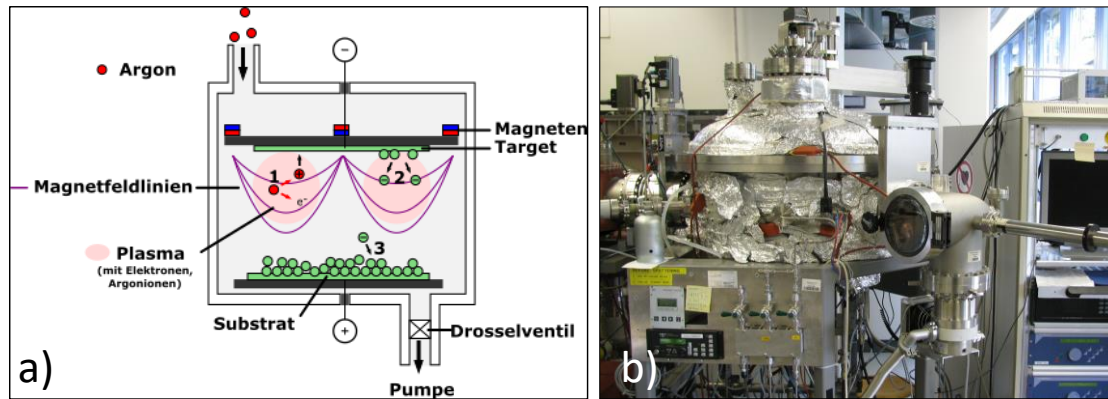


Abbildung 7: Anordnung von Substrat und Target beim DC Magnetron-Sputtern (a)) und Foto der für die Arbeit verwendeten UHV Anlage (b)).

Dabei wird ein zunächst evakuierter Prozessraum mit einem Edelgas gefüllt (hier Ar). Das abzuscheidende Material wird in Form eines sogenannten Sputtertargets verbaut. Zwischen einer Außenelektrode und dem Sputtertarget wird eine Spannung angelegt, bei der das negative Potential auf das Sputtertarget gelegt wird. Durch das Anlegen der Spannung mit typischen Werten von mehreren hundert Volt wird in der Nähe des Targets ein Plasma gezündet. Durch das negativere Potential des Sputtertargets gegenüber der Umgebung werden die ionisierten Edelgasatome auf das Target beschleunigt und schlagen die Atome des Targetmaterials aus dem Target. Diese lagern sich anschließend auf einem in der Nähe befindlichen Substrat ab und führen so zur Bildung einer dünnen Schicht. Um den Sputterprozess zu beschleunigen werden zusätzlich Permanentmagnete an der Sputterkanone angebracht, deren Magnetfeld die Elektronen auf einer Kreisbahn direkt über dem Sputtertarget führt. Dieser Vorgang erhöht lokal die Plasmadichte direkt über dem Target, was zu einem schnelleren Abtrag führt. Während der Deposition wird das Substrat über dem Plasma in einer oszillierenden Bewegung (ca. 2 Sekunden Abscheidung pro Oszillation) geführt, was zu einer homogenen Abscheidung bei gleichzeitiger Kontrollierbarkeit der Schichtdicke durch die Anzahl der Oszillationen führt. Abbildung 8 zeigt die für die Arbeit verwendeten Parameter zur Herstellung der GMR Sensoren sowie den in der Arbeit verwendeten Sensoraufbau. Die Abscheiderate wurde für jedes Material im Vorfeld mittels Röntgenreflektometrie kalibriert (Messungen nicht explizit gezeigt).

Material (Target)	Leistung [W]	Druck [mbar]	Rate [nm/osz]
Ta (4")	80	0.01	0.78
Ni ₈₀ Fe ₂₀ (3")	80	0.01	0.62
Co (3")	80	0.01	0.48
Cu (2")	80	0.01	0.4
Fe ₅₀ Mn ₅₀ (3")	80	0.01	0.84

Ta [5 nm]
FeMn [20 nm]
Co [4 nm]
Cu [4 nm]
Co [1 nm]
NiFe [6 nm]
Ta[5 nm]
Si/SiO ₂

Abbildung 8: Sputterparameter (links) und schematischer Aufbau des in der Arbeit verwendeten Sensorstapels (rechts). GS und FS stehen für gepinnte Schicht bzw. freie Schicht. Die Kalibration zur Abscheiderate wurde mittels röntgenreflektometrischen Messungen durchgeführt. Zur besseren Übersicht wurden die Schichtdicken in der Skizze rechts nicht maßstabsgetreu eingezeichnet.

2.3.1 Grundlegender Sensoraufbau

Als Grundlage für den Sensoraufbau dient ein mit einer 300 nm dicken SiO_2 Schicht abgedeckter Si Wafer mit $\langle 100 \rangle$ Orientierung. Zunächst wurde eine 5 nm dicke Ta Schicht als Unterlage für den eigentlichen Sensorstapel abgeschieden. Diese ist durch den hohen Schmelzpunkt von Ta (3017 °C) und die damit verbundene hohe Oberflächenenergie sehr gut geeignet, eine möglichst gute Wachstumsgrundlage für die weiteren Schichten zu bilden. Weiterhin dient Ta auf der Si/ SiO_2 Oberfläche als Haftvermittler für den restlichen Schichtstapel. Die darauffolgende Schicht aus NiFe (6 nm)/Co (1 nm) wird im Folgenden als freie Schicht (FS) bezeichnet. Sie ermöglicht durch die geringe Kristallanisotropie von NiFe eine hohe Feldsensitivität. Um den GMR Effekt an der Grenzfläche zur Cu Schicht zu erhöhen wird eine 1 nm dicke Co Schicht abgeschieden, welche durch die höhere Spinpolarisation im Vergleich zu NiFe den GMR Effekt um ca. 20% erhöht [63]. Die darauffolgende Kupferschicht wird mit einer Dicke von 4 nm abgeschieden. Dies reduziert sowohl das IEC als auch die *RKKY* Austauschwechselwirkung (siehe Abbildung 4c)) zwischen der freien und gepinnten Schicht [56] ist aber noch dünn genug, um den GMR Effekt nicht stark zu beeinträchtigen [64]. Die obere Co Schicht wird mit 4 nm Dicke aufgebracht, was einen hohen GMR Effekt und durch die geringe Dicke der FM Schicht ein gleichzeitiges hohes Exchange Bias Feld H_{ex} (siehe auch Formel (2)) ermöglicht. Die $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ Schicht stellt in dieser Stöchiometrie die größtmögliche Austauschkopplung an der Grenzfläche zur gepinnten Schicht und somit das größtmögliche Exchange Bias Feld H_{ex} bereit [65]. Die Dicke von 20 nm ermöglicht ein maximales Exchange-Bias Feld [66] und reduziert das GMR Ratio aufgrund der geringen Leitfähigkeit der $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ Legierung im Verhältnis zu den restlichen Sensorschichten nur unwesentlich.

2.3.2 Röntgenographische Charakterisierung

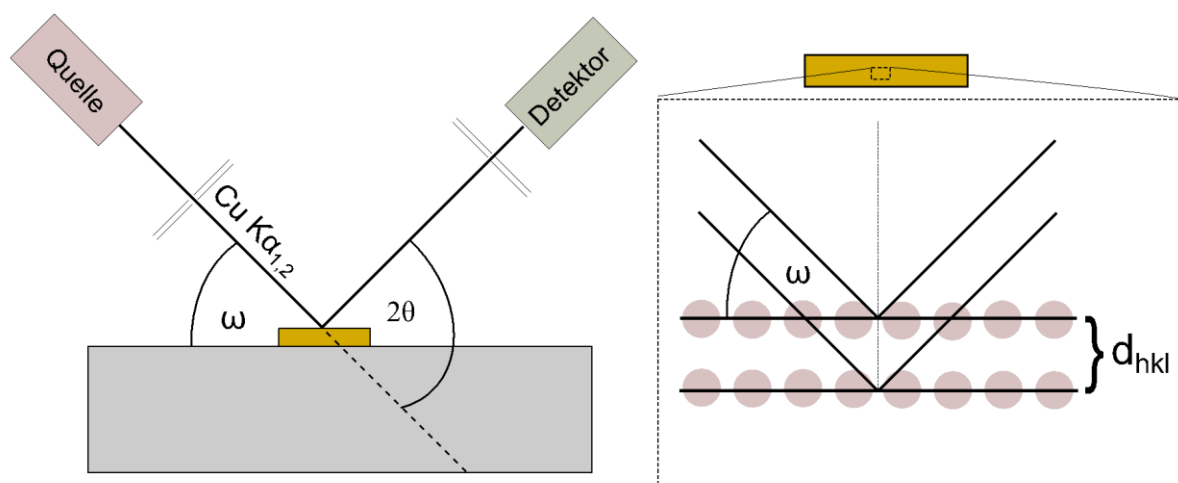


Abbildung 9: Prinzipielle Messgeometrie zur Messung der Röntgenstreuung an Netzebenenscharen mit Abstand d_{hkl} . Der Einfallswinkel ω entspricht bei der Messung in Bragg-Brentano Geometrie jeweils $\omega = \theta$, während bei streifenförmigem Einfall $\omega = \text{const.}$ gilt.

Um den Sensorstapel vor der Mikrostrukturierung zu charakterisieren wurden zunächst Röntgendiffraktometrienmessungen direkt nach der Herstellung mittels Magnetron-Sputtern durchgeführt. Hierzu wurde ein Siemens D5005 Diffraktometer bei einer Röntgenwellenlänge von $\lambda = 0.154$ nm entsprechend dem Kupfer K_α Übergang verwendet. Abbildung 10a) zeigt eine Messung des Stapels in Bragg-Brentano Geometrie. Die eingezeichneten, vertikalen Linien markieren hierbei die theoretisch erwarteten Peak Positionen für eine $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ Schicht für die fcc-Kristallstruktur bei Raumtemperatur gemäß den in [67] gegebenen Strukturdaten. In der Messung ist lediglich ein deutlicher Peak für die (111) Netzebenen zu erkennen, während die (200) und die (220) Richtung keine ausgeprägten Intensitätsmaxima aufweisen. Dies deutet auf eine bevorzugte (111) Orientierung der FeMn Kristallite hin. Der Peak weist auf der rechten Flanke eine Asymmetrie auf, die dem (111) Peak von NiFe zuzuordnen ist. Das Diffraktogramm zeigt keine Peaks, die auf eine Überstruktur der FeMn Schicht hinweisen würden. Abbildung 10b) zeigt eine Rocking Kurve, bei der unter konstantem Streuwinkel 2θ und bei variablem Einfallswinkel in der Nähe der Referenzposition $\omega = \theta_{111}$ gemessen wird.

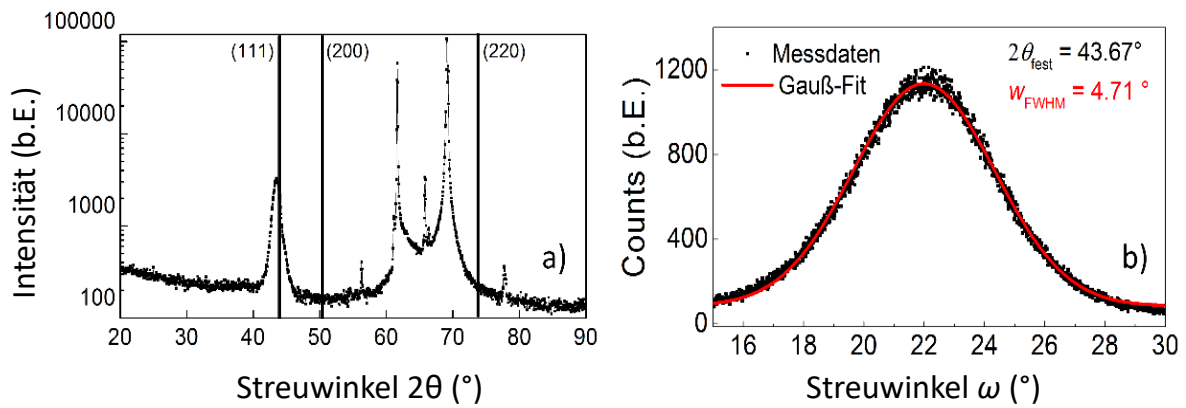


Abbildung 10: Röntgendiffraktogramm eines Schichtstapels direkt nach Herstellung mittels DC-Magnetron-Sputtern (a)). Die vertikalen Linien entsprechen den Peakpositionen der FeMn Schicht. Alle nicht bezeichneten, sichtbaren Peaks können dem Si-Wafer in (100) Orientierung zugeordnet werden. In b) ist eine Messung der Rocking-Kurve gezeigt. Die instrumentelle Peakverbreiterung beträgt $\omega_{FWHM} < 0.2^\circ$ (gemessenen am Si (400) Reflex) bei $2\theta = 69.2^\circ$.

Die Messung zeigt einen Gaußpeak mit einer Halbwertsbreite von $\omega_{FWHM} = 4.7^\circ$, was bedeutet, dass die konstruktive Interferenz an (111) Ebenen bei leichter Kippung der Probe stark abnimmt und somit eine scharfe Textur mit (111) Ebenen parallel zur Probenoberfläche vorliegt, was in Einklang mit den vorher gezeigten Ergebnissen in Bragg-Brentano Geometrie steht. Begründet werden kann die Ausbildung einer (111) Textur durch die zugrundeliegende Pufferschicht aus Ta/NiFe, welche ein Wachstum des Stapels und insbesondere der FeMn Schicht mit einer ausgeprägten (111) Textur fördert [68]. Die (111) Textur erhöht die Grenzflächenkopplung zwischen FeMn und der Co Schicht durch die „günstige“ Spinstruktur des Antiferromagneten in der (111) Ebene [69]. Die zuletzt aufgebraachte, 5 nm dicke Ta Schicht schützt die darunter liegenden Sensorschichten vor Oxidation durch Ausbildung eines stabilen Oberflächenoxids [70].

2.3.3 Magnetische Charakterisierung mittels Vibrationsmagnetometer

Vor der Mikrostrukturierung wurden die Sensoren mittels Vibrationsmagnetometer (VSM) charakterisiert, um deren magnetisches Verhalten zu vermessen und dieses anschließend gezielt einzustellen.

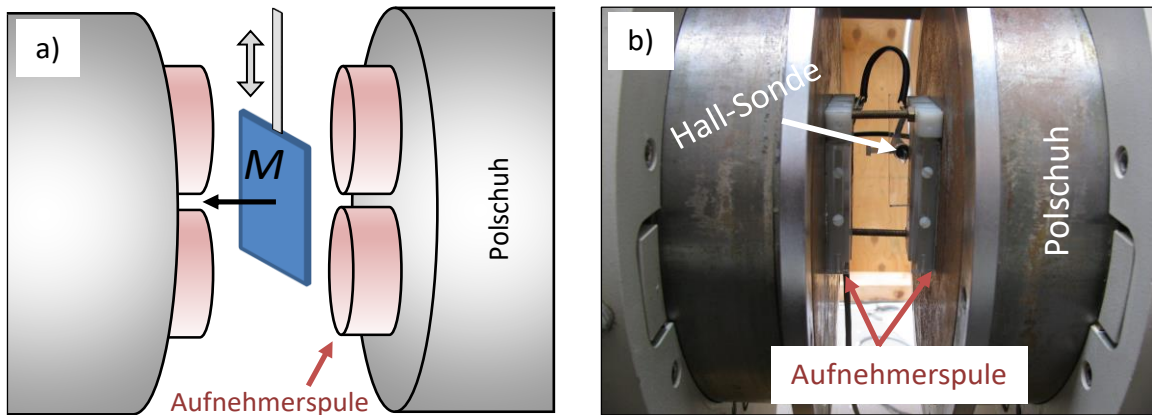


Abbildung 11: Schematische Darstellung der Messung mittels eines Vibrationsmagnetometers (a)) und zur Messung verwendetes VSM System Lakeshore 7300 VSM (b)).

Abbildung 11 zeigt den schematischen Aufbau eines Lakeshore VSM 7300, das zur Messung des magnetischen Moments des Sensorstapels verwendet wurde. Dabei wird die Probe auf einem Stab befestigt und durch eine sinusförmige Anregung in Schwingung versetzt ($f = 80 \text{ Hz}$), was durch den grauen Doppelpfeil in Abbildung 11a) angedeutet ist. Die Magnetisierung der Probe führt in Verbindung mit der sinusförmigen Aussteuerung zu einer zeitlichen Änderung des magnetischen Flusses Φ der die Aufnehmerspulen (rot) durchsetzt. Nach dem Faradayschen Gesetz führt dies zu einer induzierten Spannung U_{ind} in den Aufnehmerspulen mit Fläche A , die sich berechnet zu:

$$U_{\text{ind}} = -\frac{\partial \Phi}{\partial t} = -\frac{\partial (B_{\text{probe}} A)}{\partial t} \quad (9)$$

Da die Spulenfläche A bekannt ist kann das VSM mittels der Messung einer Probe mit bekanntem magnetischen Moment (in diesem Fall eine Ni Vollkugel mit Durchmesser von 3 mm) kalibriert werden.

Abbildung 12 zeigt eine exemplarische Messung des GMR Schichtstapels direkt nach der Herstellung entlang der bei der Herstellung im Sensor eingeprägten leichten Richtung. Die Messung zeigt, dass direkt nach der Herstellung zwei getrennte Hysteresekurven vorliegen, was bedeutet, dass das Exchange Bias Feld schon direkt während der Sputterherstellung eingeprägt wird. Erklärt werden kann dies durch die Tatsache dass die FeMn Schicht bei der Herstellung auf die ferromagnetische Co Schicht abgeschieden wird. Dabei können

sich die magnetischen Momente im AFM nahe der FM/AFM Grenzfläche ausrichten, was zu $H_{\text{ex}} \neq 0$ direkt nach der Abscheidung des Sensorstapels führt. Die Magnetisierungskurven der freien und gepinnten Schicht weisen in der VSM Messung eine sehr hohe Remanenz von $M_R/M_s \approx 1$ auf, was bedeutet, dass die Feldrichtung bei der Messung eine leichte Richtung in beiden Schichten darstellt. Das Vorhandensein einer leichten Richtung ist ein typisches Phänomen von durch Magnetron-Sputtern hergestellten Dünnschichtsystemen. Eine oft erwähnte Ursache hierfür stellt das durch die Magnetron-Anordnung während des Schichtwachstums vorhandene Magnetfeld dar [71, 72]. Für alle im Rahmen der Arbeit hergestellten Sensoren konnte diese, im Folgenden als intrinsische, leichte Richtung bezeichnet, durch geeignete Orientierung der Substrate in der Sputteranlage reproduzierbar voreingestellt werden. Die Minor-Loop Messung zeigt eine Verschiebung der Hysteresekurve der freien Co/NiFe Schicht entlang der Feldachse hin zur gepinnten Schicht. Dies kann für die verwendete Dicke der Cu Zwischenschicht von $t_{\text{Cu}} = 4$ nm der Néel-Kopplung zwischen beiden Schichten zugeordnet werden. Aus der Feldverschiebung H_{OPC} (OPC = Orange Peel Coupling) lässt sich unter Annahme einer Sättigungsmagnetisierung der freien Schicht von $\mu_0 M_s = 1$ T, sowie einer Schichtdicke der NiFe/Co Schicht von $t_{\text{FS}} = 7$ nm eine Kopplungsenergie $J_{\text{OPC}} = \mu_0 M_s t_{\text{FS}} H_{\text{OPC}} = 0.0033$ mJ/m² berechnen. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit typisch erwarteten Kopplungsenergien bei reiner Néel Kopplung [55] (vgl. Abbildung 4).

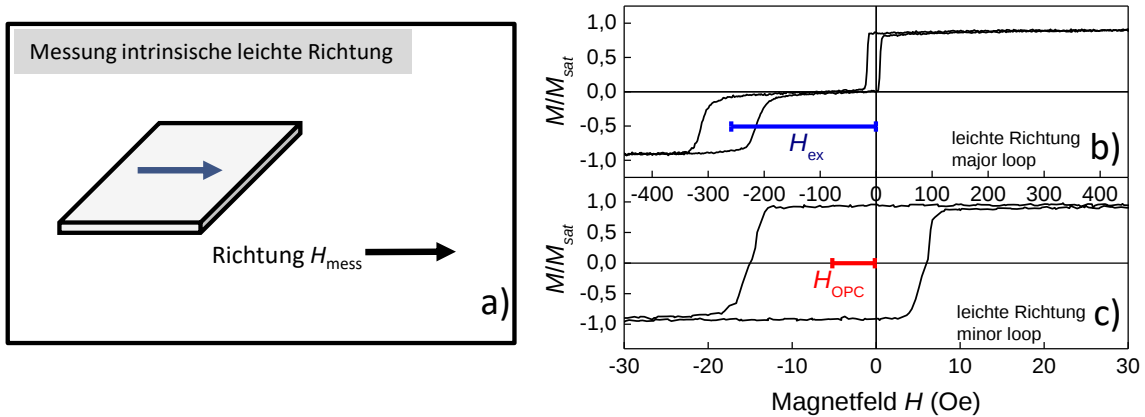


Abbildung 12: Prinzipskizze (a) und Messung (b) und (c) eines Schichtstapels direkt nach Sputterabscheidung mit Feld parallel zur leichten Richtung. Der blaue Balken markiert das Exchange Bias Feld H_{ex} . In c) ist eine Messung mit kleinerem Feldbereich (minor loop) entlang der leichten Richtung gezeigt. Der rote Balken zeigt die Feldverschiebung der freien Schicht entlang der leichten Achse durch die Néel Kopplung (H_{OPC}).

Für eine quantitative Messung des externen Feldes muss der Sensor eine möglichst lineare, hysteresefreie Aussteuerung der Magnetisierung ermöglichen. Dies kann entsprechend den Vorhersagen aus dem Stoner-Wohlfarth-Modell nur bei Messung entlang der harten Richtung der freien Schicht (senkrecht zur leichten Richtung) erfolgen, die in Abbildung 13 gezeigt ist. Die Messung in Abbildung 13b) zeigt, dass entlang der harten Richtung direkt nach der Herstellung zunächst kein „unabhängiges Ummagnetisieren“ beider Schichten erfolgt. Dies liegt daran, dass die zur unabhängigen Ummagnetisierung benötigte AFM/FM Kopplung direkt nach der Abscheidung des Sensorstapels entlang

der intrinsischen, leichten Richtung ausgeprägt ist. Um diese senkrecht dazu auszurichten, wird der Sensorstapel in einem Feld von $H_{an} = 800$ Oe mit Ausrichtung entlang der harten Richtung der freien Schicht bei $T = 170$ °C für $t = 40$ min erhitzt und anschließend im Feld auf Raumtemperatur abgekühlt. Nach diesem Schritt zeigt der Sensor, wie in Abbildung 13c) zu sehen, das gewünschte entkoppelte Ummagnetisierungsverhalten von gepinnter und freier Sensorschicht. Für die aus der minor-loop Messung (hier nicht gezeigt) extrahierte Sättigungsfeldstärke $H_s = 25$ Oe ergibt sich bei einer angenommenen Sättigungsmagnetisierung der NiFe/Co Schicht von $\mu_0 M_s = 1.0$ T nach Gleichung (5) ein Wert von $K = \mu_0 M_s H_s / 2 \sim 1000$ J/m³, der für die Sensormodellierung wieder aufgegriffen wird.

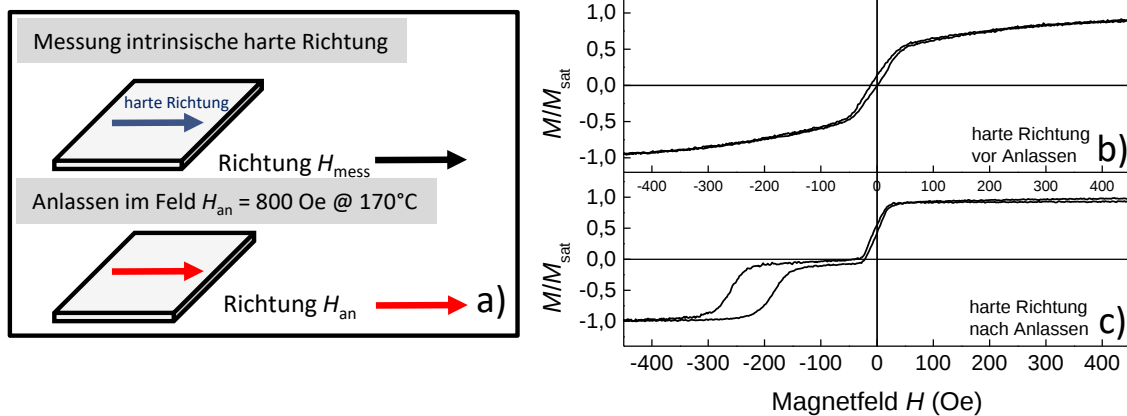


Abbildung 13: Abbildung a) zeigt eine Prinzipskizze und b) eine Messung entlang der intrinsischen, harten Richtung direkt nach Sputterabscheidung. In c) ist eine Messung entlang der harten Richtung nach dem Feld-Anlassschritt (siehe Haupttext) gezeigt.

2.3.4 Mikrostrukturierung mittels optischer Lithographie

Alle in der Arbeit charakterisierten GMR Sensoren wurden zunächst mittels optischer Lithographie mikrostrukturiert. Im Folgenden wird auf die wesentlichen Prozessierungsschritte, die in Abbildung 14 gezeigt sind, eingegangen. Zunächst wurde ein Umkehr-Photolack (AZ5214 E) durch Spin-Coating mit einer Dicke von ca. 1.3 μ m auf ein zuvor mittels organischer Lösungsmittel im Ultraschallbad gereinigtes, durch 300 nm SiO₂ passiviertes, einkristallines Si Substrat aufgeschleudert. Der Lack wurde anschließend durch Kontaktlithographie in den Bereichen geöffnet, an denen später der Sensorstapel verbleiben soll (siehe Abbildung 14a)). Im darauffolgenden Schritt wurde der Sensorstapel mittels DC-Magnetron-Sputtern abgeschieden und der Lack mit Hilfe eines Lift-Off Schritts im Ultraschallbad entfernt. Man erhält eine hantelförmige Sensorfläche mit lateralen Ausmaßen von wenigen μ m, wie in Abbildung 14b) dargestellt. Um den Sensor elektrisch zu kontaktieren wurden mittels eines zweiten, gleich gearteten Lithographieschritts den Sensoren überlagerte Leiterbahnenstrukturen im Lack geöffnet (siehe Abbildung 14c)). Im letzten Schritt wurden Leiterbahnen bestehend aus einer 20 nm dicken haftvermittelnden Schicht (TiW,Mo,Ta) und 200 nm Au abgeschieden und ein erneuter Lift-Off Prozess durchgeführt. Unmittelbar vor dem Abscheiden der Leiterbahnen wurden in-situ durch

einen Ar^+ -Plasmaätzschritt ($t = 1 \text{ min}$, $P = 150 \text{ W}$) in der Abscheidekammer mögliche Verunreinigungen von der Kontaktfläche des Sensors entfernt, was einen reproduzierbaren ohmschen Kontakt der Leiterbahn zum aktiven Bereich des Sensors ermöglicht. In Abbildung 14d) ist eine optische Mikroskopaufnahme eines komplett prozessierten Sensors und der stromführenden Zuleitungen zu sehen. Da bei der Prozessierung die Sensoren während der Reinigungs- und Lift-Off Schritte Temperaturen von $> 100^\circ\text{C}$ ausgesetzt sind, kann durch die niedrige Blocking Temperatur T_B der FeMn Schicht nicht gewährleistet werden, dass die bei der Herstellung eingeprägte AFM/FM Grenzflächenkopplung (H_{ex}) nach der Mikrostrukturierung noch einen definierten Zustand aufweist. Um einen magnetischen Referenzzustand sicherzustellen, wurden alle Sensoren vor der eigentlichen Messung mit der in Abschnitt 0 beschriebenen Methode mit externem Feld $H_{\text{an}} = 800 \text{ Oe}$ entlang der intrinsischen, harten Richtung angelassen.

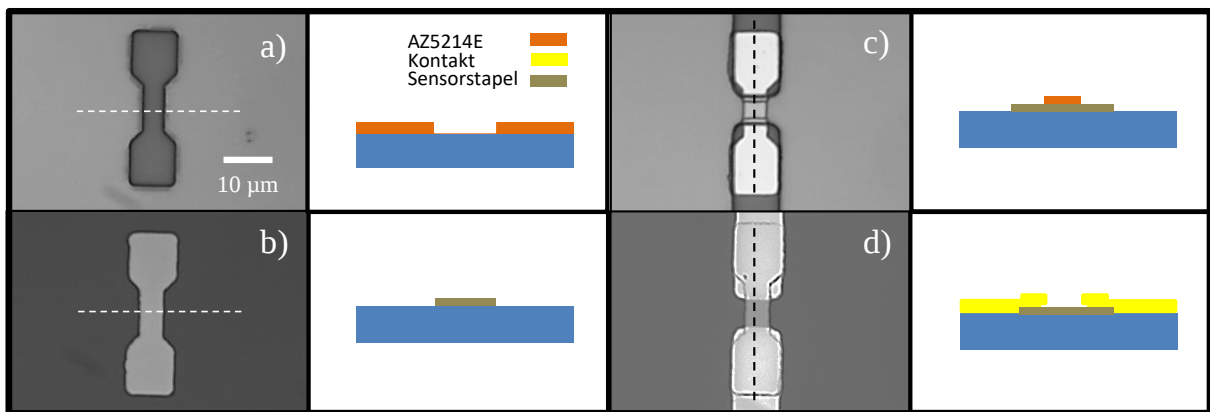


Abbildung 14: Schrittweise Herstellung eines mikrostrukturierten Sensors durch optische Lithographie. a) Öffnen des Image Reversal Lack AZ5214E. b) Abscheidung des Sensors und Lift-Off der nicht erwünschten Metallschichten, c) Alignment und Öffnen der „Zuleitungen“. d) Abscheiden der Zuleitungen und Lift-Off unerwünschten Metalls. Die gestrichelten Linien geben jeweils den Verlauf des Querschnitts an, der jeweils rechts der Mikroskopaufnahmen a)-d) dargestellt ist.

2.4 Ionenstrahlgestützte Strukturierung von GMR Sensoren

Abbildung 15 zeigt den schematischen Aufbau eines in der Arbeit verwendeten Dual-Beam FIB. Dabei wird die Probe mit einem fokussierten Elektronenstrahl zerstörungsfrei abgebildet und kann parallel mit dem Ionenstrahl abgetragen werden. Die beiden Strahlenfoki werden auf einer festen Höhe (euzentrische Höhe) zusammengeführt, was es ermöglicht, gleichzeitig beide Strahlen auf eine Stelle der Probe zu fokussieren. Für die Arbeit wurden alle im Folgenden vorgestellten Ergebnisse an einer Maschine von Quanta (3D FEG) erzielt, deren euzentrische Höhe bei 10 cm Abstand zur Elektronenoptik liegt.

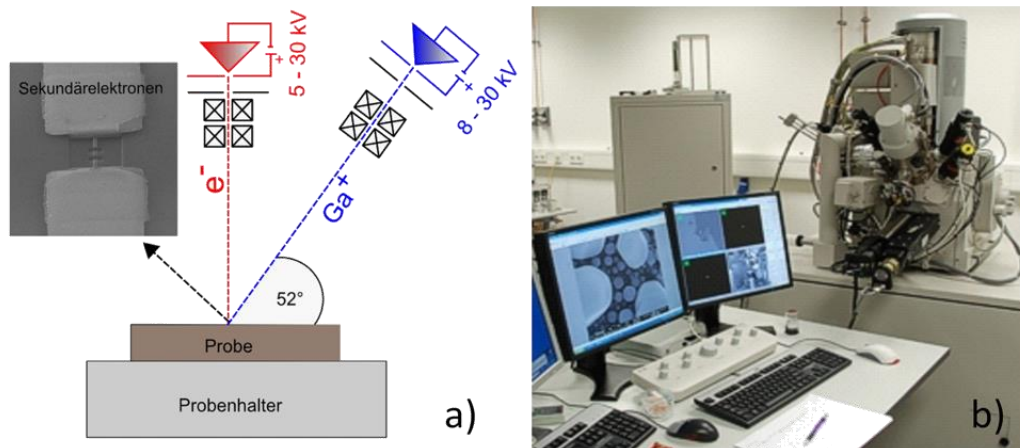


Abbildung 15: Schematische Darstellung eines Focused Ion Beam Mikroskops in der Dual-Beam Ausführung (a)). Für die Arbeit verwendetes Ionenstrahlmikroskop FEI Quanta 3D FEG (b)).

2.4.1 Einfluss von Ga-Ionenbestrahlung auf die elektrischen und magneto-resistiven Eigenschaften von GMR Sensoren

Im Allgemeinen lässt sich bei Bestrahlung von magneto-resistiven Sensoren unter Verwendung von Ionen mit Energien > 1 keV ein Einfluss auf die magnetischen und magneto-resistiven Eigenschaften beobachten [73]. Für die typisch verwendeten Beschleunigungsspannungen liegt die Eindringtiefe der Ionen im Bereich der Schichtdicken moderner MR Sensoren. Dies bedeutet, dass die Ionen in die Tiefe der für den MR Effekt relevanten Schichten eindringen und diese dort schädigen können. Im diesem Zusammenhang wurden in der Vergangenheit einige Arbeiten veröffentlicht, in denen der Einfluss von Ionenstrahlung auf das Verhalten von MR-Sensoren untersucht wurde [42, 45, 74-76]. Dabei hängt der beobachtete Einfluss der Ionenstrahlung im Wesentlichen am verwendeten Ionentyp, der eingestrahnten Dosis und der Ionenenergie. Unterschieden wird hier zwischen „soft irradiation“, also der Bestrahlung mit leichten Ionen (bspw. He^+ oder H^+) und „hard irradiation“, der Bestrahlung mit schweren Ionen (bspw. Xe^+ oder Ga^+). Für leichte Ionen lassen sich bei Energien von 30 keV magnetische Eigenschaften gezielt verändern. Ein Beispiel ergibt sich bei der Bestrahlung von senkrecht anisotropen Co/Pt Multilagen [77, 78], deren magnetische Eigenschaften im Wesentlichen durch die Grenzflächenanisotropie zwischen den Co und Pt Schichten bestimmt sind [79]. Durch die geringe Masse der He^+ (4 u) [77] bzw. N^+ (14 u) [78] Ionen ist die Wechselwirkung mit den schweren Atomen der Co (59 u)/Pt (195 u) Schichten gering und führt nur zur Durchmischung an den Grenzflächen der Co/Pt Schichten. Dadurch lässt sich die durch die Grenzflächenanisotropie gegebene Koerzitivfeldstärke des Systems über einen großen Bereich durch die Bestrahlung einstellen und beispielsweise gezielt für Speicheranwendungen optimieren [77]. In Systemen, in denen mittels AFM/FM Kopplung ein Exchange Bias Feld H_{ex} eingeprägt wird, lässt sich dieses unter Verwendung von leichten Ionen beeinflussen. Engel et al. konnten für ein FeMn/NiFe Schichtsystem zeigen, dass durch den Beschuss mit 30 keV He Ionen in einem während der Bestrahlung angelegten, externen Feld das

Exchange Bias Feld in Größe und Richtung geändert werden kann. Für niedrige Iondosen kann durch die Generation von Defekten an der FM/AFM Grenzfläche das Exchange Bias Feld sogar erhöht werden, während für hohe Dosen das Exchange Bias Feld durch die atomare Durchmischung an der AFM/FM Grenzfläche zerstört wird [80]. Dies erlaubt es, in Kombination mit herkömmlicher optischer Lithographie nahezu beliebig „magnetische Muster“ mit hoher lateraler Auflösung zu erzeugen [81]. Wird ein AFM/FM System verwendet, das eine kristallographische Ordnung zur Einprägung der AFM/FM Grenzflächenkopplung voraussetzt, ändert sich die Auswirkung der Ionenbestrahlung auf die Austauschkopplung. Beispielweise kommt es beim PtMn/NiFe System, das nur in der geordneten L_{10} Phase von PtMn eine unidirektionale Anisotropie im FM ermöglicht, zu einer Reduktion des Exchange Bias Feldes durch He^+ Einstrahlung, was durch die strukturelle Entordnung von PtMn durch die Bestrahlung begründet wird [74]. Soll, wie in dieser Arbeit, Material abgetragen werden, muss der Energieübertrag auf die Probenatome groß genug sein, um diese aus den oberflächennahen Bereichen zu lösen. Hier lassen sich die häufig in FIB-Mikroskopen verwendeten Ionenspezies Ga^+ und Xe^+ verwenden. Der genaue Einfluss der Bestrahlung hängt aber neben der verwendeten Ionenspezies und Ionenenergie auch am Aufbau des MR Schichtstapels und muss deshalb zunächst messtechnisch bestimmt werden. In einem ersten Versuch wurden deshalb die zuvor mikro-strukturierten MR Sensoren entsprechend Abbildung 16 ganzflächig mit einer festen Ionendosis D_{ion} bestrahlt. Die Bestrahlung wurde bei einer Beschleunigungsspannung von $U = 30 \text{ kV}$ sowie einem maximalen Strahlstrom $I = 30 \text{ pA}$ durchgeführt. Die Dosis, die sich als Anzahl eingestrahelter Ionen pro Fläche definiert, kann über die Einstrahlzeit t sowie die Fläche A , auf der eingestrahlt wird, berechnet werden. Hierfür gilt bei Annahme von einfach geladenen Ga Ionen: $D_{\text{ion}} = (I \cdot t) / (q \cdot A)$ mit der Elementarladung $q = 1.6 \cdot 10^{-19} \text{ As}$.

Für Dosen $D_{\text{ion}} > 10^{13} / \text{cm}^2$ wurde eine konstante Fläche von $A = 15 \cdot 20 \mu\text{m}^2$ gewählt und D_{ion} über eine Änderung der Einstrahlzeit t eingestellt, während für die beiden geringsten Dosen der Strom auf $I = 10 \text{ pA}$ bzw. $I = 1.5 \text{ pA}$ verringert wurde. Abbildung 16 (links)) zeigt eine REM Aufnahme eines Sensors nach der ganzflächigen Bestrahlung der aktiven Sensorfläche. Die Ga-bestrahlte Fläche erscheint in den Bereichen außerhalb der Sensorfläche nach der Bestrahlung als dunklerer Bereich im Sekundärelektronendetektor. Dies kann zum einen durch den Abtrag des mit SiO_2 passivierten Substrats und eine damit verbundene Änderung der Topographie des Substrats verbunden sein. Zum anderen lädt sich die SiO_2 Passivierung des Substrats durch die Bestrahlung mit Ga^+ Ionen in den Bereichen außerhalb der Sensorfläche positiv auf, was in den REM Aufnahmen durch die verminderte Emission von Sekundärelektronen zu einem Dunkel-Kontrast führen kann [82].

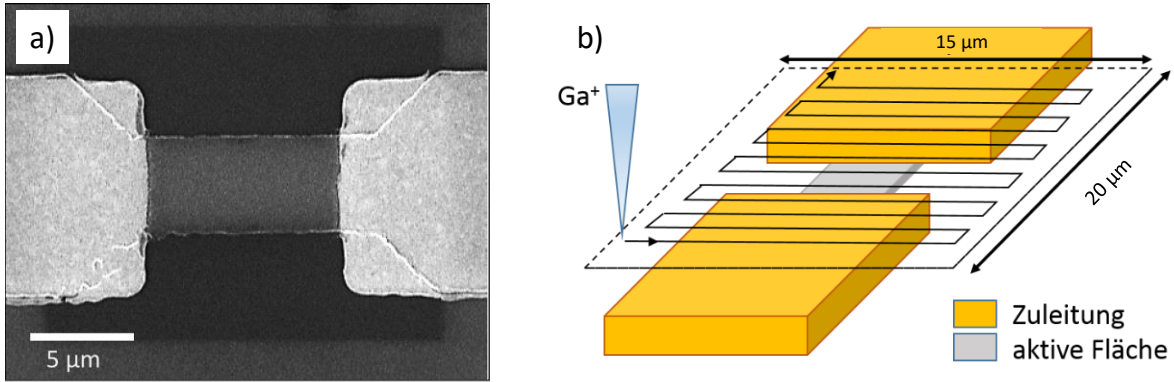


Abbildung 16: a) GMR Sensor nach Bestrahlung bei einer Dosis von $D = 3 \cdot 10^{15} / \text{cm}^2$. Die schwarze Fläche markiert den bestrahlten Bereich mit einer Fläche von $15 \times 20 \mu\text{m}^2$. In b) ist eine Prinzipskizze zur flächigen Bestrahlung durch mäanderförmiges Scannen im Bereich der aktiven Sensorfläche mittels fokussiertem Ga-Ionenstrahl gezeigt. Das Rastermaß innerhalb der Mäander ist hierbei fest zu 8.5 nm gesetzt, was der Halbwertsbreite des Strahlfokus von $w = 17 \text{ nm}$ entspricht.

Die Sensoren wurden vor und nach der Bestrahlung elektrisch bzgl. ohmschem Widerstand und MR Verhalten charakterisiert. Abbildung 17 zeigt den elektrischen Widerstand in Parallelstellung R_p , die maximale Widerstandsänderung $\Delta R = R_{\text{max}} - R_p$, sowie das normierte GMR Verhältnis als Funktion der eingestrahlenen Ga Dosis jeweils nach der Bestrahlung. Das GMR Verhältnis wurde dabei jeweils auf die Werte gemessenen Werte GMR_0 vor der Bestrahlung bezogen.

Der Parallelwiderstand R_p (Abbildung 17a), schwarze Quadrate) zeigt für $D_{\text{ion}} < 10^{13} / \text{cm}^2$ einen sehr geringen Anstieg, während er für größere Dosen deutlich mit der Dosis D_{ion} ansteigt. Ähnliche Ergebnisse wurden von Kerr et al. [83] und Guo et al. [74] für die Bestrahlung von Spin-Valve Systemen mit 30 keV Ga^+ Ionen gezeigt. In beiden Fällen wird davon ausgegangen, dass die Widerstandserhöhung für geringe Dosen in der Durchmischung an den Grenzflächen des Schichtstapels begründet ist. Für zunehmende Ionendosen (typischerweise $D_{\text{ion}} > 10^{14} / \text{cm}^2$) nimmt die Anzahl an Volumendefekten in den einzelnen Lagen des Schichtstapels zu und führt zu einem zusätzlichen Anstieg des Widerstands bei weiterer Erhöhung der Dosis [74]. Obwohl der Sensorstapel durch die Bestrahlung nominell abgetragen wird und sich dadurch der stromdurchflossene Querschnitt des Sensors ändert, spielt dies für die Erhöhung des Widerstands eine untergeordnete Rolle. Die im Experiment maximal verwendete Dosis von $D_{\text{ion}} = 5 \cdot 10^{15} / \text{cm}^2$ entspricht ca. 5 % der zum kompletten Abtrag des Sensors benötigten Dosis (siehe auch spätere Ausführungen Kapitel 2.4.2). Dies kann unter Annahme einer homogenen Stromverteilung über den Querschnitt des Sensors nicht die gemessene Erhöhung des Sensorwiderstands um mehr als einen Faktor 2 für die höchste Dosis erklären. Das GMR Verhältnis (Abbildung 17b), schwarze Quadrate) zeigt ähnlich wie der Widerstand R_p für $D_{\text{ion}} < 1 \cdot 10^{13} / \text{cm}^2$ eine geringe Änderung und nimmt für größere Dosen mit steigender Dosis monoton ab.

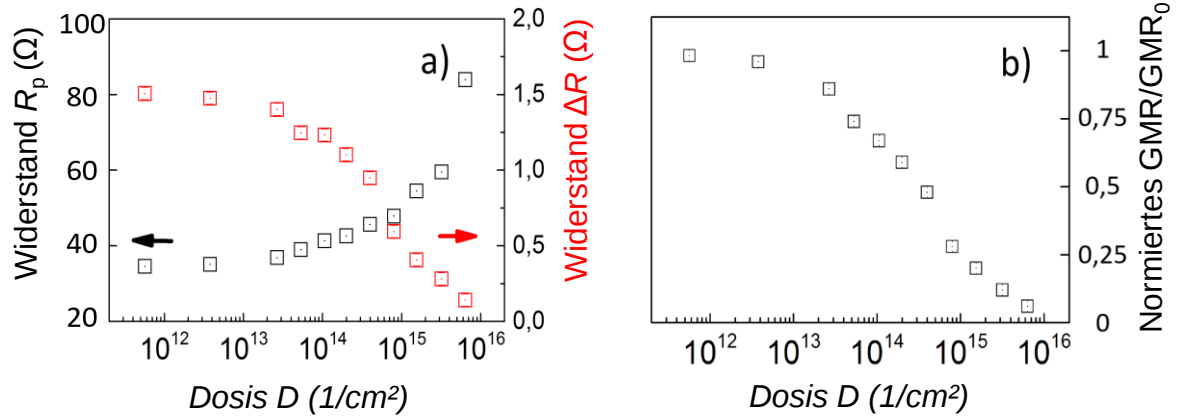


Abbildung 17: Elektrischer Widerstand R_p (schwarze Quadrate) und Widerstandsänderung ΔR (rote Quadrate) in Abhängigkeit der Bestrahlungsdosis nach der Bestrahlung (a)). Normiertes GMR Verhältnis GMR/GMR_0 nach Bestrahlung (b)). Die normierten Werte sind jeweils auf die Werte GMR_0 vor der Bestrahlung bezogen.

Die Ergebnisse entsprechen hier weitestgehend den Befunden von Kerr et al. [83] und Guo et al. [74]. Willekens et al. konnten für ein Co/Cu GMR Schichtsystem zeigen, dass der beobachtete Rückgang des GMR Verhältnis mit Durchmischung der Schichten an der für den GMR Effekt relevanten Co/Cu Grenzfläche verknüpft ist [84]. Vergleicht man die Widerstandsänderung (Abbildung 17a)) mit der Änderung im GMR Ratio erkennt man, dass sowohl die Erhöhung des Parallelwiderstands R_p als auch die mit steigender Dosis niedrigere Widerstandsänderung ΔR das GMR Verhältnisses verringern. Hierbei kann für relativ geringe Dosen von $D_{\text{ion}} < 1 \cdot 10^{15}/\text{cm}^2$ die Reduktion des GMR Verhältnisses fast vollständig der Reduktion der Widerstandsänderung ΔR zugeschrieben werden, die durch die Durchmischung an den Grenzflächen verursacht wird. Erst für höhere Dosen $D > 10^{15}/\text{cm}^2$ trägt die beobachtete Widerstandserhöhung in R_p zusätzlich zur Verringerung des GMR Verhältnisses bei.

Ein zusätzlicher Aufschluss über den Einfluss der direkten Ionenbestrahlung auf die MR Sensoren kann durch Betrachten der MR Kurven nach der Bestrahlung gewonnen werden. Abbildung 18a) zeigt exemplarisch die ermittelten MR-Kurven für verschiedene Dosen direkt nach der Bestrahlung.

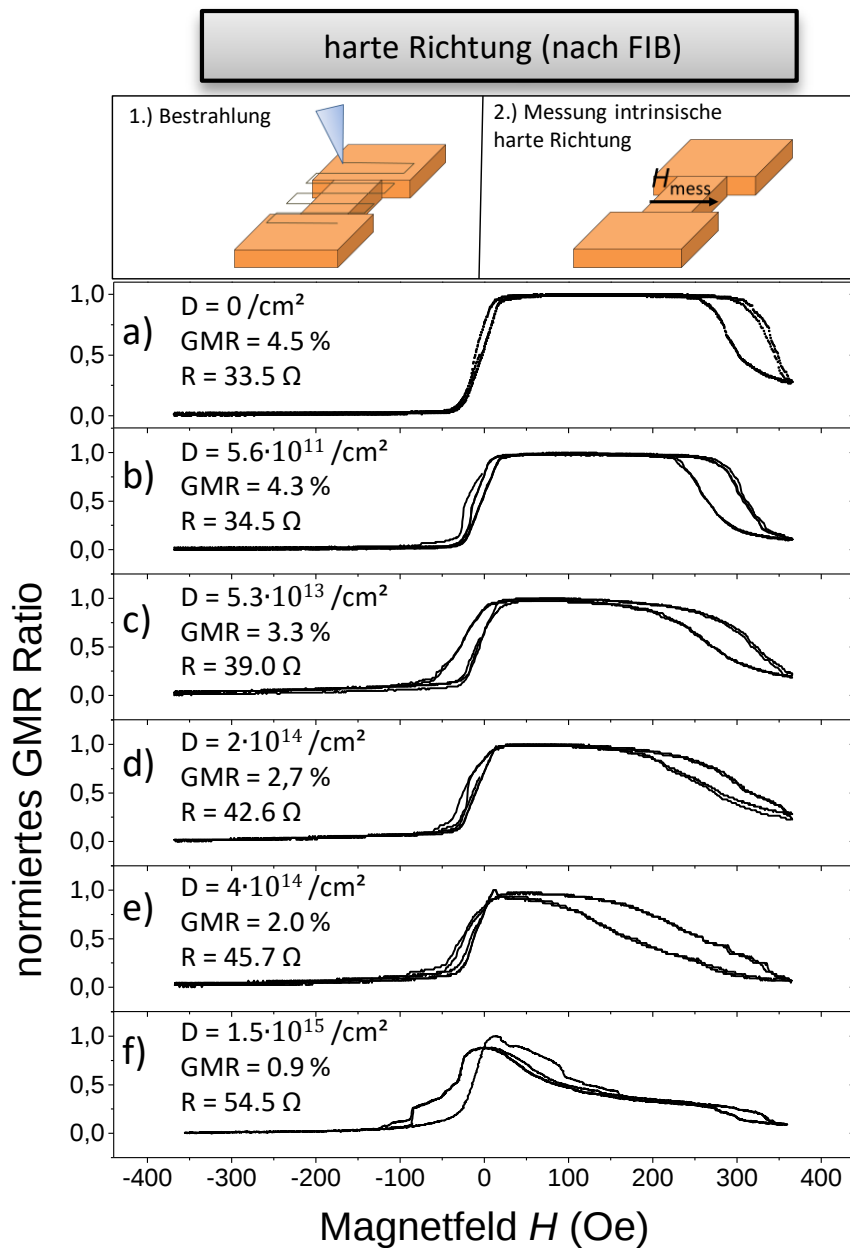


Abbildung 18: Normierte MR Kurven entlang harter Richtung nach Bestrahlung mit der in den Abbildungen angegebenen Ionendosis D . Das jeweilige GMR Verhältnis (in %) nach der Bestrahlung sowie der Widerstand R_p nach Bestrahlung sind entsprechend in den Abbildungen angegeben.

Diese wurden zur besseren Vergleichbarkeit auf den jeweils gemessenen Widerstand $R_p = R_{\min}$ und den maximalen Widerstand $R_{\max}$ gemäß $R_{\text{norm}} = (R(H) - R_{\min}) / (R_{\max} - R_{\min})$ normiert. Das jeweilig durch $\text{GMR} = (R_{\max} - R_p) / R_p$ gegebene GMR Verhältnis nach der Bestrahlung, sowie der jeweilige Widerstand R_p sind in den einzelnen Abbildungen angegeben. Die Kurven zeigen, dass neben der bereits diskutierten Reduktion von GMR Verhältnis und Erhöhung des elektrischen Widerstands R_p eine Änderung im $MR(H)$ Verhalten mit zunehmender Dosis zu beobachten ist. Für steigende Dosis D nimmt der Feldbereich in H ab, für den eine antiparallele Ausprägung der beiden Magnetisierungen in freier und gepinnter Schicht zu einem maximalen Widerstand R_{AP} führt. Dieser Bereich

wird im Folgenden als „antiparalleles Plateau“ bezeichnet. Für Dosen $D > 10^{15}/\text{cm}^2$ (Abbildung 18f)) wird keine klare Antiparallelstellung mehr erreicht, wodurch kein antiparalleles Plateau mehr in der $MR(H)$ Kurve zu beobachten ist. Dieser Umstand ist gleichbedeutend mit der Reduktion des Pinning-Feldes H_{ex} , was im Einklang zu den Befunden durch Blomeier et al. [85] steht, die eine im Rückgang von H_{ex} resultierende Verringerung der AFM/FM Grenzflächenkopplung für ein mit 30 keV Ga^+ Ionen bestrahltes NiFe/FeMn Schichtsystem zeigen konnten. Die beobachtete Reduktion der AFM/FM Grenzflächenkopplung reduziert für hohe Ionendosen zusätzlich das GMR Verhältnis, da der maximale Widerstand R_{max} durch das Verschwinden des anti-parallelen Plateaus nicht mehr den maximalen Wert von $R_{\text{max}} = R_{\text{AP}}$ erreicht. Im Anschluss an die Messungen wurden die Sensoren einem erneuten Ausheizschritt bei 170°C für 40 min mit Feld $H = 800$ Oe (entlang der intrinsischen, leichten Richtung angelegt) ausgesetzt, um zu überprüfen, in wie weit der Rückgang im GMR Verhältnis und dem Exchange Bias Feld H_{ex} nach der Bestrahlung von irreversibler Natur sind.

Die resultierenden, normierten $MR(H)$ Kurven sind in Abbildung 19 gezeigt. Für Dosen $D < 1 \cdot 10^{15}/\text{cm}^2$ (Abbildung 19a-e)) stellt sich nach dem erneuten Ausheizschritt ein klares antiparalleles Plateau über einen breiten Feldstärkenbereich ein. Dies bedeutet, dass im Vergleich zu den Messungen direkt nach der Bestrahlung ein Teil der AFM/FM Kopplung wieder hergestellt werden kann. Für diese Dosen ist der Rückgang der Grenzflächenkopplung daher teilweise reversibler Natur. Die beobachtete AFM/FM Kopplung ist für diese Dosen sogar größer als vor Bestrahlung, da für Dosen $D < 5 \cdot 10^{13}/\text{cm}^2$ selbst für $H = 350$ Oe keine Änderung der Magnetisierung der gepinnten Schicht beobachtet werden kann. Ähnliche Effekte für das FeMn System konnten von Fassbender et al. für He^+ Bestrahlung eines FeMn/NiFe Schichtstapels in einem ähnlichen Dosisbereich gefunden werden [73]. Dabei wird angenommen, dass die durch Bestrahlung verursachten Volumendefekte im AFM zur Verringerung der Domänenengröße im AFM führen, was in einer Erhöhung des Exchange Bias Feldes resultiert [86, 87]. Die vor dem erneuten Anlassen beobachtete Reduktion in der AFM/FM Kopplung kann daher auf eine teilweise reversible Zerstörung der magnetischen Ordnung an der AFM/FM Grenzfläche zurückgeführt werden, die sich durch den Ausheizschritt wieder rückgängig machen lässt. Für große Dosen $D > 10^{15}/\text{cm}^2$ (siehe Abbildung 19f)) lässt sich die AFM/FM Kopplung nicht mehr wiederherstellen und wird zum Großteil irreversibel zerstört. Der Rückgang im GMR Verhältnis nach der Bestrahlung lässt sich durch den erneuten Ausheizschritt nicht mehr rückgängig machen (vgl. jeweils in Abbildung 18a)-f) und Abbildung 19a)-f) eingetragene Werte für das GMR Verhältnis) und ist daher zum Großteil irreversibler Natur. Dies ist im Einklang mit der bisherigen Vermutung, dass die irreversible Durchmischung an den Co/Cu Grenzflächen die Hauptursache für den irreversiblen Rückgang im GMR Verhältnis darstellt.

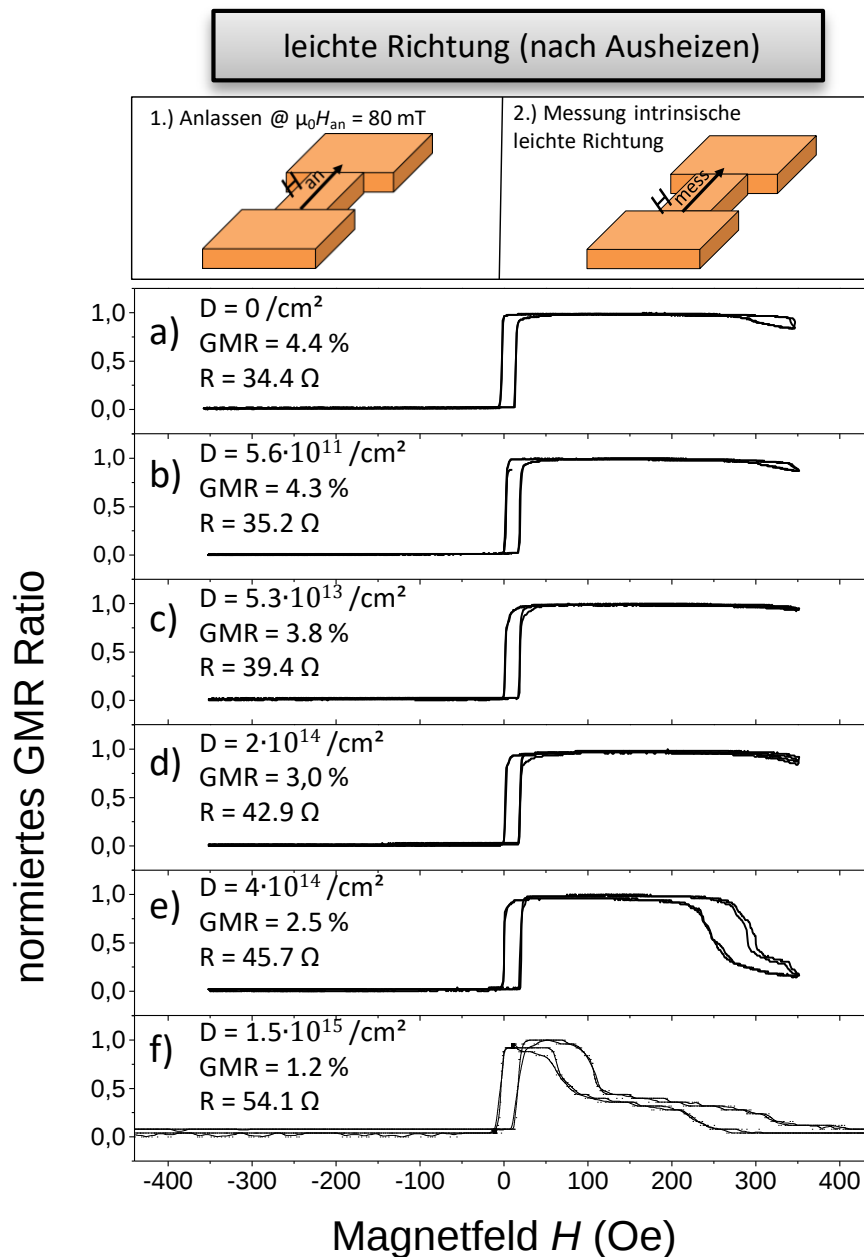


Abbildung 19: Normierte MR Kurven in leichter Richtung nach Bestrahlung mit der in den Abbildungen angegebenen Ionendosis D . Die Sensoren wurden nach der Bestrahlung einem zusätzlichen Field-Annealing mit Feld entlang der intrinsischen, leichten Richtung unterzogen. Das jeweilige GMR Verhältnis (in %) sowie der Widerstand R_p ist entsprechend in den Abbildungen angegeben.

Um die gezeigte Degradation der MR Eigenschaften und der FM/AFM Kopplung mit der eingestrahelten Dosis zu verknüpfen wurde der Ioneneintrag in den Schichtstapel sowie die Durchmischung nahe der Grenzflächen quantitativ mittels SRIM Simulation modelliert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 20 dargestellt. Abbildung 20a) zeigt das simulierte Eindringprofil der Ga Ionen bei einer Energie von 30 kV unter senkrechtem Einfall der Ionen auf den Sensorstapel für eine Anzahl von 10^5 simulierten Ionentrajektorien. Obwohl ein Großteil der Ionen schon innerhalb der Ta und FeMn Schichten zum Stillstand kommt wird, erreicht ein Bruchteil der Ionen die tiefer liegenden Schichten. Dabei werden die für das GMR Verhältnis (Co/Cu/Co) und die AFM/FM Kopplung (FeMn/Co) relevanten

Schichten durchdrungen und Ionen dort implantiert. In Abbildung 20b) wird gezeigt, an welcher Atomspezies des Sensorstapels jeweils ein Streuprozess stattgefunden hat. Dabei werden sowohl Streuprozesse von Ga Ionen an den Atomen des Sensorstapels als auch von Atomen des Sensorstapels untereinander berücksichtigt. Die Simulation zeigt, dass in jeder der für das GMR Verhältnis und die AFM/FM Kopplung relevanten Schichten Streuprozesse an Atomspezies stattfinden, die den jeweilig benachbarten Schichten zuzuordnen sind. Dies ist gleichbedeutend mit einer Durchmischung von benachbarten Schichten des Schichtstapels, die durch den Ga Eintrag im Sensorstapel hervorgerufen wird. Das Ergebnis ist somit im Einklang mit dem verzeichneten Rückgang des GMR Verhältnisses und der beobachteten Reduktion der AFM/FM Kopplung, die in den Experimenten beobachtet werden konnten.

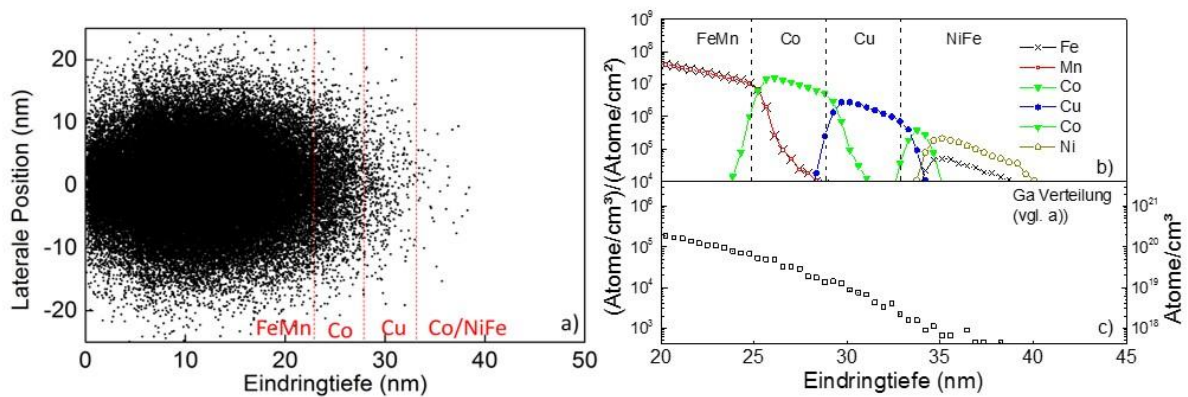


Abbildung 20: a) Mittels SRIM simuliertes Eindringprofil der Ga Ionen bei einer Energie von 30 keV unter senkrechtem Einfall auf die Sensoroberfläche (bei Eindringtiefe = 0). Jeder schwarze Punkt repräsentiert den finalen Implantationsort eines Ga Atoms. In b) ist die atomare Rückstoßverteilung normiert auf die eingestrahlte Ga Dosis gezeigt. Die Farben entsprechen den Atomen, an denen ein Streuprozess stattgefunden hat. Die vertikalen, gestrichelten Linien markieren die Grenzflächen zwischen den Schichten des Schichtstapels. In c) ist das aus a) ermittelte Eindringprofil der Ga Ionen gezeigt, wobei die linke Achse das auf die Dosis normierte Profil und die rechte Achse das Profil bei einer festen Dosis von $10^{15}/\text{cm}^2$ darstellt.

2.4.2 Nanostrukturierung von MR Sensoren mittels Ionenstrahls

Die bisherigen Ergebnisse demonstrieren den direkten Effekt von Ionenbestrahlung der aktiven Fläche für Dosen im Bereich $D < 5 \cdot 10^{15}/\text{cm}^2$. Die Dosis ist dabei so gering, dass noch kein wesentlicher Anteil des Schichtstapels abgetragen wird. Sollen Sensoren durch gezieltes Abtragen von Teilen der aktiven Fläche nanostrukturiert werden, müssen die unerwünschten Teile des Sensors restlos entfernt werden. Dazu muss die minimale Dosis bekannt sein, die zum Abtrag des kompletten Schichtstapels benötigt wird. Diese lässt sich bei bekannter Ionenenergie unter Einbeziehung der atomaren Massen von abzutragendem Sensorstapel und den Ga Ionen und definiertem Eintrittswinkel der Ionen bezüglich der Oberflächennormalen beispielsweise mittels SRIM Simulation vorhersagen [88]. Aufgrund der in den SRIM Simulationen vernachlässigten Kristallinität der einzelnen Schichten des Sensorstapels kann es dabei aber zu Abweichungen zwischen simulierter und tatsächlicher Sputterrate kommen. Zusätzlich kommt es bei Verwendung von Legierungen im Sensor-

stapel, wie sie für die FeMn und NiFe Schicht vorliegen, zu stöchiometrischen Änderungen der Schichten während des Sputterprozesses, die durch die SRIM Simulation nicht abgebildet werden können [89]. Aufgrund dieser Umstände wurde für die Bestimmung der minimal erforderlichen Dosis ein rein experimenteller Ansatz gewählt, der in A2 genauer aufgezeigt wird. Um den Sensor zu nanostrukturieren, wurden jeweils zwei rechteckige Bereiche mit einer Länge von $l = 8 \mu\text{m}$, was der Länge des aktiven Bereichs entspricht, von der aktiven Fläche mit einer Dosis von $D = 1.25 \cdot 10^{17}/\text{cm}^2$ abgetrennt. Die Flächen wurden im „Serial Mode“ geschnitten, bei dem die Schnittbereiche links und rechts der aktiven Sensorfläche nacheinander angefahren werden. Um die Schnittflächen perfekt mit der aktiven Sensorfläche zu überlagern, wurde vor dem Schneiden ein einzelnes Abbild des Sensors mit dem Ionenstrahl mit einer dadurch eingetragenen Dosis von $D = 5 \cdot 10^{11}/\text{cm}^2$ gemacht. Entsprechend den Ergebnissen aus Abbildung 18 wird der Sensor bei dieser Dosis nicht messbar geschädigt. Abbildung 21 zeigt eine REM Aufnahme eines Sensors vor und nach dem FIB Schneiden mit einer verbleibenden Sensorbreite von $w = 200 \text{ nm}$, sowie exemplarische $MR(H)$ Kurven für verschiedene Sensorbreiten, die nach dem Schneiden ermittelt wurden.

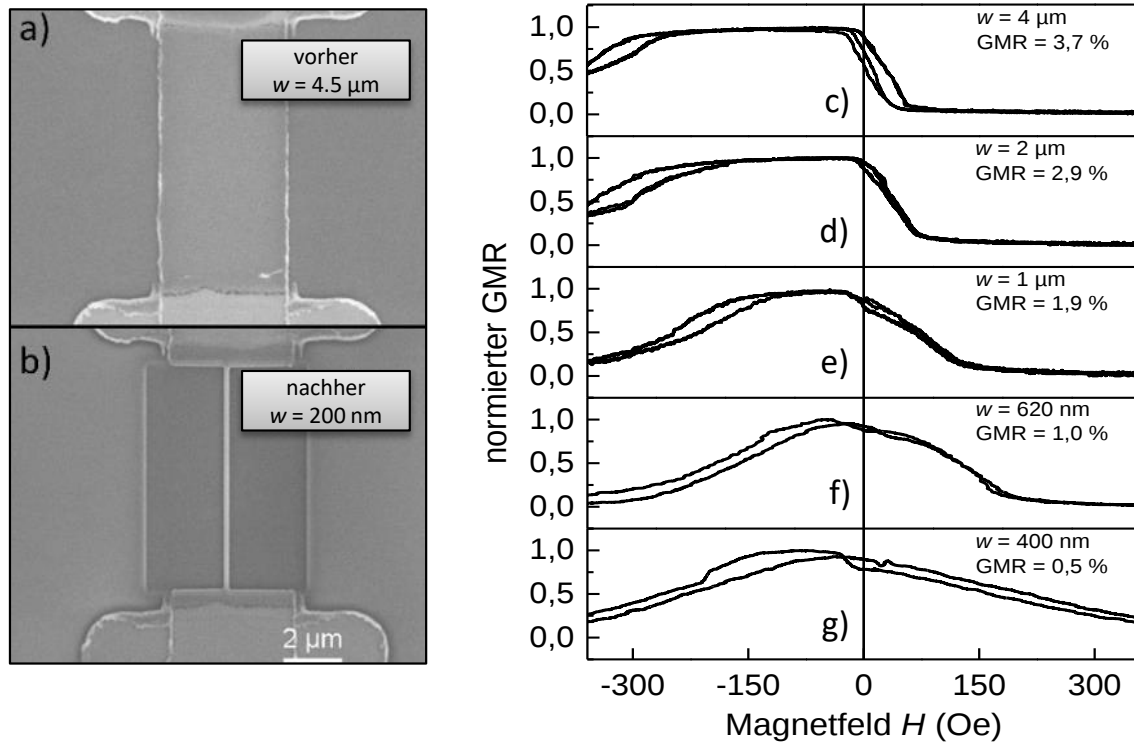


Abbildung 21: GMR Sensor vor (a) und nach (b) Nanostrukturierung mittels FIB Schnitt. Die Breite nach dem Schneiden beträgt $w = 200 \text{ nm}$. In c)-g) sind exemplarisch $GMR(H)$ Kurven von Sensoren mit einer Breite w nach dem Schneiden wie in den Abbildungen angegeben gezeigt. Die Kurven sind zur besseren Vergleichbarkeit auf das jeweilige GMR Verhältnis normiert, das in den Abbildungen mit angegeben ist.

Zur besseren Vergleichbarkeit wurden die MR Kurven auf das jeweils gemessene GMR Verhältnis (jeweils in der Abbildung eingetragen) normiert. Die Ergebnisse zeigen, dass sich durch das Schneiden das GMR Verhältnis mit abnehmender Breite w verringert. Bei einer Breite von $w < 180 \text{ nm}$ konnte kein GMR mehr nachgewiesen werden. Obwohl der

Ionenstrahl nominell eine Fokusbreite von $w = 17$ nm aufweist und der Fokus vor dem eigentlichen Schneideprozess anhand einer Dummy-Struktur auf die optimale Fokussiertheit eingestellt wurde, zeigen Sensoren mit Breiten von $w = 1$ μm schon eine deutliche Abnahme des GMR Ratio auf ca. 40 % des Ausgangswerts vor dem FIB-Schnitt. Ein weiterer Effekt nach dem Schneiden ist die Abnahme der Austauschkopplung an der AFM/FM Grenzfläche, was an der mit steigender Dosis immer weniger starken Ausprägung des anti-parallelen Plateaus R_{AP} mit abnehmender Breite (vgl. beispielsweise Abbildung 21a) mit Abbildung 21f)) zu erkennen ist. Dies reduziert zusätzlich das GMR Ratio, da der maximal mögliche Widerstand R_{AP} durch die fehlende Antiparallelstellung nicht mehr komplett erreicht wird. Die Reduktion des MR Verhältnisses durch das FIB Schneiden konnte in ähnlicher Form schon in anderen Arbeiten beobachtet werden [42, 83]. In diesen Arbeiten konnten analog zu den hier gezeigten Ergebnissen trotz nominell sehr gut fokussiertem Ionenstrahl keine Sensoren im sub- μm Bereich hergestellt werden, ohne den aktiven Bereich zu schädigen. Eine Schädigung durch den Wärmeeintrag von $P_{\text{strahl}} = 30\text{kV} \cdot 30\text{pA} = 0.9$ μW ist hierbei als Ursache auszuschließen, da schon beim typischen Betrieb der Sensoren bei Strömen von $I_{\text{sensor}} = 1$ mA und $U_{\text{sensor}} = 30$ mV eine um Größenordnungen höhere elektrische Leistung von 30 μW im Sensor eingeprägt wird und dieser rein durch den Betrieb über Zeiträume von mehreren Stunden nicht geschädigt wird. Der beobachtete Rückgang von GMR Verhältnis und AFM/FM Austauschkopplung tritt beim Nanostrukturieren in ähnlicher Form zur gezeigten Degradation von ganzflächig bestrahlten Sensoren auf (vgl. Abbildung 18). Dies legt nahe, dass die aktive Fläche während des Schneidens von Ga^+ Ionen bestrahlt wird und diese zur irreversiblen Zerstörung von AFM/FM Kopplung und GMR führen. Die Aussage wird zusätzlich dadurch gestützt, dass auch Sensoren, bei denen die Schnittflächen nicht in direktem Überlapp mit der Sensorfläche, sondern im Abstand von 1-3 μm entfernt von der Sensorfläche gesetzt wurden (hier nicht gezeigt), zu einer Degradation des GMR Verhältnisses nach der Bestrahlung führen. Ähnliche Ergebnisse wurden beispielsweise auch von Katine et al. beobachtet [42]. Die Ionen, die die nach dem Schneiden verbleibenden, aktiven Sensorbereiche schädigen, müssen somit aus dem gut fokussierten Hauptstrahl weitreichend herausgestreut werden. Dieses Phänomen ist ein bei fokussierten Ionenstrahlen typisches Problem und wird meist durch die zwischen den Ionen auftretende Coulomb-Wechselwirkung erklärt, was auch als Boersch Effekt bezeichnet wird [90]. Im Gegensatz zu den Elektronen im fokussierten Elektronenstrahl weisen die Ionen bedingt durch ihre um Größenordnungen höhere Masse bei gleicher Beschleunigungsspannung eine deutlich niedrigere Geschwindigkeit im Strahl auf. Durch thermische Fluktuation in Verbindung mit Coulomb-Wechselwirkung der Ionen untereinander kommt es zu einer deutlichen Aufweitung des Ionenstrahlprofils. Das Hauptstrahlprofil kann dabei gut durch ein Gaußprofil mit einer Halbwertsbreite im Bereich von 10-20 nm genähert werden. Um die breiteren Ausläufer des Strahls zu beschreiben bedient man sich der Holtsmarksverteilung, die

bei zunehmendem Abstand vom Strahlfokus deutlich schwächer im Vergleich zum Gaußprofil abfällt [91, 92].

Experimentell kann der Ga Eintrag in die Sensoren nahe der Schnittkante mittels energie-dispersiver Röntgenanalyse (EDX) im Rasterelektronenmikroskop ermittelt werden. Da die Sensoren auf einem dicken Si/SiO₂ Substrat hergestellt wurden, kann durch die ausgedehnte Anregungsbirne des fokussierten Elektronenstrahls keine hohe Ortsauflösung erreicht werden. Dies lässt sich umgehen, indem der Sensorstapel auf einem gedünnten Si₃N₄ Membranträger aufgebracht wird. Zunächst wird hierzu ein dem Sensoraufbau ähnlicher Schichtstapel bestehend aus NiFe[10]/Co[8]/FeMn[25] auf der 30 nm dünnen Membran abgeschieden. Auf Deposition der Ta Schichten wird hier bewusst verzichtet, da sich bei der Messung mittels EDX die Spektrallinien von Ta (L-Linien) und Ga (K-Linien) überlagern und die Bestimmung der Ga Konzentration dadurch verfälscht wird. Bei der quantitativen Interpretation von EDX Spektren von Dünnschichten kann es durch das im Vergleich zu Bulk-Proben geringere Röntgen-Anregungsvolumen zu Fehlern kommen. Prinzipiell erfordert eine korrekte Messung eine Korrektur der Messdaten [93]. Dies wird üblicherweise mit Kalibrationsstandards (Bulk-Proben aus den Reinelementen, die detektiert werden sollen) bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen gemacht und mit den an der Dünnschichtprobe gemessenen Spektren verrechnet. Für die in der Arbeit vorgestellten Daten wurde aufgrund von nicht vorhandenen Referenzproben eine alternative Methode gewählt, deren Ergebnisse im Anhang A2 dargestellt sind. Abbildung 22 beschreibt anschaulich ein Experiment zur Bestimmung der lokal neben der Schnittfläche eingetragenen Ga Konzentration.

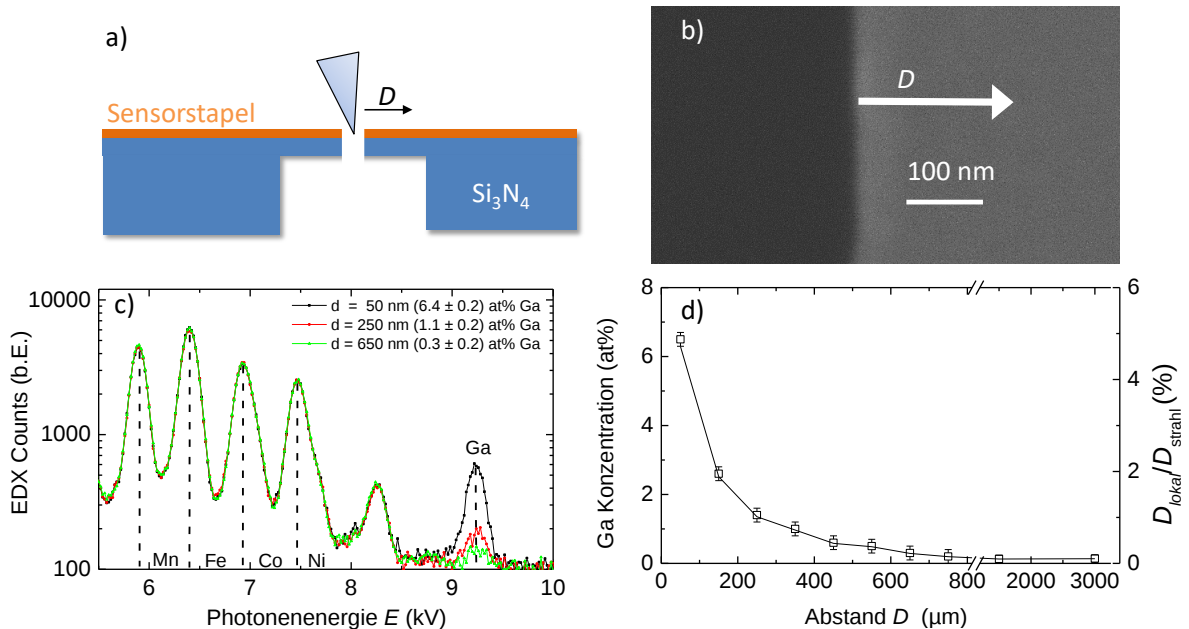


Abbildung 22: Schematische Darstellung des Schneidens von Sensorstapel und Trägermembran (Si₃N₄) (a)). In b) ist eine REM Aufnahme der Schnittkante gezeigt. Abbildung c) zeigt exemplarische EDX Spektren bei verschiedenen Abständen zur Schnittkante. Die aus c) ermittelte Ga Konzentration bezüglich der im Schichtstapel verwendeten Materialien (Co, Ni, Fe, Mn) ist in d) gezeigt. Die rechte Achse bezeichnet die in Bezug auf $D_{\text{strahl}} = 3.8 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2$ eingetragene Ga Dosis, die entsprechend der in Anhang A2 gezeigten Kalibration berechnet wurde.

Dazu wurde, wie in Abbildung 22a) gezeigt, in einem Bereich der Sensorstapel und die 30 nm dicke Si_3N_4 Membran mit einer Dosis $D = D_{\text{strahl}} \approx 3.8 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2$ „restlos“ abgetragen. Eine entsprechende REM Aufnahme des Bereichs ist in Abbildung 22b) als dunkler Bereich gezeigt. Anschließend wurden mehrere EDX Spektren bei verschiedenen Abständen d zur Schnittkante von $d = 50$ nm bis $d = 3$ μm vermessen und die entsprechende Ga Konzentration in Bezug auf die EDX Signale der im Schichtstapel verwendeten Elemente (Co, Ni, Fe, Mn) ermittelt. Die Spektren zeigen, dass beispielsweise im Abstand von 150 nm eine Ga Konzentration von $2.5 \text{ at\%} \pm 0.2 \text{ at\%}$ gemessen werden kann. Dies kann mittels der im Anhang A2 beschriebenen Kalibration zu einer eingetragenen Dosis von $6.7 \cdot 10^{15} / \text{cm}^2$ umgerechnet werden, was einem Anteil von 1.8% der vom Hauptstrahl implantierten Dosis D_{strahl} entspricht. Bei einem Abstand von $d = 300$ nm lassen sich noch ca. $0.8 \% \pm 0.2 \%$ der vom Strahl eingepprägten Dosis nachweisen. Überträgt man die Ergebnisse auf die vorherig gezeigten Experimente zur Nanostrukturierung von GMR Sensoren (für die $D_{\text{strahl}} = 1.25 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2$ gilt) bedeutet dies, dass beispielsweise für einen Sensor mit einer Breite von $w = 600$ nm während des Schneidens eine Dosis von $> 2 \cdot 0.8\% \cdot 1.25 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2 = 2 \cdot 10^{15} / \text{cm}^2$ implantiert wird. Dies führt entsprechend den in Abbildung 17 gezeigten Ergebnissen zu einem Rückgang des GMR Verhältnisses um $\sim 80\%$, was den beobachteten Ergebnissen zum Rückgang des GMR nach der Nanostrukturierung entspricht. Sensoren mit einer Breite von $w = 100$ nm werden entsprechend den Ergebnissen aus Abbildung 22 mit $> 2 \cdot 4\% \cdot 1.25 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2 = 1 \cdot 10^{16} / \text{cm}^2$ bestrahlt, was nach den in Abbildung 17 gezeigten Daten die vollständige Zerstörung des GMR bedingt und damit im guten Einklang zu den experimentellen Befunden steht. Die Ergebnisse bestätigen den Verdacht, dass dem gut fokussierten Hauptstrahl eine weitreichende Verteilung von Streuionen überlagert ist. Diese Streuionen schädigen die verbleibende aktive Fläche während des Schneidvorgangs und führen zur irreversiblen Zerstörung der Sensoren nach dem Schneiden. Dieser Umstand erlaubt daher keine Strukturierung der hier vorgestellten GMR Sensoren im sub- μm Bereich ohne die irreversible Zerstörung des GMR Verhältnisses in Kauf zu nehmen.

2.4.3 Verwendung einer Deckschicht zum Schutz der aktiven Sensorfläche vor Bestrahlungsschäden

Um die Schädigung auf ein Minimum zu reduzieren, müssen die verbleibenden Sensorbereiche während des Schneidens vor den Streuionen geschützt werden. Eine Möglichkeit bietet der Einsatz einer Deckschicht, die auf die Sensoren aufgebracht wird. Die Deckschicht soll weder die elektrischen Eigenschaften, noch die magneto-resistiven Eigenschaften des Sensors beeinträchtigen. Aus diesem Grund wurde eine 50 nm dicke Schicht SiO_2 zum Schutz der Sensoren gewählt. Diese wurde direkt nach der Herstellung der Sensoren mittels Ionenstrahlputtern auf die Sensoren abgeschieden, das in [94] genauer beschrieben ist. Die Kontaktflächen der Leiterbahnen wurden während des Abscheidens der

SiO₂ Schicht mit einer Schattenmaske aus Aluminium abgedeckt, so dass die Sensoren nach wie vor elektrisch ankontaktiert werden konnten. Die Sensoren zeigten wie gewünscht keine Änderung des elektrischen und magneto-resistiven Verhaltens nach der Abscheidung der SiO₂ Schicht. Abbildung 23 zeigt die mittels SRIM Simulation ermittelte Ga Verteilung im Fall von Sensoren mit (schwarz) und ohne (rot) 50 nm dicke SiO₂ Deckschicht unter senkrechtem Einfall der Ga Ionen bei einer Energie von 30 keV.

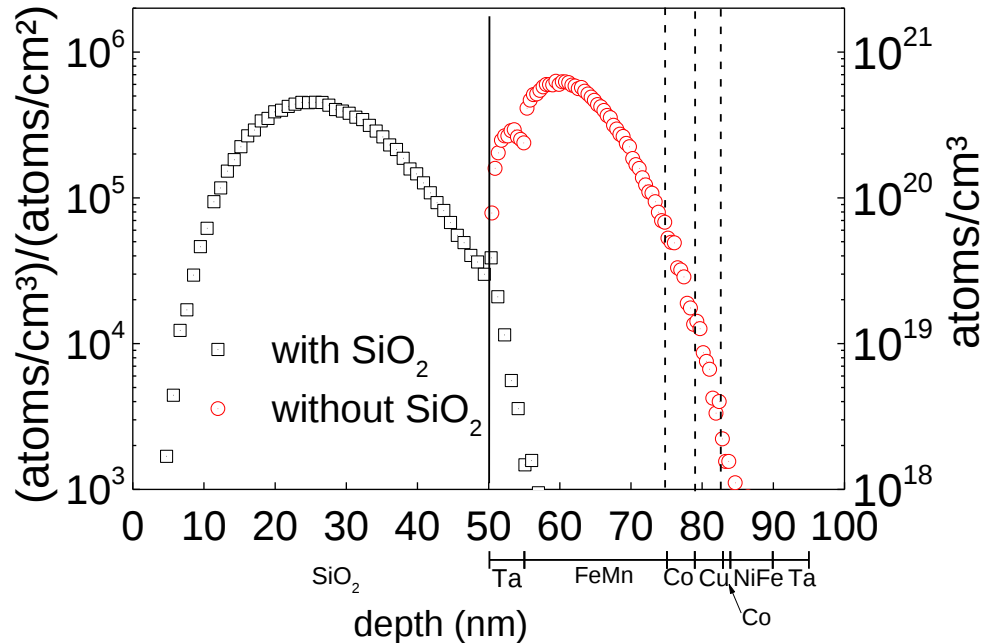


Abbildung 23: Simuliertes Ga Eindringprofil im Vergleich mit (schwarze Quadrate) und ohne (rote Kreise) 50 nm dicke SiO₂ Deckschicht auf dem Sensor. Im Fall des durch die SiO₂ Schicht abgedeckten Schichtstapels treffen die Ionen bei $x = 0$ auf die Oberfläche, während im Falle des ungeschützten Sensors die Ionen bei $x = 50$ nm auf die Oberfläche treffen. Die vertikalen, gestrichelten Linien markieren die für den GMR Effekt (Co/Cu/Co) und das Exchange Bias Feld (FeMn/Co) relevanten Grenzflächen. Die linke Achse zeigt das auf die Dosis normierte Ga Profil während die rechte Achse bei einer festen Dosis von $10^{15}/\text{cm}^2$ berechnet wurde.

Das Ergebnis zeigt zum einen, dass ein Großteil der Ionen ($> 99\%$) den aktiven Sensorbereich bei Verwendung der SiO₂ Deckschicht nicht mehr erreicht, sondern schon zuvor in der SiO₂ Schicht implantiert wird. Dies bedeutet, dass maximal 1% der Ionen, die auf den durch SiO₂ abgedeckten Sensor treffen, diesen schädigen können. Zusätzlich verlieren die den Sensor erreichenden Ionen beim Durchgang durch die SiO₂ Schicht einen Großteil ihrer kinetischen Energie und dringen deshalb nur wenige nm in den Sensor ein. Die Deckschicht sollte daher zu einer deutlichen Reduktion der Strahlenschädigung führen. Für erste Tests (hier nicht gezeigt) wurden die durch die 50 nm SiO₂ Schicht geschützten Sensoren mit hohen Ionendosen von $D_{\text{ion}} = 1\text{-}3 \cdot 10^{16} / \text{cm}^2$ bestrahlt, für die ohne die Deckschicht eine komplette Zerstörung des GMR Verhältnisses und der AFM/FM Grenzflächenkopplung zu erwarten ist. Nach der Bestrahlung konnte nur ein minimaler Rückgang des GMR Verhältnisses $< 5\%$ gegenüber dem Ausgangswert verzeichnet werden, was im Einklang mit der Vorhersage aus der SRIM Simulation steht.

Im Anschluss an diese Vorversuche wurden mittels 50 nm SiO₂ passivierte Sensoren zu

verschiedenen Breiten w geschnitten. Um sowohl die SiO_2 Deckschicht als auch den Sensor restlos abzutragen wurde hierbei eine Dosis von $D_{\text{ion}} = 2.75 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2$ für alle Sensoren verwendet. Abbildung 24 zeigt den elektrischen Widerstand der Sensoren nach dem Schneiden mittels FIB in Abhängigkeit der Sensorbreite w . Zum Vergleich sind die Werte für Sensoren mit (schwarz) und ohne (rot) SiO_2 Deckschicht eingetragen. Wie aus der durch die Verringerung der Sensorbreite w bedingten Verringerung des stromdurchflossenen Sensorquerschnitts zu erwarten, nimmt der elektrische Widerstand mit geringer werdender Sensorbreite w kontinuierlich zu. Der Widerstand für Sensoren ohne Deckschicht (rot) liegt für alle gezeigten Sensorbreiten stets über den Messwerten für Sensoren mit der Deckschicht aus 50 nm SiO_2 . Dies lässt sich dadurch verstehen, dass bei Sensoren ohne die Deckschicht (rot) beim Schneiden Ionen in die aktive Fläche eingetragen werden, was entsprechend den in Abbildung 17 gezeigten Ergebnissen den Widerstand zusätzlich erhöht. Der relative Unterschied der Widerstände der abgedeckten und ungeschützten Sensoren nimmt mit kleiner werdender Sensorbreite zu, da für kleinere Sensorbreiten w gemäß den in Abbildung 22 gezeigten Ergebnissen mehr Ga in die verbleibende, aktive Fläche eingetragen wird. Für Sensoren mit SiO_2 Schicht kann in erster Näherung, wie in den Simulationen und Messungen gezeigt, von einer vernachlässigbaren Schädigung durch die Streuionen ausgegangen werden. Dadurch kann ein einfaches, geometrisches Modell zur Beschreibung der Widerstände in Abhängigkeit der Sensorgeometrie erstellt werden, das in Abbildung 24b) schematisch dargestellt ist. Dabei wird davon ausgegangen, dass es durch Randeffekte, die beim Schneiden auftreten, zu einer Reduktion der elektrisch leitfähigen Sensorbreite um den Betrag einer Randschicht $w_0/2$ kommt. Der reziproke Widerstand R_s des Sensors mit Länge l und Schichtwiderstand R_{sheet} lässt sich nach Abziehen des als von der Sensorbreite w unabhängig angenommenen Kontaktwiderstands R_c schreiben zu $R_s = R_{\text{sheet}} \cdot l \cdot (w - 2w_0/2)^{-1} + R_c$. Daraus ergibt sich für den um den Kontaktwiderstand reduzierten Leitwert des Sensors folgender Zusammenhang:

$$(R_s - R_c)^{-1} = \frac{(w - w_0)}{R_{\text{sheet}} l} \quad (10)$$

Für die in Abbildung 24 gezeigte Serie von Sensoren ergibt sich aus der Anpassung der Messdaten an Gleichung (10) ein Schichtwiderstand von $R_{\text{sheet}} = 13.5 \pm 0.1 \, \Omega$, sowie eine Breitenreduktion $w_0 = 74 \, \text{nm} \pm 4 \, \text{nm}$ unter Annahme eines Kontaktwiderstands von $R_c = 6 \, \Omega$.

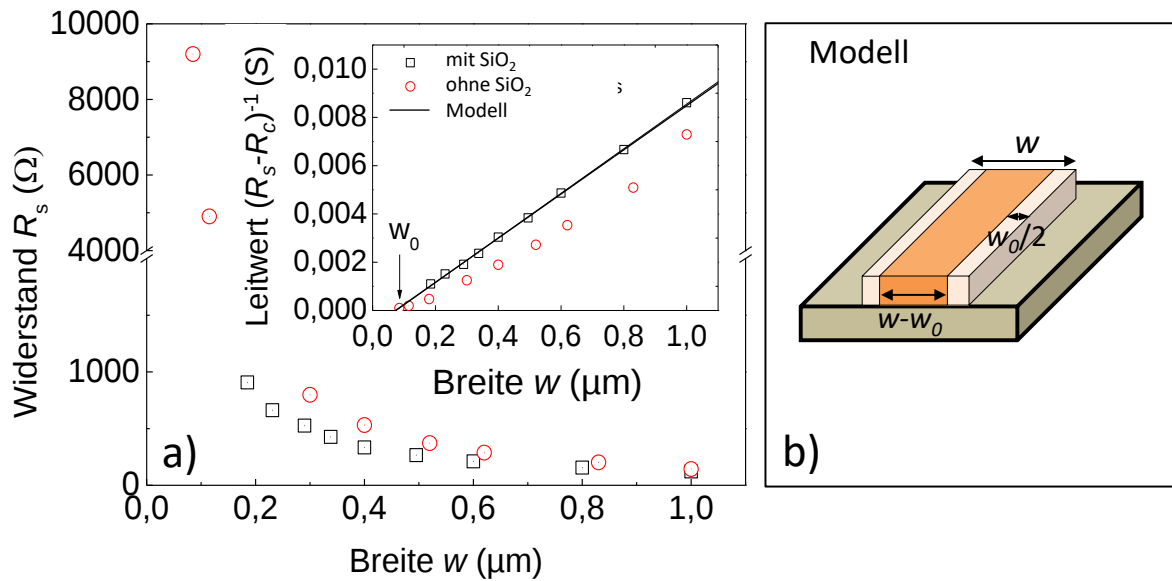


Abbildung 24a) Elektrischer Widerstand der GMR Sensoren nach dem FIB Schnitt in Abhängigkeit der Sensorbreite w nach dem Schneiden. Alle Sensoren haben eine Länge von $l = 8 \mu\text{m}$. Die roten Kreise zeigen Sensoren, die ohne Schutzschicht hergestellt wurden. Die schwarzen Quadrate zeigen Sensoren, die mit einer 50 nm SiO_2 Deckschicht abgedeckt wurden. Die in a) eingefügte Abbildung zeigt den reziproken, um den Kontaktwiderstand von $R_c = 6 \Omega$ korrigierten Leitwert der Sensoren im Vergleich. Die durchgezogene Linie stellt einen Modellfit (siehe Abbildung 24b) und Beschreibung im Haupttext) nach Gleichung (10) dar; aus dem ein Parameter von $w_0 = 74 \pm 4 \text{ nm}$, sowie ein Schichtwiderstand $R_{\text{sheet}} = 13.5 \Omega \pm 0.1 \Omega$ extrahiert werden kann.

Abbildung 25 zeigt Querschnittsaufnahmen von Sensoren nach dem FIB Schnitt. In Abbildung a) ist schematisch das Vorgehen zur Präparation eines Querschnitts mittels FIB gezeigt. Zunächst wurde der Sensor mit einer Länge von $l = 8 \mu\text{m}$ und einer definierten Breite von $w = 100 \text{ nm} - 400 \text{ nm}$ mittels des oben beschriebenen Verfahrens herausgeschnitten. Anschließend wurden an zwei Stellen (weiße Pfeile in Abbildung 25b)) senkrecht zur langen Achse des Sensors zwei Flächen herausgeschnitten, die den Sensor im Querschnitt freilegen. Bei einer Breite von $w = 400 \text{ nm}$ nach dem Schneiden (Abbildung 25c)) erkennt man an den Kanten des Sensors nach dem Schnitt eine Abrundung die auf die Fokusbreite von ca. $w = 17 \text{ nm}$ des Primärionenstrahls zurückzuführen ist. Dies führt dazu, dass bei einer verbleibenden Breite von $w = 100 \text{ nm}$ (Abbildung 25d)) große Anteile der aktiven Sensorfläche verrundet sind, was die stromführende Querschnittsfläche im Vergleich zu einer perfekten, vertikalen Kante verringert. Zusätzlich wird in den abgerundeten Bereichen die SiO_2 Schicht teilweise abgetragen. Dadurch können die Ionen in diesem Bereich in den Sensorstapel vordringen, weshalb in den Randbereichen eine direkte Beeinflussung des Sensorstapels durch den Primärionenstrahl zu erwarten ist. Bei einer Breite von $w = 100 \text{ nm}$ (Abbildung 25d)) ist oberhalb der SiO_2 Schicht ein zusätzlicher (heller) Bereich zu erkennen, der wahrscheinlich auf während des Millings redeponiertes Material zurückzuführen ist. Da dieses noch durch die verbleibende Schicht aus SiO_2 vom Sensor abgetrennt ist, sollte das redeponierte Material keinen Einfluss auf die elektrischen sowie magneto-resistiven Eigenschaften der Sensoren haben.

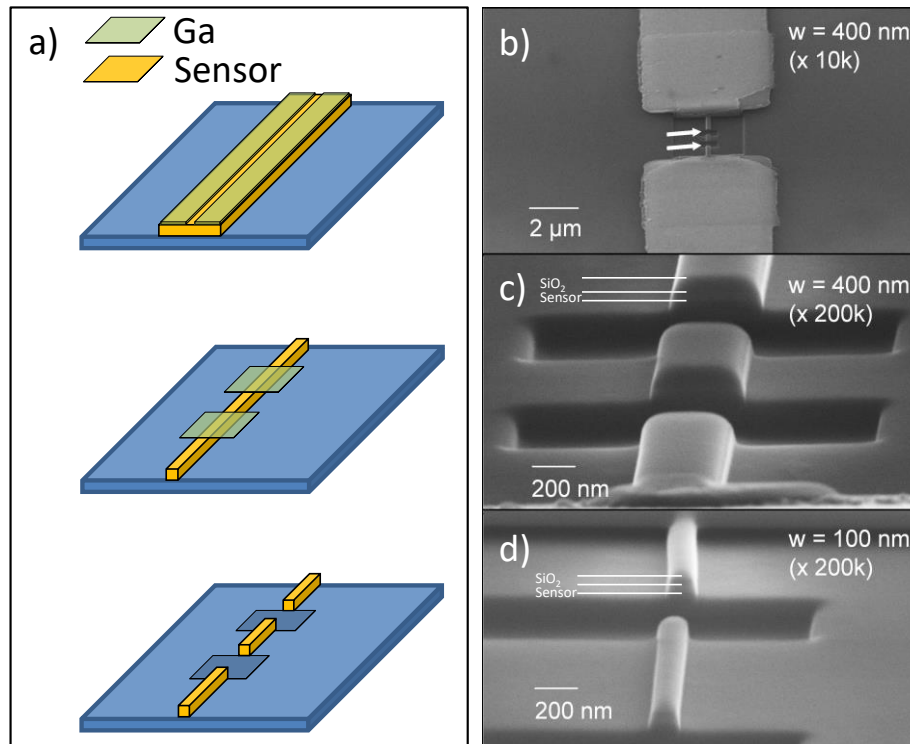


Abbildung 25: a) Schematische Darstellung zur Erzeugung eines Querschnitts mittels FIB. REM Aufnahme des Querschnitts eines Sensors mit $w = 400 \text{ nm}$ (b) und c)) und $w = 100 \text{ nm}$ (d)) nach dem FIB Schnitt. Die jeweilige Vergrößerung ist im Bild angegeben. Die weißen Pfeile im oberen Bild markieren die Flächen, an denen durch einen zweiten Schnitt der Querschnitt des Sensors freigelegt wurde. Die eingetragenen Bereiche in Abbildung c) und d) sind die aus dem Kontrast abschätzbaren Bereiche aus Sensor und abdeckender SiO₂ Schicht.

Zusätzlich werden, wie in Abbildung 20a) gezeigt, die Ionen von der Schnittkante seitwärts in den Sensor gestreut. Hierbei dringen die Ionen bis zu 20 nm seitwärts in den Sensorstapel ein, was die nach dem Schneiden verbleibenden Randbereiche zusätzlich schädigt. Dieser Effekt stellt in Verbindung mit der in den REM Aufnahmen sichtbaren Kantenabrundung eine Begründung für die in den elektrischen Messungen beobachtete Breitenreduktion w_0 dar. Die nach dem Zuschneiden gemessenen GMR Verhältnisse sind in Abbildung 26a) mit und ohne SiO₂ Abdeckung der Sensoren vergleichend dargestellt. Sensoren, die ohne zusätzliche SiO₂ Abdeckung zugeschnitten wurden, zeigen schon für mehrere μm Breite w einen Rückgang des GMR Verhältnisses. Für niedrigere Sensorbreiten nimmt das GMR Verhältnis weiter ab, bis bei einer Breite von $w \approx 200 \text{ nm}$ kein messbarer GMR mehr vorhanden ist. Werden die Sensoren mit der zusätzlichen Deckschicht von 50 nm SiO₂ vor dem Schneiden abgedeckt, so zeigt sich das GMR Ratio für Sensorbreiten $w > 300 \text{ nm}$ nahezu unverändert. Erst für Breiten von $w < 300 \text{ nm}$ ergibt sich ein Rückgang des GMR Verhältnisses, das für $w = 100 \text{ nm}$ komplett verschwindet. Das Ergebnis bestätigt erneut die These, dass die Sensordegradation ohne die zusätzliche Deckschicht vor allem durch die Streuionen zustande kommt. Diese können bei vorhandener SiO₂ Deckschicht den aktiven Sensorbereich zum Großteil nicht mehr erreichen. Die bei geschützten Sensoren für Breiten $w < 300 \text{ nm}$ beobachtete Degradation kann zum einen durch die endliche Fokusbreite des Ionenstrahls ($w_{\text{FWHM}} \sim 17 \text{ nm}$) verursacht werden, wie in den in Abbildung 25 gezeigten Querschnitten zu sehen ist. Zum anderen werden die Ionen nahe

der Schnittkante bis zu 20 nm ins Sensorvolumen gestreut (vgl. hierzu Abbildung 20). Entsprechend den hier gezeigten Ergebnissen stellt die Breite von $w = 100$ nm somit die untere Grenze für die Herstellung von FIB geschnittenen Sensoren dar. Sollen noch geringere Sensordimensionen realisiert werden, könnten zwei Wege verfolgt werden. Zum einen kann durch das Herabsetzen des Millingstroms auf unter 30 pA ein besser fokussierter Strahl erzielt werden ($w_{\text{FWHM}} \sim 8$ nm @ 1.5 pA), was aber deutlich längere Präparationszeiten mit sich ziehen würde. Zum anderen kann durch Herabsetzen der Beschleunigungsspannung auf < 30 kV die Streuung der Ionen senkrecht zur Schnittkante minimiert werden. Dieser Schritt hätte jedoch eine schlechtere Fokussierbarkeit des Ionenstrahls zur Folge, was sich wiederum negativ auswirken würde. Abbildung 26b) zeigt die nach dem FIB Schnittaufgenommenen GMR Kurven mit externem Feld entlang der intrinsischen, leichten Richtung.

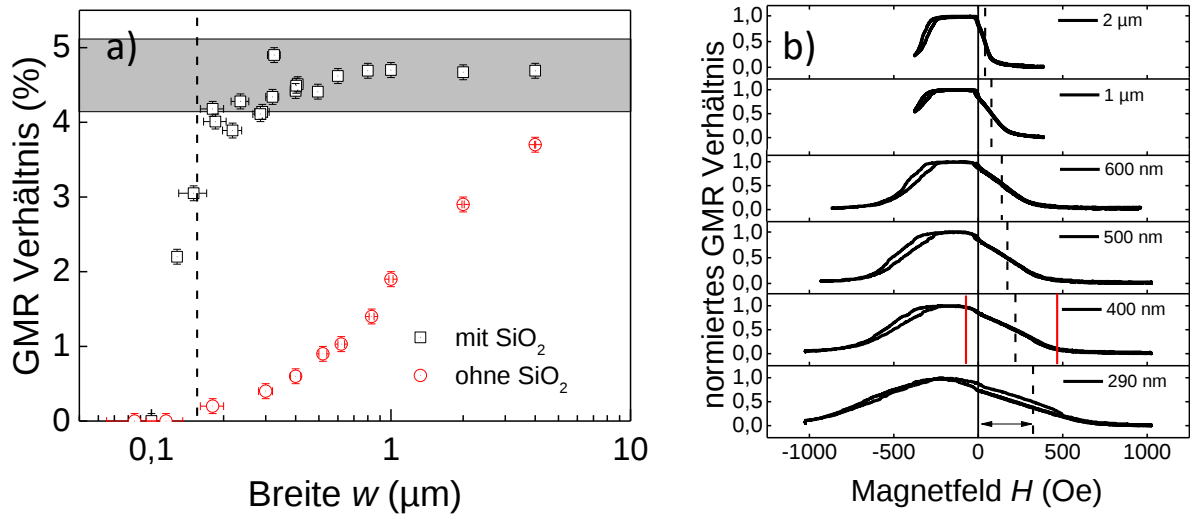


Abbildung 26: a) GMR Verhältnis von Sensoren mit Breite w nach dem FIB Schnitt für Sensoren mit (schwarze Quadrate) und ohne (rote Kreise) SiO_2 Deckschicht während des Schneidens. Die vertikale, gestrichelte Linie markiert eine Breite von $w = 150$ nm. Der graue Bereich markiert den Bereich des messbaren GMR Verhältnisses vor dem Schneiden. In b) sind MR Kurven (normiert auf das jeweilige MR Verhältnis nach dem Schneiden) für verschiedene, in den Abbildungen eingetragene Breiten w nach dem Schneiden gezeigt. Die vertikalen, gestrichelten Linien zeigen die Feldverschiebung H_{shift} des Magnetisierungsvorgangs der freien Schicht in den $\text{MR}(H)$ Kurven. Die roten, durchgezogenen Linien markieren exemplarisch für eine Breite von $w = 400$ nm die Sättigungsfelder bei einer linearen Extrapolation der $R(H)$ Kurve in diesem Bereich.

Die Kurven wurden zur besseren Vergleichbarkeit jeweils auf das erzielte GMR Verhältnis normiert. Da dieses für alle gezeigten $\text{MR}(H)$ Kurven nahezu unverändert zum Zustand vor dem Schneiden im Bereich 4 - 5 % lag, wird es in der Abbildung nicht ausgewiesen. Das Ummagnetisierungsverhalten zeigt nach dem Schneiden zwei charakteristische Änderungen gegenüber nicht geschnittenen Sensoren auf. Zum einen ergibt sich für geringer werdende Sensorbreite eine Erhöhung der Sättigungsfelder H_{sat} , die exemplarisch für die Sensorbreite mit $w = 400$ nm eingetragen sind (rote, vertikale Linien). Zum anderen weist das Magnetisierungsverhalten der freien Schicht eine Feldverschiebung H_{shift} (markiert durch die vertikalen gestrichelten Linien), die mit abnehmender Sensorbreite w zunimmt.

Beide Effekte können als Konsequenz der nach dem FIB Schneiden geringeren Sensorbreite w interpretiert werden und sollen im Folgenden quantitativ modelliert werden. Abbildung 27 zeigt eine Modellskizze zur Einbeziehung der Dipol-Dipol-Wechselwirkung von freier und gepinnter Schicht und zur Ableitung der breitenabhängigen Sättigungsfeldstärke H_{sat} im Rahmen einer Erweiterung des in Kapitel 2.2.3 eingeführten Stoner-Wohlfarth Modells.

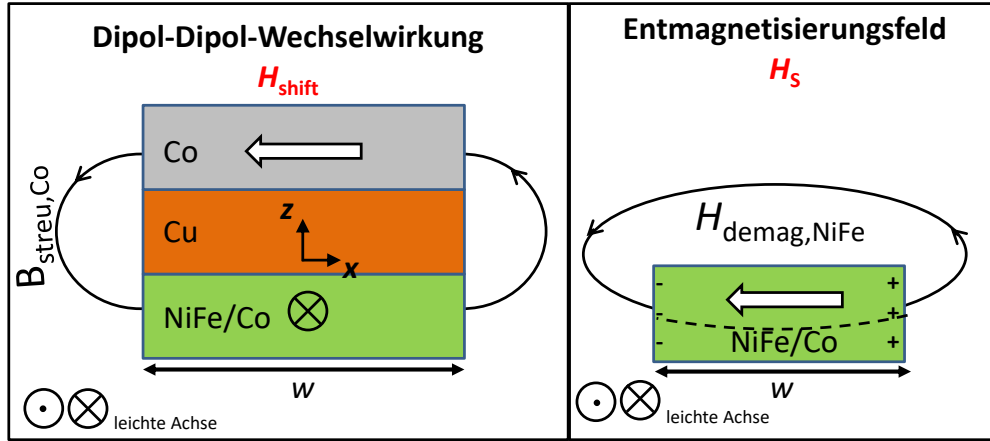


Abbildung 27: Modellskizze zur Berechnung der Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen gepinnter (Co) und freier (NiFe/Co) Schicht zur Bestimmung der Feldverschiebung H_{shift} (links) und dem Entmagnetisierungsfeld $H_{\text{demag,NiFe}}$ zur Bestimmung des Sättigungsfeldes H_{sat} (rechts). Die weißen Pfeile entsprechen den Magnetisierungsrichtungen in der jeweiligen Schicht.

Basierend auf der dargestellten Magnetisierungskonfiguration lässt sich die auf das Volumen V der freien NiFe/Co Schicht normierte Gesamtenergie der freien Schicht wie folgt beschreiben:

$$\frac{E}{V} = -\mu_0 M_f H \cos(\theta) + K_u \cos^2(\theta) + \mu_0 M_f H_{\text{shift}} \cos(\theta) + \frac{1}{2} \mu_0 (N_{D,s} - N_{D,l}) M_f^2 \cos^2(\theta) \quad (11)$$

Hierbei ist M_f die Sättigungsmagnetisierung der freien Schicht, K_u die Anisotropieenergiekonstante der freien Schicht, H_{shift} das von der gepinnten auf die freie Schicht wirkende Verschiebungsfeld, $N_{D,s}$ und $N_{D,l}$ sind die Entmagnetisierungsfaktoren entlang der kurzen bzw. langen Sensorachse in Schichtebene, sowie θ der Winkel zwischen Magnetisierung der freien Schicht und dem extern angelegten Feld H . Aus der Energiemodellierung erhält man nach Ableiten nach θ die normierte Magnetisierung M/M_f als Funktion des angelegten Feldes (Rechnung siehe [30]):

$$\frac{M}{M_f} = \frac{\mu_0 M_f (H - H_{\text{shift}})}{2K_u + \mu_0 (N_{D,s} - N_{D,l}) M_f^2} \quad (12)$$

Die Verschiebung H_{shift} der Magnetisierungskurve ergibt sich demnach aus dem auf die

freie Schicht wirksamen Streufeld der gepinnten Schicht. Um einen quantitativen Vergleich zu den experimentell beobachteten Daten zu ermöglichen, muss das Verschiebungsfeld aus der Streufeldverteilung der gepinnten Schicht B_{streu} berechnet werden. Hierzu können verschiedene Ansätze verwendet werden. Neben in der Literatur abgeleiteten Näherungslösungen für die Feldverschiebung [95, 96], existiert für rechteckige Prismen eine vollständige, analytische Lösung für das Streufeld im Eindomänenzustand [97]. Diese wurde für die vorliegende Arbeit implementiert und ist im Detail zur besseren Übersicht im Anhang A4 dargestellt.

Abbildung 28 zeigt die durch die gepinnte Schicht erzeugte Streufeldverteilung in einer parallel zur x-y Ebene gedachten Schnittebene, die durch den Schwerpunkt der freien Schicht verläuft (siehe Abbildung 28a) für schematische Darstellung). Da für die Berechnung der Feldverschiebung die Komponente des Streufeldes der gepinnten Schicht parallel zur extern angelegten Feldrichtung H_{ext} (hier x) berücksichtigt werden muss, ist nur diese Komponente dargestellt. Durch die im Vergleich zur Schichtdicke der freien NiFe/Co Schicht ($t_{\text{NiFe}} = 7$ nm) großen lateralen Ausmaße der Sensoren mit $l = 8$ μm und $w > 180$ nm ergibt sich für das Streufeld der Co Schicht in geringem Abstand z zum Schwerpunkt der gepinnten Schicht nur eine schwache z Abhängigkeit (hier nicht dargestellt). Aus diesem Grund kann die Berechnung des Streufeldes bei einem festen, vertikalen Abstand z_0 durchgeführt werden, der hier zu $z_0 = 9$ nm gewählt wurde. Da das Streufeld $B_{\text{streu},x}$, das exemplarisch für eine Breite von $w = 500$ nm Abbildung 28b) gezeigt ist, über die aktive Fläche der freien Schicht nicht konstant, sondern hin zu den Schnittkanten bei $x = \pm 250$ nm zunimmt, wird die Feldverschiebung H_{shift} durch Integration über die aktive Fläche A (markiert durch das rote Rechteck in Abbildung 28b)) der NiFe/Co Schicht bestimmt.

$$H_{\text{shift}}(w) = \frac{1}{\mu_0 A_{\text{NiFe/Co}}} \int_{A_{\text{NiFe/Co}}} B_{\text{streu},x}(x, y, z_0) dx dy \quad (13)$$

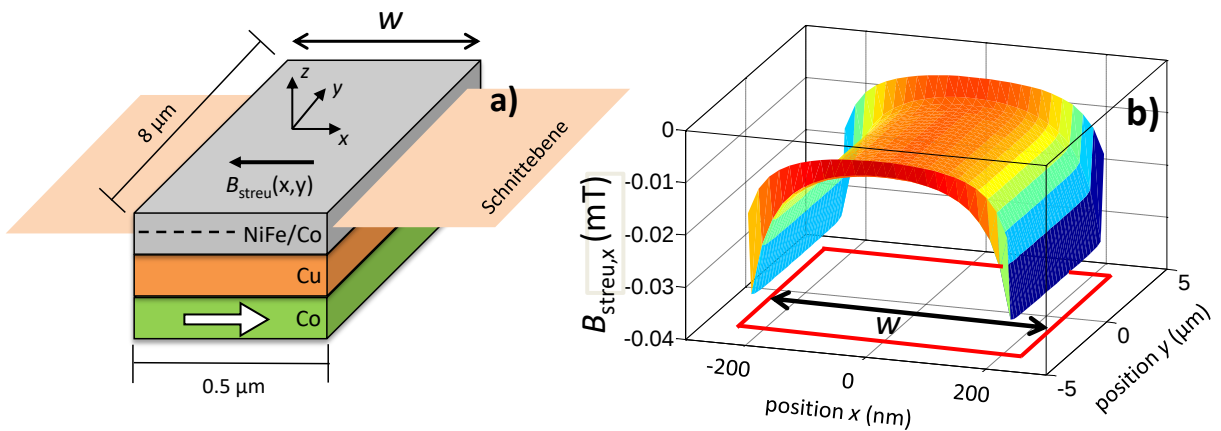


Abbildung 28: a) Schematische Darstellung zur Berechnung der Feldverschiebung H_{shift} durch Integration des Streufeldes $B_{\text{streu}}(x,y)$ der gepinnten Schicht. In b) ist die berechnete Verteilung des Streufeldes in der in a) gezeigten Schnittebene dargestellt. Das rote Rechteck markiert die Ausdehnung der NiFe/Co Schicht. Die Berechnung ist für eine Dicke $d = 4$ nm, sowie eine Sättigungsmagnetisierung von $\mu_0 M_s = 1.8$ T der gepinnten Schicht, sowie einen Abstand von $z_0 = 9$ nm zwischen gepinnter und freier Schicht durchgeführt.

Abbildung 28b) zeigt weiterhin, dass $B_{\text{streu},x}$ eine schwache Abhängigkeit von der Position y zeigt, so dass die Integration für $y = y_0 = 0$ durchgeführt werden kann. Man erhält:

$$H_{\text{shift}}(w, z_0) = \frac{1}{\mu_0 A} \int_A B_{\text{streu},x}(x, y, z_0) dx dy \approx \frac{1}{\mu_0 w} \int_{-w/2}^{w/2} B_{\text{streu},x}(x, y_0, z_0) dx \quad (14)$$

Weiterhin kann die Steigung der normierten $R(H)$ Kurve unter Verwendung der Feldstärke in positiver Sättigung $H_{\text{sat,pos}}$ und negativer Sättigung $H_{\text{sat,neg}}$ beschrieben werden als:

$$S = \frac{1}{(H_{\text{sat,pos}} - H_{\text{sat,neg}})} \quad (15)$$

Unter der Bedingung $M(H_{\text{sat,pos}}) = -M(H_{\text{sat,neg}}) = M_f$ ergibt sich die Steigung unter Verwendung von Gleichung (12) zu:

$$S^{-1} = \frac{4K_u}{\mu_0 M_f} + 2M_f(N_{d,s} - N_{d,l}) \quad (16)$$

Für Sensoren, für die $l \gg w$ gilt, kann der Entmagnetisierungsfaktor $N_{d,l}$ gegenüber $N_{d,s}$ vernachlässigt werden. Man erhält für die reziproke Steigung:

$$S^{-1} = \frac{4K_u}{\mu_0 M_f} + 2M_f N_{d,s} \quad (17)$$

Der erste Summand von Gleichung (17) ist die durch die intrinsische, uniaxiale Anisotropie K_u gegebene Sensitivität des Sensors, während der zweite Summand den Einfluss der magneto-statischen Selbstenergie, bzw. den des Entmagnetisierungsfelds darstellt. Da die freie NiFe Schicht als ferromagnetischer Quader mit einer Länge $l = 8 \mu\text{m}$, einer Höhe $h = 6 \text{ nm}$ und einer variablen Breite w beschrieben werden kann, kann ein analytischer Ausdruck für die Entmagnetisierungsfaktoren $N_{d,s}$ und $N_{d,l}$ gefunden werden, der durch A. Aharoni entsprechend [98] erstmal berechnet wurde. Aufgrund der Länge des Ausdrucks für den Entmagnetisierungsfaktor ist die exakte Berechnungsvorschrift in Anhang A4 dargestellt. Abbildung 29 zeigt experimentell ermittelte Werte für die Feldverschiebung H_{shift} (in a)) und Steigung S (in b)) im Vergleich zum mikromagnetischen Modell berechnet aus Gleichung (14) (H_{shift}) und Gleichung (17) (S^{-1}) mit dem in [98] gegebenen Zusammenhang für den Entmagnetisierungsfaktor $N_{d,s}$. Für beide Größen lässt sich der prinzipielle Verlauf in Abhängigkeit der Breite w gut über das mikromagnetische Modell beschreiben, was eine quantitative Vorhersage des Sensorverhaltens über einen großen Breitenbereich ermöglicht. Aus der Anpassung des Modellfits an die gemessenen Werte

für die Sensitivität in Abbildung 29b) ergibt sich ein Wert von $\mu_0 M_f = 0.97$ T, der in gutem Einklang zu dem erwarteten Wert für die Sättigungsmagnetisierung der verwendeten $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ Schicht [99] steht. Sowohl die Feldverschiebung H_{shift} als auch die Verringerung der Sensitivität S stellen unerwünschte Nebeneffekte der Nanostrukturierung dar; sie lassen sich durch ein erweitertes Sensordesign mit geänderter Abfolge der Schichten im Schichtstapel verringern. Die Feldverschiebung H_{shift} kann im Wesentlichen durch Einsatz eines sogenannten „synthetischen Antiferromagneten“ (SAF) reduziert werden [96]. Hierbei wird die durch den AFM gepinnte Schicht durch einen mittels RKKY Wechselwirkung anti-parallel gekoppelten Schichtstapel aus zwei FM Schichten ersetzt. Die anti-parallele Kopplung reduziert die effektive magnetische Dicke t_{FM} des anti-parallel gekoppelten Schichtstapels durch teilweise Kompensation der anti-parallel ausgerichteten Streufelder [100]. Um der Reduktion der Sensitivität S bei geringer werdender Sensorbreite w entgegenzuwirken, kann ebenfalls das Konzept des synthetischen Antiferromagneten auf die freie Schicht angewendet werden [100]. Die anti-parallele Ausrichtung des als freie Schicht verwendeten Schichtstapels führt zu einer niedrigeren Netto-Magnetisierung $M_{f,\text{eff}}$ was entsprechend Gleichung (17) den Beitrag $2M_f N_{d,s}$ reduziert, wodurch sich die Sensitivität des Sensors erhöht. Basierend auf diesem Konzept konnten Coelho et al. für TMR Sensoren zeigen, dass sich die Sensitivität durch diese Maßnahme für nanostrukturierte TMR Sensoren gegenüber Sensoren, bei denen kein SAF für die freie Schicht verwendet wurde, deutlich verbessern lässt [101].

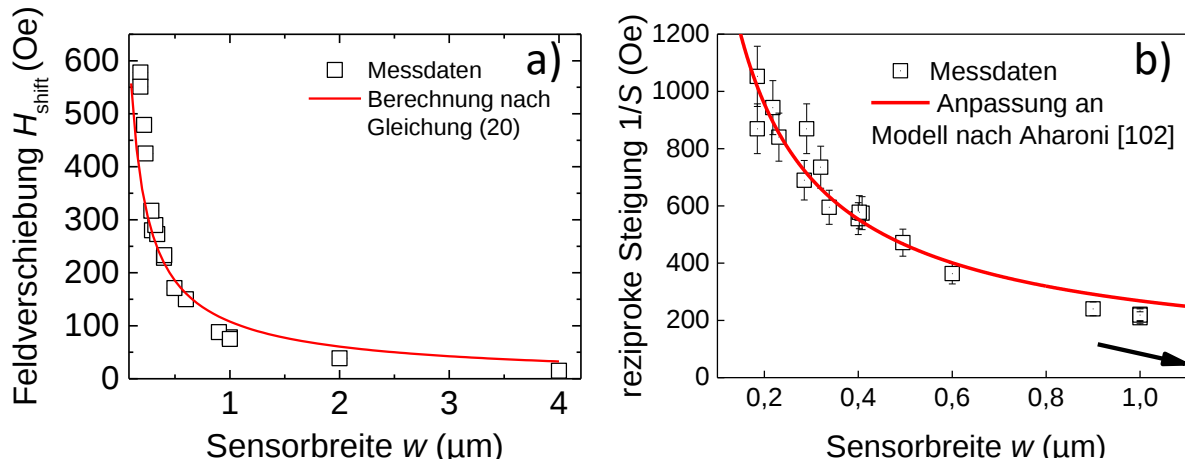


Abbildung 29a): Gemessene Feldverschiebung H_{shift} in Abhängigkeit der Sensorbreite w nach dem FIB Schnitt. Die rote Kurve stellt eine Berechnung des Feldshifts entsprechend Gleichung (14) dar. Die Parameter für die Anpassung betragen $\mu_0 M_s = 1.8$ T, $t_{\text{co}} = 4$ nm, $z_0 = 9$ nm, $l = 8$ μm . Abbildung b) zeigt die reziproke Steigung S^{-1} der normierten $MR(H)$ Kurven für Sensoren mit $w < 1$ μm nach dem FIB Schnitt in Abhängigkeit der Sensorbreite w . Die rote Linie stellt einen Modellfit entsprechend dem in [98] gegebenen Modell dar. Die verwendeten Parameter für die Modellrechnung betragen $t_f = 6$ nm, $K_u = 500$ J/m³. Aus der Anpassung des Modells an die Messdaten ergibt sich ein Wert von $\mu_0 M_f = 0.97$ T. Der schwarze Pfeil markiert die erwartete Sensitivität von $S^{-1} = 4K_u/(\mu_0 M_f)$, die im Grenzfall $w=l$ (bei Verschwinden der Formanisotropie) zu erwarten wäre.

2.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Nano-Strukturierung von GMR Sensoren mittels FIB Technologie untersucht und diskutiert. Die FIB Technologie, bei der die Nano-Strukturierung per direktem Abtrag des Sensormaterials erfolgt, ermöglicht dabei prinzipiell eine durch die Strahlweite des Ionenstrahls bedingte Auflösung von $w_{\text{FWHM}} \approx 20$ nm. Die Ergebnisse der Arbeit zeigen, dass sich jedoch schon bei einer Strukturgröße im Bereich von wenigen μm eine Degradation der GMR Sensoren nach dem FIB-Schneiden feststellen lässt. Die Degradation, die sich in einer Erhöhung des elektrischen Widerstands sowie in einer Reduktion des GMR Verhältnisses bemerkbar macht, lässt sich dabei durch die seitlich aus dem Primärstrahl gestreuten Ionen erklären, die den Sensor während des Schneidens irreversibel schädigen. Der Eintrag dieser Ionen konnte mittels hochauflösender EDX Messung experimentell nachgewiesen werden.

Die Ergebnisse zur Reduktion des GMR Verhältnisses und der Erhöhung des Sensorwiderstands nach Nanostrukturierung sind dabei quantitativ im Einklang mit zuvor durchgeführten Referenzexperimenten, bei denen mikrostrukturierte Sensorstrukturen gezielt ganzflächig unterschiedlichen Ga Ionendosen ausgesetzt wurden. Begleitend zu den Experimenten wurden Simulationen zur Eindringtiefe und der Wechselwirkung der Ga Ionen mit dem Schichtstapel des Sensors mit Hilfe des SRIM Softwarepakets durchgeführt. Die Simulationsergebnisse zeigen, dass die Ionen nach dem Auftreffen auf die Sensoroberfläche bis zu den für den GMR und die AFM/FM Grenzflächenkopplung relevanten Grenzflächen im Sensorstapel vordringen können, wodurch es zur atomaren Durchmischung an den Grenzflächen kommt.

Durch Aufbringen einer 50 nm dünnen SiO_2 Schicht kann ein Großteil der eintreffenden Streuionen bereits in der SiO_2 Schicht gestoppt werden, was die Strahlenschäden im verbleibenden aktiven Bereich des Sensors deutlich reduziert. Durch diese Maßnahme konnten im Rahmen der vorgestellten Arbeit erstmals Sensoren mit einer Breite von $w \approx 300$ nm hergestellt werden, ohne das GMR Verhältnis messbar zu reduzieren. Für den so modifizierten FIB-Prozess ergibt sich für die durchgeführten Experimente eine untere Grenze von $w = 100$ nm, bis zu der ein GMR Effekt nachgewiesen werden kann. Bedingt durch die geringe Breite der Sensoren nach dem Schneiden ändert sich deren magneto-resistives Verhalten. Zum einen kann eine Feldverschiebung H_{shift} der Minor-Loop Kurve des Sensors nachgewiesen werden, die mit abnehmender Sensorbreite w zunimmt. Die Feldverschiebung kann dabei durch die Kopplung des Streufeldes der gepinnten Schicht mit der Magnetisierung der freien Schicht erklärt werden. Zusätzlich erhöht sich durch die verringerte Sensorbreite das zur Sättigung der freien Schicht aufzubringende Feld H_{sat} , wodurch sich die Feldsensitivität S des Sensors mit abnehmender Sensorbreite w verringert. Der Effekt lässt sich durch den mit abnehmender Sensorbreite w zunehmenden Einfluss der Formanisotropie auf das Magnetisierungsverhalten des Sensors erklären. Dieser

Anisotropiebeitrag dominiert für Sensorbreiten von $w < 2 \mu\text{m}$ das Magnetisierungsverhalten der freien Schicht und damit die Sensitivität S des Sensors. Sowohl die Feldverschiebung H_{shift} als auch die Sensitivität S können beide im Bereich $200 \text{ nm} < w < 2 \mu\text{m}$ in einem um den Einfluss der Sensorbreite w erweiterten Stoner-Wohlfarth Modell erklärt werden. Dies ermöglicht eine quantitative Vorhersage des Sensorverhaltens in Abhängigkeit seiner Abmaße nach dem FIB Schneiden.

Die in der Arbeit hergestellten Sensoren erlauben durch den negativen Einfluss der geringen Sensorbreite w auf die Sensitivität des Sensors und die hervorgerufene Feldverschiebung H_{shift} keine empfindliche Messung von Magnetfeldern und damit die Detektion von Partikeln auf der sub- μm Skala. Beide parasitären Effekte können zukünftig durch die Verwendung von synthetischen Antiferromagneten sowohl für freie als auch gepinnte Schicht reduziert werden, wodurch eine hohe Sensorempfindlichkeit selbst bei geringen Sensordimensionen aufrecht erhalten werden kann [101]. Basierend darauf können zukünftig Systeme entwickelt werden, die hohe Feldempfindlichkeit bei gleichzeitig hoher Ortsauflösung erlauben und dadurch den direkten Nachweis von einzelnen sub- μm großen magnetischen Partikeln ermöglichen.

3 Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

3.1 Einleitung – Lab-On-Chip Manipulation von einzelnen Partikeln

Nachdem im vorherigen Kapitel gezeigt wurde, dass GMR Sensoren lithographisch mikrostrukturiert und mittels FIB nanostrukturiert werden können, muss die Frage adressiert werden, wie einzelne Partikel gezielt zum Sensor transportiert werden können. Hierzu gibt es im Bereich Lab-On-Chip zahlreiche etablierte Ansätze. Zum einen gibt es die Möglichkeit, optische Pinzetten zur Manipulation von einzelnen Partikeln zu verwenden [102]. Grundlage dazu stellt ein fokussierter Laser dar, mittels dem transparente Partikel gezielt manipuliert werden können. Diese werden in der Nähe des Laserspots durch das Licht bzw. dessen elektrisches Feld polarisiert und anschließend entlang dem Energiegradienten hin zum Punkt höchster elektrischer Feldstärke, dem Laserfokus gezogen [103]. Diese Manipulationstechnik ist weit etabliert und konnte ebenfalls für (teil)absorbierende Partikel, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, umgesetzt werden [104, 105]. Jedoch ergeben sich für diese Art der Manipulation in Lab-On-Chip Systemen in biologischen Anwendungen einige Nachteile. Zum einen können sich die teil-absorbierenden Partikel durch die starke Fokussierung des Lasers und die sich daraus ergebenden, extrem hohen optischen Leistungsdichten im Bereich $> 1\text{MW}/\text{m}^2$ [106] stark erwärmen [104]. Weiterhin lassen sich optische Fallen zwar in Lab-On-Chip Systeme integrieren, in den meisten Fällen sind jedoch komplexe optische Aufbauten, die mit hohen Kosten verbunden sind, nötig [107]. Einen weiteren Nachteil stellt der geringe Grad an Spezifität der optisch erzeugten Kräfte dar [103], da sich auf die zum Partikel benachbarten, dielektrischen Bereiche optisch erzeugte Kräfte ergeben.

Eine zweite Möglichkeit der Manipulation stellt das Rasterkraftmikroskop dar. Dabei können gezielt Biomoleküle an eine AFM Spitze angebunden werden, was es ermöglicht, definierte Kräfte $> 10\text{ pN}$ auf einzelne Moleküle aufzubringen. Dies erlaubt beispielsweise das Entfalten einzelner Makromoleküle, wodurch deren mechanisches Verhalten vermessen und modelliert werden kann [108]. Eine Schwierigkeit bei solchen Experimenten besteht jedoch oft darin, die spezifische Bindung der AFM Spitze an das zu untersuchende Molekül von einer unspezifischen Bindung der Spitze an die zugrundeliegende Substratoberfläche zu unterscheiden und beide Einflüsse zu trennen. Die Technologie lässt sich weiterhin aufgrund der Größe des AFM Aufbaus und der benötigten Peripherie nur schwer für integrierte Lab-On-Chip-Systeme auf der μm Skala umsetzen und kommt daher eher für spezialisierte Experimente in Frage.

Eine weitere, oft eingesetzte Alternative zu den bisher vorgestellten Verfahren stellt hier die Manipulation mittels magnetischer Feldgradienten dar. Hierbei wird ausgenutzt, dass

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

bei Vorhandensein eines (lokalen) Gradienten im Magnetfeld auf magnetische bzw. magnetisierbare Partikel eine Kraft ausgeübt wird. Abbildung 30 zeigt einige der Literatur entnommene Beispiele für bereits etablierte Konzepte zur magnetischen Manipulation in Lab-On-Chip Systemen.

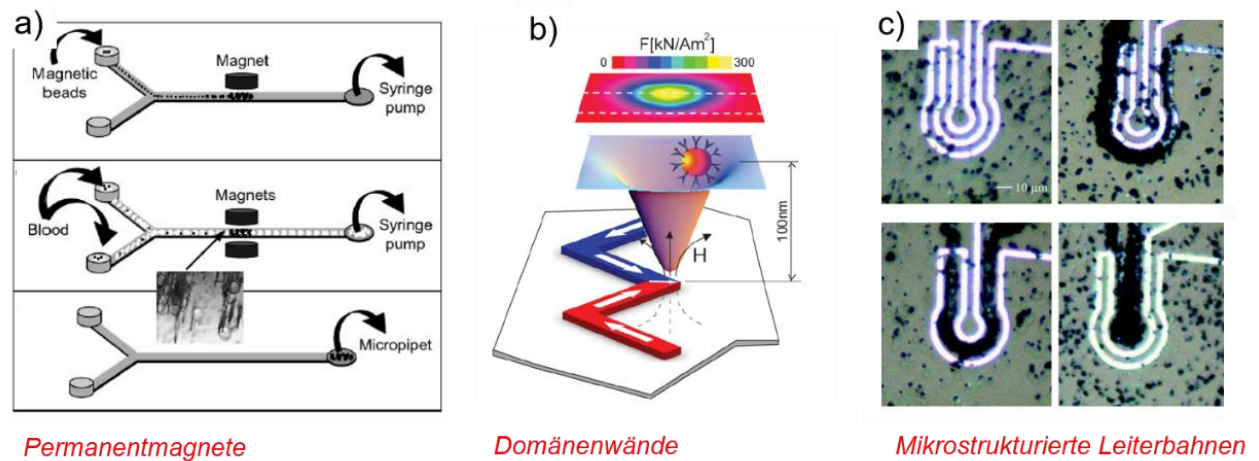


Abbildung 30: Etablierte Konzepte zur Manipulation von magnetischen Partikeln in Lab-On-Chip Anwendung mittels magnetischer Kraftwirkung. Der zur Kraftausübung benötigte Gradient im Magnetfeld wird mittels Permanentmagneten [109] (a)), lokal erzeugten Domänenwänden [110] (b)) oder mikrostrukturierten Leiterbahnen [111](c)) realisiert.

Im einfachsten Fall können Partikel mit makroskopischen Permanentmagneten [109] manipuliert werden. Abbildung 30a) zeigt ein Beispiel, bei dem an magnetische Partikel gekoppelte Immunozellen innerhalb eines mikro-strukturieren Kanals aus zwei Reservoiren (links im Bild) gespeist werden können, und mittels durch Permanentmagnete („Magnets“) erzeugter Kräfte lokal konzentriert werden können. Anschließend können die so separierten, gelabelten Zellen am Ausgang des Systems mittels Pippete („Micropipet“) gezielt entnommen werden. Solche Permanentmagnete können in unmittelbarer Nähe zur Magnetoberfläche bedingt durch die hohe Sättigungspolarisation B_s von bis zu 2.3 T hohe Feldgradienten aufweisen, wodurch große Kräfte auf die Partikel ausgeübt werden können. Jedoch ist die Kraft in Größe und Richtung bei solchen Systemen nur bedingt einstellbar, da sie durch den festen Feldgradienten bei gegebenem Abstand der Partikel zur Magnetoberfläche vorgegeben ist.

Eine weitere Möglichkeit stellt die Nutzung von mikro-skaligen, ferromagnetischen Elementen zur Manipulation dar, deren Feldgradient sich ebenfalls mit einem externen Feld überlagern lässt. Beispielweise konnten Helseth et al. [112] zeigen, dass superparamagnetische Partikel vom Feldgradient einer in einer MFM Spitze nuklierten magnetischen Domäne durch zusätzliche Überlagerung eines externen Feldes abgestoßen und angezogen werden können. Weiterhin können beispielsweise regelmäßig angeordnete Ni Mikrostrukturen dazu genutzt werden, Partikel an vordefinierten Positionen zu immobilisieren [113]. Abbildung 30b) zeigt ein Beispiel, bei dem eine ferromagnetische Zick-Zack-Struktur verwendet wird, um ein regelmäßig angeordnetes Muster in der Magnetisierung zu

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

erzeugen. Die Übergänge zwischen den unterschiedlichen Magnetisierungsausrichtungen dienen dabei als Quellen des Magnetfeldgradienten und somit einer attraktiven Kraft auf die Partikel. Wird zusätzlich ein externes Magnetfeld überlagert, kann das Partikel gezielt an den Ecken der Struktur positioniert und entlang der Struktur bewegt werden [110].

Eine flexiblere Art der Manipulation stellen Elektromagnete dar, da hier sowohl erzeugtes Magnetfeld als auch Feldgradient durch Wahl der den Elektromagnet treibenden Stromstärke beeinflusst werden können [114]. Dies kann u.a. dazu genutzt werden, um Partikel auf Chipebene über große Längenskalen (bis zu mehreren mm) zu transportieren [115]. Wird die Partikelposition während der Manipulation in Echtzeit optisch detektiert, kann diese als Regelgröße für den Elektromagnet verwendet werden. Dadurch lässt sich durch eine dreidimensionale Anordnung von auf die Differenz von Soll- und Istposition des Partikels geregelten Elektromagneten eine definierte, stabile Partikelposition in drei Dimensionen erreichen [116].

Im Bereich Lab-On-Chip wurden in den letzten Jahren vermehrt Methoden basierend auf magnetischen Mikrostrukturen zur Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln entwickelt [117-119]. In unmittelbarer Nähe zu den Mikrostrukturen ergeben sich hohe lokale Feldgradienten bzw. Kräfte auf die Partikel. Eine Möglichkeit solche Strukturen zu realisieren, stellt die Verwendung von mikrostrukturierten Leiterbahnen zur Erzeugung der Feldgradienten dar. Dies lässt sich dazu nutzen, Partikel gezielt zur stromdurchflossenen Leiterbahn zu transportieren und dort anzulagern [111, 120]. Ein Beispiel hierfür ist in Abbildung 30c) gezeigt. Hierbei können unterschiedliche Leiterbahnsegmente einzeln mit Strom beaufschlagt werden. Die Partikel (als dunkle Punkte erkennbar) lagern sich dabei am jeweils mit Strom beaufschlagten Leiterbahnsegment ab und können dadurch gezielt von außen nach innen transportiert und im Inneren konzentriert werden. Die genaue Funktionsweise der mikro-skaligen Manipulationseinheit hängt dabei stark von der stromdurchflossenen Geometrie der Mikrostruktur und der räumlichen Lage der Partikel im Bezug zu dieser ab [121]. Wird beispielsweise ein Array aus einzelnen adressierbaren Leiterbahnen verwendet, lassen sich mit dieser Technik Partikel gezielt zwei-dimensional auf der Substratoberfläche positionieren [122]. Für mikro-skalige Ringstrukturen lassen sich, je nach Abstand des Partikels zur Struktur und Größe des stromdurchflossenen Rings, Partikel entweder im Inneren der Ringstruktur oder auf der Leiterbahn selbst positionieren [123]. Einen zusätzlichen Freiheitsgrad erhält man durch Überlagerung eines externen, homogenen Feldes mit dem durch die Leiterbahn erzeugten Feldgradienten. Das externe Feld dient zum einen dazu, die Kraft auf die Partikel zu verstärken, indem das magnetische Moment des Partikels durch das externe Feld erhöht wird [124]. Zusätzlich lässt sich durch die Superposition aber auch die Kraftrichtung beeinflussen [121, 124, 125]. Dies kann dazu genutzt werden, gezielt bestimmte Positionen auf der Substratoberfläche mit minimaler magnetischer Energie zur Positionierung einzelner Partikel zu definieren [123, 126-128].

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

In diesem Kapitel soll die magnetische Manipulation von einzelnen superparamagnetischen Partikeln mittels mikrostrukturierten Leiterbahnen untersucht werden. Es soll insbesondere die Frage adressiert werden, wie und wie präzise sich einzelne magnetische Partikel im Rahmen eines Lab-On-Chip Szenario positionieren lassen.

Im ersten Teil des Kapitels wird auf die theoretischen Grundlagen eingegangen, die zum Verständnis der später gezeigten, experimentellen Ergebnisse benötigt werden. Neben der zur Auswertung der Daten verwendeten Methoden werden die theoretischen Grundlagen zur elektrochemischen Wechselwirkung der Partikel mit Ihrer Umgebung und die Modelle zur Interpretation von thermisch induzierter Partikelfluktuations in flüssiger Umgebung eingeführt.

Um ein grundlegendes Verständnis für die On-Chip Manipulation mittels mikro-strukturierter Leiterbahnen zu gewinnen, wird anschließend allgemein die Kraft auf ein Einzelpartikel bei Vorhandensein eines durch die Leiterbahn erzeugten Feldgradienten adressiert. Hierbei wird zunächst auf die Überlagerung eines externen Magnetfeldes zum durch den mikrostrukturierten Leiter erzeugten, stark inhomogenen Magnetfeld(gradienten) eingegangen. Die Kraft auf ein superparamagnetisches Partikel wird für verschiedene Ausrichtungen des externen Feldes bezüglich des Leiterbahnfeldes berechnet und aus den Ergebnissen wird eine für die Lab-On-Chip Anwendung optimale Konfiguration der beiden Felder abgeleitet. Anschließend werden für diese Feldkonfiguration Experimente zur Manipulation von Einzelpartikeln gezeigt, die die Vorhersagen aus der Berechnung bestätigen. Aus den experimentellen Erkenntnissen zur Manipulation von Einzelpartikeln lassen sich der verwendeten Technik zugrundeliegende Limitierungen aufzeigen, die sich im Einklang mit den Vorhersagen aus der Modellierung der Energie- und Kräfte Landschaft beschreiben lassen. Basierend auf der Überlagerung eines externen Feldes zum Leiterbahnfeld lässt sich eine magnetische Falle konstruieren, die die Positionierung von Einzelpartikeln mit einer Genauigkeit $< 1 \mu\text{m}$ erlaubt. Die Vermessung von Trajektorien von in der Falle gefangenen Partikeln erlaubt eine mikro-rheometrische Vermessung der den Partikel umgebenden Flüssigkeit. Die aus den Fluktuationsdaten der Partikel extrahierten Diffusionskonstanten der Partikel in flüssiger Umgebung werden im Rahmen eines Modells berechnet, das die Nähe der Partikel zur Substratoberfläche mit einbezieht und mit den experimentellen Daten verglichen. Zusätzlich erlaubt die Messung der Langzeitfluktuation eine Bestimmung der Fallenstärken woraus aus dem Abgleich der experimentellen Daten mit numerischer Berechnung der Kräfte Landschaft das magnetische Moment eines einzelnen gefangenen Partikels mit einer Genauigkeit von ca. 10% bestimmt werden kann.

Im letzten Teil des Kapitels wird ein in der Falle gefangenes Partikelpaar untersucht. Die experimentell beobachteten Trajektorien des Paares lassen sich unter Berücksichtigung der magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung der Partikel untereinander erklären. Aus einem einfachen, eindimensionalen Kräftegleichgewicht lässt sich das mittlere magnetische Moment des Partikelpaares bestimmen. Die Ergebnisse sind sowohl in gutem Einklang mit

für die verwendeten Partikel aus der Literatur bekannten Werten als auch mit den Ergebnissen aus den Einzelpartikelmessungen. Teile dieses Kapitels wurden im Vorfeld in Publikationen vorveröffentlicht [31, 32].

3.2 Grundlagen

3.2.1 Einzelpartikel-Tracking

Um die Bewegung einzelner oder mehrerer Partikel messtechnisch zu erfassen, muss die Partikelposition aus dem aufgezeichneten Bildmaterial extrahiert werden. Dies kann mittels Particle-Tracking Algorithmen erfolgen, die es erlauben, die Position eines Partikels in zwei oder drei Dimensionen aus Videodaten mit hoher Genauigkeit zu extrahieren. Solche Algorithmen können prinzipiell die Position der Partikel im Sub-Pixel Bereich auflösen und erlauben somit die Bestimmung der Schwerpunktsposition mit einer Genauigkeit deutlich unterhalb des Beugungslimits. Die in Matlab® umgesetzten Algorithmen zur Detektion der Partikelposition aus den aufgezeichneten Videodaten sowie die graphische Oberfläche zur einfachen Bedienung wurden in großen Teilen von Florian Ostermaier im Rahmen seiner Masterarbeit entwickelt [129]. Eine Diskussion zur Genauigkeit der Detektion befindet sich im Anhang der Arbeit. Im Folgenden wird, wie in Abbildung 31 gezeigt, exemplarisch das Vorgehen zur Bestimmung der Partikelposition erläutert.

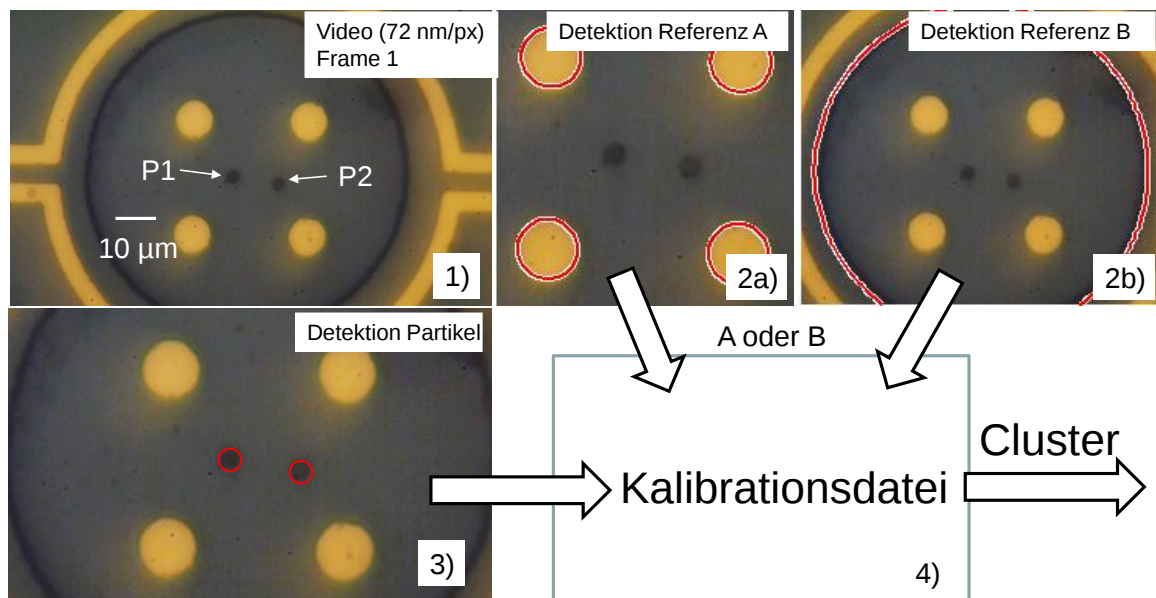


Abbildung 31: Schema zum Particle-Tracking: 1) Videoaufnahme mit 25 fps bei einer Auflösung von ≈ 72 nm/px. 2) Detektion der Ringgeometrie über runde Referenzmarkierungen (a)) oder Geätzte Lochstruktur (b)). 3) Detektion eines oder mehrerer Partikel. 4) Schreiben der Referenz- und Partikelpositionen in videospezifische Kalibrationsdatei.

3.2.2 SCHEMA ZUR DETEKTION VON PARTIKEL UND FALLENSTRUKTUR

1) **Laden der Videodaten** und manuelles Festlegen der Partikelposition (hier P₁ und P₂) für das erste Frame des Videos.

2) **Festlegen der Referenz-Fallenkoordination** durch Detektion der vier Referenzstrukturen (a)) oder des geätzten Lochs (b)). Beide Elemente sind in den Abbildungen jeweils als rote Kreise schematisch hervorgehoben. Im Fall a) ist der Mittelwert der Schwerpunktspositionen aller vier Referenzstrukturen gleich dem Mittelpunkt der Ringstruktur.

3) **Detektieren der Positionen der Partikel im Inneren der Struktur.** Die Positionen sind als rote Kreise hervorgehoben. Die Punkte zwei und drei werden während der Detektion für jedes Frame wiederholt.

4) **Speichern der Positionen der Referenzstrukturen sowie der Partikel** für das erste Frame in einer Kalibrationsdatei. Video und Kalibrationsdatei werden zur Verarbeitung des kompletten Videos auf einen **zentralen Rechner (Cluster, 5))** weitergeleitet, der das parallelisierte Verarbeiten von mehreren Videos erlaubt.

In den hier vorgestellten Experimenten wurden zwei verschiedene Typen von magnetischen Partikeln der Firma Invitrogen (Dynabead® M280 und Dynabead® MyOne) eingesetzt. Exemplarisch sind REM Aufnahmen beider Partikelsorten in Abbildung 32 gezeigt.

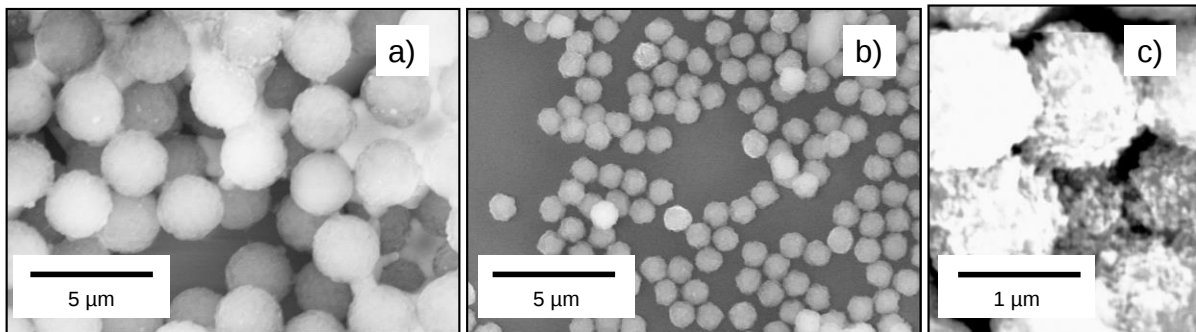


Abbildung 32: Rasterelektronenmikroskop Aufnahme von auf einen Si Träger abgeschiedenen Dynabead M-280 a) und Dynabead MyOne Partikeln b). Beide Partikelsorten sind aus Fe_3O_4 Primärteilchen in einer Polystyrolmatrix eingebettet, wie in c) für MyOne Partikel zu sehen.

Die Partikel bestehen auf einem „Container“ aus einer Polystyrol-Matrix, in den superparamagnetische Eisenoxid ($\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_3\text{O}_4$) Partikel eingebettet sind, die ca. 8 nm Durchmesser aufweisen. Die Polystyrol-Matrix hat bei M280 Partikeln einen Durchmesser von 2.8 µm und bei den MyOne Partikeln 1.05 µm. Wie in den REM Aufnahmen zu sehen, weisen die Dynabead® Partikel eine homogene Verteilung bzgl. der Größe des Polystyrolcontainers auf. Der Hersteller gibt hierfür einen Variationskoeffizient CV (als Verhältnis von Standardabweichung und arithmetischem Mittelwerts des Durchmessers des Polystyrol-Containers) von $CV < 3\%$ für M280 und $CV < 5\%$ für MyOne an. Um die kolloidale Stabilität in wässrigen Umgebungen gewährleisten zu können sind die Partikel mit einer Proteinschicht aus Streptavidin funktionalisiert. Diese Schicht gewährleistet eine

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Oberflächenladung der Partikel in der Flüssigkeit, die zur Abstoßung der Partikel untereinander führt und eine Agglomeration der Partikel verhindert. Zudem kann die Streptavidin Schicht zur weiteren Funktionalisierung der Partikel zur spezifischen Immobilisierung auf der Chipoberfläche benutzt werden. In Kombination mit der häufig benutzten Streptavidin-Biotin Kopplung lassen sich bspw. DNA [130] oder Zellen [20] spezifisch an die Partikeloberfläche binden und somit manipulieren.

3.2.3 DLVO Wechselwirkung Partikel-Partikel und Partikel-Substratoberfläche

Befinden sich Kolloide in flüssiger Umgebung so ergeben sich zwischen den Teilchen selbst und zwischen den Teilchen und der Substratoberfläche elektro-statische Wechselwirkungen, die sich durch die DLVO Theorie (nach Derjaguin, Landau, Verwey und Overbeek) beschreiben lassen. Schematisch ist die Kräftebilanz in Abbildung 33a) dargestellt. Zum einen spielt die Van-der-Waals Wechselwirkung (F_{vdw}) eine Rolle, die zur Anziehung der Teilchen untereinander und der Teilchen in Richtung Substratoberfläche führt. Weiterhin können sich die Partikel in der Flüssigkeit an der Oberfläche aufladen, was zur elektro-statischen Wechselwirkung zwischen den Partikeln und der Substratoberfläche sowie der Partikel untereinander (F_{el}) führt. Bei vorhandener Oberflächenladung führt dies zur Abstoßung der Partikel untereinander. Für die Wechselwirkung der Partikel mit der Substratoberfläche muss zusätzlich die Ladung der Oberfläche bekannt sein. Die Kraft zwischen Partikeln und Oberfläche kann entweder repulsiver Natur (bei gleichem Vorzeichen der Oberflächenladung der Partikel und der Oberfläche des Substrats) oder attraktiv (bei ungleichem Vorzeichen) sein. Quantitativ beschrieben wird der Effekt durch das sogenannte Zeta Potential (ξ_p) (siehe auch Abbildung 33b)). Im Folgenden werden die zur DLVO Wechselwirkung beitragenden Kräfte genauer erläutert.

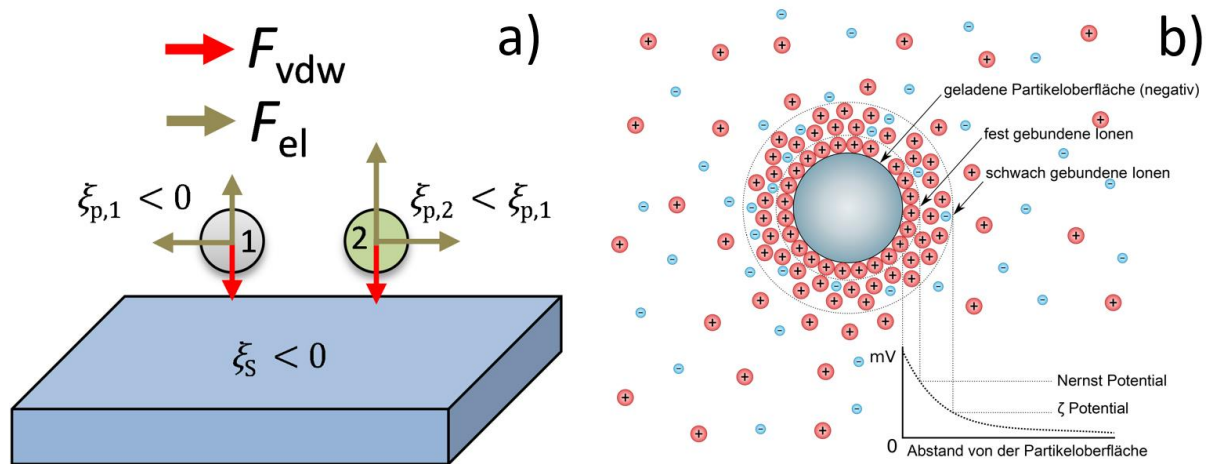


Abbildung 33: Schematische Skizze zur Illustration der relevanten, auf die Partikel wirkenden Kräfte in der Nähe der Grenzfläche Substrat/Elektrolyt in a) und Skizze zur Definition des ξ Potentials an der Oberfläche eines Partikels im Elektrolyt in b).

3.2.4 Zeta Potential

Die elektrostatische Wechselwirkung zwischen Oberfläche und Partikeln, sowie zwischen den Partikeln selbst ist durch das sogenannte Zeta Potential der Oberfläche (ξ_s) und der Partikel (ξ_p) gegeben. Das Zeta-Potential ergibt sich dabei durch Aufladung der Partikel bzw. der Oberfläche in flüssiger Umgebung, wie schematisch in Abbildung 33b) gezeigt. Dabei lagern sich Ionen aus dem Elektrolyt an der Oberfläche des Partikels an. Bei geringen Abständen der Ionen zum Partikel werden die Ionen stark von der Partikeloberfläche angezogen, was zu einer fest gebundenen Schicht aus Ionen, der sogenannten Helmholtz-Doppelschicht, führt. Hin zu größeren Abständen sind die Ionen schwächer an das Partikel gebunden, was als diffuse Schicht bezeichnet wird. Die Ionenkonzentration verringert sich dabei mit zunehmendem Abstand vom Partikel. Die Schicht aus schwach gebundenen Ionen weist dabei eine charakteristische Dicke auf, die als Debeye-Länge λ_D bezeichnet wird. Diese gibt an, auf welcher Längenskala die an den Partikel angelagerte Ionenwolke das Partikel elektrisch von der Umgebung abschirmt und berechnet sich nach [131]:

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 \epsilon_r k_B T}{2000 N_A q^2 I}} \quad (18)$$

Hier ist N_A die Avagadro-Zahl, sowie I die Ionenkonzentration des Elektrolyten (in mol/l) sowie ϵ_r die relative Dielektrizitätskonstante des den Partikel umgebenden Elektrolyten. Das Zeta-Potential wird nun als Potential an der Grenzfläche der Nernst-Schicht zur diffusiven Schicht gegenüber dem Nullpotential bei sehr großen Abständen zum Partikel definiert. Das Potential kann dadurch nicht direkt gemessen werden und wird meist über elektrokinetische Messungen (beispielsweise mittels Laser Doppler Velocimetry) bestimmt. Bei einem gegebenen Zeta-Potential ξ_p des Partikels und ξ_s der Oberfläche ergibt sich bei gleichem Vorzeichen der Zeta-Potentiale eine von der Oberfläche abstoßende Kraft F_{el} auf das Partikel, für die gilt [131, 132]:

$$F_{el} = \frac{2\pi\epsilon r_p}{\lambda_D(1 - \exp(-2\lambda_D^{-1}h))} [2\xi_p \xi_s \exp(-\lambda_D^{-1}h) + (\xi_p^2 + \xi_s^2) \exp(-2\lambda_D^{-1}h)] \quad (19)$$

3.2.5 Van-der-Waals Wechselwirkung

Die Van-der-Waals Wechselwirkung beschreibt eine rein anziehende Wechselwirkung zwischen Partikel und Oberfläche, die ihre Ursache in der induzierten Dipol-Dipol-Wechselwirkung hat. Für ein Partikel mit Radius r_p , das sich im Abstand h zur Substratoberfläche befindet kann sie analytisch angegeben werden [133]. Man erhält:

$$F_{vdw} = \frac{Ar_p}{6h^2(1 + \frac{14h}{\lambda_{ret}})} \quad (20)$$

Hierbei stellt A die Hamaker-Konstante und λ_{ret} die Retardationslänge mit typischen Werten von $A \sim k_B T = -4.14 \cdot 10^{-21} \text{ J @ } T = 300 \text{ K}$ [134] und $\lambda_{ret} \approx 100 \text{ nm}$ [131] dar.

3.2.6 Statistische Modellierung der Partikelfluktuaton im Zeitbereich

Die Bewegung eines sphärischen Partikels mit Radius r_p und Masse m_p im Zeitbereich unter Einfluss von thermischer Fluktuation in einem harmonischen Fallenpotential wird über die stochastische Bewegungsgleichung beschrieben. Wasser, das als Arbeitsmedium für alle gezeigten Experimente eingesetzt wurde, wird dazu als Newtonsche Flüssigkeit mit zeit- und scherratenunabhängiger Viskosität betrachtet. Für die geringen Geschwindigkeiten der Partikel mit $v < 100 \mu\text{m/s}$ ergeben sich für Wasser mit $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ bei einer Viskosität von $\eta = 0.95 \text{ mPas}$ Reynoldszahlen von $Re < v r_p \cdot \rho / \eta = 1.47 \cdot 10^{-4}$ für die M-280 Partikel ($r_p = 1.4 \mu\text{m}$) und $Re < 0.58 \cdot 10^{-4}$ für die MyOne Partikel ($r_p = 0.5 \mu\text{m}$), weshalb die Strömung der Flüssigkeit um die Partikel als laminar angenommen werden kann. Die eindimensionale Bewegungsgleichung eines Partikels berechnet sich aus der Summation aller auf das Partikel wirkenden Kräfte und ergibt sich unter den oben genannten Randbedingungen zu:

$$\frac{\partial^2 x(t)}{\partial t^2} m_p + 6\pi\eta r_p \frac{\partial x(t)}{\partial t} + kx = F_L(t) \quad (21)$$

Hierbei stellt η die Viskosität der den Partikel umgebenden Flüssigkeit sowie k die sogenannte Fallenstärke dar, die die Proportionalität zwischen Auslenkung x des Partikels und der auf das Partikel wirkenden, rückstellenden Kraft der Falle beschreibt. $F_L(t)$ beschreibt die sogenannte Langevin-Kraft, die durch die Stöße des Partikels mit den Molekülen in der Flüssigkeit bei endlicher Temperatur T verursacht wird und daher stochastischer Natur ist. Aus diesem Grund kann für die Positionsvariable $x(t)$ keine direkte Lösung angegeben werden. Soll die Partikelfluktuaton quantitativ beschrieben werden, wird üblicherweise ein statistisches Zeitmittel, das sogenannte Mean-Square-Displacement (MSD) aus experimentell bestimmten Partikeltrajektorien ermittelt. Das MSD beschreibt anschaulich die von einem Teilchen bezogen auf einen beliebigen Startzeitpunkt t_i innerhalb der Trajektorie zu einem Zeitpunkt $t_i + \tau$ überstrichener Fläche des Partikels und wird aus der Partikeltrajektorie $x(t)$ bestimmt. Misst man zeitdiskrete Trajektorien $(x(t_i), y(t_i))$ mit Positionswerten zu den diskretisierten Zeitpunkten $t = t_0, t_1, t_2, \dots, t_i, t_{i+1}, \dots, t_N$ erhält man das MSD für beide Dimensionen aus Bildung des Zeitmittelwerts [135]:

$$\overline{MSD}_x(\tau) = \frac{1}{N+1-\tau f} \sum_{i=0}^{N-\tau f} (x_j(\tau + t_i) - x_j(t_i))^2 \quad (22)$$

$$\overline{MSD}_y(\tau) = \frac{1}{N+1-\tau f} \sum_{i=0}^{N-\tau f} (y_j(\tau + t_i) - y_j(t_i))^2 \quad (23)$$

Hierbei stellt f die Aufnahmefrequenz der Videodaten (25 fps) dar.

Das für eine Brown'sche Bewegung erwartete Zeitverhalten des MSD innerhalb eines als harmonisch angenommenen Fallenpotentials hängt dabei von der Zeit τ , der Viskosität η der flüssigen Umgebung, der Größe des Partikels r_p und der Fallenstärke k ab. Üblicherweise werden drei Zeitbereiche in τ unterschieden, die schematisch in Abbildung 34 dargestellt sind.

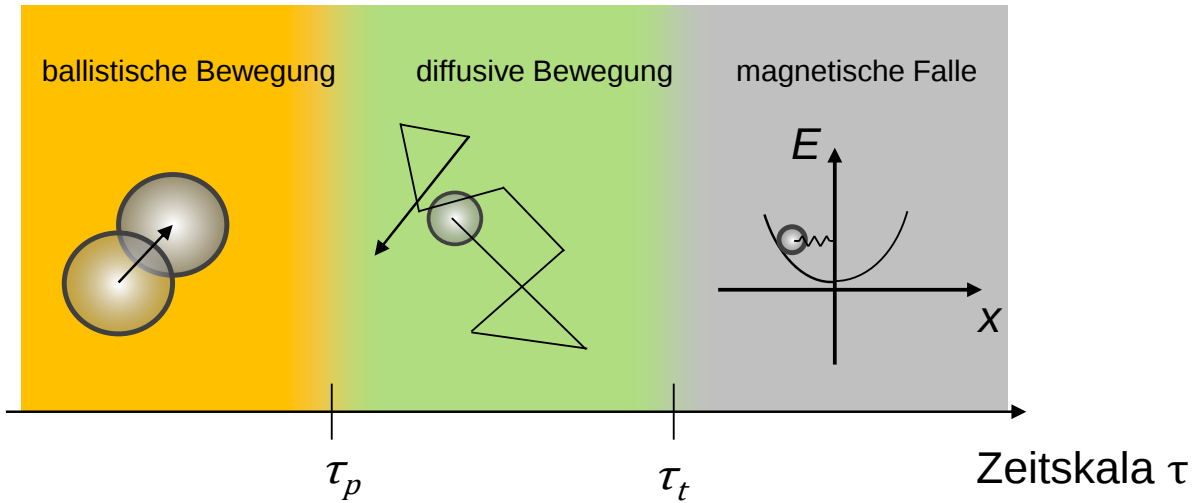


Abbildung 34: Unterteilung der Partikelbewegung in der Falle mit harmonischem Fallenpotential in drei charakteristische Zeitfenster.

Für sehr kurze Zeiten $\tau \ll \tau_p$ (gelb dargestellter Bereich in Abbildung 34) findet eine Bewegung des Partikels ohne Stöße mit den umgebenden Flüssigkeitsmolekülen statt. Diese Bewegung wird daher als ballistisch bezeichnet. Für das MSD gilt hier $MSD \sim \tau^2$ [126]. Die Zeitkonstante τ_p ergibt sich dabei für Partikel mit einer Massendichte ρ gemäß [126] zu:

$$\tau_p = \frac{2r_p^2 \rho}{9\eta} \quad (24)$$

Für die verwendeten Partikel ergibt sich für $\eta = 0.95$ mPas (Wasser bei $T = 300$ K) eine Zeitkonstante von $\tau_p = 610$ ns für M-280 Partikel ($\rho = 1400$ kg/m³) und $\tau_p = 104$ ns

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

für MyOne Partikel ($\rho = 1700 \text{ kg/m}^3$). Die später bei der Messung beobachtbaren Zeiten befinden sich, bedingt durch die Aufnahmefrequenz $f = 25 \text{ Hz}$ der verwendeten Kamera bei $\tau \geq 40 \text{ ms}$, weswegen der ballistische Bereich der Partikelbewegung messtechnisch nicht erfasst werden kann. Ein erster, auf Auswertung von Fluktuationstrajektorien basierter Nachweis der Existenz des ballistischen Bereichs konnte aufgrund der beschriebenen kurzen Zeitskalen erstmals 2011 mittels in optischen Fallen gefangener Nanopartikel geführt werden [136]. Betrachtet man größere Zeitskalen (grüner Bereich in Abbildung 34) wird die Kinetik des Partikels von Stößen mit den Flüssigkeitsmolekülen dominiert. Es ergibt sich eine Trajektorie, die als „Random-Walk“ bezeichnet wird. In diesem Fall wurde bereits 1905 bzw. 1906 durch A. Einstein [128] bzw. M. Smoluchowski [129] unabhängig voneinander ein direkter, linearer Zusammenhang des $MSD(\tau)$ von der Zeit τ vorhergesagt. Hierbei ergibt sich:

$$MSD_x(\tau) = MSD_y(\tau) = 2D\tau = \frac{k_B T}{3\pi\eta r_p} \tau \quad (25)$$

Die Konstante D wird aufgrund der in diesem Zeitfenster beobachtbaren, freien Diffusion der Teilchen als Diffusionskonstante bezeichnet. Aus dem in Gleichung (25) gegebenen Zusammenhang lässt sich bei gegebener Partikelgröße und Temperatur die Viskosität η der Partikelumgebung berechnen, was im weiteren Verlauf der Arbeit vertieft wird. Der lineare Zusammenhang zwischen MSD und Zeit τ gilt dabei nur für Zeiten $\tau \ll \tau_t$, wobei τ_t die charakteristische Fallenzeit bezeichnet und sich berechnet zu [137]:

$$\tau_t = \frac{6\pi\eta r_p}{k} \quad (26)$$

Für typische, mit der gezeigten Falle erreichbare Fallenstärken von $k = 1 - 10 \text{ fN}/\mu\text{m}$ (M-280) und $0.1 - 1 \text{ fN}/\mu\text{m}$ (MyOne) beträgt diese Zeit $\tau_t = 2.6 \text{ s} - 26 \text{ s}$ (M-280) bzw. $\tau_t = 10 - 100 \text{ s}$ (MyOne). Für Zeiten $\tau \gg \tau_t$ nähert sich das MSD einem stationärem Wert an, der durch die thermische Energie $k_B T$ und die Fallenstärke k festgelegt ist. Man erhält nach [138] :

$$MSD_x(\tau \rightarrow \infty) = \frac{2k_B T}{k_x} \text{ und } MSD_y(\tau \rightarrow \infty) = \frac{2k_B T}{k_y} \quad (27)$$

Aus dem in Gleichung (27) gegebenem Zusammenhang lässt sich die Fallenstärke k aus dem ermittelten MSD Verlauf extrahieren. Eine alternative Methode zur Bestimmung von k_x und k_y ergibt sich aus der Vermessung der Positionsstatistik des Partikels für Zeiten $\tau \gg \tau_t$. Trägt man die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten $p(x)$ und $p(y)$ des Partikels um das Energieminimum am Ort $(x-x_0, y-y_0)$ auf, ergibt sich eine gaußförmige Verteilung für beide

Aufenthaltswahrscheinlichkeiten. Man erhält entsprechend [139]:

$$p(x) \sim e^{-\left(\frac{x-x_0}{2\sigma_x}\right)^2} \quad (28)$$

$$p(y) \sim e^{-\left(\frac{y-y_0}{2\sigma_y}\right)^2} \quad (29)$$

σ_x und σ_y bezeichnen dabei die Standardabweichungen der beiden Gauverteilungen. Setzt man das Äquipartitionstheorem voraus, nach dem auf jeden Fluktuationsfreiheitsgrad die Energie $0.5k_B T$ entfällt, so ergibt sich ein direkter Zusammenhang zwischen der Standardabweichung σ_x , σ_y der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten und der Fallenstärken k_x, k_y . Diese ergeben sich nach [139] zu:

$$k_x = \frac{k_B T}{\sigma_x^2} \text{ und } k_y = \frac{k_B T}{\sigma_y^2} \quad (30)$$

Vergleicht man Gleichung (27) und Gleichung (30) besteht eine direkte Beziehung zwischen den Werten für das MSD($\tau \gg \tau_t$) und den Standardabweichungen der gaußverteilten Aufenthaltswahrscheinlichkeiten. Durch Gleichsetzen von Gleichung (27) und Gleichung (30) erhält man folgende Zusammenhänge:

$$MSD_x(t \rightarrow \infty) = 2\sigma_x^2 \quad (31)$$

$$MSD_y(t \rightarrow \infty) = 2\sigma_y^2 \quad (32)$$

3.3 Manipulation mittels mikro-strukturierter Leiterbahnen und homogenen Feldern

In dieser Arbeit soll zunächst der Einfluss eines durch eine mikrostrukturierte Leiterbahn erzeugten Magnetfeldgradienten in Kombination mit zusätzlichen, homogenen Magnetfeldern auf ein superparamagnetisches Partikel untersucht werden. Hierzu werden verschiedene, gezielt ausgewählte Kombinationen von Leiterbahnmagnetfeld und externem Feld zunächst qualitativ und anschließend quantitativ miteinander verglichen, um die für die umzusetzende Lab-On-Chip Anwendung optimale Konfiguration aus beiden Feldern abzuleiten.

3.3.1 Magnetische Charakterisierung der verwendeten Dynabead Partikel

Für die Anwendung von superparamagnetischen Partikeln muss deren Magnetisierungsverhalten bekannt sein. Für die Arbeit kamen superparamagnetische Partikel der Firma Invitrogen mit Durchmesser von $2.8\text{ }\mu\text{m}$ (Dynabeads® M-280) und $1\text{ }\mu\text{m}$ (Dynabeads® MyOne) zum Einsatz, deren quasistatische Magnetisierungskurven in Abbildung 35 gezeigt sind. In beiden Fällen wurden die Partikel vor der Messung in der PBS Lösung auf den Wafer abgeschieden und anschließend bei $90\text{ }^{\circ}\text{C}$ an Luft getrocknet, so dass sich eine feste Schicht aus den Partikeln auf der Waferoberoberfläche ausbildet. Dies verhindert, dass sich die Partikel während der quasistatischen Messung durch Wechselwirkung untereinander umlagern können.

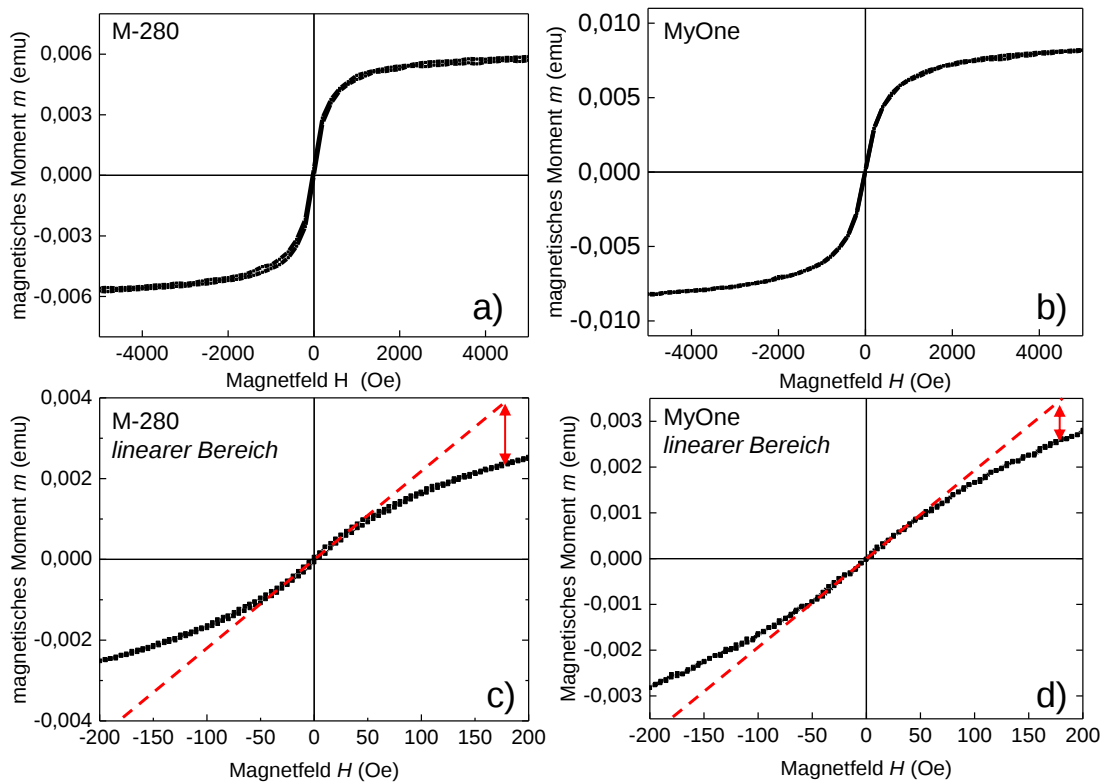


Abbildung 35: Quasistatische VSM Messungen der in der Arbeit verwendeten Dynabead Partikel. Die Messungen in a) und b) zeigen die Magnetisierungskurven für hohe Felder von M-280 und MyOne Partikel, während c) und d) bei geringer Feldamplitude $< 200\text{ Oe}$ vermessen wurden. Die roten Pfeile markieren die Abweichung von tatsächlicher m - H Kurve zur linearen Extrapolation bei einem Feld von $H = 175\text{ Oe}$.

Die VSM Messungen in a) und b) zeigen für den hohen Feldbereich ein ähnliches Verhalten der superparamagnetischen Partikel. Die unterschiedlichen Momente in Sättigung sind auf unterschiedliche Absolutmengen an magnetischem Material auf beiden Proben zurückzuführen. Für Felder $H > 1000\text{ Oe}$ (100 mT) sind beide Proben näherungsweise gesättigt. Dies stellt somit die obere Grenze der zur Manipulation sinnvoll nutzbaren externen Felder dar. Bei höheren Feldern erfolgt keine weitere, signifikante Erhöhung des magnetischen Moments der Partikel und somit der Kraft auf die Partikel. Im Bereich geringer externer Felder $H < 200\text{ Oe}$ (siehe Abbildung c) und d)) ergeben sich für beide Partikelsorten Unterschiede in den Magnetisierungskurven. Während die M-280 Partikel

ab Feldern $H > 55$ Oe um ca. 10% vom linearen m - H Verhalten (gestrichelte, rote Linie) abweichen, zeigen die MyOne Partikel dieselbe Abweichung erst ab Feldern von $H > 90$ Oe. In [140] wurde die Größe der primären Eisenoxid Partikel in beiden Partikelsorten mittels Röntgendiffraktometrie und magnetischer Charakterisierung (SQUID Messungen) untersucht. Die Messungen ergaben einen für MyOne Partikel mit 7.7 nm mittlerem Durchmesser geringere Größe im Vergleich zu den 8.1 nm großen Primärteilchen in den M-280 Partikeln. Legt man die Langevin-Beschreibung entsprechend Gleichung (7) zugrunde kann der größere, lineare Aussteuerungsbereich der MyOne Partikel dadurch erklärt werden. Zusätzlich weisen die MyOne Partikel einen mit 11.8 Gew% gegenüber den M-280 Partikeln mit 25.5 Gew% höheren Eisengehalt [140] und dadurch eine höhere Dichte an Eisenoxid Primärpartikeln auf. Dies führt zu unterschiedlich starker Dipol-Dipol-Wechselwirkung der Primärpartikel in den M-280 und MyOne Partikeln, was den Unterschied im $m(H)$ Verlauf erklären kann [141].

3.3.2 Ableitung von magnetischer Energie und magnetischer Kraft auf superparamagnetische Partikel bei Verwendung von mikro-strukturierten Leiterbahnen und homogenen Feldern

Für superparamagnetische Partikel und für genügend kleine Magnetfelder $\vec{B}$ (vgl. Abbildung 35) kann das magnetische Moment eines superparamagnetischen Partikels durch $\vec{m} = \frac{\chi_v V \vec{B}}{\mu_0}$ beschrieben werden, wobei χ_v die dimensionslose Volumenssuszeptibilität, V das Volumen des Partikels und $\vec{B}$ das auf das Partikel einwirkende Magnetfeld ist. Die magnetische Kraft ergibt sich im statischen Fall bei Vorhandensein eines Feldgradienten $\nabla \vec{B} \neq 0$ nach den Ausführungen in [7] zu:

$$\vec{F}_{mag} = -\nabla E = (\vec{m} \cdot \nabla) \vec{B} = \frac{\chi_v V}{\mu_0} (\vec{B} \cdot \nabla) \vec{B} = \frac{\chi_v V}{2\mu_0} \nabla (\vec{B} \cdot \vec{B}) = \frac{\chi_v V}{2\mu_0} \nabla |\vec{B}|^2 \quad (33)$$

Die zur Berechnung angenommene Leiterbahngeometrie ist schematisch in Abbildung 36a) dargestellt. Um die auf ein superparamagnetisches Partikel wirkende Kraft durch einen Leiter quantitativ zu berechnen, muss der Verlauf des Magnetfeldes $\vec{B}_{leiter} = B_{leiter,x} \vec{e}_x + B_{leiter,y} \vec{e}_y + B_{leiter,z} \vec{e}_z$ in Nähe der Leiterbahn berechnet werden. Bei unendlicher Ausdehnung des Leiters in y -Richtung, entlang der ein Konstantstrom I fließt, sowie einer Dicke h und einer Breite w des Leiters, lassen sich die resultierenden Feldkomponenten durch Anwendung des Biot-Savartschen Gesetz als Integration aller Feldbeiträge über den Leiterbahnquerschnitt berechnen [142]. Man erhält unter Verwendung für die Komponenten $B_{leiter,x}$ und $B_{leiter,z}$ Komponenten des Magnetfelds :

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

$$B_{\text{leiter},x}(x, z) = \frac{I\mu_0}{4\pi hw} \left[p \ln \left(1 + \frac{(h^2 + 2zh)}{p^2 + z^2} \right) + 2(z+h) \operatorname{atan} \left(\frac{p}{z+h} \right) - 2z \cdot \operatorname{atan} \left(\frac{p}{z} \right) \right] \Bigg|_{p=-\frac{w}{2}+x}^{p=\frac{w}{2}+x} \quad (34)$$

$$B_{\text{leiter},z}(x, z) = \frac{I\mu_0}{4\pi hw} \left[z \ln \left(1 + \left(\frac{p}{z} \right)^2 \right) - (z+h) \ln \left(1 + \frac{p^2}{(z+h)^2} \right) - 2p \left(\operatorname{atan} \left(\frac{z+h}{p} \right) - \operatorname{atan} \left(\frac{z}{p} \right) \right) \right] \Bigg|_{p=-\frac{w}{2}+x}^{p=\frac{w}{2}+x} \quad (35)$$

Durch die unendliche Ausdehnung des Leiters in y -Richtung ergibt sich keine Magnetfeldkomponente in y Richtung. Abbildung 36 zeigt die Ausprägung der berechneten Feldkomponenten in der Nähe der Leiterbahn.

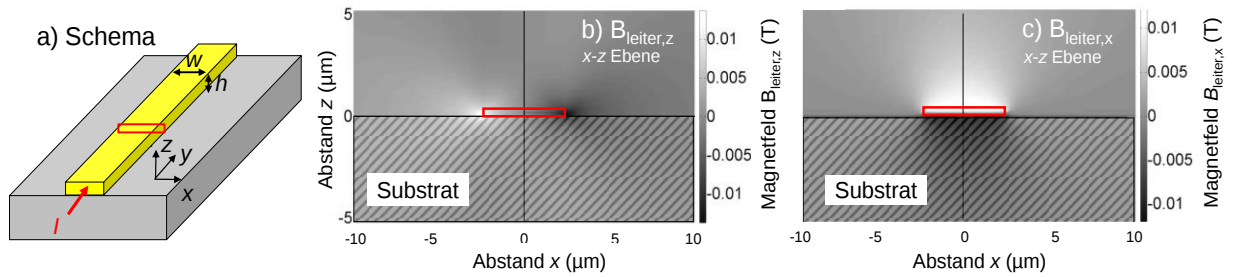


Abbildung 36: Schematische Skizze zur Berechnung des Feldes einer in y -Richtung unendlich ausgedehnten Leiterbahn mit Höhe h und Breite w (a). Magnetfeldverlauf der z -Komponente $B_{\text{leiter},z}$ (b) und der x -Komponente $B_{\text{leiter},x}$ in (c) in der Nähe einer Leiterbahn für $h = 200 \text{ nm}$ und $w = 5 \mu\text{m}$. Der Strom I beträgt 100 mA . Der Leiterquerschnitt ist durch das rot eingezeichnete Rechteck skizziert.

Die Magnetfeldkomponente $B_{\text{leiter},z}$ weist entsprechend der Berechnung Feldmaxima an den linken und rechten Seitenflächen der Leiterbahn auf und verläuft symmetrisch zur x -Achse und antisymmetrisch zur z -Achse. Die maximal erzeugten Felder an den Kanten belaufen sich für $I = 100 \text{ mA}$ auf $B_{\text{leiter},z} \approx \pm 15 \text{ mT}$ und nehmen mit zunehmendem Abstand von der Leiterbahn ab. Die Komponente $B_{\text{ext},x}$ weist für $I = 100 \text{ mA}$ ein maximales Feld von ca. $B_{\text{leiter},x} \approx \pm 12 \text{ mT}$ direkt an der Ober- und Unterkante der Leiterbahn auf. Der Verlauf ist hierbei symmetrisch zur z -Achse und antisymmetrisch zur x -Achse. Wird ein zusätzliches, homogenes Feld $\vec{B}_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x}\vec{e}_x + B_{\text{ext},y}\vec{e}_y + B_{\text{ext},z}\vec{e}_z$ eingeprägt, ergibt sich das in Gleichung (33) einzusetzende Magnetfeld aus der Überlagerung von homogenem Feld und Magnetfeld der Leiterbahn zu $\vec{B} = \vec{B}_{\text{ext}} + \vec{B}_{\text{leiter}}$. Für das externe Magnetfeld werden zur Berechnung der Energie- und Kräfterlandschaft nur die Komponenten $B_{\text{ext},x}$ und $B_{\text{ext},z}$ berücksichtigt, da der Leiter selbst kein Feld bzw. Feldgradienten entlang der y -Richtung erzeugt und sich somit kein Einfluss einer Komponente $B_{\text{ext},y}$ ergibt. Für die resultierende Kraft auf ein superparamagnetisches Partikel bei Überlagerung eines homogenen Feldes zum Leiterbahnfeld ergibt sich demnach:

$$\vec{F} = \frac{\chi_v V}{2\mu_0} \nabla |\vec{B}|^2 = \frac{\chi_v V}{2\mu_0} \nabla (|\vec{B}_{\text{leiter}}|^2 + 2B_{\text{leiter},x}B_{\text{ext},x} + 2B_{\text{leiter},z}B_{\text{ext},z} + |\vec{B}_{\text{ext}}|^2) \quad (36)$$

Abbildung 37 zeigt die Energie- und Kräftelandschaften in unmittelbarer Nähe der Leiterbahn für verschiedene Konfigurationen des externen Feldes $\vec{B}_{\text{ext}}$ bei einem Stromfluss von $I = 60$ mA. Die Ergebnisse sind zum einfacheren Verständnis nur für den Halbraum $H = (x, z \mid x > 0)$ gezeigt.

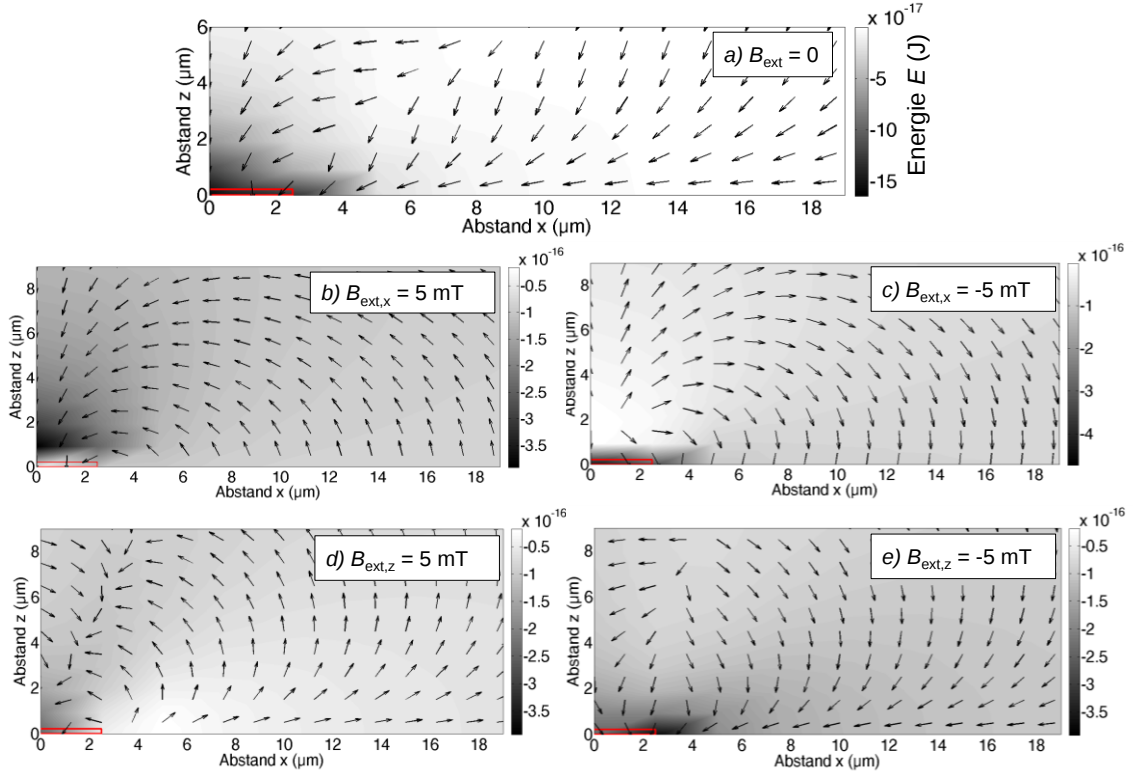


Abbildung 37: Energielandschaft (in Graustufen entsprechend Skala rechts) und Kräfte (Pfeildarstellung) auf ein superparamagnetisches Partikel in der Umgebung der Leiterbahn. Die Kraftpfeile wurden jeweils auf ihre Länge normiert. Die Annahmen der Berechnung betragen $I = 60$ mA, $r_p = 1.4$ μm und $\chi_v = 0.7$. Die Konfiguration des extern angelegten Feldes ist in den Abbildungen angegeben.

Wird kein externes Feld angelegt (Abbildung 37a)) zeigt die resultierende Energielandschaft minimale Energie direkt an den Kanten der Leiterbahn (rot markiert). Dies führt dazu, dass sich das Partikel unabhängig von seiner Ausgangsposition an den Kanten der Leiterbahn anlagert. Dieses Verhalten ist unabhängig von der gewählten Stromrichtung durch die Leiterbahn, da das Partikel nur vom Feld der Leiterbahn aufmagnetisiert wird, was zur rein anziehenden Kraft auf das Partikel führt. Wird ein externes Feld angelegt, so wird das Partikel zusätzlich zum Leiterbahnfeld B_{leiter} durch das externe Feld aufmagnetisiert, was gemäß (36) zu einer Änderung der Kräfte- und Energielandschaft führt. Für externes Magnetfeld in positive x -Richtung (Abbildung 37b)) wird für die gezeigte Halbebene zusätzlich eine durch den zweiten Term in Runden Klammern in Gleichung (36) gegebene Kraft induziert. Dies führt zu einer zusätzlichen, anziehenden Kraftkomponente durch die Leiterbahn. Das Energieminimum befindet sich für diesen Fall auf der Oberseite

der Leiterbahn. Wird ein externes Magnetfeld wie in Abbildung 37c) in negative x -Richtung angelegt, so erfährt das Partikel eine von der Leiterbahnoberseite abstoßende Kraft. Das Energieminimum befindet sich für diesen Fall auf der Unterseite der Leiterbahn (hier nicht zu sehen). Da die Bewegung des Partikels aber durch das Substrat bei $z = 0$ nach unten begrenzt ist, kann lediglich eine Abstoßung parallel zur Oberfläche erfolgen. Wird ein Magnetfeld in positive z -Richtung angelegt (Abbildung 37d)) ergibt sich analog zu negativen Feldern in x -Richtung eine abstoßende Kraft auf das Partikel, die für ein Partikel nahe der Substratoberfläche annähernd in x -Richtung ausgerichtet ist. Ein negatives Feld $B_{\text{ext},z}$ (Abbildung 37e)) führt hingegen zur Anziehung des Partikels hin zur rechten Leiterbahnkante. Diese berechneten Ergebnisse zeigen, dass durch das Anlegen eines zusätzlichen, externen Feldes die Energielandschaft und Kräfterandschaft in der Umgebung der Leiterbahn geändert werden kann und neben einer reinen Anziehung durch Überlagerung des externen Feldes auch abstoßende Kräfte auf das Partikel erzielt werden können. Die optimale Feldkonfiguration zur Verwendung für Lab-On-Chip Manipulation kann aber nur durch einen quantitativen Vergleich aller gezeigten Fälle bezüglich der für die Anwendung relevanten Kraftkomponenten erfolgen, was im Folgenden vorgestellt wird.

3.3.3 Auswahl der optimalen Feldkonfiguration – Quantitativer Vergleich

In der Lab-On-Chip Anwendung soll ein einzelnes Partikel gezielt hin zur aktiven Sensorfläche transportiert werden. Bedingt durch die Mikrostrukturierung von Sensor- und Aktoreinheit befinden sich beide Einheiten auf der Substratoberfläche in einer Höhenebene bzgl. der z -Koordinate. Für die Manipulation spielt also im Wesentlichen die in-plane Kraftkomponente in F_x eine Rolle, da durch diese das Partikel parallel zur Substratoberfläche geführt werden kann. Zunächst wird die Abhängigkeit der Kraft F_x für einen gegebenen Strom von $I = 60$ mA und variables $B_{\text{ext},z}$ in Abbildung 38 betrachtet. Die Ergebnisse sind unter Annahme einer Bewegung des Partikels parallel zur Oberfläche für $z_0 = \text{const.} = 1.4 \mu\text{m}$ (entspricht einem M-280 Partikel in direktem Kontakt mit der Substratoberfläche) berechnet. Die Berechnung erfolgt zunächst für Abstände $x > 10 \mu\text{m}$. Eine Betrachtung der Kräfte für geringere Abstände, für die die Ausdehnung des Partikels gegenüber dem Abstand des Partikels zur Leiterbahn nicht mehr vernachlässigt werden kann, erfolgt in einem späteren Teil der Arbeit.

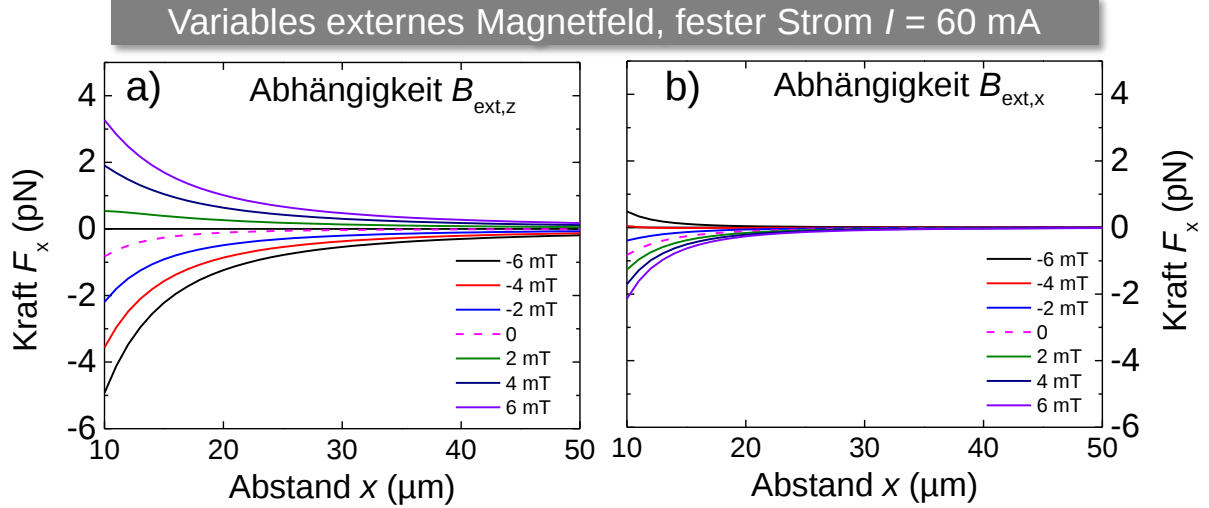


Abbildung 38: In-Plane Kraft F_x auf ein superparamagnetisches Partikel mit $r_p = 1.4 \mu\text{m}$ und $\chi = 0.7$ in Abhängigkeit vom Abstand x zur Leiterbahnmitte (bei $x = 0$, $z = 100$ nm) für einen konstanten Strom von $I = 60$ mA durch die Leiterbahn. Die Kräfte wurden für einen konstanten Abstand $z_0 = 1.4 \mu\text{m}$ berechnet. Die Konfiguration des externen Feldes $B_{\text{ext},z}$ (a)) und $B_{\text{ext},x}$ (b)) ist in den Abbildungen angegeben.

Für $B_{\text{ext},z} \neq 0$, $B_{\text{ext},x} = 0$ (a)) ergibt sich für die berechneten Fälle für alle $B_{\text{ext},z} > 0$ eine abstoßende Kraft ($F_x > 0$), sowie eine anziehende Kraft ($F_x < 0$) für negative $B_{\text{ext},z}$. In beiden Fällen steigt die Kraft mit steigendem, externem Magnetfeld $B_{\text{ext},z}$. Die anziehende Kraft fällt für betragsgleiches $B_{\text{ext},z}$ größer als die abstoßende Kraft aus (vgl. bspw. grüne und blaue Kurve in a) für $|B_{\text{ext},z}| = 2$ mT). Dieser Effekt lässt sich durch Betrachten von Gleichung (36) verstehen. Die Gesamtkraft F_x ergibt sich aus der Summe der reinen Anziehung durch den Leiter (erster Summand in runden Klammern) und der Überlagerung von der Magnetfeldkomponente des Leiters $B_{\text{leiter},z}$ und externem Feld $B_{\text{ext},z}$ (dritter Summand in Klammern). Für $B_{\text{ext},z} < 0$ wirken beide Teilkräfte anziehend, während für $B_{\text{ext},z} > 0$ die rein anziehende Kraft der Leiterbahn der abstoßenden Kraft durch Überlagerung des externen Feldes entgegenwirkt und diese verringert. Ohne angelegtes Feld $B_{\text{ext},z}$ (gestrichelte Kurve) nimmt die Kraft F_x gegenüber den Fällen $B_{\text{ext},z} \neq 0$ mit zunehmendem Abstand x zur Leiterbahn schneller ab. Dies liegt daran, dass die rein anziehende Kraft ohne externes Feld entsprechend Gleichung (36) proportional zum Gradient des Betragsquadrats des (mit zunehmendem Abstand geringer werdendem) Leiterbahnfelds $B_{\text{leiter},z}$ ist, während bei Überlagerung von $B_{\text{ext},z}$ der additive Anteil (3. Summand in Gleichung (36)) nur linear vom Gradient von $B_{\text{leiter},z}$ abhängt, was zu einer schwächeren Ortsabhängigkeit der Kraftkomponente $F_x(x)$ führt.

Im Fall $B_{\text{ext},x} \neq 0$, $B_{\text{ext},z} = 0$ (b)) ergeben sich im Vergleich zu den in a) gezeigten Ergebnissen für dieselben Feldstärken geringere Kräfte F_x auf das Partikel. Während sich für $B_{\text{ext},x} > 0$ rein anziehende Kräfte ergeben ($F_x < 0$), stellt sich die Situation für $B_{\text{ext},x} < 0$ komplizierter dar. Für $B_{\text{ext},x} < 0$ ergibt sich für ein geringes Feld von $B_{\text{ext},x} = -2$ mT (blaue Linie in b) ebenfalls eine anziehende Kraft. Dies liegt daran, dass die durch das externe Feld hervorgerufene Abstoßung für geringes $B_{\text{ext},x}$ (2. Term in Gleichung (36)) kleiner als die rein durch den Leiter gegebene Anziehung (1. Term in Gleichung (36)) ist, was in Summe

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

zu einer Anziehung des Partikels ($F_x < 0$) führt. Für größere, negative Felder $B_{\text{ext},x}$ überwiegt der abstoßende Anteil aus Überlagerung der Felder, was insgesamt zur Abstoßung ($F_x > 0$) des Partikels führt. Neben dem externen Feld kann alternativ der Strom durch die Leiterbahn in Betrag und Richtung variiert werden. Dies ist insbesondere dann sinnvoll, wenn das externe Feld beispielsweise durch die Nutzung eines Permanentmagneten zur Erzeugung von B_{ext} vorgegeben ist. Die Ergebnisse für $F_x(I, B_{\text{ext}} = \text{const.})$ sind in Abbildung 39 dargestellt.

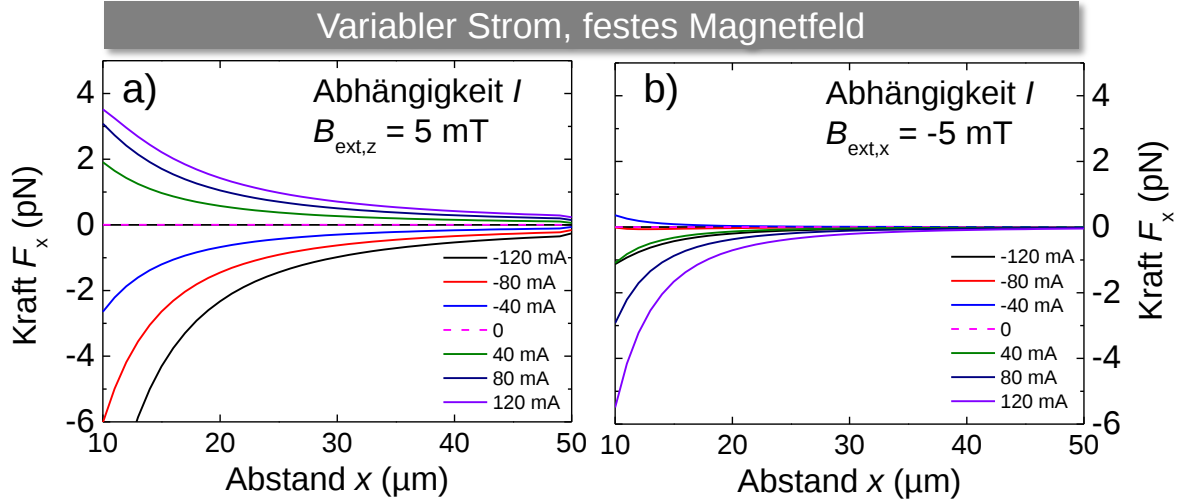


Abbildung 39: In-Plane Kraft F_x auf ein superparamagnetisches Partikel mit $r_p = 1.4 \mu\text{m}$ und $\chi = 0.7$ in Abhängigkeit vom Abstand x zur Leiterbahnmitte (bei $x = 0$, $z = 100 \text{ nm}$) für ein konstantes Magnetfeld von $B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$ (a)) und $B_{\text{ext},x} = -5 \text{ mT}$ (b)). Die Kräfte wurden für einen konstanten Abstand $z_0 = 1.4 \mu\text{m}$ berechnet. Der zur Rechnung benutzte Strom durch die Leiterbahn I ist in den jeweiligen Abbildungen angegeben.

Im Fall $B_{\text{ext},z} = \text{const.} = 5 \text{ mT}$ (a)) ergibt sich für $I > 0$ eine abstoßende Kraft, die mit zunehmendem Strom zunimmt. Für $I < 0$ ergibt sich eine anziehende Kraft, die im Vergleich zur abstoßenden Kraft für denselben Betrag des Stroms (vergleiche beispielsweise violette und schwarze Kurve in a) für $|I| = 120 \text{ mA}$) größer ausfällt. Wird kein Strom in den Leiter eingeprägt (gestrichelte Linie) ist die Kraft $F_x = 0$, da der durch die Leiterbahn erzeugte Feldgradient Null wird und nur ein homogenes Magnetfeld auf das Partikel einwirkt. Für ein Feld $B_{\text{ext},x} = \text{const.} = -5 \text{ mT}$ (b)) ist die Kraft F_x für die betrachteten Ströme $I > 0$ abstoßend, während sich die Situation für $I < 0$ komplizierter darstellt. Wird ein geringer negativer Strom ($I = -40 \text{ mA}$, blaue Kurve in b)) eingeprägt, ergibt sich eine geringe, abstoßende Kraft. Für größere, negative Ströme wirkt die Kraft F_x hingegen anziehend auf das Partikel. Dies liegt daran, dass für größere negative Ströme der rein durch den Leiter gegebene, anziehende Teil (1. Summand in Gleichung (36)) größer als der abstoßende Teil aus Überlagerung des Feldes $B_{\text{ext},x}$ mit dem Leiterbahnfeld $B_{\text{leiter},x}$ (2. Summand in Gleichung (36)) ist, was netto zur Anziehung des Partikels mit $F_x < 0$ führt. Zusammengefasst lässt sich aussagen, dass durch zusätzliches Anlegen eines externen Feldes die horizontale Kraft F_x im betrachteten Abstandsbereich sowohl in Betrag als auch Richtung beeinflusst werden kann. Die Kräfte fallen im direkten Vergleich für $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$ größer als im Fall $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x}$ aus. Dies führt dazu, dass für eine vorgegebene Kraft auf das

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Partikel und gegebenem Strom I ein geringeres Feld $B_{\text{ext},z}$ im Vergleich zu $B_{\text{ext},x}$ benötigt wird. Dieser Umstand erlaubt bei Verwendung von Elektromagneten oder Luftspulen zur Erzeugung der externen Felder eine bei Verwendung von $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$ gegenüber $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x}$ einfachere, technische Realisierung. Für die Krafterzeugung $F_x > 0$ ergibt sich eine obere Grenze für den Strom I durch den Umstand dass bei hohen Strömen die rein anziehende Kraft des Leiters die abstoßende Kraft durch die Überlagerung der externen Felder dominiert. Dies tritt im Fall von angelegtem Feld $B_{\text{ext},x}$ schon für deutlich geringere Ströme I im Vergleich zu $B_{\text{ext},z}$ auf, was den Bereich für nutzbaren Strom und somit die erzielbare Kraft F_x bei Verwendung von $B_{\text{ext},x}$ gegenüber $B_{\text{ext},z}$ mehr einschränkt. Unabhängig von den erzielbaren Kräften F_x muss bedacht werden, dass sich in Kombination mit mikro-strukturierten GMR Sensoren zur lokalen Detektion der Partikel eine eventuell unerwünschte Wechselwirkung des Sensors mit dem externen Feld ergibt. Der Sensor reagiert dabei bedingt durch seinen Aufbau aus magnetischen Dünnschichten bei Feldern senkrecht zur Schichtebene (hier gleichbedeutend mit $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$) unempfindlicher im Vergleich zum Feldern parallel zur Schichtebene ($B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x}$). Diese für $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$ geringere Wechselwirkung mit dem Sensor in Kombination mit dem breiteren Spektrum an erzielbaren Kräften legt die Wahl eines externen Feldes senkrecht zur Schichtebene ($B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$) für die On-Chip-Manipulation von superparamagnetischen Partikeln nahe, weshalb für alle folgenden Experimente diese Feldkonfiguration umgesetzt wurde.

3.3.4 Experimentelle Verifikation der Partikelmanipulation

Wie die Modellrechnungen zeigen, lässt sich unter Anwendung eines externen, additiven Feldes eine abstoßende Kraft durch die Leiterbahn auf das Partikel erzielen. Um dies zu überprüfen wurde eine Manipulationsstruktur hergestellt, mittels der die in den Berechnungen vorhergesagte, optimale Konfiguration von Strom und externem Feld experimentell umgesetzt werden kann. Dieses ist Abbildung 40 gezeigt. Zunächst wurde analog zu den in Kapitel 3 beschriebenen Lithographieschritten eine mikrostrukturierte Leiterbahn mit einer Schichtfolge aus 20 nm Mo und 180 nm Au ($h = 200$ nm) und einer Breite von $w = 5$ μm erzeugt, die in Abbildung 40a) dargestellt ist. Die Struktur wurde auf einem Si Wafer abgeschieden, auf den zuvor mittels chemischer Gasphasenabscheidung (PECVD) eine 300 nm dicke SiO_2 Schicht abgeschieden wurde, um die Leiterbahn elektrisch vom Si Substrat zu trennen. Um das externe, homogene Feld zu erzeugen, wurde eine Helmholtz-Spule konstruiert, die sich in verwendeten optischen Mikroskop-Aufbau (Olympus BX60) integrieren lässt. Die Helmholtzspule (Abbildung 40d)) ermöglicht im Gegensatz zur Verwendung von Permanentmagneten eine variable Einstellung sowohl von Richtung als auch Betrag des externen Felds. Das Setup eignet sich in dieser Konfiguration für Langzeitexperimente (mit Messzeiten von mehreren Stunden) mit Strömen bis zu $I = 100$ mA und $B_{\text{ext},z}$ bis zu 7 mT. Um Partikel in flüssiger Umgebung messen zu können wurde

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

für alle Langzeitversuche (mit Messzeiten > 10 min) in den Aufbau ein mit Polymethylmethacrylat (PMMA, ugs. Plexiglas®) abgedecktes Flüssigkeitsreservoir aus Polydimethylsiloxan (PDMS) integriert, das schematisch in Abbildung 40b) im Querschnitt dargestellt ist. Das Reservoir kann durch einen Messinghalter von oben gegen die die Mikrostruktur tragende Leiterplatte gepresst werden und verhindert dadurch ein Austrocknen der Flüssigkeit bei Langzeitversuchen und die eventuell durch das Verdunsten der Flüssigkeit auftretenden Strömungen der die Partikel umgebenden Flüssigkeit.

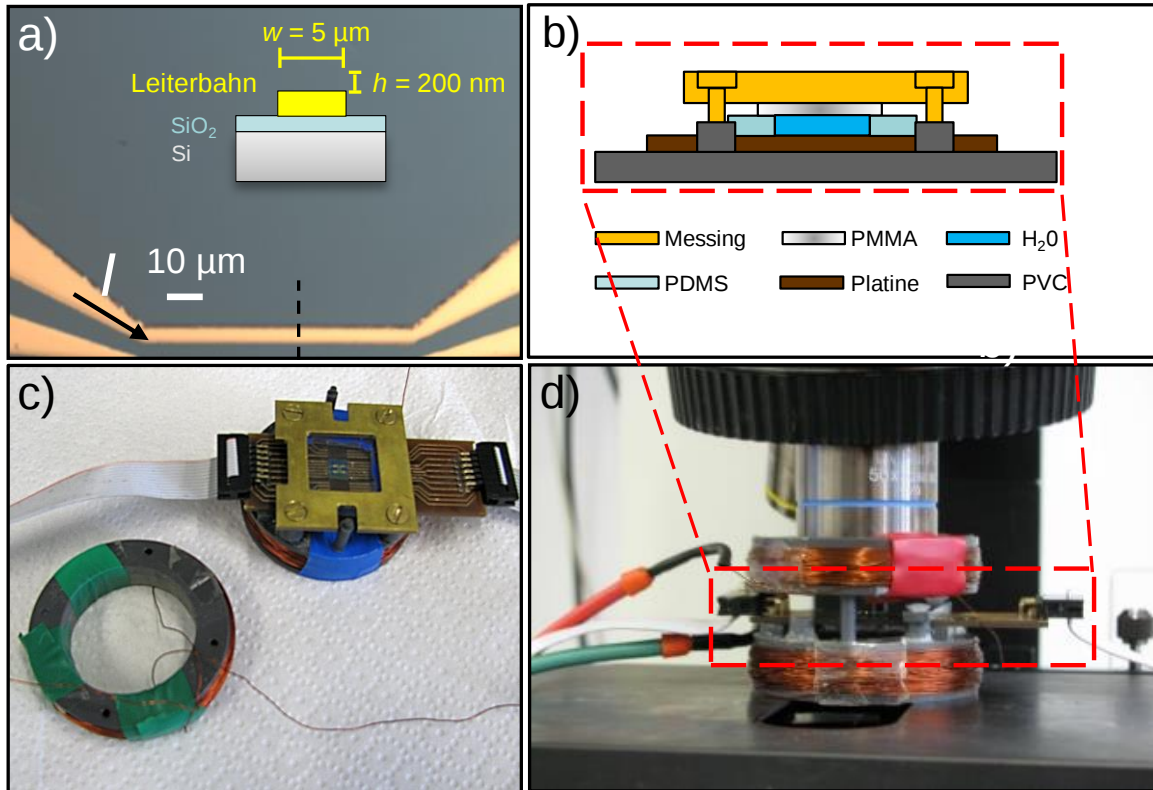


Abbildung 40: Lichtmikroskopaufnahme der verwendeten mikrostrukturierten Leiterbahn in a). Der Stromfluss durch die Leiterbahn ist exemplarisch eingezeichnet. Die schematische Querschnittszeichnung ist entlang der gestrichelten Linie dargestellt. In b) ist eine schematische Darstellung der PDMS Probenkammer gezeigt. In c) ist der komplette Messaufbau aus Manipulationsstruktur, Platine, Flüssigkeitsreservoir und Helmholtzspule gezeigt. Abbildung d) zeigt die Integration des Aufbaus in das optische Mikroskop.

In einem ersten Experiment wurde die Kraftwirkung auf ein Dynabead® M-280 Partikel experimentell untersucht. Dabei wurde bei einem festen Feld von $B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$ und einem Stromfluss von $|I| = 57 \text{ mA}$ die Richtung des Stroms zu festen Zeitpunkten geändert. In Abbildung 41 ist der zeitliche Verlauf der Partikelbewegung für die zwei verschiedenen Stromrichtungen gezeigt. In Abbildung 41a) ergibt sich durch einen negativen Strom in y -Richtung in Verbindung mit einem positiven Feld in z -Richtung im Einklang mit den Ergebnissen aus Abbildung 39a) eine anziehende Kraft $F_x < 0$ auf der rechten Seite der Leiterbahn, wodurch sich das Partikel in Richtung der Leiterbahn bewegt. Die Geschwindigkeit des Partikels ist auf der beobachteten Zeitskala aufgrund der großen, durch die Viskosität der flüssigen Umgebung hervorgerufenen Dämpfung in erster Näherung direkt

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

proportional zur Kraft auf das Partikel [143]. Aus diesen Grund kann kann aus der Messung gefolgert werden, dass es sich bei der Anziehung des Partikels um eine beschleunigte Bewegung handelt, da sich das Partikel während des Zeitraums $t = 1600 \text{ ms} - 4000 \text{ ms}$ deutlich weniger weit als im nahezu gleichen Zeitraum von $t = 4000 \text{ ms} - 7600 \text{ ms}$ bewegt. Dies entspricht ebenfalls den nach Abbildung 39a) erwarteten Ergebnissen, da demnach die Kraft F_x und somit die Geschwindigkeit v_x des Partikels mit abnehmendem Abstand des Partikels zur Leiterbahn zunehmen. Abbildung 41b) zeigt die Situation bei Umkehrung der Stromrichtung durch die Leiterbahn zum Zeitpunkt $t = 0$. Durch das Umpolen des Stroms erfährt der Partikel, gemäß Abbildung 39a) eine von der Leiterbahn abstoßende Kraft $F_x > 0$. Diese nimmt mit größer werdendem Abstand zur Leiterbahn ab, was erklärt, dass das Partikel innerhalb der ersten 2409 ms eine größere Strecke zurücklegt als innerhalb derselben Zeitspanne von $t = 2409 \text{ ms}$ bis $t = 4809 \text{ ms}$. Das selbe Verhalten des Partikels lässt sich bei Änderung des externen Feldes $B_{\text{ext},z}$ unter Verwendung eines konstanten Stroms I durch die Leiterbahn beobachten. Für externes Feld $B_{\text{ext},z} = 4.4 \text{ mT}$ wird, wie in Abbildung 41c) gezeigt, das Partikel von der Leiterbahn angezogen, während sich für $B_{\text{ext},z} = -4.4 \text{ mT}$ entsprechend Abbildung 41d) eine Abstoßung des Partikels von der Leiterbahn ergibt. Die beobachtete Abstoßung und Anziehung des Partikels ist somit konsistent zu den Vorhersagen aus der Berechnung der Kraft F_x in Abhängigkeit des Stroms I und des externen Feldes $B_{\text{ext},z}$, wie weiter oben vorgestellt. Wird kein externes Feld angelegt (hier nicht gezeigt), werden die Partikel hin zur Leiterbahn transportiert lagern sich dort an. Anschließend kann die Position nicht mehr geändert werden und das Partikel nicht mehr frei über die Substratoberfläche bewegt werden.

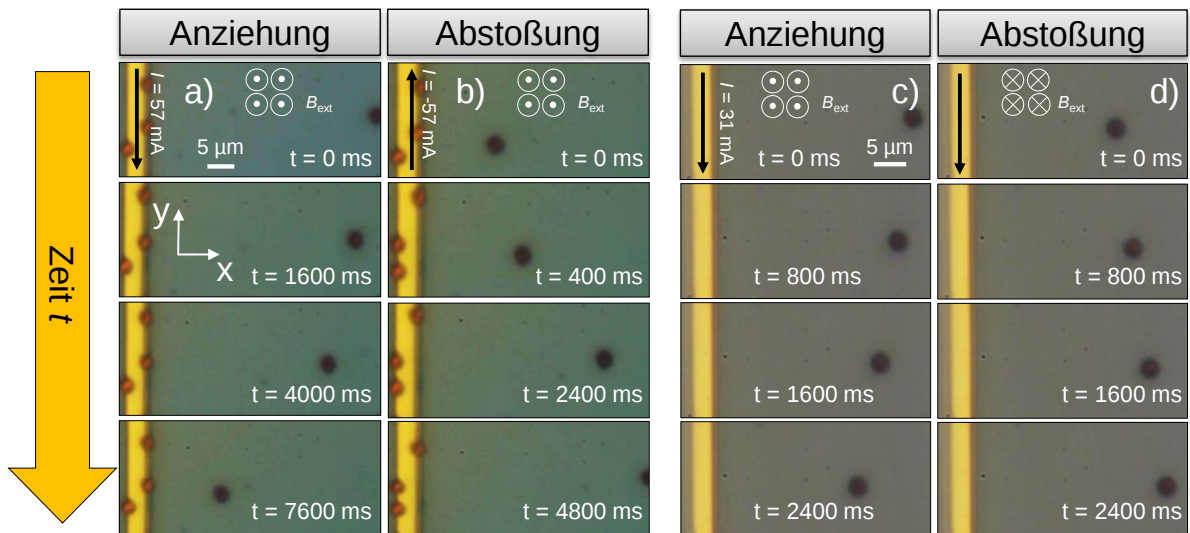


Abbildung 41: Mikroskopische Aufnahmen während der Bewegung eines einzelnen M-280 Partikels bei Beaufschlagung eines Stromes von $I = 57 \text{ mA}$ (a)) und $I = -57 \text{ mA}$ (b)) durch den Leiter links in den Abbildungen. Das externe Magnetfeld wurde während der Messung konstant auf $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$ gesetzt. Die Partikelbewegung bei Änderung des externen Feldes $B_{\text{ext},z}$ für konstanten Manipulationsstrom ist in c) für $B_{\text{ext},z} = 4.4 \text{ mT}$ und in d) für $B_{\text{ext},z} = -4.4 \text{ mT}$ gezeigt. Die Zeitpunkte, zu denen die Bilder aufgenommen wurden, sowie die Stromrichtung für I und die Richtung von $B_{\text{ext},z}$ ist in den jeweiligen Bildern für $t = 0$ angegeben.

3.4 Limitierungen bei der Manipulation mittels mikro-strukturierter Leiterbahnen

Die Ergebnisse zeigen, dass sich durch die Überlagerung eines geeigneten externen Magnetfeldes zusätzliche Möglichkeiten für die Konfiguration der auf die Partikel wirkende in-plane Kraft F_x ergeben. Jedoch kommt es, wie im Folgenden gezeigt wird, unter gewissen Konfigurationen von Strom I , externem Feld $B_{\text{ext},z}$ sowie dem initialen Ort des Partikels bei Zuschalten des Stroms zu Einschränkungen bei der Manipulierbarkeit.

3.4.1 Auslenkung des Partikels vertikal zur Substratebene

Abbildung 42 zeigt die Abstoßung eines M-280 Partikels unter einer dem in Abbildung 41 gezeigten Experiment ähnlichen Konfiguration von externem Feld $B_{\text{ext},z}$ und Strom I . Im Unterschied zum vorherig gezeigten Experiment befindet sich das Partikel zum Einschaltzeitpunkt $t = 0$ des Stroms entsprechend Abbildung 42a) im Abstand von nur wenigen μm zur Leiterbahn.

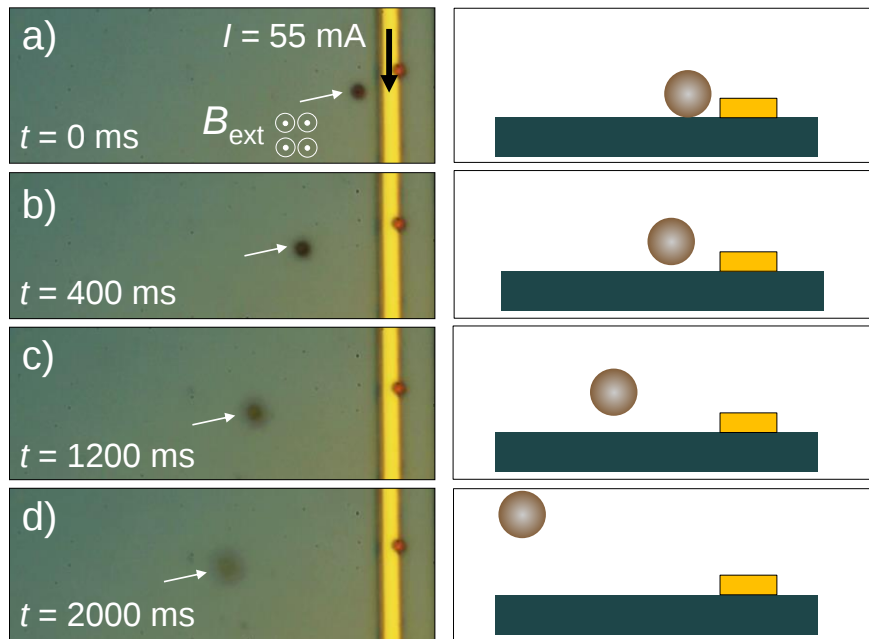


Abbildung 42: Mikroskopische Aufnahme (jeweils links) der Anhebung eines M-280 Partikels, das durch die Leiterbahn abgestoßen wird. Der Strom durch die Leiterbahn (rechts in den Mikroskopaufnahmen) ist $I = 55 \text{ mA}$ und das externe Magnetfeld ist $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$. Der Strom I wird bei $t = 0$ eingeschaltet. Die Abbildungen rechts der Mikroskopaufnahmen zeigen schematisch die jeweilige Partikelposition zu den verschiedenen Zeitpunkten.

Das Partikel wird zunächst bei $t = 0$ direkt nach dem Einschalten des Stroms I wie vorher gezeigt von der Leiterbahn abgestoßen. Während der Bewegung verlässt das Partikel den Bereich der Schärfentiefe des Mikroskops, was ab $t = 1200 \text{ ms}$ in Abbildung 42c) in einer immer stärker zunehmenden Unschärfe des Partikels resultiert. Da die Bewegung des Partikels nach unten bei $z = 0$ durch die Substratoberfläche eingeschränkt ist bedeutet dies, dass das Partikel im Unterschied zu den in Abbildung 41 dargestellten Ergebnissen zu-

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

sätzlich durch eine Kraft $F_z > 0$ in z -Richtung angehoben wird, welche qualitativ in Abbildung 37d) vor allem für geringe Abstände des Partikels zur Leiterbahn zu sehen ist. Für Zeiten $t \gg 2000$ ms verschwindet das Partikel aus dem vertikalen Fokusbereich und die Bewegung lässt sich nicht mehr nachvollziehen. Wird der Strom abgeschaltet, sinkt das Partikel aufgrund seiner im Vergleich zur flüssigen Umgebung größeren Massendichte wieder auf die Substratoberfläche ab (hier nicht gezeigt). Um das gezeigte Verhalten genauer zu verstehen, muss die Vertikalkraft quantitativ betrachtet werden. Abbildung 43 zeigt F_z in Abhängigkeit der Partikelposition (x, z) .

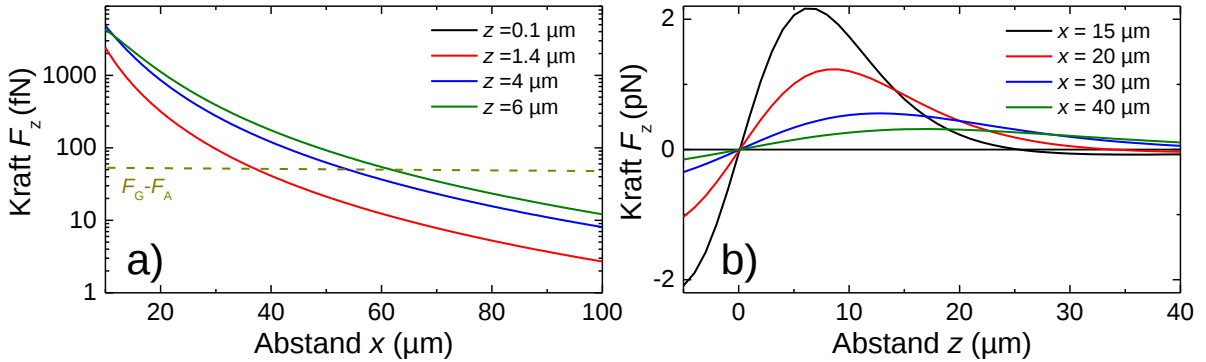


Abbildung 43: Berechnete vertikale Kraftkomponente F_z in Abhängigkeit vom Abstand x zur Leiterbahn für festes z (a)) und F_z in Abhängigkeit des Abstands z für festes x (b)). Die Berechnung wurde entsprechend Gleichung (33) für einen Strom von $I = 55$ mA, $B_{\text{ext},z} = 5$ mT, $\chi = 0.7$ und $r_p = 1.4 \mu\text{m}$ durchgeführt. Die braune, gestrichelte Linie entspricht der bei einer Partikelmassendichte von $\rho_p = 1.4$ g/cm³ [140] berechneten Netto-Gewichtskraft des Partikels ($F_G - F_A = 45$ fN) in Wasser mit einer Dichte von $\rho_w = 1$ g/cm³. Die Kurve in a) für $z = 0.1 \mu\text{m}$ entspricht einer Kraft von $F_z = 0$ und ist in der logarithmischen Darstellung nicht zu sehen.

Abbildung 43a) zeigt die auf das Partikel wirkende Kraft F_z in Abhängigkeit des Abstands x zur Mitte der Leiterbahn für verschiedene Höhen z . Für alle betrachteten Positionen z fällt die Kraft mit zunehmendem Abstand x zur Leiterbahn stark ab. Für einen Abstand von $z = 1.4 \mu\text{m}$, was dem direkten Kontakt des Partikels mit der Oberfläche des Substrats entspricht ergibt sich bis zu Abständen von $x \sim 38 \mu\text{m}$ eine Kraft F_z , die größer ist als die in negative z -Richtung wirkende Auftriebskraft $F_G - F_A = 45$ fN. In diesem Fall wird das Partikel zusätzlich zur Abstoßung parallel zur Substratoberfläche in positive z -Richtung angehoben. Für größere Abstände z des Partikels erhöht sich im betrachteten Bereich bei festem Abstand x zunächst die Vertikalkraft F_z . Dieser Umstand führt dazu, dass der Abstand x , an dem sich die abstoßende Kraft und die Auftriebskraft auf das Partikel gerade aufheben hin zu größeren Werten für x verschoben wird. Dies hat zur Folge, dass das Partikel trotz immer größer werdendem Abstand x weiter angehoben wird, was sich mit den gezeigten experimentellen Befunden deckt. Für einen nominellen Abstand von $z = 100$ nm (schwarze Kurve in Abbildung 43a)) ergibt sich eine Kraft $F_z = 0$, weshalb diese in der logarithmischen Darstellung nicht zu sehen ist. Abbildung 43b) zeigt die Abhängigkeit der berechneten vertikalen Kraftkomponente F_z von der Position z bei jeweils festen horizontalen Abständen x zur Leiterbahn. Bei einem festen horizontalen Abstand (bspw. $x = 15 \mu\text{m}$, blau) nimmt die Kraft F_z zunächst mit steigendem Abstand z zu um ab einem bestimmten Abstand z wieder abzunehmen. Dieses Verhalten kann aus der Überlagerung

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

zweier Effekte verstanden werden. Für $z < x/2$ nimmt zunächst die z -Komponente des Leiterbahnfeldes und damit die z -Komponente des Feldgradienten, respektive die Kraft F_z , mit steigendem Abstand z zu. Zum anderen erhöht sich bei steigendem z der Gesamt-
abstand $r = \sqrt{x^2 + z^2}$ des Partikels zur Leiterbahn, was das Leiterbahnfeld und die z -Komponente des Feldgradienten verringert. In Kombination führt dies zu einer maximalen Kraft $F_z(x, z)$ für $z \approx x/2$, die für $z > x/2$ wieder geringer wird. Die berechneten Befunde lassen sich gut mit den in den Experimenten gewonnen Erkenntnissen vereinbaren. Wird das Partikel, wie in Abbildung 43 gezeigt, angehoben, erhöht sich dadurch zunächst die Kraft F_z , was das Partikel weiter ansteigen lässt. Da gleichzeitig eine horizontale, abstoßende Bewegung in positive x -Richtung stattfindet, vergrößert sich während der Bewegung gemäß Abbildung 43b) der Wert z , ab dem das Partikel, aufgrund $F_z < F_G - F_A$ nicht mehr angehoben wird. Die beiden Effekte führen dazu, dass das Partikel analog zu den in Abbildung 42 gezeigten Ergebnissen bei größer werdender Entfernung zunächst nicht wieder absinkt sondern weiter ansteigt und für die Manipulation verloren geht. Abbildung 43b) zeigt weiterhin, dass sich für $z < 0.1 \mu\text{m}$ negative Kräfte F_z ergeben. Dies kann dadurch erklärt werden, dass die Kraft F_z auf das Partikel stets abstoßender Natur ist, was für negative z bedeutet, dass das Partikel von der Leiterbahn nach unten gestoßen wird. Dieser Umstand wird in den im Folgenden gezeigten Experimenten dazu eingesetzt, das Abheben des Partikels während der Manipulation reproduzierbar zu verhindern.

3.4.2 Manipulation in unmittelbarer Nähe zur Leiterbahn

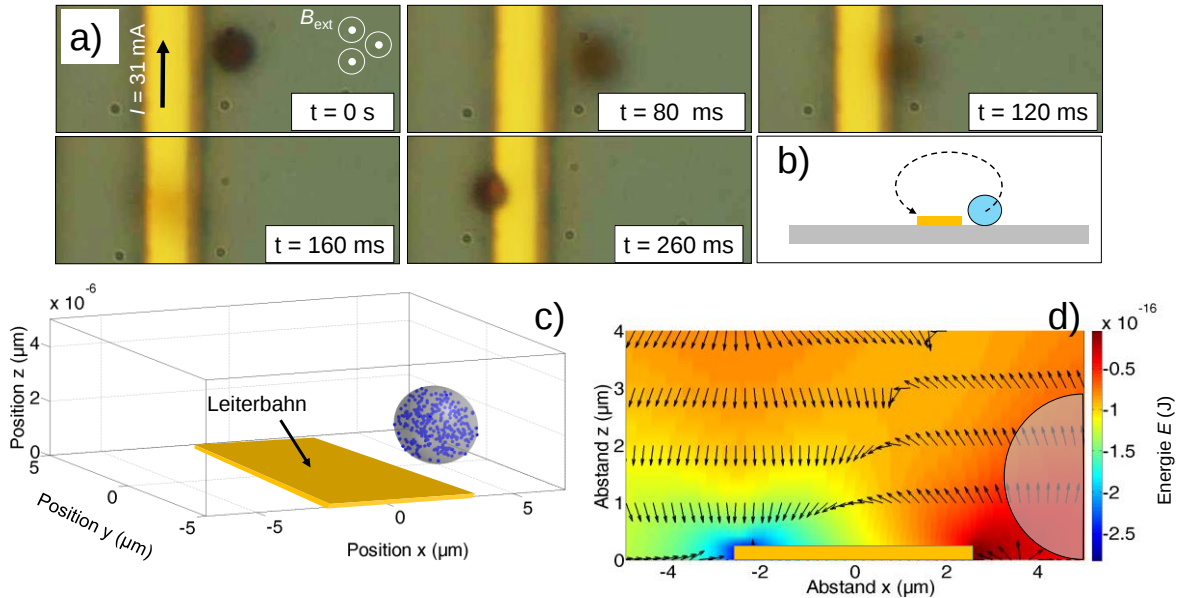


Abbildung 44: a) Mikroskopische Aufnahmen der Partikelbewegung für einen Strom von $I = 31 \text{ mA}$ (wird bei $t = 0$ zugeschaltet) und ein externes Feld von $B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$ gezeigt. In b) ist schematisch die Trajektorie des Partikels für die in a) gezeigte Bildserie dargestellt. In c) ist das Modell zur Berechnung der Kraft in unmittelbarer Nähe zur Leiterbahn dargestellt. Bezug d) zeigt die berechnete Energielandschaft entsprechend der rechts gegebenen Farbskala sowie die Kräftelandschaft (als Pfeile mit normierter Länge). Der Halbkreis rechts symbolisiert das Partikel zum Zeitpunkt $t = 0$. Der mikrostrukturierte Leiter ist in der Abbildung als gelbes Rechteck markiert.

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

In Abbildung 44a) ist die Manipulation eines M-280 Partikel in direkter Nähe zur Leiterbahn (Abstand des Partikels zur Leiterbahn $\sim$ Größe des Partikel) gezeigt. Der Strom $I = 31$ mA durch die Leiterbahn wird zum Zeitpunkt $t = 0$ bei einem externen Feld von $B_{\text{ext},z} = 5$ mT zugeschaltet. Direkt nach Einschalten des Stroms wird das Partikel gemäß den vorher gezeigten Ergebnissen zunächst von der Leiterbahn nach rechts oben abgestoßen. Anschließend bewegt es sich, wie in Abbildung 44b) schematisch gezeigt, in die entgegengesetzte Richtung über die Leiterbahn und lagert sich bei $t = 280$ ms am linken Rand der Leiterbahn wieder an. Ändert man nun die Stromrichtung bzw. die Richtung des externen Feldes $B_{\text{ext},z}$ erneut (hier nicht dargestellt), wandert das Partikel direkt auf die gegenüberliegende Seite der Leiterbahn, ohne sich von dieser vorher zu entfernen. Dieses Verhalten kann verstanden werden, indem man die Energie- und Kräfterandschaft in unmittelbarer Nähe der Leiterbahn im Bereich der beiden Leiterbahnkanten zum Einschaltzeitpunkt des Stroms I betrachtet. Da sich der Abstand des Partikels zur Leiterbahn in derselben Größenordnung wie die Größe des Partikels befindet, kann das Partikel zur Berechnung der Kraft nicht mehr als punktförmig betrachtet werden. Die Kraft muss deshalb über das gesamte Partikelvolumen bestimmt werden. Die Methode, die dazu angewendet wurde, ist schematisch in Abbildung 44c) dargestellt. Hierzu wird das M-280 Partikel aus $n = 300$ zufällig im Partikelvolumen verteilten Primärpartikeln (als blaue Punkte in Abbildung c) dargestellt) zusammengesetzt und die Kräfte, die auf die einzelnen Primärpartikel wirken, berechnet und anschließend zu einer Netto-Kraft $\vec{F}(\mathbf{x}, \mathbf{z})$ aufsummiert. Abbildung 44d) zeigt sowohl die Energielandschaft in unmittelbarer Nähe zur Leiterbahn sowie überlagert die Kraft $\vec{F}(\mathbf{x}, \mathbf{z})$ auf das M-280 Partikel (als auf die Länge normierte Pfeile). Die Berechnung zeigt, dass das Partikel, insofern es sich in einem geringen Abstand zur Leiterbahnkante auf der rechten Seite der Leiterbahnkante befindet, wie im Experiment beobachtet, zunächst angehoben und abgestoßen wird und in einer Höhe von wenigen μm oberhalb der Leiterbahn eine anziehende Kraft hin zur linken Leiterbahnkante erfährt, wo es sich im Energieminimum anlagert. Das Partikel lässt sich anschließend nicht mehr frei manipulieren, da je nach Richtung des Stroms oder externen Feldes nur noch zwei stabile Positionen an den Kanten der Leiterbahn eingenommen werden können. Dieser Umstand muss bei der Konstruktion eines Mikro-Aktors zur Positionierung von einzelnen Partikeln berücksichtigt werden.

Weiterhin konnte in allen Experimenten beobachtet werden, dass vor allem bei der Nutzung von hohen Manipulationsströmen ($I > 10$ mA) Partikel, die sich an direkt an der Leiterbahnkante angelagert hatten, nach einer gewissen Zeit selbst durch Umkehr des Manipulationsstroms oder externen Feldes nicht mehr bewegt werden konnten und an der Leiterbahnkante hafteten. Eine mögliche Ursache hierfür kann die Erwärmung der Partikel durch die Abwärme der Manipulationsleiterbahn bei hoher Strombelastung sein. Diese kann aufgrund der für die Partikel umgebenden Streptavidin Hülle niedrigen Denaturierungstemperatur von ~ 75 °C in wässrigen Medien [144] zur Zerstörung der Streptavidin

Hülle führen, was die elektrostatische Wechselwirkung (siehe DLVO Kräfte) und damit die Bindung der Partikel an die Oberfläche ändern kann.

3.5 Konzepte zur Manipulation und Positionierung von superparamagnetischen Einzelpartikeln

Die bisher gezeigten Ergebnisse erlauben jeweils unter gewissen Voraussetzungen die Abstoßung und die Anziehung von Einzelpartikeln an eine mikro-strukturierte Leiterbahn. Eine gewünschte Positionierung von Partikeln erfordert jedoch ein genau definiertes Minimum in der magnetischen Energie in zwei bzw. drei Raumdimensionen, was sich bei Verwendung eines linearen Leiters nicht realisieren lässt. In der Arbeit wurden, basierend auf den bisher gezeigten Erkenntnissen, zwei Mikrostrukturen entwickelt, mit denen sich eine Positionierung von Einzelpartikeln erzielen lässt. Diese werden im Folgenden vorgestellt und diskutiert.

3.5.1 Magnetische Ringfalle – Einzelpartikel

Eine möglichst einfach aufgebaute Struktur zur Positionierung von Einzelpartikeln kann mittels der in Abbildung 45 dargestellten Leiterbahn-Mikrostruktur erzielt werden. Dabei wurde zunächst wie skizziert ein photolithographisch vordefiniertes Loch mit einer Tiefe von $h \approx 2.5 \mu\text{m}$ durch Reaktives Ionenätzen (RIE) aus einem Si Substrat mit (100) Orientierung herausgeätzt. Anschließend wurde eine 300 nm dicke Schicht aus SiO_2 mittels PECVD abgeschieden, die die Si Oberfläche elektrisch passiviert. Im letzten Schritt wurde die stromführende Leiterbahn-Mikrostruktur, die schematisch in Abbildung 45a) dargestellt ist, bestehend aus einem Schichtstapel $\text{Mo}[20 \text{ nm}]/\text{Au}[180 \text{ nm}]$ oder $\text{Ta}[20 \text{ nm}]/\text{Au}[180 \text{ nm}]$ durch RF-Sputtern (Mo/Au) oder DC-Sputtern (Ta/Au) abgeschieden. Der Leiter selbst bildet eine Ringanordnung mit insgesamt vier Zuleitungen. Alle Strukturen enthalten zusätzlich vier scheibenförmige Markierungen (zu sehen in Abbildung 45b)) mit einem Durchmesser von $10 \mu\text{m}$, die symmetrisch um den Mittelpunkt des durch die Leiterbahn beschriebenen Kreises angeordnet sind und im selben Prozessschritt wie die stromführende Struktur aufgebracht werden. Diese dienen für die Auswertung der Partikelposition als Referenzpunkte zur Bestimmung der Partikelposition relativ zur Manipulationsstruktur.

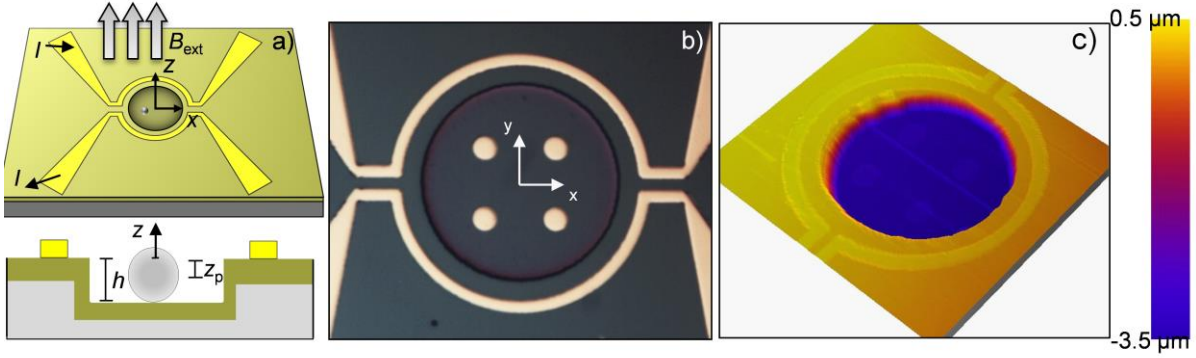


Abbildung 45: Schematische Darstellung der magnetischen Ringfalle (a)). In b) ist eine optische Abbildung der realen Mikrostruktur gezeigt. Die vier Scheiben im Inneren der Struktur werden als Referenzpositionen benutzt. Das geätzte Loch mit kreisförmiger Grundfläche liegt innerhalb des schwarzen Kreises, der die Ätzkante markiert. Abbildung c) zeigt eine mittels Profilometer (Bruker DektakXT®) erstellte Höhenverteilungskarte der Struktur entsprechend der rechts angegebenen Höhenskala.

3.5.2 Berechnung und Modellierung der Energielandschaft der Ringfalle

Für die genaue Vorhersage des Partikelverhaltens muss die Energie- und Kräfterlandschaft für die verwendeten, superparamagnetischen Partikel im Inneren der Struktur berechnet werden. Für die Ringanordnung existiert im Vergleich zur unendlich ausgedehnten Leiterbahn keine geschlossene, analytische Lösung der Magnetfeldlandschaft im gesamten Raum, weshalb das Magnetfeld numerisch bestimmt werden muss. Hierbei kann entweder mittels Finite-Elemente-Methode auf Grundlage der lokalen Lösung der Maxwell-Gleichungen vorgegangen werden, oder das Feld aus dem Biot-Savartschen Gesetz ermittelt werden. Für die Arbeit wurde aufgrund der einfacheren Implementierbarkeit die zweite Methode gewählt. Zur Berechnung der Energielandschaft innerhalb der Leiterschleife werden zunächst die von den einzelnen Bestandteilen der Leiterschleife (Ring und Zuleitungen) erzeugten Magnetfeldkomponenten (B_x, B_y, B_z) berechnet. Anschließend kann die Energie des Partikels und die auf das Partikel ausgeübte Kraft analog zum linearen Leiter mittels Gleichung (33) bestimmt werden. Exemplarische Ergebnisse sind für eine typische, experimentelle Konfigurationen von Strom $I = 25$ mA und externem Feld $B_{\text{ext},z} = 5.5$ mT in Abbildung 46 gezeigt.

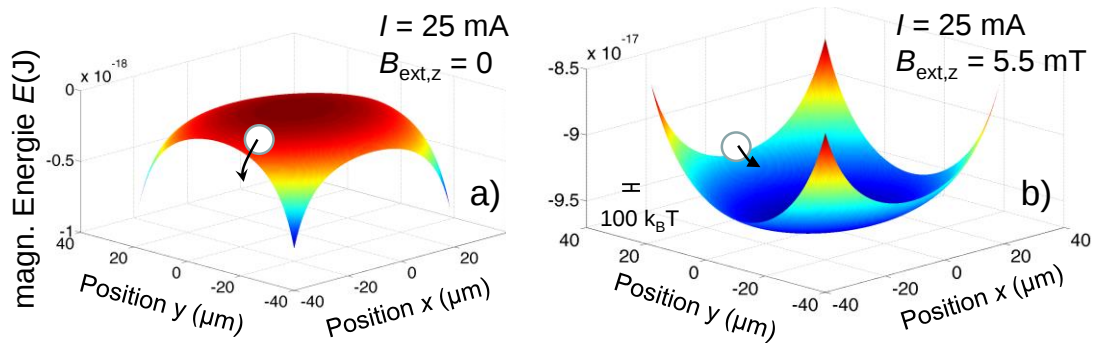


Abbildung 46: Berechnete Energielandschaft im Inneren der Manipulationsstruktur. Die Berechnung wurde für einen Strom von $I = 25$ mA und ein extern angelegtes Feld von $B_{\text{ext},z} = 0$ mT (a) sowie $B_{\text{ext},z} = 5.5$ mT (b)) durchgeführt. Für die Partikel wurde $r_p = 1.4$ μm, $\chi = 0.75$ und $z_p = -1.4$ μm verwendet.

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Die Berechnung zeigt, dass sich ohne ein angelegtes externes Magnetfeld ($B_{\text{ext},z} = 0$) (Abbildung 46a)) ein Energiemaximum im Zentrum der Leiterschleife ergibt, wobei die Energie unabhängig von der betrachteten Richtung mit größer werdender Entfernung vom Zentrum der Leiterschleife bei $(x,y) = (0,0)$ hin zur Leiterbahn abnimmt. Obwohl im Mittelpunkt der Leiterschleife nominell keine Kräfte auf das Partikel wirken, kann das Partikel dort entsprechend den gezeigten Ergebnissen nicht langzeitstabil positioniert werden, da jede Auslenkung des Partikels von $(x,y) = (0,0)$ (beispielsweise verursacht durch thermische Fluktuation oder Konvektion der Flüssigkeit) dazu führt, dass das Partikel zum nächstgelegenen Leiterbahnabschnitt hingezogen wird und sich dort anlagert. Die Struktur erlaubt damit in dieser Konfiguration keine definierte Positionierung des Partikels, da die genaue Position, an dem sich das Partikel an die Leiterbahn anlagert von seiner Initialposition abhängt. Wird ein externes Feld von $B_{\text{ext},z} = 5.5 \text{ mT}$ angelegt, ändert sich die Energielandschaft. Es ergibt sich ein Energieminimum, das durch die symmetrische Struktur des Rings in der Mitte bei $(x,y) = (0,0)$ liegt. Dies bedeutet, dass ein Partikel, das sich im Inneren der Ringstruktur befindet, unabhängig von seiner Initialposition in die Mitte der Ringstruktur wandert und dort im Energieminimum fixiert wird. Da die Energiedifferenz vom Mittelpunkt der Struktur bezüglich der weiter außen gelegenen Bereiche in der Nähe des Leiters ein Vielfaches der thermischen Energie $k_B T = 26 \text{ meV}$ bei $T = 300 \text{ K}$ beträgt (siehe Skalenbalken in Abbildung 46b)) kann das Partikel bei Raumtemperatur nicht durch thermische Fluktuation aus dem Energieminimum der Falle ausbrechen. Die Struktur dient somit als Falle für einzelne Partikel und wird deshalb im Folgenden als „magnetische Falle“ bezeichnet.

Zur Quantifizierung von Partikelfallen wird üblicherweise die Fallenstärke k herangezogen [103]. Diese gibt den für kleine Auslenkungen aus dem Energieminimum linearen Zusammenhang zwischen Rückstellkraft auf das Partikel und Abstand des Partikels vom Energieminimum an [145]. Für eine eindimensionale, jeweils entlang der Koordinatenachsen angenommene Auslenkung ergibt sich unter Annahme eines harmonischen Potentials E die Kraft entlang x und y Achse im einfachsten Fall nach [146] zu:

$$\vec{F}_x = -\frac{\partial}{\partial x} E = F_x \hat{e}_x = -k_x \vec{x} \quad (37)$$

$$\vec{F}_y = -\frac{\partial}{\partial y} E = F_y \hat{e}_y = -k_y \vec{y} \quad (38)$$

Durch die von den Zuleitungen verursachte geometrische Asymmetrie der Stromführung innerhalb der Leiterschleife kann nicht von identischen Fallenstärken k_x und k_y ausgegangen, so dass $k_x \neq k_y$ angenommen werden muss. Abbildung 47a) zeigt die berechnete Energie in unmittelbarer Nähe zum Energieminimum bei $(x,y) = (0,0)$.

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

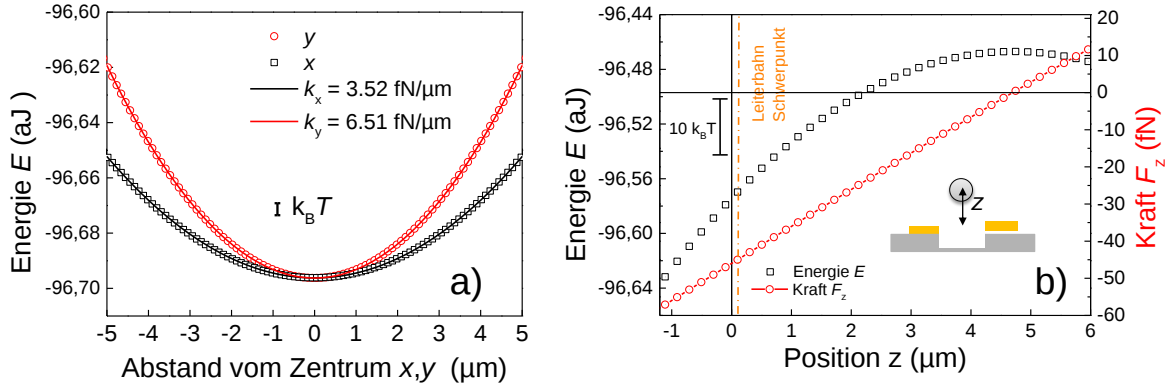


Abbildung 47: In a) ist die magn. Energie entlang der beiden Koordinatenachsen für $r_p = 1.4 \mu\text{m}$, $\chi = 0.75$ und $z_p = -1.4 \mu\text{m}$ gezeigt. Die Daten sind jeweils unter Annahme eines harmonischen Potentials an Gleichung (39) angepasst (durchgezogene Linien). Die resultierenden Fallsteifigkeiten k_x und k_y sind in der Abbildung angegeben. In b) ist die Gesamtenergie (magnetische Energie + Gravitationsenergie) und die resultierende Kraft F_z im Zentrum der Spule bei $(x,y) = (0,0)$ in Abhängigkeit der z -Koordinate dargestellt. Für die Berechnung wurde eine Massendichte von $\rho_w = 995 \text{ kg}/\text{m}^3$ und $\rho = 1400 \text{ kg}/\text{m}^3$ für das M-280 Partikel verwendet.

Die Energie lässt sich für den gezeigten Bereich entlang der beiden Koordinatenachsen über ein harmonisches Potential entsprechend den Gleichungen (37) und (38) nähern. Die Fallstärke $k_y = 6.27 \text{ fN}/\mu\text{m}$ ist größer als die Fallstärke $k_x = 3.59 \text{ fN}/\mu\text{m}$, was durch die durch die Zuleitungen bedingten „fehlenden“ Segmente der Ringstruktur links und rechts bei $x = \pm D/2$ und den Einfluss der Zuleitungen selbst erklärt werden kann. Im einfachsten Fall kann die Energielandschaft für jede beliebige Position (x,y) des Partikels am Grund der Leiterschleife (bei $z = -1.4 \mu\text{m}$) als Überlagerung der beiden harmonischen Potentiale mit den wie in Abbildung 47a) gezeigten Fallstärken unter Annahme einer minimalen Energie E_0 im Zentrum der Leiterschleife bei $(x,y) = (0,0)$ berechnet werden zu:

$$E = \frac{1}{2}(k_x x^2 + k_y y^2) + E_0 \quad (39)$$

Neben der stabilen Positionierung des Partikels in der x - y Ebene spielt nach den in Kapitel 3.4 gezeigten Ergebnissen die Stabilität des Partikels entlang der z -Richtung eine entscheidende Rolle für die Einsetzbarkeit der Struktur als langzeitstabile Falle. Abbildung 47b) zeigt die berechnete Energie sowie die Kraft F_z als Summe von magnetischer Kraft $F_{z,m}$ und auf das Partikel in wässriger Umgebung wirkender, um die Auftriebskraft reduzierter, Gewichtskraft $F_G - F_A$ im Energieminimum bei $(x,y) = (0,0)$ für eine veränderliche z -Koordinate des Partikels. Hierbei gilt $F_G - F_A = 4/3 \pi r_p^3 g (\rho_p - \rho_w)$ mit g der Gravitationskonstante sowie ρ_p und ρ_w der Massendichte von Partikel und Wasser. Die nur bei sehr geringen Abständen zur Substratoberfläche wirksame DLVO Wechselwirkung wird vorerst für die Betrachtung vernachlässigt. Analog zu den Ergebnissen, die für den linear ausgedehnten Leiter gezeigt wurden, ergibt sich für die Ringstruktur eine nach oben gerichtete, magnetische Kraftkomponente $F_{z,m}$, die mit steigendem z zunächst zunimmt und der nach unten

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

gerichteten, über z konstanten Kraft $F_G - F_A$ entgegengerichtet ist. Für $z \gtrsim 4.8 \mu\text{m}$ übersteigt die magnetische Kraftkomponente die Kraft $F_G - F_A$ des Partikels, was insgesamt zu einer positiven, nach oben gerichteten Kraft F_z auf das Partikel führt. Für Höhen $z > 4.8 \mu\text{m}$ erwartet man also ein Ansteigen des Partikels. Für $z < 4.8 \mu\text{m}$ ergibt sich eine nach unten gerichtete, negative Kraft F_z , die dazu führt, dass das Partikel in Richtung der Substratoberfläche absinkt und die Falle nicht nach oben verlassen kann. Für den berechneten Fall ergibt sich eine stabile z -Position für den direkten Kontakt des Partikels mit dem Substrat, was bei einer Ätztiefe von $b = 2.5 \mu\text{m}$ einer Partikelposition von $z = -1.2 \mu\text{m}$ entspricht. Die Energiedifferenz von der stabilen Höhe bei $z = -1.2 \mu\text{m}$ bis zur instabilen Lage bei $z = 4.8 \mu\text{m}$ beträgt $\Delta E \geq 40 k_B T$ gegenüber dem Fallen- und Gravitationspotential. Die gegenüber der thermischen Energie $k_B T$ große Energiebarriere hat zur Folge, dass die Wahrscheinlichkeit, dass das Partikel die Energiebarriere überwindet und aus der Falle entkommt, sehr gering ist. Die für die Ringstruktur berechnete Energielandschaft lässt insgesamt darauf schließen, dass sich die Falle für eine langzeitstabile, in drei Dimensionen stabile Positionierung von Einzelpartikeln eignen sollte, was im Folgenden experimentell weiter untersucht wird.

Experimentelle Verifikation der Funktion der Ringfalle

Abbildung 48 zeigt ein Experiment zur Positionierung eines einzelnen M-280 Partikels mit der magnetischen Falle. Für Einzelpartikelexperimente wird eine geringe Konzentration an Partikeln in der flüssigen Umgebung (hier destilliertes Wasser) benötigt. Dazu wurde für das gezeigte Experiment die vorhandene Lösung aus M-280 Partikel (enthält 10 mg M-280 Partikel pro ml Lösung) mit destilliertem Wasser im Verhältnis 1:10000 verdünnt und das PDMS Flüssigkeitsreservoir mit der Partikeldispersion gefüllt. Die Partikel sedimentieren bedingt durch ihre im Vergleich zur flüssigen Umgebung größere Massendichte ($\rho_{\text{M-280}} = 1.4 \text{ g/cm}^3$ und $\rho_{\text{H}_2\text{O}} \sim 1 \text{ g/cm}^3$) und lagern sich dadurch auf der Substratoberfläche an.

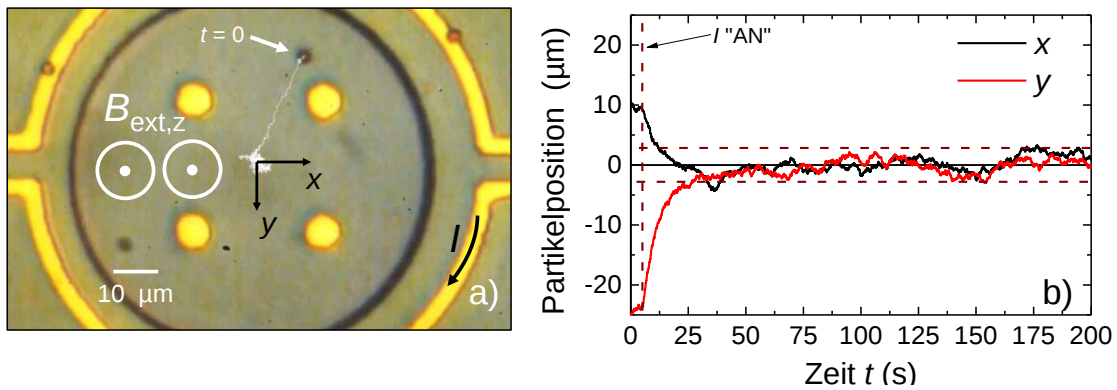


Abbildung 48: Positionierung eines einzelnen M-280 Partikels in der magnetischen Ringfalle. In a) ist die Trajektorie (weiße Linie) eines M-280 Partikels bei Einschalten des Stroms $I = 20 \text{ mA}$ zum Zeitpunkt $t = 5 \text{ s}$ und $B_{\text{ext},z} = 5.2 \text{ mT}$ gezeigt. Der weiße Pfeil markiert die Position des Partikels zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ s}$. In b) ist die Position x, y des Partikels in Abhängigkeit der Zeit nach Einschalten des Stroms (bei $t = 5 \text{ s}$, vertikale gestrichelte Linie) gezeigt. Der Mittelpunkt der Falle befindet sich bei $(x, y) = (0, 0)$. Die horizontalen gestrichelten Linien markieren die maximalen Abweichungen der Partikelposition vom Fallenmittelpunkt für $t > 40 \text{ s}$.

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Nach Einschalten des Stroms $I = 20$ mA in einem externen Feld von $B_{\text{ext},z} = 5.2$ mT bei $t = 5$ s wird das Partikel in Richtung der Mitte der Ringstruktur bei $(x,y) = (0,0)$ gedrückt, die es nach $t \approx 40$ s erstmals erreicht. Das Experiment bestätigt das durch die Modellierung der Energielandschaft vorhergesagte Verhalten des Partikels. Im Rahmen von allen getätigten Experimenten konnten, unabhängig von der Startposition des Partikels zum Zeitpunkt $t = 0$, alle sich im Inneren der Falle befindlichen Partikel für die gegebene Kombination aus Strom I und Feld $B_{\text{ext},z}$ innerhalb einer Zeitspanne von $t < 60$ s zum Energieminimum in der Mitte der Struktur transportiert werden. Nachdem das in Abbildung 48a) gezeigte Partikel die Mitte der Struktur erreicht hat, ergibt sich entsprechend der mittels Particle Tracking erfassten, in Abbildung 48b) gezeigten Trajektorie eine Fluktuation der Partikelposition um das Zentrum der Ringstruktur. Diese begründet sich auf Stößen des Partikels mit den Molekülen der Flüssigkeit und wird als Brown'sche Bewegung bezeichnet. Die Messung zeigt, dass das Partikel nach dem Transport hin zur Mitte der Struktur über einen Messzeitraum von mehreren Minuten in unmittelbarer Nähe zum Zentrum der Ringfalle bei $(x,y) = (0,0)$ bleibt. Für die gegebene Konfiguration der Falle lässt sich jeweils eine Fluktuation in der Partikelposition zu $|x| < 3 \mu\text{m}$ und $|y| < 3 \mu\text{m}$ vom Fallenzentrum feststellen (siehe horizontale, gestrichelte Linien Abbildung 48b)). Langzeitexperimente mit einzelnen Partikeln zeigen, dass die Partikel über einen Zeitraum von $t > 24$ Stunden stabil in der Struktur eingefangen werden können und den unmittelbaren Bereich um das Fallenzentrum herum nicht verlassen. Dies steht im Einklang mit den Vorhersagen zur Langzeitstabilität in allen drei Dimensionen aus der Modellierung der Energielandschaft und belegt die Funktion der Struktur als Falle für einzelne Partikel. Aufgrund der beobachteten Langzeitstabilität der Partikel in der Falle kann die gemessene Partikeltrajektorie um das Fallenzentrum prinzipiell dazu genutzt werden, sowohl die magnetischen Eigenschaften des Partikels als auch die rheologischen Eigenschaften der den Partikel umgebenden Flüssigkeit zu charakterisieren, worauf im Folgenden eingegangen wird.

3.5.3 „Quasi-freie“ Fluktuation – Messung des diffusiven Anteils der Fluktuation

Wie im vorherigen Abschnitt diskutiert wurde, kann aus der Fluktuation die Diffusionskonstante und daraus die Viskosität der den Partikel umgebenden Flüssigkeit vermessen werden. Um dies zu verifizieren wurden jeweils einzelne M-280 Partikel bzw. MyOne Partikel entsprechend dem in Abbildung 48a) gezeigten Manipulationsschema in die Umgebung des Fallenzentrums positioniert. Während der Messung der Viskosität soll so wenig Einfluss wie möglich durch die Falle auf das Messergebnis ausgeübt werden. Dies wäre beispielweise durch Erwärmung der Flüssigkeit durch die im Ringleiter erzeugten, thermischen Verluste oder durch die von der Helmholtzspule erzeugte, an das Flüssigkeitsreservoir abgegebene Wärme denkbar. Um dies zu vermeiden, wurde nachdem das Partikel den Fallenzentrum erreicht hat, der Fallenstrom auf $I = 4$ mA (M-280) bzw. $I = 15$ mA

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

(MyOne) und das externe Feld auf $B_{\text{ext},z} = 3 \text{ mT}$ reduziert. Dies bewirkt zusätzlich aufgrund der niedrigen Fallenstärken k ($k_y = 0.55 \text{ fN}/\mu\text{m}$ (M-280) bzw. $k_y = 0.12 \text{ fN}/\mu\text{m}$ (MyOne)) eines großen Zeitfester $0 < \tau < \tau_t$, in dem die Diffusionskonstante aus dem linearen $MSD(\tau)$ Verlauf extrahiert werden kann. Dadurch können in die anschließende Berechnung der Diffusionskonstanten (zeitlich gesehen) viele Datenpunkte einfließen können, was die Genauigkeit der Messung erhöht. Durch die geringen Fallenstärken ergibt sich nur ein geringer Einfluss der Falle auf die Partikeltrajektorie, weshalb die Form der Bewegung hier als „quasi-freie“ Fluktuation bezeichnet wird. Für die gezeigte Messung wurden die Partikel in einem Gemisch aus 1 ml phosphathaltigem Puffer (PBS, bestehend aus 137 mM NaCl, 2.7 mM KCl, 12 mM Phosphat) und 100 ml H_2O gelöst. Dies ermöglicht einen über die Messzeit von mehreren Stunden stabilen pH Wert im Bereich pH 7.2 – 7.4 bei bekannter Ionenkonzentration des Elektrolyten, was bei Messung in reinem destilliertem Wasser nicht gegeben ist. Somit kann über die komplette Messzeit im Bereich von einer Stunde eine möglichst stabile Oberflächenladung von Partikeln und Substratoberfläche sichergestellt werden. Dies ist wichtig, um die elektrochemischen Eigenschaften des Elektrolyten im Rahmen der DLVO Theorie bei der Interpretation der Ergebnisse berücksichtigen zu können, worauf im Verlauf dieses Kapitels noch genauer eingegangen wird. Für die gezeigten Experimente wurden jeweils 2 μl der vom Hersteller gegebenen Partikellösung mit 4 ml der Pufferlösung gemischt. Durch die im Verhältnis zur Pufferlösung geringe Menge an zugemischter Partikellösung wird sichergestellt, dass sich weder der pH Wert der Pufferlösung noch dessen Ionenkonzentration signifikant ändert. Für die M-280 Partikel wurden zunächst für jedes einzelne Partikel insgesamt 6 Trajektorien mit einer Einzeldauer von ca. 3 Minuten pro Trajektorie aufgenommen und anschließend mittels Particle-Tracking ausgewertet. Eine exemplarische Einzelpartikeltrajektorie für verschiedene Zeiten ist für Zeiten $\tau < 10 \text{ s}$ in Abbildung 49 dargestellt. Das Partikel zeigt eine für freie, Brown'sche Bewegung typische Trajektorie, bei der für die betrachteten Zeiten τ die Zunahme der vom Partikel überstrichenen Fläche mit der Zeit zu sehen ist.

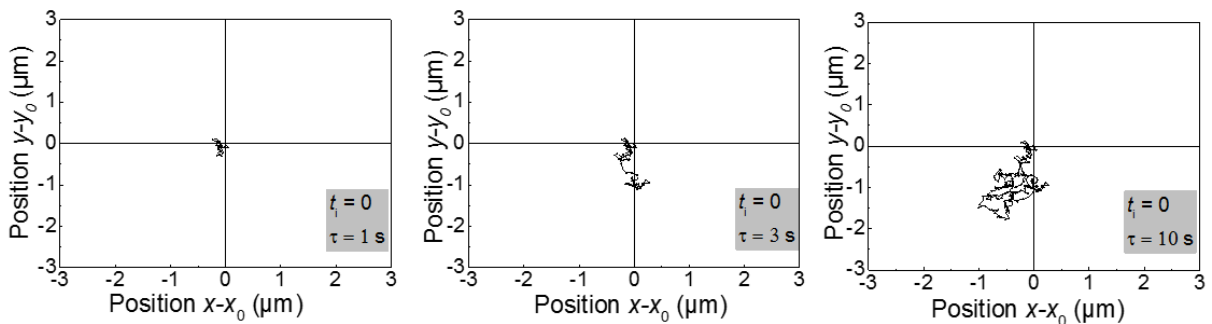


Abbildung 49: Exemplarische, zeitliche Partikeltrajektorie eines quasi-freien M-280 Partikels bei Bewegung in der Falle. Die Bildfolge zeigt die zurückgelegte Trajektorie zu verschiedenen Zeitdifferenzen τ bzgl. des gewählten Anfangszeitpunkts $t = 0$. Das Partikel wurde vor der Aufnahme in die Mitte der Falle positioniert und befand sich zum Zeitpunkt $t = 0$ an den Positionen $x_0 = -0.85 \mu\text{m}$, $y_0 = 2.24 \mu\text{m}$ vom Zentrum der Falle entfernt. Die Falle wurde mit Ringstrom $I = 3 \text{ mA}$ und $B_{\text{ext},z} = 3 \text{ mT}$ betrieben.

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Für jedes Partikel wurde anschließend der Verlauf $MSD_x(\tau)$ und $MSD_y(\tau)$ unter Berücksichtigung einer Trajektorie mit $N+1$ Datenpunkten von Zeitpunkt $t_i = t_0 = 0$ bis $t_i = t_N$ als Zeitmittelwert entsprechend Formeln (22) und (23) berechnet. Beide MSD Verläufe sind exemplarisch für ein einzelnes M-280 Partikel in Abbildung 50 dargestellt. Die einzelnen MSD Kurven mit einer Gesamtaufnahmezeit der Trajektorie von $t = 3$ min (graue Linien den Abbildungen) zeigen eine monotone Zunahme des MSD mit zunehmender Zeit τ . Jedoch unterscheiden sich die einzelnen Kurven vor allem für Zeiten $\tau > 5$ s stark untereinander und zeigen nicht den für alle Kurven identisch erwarteten, linearen Anstieg mit der Zeit τ . Die Erklärung hierfür liegt in der statistischen Natur des Fluktuationsprozesses bei freier Brown'scher Bewegung.

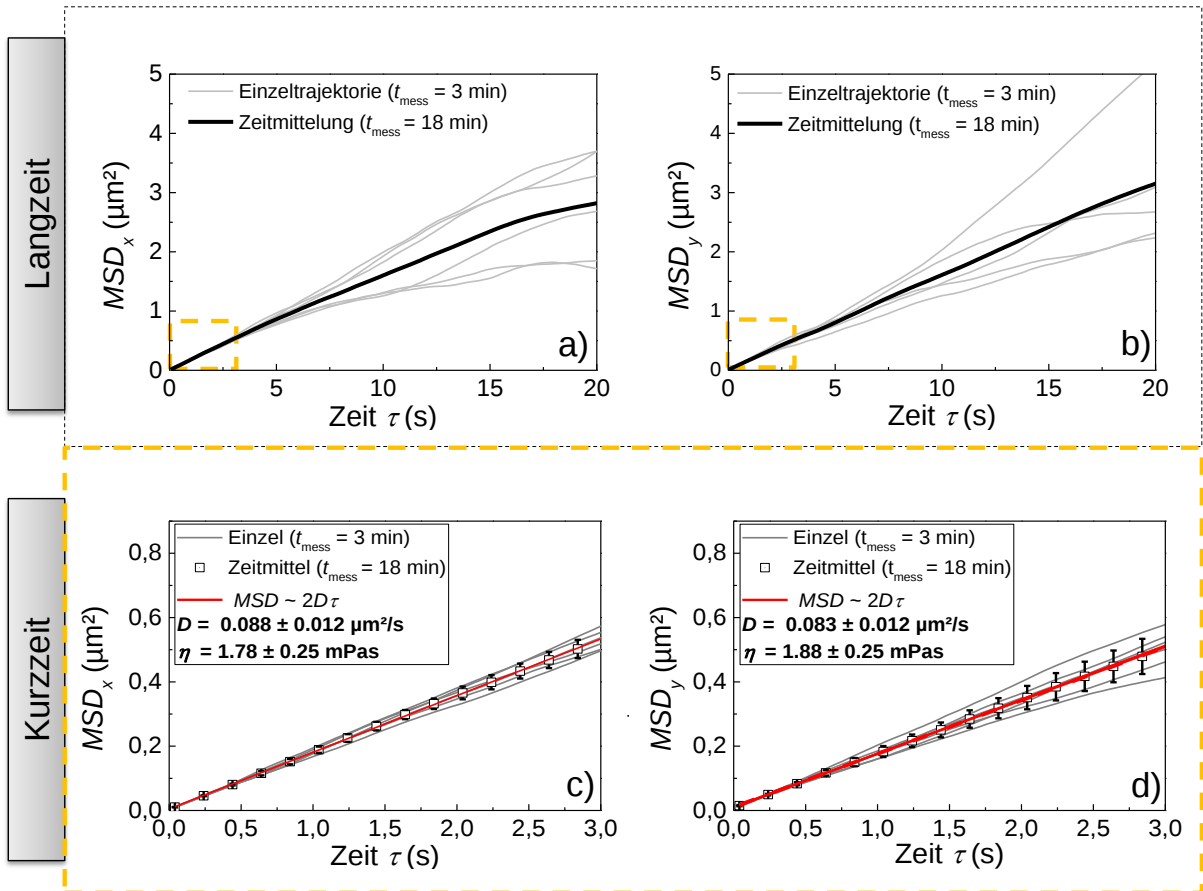


Abbildung 50: Exemplarische, nach Gleichung 31 und 32 berechnete zeitliche Verläufe für das MSD_x (a)) und MSD_y (b)) für ein einzelnes M-280 Partikel für den Zeitraum $0 < \tau < 20$ s für $I = 4$ mA und $B_{ext,z} = 3$ mT. Die grauen Linien entsprechen dem MSD einer Einzeltrajektorie mit einer Dauer von $t = 3$ min. Die schwarzen Linien entsprechen dem arithmetischen Mittelwert der MSD Verläufe der Einzeltrajektorien. Die Abbildungen c) und d) zeigen einen Ausschnitt im Bereich $0 < \tau < 3$ s. Die aus der Anpassung (rote Linien) mittels Gleichung (25) extrapolierten Daten für die Diffusionskonstante D und der Viskosität η sind in den Abbildungen c) und d) angegeben. Die Viskosität wurde unter Annahme von $T = 300$ K und $r_p = 1,4$ μ m berechnet. Die Fehlerbalken in c) und d) beziehen sich auf die Standardabweichung der ensemble-gemittelten MSD Verläufe (schwarze Quadrate).

Dies bedeutet, dass eine Messzeit von drei Minuten in der statistischen Auswertung des MSD zu keinem repräsentativen Ergebnis bei der Bestimmung der Viskosität für die gegebene Kombination aus M-280 Partikeln und flüssiger Umgebung führt. Wird der komplette Messzeitraum von 18 Minuten berücksichtigt (schwarze Punkte in Abbildung 50a) und Abbildung

50b), entspricht der Mittelung aller grauen Einzelkurven)) ergibt sich ein Verlauf, der für Zeiten $\tau < 20$ s deutlich besser dem erwarteten, linearen Anstieg des MSD mit der Zeit τ entspricht. Betrachtet man gesondert den Zeitraum von $\tau < 3.5$ s in Abbildung 50c) und Abbildung 50d) ergibt sich nach der Mittelung aller Trajektorien im betrachteten Zeitraum ein nahezu idealer, linearer Anstieg des MSD mit der Messzeit τ . Aus diesem Zeitbereich lässt sich daher die Diffusionskonstanten unter Anwendung von Formel (25) extrahieren. Man erhält für MSD_x eine Diffusionskonstante von $D = (0.088 \pm 0.012 \mu\text{m}^2/\text{s})$ sowie $D = (0.083 \pm 0.012 \mu\text{m}^2/\text{s})$ für MSD_y .

Beide Diffusionskonstanten sind im Rahmen der Toleranz identisch, was dem für freie Diffusion des Partikels erwarteten Ergebnis entspricht. Daher lässt sich eine mittlere Diffusionskonstante von $\bar{D} = (0.085 \pm 0.12) \mu\text{m}^2/\text{s}$ für das gezeigte Partikel berechnen. Aus diesem Wert lässt sich gemäß Formel (25) die mittlere Viskosität unter Annahme von $r_p = 1.4 \mu\text{m}$ und $T = 300$ K zu $\bar{\eta} = (1.84 \pm 0.25) \text{ mPas}$ berechnen.

Zur Bestimmung der Viskosität aus Messung der Diffusionskonstanten wird der Partikelradius r_p als durch den Hersteller gegeben angenommen. Bei einer möglichen Verteilung der Größe der magnetischen Beads muss zur korrekten Bestimmung der Viskosität zusätzlich ein Ensemble aus Partikeln betrachtet werden. Dazu wurde die vorher gezeigte Messung des MSD für insgesamt 7 einzelne M-280 Partikel bzw. 8 einzelne MyOne Partikel durchgeführt. Die Trajektorien wurden je Partikel über einen Zeitraum von insgesamt $t_{\text{mess}} > 15$ min (M-280) und $t > 11$ min (MyOne) erfasst und das zeitgemittelte MSD entsprechend den Ausführungen im vorherigen Abschnitt für jeden Partikel einzeln berechnet. Abbildung 51 zeigt die Ergebnisse der Messungen für das Ensemble von M-280 (oben) und MyOne Partikeln (unten). Die jeweils aus den Einzelpartikeltrajektorien ermittelten MSD Verläufe (graue Linien) zeigen sowohl für die M-280 Partikel als auch die MyOne Partikel im Zeitfenster $0 < \tau < 3$ s das erwartete, lineare Verhalten und nur eine geringe Variation untereinander. Dies lässt darauf schließen, dass sich die die freie Diffusion bestimmenden, mikrorheologischen Eigenschaften der Partikel (ξ Potential und Partikelgröße) im Rahmen der Messgenauigkeit (vgl. Fehlerangabe bei zeitgemittelter Einzelpartikeltrajektorie in Abbildung 50) nicht voneinander unterscheiden. Berechnet man aus der linearen Anpassung der ensemble- und zeitgemittelten Trajektorie (schwarze Punkte) entsprechend Formel (25) die mittleren Diffusionskonstante D und die mittleren Viskosität η erhält man $D = (0.092 \pm 0.001 \mu\text{m}^2/\text{s})$ bzw. $\eta = (1.715 \pm 0.020) \text{ mPas}$ für die M-280 Partikel sowie $D = (0.420 \pm 0.002 \mu\text{m}^2/\text{s})$ bzw. $\eta = (1.05 \pm 0.01) \text{ mPas}$ für die MyOne Partikel. Beide Werte sind signifikant höher als der erwartete Literaturwert von Wasser von $\eta_{\text{H}_2\text{O}} \approx 0.87 \text{ mPas}$ bei Raumtemperatur (hier $T = 26^\circ\text{C}$). Dieser Sachverhalt konnte in allen im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Experimenten für beide Partikelsorten bestätigt werden. Eine mögliche Ursache für die zu hohe Viskosität aus den Fluktuationsexperimenten ist der aufgrund der Sedimentation der Partikel geringe Abstand h der

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Partikel zur Substratoberfläche. Befindet sich dieser Abstand in der gleichen Größenordnung wie die Größe des Partikels beeinflusst dies die freie Diffusion des Partikels und damit die aus Fluktuationsexperimenten beobachtete, lokale Viskosität der Partikelumgebung [147-149].

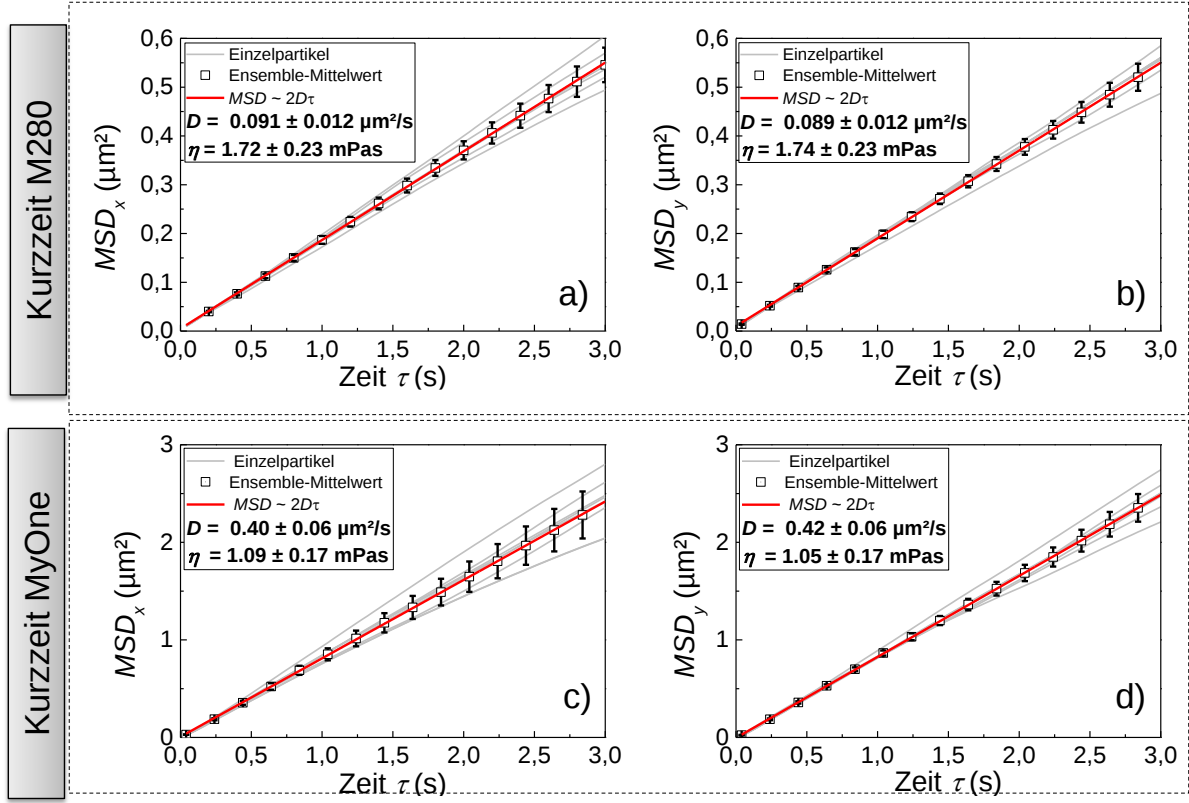


Abbildung 51: Zeitmittelwert des MSD (graue Linien) für die x-Komponente (a)) und y-Komponente (b)) für M-280 und die x-Komponente (c)) und y-Komponente (d)) für MyOne Partikel für einen Strom von $I = 4$ mA (M-280) und 15 mA (MyOne) und einem externen Feld von $B_{ext,z} = 3$ mT. Für M-280 Partikel wurden 7 Einzeltrajektorien ($t_{mess} > 15$ min) und für MyOne Partikel 8 Einzeltrajektorien ($t_{mess} > 11$ min) ausgewertet. Die roten Linien stellen lineare Fits des aus den Einzeltrajektorien ermittelten Ensemblemittelwerts (Quadrate) dar. Die extrahierten Werte für die Diffusionskonstante D und die Viskosität η sind in den Abbildungen angegeben. Für die Berechnung der Viskosität wurden Partikelradien von $r_p = 1.4$ μm (M-280) und $r_p = 0.5$ μm (MyOne) verwendet. Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung der ensemble-gemittelten MSD Verläufe.

Für diesen Fall wurde von Faxén ein analytischer Ausdruck für die Größe η/η_0 in Abhängigkeit des Abstands des Partikels zur Substratoberfläche abgeleitet [149]; η bezeichnet hier die durch die Nähe des Partikels zur Substratoberfläche erhöhte Viskosität, während η_0 die Viskosität des verwendeten Mediums ohne Einfluss der Nähe des Partikels zur Oberfläche des Substrats bezeichnet. Nach Faxén ergibt sich für die Größe $\frac{\eta}{\eta_0}$ folgender Ausdruck:

$$\frac{\eta}{\eta_0} = \left(1 - \frac{9}{16}k + \frac{k^3}{8} + \frac{45}{256}k^4 - \frac{k^5}{16} \right)^{-1} \quad (40)$$

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Hier stellt $k = r_p / (r_p + h)$ eine dimensionslose Größe dar, die den Radius r_p des Partikels und dessen Abstand zur Oberfläche des Substrats h ins Verhältnis setzt. Die maximal erwartete Erhöhung der Viskosität ergibt sich im Grenzfall des direkten Kontakts des Partikels mit der Substratoberfläche ($h = 0 \rightarrow k = 1$) zu $\left(\frac{\eta}{\eta_0}\right)_{max} = 3.08$. Abbildung 52a)

stellt Gleichung (40) für die beiden verwendete Partikelsorten dar. Die Berechnung zeigt, dass sich für M-280 Partikel ($r_p = 1.4 \mu m$) im Vergleich zu den MyOne Partikeln ($r_p = 0.5 \mu m$) bei gegebenem Abstand h der Partikel zum Substrat ein stärkerer Einfluss der Nähe des Partikels zur Oberfläche auf die Viskosität η ergibt. Der genaue Abstand des Partikels zur Oberfläche lässt sich aus der Kräftebilanz aller in z -Richtung auf das Partikel wirksamen Kräfte berechnen. Diese ergibt sich für den vorliegenden Fall aus der Summe von Gravitation F_g (korrigiert um die Auftriebskraft der Partikel), den DLVO Kräften sowie der durch die Ringfalle erzeugten Kraft $F_{z,m}$ auf das Partikel. Man erhält:

$$\vec{F}_z(h) = -\vec{\nabla}E(h) = -\vec{F}_g + \vec{F}_{DLVO}(h) + \vec{F}_{z,m} \quad (41)$$

Typischerweise befindet sich das Partikel bei Abständen $\sqrt{x^2 + y^2} < 0.1D$ (mit D als Durchmesser der Ringstruktur) zum Zentrum der Ringstruktur, weshalb die Kraft $\vec{F}_{z,m} = \vec{F}_{z,m}(h)$ nur als Funktion des Abstands h betrachtet wird. Abbildung 52b) zeigt die aus (41) erhaltene, auf die thermische Energie normierte Energie $E(h)/(k_B T)$ für beide Partikelsorten für die jeweilige in Abbildung 51 gezeigte experimentelle Konfiguration im Vergleich. Die Rechnung zeigt, dass sich für beide Partikelsorten für Abstände $h < 100$ nm eine starke, abstoßende Kraft ergibt. Diese ist auf die abstoßende Wechselwirkung gleichnamiger Ladungen von Partikeln und der SiO_2 Oberfläche des Substrats zurückzuführen. Für größere Abstände h ergeben sich für beide Partikel deutliche Unterschiede. Im Fall von M-280 Partikeln ergibt sich ein im Vergleich zu den MyOne Partikeln steilerer Anstieg der Energie hin zu größeren Fluktuationshöhen. Dies ist auf die im Vergleich zu den MyOne Partikeln größere Masse der M-280 Partikel und dem damit verbundenen, höheren Gravitationspotential für die M-280 Partikel im Vergleich zu den MyOne Partikeln zurückzuführen.

Da die Partikel neben der x und y Richtung auch in z -Richtung eine durch die thermische Energie $k_B T$ induzierte Fluktuation aufweisen, muss zur weiteren quantitativen Betrachtung aus der Energielandschaft $E(h)$ die Aufenthaltswahrscheinlichkeit $p(h)$ berechnet werden. Diese ist in Abbildung 52c) dargestellt und ergibt sich im thermodynamischen Gleichgewicht aus der „Konkurrenz“ der Energielandschaft $E(h)$ und der thermischen Energie $k_B T$ nach [150] zu:

$$p(h) \sim e^{-\frac{E(h)}{k_B T}} \quad (42)$$

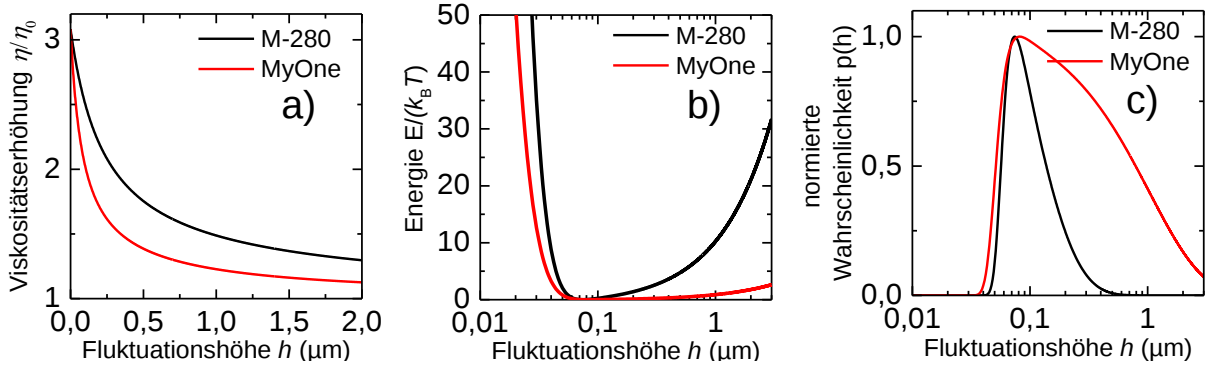


Abbildung 52: Relative Erhöhung der Viskosität bei Bewegung eines Partikels mit Radius r_p und Höhe h zur Oberfläche (a) gemäß Formel (40) für M-280 Partikel (schwarze Linie) und MyOne Partikel (rote Linie). In b) ist die potentielle Energie gemäß Formel (41) für M-280 (schwarze Linie) und MyOne (rote Linie) sowie in c) die daraus abgeleitete, auf den maximalen Wert normierte Aufenthaltswahrscheinlichkeit für M-280 (schwarze Linie) und MyOne (rote Linie) gezeigt. Für die Berechnungen wurden folgende Parameter angenommen: $r_p = 1.4 \mu\text{m}$ (M-280), $r_p = 0.5 \mu\text{m}$ (MyOne), $\rho_p = 1400 \text{ kg/m}^3$ (M280) und 1700 kg/m^3 (MyOne), $\rho_w = 1000 \text{ kg/m}^3$, $\xi_p = -10 \text{ mV}$, $\xi_{\text{SiO}_2} = -60 \text{ mV}$, $I_{\text{ion}} = 1.6 \text{ mM}$, $A = 4.1 \cdot 10^{-21} \text{ J}$, $\lambda_r = 100 \text{ nm}$, $T = 300 \text{ K}$, $\epsilon_r = 78$.

Durch die Abstoßung der Partikel von der Substratoberfläche nimmt die Aufenthaltswahrscheinlichkeit für beide Partikel für $h < 50 \text{ nm}$ stark ab. Dies verhindert den direkten Kontakt der Partikel mit der Substratoberfläche, welcher zur festen Bindung der Partikel durch Van-der-Waals Kräfte bzw. direkte Bindung der Streptavidin Schicht an vorhandene Hydroxygruppen auf der SiO_2 Oberfläche [151] führen würde. Die Abstoßung lässt sich durch die gleichnamige Oberflächenladung von Partikel und Substrat (gleiches, negatives Vorzeichen des Zeta-Potentials von Partikeln und Oberfläche [152]) begründen. Für größere Abstände nimmt für beide Partikelsorten durch die Gravitationskraft und die Fallkraft die Energie $E(h)$ zu, was zu einer Einschränkung der Bewegung der Partikel hin zu größeren Höhen h führt. Aus der Aufenthaltswahrscheinlichkeit $p(h)$ kann die mittlere Partikelhöhe $\bar{h}$ aus der Boltzmann Verteilung als Erwartungswert der Höhe h berechnet werden. Man erhält für die mittlere Höhe:

$$\bar{h} = \frac{\int_0^\infty h e^{-\frac{E(h)}{k_B T}} dh}{\int_0^\infty e^{-\frac{E(h)}{k_B T}} dh} \quad (43)$$

Für die M-280 Partikel ergibt sich hierbei ein Wert von $\bar{h} = 0.147 \mu\text{m}$, während sich für die MyOne Partikel ein Wert von $\bar{h} = 1.21 \mu\text{m}$ berechnen lässt. Der größere Wert für die MyOne Partikel ist vor allem durch die aufgrund der gegenüber den M-280 Partikeln geringere Masse der MyOne Partikel und des dadurch verminderten Gravitationspotentials (vgl. auch Energieverlauf für beide Partikelsorten für $h \gg 250 \text{ nm}$ in Abbildung 52b)) bedingt. Aus der Boltzmann-verteilten Aufenthaltswahrscheinlichkeit $p(h)$ kann unter Einbeziehung von Gleichung (40) die aus der Fluktuation des Partikels in z -Richtung

erwartete, mittlere Viskosität berechnet $\bar{\eta}$ werden. Diese ergibt sich als Boltzmann gewichteter Erwartungswert für $\eta(h)$ zu:

$$\bar{\eta} = \frac{\int_0^\infty \eta(h) e^{-\frac{E(h)}{k_B T}} dh}{\int_0^\infty e^{-\frac{E(h)}{k_B T}} dh} \quad (44)$$

Aus dieser Rechnung erhält man unter Annahme einer Viskosität von $\eta_0 = 0.87$ mPas (bei $T = 26^\circ\text{C}$) einen Wert von $\bar{\eta} = 2.07$ für die M-280 Partikel und $\bar{\eta} = 1.17$ mPas für die MyOne Partikel. Vergleicht man dies mit den Ergebnissen, die aus den Fluktuationsdaten entsprechend Abbildung 51 extrahiert wurden entspricht dies einer guten Übereinstimmung der gemessenen Viskositätswerte mit den Modellvorhersagen. In beiden Fällen ergibt sich aus den Messungen eine niedrigere, extrahierte Viskosität im Vergleich zu den aus Gleichung (44) vorhergesagten Werten. Die relative Abweichung beträgt dabei -16 % bzw. -8 % zu den berechneten Werten für M-280 Partikel bzw. MyOne Partikel. Dies kann durch eine im Vergleich zur Raumtemperatur von $T = 26^\circ\text{C}$ erhöhte Temperatur des Flüssigkeitsreservoirs während den Viskositätsmessungen erklärt werden. Obwohl für die Experimente die Manipulationsströme sehr gering gewählt wurden, lässt sich eine Erwärmung der Flüssigkeit durch den Betrieb der Helmholtzspule nicht vermeiden. Die verwendete Feldstärke von $B_{\text{ext},z} = 3$ mT entspricht dabei einem Spulenstrom durch die Helmholtzspule von ca. 0.21 A. Für diese Bedingung konnte zum einen mittels Wärmebildaufnahmen des Flüssigkeitsreservoirs und zum anderen durch Vermessung des (temperaturabhängigen) ohmschen Widerstands der Manipulationsstruktur (beide Experimente sind im Anhang beschrieben) eine Erhöhung der Flüssigkeitstemperatur um ca. 7 °C beobachtet werden. Betrachtet man die Viskosität von Wasser als Funktion der Temperatur nach [153] so ergibt sich bei einer Schwankung von $\Delta T = + 7$ °C um $T = 26$ °C eine Änderung von $\eta_0 = 0.87$ mPas bei $T = 26^\circ\text{C}$ hin zu $\eta_0 = 0.75$ mPas bei $T = 33^\circ\text{C}$, was einer relativen Änderung der Viskosität von ca. -11% entspricht. Berücksichtigt man die Temperaturerhöhung im Flüssigkeitsreservoir, so ergibt sich eine noch bessere Übereinstimmung zwischen experimentell bestimmten und durch das Modell vorhergesagten Werten für die Viskosität.

Eine weitere Überprüfung des Modells setzt jedoch aufgrund der beschriebenen Probleme eine genaue Kenntnis der Temperatur des Flüssigkeitsreservoirs am Ort des Partikels voraus. Hierfür kann in zukünftigen Untersuchungen beispielsweise ein mikrostrukturiertes Widerstandselement, das als Thermistor [154] eingesetzt wird, zentral in die Manipulationsstruktur eingebracht werden.

3.5.4 Langzeitmessungen bei hohen Fallenstärken – Bestimmung des magnetischen Moments eines Einzelpartikels

Wie durch Gleichung (27) eingeführt, sollte sich im Fall eines im harmonischen Fallenpotential gefangenen Partikels für die Betrachtung der Langzeitfluktuation ($\tau \gg \tau_t$) ein konstanter Wert für das MSD ergeben, über den die Fallenstärke k (bzw. die einzelnen Komponenten k_x und k_y) bestimmt werden kann. Um dies zu überprüfen, wurden Experimente durchgeführt, bei denen ein einzelnes Partikel über Zeiträume $\tau \gg \tau_t$ in der Falle gehalten wurde. Für die Experimente wurde eine Kombination von hohen Strömen $I > 20$ mA und einem hohen externen Feld von $B_{ext,z} > 5$ mT ausgewählt, um aufgrund der im Vergleich zur „quasi-freien“ Fluktuation höheren Fallenstärken k_x, k_y einen bereits nach kurzer Zeit τ stationären Zustand des MSD beobachten zu können. Abbildung 53 zeigt exemplarisch Resultate zum Langzeitverhalten der Partikelfluktuation eines einzelnen M-280 Partikels für einen Strom von $I = 60$ mA in einem externen Feld von $B_{ext,z} = 5.2$ mT. In Abbildung 53a) ist das MSD für eine Messzeit von $t_{mess} = 5$ min für den Zeitraum $0 < \tau < 60$ s gezeigt. Im Kontrast zu den in Abbildung 50 gezeigten Messungen, die bei deutlich geringeren Fallenstärken durchgeführt wurden, ergibt sich schon für Zeiten $\tau > 5$ s eine klare Abweichung vom linearen Anstieg des $MSD(\tau)$. Dies steht im Einklang mit für den verwendeten Strom I und das externe Feld $B_{ext,z}$ berechneten charakteristischen Fallenzeiten von $\tau_{t,1} = 2.6$ s ($\tau_{t,1} = 6\pi\eta r_p/k_y$) und $\tau_{t,2} = 4.8$ s ($\tau_{t,2} = 6\pi\eta r_p/k_x$), die in Abbildung 53a) als vertikale, gestrichelte Linien eingetragen sind.

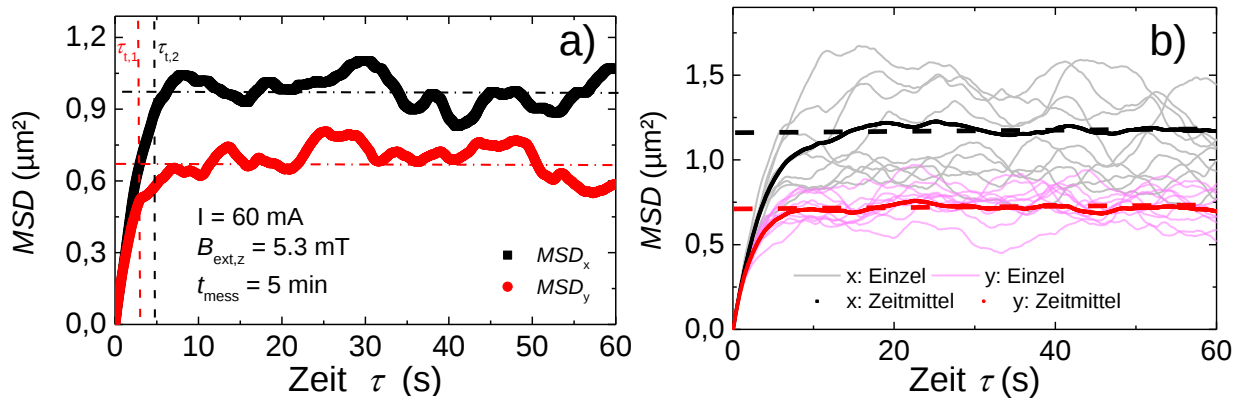


Abbildung 53: Langzeitfluktuation für $\tau \gg \tau_t$ bei hohen Fallenstärken für $I = 60$ mA und $B_{ext,z} = 5.2$ mT für ein einzelnes M-280 Partikel. Abbildung a) zeigt MSD_x (schwarz) und MSD_y (rot) für eine Messzeit von $t_{mess} = 5$ min. Die vertikalen, gestrichelten Linien entsprechen den jeweils berechneten charakteristischen Fallenzeiten (siehe Haupttext) $\tau_{t,1} = 6\pi\eta r_p/k_y$ (schwarze Linie) bzw. $\tau_{t,2} = 6\pi\eta r_p/k_x$ (rote Linie). Die horizontalen, gestrichelten Linien markieren den Mittelwert des MSD für Zeiten $\tau \gg \tau_t$. Abbildung b) zeigt den Verlauf des MSD_x (grau) und MSD_y (rosa) für exemplarische Einzelmessungen mit Messzeit $t_{mess} = 5$ min sowie das zeitgemittelte MSD_x (schwarz) und MSD_y (rot) für einen Messzeitraum von $t_{mess} = 60$ min.

Entgegen der Erwartung eines sich für $\tau \gg \tau_t$ einstellenden, festen Wertes für das MSD zeigen die Verläufe $MSD_x(\tau)$ und $MSD_y(\tau)$ deutliche Schwankungen um einen Mittelwert (markiert durch horizontale, gestrichelte Linien). Die Schwankungen finden dabei auf einer Zeitskala von wenigen Sekunden statt. Da für die Auswertung des MSD entsprechend

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Gleichungen (22) und (23) ca. 6000 einzelne Startzeitpunkte $t = t_i$ zur Berechnung des Zeitmittels einbezogen wurden, kann das schwankende Verhalten nicht aufgrund einer unzureichenden Anzahl an Datenpunkten bei der Berechnung des MSD erklärt werden. Die Schwankungen stellen daher eine zeitlich korrelierte Bewegung des Partikels auf einer Zeitskala von einigen Sekunden dar. Eine mögliche Ursache dafür stellt eine durch thermische Konvektion der Flüssigkeit verursachte Bewegung des Partikels dar, die zu einer zusätzlichen Kraft auf das Partikel führt und dieses aus der Gleichgewichtslage auslenkt. Zusätzlich ist die Fluktuation des Partikels in x und y Richtung durch die unterschiedlichen Fallenstärken $k_x \neq k_y$ für eine nicht rein entlang der Koordinatenachsen gerichtete Auslenkung des Partikels miteinander gekoppelt [146], was ebenfalls zur zeitlichen Schwankung im MSD führen könnte. Obwohl die Messzeit mit $t_{\text{mess}} = 5$ min deutlich länger als die charakteristischen Fallenzeiten τ_t im Bereich von wenigen Sekunden gewählt wurde, lässt sich aufgrund der beobachteten Schwankungen keine gemäß Gleichungen (27) und (28) eingeführte Fallenstärke k_x und k_y aus dem stationären Wert des MSD berechnen. Abbildung 53b) zeigt die Auswertung des MSD für eine Gesamtmesszeit von $t_{\text{mess}} = 60$ min (entspricht 12 Einzeltrajektorien mit einer Messzeit t_{mess} von je 5 Minuten). Die Einzeltrajektorien wurden für diese Messung unmittelbar aufeinanderfolgend für dasselbe Partikel vermessen, ohne dass dieses den unmittelbaren Bereich des Fallenzentrums verlassen hat. Die zugehörigen MSD Verläufe der Einzelmessungen (grau: MSD_x und helles rot: MSD_y) weisen alle nach wenigen Sekunden τ einen Übergang vom linearen Verhalten aus freier Diffusion hin zu einem um einen stationären Wert schwankenden Verhalten hin. Vergleicht man die einzelnen MSD Verläufe ergibt sich für die stationären Werte für große Zeiten τ eine große Bandbreite ($MSD_x \sim 0.8 \mu\text{m}^2 - 1.4 \mu\text{m}^2$) bzw. ($MSD_y \sim 0.5 \mu\text{m}^2 - 0.9 \mu\text{m}^2$). Dies zeigt, dass für eine Messzeit von $t_{\text{mess}} = 5$ min die eingeschränkte Bewegung des Partikels im Fallenpotential zwar reproduzierbar beobachtet wird, jedoch die Fallenstärke k aus einer Einzelmessung nur mit unzureichender Genauigkeit extrahiert werden kann. Werden die Verläufe zeitlich über die komplette Messzeit von $t_{\text{mess}} = 60$ min gemittelt (schwarze Linie: MSD_x bzw. rote Linie: MSD_y) lassen sich die für die Einzeltrajektorien beobachteten Schwankungen um den stationären Wert durch die Zeitmittelung des MSD für beide Komponenten (MSD_x und MSD_y) deutlich reduzieren. Dies bedeutet, dass die in Abbildung 53a) gezeigte, auf einer Zeitskala von wenigen Sekunden korrelierte Fluktuation des Partikels über den gesamten Messzeitraum von $t_{\text{mess}} = 60$ min herausgemittelt werden kann und (auf der gesamten Zeitskala von 60 min betrachtet) rein statistischer Natur ist. Somit lässt eine Messung über einen Zeitraum von 60 min eine Extraktion der Fallenstärken k_x, k_y aus dem Wert des $MSD(\tau)$ für $\tau \gg \tau_t$ zu. Zur Bestimmung des stationären MSD Wertes und der Fallenstärken wurde der MSD Verlauf im Zeitfenster von $30 \text{ s} < \tau < 240 \text{ s}$ (nicht komplett in Abbildung 53b) gezeigt, Verlauf analog zu $30 \text{ s} < \tau < 60 \text{ s}$) gemittelt und anschließend die Fallenstärken

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

entsprechend Gleichung (27) bestimmt. Die ermittelten Werte sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

Tabelle 1: Aus den in Abbildung 53b) gezeigten Daten extrahierte Werte für MSD_x und MSD_y , sowie die entsprechend Gleichung (27) ermittelten Werte für k_x und k_y . Der angegebene Fehler entspricht der Standardabweichung aus der Mittelung der Messdaten.

$MSD_x (\mu\text{m}^2)$	$k_x (\text{fN}/\mu\text{m})$	$MSD_y (\mu\text{m}^2)$	$k_y (\text{fN}/\mu\text{m})$
1.18 ± 0.04	7.2 ± 0.3	0.71 ± 0.02	11.7 ± 0.4

Für die gezeigten Messdaten ergibt sich jeweils ein stationärer Wert von $MSD_x = 1.18 \mu\text{m}^2 \pm 0.04 \mu\text{m}^2$ und $MSD_y = 0.71 \mu\text{m}^2 \pm 0.02 \mu\text{m}^2$. Die Fehler beziehen sich auf die daraus erhaltene Standardabweichung vom stationären Wert des MSD . Aus den stationären Werten lässt sich entsprechend $k_x = 7.2 \text{ fN}/\mu\text{m} \pm 0.3 \text{ fN}/\mu\text{m}$ bzw. $k_y = 11.7 \text{ fN}/\mu\text{m} \pm 0.4 \text{ fN}/\mu\text{m}$ berechnen. Die für die Auslenkung in y -Richtung größere Fallenstärke $k_y > k_x$ steht im Einklang mit den aus der Modellierung der Energielandschaft berechneten Werten für die Fallenstärken entlang der beiden Koordinatenachsen (siehe im Vergleich Abbildung 47a)).

In Abbildung 54a) ist die Trajektorie des in der Falle gefangenen M-280 Partikels über einen Messzeitraum von $t_{\text{mess}} = 60 \text{ min}$ gezeigt. Die Auswertung zeigt, dass sich das Partikel über den gesamten Messzeitraum um maximal $\pm 3 \mu\text{m}$ in x und y Richtung aus seiner Gleichgewichtslage bei x_0, y_0 entfernt. Die Ausdehnung der Fluktuation (angedeutet durch den gestrichelt umrandeten Bereich in Abbildung 54a)) ist in y -Richtung geringer ausgeprägt als in x -Richtung, was zu einer elliptischen Form der Partikeltrajektorie (mit kürzerer Hauptachse entlang y -Richtung) führt. Dies ist qualitativ im Einklang mit den in Abbildung 53b) gezeigten MSD Verläufen, für die $MSD_y < MSD_x$ für $\tau \gg \tau_i$ beobachtet werden kann. Abbildung 54b) zeigt das aus der Trajektorie abgeleitete Positionshistogramm für die Abweichung x und y des Partikels vom Fallenmittelpunkt.

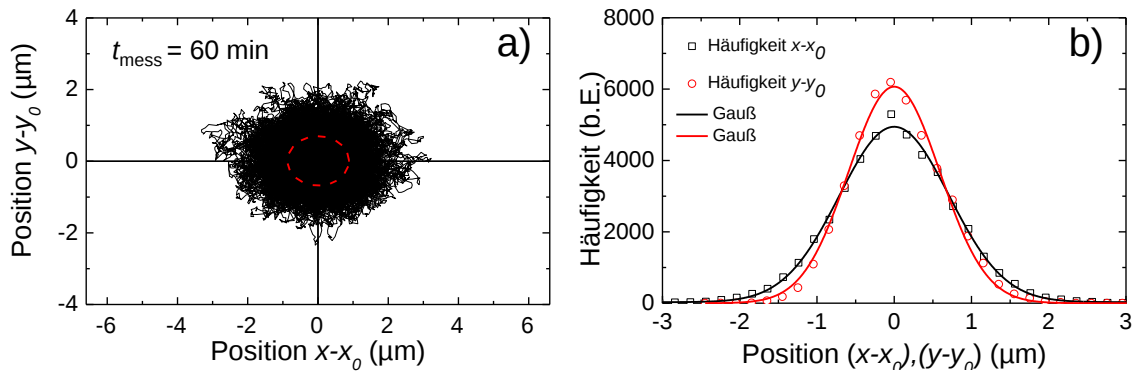


Abbildung 54: In a) ist die Partikeltrajektorie eines M-280 Partikels für einen Messzeitraum von $t_{\text{mess}} = 60 \text{ min}$ für einen Manipulationsstrom von $I = 60 \text{ mA}$ und $B_{\text{ext},z} = 5.2 \text{ mT}$ gezeigt. Der rot markierte Bereich entspricht der aus den Halbwertsbreiten der Positionshistogramme skizzierten Aufenthaltswahrscheinlichkeit. Abbildung b) zeigt die aus der Trajektorie über den Zeitraum von $t_{\text{mess}} = 60 \text{ min}$ abgeleiteten Positionshistogramme. Die Histogramme sind jeweils entsprechend Gleichung (29) und (28) mit einer Gaußverteilung (durchgezogene Linien) angepasst.

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Die Histogramme zeigen, dass die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten, wie für ein harmonisches Potential entsprechend Gleichungen (28) und (29) erwartet, jeweils durch Gaußverteilungen angepasst werden können. Aus der jeweiligen Anpassung (durchgezogene Linien) der Messdaten (Punkte) ergibt sich die Standardabweichung zu $\sigma_x = 0.71 \mu\text{m} \pm 0.02 \mu\text{m}$ und $\sigma_y = 0.59 \mu\text{m} \pm 0.02$. Berechnet man aus diesen Werten die Fallenstärken k_x und k_y entsprechend Gleichungen (31) und (32), so erhält man $k_x = 8.2 \text{ fN}/\mu\text{m} \pm 0.5 \text{ fN}/\mu\text{m}$ und $k_y = 11.9 \text{ fN}/\mu\text{m} \pm 0.8 \text{ fN}/\mu\text{m}$. Die Werte sind zur besseren Übersicht in Tabelle 2 zusammengefasst.

Tabelle 2: Aus den in Abbildung 54/Abbildung 53b) gezeigten Daten extrahierten Werte für σ_x und σ_y , sowie die entsprechend Gleichungen (31) und (32) ermittelten Werte für k_x und k_y . Der angegebene Fehler entspricht hier dem 95% Konfidenzintervall entsprechend der Gaußanpassung.

$\sigma_x (\mu\text{m})$	$k_x (\text{fN}/\mu\text{m})$	$\sigma_y (\mu\text{m})$	$k_y (\text{fN}/\mu\text{m})$
0.71 ± 0.02	8.2 ± 0.5	0.59 ± 0.02	11.9 ± 0.8

Die Werte für k_x und k_y sind in guter Übereinstimmung mit den aus dem Langzeit-MSD extrahierten Werte für die Fallenstärken (vgl. Tabelle 1). Beide Auswertungen ermöglichen somit zwei unabhängige Methoden zur Bestimmung der auf das Partikel wirkenden Kräfte in der Falle.

Prinzipiell bietet der Fallenaufbau die Möglichkeit, die Kräfte auf das Partikel durch Wahl des Stroms durch die Manipulationsstruktur einzustellen.

Um einen Einfluss des Fallenstroms auf die Falleneigenschaften messtechnisch zu überprüfen, wurde ein einzelnes M-280 Partikel in die Mitte der Falle transportiert und die Falle anschließend mit unterschiedlichen Strömen von $I = 20 \text{ mA}$ bis $I = 60 \text{ mA}$ beaufschlagt. Für jede Stromkonfiguration wurde die Fluktuation über einen Zeitraum $t_{\text{mess}} = 60 \text{ min}$ beobachtet und anschließend entsprechend den vorherigen Ausführungen die Fallenstärke aus den MSD Verläufen sowie den Positionshistogrammen extrahiert. Das gesamte Experiment wurde mit demselben Partikel durchgeführt. Abbildung 55 zeigt eine Übersicht zu den Ergebnissen des Experiments.

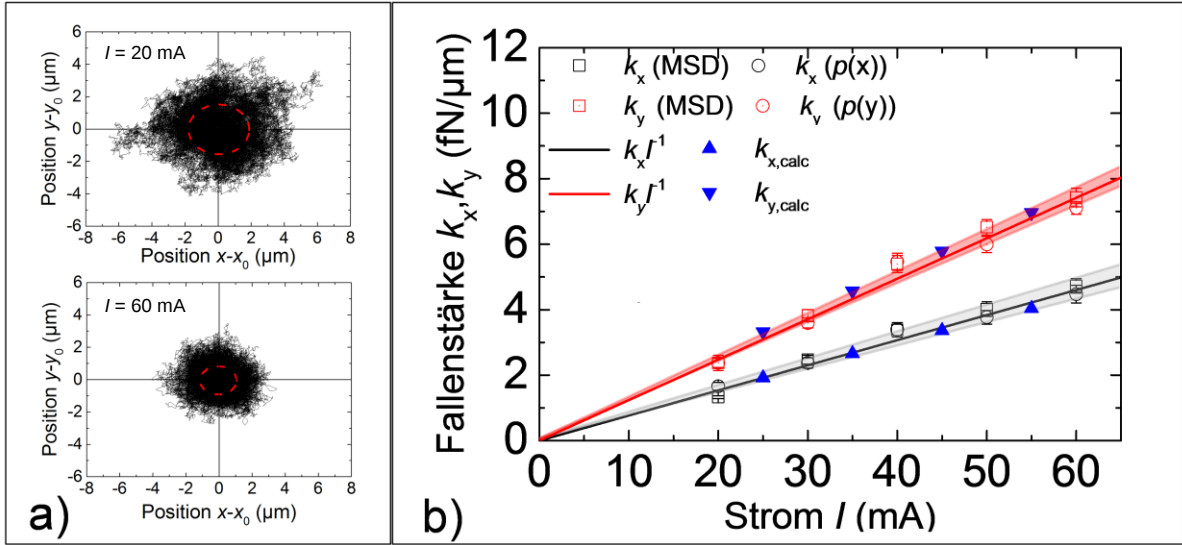


Abbildung 55: In a) sind exemplarische Partikeltrajektorien für einen Strom von $I = 20$ mA (oben) und $I = 60$ mA (unten) für ein externes Feld von $B_{ext,z} = 5.3$ mT gezeigt. Die Messzeit beträgt jeweils $t_{mess} = 60$ min pro Trajektorie. Die rot markierten Bereiche entsprechen den aus den Halbwertsbreiten der Positionshistogramme skizzierten Aufenthaltswahrscheinlichkeiten. Die für die Fallenstärken k_x (schwarze Datenpunkte) und k_y (rote Datenpunkte) extrahierten Werte sind in Abbildung b) gezeigt. Die Werte wurden aus den Positionshistogrammen (Quadrate) und aus den MSD Verläufen (Kreise) für Zeiten $75 \text{ s} < \tau < 350 \text{ s}$ extrahiert. Durch durchgezogenen Linien stellen eine lineare Anpassung der extrahierten Daten (95% Konfidenzintervall als halbtransparente Bereiche) dar. Als blaue Dreiecke sind die jeweils aus der mit Gleichung (33) berechneten Energielandschaft der Falle vorhergesagten Werte für k_x und k_y ($r_p = 1.4 \text{ μm}$, $\chi = 0.42$) eingetragen.

Abbildung 55a) zeigt zwei exemplarische Trajektorien für $I = 20$ mA (oben) und $I = 60$ mA (unten) über die komplette Messzeit von $t = 60$ min. Die Auswertung der Trajektorien zeigt, dass durch die Erhöhung des Stroms die vom Partikel während der Messzeit überstrichene Fläche abnimmt. Dies ist gleichbedeutend mit einer mit steigendem Strom I zunehmenden Fallenstärke k_x und k_y und zeigt, dass diese durch den Strom I verändert werden kann. Die entsprechend den vorherigen Erläuterungen aus den Histogrammen und den MSD Verläufen extrahierten Fallenstärken sind in Abhängigkeit des Stroms I in Abbildung 55b) gezeigt. Für alle verwendeten Ströme ergibt sich im Rahmen der Messtoleranzen eine gute Übereinstimmung zwischen den Fallenstärken, welche aus den MSD Vermessungen (Quadrate) und aus den Histogrammen (Punkte) extrahiert wurden. Die Fallenstärken skalieren im gezeigten Strombereich linear mit der eingprägten Stromstärke I . Dies lässt sich durch Heranziehen der Ausgangsgleichung für die Kraft auf ein superparamagnetisches Partikel bei Überlagerung eines externen Feldes (Gleichung (36)) verstehen. Da das externe Feld mit $B_{ext,z} = 5.3$ mT deutlich größer als die vom Leiter am Ort des Partikels (im Fallenzentrum) erzeugte Feldkomponente ($B_{leiter,z} < 0.5$ mT für $I = 60$ mA) gewählt wurde, vereinfacht sich Gleichung (36) in erster Näherung zu:

$$\vec{F} = \frac{\chi V}{2\mu_0} \nabla |\vec{B}|^2 = \frac{\chi V}{2\mu_0} \nabla (2B_{leiter,z} \cdot B_{ext,z}) \sim B_{ext,z} \cdot I \quad (45)$$

Da $B_{leiter,z}$ sich proportional zu I verhält ist die Kraft auf das Partikel und dadurch die

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Fallenstärke k_x und k_y in direkt proportionalem Zusammenhang zum in die Manipulationsstruktur eingepprägten Strom I . Demnach ergibt sich für die Größe $k_x I^{-1}$ und $k_y I^{-1}$ ein fester Wert, der nur vom externen Feld $B_{\text{ext},z}$ und dem verwendeten Partikel (χ , V) abhängt. Die aus den Verläufen des MSD und den Histogrammen extrahierten Fallenstärken können demnach direkt mit den aus der Modellierung der Energielandschaft theoretisch abgeleiteten Fallenstärken k_x und k_y verglichen werden. Da die Geometrie der magnetischen Falle, der Strom durch den Ringleiter, das externe Feld $B_{\text{ext},z}$ und Partikelgröße r_p bekannt sind, stellt die Partikelsuszeptibilität χ_v den einzigen unbekannten Parameter bei der Berechnung der Fallenstärke k_x und k_y dar. Diese kann demnach aus Vergleich von experimentellen Daten und Modellrechnung extrahiert werden. Tabelle 3 zeigt eine Zusammenfassung der gemessenen Fallenparameter und extrahierten Suszeptibilitäten aus den Verläufen $k_x(I)$ und $k_y(I)$ gemäß Abbildung 55.

Tabelle 3: Zusammenfassung der Ergebnisse der Fallenparameter $k_x I^{-1}$ und $k_y I^{-1}$ sowie der daraus abgeleiteten Partikelsuszeptibilität χ für die in Abbildung 55 gezeigten Daten aus Langzeit-Fluktuationsmessungen eines M-280 Partikels.

$k_x I^{-1}$ (aN/($\mu\text{m} \cdot \text{mA}$))	$k_y I^{-1}$ (aN/($\mu\text{m} \cdot \text{mA}$))	χ aus $k_x(I)$	χ aus $k_y(I)$
78 ± 5 aN/ $\mu\text{m} \cdot \text{mA}$	122 ± 5 aN	0.40 ± 0.02	0.44 ± 0.03

Für die in Abbildung 55b) gezeigten Daten ergibt sich demnach ein konstantes Verhältnis aus Fallenstärke und Manipulationsstrom von $k_x/I = 78 \pm 5$ aN/($\mu\text{m} \cdot \text{mA}$) sowie $k_y/I = 122 \pm 5$ aN/($\mu\text{m} \cdot \text{mA}$), was einer Suszeptibilität von $\chi = 0.44 \pm 0.03$ (k_y) bzw. $\chi = 0.40 \pm 0.02$ (k_x) entspricht. Beide Werte sind im Rahmen ihrer Toleranzen identisch und fallen in den aus der Literatur bekannten Bereich, der mit $\chi = 0.19 - 0.75$ [140, 155] für M-280 Partikel, bzw. mit $\chi = 0.4 - 0.5$ [156] für die nahezu identischen M-270 Partikel angegeben wird. Das Ergebnis demonstriert, dass sich die Suszeptibilität χ bzw. das magnetische Moment eines einzelnen M-280 Partikels aus Beobachtung der langzeitigen Fluktuation im harmonischen Fallenpotential extrahieren lässt.

3.5.5 Diskussion zu maximal erreichbarer Fallenstärke und Stabilität des Partikels

Aufgrund der mit der gezeigten Falle erreichbaren, niedrigen Fallenstärken k_x und k_y in Verbindung mit der statistischen Natur der Auswertung der Fluktuationsdaten sind wie im vorherigen Abschnitt beschrieben Messzeiten im Bereich $t_{\text{mess}} \sim 60$ min notwendig, was die Anwendung der Methode nur für eine geringe Anzahl an Partikeln erlaubt. Im Folgenden wird deshalb kurz darauf eingegangen, wie die Fallenstärken durch Änderung der Betriebsparameter der Falle geändert werden können und welche Limitierungen dabei gelten. Entsprechend Formel (45) lässt sich die Kraft und somit die Fallenstärke für $B_{\text{ext},z} \gg B_{\text{leiter},z}$ als proportional zum Produkt $B_{\text{ext},z} \cdot I$ schreiben, weshalb externes Feld und Fallenstrom die wesentlichen, die Fallenstärke beeinflussenden Parameter sind. Das externe

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Feld kann zur Erhöhung der Fallenstärke beispielsweise durch Verwendung eines Permanentmagneten deutlich größer als die in den bisher gezeigten Experimenten maximal verwendeten Felder von $B_{\text{ext},z} \sim 5 \text{ mT}$ gewählt werden. Die Kraft lässt sich aber nur dann durch eine weitere Erhöhung von $B_{\text{ext},z}$ vergrößern, falls das magnetische Moment des Partikels durch das externe Feld noch nicht gesättigt wird. Da nach den Magnetisierungsmessungen aus Abbildung 35a) die M-280 Partikel bei einem Feld von $B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$ ca. 20 % ihres magnetischen Sättigungsmoments aufweisen, kann durch Erhöhung des externen Feldes gemäß Formel (33) nur maximal ein Faktor 5 in Erhöhung der Kraft und damit der Fallenstärke erzielt werden.

Der Strom I durch den Ringleiter mit Höhe h und Breite w ist im Wesentlichen durch die maximal zulässige Verlustwärme/Leiterquerschnitt $= P_{\text{max}}/A_{\text{leiter}} = I_{\text{max}}^2 \cdot R_{\text{leiter}}/(h \cdot w) \sim I_{\text{max}}^2/(h \cdot w)^2 = \text{const.}$ limitiert. Durch Erhöhung der Leiterbahnhöhe h kann daher der Strom im selben Maß mit erhöht werden. Für den bestehenden Aufbau mit einer Leiterbahnbreite von $w = 5 \mu\text{m}$ und einer Dicke von $h \sim 200 \text{ nm}$ konnte die Struktur in allen Experimenten auf Zeitskalen von mehreren Stunden stabil mit Strömen bis zu $I = 100 \text{ mA}$ betrieben werden. Werden dickere Ringstrukturen, bspw. $h = 4 \mu\text{m}$ erzielbar durch galvanische Abscheidung, verwendet lässt sich daher ein stabiler Betrieb bis zu einem Strom von $I = 2 \text{ A}$ erwarten. Dies erhöht die Kraft und Fallenstärke entsprechend Formel (45) um einen Faktor 20 gegenüber dem Betrieb mit $I = 100 \text{ mA}$. Wird die Erhöhung von $B_{\text{ext},z}$ und I kombiniert, lässt sich somit eine Erhöhung von Kraft und Fallenstärke um den Faktor 100 gegenüber der aktuellen Limitierung ($I = 100 \text{ mA}$, $B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$) erwarten, was zu Fallenstärken im Bereich von $k_{x,y} \approx 1 \text{ pN}/\mu\text{m}$ im selben Größenordnungsbereich wie bspw. für optische Fallen führt [103] und für M-280 Partikel eine Positionierung in einem Bereich von $< 100 \text{ nm}$ ermöglicht.

3.5.6 2D-Positionierfalle durch Gradientenüberlagerung

Die Verwendung des mikro-strukturierten Ringleiters ermöglicht das Positionieren eines Partikels im fest vorgegebenen Energieminimum der Ringfalle. Sollen einzelne Partikel beispielsweise in Kombination mit auf der Subtratoberfläche verteilten Arrays aus Magnetfeldsensoren [157] eingesetzt werden, müssen die Partikel auf mehrere, vordefinierte Positionen transportiert werden. Eine mögliche Lösung dazu würde sich ergeben, indem die bisher eingesetzte Ringfalle relativ zum Partikel bewegt wird. Dies ließe sich beispielsweise unter Einsatz eines zweiten, beweglichen Substrats, mittels dessen die sich darauf befindliche Ringfalle unabhängig gegen die Partikel bewegt werden kann, realisieren. Eine einfachere Lösung ergibt sich, indem anstatt eines einzelnen Ringleiters mehrere mikro-strukturierte Leiter verwendet werden. Ein solches Konzept wurde 2004 erstmals durch Lee et al. realisiert. Hierbei konnte durch das Anordnung von individuell adressierbaren, mikrostrukturierten Leitern in einer 10×10 Matrix erreicht werden, dass einzelne Partikel durch die erzeugten Magnetfeldmaxima der jeweils stromdurchflossenen Matrixsegmente

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

zweidimensional in die Nähe der angesteuerten Segmente positioniert werden [158]. Diese Technik erlaubt eine frei konfigurierbare Kontrolle der Partikelposition in zwei Dimensionen, jedoch skaliert die Anzahl der benötigten Leiterbahnsegmente und damit die Komplexität der individuellen Ansteuerung proportional zur Fläche, innerhalb der manipuliert werden soll. Eine weitere Möglichkeit zur freien, zweidimensionalen Positionierung wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit, basierend auf den bisher gezeigten Ergebnissen zur Manipulation von Einzelpartikeln entwickelt. Abbildung 56a) und b) zeigen schematisch das Design der entwickelten Mikrostruktur.

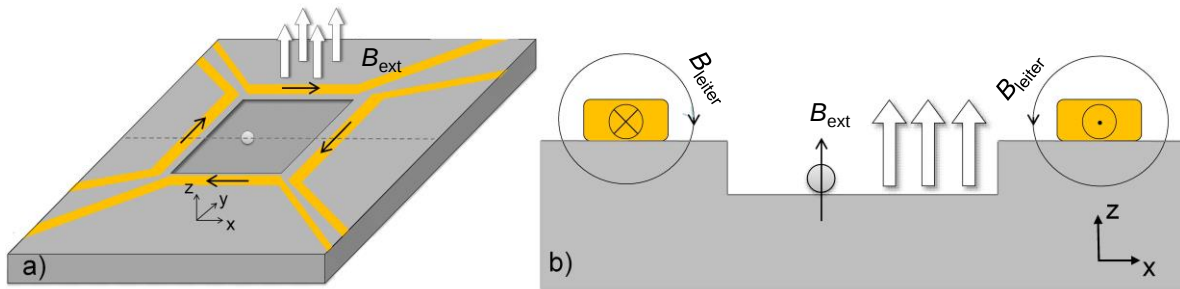


Abbildung 56: Schematische Darstellung der zur zweidimensionalen Positionierung entwickelten Mikrostruktur a) in 3D-Perspektive (a) und im Querschnitt (b)).

Diese besteht aus vier einzeln adressierbaren, geraden Leiterbahnsegmenten, die in einer Rechteckgeometrie zueinander angeordnet sind. Zur Herstellung des Positioniersystems wurde zunächst mittels eines Reactive Ion Etching Prozesses eine Öffnung mit einer Tiefe von wenigen μm in ein Si Substrat geätzt. Das Substrat wurde anschließend mittels einer 300 nm SiO_2 Schicht abgedeckt, die in einem plasma-unterstütztem CVD Prozess abgeschieden wurde. Anschließend wurden die vier Mo/Au Leiterbahnen mittels eines Inverslackprozesses vordefiniert und mit einer Höhe von ca. 20 nm / 180 nm mittels RF-Sputtern abgeschieden.

Die Funktionsweise der Falle lässt sich dabei aus den Erkenntnissen zur Kräfte- und Energielandschaft eines geraden Leiterstücks, die in Kapitel 3.3 gezeigt sind, ableiten. Dabei wird die Richtung des Stroms durch die Leiterbahnen jeweils so gewählt, dass sich im von den Leiterbahnen umschlossenen, inneren Bereich der Falle durch den Gradienten der Leiterbahnmagnetfelder in Kombination mit einem überlagerten, externen Feld $B_{\text{ext},z}$ eine Abstoßung des Partikels von allen Leiterbahnen in Richtung des Falleninneren ergibt. Abbildung 57a) zeigt ein Experiment, bei dem die vier Leiterbahnen in unterschiedlichen Konfigurationen der Ströme in Kombination mit einem externen Feld von $B_{\text{ext},z} = 6.7 \text{ mT}$ betrieben wurden. Jeweils zwei Leiterbahnen wurden dabei mit einem hohen Strom von $I = 70 \text{ mA}$ und zwei mit einem geringeren Strom von $I = 10 \text{ mA}$ beaufschlagt, nachdem sich ein Partikel im Inneren der Falle auf dem Substrat angelagert hatte.

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

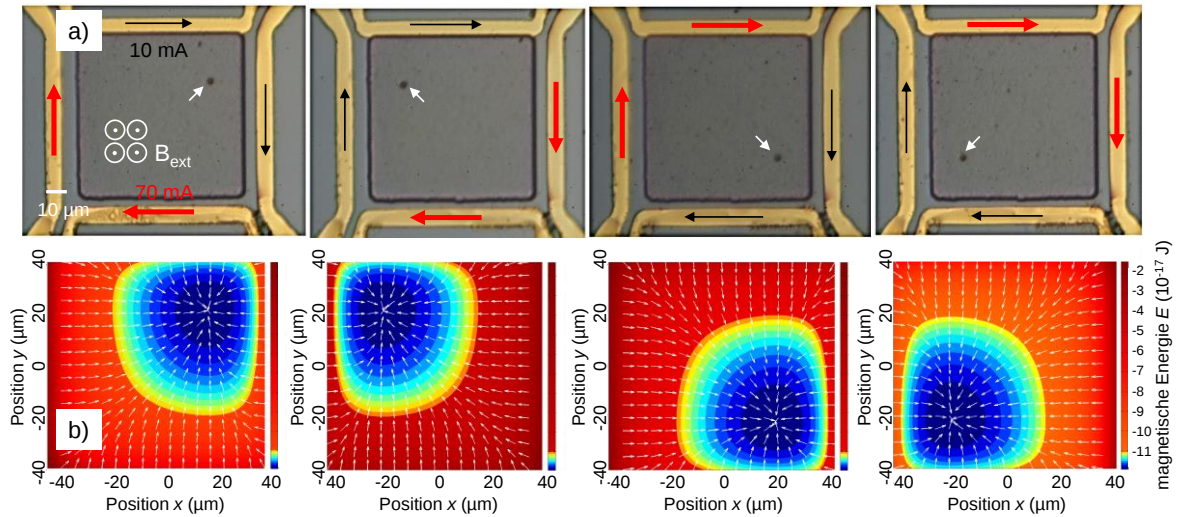


Abbildung 57: In a) ist ein exemplarisches Experiment zur Positionierung eines superparamagnetischen Partikels gezeigt. Die weißen Pfeile markieren die Position des Partikels nach Beschaltung der Struktur mit den angegebenen Strömen (rot = 70 mA; schwarz = 10 mA) und Zuschalten des externen Feldes $B_{\text{ext}} = 6.7$ mT. Die Stromrichtung innerhalb der Leiterbahnen ist durch die Pfeilrichtung gegeben. In b) sind die für die jeweiligen Stromkonfigurationen berechneten Energielandschaften gezeigt. Der Farbcode entspricht der absoluten magnetischen Energie (Skala siehe rechte Abbildung). Die weißen Pfeile repräsentieren die lokal auf das Partikel wirkende, normierte Kraft.

Das Ergebnis zeigt, dass das Partikel je nach Konfiguration der Ströme durch die Leiterbahnen eine unterschiedliche Position einnimmt. Die in der Abbildung gezeigten Mikroskopaufnahmen wurden gemacht, nachdem sich das Partikel für die jeweilige Konfiguration der Ströme hin zur Position minimaler magnetischer Energie (jeweils mit weißem Pfeil markiert) bewegt hat. Dabei ist das Partikel jeweils weiter von den Leiterbahnsegmenten entfernt, die mit dem höheren Strom von $I = 70$ mA beaufschlagt werden. Die eingesetzte Falle erlaubt daher die Position minimaler Energie und damit die Gleichgewichtsposition des Partikels durch die Konfiguration der Ströme in den vier Leiterbahnsegmenten einzustellen. Die verschiedenen Energieminima lassen sich dabei im Rahmen der Energie- und Kräftelandschaft im Inneren der Leiterbahnanordnung entsprechend nach Formel (33) modellieren. Zur Vereinfachung der Berechnung wurden die Leiterbahnen jeweils als unendlich lang angenähert und somit die Zuleitungsstücke zu den Leiterbahnen (jeweils an den Ecken der Mikroskopaufnahmen in Abbildung 57a) zu sehen) nicht berücksichtigt. Die berechneten Ergebnisse sind in Abbildung 57b) dargestellt. Diese zeigen im Einklang mit den experimentellen Ergebnissen jeweils eine Position minimaler magnetischer Energie, die je nach Stromkonfiguration in einem der vier Quadranten des Falleninneren zu finden ist. Die Berechnungen zeigen, dass die genaue Gleichgewichtsposition des Partikels sich dabei über die jeweiligen Verhältnisse der Ströme von oberer und unterer Leiterbahn bzw. linker und rechter Leiterbahn einstellen lässt (hier nicht explizit dargestellt). Da das Verhältnis der Ströme durch die individuelle Ansteuerung der vier Leiterbahnen beliebig eingestellt werden kann, lässt sich das Partikel prinzipiell an jede Position im Falleninneren transportieren. Die gezeigten Ergebnisse demonstrieren daher, dass einzelne M-280 Partikel über eine Längenskala von ca. $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ in zwei Dimensionen auf der Substratoberfläche frei positioniert werden können. Dies

ermöglicht beispielsweise eine Kombination der magnetischen Falle mit sogenannten GMR-basierten Immunoassay Systemen, die durch parallelisiertes Auslesen von kompletten Magnetfeldsensor-Arrays einen hohen Durchsatz bei der spezifischen Detektion von Bioanalyten ermöglichen [159].

3.6 Mehrpartikelexperimente in der magnetischen Ringfalle

Alle bisher gezeigten Experimente wurden jeweils unter Verwendung eines einzelnen Partikels in der magnetischen Falle durchgeführt. In diesem Kapitel soll darauf eingegangen werden, in wie weit sich die Falle zur gleichzeitigen Positionierung von mehreren Partikeln im Fallenninneren eignet. Dazu wird zunächst die magnetische Wechselwirkung zwischen superparamagnetischen Partikeln näher betrachtet.

3.6.1 Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen superparamagnetischen Partikeln

Sollen mehrere Partikel gleichzeitig im Inneren der Falle manipuliert werden, so muss prinzipiell die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den Partikeln bei der Berechnung der auf die Partikel wirkenden Kräfte mit berücksichtigt werden. Da für die magnetische Manipulation, wie in Kapitel 3.3 gezeigt, externe Felder senkrecht und parallel zur Substratebene eingesetzt werden können, werden beide Fälle bezüglich der sich ergebenden Dipol-Dipol-Wechselwirkung mit einbezogen. Für die Berechnung der Dipol-Dipol Energie E_{dip} wird ein Partikelpaar aus zwei identischen Partikeln angenommen. Dabei ist ein Partikel innerhalb einer gedachten (x, z) Ebene frei beweglich, während das zweite Partikel mit seinem Schwerpunkt an der Position $(x, z) = (0, r_p)$ fixiert ist - die Koordinaten (x, y) bezeichnen im Folgenden jeweils die Koordinaten des freien Partikels im Bezug zum Koordinatenursprung bei $(x, z) = (0, 0)$. Beide Partikel weisen das gleiche magnetische Moment $\vec{m}$ auf, das durch das externe Feld zu $\vec{m} = \chi_v V \vec{B}_{\text{ext}} / \mu_0$ gegeben ist. Das magnetische Moment wird dabei als fest und unabhängig von der Position (x, z) betrachtet. Dies ist erfüllt, solange der Abstand d der Partikelschwerpunkte zueinander deutlich größer als der Radius r_p der Partikel ($d \gg r_p$) ist. Die magnetische Dipol-Dipol Energie E_{dip} ergibt sich aus dem Skalarprodukt des magnetischen Moments $\vec{m}$ des Partikels mit dem magnetisch durchsetzenden Streufeld des zweiten Partikels $\vec{B}_{\text{streu}}$ zu [160]:

$$E_{\text{dip}}(\vec{m} = m\vec{e}_x) = -\vec{m} \cdot \vec{B}_{\text{streu}} = -\frac{\mu_0 |\vec{m}|^2}{4\pi} \left(\frac{2x^2 - (z - r_p)^2}{(x^2 + (z - r_p)^2)^{5/2}} \right) \quad (46)$$

$$E_{\text{dip}}(\vec{m} = m\vec{e}_z) = -\vec{m} \cdot \vec{B}_{\text{streu}} = -\frac{\mu_0 |\vec{m}|^2}{4\pi} \left(\frac{2(z - r_p)^2 - x^2}{(x^2 + (z - r_p)^2)^{5/2}} \right) \quad (47)$$

Gleichung (46) beschreibt dabei die Energie für ein externes Feld entlang der x -Achse ($B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x}$), Gleichung (47) die Energie für ein externes Feld entlang der z -Achse ($B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$). Abbildung 58a) zeigt die berechnete Dipol-Dipol-Wechselwirkungsenergie und die sich daraus ergebend Kräftelandschaft $\vec{F}_{\text{dip}}(x, z)$ (gegeben zu: $\vec{F}_{\text{dip}} = -\vec{\nabla}E_{\text{dip}}$) in unmittelbarer Umgebung zum fixierten Partikel für ein externes Feld von $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x} = 5$ mT. Für diesen Fall ergibt sich eine minimale Energie an der linken und rechten Seite des fixierten Partikels bei $(x, z) = (\pm r_p/2, r_p/2)$, die zu einer anziehenden Kraft auf das frei bewegliche Partikel hin zur linken bzw. rechten Kante des fixierten Partikels führt. Im Fall von externem Feld senkrecht zur Substratebene mit $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z} = 5$ mT (Abbildung 58b)) ergibt sich die minimale Energie an der oberen Seite des Partikels bei $(x, z) = (0, 2r_p)$, während sich die maximale Energie jeweils an der linken und rechten Seite des fixierten Partikels bei $(x, z) = (\pm r_p/2, r_p/2)$ ergibt. Für diesen Fall lässt sich aus der Bedingung $F_x(\phi = \phi_c) = 0$ ein kritischer Winkel von $\phi_c \approx 26.6^\circ$ definieren, der in Abbildung 58b) zusätzlich eingezeichnet ist. Befindet sich das frei bewegliche Partikel oberhalb dieses Winkels wird es hin zur Oberseite des fixierten Partikels angezogen und lagert sich dort an. Für Partikel unterhalb ϕ_c ergibt sich eine Abstoßung des freien Partikels vom fixierten Partikel.

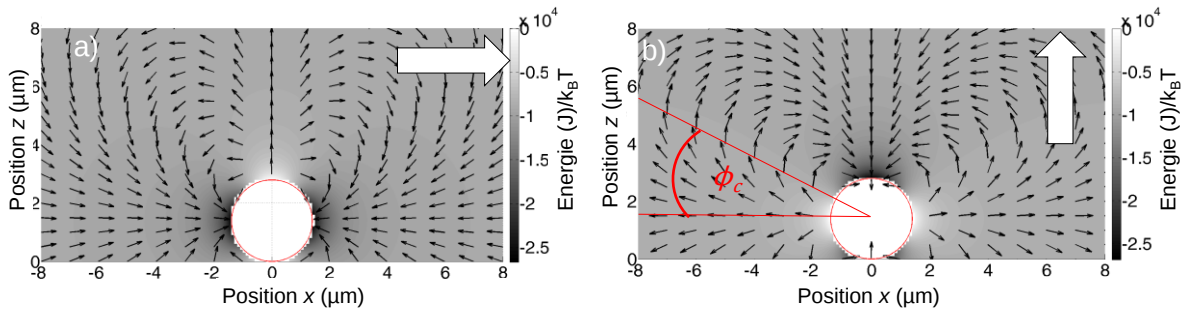


Abbildung 58: Berechnete Dipol-Dipol-Wechselwirkung für ein identisches Paar von M-280 Partikeln. In a) und b) ist die auf $k_B T$ bei Raumtemperatur normierte Energielandschaft (Grauskala) sowie die normierte Kräftelandschaft (als Pfeile) gemäß Gleichung (46) und (47) für ein externes Feld von $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x} = 5$ mT (a)) und $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z} = 5$ mT (b)) gezeigt. Die roten Kreise um $x, y = (0, 1.4 \mu\text{m})$ repräsentieren das fixierte M-280 Partikel. Die weißen Pfeile stellen die Richtung des extern angelegten Feldes dar. Der Winkel ϕ_c in Abbildung b) markiert den kritischen Winkel für Abstoßung (Erklärung hierzu im Haupttext).

Abbildung 59a) zeigt die experimentell beobachtbare Auswirkung der Dipol-Dipol-Wechselwirkung für ein Ensemble von M-280 Partikeln für den Fall eines angelegten in-plane Feldes, was bedeutet, dass das externe Feld parallel zur Oberfläche des Substrats angelegt wird (entspricht $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},x}$). Die Partikel ordnen sich nach dem Einschalten des externen Feldes bei $t = 0$ zu einer Kette an, die sich parallel zum externen Feld ausrichtet. Dies kann als Konsequenz der gegenseitigen, anziehenden Wechselwirkung der Partikel gemäß den in Abbildung 58a) gezeigten Ergebnissen verstanden werden. Für ein externes Feld von $B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$ (Abbildung 59b)) stellt sich die Situation komplizierter dar.

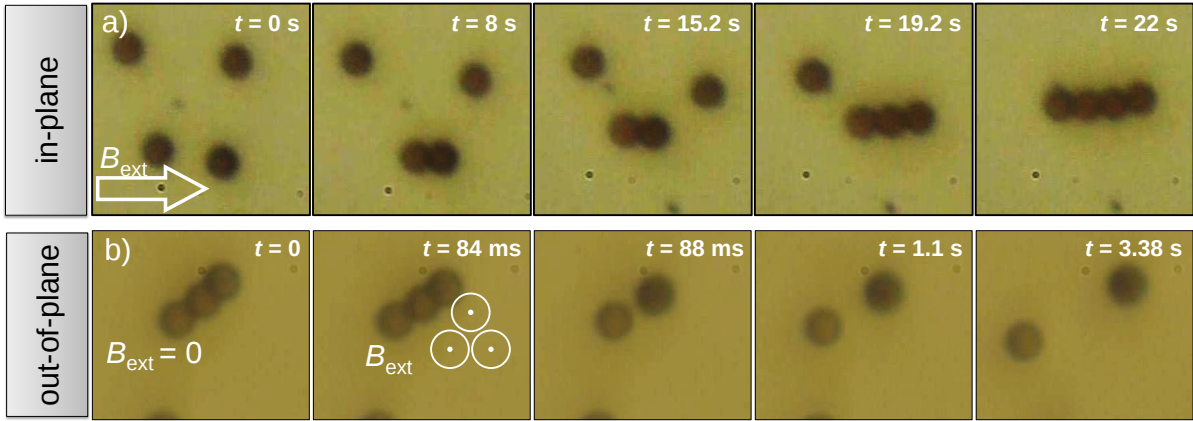


Abbildung 59: In a) ist die experimentell beobachtete Wechselwirkung von M-280 Partikeln für ein in-plane Feld von $B_{\text{ext}} = 1 \text{ mT}$ (zugeschaltet bei $t = 0 \text{ s}$) gezeigt. Abbildung b) zeigt das Partikelverhalten von M-280 Partikeln unter Zuschalten eines externen Feldes $B_{\text{ext},z} = 5 \text{ mT}$ bei $t = 84 \text{ ms}$.

Im vorliegenden Fall ergibt sich nach dem Einschalten des Feldes bei $t = 84 \text{ ms}$ zwischen dem mittleren Partikel und rechten Partikel eine anziehende Wirkung, die dazu führt, dass sich das mittlere Partikel zwischen $t = 84 \text{ ms}$ und $t = 88 \text{ ms}$ an der Oberseite des rechten Partikels anlagert. Dies zeigt, dass sich das mittlere Partikel zum Einschaltzeitpunkt des Feldes oberhalb des kritischen Winkel ϕ_c bezüglich des rechten Partikels befunden haben muss. Die gezeigte Anordnung der Partikels ergibt sich im Fall der M-280 Partikel bei Zuschalten des externen Feldes $B_{\text{ext},z}$ nur für unmittelbare Nähe der Partikel zueinander, da aufgrund der geringen Fluktuation der M-280 Partikel in z -Richtung (vgl. auch Aufenthaltswahrscheinlichkeit $p(\tilde{z})$ in Abbildung 52e) für größere Abstände der Partikel zueinander der kritische Winkel ϕ_c nicht überschritten wird. Der Sachverhalt der Anordnung der Partikel entlang der $\tilde{z}$ -Richtung ist vor allem für Einzelpartikelexperimente relevant, da sich ein durch ein durch das Zuschalten des externen Feldes entlang der $\tilde{z}$ -Richtung angeordnetes Partikelpaar im Auflichtmikroskop optisch nicht von Einzelpartikeln unterscheiden lässt und somit die Gefahr besteht, fälschlicherweise Experimente mit einem Partikelpaar statt einem Einzelpartikel durchzuführen. Wird das externe Feld wieder abgeschaltet (hier nicht gezeigt), sinkt das oben angelagerte Partikel wieder auf das Substrat und beide Partikel lassen sich optisch wieder trennen. Dieser Umstand kann daher zur Kontrolle in den Einzelpartikelexperimenten verwendet werden, um das Arbeiten mit einem Partikelpaar auszuschließen. Das in Abbildung 59b) ab $t = 88 \text{ ms}$ links gezeigte Partikel befindet sich aufgrund seines nach Ausbildung des Partikelpaars größeren Abstandes zu diesem unterhalb des kritischen Winkels ϕ_c . Daher erfährt es eine Abstoßung vom Partikelpaar, wodurch sich beide für Zeiten $t > 88 \text{ ms}$ voneinander entfernen. Das Partikel legt dabei in der Zeit von $t = 1.1 \text{ s}$ bis $t = 3.38 \text{ s}$ eine Strecke von ca. $3 \text{ }\mu\text{m}$ zurück. Dies entspricht einer über die Zeitspanne gemittelten Geschwindigkeit des linken Partikels von $\bar{v} = \left(\frac{3 \text{ }\mu\text{m}}{2.28 \text{ s}}\right) = 1.31 \text{ }\mu\text{m/s}$. Da die Viskosität des umgebenden Mediums bekannt ist, kann aus der Geschwindigkeit die mittlere Stokessche Reibung und somit gemäß Abschnitt 3.2.6

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

die mittlere magnetische Kraft $\bar{F}_{dip}$ auf das linke Partikel berechnet werden. Man erhält demnach: $\bar{F}_{dip} = \bar{F}_{stokes} = 6\pi\eta r_p \bar{v} = 34.7 \text{ fN}$. Die Kraft auf das M-280 Partikel ist somit in derselben Größenordnung wie die typischen, durch die magnetische Falle gegebenen Kräfte in der Nähe des Energieminimums und muss somit bei Experimenten mit mehreren Partikeln im Falleninneren mit berücksichtigt werden.

3.6.2 Partikelpaar in Ringfalle – Experiment und quantitative Modellierung

Abbildung 60a) zeigt ein Experiment, bei dem sich zum Einschaltzeitpunkt des Stroms durch die Falle zwei Partikel im Inneren der Ringstruktur befinden.

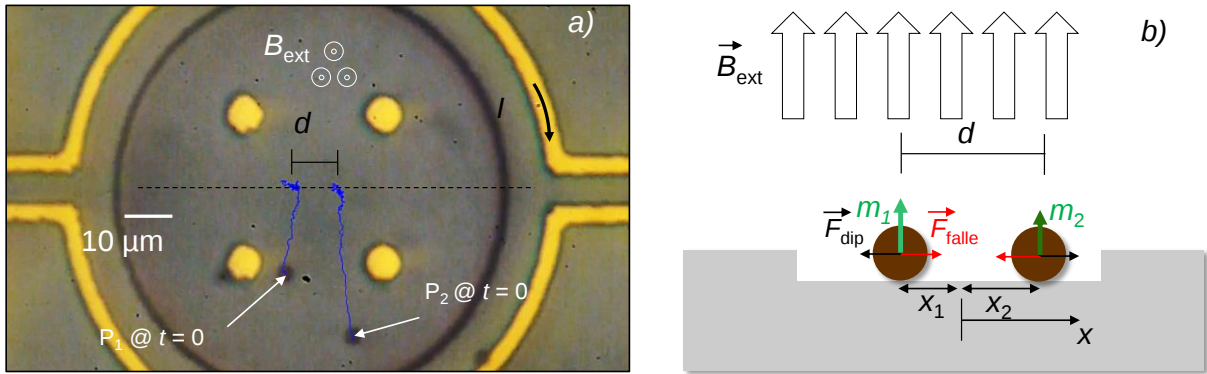


Abbildung 60: In a) ist das Einfangen eines Partikelpaars für einen Strom von $I = 35 \text{ mA}$ (zugeschaltet bei $t = 0 \text{ s}$) und ein externes Feld von $B_{ext} = 5.3 \text{ mT}$ gezeigt. Die Partikeltrajektorien (blaue Linien) sind von $t = 0 \text{ s}$ (siehe weißer Pfeil) bis $t = 1 \text{ min}$ eingezeichnet. In b) ist das Kräfteschema im Kräftegleichgewicht entlang der in a) gestrichelt eingezeichneten Linie gezeigt. Die Kräfte in z -Richtung (DLVO + Gravitation) sind nicht berücksichtigt.

Nach dem Einschalten des Stroms von $I = 35 \text{ mA}$ zum Zeitpunkt $t = 0$ durch den Ringleiter bewegen sich beide Partikel aus ihrer Ausgangsposition (markiert durch weiße Pfeile in Abbildung 60a)) zunächst in Richtung des Energieminimums in der Mitte der Ringstruktur. Die Partikel werden jedoch nicht zur selben Position transportiert, sondern nehmen nach Erreichen der x -Achse (gestrichelte Linie) einen Abstand d zueinander ein. Dieser Sachverhalt kann als Folge der durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung hervorgerufenen Kräfte F_{dip} in Kombination mit den durch die Falle auf die Partikel wirkenden Kräften F_{falle} verstanden werden und ist schematisch in Abbildung 60b) skizziert. Gemäß den in Abbildung 59b) gezeigten Ergebnissen stoßen sich die Partikel bedingt durch das entlang der $\hat{x}$ -Richtung angelegte, externe Feld $B_{ext} = B_{ext,z}$ durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung voneinander ab. Die Partikel werden gleichzeitig durch die Fallenkraft F_{falle} in Richtung Fallenmittelpunkt gedrückt. Dadurch ergibt sich das in Abbildung 60b) skizzierte Kräftegleichgewicht, das in einem Gleichgewichtsabstand d ($\vec{F}_{falle} = \vec{F}_{dip}$) resultiert. Ähnliche Ergebnisse konnten durch L. Helseth für superparamagnetische Partikel, die in einer optischen Falle mit überlagertem, homogenen Magnetfeld gefangen wurden, beobachtet werden [156]. Da die Größe d durch die Brown'sche Bewegung der Partikel Fluktuationen unterworfen ist, wird für die Modellierung des Kräftegleichgewichts das

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

zeitliche Mittel von d herangezogen. Dazu wird zur Diskussion der Ergebnisse der gleitende Mittelwert des Abstands $\bar{d}(t)$ betrachtet. Dieser ergibt sich für die Positionen (x_1, y_1, z_1) für Partikel 1 und (x_2, y_2, z_2) für Partikel 2 zu:

$$\bar{d}(t) = \bar{d} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{i=N} \sqrt{(x_1(t_i) - x_2(t_i))^2 + (y_1(t_i) - y_2(t_i))^2 + (z_1(t_i) - z_2(t_i))^2} \quad (48)$$

Abbildung 61 zeigt die (zweidimensionale) Auswertung des Zweipartikelexperiments, nachdem die Partikel ihre Gleichgewichtsposition erreicht haben und in direkter Umgebung zu diesen fluktuieren.

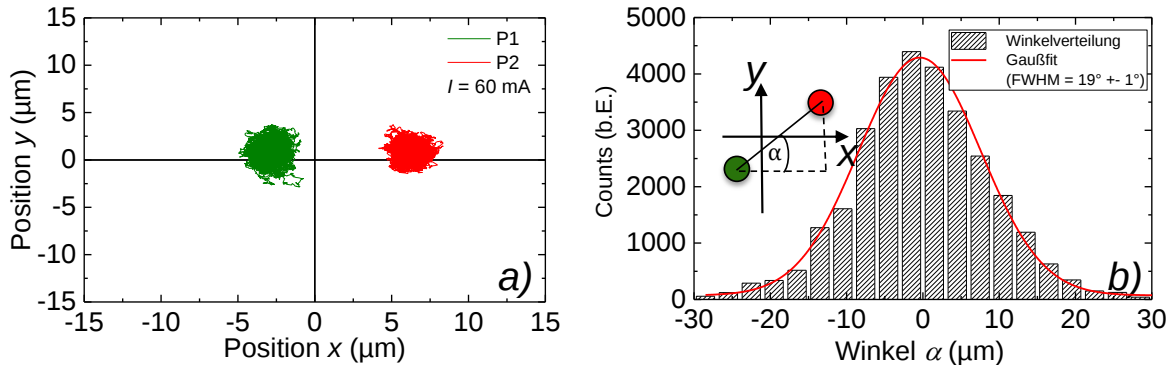


Abbildung 61: Messung eines in der Falle gefangenen Partikelpaars. In a) sind die Trajektorien (grün: Partikel 1, rot: Partikel 2) nach Erreichen der stabilen Partikelpositionen für $I = 60$ mA und $B_{ext,z} = 5.2$ mT gezeigt. In b) ist die Winkelverteilung entsprechend der gezeigten Skizze für die in a) gezeigten Trajektorien dargestellt.

In Abbildung 61a) sind die aus den Videodaten extrahierten Trajektorien der beiden Partikel P_1 (grün, links) und P_2 (rot, rechts) über den gesamten Messzeitraum von $t_{mess} = 20$ min gezeigt. Aus den gezeigten Trajektorien lässt sich eine Asymmetrie der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der beiden Partikel bzgl. der y -Achse feststellen. Partikel P_1 fluktuiert im Mittel in einem Abstand von ca. $3 \mu\text{m}$ zum Fallenmittelpunkt, während der mittlere Abstand von P_2 zum Fallenmittelpunkt ca. $6 \mu\text{m}$ beträgt. Eine mögliche Ursache hierfür könnte ein unterschiedliches magnetisches Moment der beiden Partikel (beispielsweise durch eine unterschiedliche Volumenssuszeptibilität oder eine unterschiedliche Größe r_p) darstellen. Dies würde bei gleicher abstoßender Kraft F_{dip} zu unterschiedlichen Abständen der Partikel zum Fallenmittelpunkt führen. Im Experiment konnte jedoch beobachtet werden, dass sich die gezeigte Asymmetrie in den Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für dasselbe Partikelpaar in Abhängigkeit der Stromstärke I systematisch entlang der x -Achse verschiebt. Dies kann evtl. durch thermisch erzeugte Strömungen der Flüssigkeit für eine - zusätzliche vom Strom durch die Ringstruktur abhängige - Auslenkung der Partikel aus dem Fallenmittelpunkt sorgen. Zudem könnte eine geringfügige Verkipfung des Magnetfelds der Helmholtzspule gegen die Probenoberflächennormale ebenfalls für die beobachtete Verschiebung des Schwerpunkts des Partikelpaars gegen das Zentrum der Ringstruktur verantwortlich sein. Die Trajektorien zeigen weiterhin, dass sich das Partikelpaar über

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

den gesamten Messzeitraum bevorzugt entlang der x -Achse ausrichtet. Dies lässt sich qualitativ durch die Asymmetrie der magnetischen Energielandschaft bzw. Kräfterlandschaft bzgl. x - und y - Achse der Falle ($k_y > k_x$) erklären. Durch diesen Umstand wirken in y -Richtung größere Kräfte auf die Partikel, was zur beobachteten Ausrichtung des Partikel-paars führt. Dieser Umstand lässt sich weiter durch Einführung des Winkels α mit $\alpha = \text{atan}\left(\frac{y_2 - y_1}{x_2 - x_1}\right)$, der zwischen Verbindungslinie der Partikelschwerpunkte und der x -Achse (siehe Skizze in Abbildung 61b)) eingenommen wird, quantifizieren. Die in Abbildung 61b) über den gesamten Messzeitraum gezeigte Verteilung des Winkels α lässt sich für die in a) gezeigten Trajektorien von P_1 und P_2 durch eine Gaußverteilung mit einer Halbwertsbreite von $W_{FWHM} = 19^\circ$ beschreiben. Aus den gewonnenen Erkenntnissen lassen sich zur Modellierung der Kräftebilanz für das Zweipartikelsystem einige Vereinfachungen tätigen, die im Folgenden stichpunktartig aufgeführt werden:

- Das magnetische Moment $\vec{m}$ der Partikel ist durch das externe Feld $\vec{B}_{ext,z}$ festgelegt. Aufgrund der Gleichgewichtsabstände von $d > 5 \mu\text{m}$ im Vergleich zum Radius der Partikel von $r_p = 1.4 \mu\text{m}$ ist das Streufeld der Partikel, das den jeweils anderen Partikel durchsetzt, deutlich geringer als das externe Feld und wird daher vernachlässigt.
- Die Unterschiede in den Abstandskoordinaten $z(t)$ beider Partikel werden zur Berechnung des Abstands d vernachlässigt, da diese bedingt durch die geringe Fluktuation der M-280 Partikel in z -Richtung im Mittel viel geringer als die Abstände $\Delta x(t) = (x_1(t) - x_2(t))$ bzw. $\Delta y(t) = (y_1(t) - y_2(t))$ sind.
- Aufgrund der Ausrichtung des Partikel-paars entlang der x -Achse gilt in erster Näherung $d = \sqrt{\Delta x^2 + \Delta y^2} \approx \Delta x$. Der relative Fehler in der Abstandsberechnung lässt sich zu $(\sqrt{\Delta x^2 + \Delta y^2} - \Delta x)/\Delta x$ abschätzen. Im statistischen Mittel ist dieser gemäß der in Abbildung 61b) gezeigten Winkelverteilung $< 2 \%$.
- Die zusätzlich zur Dipol-Dipol Wechselwirkung wirkende, abstoßende DLVO Wechselwirkung der negativ geladenen M-280 Partikel untereinander wird vernachlässigt, da die Debye Länge $\lambda_D < 100 \text{ nm}$ deutlich geringer als der Abstand $d > 5 \mu\text{m}$ der Partikel ist.
- Die Partikel befinden sich in geringem Abstand von wenigen μm zum Energieminimum der Falle. Dadurch kann das Fallenpotential als harmonisch angenähert werden.

Diese Annahmen erlauben eine vereinfachte, eindimensionale Modellierung der Kräfte auf die Partikel. Demnach ergibt sich die Dipol-Dipol Energie für Partikel P_1 mit magnetischem Moment m_1 und Partikel P_2 mit Moment m_2 entsprechend Gleichung (46) zu:

$$E_{dip}(x_1, x_2) = \frac{\mu_0 m_1 \cdot m_2}{4\pi(x_1 - x_2)^3} \quad (49)$$

Daraus ergeben sich die Kräfte aus Dipol-Dipol-Wechselwirkung auf die einzelnen Partikel zu:

$$\vec{F}_{dip,1} = -\frac{\partial}{\partial x_1} E_{dip} \vec{e}_x = -\vec{F}_{dip,2} = \frac{\partial}{\partial x_2} E_{dip} \vec{e}_x \quad (50)$$

Für die durch die Falle erzeugten Kräfte auf P_1 und P_2 gilt folgende Beziehung:

$$\vec{F}_{f,1} = m_1 \frac{\partial}{\partial x_1} B_{leiter,z}(x_1) \vec{e}_x = c m_1 x_1 \vec{e}_x \quad (51)$$

$$\vec{F}_{f,2} = m_2 \frac{\partial}{\partial x_2} B_{leiter,z}(x_2) \vec{e}_x = c m_2 x_2 \vec{e}_x \quad (52)$$

Im linearen Bereich der Falle, in dem $\frac{\partial}{\partial x} B_{leiter,z}(x) \sim x$ gilt, ergibt sich die Konstante c zu $c = \frac{\partial^2}{\partial x^2} B_{leiter,z}$. Bilanziert man beide Kräfte zu $\vec{F}_{f,1} = \vec{F}_{dip,1}$ sowie $\vec{F}_{f,2} = \vec{F}_{dip,2}$ und löst beide Gleichungen jeweils nach dem magnetischen Moment m_1 bzw. m_2 auf lässt sich unter Verwendung von Gleichungen (50) - (52) folgende Beziehung für den Abstand der Partikel ableiten:

$$\bar{d}^5 = \frac{3\mu_0}{c \cdot 2\pi} \left(\frac{m_1 + m_2}{2} \right) = \frac{3\mu_0 \bar{m}}{c \cdot 2\pi} \quad (53)$$

Die Konstante c ist dabei unter den oben beschriebenen Voraussetzungen direkt proportional zum in die Falle eingepprägten Strom I , es gilt also $c = c_0 I$. Daraus ergibt sich unter Einführung der Größe $a = \frac{3\mu_0}{c_0 \cdot 2\pi}$ folgender Zusammenhang für $\bar{d}^5$:

$$\bar{d}^5 = a \frac{\bar{m}}{I} \quad (54)$$

Abbildung 62a) zeigt den gleitenden Mittelwert des Abstands $\bar{d}(t)$ der Partikel für verschiedene Stromstärken I durch die Ringstruktur. Die verwendeten Ströme I wurden dabei so gewählt, dass der Unterschied im Abstand der Partikel nach Änderung des Stroms schon mit „bloßem Auge“ im Mikroskop während der Aufnahme der Videos wahrgenom-

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

men werden konnte. Die Aufnahme der Partikelpositionen wurde dabei jeweils einige Sekunden nachdem beide Partikel ins Innere der Falle transportiert wurden (hier: Zeitpunkt $t = 0$ s) gestartet. Für kurze Zeiten $t < 1$ min weist der gleitende Mittelwert $\bar{d}(t)$ bedingt durch die Brown'sche Bewegung bzw. durch Ausrichtung des Partikelpaars parallel zur x -Achse Schwankungen auf und nähert sich für größere Zeiten t einem stationären Wert an. Hierbei dauert es für $I = 15$ mA (blaue Kurve in Abbildung 62a) länger, bis ein stabiler Wert erreicht ist, als beispielsweise für $I = 60$ mA (schwarze Kurve in Abbildung 62a)). Dies lässt sich dadurch begründen, dass sich durch eine höhere Stromstärke I der Abstand der Partikel reduziert, was aufgrund der starken Abhängigkeit der Dipol-Dipol Wechselwirkung vom Abstand d die abstoßenden Kräfte F_{dip} der Partikel untereinander erhöht. Aufgrund der größeren Stromstärke erhöht sich gleichzeitig proportional zu I die durch die Falle ausgeübte Kraft F_f , resultierend in einem steileren Potentialanstieg weg vom Fallenzentrum. Durch das steilere Potential findet das Partikelpaar nach thermischer Auslenkung schneller wieder in die Gleichgewichtslage zurück, was zu einer zeitlich schnelleren Konvergenz von $\bar{d}(t)$ führt. Abbildung 62b) zeigt den aus den Daten in a) extrahierten, stationären Wert des Partikelabstands $\bar{d}^5$ der Partikel (ermittelt für Zeiten $15 \text{ min} < t < 20 \text{ min}$) als Funktion der inversen, in die Manipulationsstruktur eingepprägten Stromstärke I^{-1} .

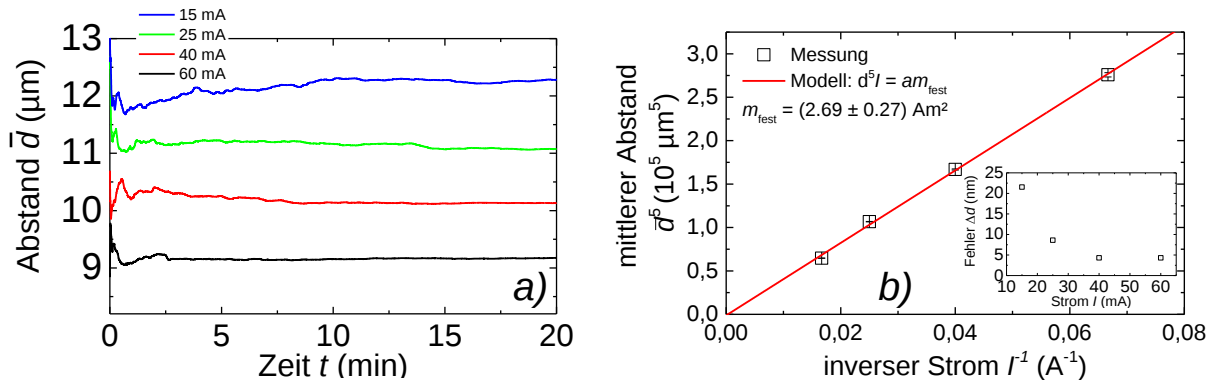


Abbildung 62: Abbildung a) zeigt den gleitenden Durchschnitt des Partikelabstands gemäß Gleichung (48) unter Vernachlässigung der y -Positionen der Partikel (siehe Haupttext) für $B_{\text{ext},z} = 5.2 \text{ mT}$ und die in der Legende angegebenen Ströme I durch den Ringleiter. In b) sind die aus a) für den Zeitbereich $15 \text{ min} < t < 20 \text{ min}$ extrahierten, mittleren Abstände $\bar{d}^5$ als Funktion des inversen Manipulationsstroms I^{-1} gezeigt. Anpassung erfolgt entsprechend Gleichung (54) mit $a = 1.55 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3$. Die kleine Grafik in b) zeigt die aus der Mittelung im Zeitraum $15 \text{ min} < t < 20 \text{ min}$ ermittelte Standardabweichung für den Abstand d der Partikel.

Die Messung bestätigt den entsprechend Gleichung (54) vorhergesagten, linearen Zusammenhang beider Größen. Der „Messfehler“ (gegeben als Standardabweichung der Größe $\bar{d}$ im Zeitraum $15 \text{ min} < t < 20 \text{ min}$, dargestellt in der kleinen Grafik in Abbildung 62b)) verringert sich dabei bei mit höherer Stromstärke, was erneut auf die schnellere Konvergenz von $\bar{d}(t)$ bei Erhöhung des Stroms I zurückzuführen ist. Aus der linearen Anpassung der Messdaten für $\bar{d}$ mit Gleichung (54) lässt sich aus der Steigung der Anpassgeraden das mittlere magnetische Moment der Partikel bestimmen. Die Konstante a wird

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

dazu durch Berechnung der Magnetfeldlandschaft des Ringleiters bestimmt. Für die gezeigten Daten ergibt sich ein mittleres magnetisches Moment von $\bar{m} = 2.69 \cdot 10^{-14} \text{ Am}^2 \pm 0.27 \cdot 10^{-14} \text{ Am}^2$. Dies entspricht bei einem Partikelradius von $r_p = 1.4 \text{ }\mu\text{m}$ in einem externen Feld von $B_{\text{ext}} = 5.2 \text{ mT}$ einer mittleren Suszeptibilität von $\chi = 0.58 \pm 0.06$, was in sehr gutem Einklang zu dem in der Literatur [140, 155] für die M-280 bekannten Wertebereich von $\chi = 0.19 - 0.75$ steht. Die gezeigte Methode eignet sich daher ebenso wie die in Kapitel 3.5 gezeigten Einzelpartikelexperimente zur Bestimmung des mittleren magnetischen Moments von M-280 Partikeln anhand von Zweipartikelmessungen. Der zur Bestimmung des Moments herangezogene Partikelabstand konvergiert dabei deutlich schneller als das für Einzelpartikel herangezogene zeitliche Verhalten des *MSD*. Dies liegt daran, dass die Partikel durch die Abstoßung untereinander in Abständen von mehreren μm zum Fallenzentrum fluktuieren und dadurch die Kräfte der Falle im Vergleich zu den Einzelpartikelexperimenten, bei denen das Partikel in direkter Nähe zum Fallenzentrum fluktuiert, deutlich größer sind. Durch diesen Umstand kann die Messzeit zur Bestimmung des magnetischen Moments für die gleiche Konfiguration der magnetischen Falle ($I = 60 \text{ mA}$, $B_{\text{ext},z} = 5.2 \text{ mT}$), von ca. einer Stunde unter Auswertung des *MSD* aus Einzelpartikelexperimenten auf, wie in Abbildung 62a) gezeigt, wenige Minuten bei der Verwendung von Zweipartikelexperimenten reduziert werden.

3.6.3 Mehrpartikelexperimente mit MyOne Partikeln

Da die oben beschriebene Methode einige klare Vorteile bei der Bestimmung des magnetischen Moments aus Fluktuationsmessungen bietet wurde sie ebenfalls für die MyOne Partikel mit $r_p = 0.55 \text{ }\mu\text{m}$ getestet. Abbildung 63 zeigt ein Experiment, bei dem zwei MyOne Partikel in der Falle gefangen wurden. Beide Partikel nähern sich ab $t = 0$ dem Fallenzentrum und befinden sich ab $t = 0.8 \text{ s}$ in einer Entfernung von ca. $10 \text{ }\mu\text{m}$ zueinander. Aufgrund der für die MyOne Partikel bei gegebener Fallenstärke gegenüber den M-280 Partikeln größeren Fluktuation kommen sich beide Partikel trotz der abstoßenden Wechselwirkung bei $t = 1.12 \text{ s}$ sehr nahe. Dies führt im Folgenden dazu (hier nicht dargestellt), dass beide Partikel sich entlang der z -Richtung aufreihen und anschließend ohne das externe Feld abzuschalten nicht mehr voneinander zu trennen sind.

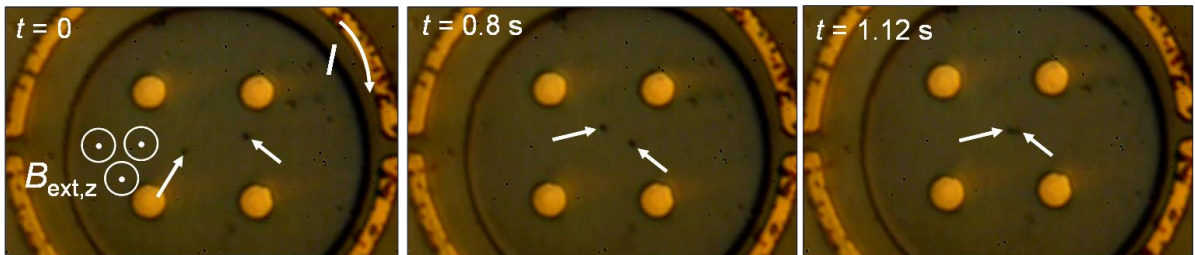


Abbildung 63: Zweipartikelexperiment mit zwei MyOne Partikeln bei einem Strom von $I = 15 \text{ mA}$ und $B_{\text{ext},z} = 3 \text{ mT}$. Die weißen Pfeile markieren die Positionen der beiden Partikel zum jeweilig in der Abbildung gegebenen Zeitpunkt. Der Start-Zeitpunkt ($t = 0 \text{ s}$) ist hierbei willkürlich gewählt.

Erklärt werden kann dies durch die im Vergleich zu den M-280 Partikeln aufgrund der geringeren Masse der MyOne Partikel ausgeprägteren Fluktuation entlang der z-Richtung (vgl. Abbildung 52b) und Abbildung 52c)), was dazu führt, dass der Winkel zwischen beiden Partikeln den kritischen Winkel $\phi_c = 26.6^\circ$ überschreitet, was gemäß der in Abbildung 58b) gezeigten Ergebnisse zu einer vertikalen Stapelung beider Partikel durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung führt. Das beschriebene Verhalten konnte in allen Experimenten, die mit zwei MyOne Partikeln in der Falle durchgeführt wurden, beobachtet werden. Aufgrund dessen ließ sich keine Auswertung des mittleren Abstands der Partikel durchführen, was eine Extraktion des magnetischen Moments der Partikel verhindert. Um den Effekt zu unterdrücken, muss zusätzlich zur Gravitationskraft, die durch die Dichte der Partikel vorgegeben ist, eine in Richtung des Substrats gerichtete Kraft aufgebracht werden. Eine Möglichkeit stellt dabei ein zusätzlicher, unter der Probe angebrachter und senkrecht polarisierter Permanentmagnet mit Gradient entlang z -Richtung dar. Dieser kann alternativ oder in Kombination zur Helmholtzspule genutzt werden, um eine zusätzliche Kraft in negative z -Richtung auf die Partikel auszuüben. Bei geeigneter Auslegung des Permanentmagneten könnte dadurch ein Abheben und die damit verbundene Aneinanderreihung der Partikel unterdrückt werden.

3.7 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wird eine Manipulationsmethode für einzelne superparamagnetische Partikel vorgestellt und diskutiert, die im Rahmen der Doktorarbeit entwickelt wurde. Die Methode basiert auf der bereits etablierten Manipulation der Partikel mittels mikro-strukturierten Leiterbahnen und erweitert diese um den Einsatz eines externen, homogenen Feldes. Unter geeigneter Wahl von Größe und Richtung des externen Feldes kann ein Partikel von der Leiterbahn abgestoßen werden. Dies eröffnet im Vergleich zu konventionellem Einsatz von mikro-strukturierten Leiterbahnen, bei denen nur anziehende Kräfte hin zur Leiterbahn möglich sind, neue Möglichkeiten für die Positionierung von einzelnen superparamagnetischen Partikeln. Aus dem quantitativen Vergleich der durch die Kombination erzielbaren Kräfte kann eine für die gewünschte Lab-On-Chip Anwendung optimale Kombination von Strom durch die Leiterbahn und Richtung des externen Magnetfeldes abgeleitet werden. Durch Aufbau eines mikro-strukturierten Ringleiters konnte unter Verwendung des zusätzlichen, externen Feldes eine zweidimensionale Partikelfalle konstruiert werden, mit der ein einzelnes Partikel zum Symmetriezentrum der Ringstruktur transportiert und dort mit einer Genauigkeit $< 1 \mu\text{m}$ positioniert werden kann. Durch Auswertung der mittleren quadratischen Verschiebung (MSD) der Brown'schen Bewegung eines einzelnen in der Falle gehaltenen Partikels kann sowohl die Viskosität der Partikelumgebung als auch die Stärke der magnetischen Falle extrahiert werden. Die für die

Positionierung und Manipulation von magnetischen Partikeln

Viskosität von Wasser, das für alle Experimente als Arbeitsmedium verwendet wurde, systematisch zu hohen Werte lassen sich durch die unmittelbare Nähe der Partikel zur Substratoberfläche erklären. Dabei ergibt sich für Partikel mit einer Größe von $2.8\text{ }\mu\text{m}$ eine größere systematische Abweichung in der extrahierten Viskosität gegenüber Partikeln mit einer Größe von $1\text{ }\mu\text{m}$. Dieser Umstand wird im Rahmen von Modellrechnungen, die sowohl die elektrostatische Wechselwirkung von Partikel und Substratoberfläche als auch das Gravitationspotential der Partikel mit einbeziehen, quantitativ nachvollzogen. Aus Langzeitmessungen der Brown'schen Bewegung können mit zwei alternativen Ansätzen (*MSD* Analyse und Auswertung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Fallenpotential) die Fallenstärken bestimmt werden. Diese stehen in guter Übereinstimmung zu den Fallenstärken, die sich mittels numerischer Berechnung der durch die Falle erzeugten Energie- und Kräftelandschaft vorhersagen lassen. Durch den Abgleich der experimentellen Daten mit den Vorhersagen aus der Modellierung lässt sich bei bekannter Partikelgröße die Suszeptibilität eines Einzelpartikels mit einer relativen Genauigkeit von 10% bestimmen. Die erhaltenen Werte sind in gutem Einklang mit den aus der Literatur bekannten Suszeptibilitätswerten für die verwendeten Partikel. Bei Verwendung eines Partikelpaars innerhalb der Falle lässt sich durch die zusätzlich zu den Fallenkräften erzeugten Dipol-Dipol-Kräfte der Partikel untereinander eine stabile Anordnung der Partikel um das Zentrum der Ringfalle beobachten. Durch Auswertung des mittleren Partikelabstands in Abhängigkeit des Fallenstroms I kann das mittlere magnetische Moment bzw. die mittlere Suszeptibilität des Partikelpaars bestimmt werden. Die Bestimmung des magnetischen Moments aus der Wechselwirkung des Partikelpaars erfolgt dabei mit vergleichbarer Genauigkeit gegenüber einer Einzelpartikelmessung. Aufgrund der stabileren Anordnung des Partikelpaars im Fallenpotential kann jedoch die Messzeit um ca. eine Größenordnung reduziert werden. Beide optisch-basierten Messverfahren ermöglichen die Messung von magnetischen Momenten im Bereich von wenigen $< 10^{-14}\text{ Am}^2$, was mehrere Größenordnungen unterhalb der Auflösung etablierter Messverfahren (Superconducting Quantum Interference Device (SQUID) oder VSM) von magnetischen Momenten liegt.

4 Kombination von Sensorik und Aktorik

4.1 Einleitung – Magneto-resistive Detektion von superparamagnetischen Partikeln

Wie in Kapitel 3 gezeigt, ermöglicht die optische Detektion von Partikeln eine unabhängige Messung des magnetischen Moments der Einzelpartikel und der Viskosität der die Partikel umgebenden Flüssigkeit. Für den Einsatz im Lab-On-Chip (LOC) System eignet sich diese Methodik nur bedingt, da für die optisch basierte Detektion der Partikel ein Mikroskop sowie die anschließende rechnerbasierte Auswertung der Partikelfluktuations notwendig sind. Für den Einsatz im LOC System müssen daher die in Kapitel 2 eingeführten GMR Sensoren eingesetzt werden und mit den in Kapitel 3 gezeigten Manipulationskonzepten zusammengelegt werden. Für die vollintegrierte Detektion von Partikeln mittels Magnetfeldsensoren existieren in der Literatur bereits zahlreiche, erfolgreich umgesetzte Konzepte. Die meisten Anwendungen zielen dabei auf Mehrpartikelmessungen ab, aus denen beispielsweise die Konzentration von an die magnetischen Partikel gebundenen Bioanalyten bestimmt werden kann. Das erste Konzept hierzu wurde 1998 von Baselt et al. realisiert. In diesem Zug wurde der Begriff des *BARC* (**B**ead **A**rray **C**ounter) eingeführt [161]. Erste konkrete Umsetzungen für den Nachweis von Bioanalyten basierend auf dem *BARC* Konzept wurden beispielsweise von Edelstein et al. [26] und Miller et al. [157] demonstriert. In einer von Schotter et al. gezeigten Arbeit konnten DNA Konzentrationen von bis zu 16 pg/ μ l auf magnetischem Weg nachgewiesen werden. Diese Konzentration stellt eine mittels magnetischer Detektion erreichbare - für den benutzten Bioanalyt - im Vergleich zur herkömmlichen Fluoreszenzdetektion geringere untere Nachweisgrenze dar [27]. Im Vergleich zur Detektion von Mehrpartikelsystemen existieren nur wenige Beispiele, in denen gezielt einzelne magnetische Partikel detektiert werden konnten. Besse et al. konnten beispielsweise die Anwesenheit eines einzelnen M-280 Partikels mittels mikrostrukturierten Hall-Sensoren nachweisen [162]. Li et. al demonstrierten den Nachweis eines einzelnen M-280 Beads mittels mikro-strukturierten GMR Sensoren [24]. Aus den in [24] beschriebenen Experimenten wurde weiter gefolgert, dass sich die GMR-basierte Messung sogar dazu eignen sollte, einzelne ferromagnetische Nanopartikel nachweisen zu können. Solche Einzelpartikelexperimente dienen im Gegensatz zu den beschriebenen Mehrpartikelexperimenten meist nicht dem Nachweis von Bioanalyten, sondern werden bspw. gemäß Tondra et al. [163] als Referenzsysteme zur quantitativen Modellierung des Sensor-Partikel-Systems herangezogen. Sollen Einzelpartikel detektiert werden, müssen die Dimensionen des Sensors in derselben Größenordnung wie die Größe der zu detektierenden Partikel gewählt werden. Dies führt zu typischen Sensordimensionen im Bereich von 100 nm [25, 164] bis hin zu einigen μ m für größere, superparamagnetische Beads [165]. Die geringe Reichweite des Streufeldes der Partikel – typischerweise im Bereich der

Partikelgröße - macht die Positionierung der Partikel in direkter Nähe zum Sensor erforderlich. Obwohl in vielen anderen Arbeiten die Manipulation mittels mikrostrukturierter Leiterbahnen ähnlich wie in der vorliegenden Arbeit umgesetzt wurde, existieren nur wenige Beispiele, in denen Aktorik und Sensorik in einer integrierten Einheit kombiniert wurden. In einem von Philips Biomedical Sensor Systems entwickelten Konzept konnten de Boer et al. erstmals das gezielte Führen von Partikeln mit mikro-strukturierten Leiterbahnen über die aktive Fläche des Sensors demonstrieren [166]. Janssen et al. konnten aufbauend auf dieser Technologie durch das gezielte Führen von einzelnen MyOne bzw. M-280 Partikeln über die aktive Fläche des Sensors ein Echtzeitsignal generieren, mit dem sich die Bewegung des Partikels über die aktive Fläche des Sensors zeitaufgelöst erfassen lässt [165]. Gooneratne et al. konnten durch Verwendung eines mikrostrukturierten, ringförmigen Sensors in Kombination mit mikro-strukturierten Leiterbahnen einzelne Partikel gezielt auf der Sensorstruktur platzieren und somit die Anwesenheit der Partikel nachweisen [111].

In diesem Kapitel sollen Untersuchungen zur Kombination der in Kapitel 2 vorgestellten, mikrostrukturierten GMR Sensoren mit den in Kapitel 3 gezeigten Manipulationsstrukturen vorgestellt werden. Dabei wird zunächst der parasitäre Einfluss der mikrostrukturierten Positioniereinheit auf das vom GMR Sensor erzeugte elektrische Signal diskutiert. Anschließend wird vorgestellt, wie das Sensorsignal durch Überlagerung eines zweiten, externen Feldes im relevanten Feldbereich linearisiert werden kann. Die durch das zusätzliche externe Feld verursachte Änderung im Sensorverhalten wird anhand eines mikromagnetischen Modells nachvollzogen und die Modellergebnisse mit den experimentellen Daten verglichen. Anschließend werden Experimente gezeigt, in denen ein einzelnes Partikel gezielt in Richtung der aktiven Sensorfläche transportiert wird. Die Ergebnisse lassen Rückschlüsse auf die Wechselwirkung zwischen Partikel und Sensor zu. Die beobachtete Wechselwirkung wird für zwei verschiedene Sensorgeometrien im Rahmen der für die jeweilige Sensorgeometrie berechneten Energielandschaft qualitativ diskutiert und mit den experimentellen Erkenntnissen verglichen. Zur Detektion der Partikel mittels des GMR Sensors wird ein Messschema basierend auf einer periodischen Anregung des magnetischen Partikels mit externem Magnetfeld demonstriert. Dadurch konnte in ersten Experimenten erfolgreich sowohl die Anwesenheit als auch die durch die periodische Anregung des Partikels erzeugte Bewegung des Partikels mittels des vom GMR Sensor erzeugten Signals nachgewiesen werden. Die Ergebnisse werden im Rahmen eines einfachen mikromagnetischen Modells diskutiert, das erlaubt, die magnetische Suszeptibilität eines einzelnen M-280 Partikels im Einklang mit den bekannten Werten aus der Literatur aus dem Sensorsignal zu extrahieren.

4.2 Konstruktion eines kombinierten Sensor/Aktorsystems

Für die Lab-On-Chip Anwendung soll GMR Sensorik und die Manipulation eines Einzelpartikels in einem System kombiniert werden. Dazu wurde zunächst der Sensorstapel mittels des in Kapitel 2.3 beschriebenen Verfahrens abgeschieden und mikrostrukturiert. Anschließend wurde mittels PECVD eine Passivierungsschicht aus 300 nm SiO_2 bzw. 1 μm Si_3N_4 (siehe Abbildung 64a) und b)) abgeschieden, um den Sensor und dessen elektrische Zuleitung von der Umgebung zu trennen. Zusätzlich dient die Isolationsschicht als Passivierung des Sensors gegenüber der flüssigen Umgebung, um mögliche Korrosion des Sensorstapels in der Flüssigkeit zu verhindern. Auf die abgeschiedene Passivierung wurden anschließend in einem zweiten Lithographieschritt vier Manipulationsleitungen symmetrisch um den Sensor angeordnet, mit deren Hilfe sich einzelne Partikel gemäß den Ergebnissen in Kapitel 3 gezielt auf den Sensor transportieren lassen.

Abbildung 64c) zeigt eine optische Aufnahme des kompletten Aufbaus nach Abscheiden der Steuerleitungen. Für die Experimente wurden zwei unterschiedliche Geometrien des GMR Sensors verwendet, die im Folgenden als „Hantel“ (Abbildung 64d)), mit im Vergleich zur aktiven Sensorfläche breiteren Kontaktflächen des Sensorstapels und „Rechteck“ (Abbildung 65e)), mit identischer Breite über den kompletten Sensorstapel bezeichnet werden.

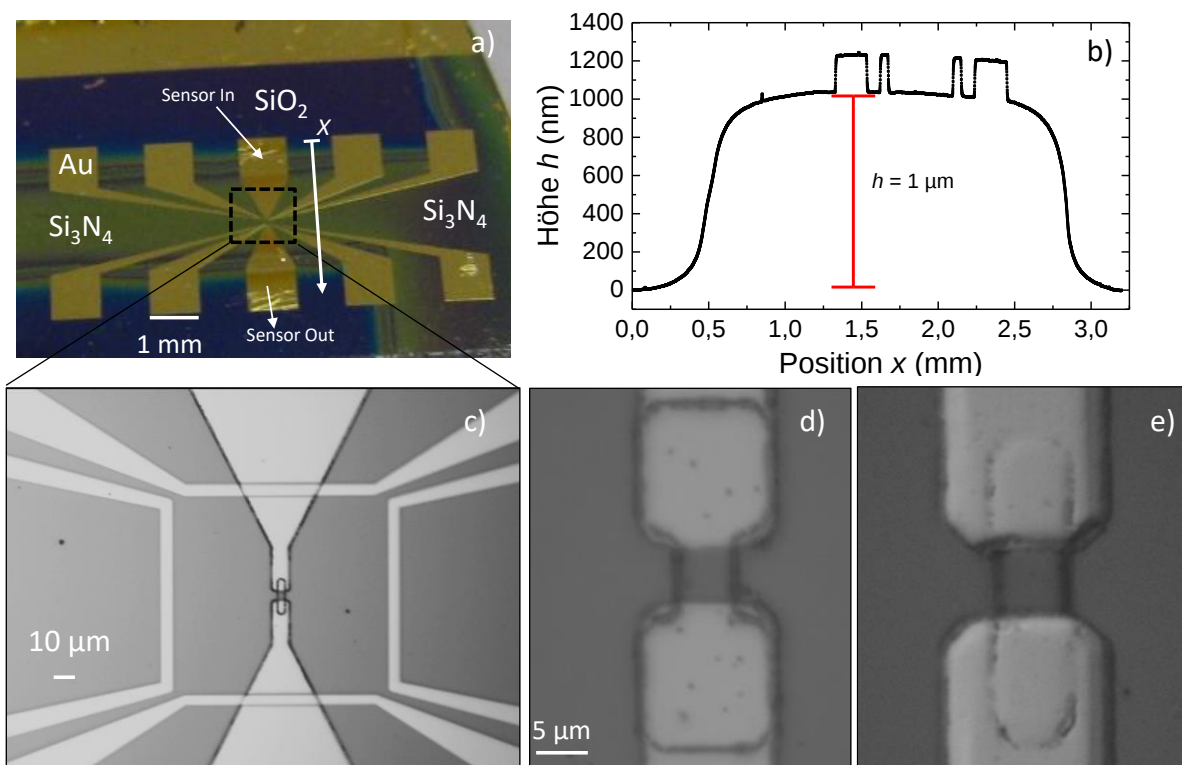


Abbildung 64: In a) ist eine optische Makroaufnahme des kombinierten Systems aus mikrostrukturiertem GMR Sensor (jeweils mittig) und elektrischen Zuleitungen, sowie einer um den Sensor symmetrisch angelegten Manipulations-einheit bestehend aus vier einzeln adressierbaren mikro-strukturierten Leitungen gezeigt. Abbildung b) zeigt eine Dectac-Profilometermessung des Höhenprofils entlang der in a) gezeigten x-Achse für eine 1 μm dicke Si_3N_4 Passivierungsschicht. Abbildung c) zeigt eine Mikroskopaufnahme des in a) umrahmten Bereichs. Die zwei verwendeten Sensorgeometrien sind in d) („Hantel“) bzw. e) („Rechteck“) gezeigt.

4.2.1 Einfluss der Positionierleitungen auf den GMR Sensor

Die Positionierleitungen werden für die Manipulation der Partikel während des Betriebs des GMR Sensors mit Strömen von $I \geq 20$ mA beaufschlagt. Da sich die Positionierleitungen im Abstand von wenigen μm zur aktiven Fläche des Sensors befinden, ist eine Wechselwirkung zwischen den Positionierleitungen (durch deren erzeugtes Magnetfeld oder die durch ohmsche Verluste erzeugte Wärme) und dem GMR Sensor nicht auszuschließen. Um diesen Einfluss messtechnisch zu erfassen, wurden die Positionierleitungen mit verschiedenen Strömen beaufschlagt und gleichzeitig die resultierende Änderung im Sensorsignal erfasst. Abbildung 65a) zeigt die experimentelle Konfiguration der Manipulationsströme im Bezug zur Sensorgeometrie zur Bestimmung des Einflusses der Positionierleitungen auf das Sensorsignal. Um möglichst geringe Widerstandsänderungen des Sensors messtechnisch erfassen zu können, wurde der Sensor für alle folgenden Messungen in einer Brückenschaltung (Wheatstone-Brücke) betrieben. Dadurch ergibt sich durch die Änderung des Widerstands des GMR Sensors eine Brückenspannung $U_{\text{Brücke}}$, die direkt proportional zur Widerstandsänderung ΔR des GMR Sensors ist. Vor der Vermessung des Einflusses der Positioniereinheit wurde der Sensor sowohl im homogenen, externen Feld entlang der intrinsischen, harten Richtung ($B_{\text{ext}} = B_x$) und senkrecht zur Schichtebene ($B_{\text{ext}} = B_{\text{ext},z}$) des Sensorstapels vermessen. Hierbei ergaben sich für die Brückenspannung Sensitivitäten von $U_{\text{Brücke}}/H_{\text{ext},x} = S_x = 14 \mu\text{V}/\text{Oe}$ und $U_{\text{Brücke}}/H_{\text{ext},z} = S_z = 280 \text{ nV}/\text{Oe}$.

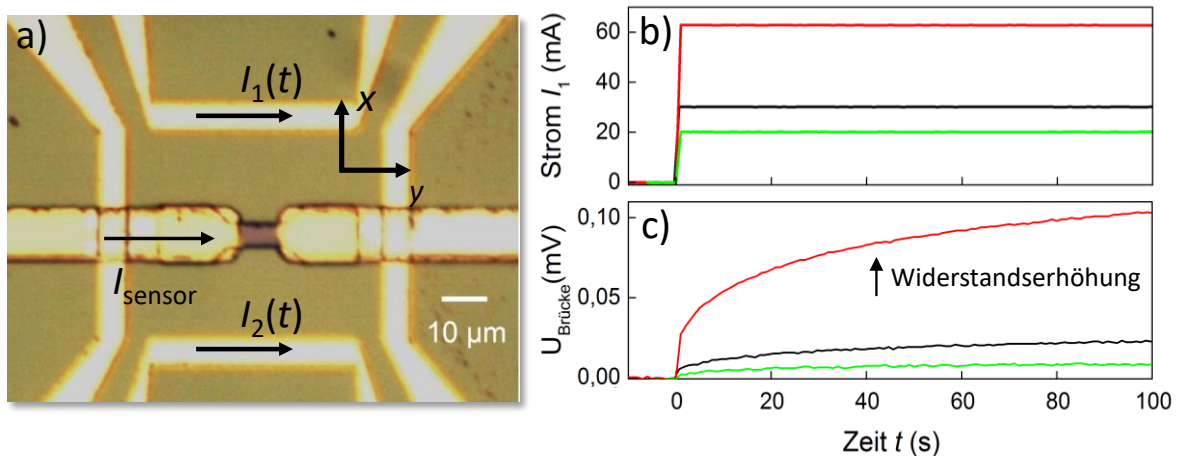


Abbildung 65: Schematische Skizze zur Versuchsanordnung in (a). Die Passivierungsschicht zwischen GMR Sensor und Manipulationsleiterbahnen wurde für diesen Versuch durch eine 300 nm SiO_2 Schicht realisiert. Gemessener zeitlicher Verlauf des Stroms I_1 (b) und der Brückenspannung (c). Der Strom durch den Sensor beträgt $I_{\text{sensor}} = 0.93$ mA.

Wird gemäß Abbildung 65b) zunächst bei $t = 0$ ein Gleichstrom I_1 (Abbildung 65b)) in eine der Manipulationsleitungen eingespeist, ergibt sich entsprechend Abbildung 65c) ein transientes Verhalten in der Brückenspannung, wobei die Brückenspannung (und damit der Sensorwiderstand) über einen Zeitraum von mehreren Minuten ansteigt. Für die gegebene Anordnung von Positionierleitung und GMR Sensor (beide befinden sich auf annähernd gleicher Höhe z bezüglich des Substrats) wird nur eine Komponente $B_{\text{leiter},z}$ am

Ort des Sensors durch die Positionierleitung erzeugt. Für einen Abstand der Leiterbahn von $30\text{ }\mu\text{m}$ vom GMR Sensor und bei einem Strom von $I_1 = 30\text{ mA}$ erhält man bspw. $B_{\text{Leiter,z}} \approx 0.2\text{ mT} \triangleq 2\text{ Oe}$. Bei einer Sensitivität von $S_z = 0.28\text{ }\mu\text{V/Oe}$ ergibt sich somit eine Spannungsänderung von $U_{\text{Brücke}} = 0.56\text{ }\mu\text{V}$. Die tatsächlich beobachtete Spannungsänderung (rote Kurve in Abbildung 65c)) ist jedoch mit $U_{\text{Brücke}} \sim 25\text{ }\mu\text{V}$ deutlich größer. Zusätzlich verhält sich die Brückenspannung nichtlinear mit dem Strom I_1 . Beispielsweise ergibt sich für $I_1 = 60\text{ mA}$ (rote Linie) eine ca. vierfach erhöhte Brückenspannung im Vergleich zu für $I_1 = 30\text{ mA}$ (schwarze Linie). Diese Befunde lassen darauf schließen, dass die Widerstandsänderung nicht durch das durch die Positionierleitung im Sensor erzeugte Magnetfeld erklärt werden kann.

Eine alternative mögliche Ursache stellt eine (passive) Erwärmung des Sensors durch den in der Positionierleitung erzeugten ohmschen Verlust und die damit verbundene Abwärme dar. Wie anhand von Strom-Spannungs-Kennlinien der Positionierleitung in Anhang A7 gezeigt, lässt sich bereits bei Strömen $I_1 \approx 20\text{ mA}$ eine Erwärmung der Positionierleitungen nachweisen. Diese kann sich durch die Wärmeleitung im Substrat parallel zur Substratoberfläche auf den Sensor auswirken.

Um dies weiter zu untersuchen wurde in die Positionierleitung ein periodischer Strom $I_1(t) = \hat{I}_1 \sin(2\pi f t)$ entsprechend Abbildung 66a) mit $\hat{I}_1 = 80\text{ mA}$ und $f = 0.1\text{ Hz}$ eingeprägt. Hierbei stellt sich für die Brückenspannung entsprechend Abbildung 66b) eine periodische Oszillation mit doppelter Anregungsfrequenz von $f = 0.2\text{ Hz}$ sowie zusätzlich (nach transientem Einschwingen) ein fester Offset ein.

Unter Annahme einer durch die Abwärme der Positionierleitung erzeugten Widerstandsänderung im Sensor lässt sich im eingeschwungenen Zustand folgender Zusammenhang zwischen $I_1(t)$ und der Brückenspannung ableiten. In erster Näherung (bei Annahme eines konstanten Widerstands der Positionierleitung) ergibt sich für den ohmschen Verlust P in der Positionierleitung eine quadratische Abhängigkeit vom Strom I_1 ($P \sim I_1^2$). Der Sensor erfährt durch die übertragene Verlustwärme eine zu P proportionale Änderung in der Temperatur, die wiederum proportional zu einem Anstieg des Widerstands und (bei konstantem Strom durch den Sensor) der Brückenspannung führt. Somit ergibt sich folgende Beziehung:

$$\Delta U_{\text{Brücke}} \sim \Delta T \sim I_1^2(t) \quad (55)$$

Setzt man den in Abbildung 66a) gezeigten, sinusförmigen Stromverlauf für $I_1(t)$ in Gleichung(55), ergibt sich folgender zeitliche Verlauf für die Brückenspannung:

$$U_{\text{Brücke}}(t) \sim \hat{I}_1^2 [1 - \cos(2\pi(2f)t)] \quad (56)$$

Dies entspricht direkt dem in Abbildung 66b) experimentell beobachteten Verhalten im eingeschwungenen Zustand.

In einem weiteren Experiment wurde gemäß Abbildung 65a) zusätzlich ein zweiter Strom $I_2(t)$ in die gegenüberliegende Leiterbahn eingeprägt. Für beide Ströme wurde jeweils eine Frequenz von $f = 0.1$ Hz und eine Amplitude $\hat{I}_{1,2} = \pm 60$ mA gewählt. Abbildung 66b) zeigt den zugehörigen Verlauf der Brückenspannung.

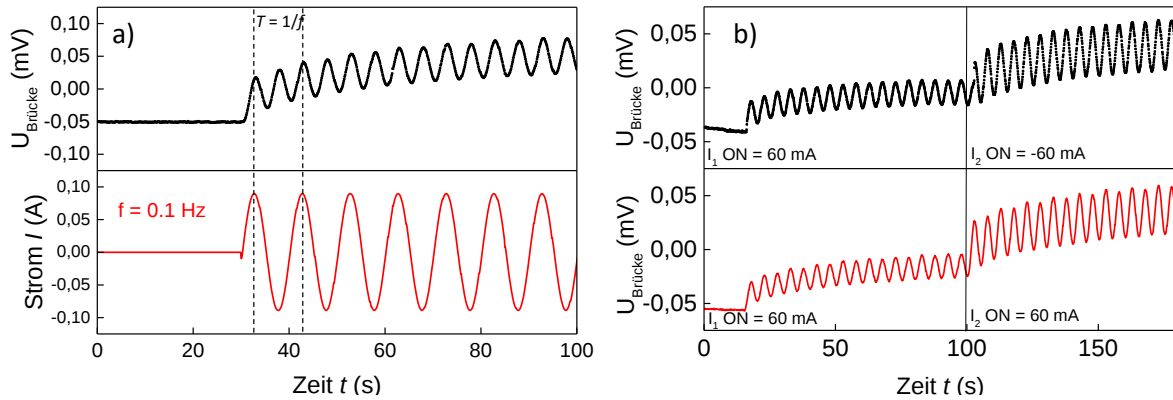


Abbildung 66: In a) ist der zeitliche Verlauf der Brückenspannung bei Beaufschlagung der Positionierleitung mit einem Wechselstrom $I_1(t) = I_1 \sin(2\pi ft)$ für eine feste Frequenz von $f = 0.1$ Hz und $I_1 = 80$ mA gezeigt. In b) ist das Brückensignal bei Zuschalten eines zusätzlichen Wechselstroms $I_2(t)$ durch gegenüberliegende Steuerleitung gleichphasig (oben) und gegenphasig (unten) zu $I_1(t)$ mit gleicher Amplitude und Frequenz wie $I_1(t)$ gezeigt.

Zunächst ($t < 100$ s) wurde nur der Strom $I_1(t)$ bei $t \sim 20$ s zugeschaltet, worauf sich die bereits diskutierte, zeitabhängige Brückenspannung ergibt. Ab $t = 100$ s wurde jeweils der Strom $I_2(t)$ zugeschaltet, wobei die Ströme gegenphasig (oben, schwarze Kurve) bzw. gleichphasig (unten, rote Kurve) eingeprägt wurden. In beiden Fällen ergibt sich derselbe transiente Anstieg der Brückenspannung, der von einer harmonischen Schwingung bei doppelter Anregungsfrequenz überlagert wird. Die Amplitude der harmonischen Schwingung verdoppelt sich dabei nach Zuschalten von $I_2(t)$ für $t > 100$ s unabhängig vom Vorzeichen der Amplitude $\hat{I}_2$. Dies belegt, dass es sich bei der beobachteten Änderung des Sensorwiderstands rein um einen temperaturinduzierten Effekt handeln muss, da sich eine magnetfeldinduzierte Widerstandsänderung im Fall von gleichphasiger Aussteuerung der Positionierleitungen durch die Kompensation der Magnetfeldkomponenten aus beiden Leiterbahnen aufheben müsste.

Überträgt man diese Erkenntnis auf die in Abbildung 65 gezeigten Verläufe der Brückenspannung, so ergibt sich bei Verwendung eines Stroms $I_1 = 60$ mA eine Änderung bei $U_{\text{Brücke}} \sim 130 \mu\text{V}$, was einer Widerstandsänderung von $\sim 0.5\%$ und bei einem Temperaturkoeffizient des Sensorstapels von $\alpha = 0.11\%/K$ [167] einer Temperaturänderung $\Delta T \approx 5$ K am Ort des Sensors entspricht. Dieser Umstand muss bei allen Experimenten, bei denen Sensorik und Aktorik gleichzeitig betrieben werden, mit berücksichtigt werden.

4.2.2 Linearisierung der magneto-resistiven Sensorcharakteristik

Für eine reproduzierbare Detektion der Partikel wird eine hysteresefreie Sensorcharaktere-

ristik vorausgesetzt. Im Gegensatz zur durch das Stoner-Wohlfarth Modell vorhergesagten, linearen $R(H)$ Kurve zeigen Sensoren im Größenbereich von wenigen μm durch die Ausprägung von Domänen im aktiven Sensorbereich oft Hystereseeffekte bei der Ummagnetisierung des Sensors. Die Ausprägung der Domänen und damit des Ummagnetisierungsverhaltens kann sich dabei von Sensor zu Sensor unterscheiden und wird dabei sowohl von der Geometrie des Sensors [168] als auch von lokalen Defekten, wie beispielsweise durch die Herstellung bedingte Rauigkeiten im Randbereich des Sensors, beeinflusst [169]. Neben der Möglichkeit, die Sensorcharakteristik über Echtzeit-Signalverarbeitung zu linearisieren [170], erlaubt das Anlegen eines zusätzlichen, homogenen Magnetfeldes in der Schichtebene die $M(H)$ Kurve der freien Schicht bzw. die $R(H)$ Kurve des Sensors hinsichtlich Linearität und Auftreten von Hysterese zu beeinflussen [171]. Um den Einfluss des zusätzlichen in-plane Feldes auf die in der Arbeit verwendeten Sensoren zu überprüfen, wurde für die Charakterisierung der Sensoren zusätzlich zum variablen Feld entlang der intrinsischen harten Richtung $H_{\text{ext},x}$ ein zeitlich konstantes Feld $H_{\text{ext},y}$ entlang der intrinsischen leichten Richtung angelegt. Die zugehörige Feldkonfiguration in Abbildung 67a) dargestellt. Abbildung 67b) zeigt exemplarisch die Auswirkung des zusätzlichen externen Feldes auf die Sensorcharakteristik.

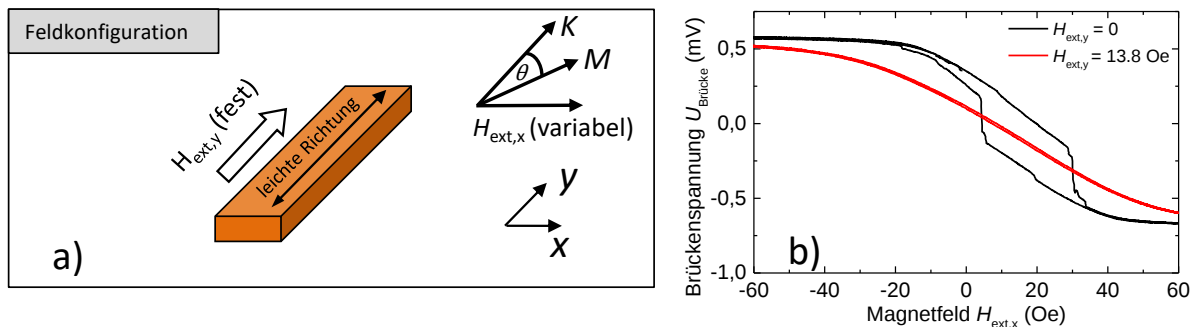


Abbildung 67: Auswirkung eines zusätzlich angelegten homogenen Feldes $H_{\text{ext},y}$ auf die Sensortransferkurve. In a) ist die schematische Skizze zur Feldkonfiguration gezeigt. Abbildung b) zeigt die experimentelle Transferkurve des Sensors ohne (schwarz) und mit extern angelegtem Feld $H_{\text{ext},y} = 13.8 \text{ Oe}$ (rot) für einen Sensorstrom von $I = 2.3 \text{ mA}$ gezeigt.

Ohne zusätzlich angelegtes Feld ($H_{\text{ext},y} = 0$, schwarze Kurve in Abbildung 67b)) ergibt sich eine stark ausgeprägte Hysterese in der Sensortransferkurve, die durch Nukleation von Domänen während des Ummagnetisierungsprozesses in der freien Schicht verursacht wird. Wird ein zusätzliches Feld von $H_{\text{ext},y} = 13.8 \text{ Oe}$ angelegt (rote Kurve in Abbildung 67b)), wird die Hysterese deutlich vermindert. Im Feldbereich $-20 \text{ Oe} < H_{\text{ext},x} < 20 \text{ Oe}$ ergibt sich eine lineare - im Rahmen der Messgenauigkeit - hysteresefreie Transferkurve. Dies lässt sich dadurch erklären, dass durch das zusätzliche Feld im Sensor eine Vorzugsausrichtung für die Domänen entlang der intrinsischen, leichten Richtung erzeugt wird. Dadurch ergibt sich stets ein Eindomänenzustand in der freien Schicht, der – im Rahmen des Stoner-Wohlfarth Modells - eine kohärente Rotation der magnetischen Momente während des Ummagnetisierungsprozesses ermöglicht. Zusätzlich ergibt sich durch das Anlegen des externen Feldes $H_{\text{ext},y}$ eine Erhöhung der Sättigungsfeldstärke H_s . Während die

freie Schicht sich bei $H_{\text{ext},y} = 0$ für Felder $H_{\text{ext},x} \leq -20$ Oe bzw. $H_{\text{ext},x} \geq 40$ Oe gesättigt ist, müssen bei einem Feld $H_{\text{ext},y} = 13.8$ externe Felder $|H_{\text{ext},x}| > 50$ Oe zum Sättigen der freien Schicht aufgebracht werden.

Um dieses Verhalten quantitativ zu modellieren, muss die Energiedichte in der freien Schicht unter Einbeziehung des zusätzlichen Feldes $H_{\text{ext},y}$ berechnet werden. Für die Kombination aus externen Feldern lässt sich die magnetische Energiedichte der freien Schicht gemäß der Feldanordnung in Abbildung 67a) für einen Winkel θ , der von Magnetisierung M_f und leichter Richtung aufgespannt wird, schreiben zu:

$$\frac{E}{V} = -\mu_0 M_f (H_{\text{ext},x} \sin(\theta) + H_{\text{ext},y} \cos(\theta)) + K_u \sin^2(\theta) \quad (57)$$

Für die Berechnung wurden die Beiträge zur Energiedichte aus der Formanisotropie, der Néel-Kopplung und der der Dipol-Dipol Kopplung zwischen gepinnter und freier Schicht für die Berechnung nicht berücksichtigt. Die Magnetisierungskomponente $M_f \cos(\theta) (H_{\text{ext},x}) = M_x$ der freien Schicht lässt sich für festes $H_{\text{ext},y}$ aus der Bedingung $\partial E / \partial \theta = 0$ bestimmen. Hierfür ergibt sich im Gegensatz zum reinen Stoner-Wohlfarth Modell (siehe Gleichung (3)) keine analytische Lösung, weshalb die Gleichung jeweils für verschiedene Feldkombinationen $H_{\text{ext},x}, H_{\text{ext},y}$ numerisch gelöst wurde. Abbildung 68a) zeigt exemplarisch berechnete Kurven für $M_f \cos(\theta)$ im Vergleich zu den gemessenen Transferkurven in Abbildung 68b). Sowohl für die berechneten Magnetisierungskurven als auch die gemessenen Transferkurven ergibt sich im linearen Bereich eine mit steigendem Feld $H_{\text{ext},y}$ geringer werdende Steigung der Kurven.

Um den Einfluss von angelegtem Feld $H_{\text{ext},y}$ in Modell und Experiment vergleichen zu können, wurden aus den in Abbildung 68a) und Abbildung 68b) gezeigten Ergebnissen aus der Extrapolation des linearen Bereichs bis zur Sättigung der $M_x(H_{\text{ext},x})$ Kurve bzw. Transferkurve die Sättigungsfelder $H_{s,\text{lin}}$ (siehe gestrichelte, vertikale Linien in Abbildung 68a)) extrahiert. Diese sind in Abbildung 68c) in Abhängigkeit von $H_{\text{ext},y}$ jeweils für das SW-Modell (rote Punkte) und exemplarisch für einen Sensor in Rechtecksgeometrie (Quadrate) gezeigt. In beiden Fällen ergibt sich in erster Näherung eine lineare Zunahme von $H_{s,\text{lin}}$ mit dem zusätzlich angelegten Feld $H_{\text{ext},y}$. Das Feld $H_{\text{ext},y}$ kann somit für die Modellierung des Sensors im linearen Bereich (für geringe Felder $H_{\text{ext},x}$) wie ein zusätzliches Anisotropiefeld H_s behandelt werden. Für die Messungen ergeben sich jeweils höhere Sättigungsfelder als durch das SW Modell vorhergesagt. Dies ist auf die Vernachlässigung des Formanisotropieenergiebeitrags bei der Berechnung mittels des SW Modells zurückzuführen. Für die verwendete rechteckige Sensorgeometrie mit einer Länge von $l = 20 \mu\text{m}$ und $w = 5 \mu\text{m}$ ergibt sich entsprechend den durch A.Aharoni vorhergesagten Entmagnetisierungsfaktoren [98] (siehe auch Anhang A4) ein Formanisotropiefeld von $\Delta N_D M_s = 23$

Oe. Der in Abbildung 68c) gezeigte Unterschied zwischen Messung und Stoner-Wohlfarth Modell fällt hierbei mit ca. 18 Oe etwas geringer aus. Dies kann zum einen an einer Abweichung der intrinsischen Anisotropie K der Sensoren bzw. an einer für die vermessenen Sensoren bestehenden Abweichung der zur Berechnung der Formanisotropie angenommenen Ausmaße ($w = 5 \mu\text{m}$, $t = 6 \text{ nm}$, $l = 20 \text{ nm}$) der freien Schicht liegen. Zusätzlich ergeben sich durch die lithographische Herstellung der Sensoren Abweichungen von der zur Modellrechnung angenommenen idealen „Rechtecksform“ (vgl. bspw. Abbildung 64e)), was zu einer Abweichung von Modell und experimentellen Daten führen kann.

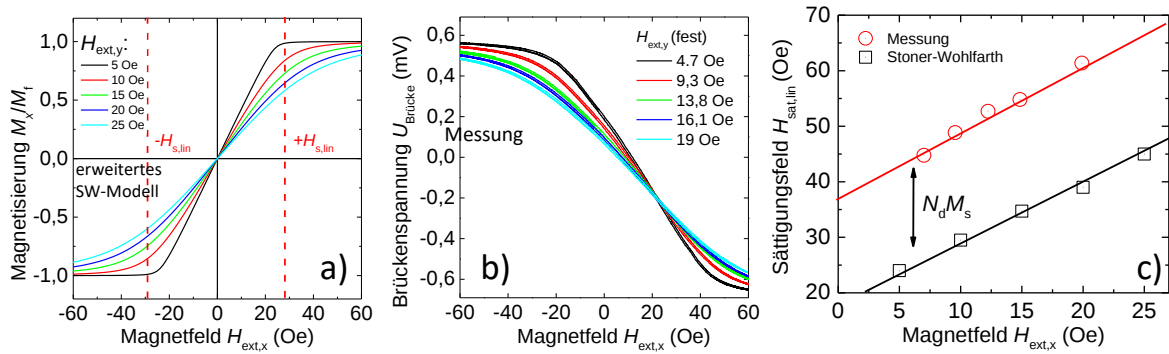


Abbildung 68: In a) sind die nach Gleichung (57) berechneten Magnetisierungskurven für verschiedene externe Felder $H_{\text{ext},y}$ (wie in der Abbildung angegeben) gezeigt. Für die Rechnung wurde $\mu_0 M_s = 1 \text{ T}$ und $K_u = 893 \text{ J/m}^2$ verwendet. Die vertikalen, gestrichelten Linien markieren exemplarisch für $H_{\text{ext},y} = 10 \text{ Oe}$ die aus dem linearen Bereich der Magnetisierungskurven extrapolierten Sättigungsfelder $H_{\text{sat},\text{lin}}$. Abbildung b) zeigt experimentell ermittelte Sensorcurven für einen Sensorstrom von $I = 2,3 \text{ mA}$ und die in der Abbildung angegebenen Felder $H_{\text{ext},y}$. In c) sind die Werte für $H_{\text{sat},\text{lin}}$ für das SW-Modell entsprechend Gleichung (57) (Quadrate) sowie für eine exemplarische Messung (Kreise) gezeigt. Die durchgezogenen Linien markieren den Trend der Datenpunkte.

Die Ergebnisse zur Linearisierung der GMR Sensoren zeigen, dass die Wahl der geeigneten Feldstärke $H_{\text{ext},y}$ zur Linearisierung vom konkreten Anwendungsfall abhängt. Es muss sichergestellt werden, dass das Feld groß genug ist, um einen Eindomänenzustand in der freien Schicht und damit eine hysteresefreie Transferkurve zu gewährleisten. Dies war für die hier gezeigten Sensortransferkurven bei Feldern $H_{\text{ext},y} \geq 4 \text{ Oe}$ der Fall. Für geringere Felder (hier nicht dargestellt) kann die Nukleation von Domänen während des Ummagnetisierens nicht reproduzierbar unterdrückt werden, was zur Hysterese in der Transferkurve führt. Wird das Feld $H_{\text{ext},y}$ sehr groß gewählt, reduziert dies die Sensitivität des Sensors durch den zusätzlich durch das Feld $H_{\text{ext},y}$ gegebenen Anisotropiebeitrag signifikant, was bei einem gegebenen externen Feld $H_{\text{ext},x}$ zu geringeren Messsignalen führt.

4.3 Sensor-Partikel-Wechselwirkung

Neben der Möglichkeit, die Partikel mittels mikro-strukturierter Leiterbahnen als Quelle für den Magnetfeldgradienten zu manipulieren, kann On-Chip Manipulation auch passiv mittels ferromagnetischen, mikrostrukturierten Bauelementen umgesetzt werden. Beispielsweise konnten Henriksen et al. durch Verwendung von regelmäßig angeordneten,

weichmagnetischen NiFe Mikrostrukturen in Kombination mit externen Feldern eine weitreichende Manipulation von superparamagnetischen Partikeln erzielen [172]. Sakar et al. konnten durch Mikrostrukturierung von mit in SU-8 Photolack dispergierten Fe_3O_4 Partikeln biokompatible Strukturen erzeugen, deren Feldgradienten in Kombination mit externen Feldern das Einfangen von funktionalisierten Zellen auf Lab-On-Chip Ebene ermöglichen [117]. Die Wechselwirkung tritt dabei aufgrund der geringen Abmessungen der Bauelemente, die ein Maß für Reichweite der magnetischen Streufelder bzw. deren Gradienten darstellen, nur in direkter Nachbarschaft der Partikel zur ferromagnetischen Mikrostruktur auf. Da die in der Arbeit verwendeten Sensoren ebenfalls ferromagnetische Mikrostrukturen darstellen und die Partikel gezielt in direkte Nähe zum Sensor transportiert werden, ist die Wechselwirkung der Partikel mit der Sensorstruktur von großer Bedeutung. Im Folgenden wird daher untersucht, in wie weit eine Wechselwirkung zwischen der Sensorstruktur und einzelnen superparamagnetischen Partikeln besteht und welche Konsequenzen sich daraus für die integrierte, GMR-basierte Detektion der Partikel ableiten lassen. In einem ersten Experiment wurde ein einzelnes M-280 Partikel mit Hilfe der um das Sensorelement angeordneten Positionierleitungen gezielt hin zur aktiven Fläche eines hantelförmigen Sensorelements transportiert. Die eigentliche Manipulationsstruktur ist zur besseren Übersicht nicht mit in den Abbildungen gezeigt. Zunächst wurde das Partikel entsprechend Abbildung 69a) mittels der linken und rechten Positionierleiterbahn so positioniert, dass es sich zum Zeitpunkt $t = 0$ s bzgl. y -Koordinate zentral zum Sensor bei $y = 0$ befindet.

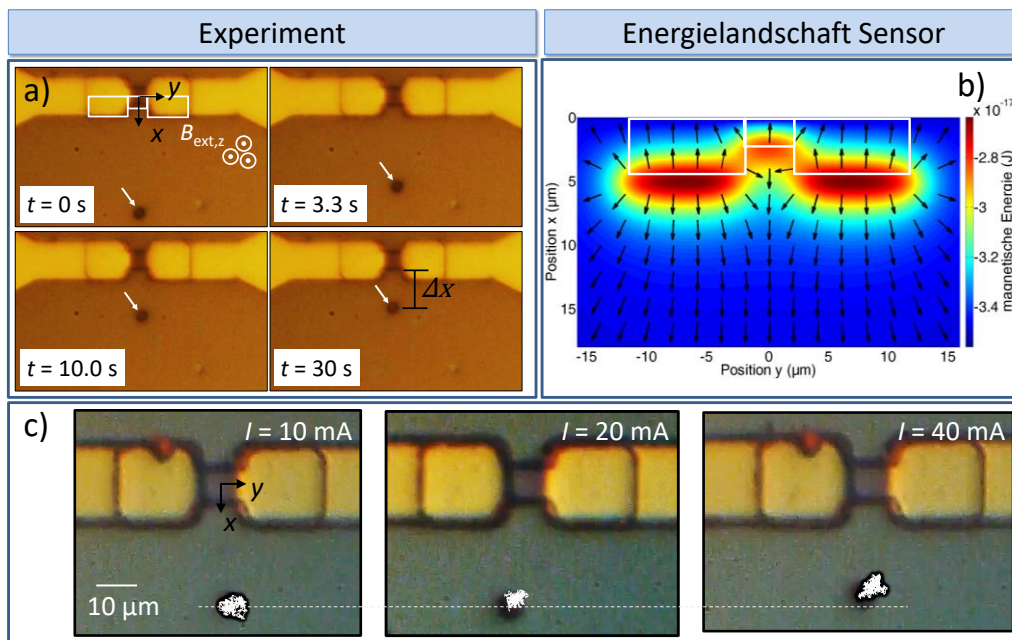


Abbildung 69: Experiment zur Annäherung eines M-280 Partikels an die aktive Sensorfläche für die hantelförmige Sensorgeometrie. In a) wird das Partikel durch einen Strom von $I = 30$ mA durch die untere Positionierleitung (in den Bildern nicht zu sehen) in einem externen Feld von $B_{\text{ext},z} = 3.3$ mT in Richtung der aktiven Fläche des hantelförmigen Sensors (jeweils oben in den Bildern zu sehen) gedrückt. Abbildung b) zeigt die durch das Streufeld der gepinnten Schicht verursachte Energielandschaft in unmittelbarer Sensornähe. Die weißen umrandeten Bereiche entsprechen den in a) markierten Bereichen. In c) sind Trajektorien für eine Messzeit von $t_{\text{mess}} = 90$ s (weiße Kurven) für verschiedene Ströme I (wie in Abbildungen angegeben) durch die untere Positionierleitung und externes Feld von $B_{\text{ext},z} = 4.5$ mT gezeigt.

Anschließend wurde das Partikel für $t > 0$ mittels eines Stromes von $I = 30$ mA durch die untere Positionierleitung in Richtung der aktiven Fläche des Sensors gedrückt. Nachdem sich das Partikel bis ca. $t = 10$ s der aktiven Fläche nähert, nimmt der Abstand zum Sensor für $t > 10$ Sekunden nicht mehr signifikant ab und das Partikel fluktuiert um einen definierten Gleichgewichtsabstand $\Delta x \approx 10 \mu\text{m}$ (vgl. Abbildung 69a) für $t = 30$ s) zur aktiven Fläche des Sensors. Selbst über Zeiträume von mehreren Minuten (siehe auch Abbildung 69c)) lässt sich das Partikel nicht direkt auf die aktive Fläche positionieren und kann daher aufgrund seines großen Abstands zu dieser nicht detektiert werden. Dieser Sachverhalt kann verstanden werden, wenn man die durch das Streufeld des Sensors (bzw. dessen gepinnten Co Schicht) verursachte Energielandschaft im Außenraum des Sensors für die untere Halbebene ($x > 0$) für $t_{\text{co}} = 4$ nm, $\mu_0 M_p = 1.8$ T, $B_{\text{ext,z}} = 3.3$ mT berechnet. Das Streufeld der freien Schicht wird für diese Berechnung vernachlässigt, da diese nominell senkrecht zur gepinnten Schicht ausgerichtet ist und von daher nur ein vernachlässigbares Streufeld in der unteren Halbebene erzeugt. Das Ergebnis ist in Abbildung 69b) dargestellt. Die Energielandschaft zeigt eine durch die Überlagerung des Streufelds der gepinnten Schicht und dem externen Feld $B_{\text{ext,z}}$ maximale magnetische Energie an der unteren Kante des GMR Sensors. Der Sensor übt daher eine abstoßende Kraft auf das Partikel aus. Dies führt dazu, dass sich durch die abstoßenden Kräfte des Sensors und der unteren Positionierleitung, die jeweils entgegengerichtet wirken, ein Gleichgewichtsabstand Δx des Partikels vom Sensor einstellt. Die gezeigte Wechselwirkung des Partikels mit dem Sensor wird in vielen anderen Arbeiten, in denen einzelne Partikel mit integrierter GMR Sensorik detektiert werden, nicht beobachtet. Eine mögliche Ursache dafür ist, dass einige Systeme anstelle der für die vorliegende Arbeit verwendeten, gepinnten Schicht einen synthetischen Antiferromagneten (SAF) [24, 35] bzw. eine antiparallele Kopplung der für den GMR Effekt relevanten, magnetischen Schichten [173] einsetzen. Dies reduziert durch die antiparallele Ausrichtung der magnetischen Lagen das Streufeld des Sensors und vermindert dadurch die Wechselwirkung zwischen Partikel und Sensor. In den meisten Anwendungen werden die Nanopartikel vor der Detektion immobilisiert [25, 174], was eine Beobachtung der Wechselwirkung durch die Bewegung der Partikels in Sensornähe unmöglich macht. In [165] und [166] werden die Partikel nicht wie in der vorliegenden Arbeit durch ein externes Feld, sondern durch das Streufeld der zur Manipulation eingesetzten Leiterbahnen magnetisiert. Dies führt zu einem geringeren magnetischen Moment der Partikel und dadurch zu einer reduzierten Wechselwirkung mit dem Sensor. Wird kein synthetischer Antiferromagnet verwendet, kann es analog zu den hier gezeigten Ergebnissen zur Wechselwirkung der Partikel mit dem Sensor kommen. Mirowski et al. konnten ähnlich zu den in dieser Arbeit gezeigten Ergebnissen eine Wechselwirkung zwischen mikrostrukturisiertem Sensorelement und dem Partikel nachweisen [175]. Diese wird nach [175] auf die Wechselwirkung der durch das externe Feld magnetisierten Partikel mit dem Streufeldgradienten des Sensors zurückgeführt. In der erwähnten Arbeit konnte die Wechselwirkung zusätzlich durch wahlweise parallele oder anti-parallele Anordnung der Magnetisierungen

in den ferromagnetischen Sensorschichten an- und ausgeschaltet werden, was im Einklang zur vorherig getätigten Vermutung einer reduzierten Wechselwirkung bei Verwendung eines SAF steht.

Abbildung 69c) zeigt vermessene Partikeltrajektorien (als weiße Linien) für verschiedene Ströme I durch die untere Manipulationsleitung. Die Messungen zeigen, dass der Gleichgewichtsabstand des Partikels zur aktiven Sensorfläche mit zunehmender Stromstärke I durch die Manipulationsleitung abnimmt. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass die in negative x -Richtung gerichtete, durch die Positionierleitung ausgeübte Kraft auf das Partikel proportional zum Strom I zunimmt. Die abstoßende Kraft durch den Sensor ist dagegen unabhängig von der Stromstärke I durch die Positionierleitung. Dadurch wird die Gleichgewichtslage bzw. der Punkt des Kräftegleichgewichts hin zu geringeren Δx verschoben. Obwohl bei einem Strom von $I = 10$ mA eine um den Faktor vier geringere Kraft durch die Positionierleitung im Vergleich zu einem Stromfluss $I = 40$ mA wirkt, ändert sich der Abstand des Partikels zur aktiven Sensorfläche bei Erhöhung von $I = 10$ mA zu $I = 40$ mA nur geringfügig. Dies liegt daran, dass durch die geringen Ausmaße des Sensors in unmittelbarer Nähe zu diesem der Feldgradient im Sensorstreufeld und damit die Kraft auf das Partikel mit geringer werdendem Abstand stark zunehmen. Aufgrund der limitierten Stromstärken durch die Positionierleitungen kann daher nicht genügend Kraft durch die Positionierleitung aufgebracht werden, um das Partikel entgegen der vom Sensor wirkenden, abstoßenden Kraft auf die aktive Sensorfläche zu transportieren. In einem weiteren Experiment, das in Abbildung 70 gezeigt ist, wurde ein M-280 Partikel von der im Vergleich in Abbildung 69 gegenüberliegenden Seite an den Sensor herangeführt.

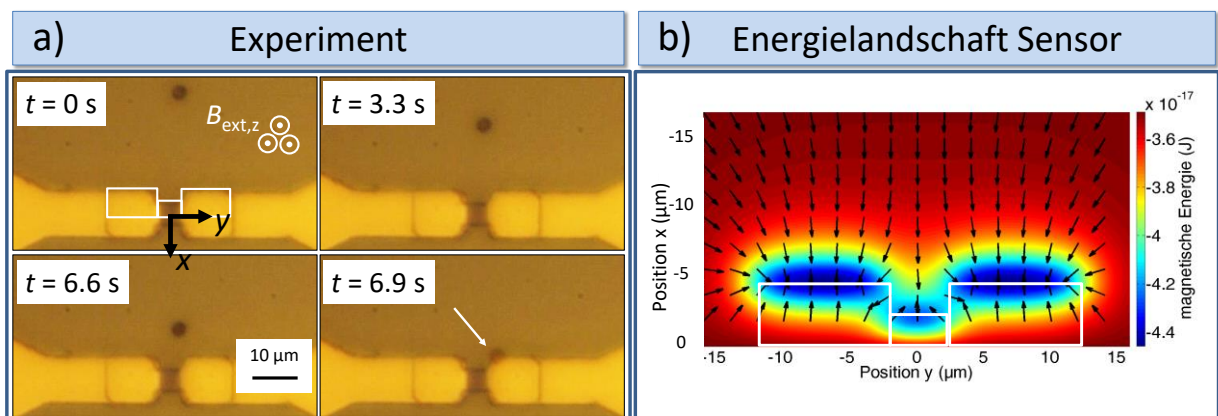


Abbildung 70: In a) ist die Annäherung eines Partikels an die aktive Fläche des Sensors gezeigt. Das Partikel wird ab $t = 0$ von einem Strom von $I = 30$ mA durch die obere Positionierleitung (im Bild nicht zu sehen) in Richtung Sensor gedrückt. Das externe Feld beträgt $B_{\text{ext},z} = 3.3$ mT. In b) ist die durch die gepinnte Co Schicht verursachte, berechnete Energielandschaft in unmittelbarer Nähe zur oberen Kante des Sensors zu sehen. Die weiß umrandeten Bereiche entsprechen den in a) markierten Bereichen der Sensorfläche.

Nach dem Zentrieren des Partikels bezüglich der aktiven Sensorfläche wurde ein Strom von $I = 30$ mA zum Zeitpunkt $t = 0$ s in die obere Positionierleiterbahn eingeprägt. Das Partikel bewegt sich anschließend in Richtung der aktiven Sensorfläche. Kurz vor Erreichen der aktiven Fläche wird das Partikel in Richtung der rechten, breiteren Hantelfläche

abgelenkt und lagert sich an dieser an. Dieses Phänomen ließ sich in dieser Konfiguration reproduzierbar beobachten. Der Effekt lässt sich erneut unter Berechnung der Energielandschaft in der oberen Halbebene des Sensors ($x < 0$) nachvollziehen, die in Abbildung 70b) gezeigt ist. Die Berechnung zeigt, dass sich die minimale magnetische Energie an der oberen Längskante des Sensors ergibt, was zur Anziehung des Partikels hin zur Kante führt. Wird das Partikel zentral zum aktiven Bereich des Sensors (exakt entlang der x -Achse) auf den Sensor zubewegt, ergibt sich eine zum aktiven Bereich gerichtete Kraftkomponente F_y . Für geringe Abweichungen von der x -Achse ($y \neq 0$) ergibt sich eine zusätzliche Kraftkomponente $F_y \neq 0$, was zur beobachteten Bewegung des Partikels hin zu den breiten Kontaktflächen des Sensors führt. Aufgrund der im realen Experiment vorhandenen Brown'schen Bewegung der Partikel lässt sich eine Abweichung $y \neq 0$ während der Annäherung des Partikels an den Sensor nicht vermeiden, was entsprechend den gezeigten Ergebnissen die gezielte Positionierung des Partikels auf der aktiven Fläche erschwert.

Um diesem Umstand entgegenzuwirken wurde für die folgenden Experimente mit der in Abbildung 64e) eingeführten rechteckigen Sensorgeometrie gearbeitet. Abbildung 71 zeigt ein Experiment zur Positionierung eines Einzelpartikels auf einem Sensor mit der entsprechenden Geometrie.

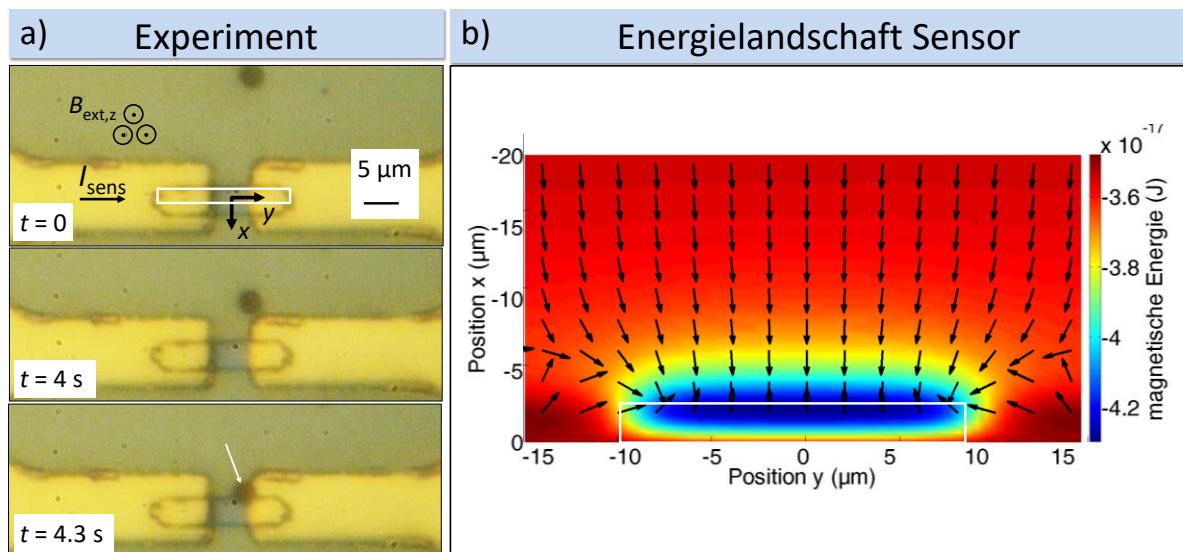


Abbildung 71: Experiment (in a) gezeigt) zur Annäherung eines M280 Partikels an die rechteckige Sensorgeometrie. Der Sensorstrom beträgt $I_{\text{sens}} = 3 \text{ mA}$. Das externe Feld beträgt $B_{\text{ext},z} = 3.3 \text{ mT}$. Das Partikel wird zum Zeitpunkt $t = 0$ durch einen Strom $I = 30 \text{ mA}$ durch die obere Positionierleitung (nicht in den Bildern zu sehen) in Richtung Sensor bewegt. Abbildung b) zeigt die berechnete Energielandschaft in der Nähe der Oberkante des Sensors für $I_{\text{sens}} = 3 \text{ mA}$. Der weiß umrandete Bereich entspricht dem in a) für $t = 0 \text{ s}$ markierten Bereich.

Die Messung zeigt, dass das Partikel sich nach dem Einschalten des Stroms $I = 30 \text{ mA}$ bei $t = 0 \text{ s}$ durch die obere Positionierleitung in Richtung Sensor bewegt und sich an der aktiven Sensorfläche anlagert. Das Ergebnis deckt sich mit den Vorhersagen zur Partikelbewegung, die sich aus der berechneten Energielandschaft ergeben (siehe Abbildung 71b)). Die minimale magnetische Energie ergibt sich somit für Partikelpositionen an der

Oberkante der Sensorfläche ($x = -2,5 \mu\text{m}$, $-10 \mu\text{m} < y < 10 \mu\text{m}$). Aufgrund der Rechtecksgeometrie ergibt sich im direkten Vergleich mit der Energielandschaft für die Hantelgeometrie (vgl. Abbildung 70b)) keine signifikante Variation in der magnetischen Energie entlang der Oberkante des Sensors, weshalb das Partikel an beliebiger Stelle auf der aktiven Fläche positioniert werden kann.

Die Ergebnisse zur Sensor-Partikel-Wechselwirkung belegen, dass sich unter Verwendung der geeigneten Sensorgeometrie einzelne Partikel gezielt auf den mikrostrukturierten GMR Sensoren positionieren lassen. Dies ermöglicht die magneto-resistive Detektion von Einzelpartikeln durch den GMR Sensor, worauf im folgenden Abschnitt eingegangen wird.

Modellierung des elektrischen Sensorsignals bei Anwesenheit eines Partikels in Sensornähe – Positionsabhängigkeit

Zur Berechnung der Sensorantwort in Anwesenheit eines magnetischen Partikels muss das den Sensor durchsetzende Streufeld des Partikels bestimmt werden. Eine Skizze zur Modellrechnung sowie eine Übersicht der daraus berechneten Vorhersagen sind in Abbildung 72 gezeigt. Abbildung 72a) zeigt eine Skizze zur Veranschaulichung des Modells. In erster Näherung wird angenommen, dass das magnetische Partikel im Wesentlichen vom externen Feld $B_{\text{ext},z}$ und nicht vom Streufeld des Sensors oder dem durch die Leiterbahn erzeugten Feld aufmagnetisiert wird. Diese Vereinfachung resultiert in einem vom Ort des Partikels $\vec{r}' = (x', y', z')$ unabhängigen magnetischen Moment $\vec{m}_p$. Das Streufeld des Partikels kann an jedem Ort $\vec{r}$ außerhalb des Partikelvolumens direkt aus dem Dipolfeld des magnetischen Moments $\vec{m}_p$ berechnet werden [176]. In diesem Fall gilt:

$$\vec{B}_{\text{streu}}(\vec{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi|\vec{r}'|^2} \frac{3\vec{r}(\vec{m}_p \cdot (\vec{r} - \vec{r}')) - |\vec{m}_p| \cdot |\vec{r} - \vec{r}'|^2}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} \quad \text{mit} \quad \vec{r}' = (x', y', z') \quad (58)$$

Unter Berücksichtigung der Sensitivität des Sensors $S_x [\text{mV/Oe}]$ entlang der intrinsisch harten Richtung (entspricht der x -Richtung) kann die Sensorantwort direkt aus der x -Komponente des Streufelds $B_{\text{streu},x}$ als Funktion der Partikelposition (x', y', z') berechnet werden. Dabei wird angenommen, dass jeder Teil der aktiven Fläche gleich zur Sensitivität beiträgt. Dies setzt eine homogene Stromdichteverteilung im Sensor voraus. Streng genommen ist dies aufgrund des lokal unterschiedlichen elektrischen Widerstands des Sensors bei Anwesenheit eines Partikels nicht der Fall. Aufgrund der lokal nur sehr geringen Widerstandsänderungen $\ll 1 \%$, die durch das Partikel erzeugt werden können, kann die Stromdichte und damit der lokale Beitrag zur Sensitivität jedoch in guter Näherung als konstant angenommen werden. Unter diesen Bedingungen berechnet sich die Sensorant-

wort für eine gegebene Partikelposition ($x', y', z' = \text{const.}$) als über die aktive Fläche gemitteltes Produkt $S_x \cdot B_{\text{streu},x}(x', y', z')$.

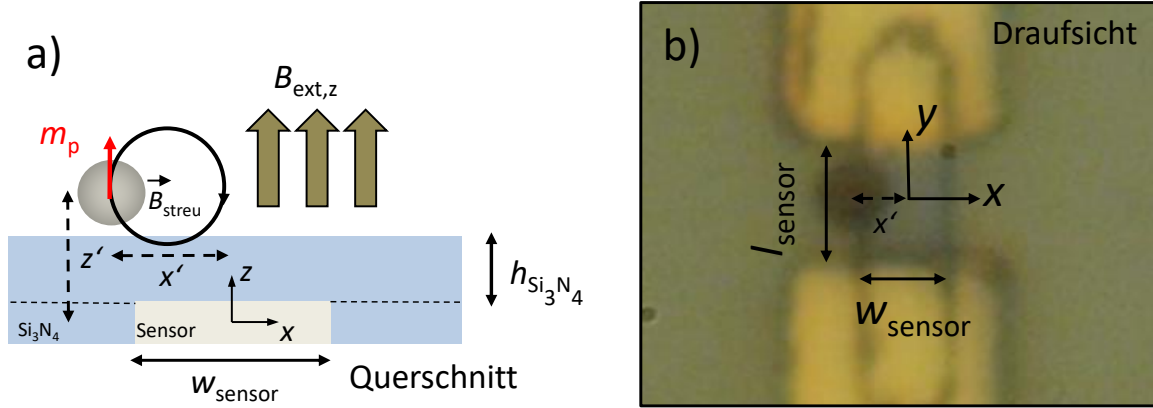


Abbildung 72: In a) ist eine Skizze zur Modellierung des Sensorsignals gezeigt. Abbildung b) zeigt eine optische Aufnahme eines M280-Partikels in direktem Kontakt mit dem Sensor.

Man erhält:

$$U_{\text{sensor}}(x', y', z') = S_x / A \int_A B_{\text{streu},x}(x, y) dx dy = S_x \langle B_{\text{streu},x} \rangle \quad (59)$$

$\langle B_{\text{streu},x} \rangle$ bezeichnet die über die Sensorfläche A gemittelte Streufeldkomponente $B_{\text{streu},x}$. Abbildung 73a)-c) zeigt die Streufeldkomponente $B_{\text{streu},x}$ für drei ausgewählte Partikelpositionen ($x', 0, r_p + 1 \mu\text{m}$). Für Abstände $x' = \pm w/2 = \pm 2.5 \mu\text{m}$ wird der Sensor (umrahmte Fläche) nur von einer Flanke des Streufelds (positiv für $x' = 2.5 \mu\text{m}$ und negativ für $x' = -2.5 \mu\text{m}$) durchsetzt. Dies führt zu einem maximal positiven bzw. maximal negativen mittleren Feld $\langle B_{\text{streu},x} \rangle$ für diese Partikelpositionen. Befindet sich das Partikel mittig über dem Sensor ($x' = 0$) heben sich die beiden Feldanteile in Summe auf und das mittlere Feld $\langle B_{\text{streu},x} \rangle$ verschwindet. Aus diesen Erkenntnissen ergibt sich der in Abbildung 73d) gezeigte Signalverlauf mit maximalen Sensorsignalen für den direkten Kontakt des Partikels mit der Kante des Sensors für ($x' = \pm 2.5 \mu\text{m}, y' = 0$) und $U_{\text{sensor}} = 0$ für ($x' = 0, y' = 0$). Der Umstand, dass das maximale Signal für direkten Kontakt des Partikels mit der Kante zu erwarten ist, lässt sich sehr gut mit den aus den Manipulationsexperimenten gewonnenen Erkenntnissen vereinbaren. Da sich das Partikel durch die Wechselwirkung mit dem Streufeld des Sensors reproduzierbar an den Kanten des Sensors bei $x' = w/2$ anlagert, garantiert die gezeigte Manipulationsmethode ein maximales Sensorsignal. Dies ermöglicht einen reproduzierbaren Nachweis des Partikels in unmittelbarer Nähe Sensor. Im Folgenden wird ein aus den gezeigten Erkenntnissen abgeleitetes Messschema vorgestellt, dass es ermöglicht ein zeitperiodisches Signal zu generieren. Das Verfahren erlaubt es, sowohl die Partikeldynamik in der flüssigen Umgebung als auch die statischen, magnetischen Eigenschaften eines Partikels aus dem Sensorsignal zu extrahieren.

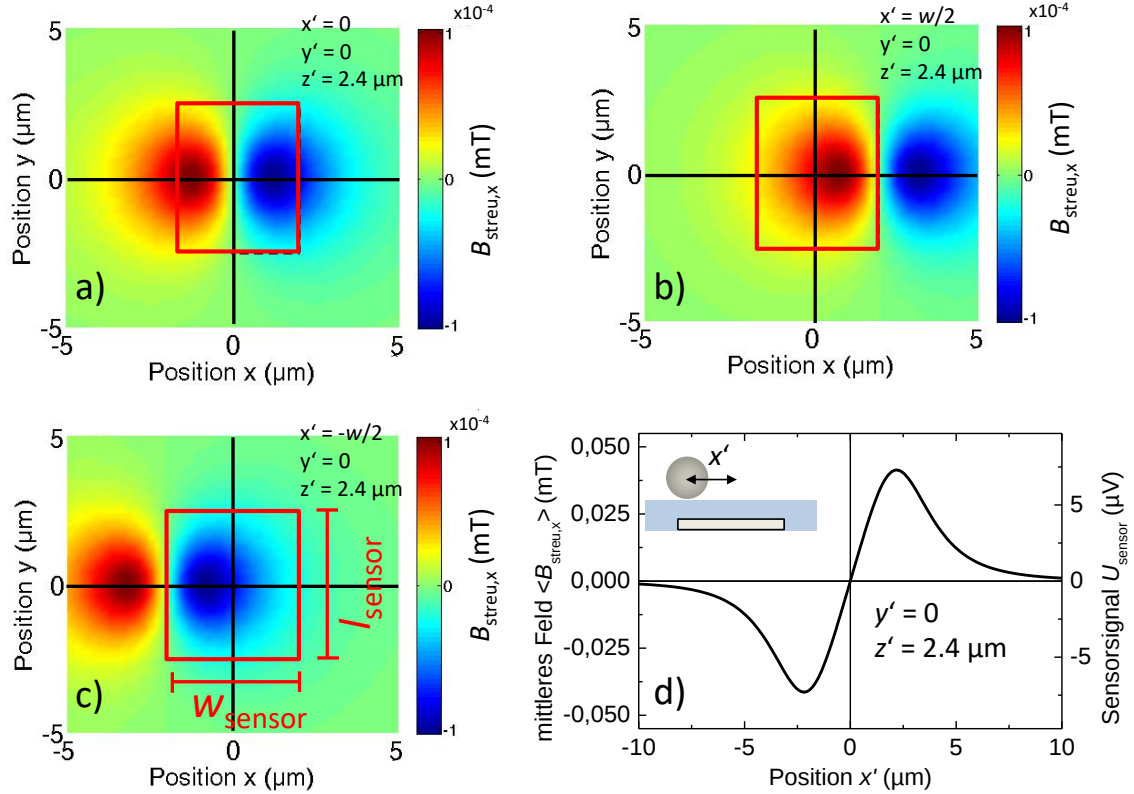


Abbildung 73: In a)-c) ist die berechnete, laterale Verteilung der Streufeldkomponente $B_{\text{streu},x}$ für drei unterschiedliche Positionen des Partikels für $x'=0$ in a), $x'=w/2$ in b) und $x'=-w/2$ in c) (jeweils für $y'=0$, $z'=2.4 \mu\text{m}$) entsprechend der jeweils rechts gezeigten Farbskala aufgetragen. Die Berechnung wurde für ein Feld von $B_{\text{ext},z} = 3.3 \text{ mT}$, $\chi = 0.55$, $r_p = 1.4 \mu\text{m}$ durchgeführt. Die aktive Sensorfläche mit $w_{\text{sensor}} = 4 \mu\text{m}$ und $l_{\text{sensor}} = 5 \mu\text{m}$ ist jeweils rot umrahmt dargestellt. In d) ist das Magnetfeld $\langle B_{\text{streu},x} \rangle$ sowie die Sensorspannung in Abhängigkeit der Position x' für $y' = 0 \mu\text{m}$ und $z' = 2.4 \mu\text{m}$ gezeigt. Das in d) gezeigte mittlere Feld $\langle B_{\text{streu},x} \rangle$ (linke Achse) sowie die Sensorspannung U_{sensor} (rechte Achse) ist nach Formel (59) für $S_x = 17.5 \mu\text{V/Oe}$ berechnet.

4.3.1 Messschema zur zeitperiodischen Erzeugung eines Sensorsignals bei Anwesenheit eines Partikels

In Abschnitt 4.2 wurde gezeigt, dass sich durch den Betrieb der Positionierleitung mit Strömen $> 20 \text{ mA}$ eine messbare Spannungsänderung im Sensor durch Wärmeübertrag ergibt. Die dadurch erzeugten Spannungsänderungen im Sensor können entsprechend Abbildung 65b) bis zu $100 \mu\text{V}$ betragen und damit deutlich größer als die vom Partikel induzierten Spannungsänderungen von wenigen μV (siehe Abbildung 73d)) ausfallen. Dies erschwert die Trennung beider Signale. Aus diesem Grund wurde ein Messschema verwendet, das durch harmonische Anregung des Systems ein Signal erzeugt, das anschließend messtechnisch von möglichen Störeinflüssen getrennt werden kann. Das Schema nutzt dabei anstelle eines konstanten, homogenen Feldes B_{ext} , ein zeitveränderliches, externes Feld $B_{\text{ext},z}(t) = \hat{B}_{\text{ext}} \sin(2\pi ft)$. Ähnliche Schemata wurden zur Signalerzeugung bereits in anderen Arbeiten eingesetzt, wobei sowohl Felder parallel [24, 177] als auch senkrecht [178] zur Substratebene angelegt wurden. Die harmonische Anregung $B_{\text{ext},z}(t)$ kann sowohl zur Polarisierung des Partikels als auch, wie im Folgenden gezeigt wird, zur Manipulation des Partikels in unmittelbarer Nähe des Sensors verwendet werden.

Abbildung 74 zeigt eine schematische Übersicht zur Vorgehensweise zum Nachweis der Anwesenheit eines Einzelpartikels in Sensornähe.

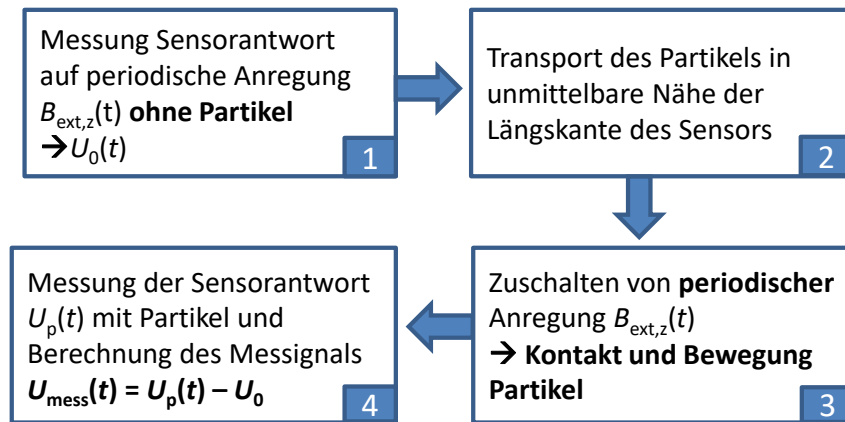


Abbildung 74: Schemadarstellung zur Erzeugung und Berechnung eines mittels GMR Sensor detektierten, dynamischen Partikelsignals

Zunächst wird das später zur Signalerzeugung genutzte Feld $B_{\text{ext},z}(t)$ an den Sensor angelegt und das dadurch erzeugte Sensorsignal $U_0(t)$ erfasst (**Schritt 1**). Obwohl die magnetischen Dünnschichten, die im Sensor eingesetzt werden, bei Aussteuerung entlang der $\hat{z}$ -Richtung aufgrund ihrer hohen Formanisotropie im Vergleich zur in-plane Aussteuerung (hier x -Richtung) sehr hartmagnetisch sind, kann sich unter Umständen durch das Feld $B_{\text{ext},z}(t)$ eine messbare Widerstandsänderung im Sensor ergeben. Dies ist zum einen durch eine geringfügige Komponente der Magnetisierung entlang der $\hat{z}$ -Richtung als auch durch eine mögliche, parasitäre in-plane Feldkomponente $B_{\text{ext},x}$ des zur Erzeugung von $B_{\text{ext},z}$ eingesetzten Aufbaus der Helmholtzspule möglich. Das Signal $U_0(t)$ wird als Referenzsignal herangezogen. Das Partikel wird anschließend mittels der Manipulationsstrukturen im homogenen Feld $B_{\text{ext},z}$ in die Nähe der aktiven Sensorfläche (bzw. deren Längskante) herangeführt (**Schritt 2**). Aufgrund des starken Einflusses des Streufelds der Sensorstruktur auf das Partikel wird die Partikelbewegung in direkter Nähe zum Sensor im Wesentlichen durch dessen Streufelder beeinflusst. Dies kann, wie im vorherigen Abschnitt gezeigt, in Kombination mit dem externen Feld $B_{\text{ext},z}$ dazu benutzt werden, das Partikel gezielt auf die Kante der aktiven Fläche zu transportieren (**Schritt 3**) und gleichzeitig den Kontakt des Partikels mit der Sensorstruktur messtechnisch zu erfassen (**Schritt 4**). Ein exemplarischer Ablauf des Experiments (Schritt 3 und 4) ist in Abbildung 75 gezeigt.

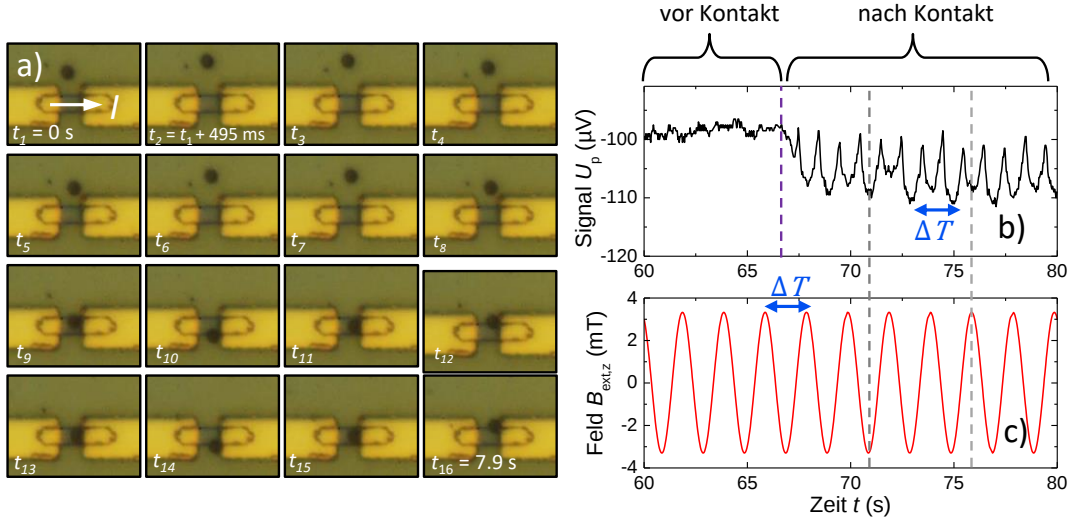


Abbildung 75: GMR basierte Messung eines M-280 Partikels mit harmonischer Anregung $B_{ext,z}(t)$. In a) ist eine Zeitreihe der Bewegung eines M-280 Partikels nach Transport in unmittelbare Nähe des Sensors gezeigt. Die Bilder zu den Zeitpunkten t_i weisen jeweils einen Zeitunterschied von $\Delta t = 0.495$ s zum Vorgängerbild zum Zeitpunkt t_{i-1} auf. Das externe Feld wurde mit einer Amplitude von $B_{ext,z} = 3.3$ mT und einer Frequenz von $f = 0.5$ Hz betrieben. Der Sensorstrom beträgt $I = 3$ mA. Das gemessene Sensorsignal zur links gezeigten Partikelbewegung ist in Abbildung b) gezeigt. Die vertikale, violette Linie markiert den Zeitpunkt, zu dem das Partikel erstmals in direkten Kontakt mit der Sensorkante gerät. Der zeitliche Verlauf des externen Feldes $B_{ext,z}$ ist in Abbildung c) dargestellt. Die vertikalen, grauen Linien markieren jeweils Zeitpunkte von minimalem und maximalem externen Feld. Die blauen Markierungen entsprechen der Periodendauer der harmonischen Anregung $B_{ext,z}(t)$ von $\Delta T = 2$ s.

Nach Zuschalten des externen Feldes $B_{ext,z}(t)$ bei $t = 0$ wird das Partikel durch die vom Streufeld des Sensors B_{streu} in Kombination mit dem externen Feld $B_{ext,z}(t) = B_{ext} \sin(2\pi f t)$ mit ($B_{ext} = 3.3$ mT und $f = 0.5$ Hz) für Zeiten $t < t_0 = 4.5$ s zunächst von der Oberkante des Sensors abgestoßen und angezogen. Dies entspricht den vorherig gezeigten Ergebnissen zur Wechselwirkung des Sensors mit dem Partikel. Nach den in Kapitel 3.3 gezeigten Ergebnissen sind die aufgrund der Überlagerung des externen Feldes mit dem Sensorstreufeld wirksamen anziehenden Kräfte auf das Partikel größer als die abstoßenden Kräfte. Dies führt nach einigen ausgeführten Oszillationen des Partikels dazu, dass das Partikel bei $t_0 = 4.5$ s in direkten Kontakt mit der oberen Sensorkante gerät, da es sich mit jeder Oszillation dem Sensor ein Stück nähert. Anschließend wird das Partikel durch die periodische Anregung von der Oberkante zur Unterkante und wieder zurück transportiert. Dies kann dadurch begründet werden, dass das Minimum in der magnetischen Energie bei Vorzeichenwechsel des externen Feldes $B_{ext,z}(t)$ von der Oberkante zur Unterkante des Sensors wechselt. Das gezeigte Schema führt also zu einer reproduzierbaren, periodischen Bewegung des Partikels mit Frequenz f über die aktive Sensorfläche. Abbildung 75b) zeigt das während der Bewegung des Partikels gemessene Sensorsignal. Der zugehörige Verlauf des externen Feldes $B_{ext,z}(t)$ ist in Abbildung 75c) gezeigt. Vor dem Kontakt des Partikels mit der Sensorstruktur ergibt sich kein durch das Partikel induziertes Signal (entspricht für diesen Fall nach Abbildung 74 dem Fall $U_o(t) = 0$). Nach dem Kontakt des Partikels mit der aktiven Fläche stellt sich eine von der Anwesenheit des Partikels erzeugte, zeitlich periodische Variation in der Sensorspannung $U_p(t)$ ein. Das Signal $U_p(t)$ weist im Vergleich zur Anregungsfrequenz von $B_{ext,z}(t)$ die doppelte Frequenz $2f$ auf. Dies kann qualitativ

unter Zuhilfenahme des in Abbildung 73d) gezeigten, berechneten Signalverlaufs in Abhängigkeit der Partikelposition verstanden werden. Der gezeigte Verlauf ist zunächst unter Berücksichtigung eines konstanten magnetischen Moments berechnet, was der Polarisierung des Partikels durch ein konstantes Feld $B_{\text{ext},z}$ entspricht. Dementsprechend wechselt das induzierte Signal das Vorzeichen, sofern das Partikel die Sensorkante wechselt, was einem Wechsel von $x' = -w/2$ zu $x' = +w/2$ entspricht. In dem in Abbildung 75 gezeigten Experiment ändert sich zusätzlich zur Oszillation des Partikels in x' das magnetische Moment des Partikels mit der Frequenz f durch Anlegen der periodischen Anregung $B_{\text{ext},z}(t)$. Dies resultiert, insofern das Partikel in der viskosen Umgebung der Anregungsfrequenz f folgen kann und sich periodisch von einer zur anderen Kante des Sensors bewegt in einer Signalkomponente mit doppelter Frequenz $2f$. Dieser Umstand ist messtechnisch von Vorteil, da das erzeugte Signal bei doppelter Anregungsfrequenz $2f$ messtechnisch von Störeinflüssen, die durch die Aussteuerung mit externem Feld $B_{\text{ext},z}(t)$ bei der Anregungsfrequenz f auftreten, getrennt werden kann.

Abbildung 76 zeigt ein weiteres Experiment, bei dem im Moment des Kontakts eines M-280 Partikels mit der aktiven Sensorfläche ein harmonisches, zeitabhängiges externes Feld des mit ($f = 0.2 \text{ Hz}$, $\hat{B}_{\text{ext},z} = 4.5 \text{ mT}$) zugeschaltet wurde.

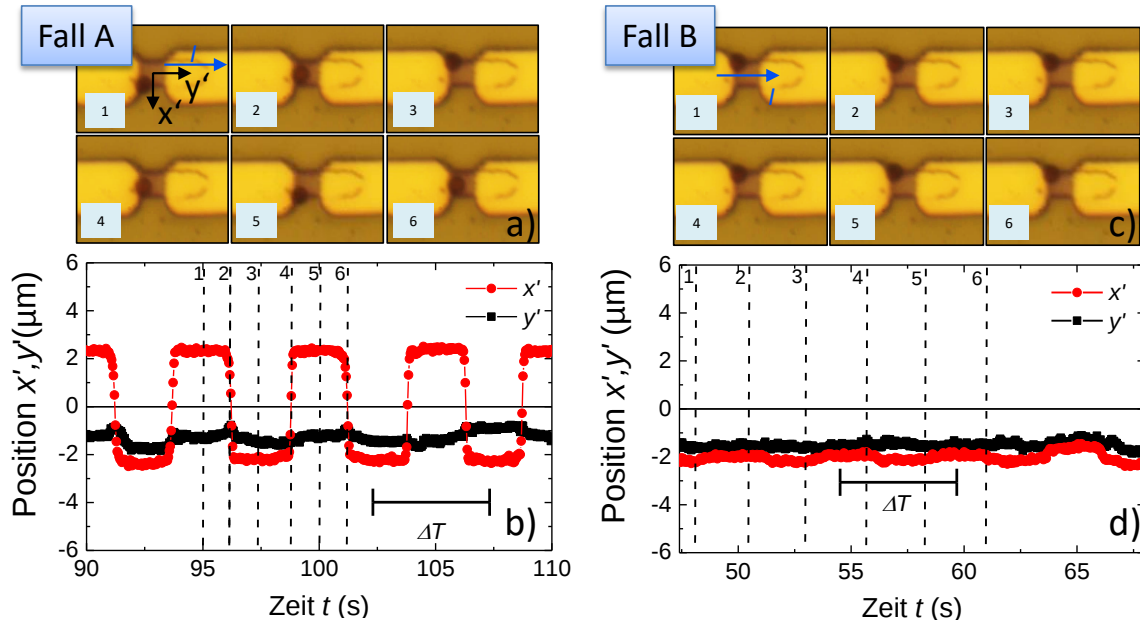


Abbildung 76: a) Bewegung eines M-280 Partikels über die aktive Fläche und extrahierte Partikeltrajektorie b). In c) und d) ist jeweils eine Bilderserie bzw. die daraus extrahierte Trajektorie in einem Zeitfenster gezeigt, innerhalb dessen sich das Partikel nicht über die aktive Sensorfläche bewegt. Die vertikalen Linien in b) und d) markieren jeweils die Zeitpunkte t , die den in a) und c) gezeigten Aufnahmen entsprechen. Die Markierung $\Delta T = 5 \text{ s}$ entspricht der Periodendauer des harmonischen, externen Feldes. Der Sensorstrom beträgt $I = 2.92 \text{ mA}$. Die Frequenz und Amplitude des externen Feldes beträgt in beiden Fällen $f = 0.2 \text{ Hz}$ und $\hat{B}_{\text{ext},z} = 4.5 \text{ mT}$.

Während des Experiments ließen sich zwei Fälle für die Partikelbewegung beobachten. Im Fall A (links in Abbildung 77) kann die bereits diskutierte Oszillation des Partikels in x' zwischen den Kanten des Sensor beobachtet werden, die in Abbildung 76a) in den Mikroskopaufnahmen gezeigt wird. Die aus den Videodaten extrahierte Partikeltrajektorie, die in Abbildung 76b) dargestellt ist, zeigt die erwartete Trajektorie des Partikels mit einer

Oszillationsperiode von $\Delta T = 1/f = 5$ s in der x' -Koordinate des Partikels. Über die komplette Messzeit der Trajektorie von mehreren Minuten konnte jedoch ein zweiter Fall (Fall B, gezeigt in Abbildung 76c) und Trajektorie in Abbildung 76d))) beobachtet werden, für den trotz angelegtem, periodischem Feld $B_{\text{ext},z}(t)$ keine Oszillation des Partikels über mehrere Perioden ΔT festgestellt werden konnte. Dieser Umstand kann zum einen durch die Tatsache begründet sein, dass sich das Partikel in diesem Fall in direkter Nähe zum Überlappbereich des Mo/Au Kontakts mit der aktiven Sensorfläche befindet. Im Randbereich der Zuleitungen ergeben sich bedingt durch den Lift-Off Prozess während der Herstellung der Kontakte starke Rauigkeiten, die dazu führen können, dass das Partikel mechanisch am Untergrund haftet und sich nicht reproduzierbar lösen kann. Zum Anderen besteht die Möglichkeit, dass im Randbereich des Sensors durch dortige Defekte Domänen nukleieren, die in Kombination mit dem externen Feld $B_{\text{ext},z}$ ein Pinning des Partikels in der Nähe der Domänenwand bewirken können [179]. Abbildung 78 zeigt die gemessenen Signalverläufe für die in Abbildung 76 gezeigten Fälle der Partikelbewegung.

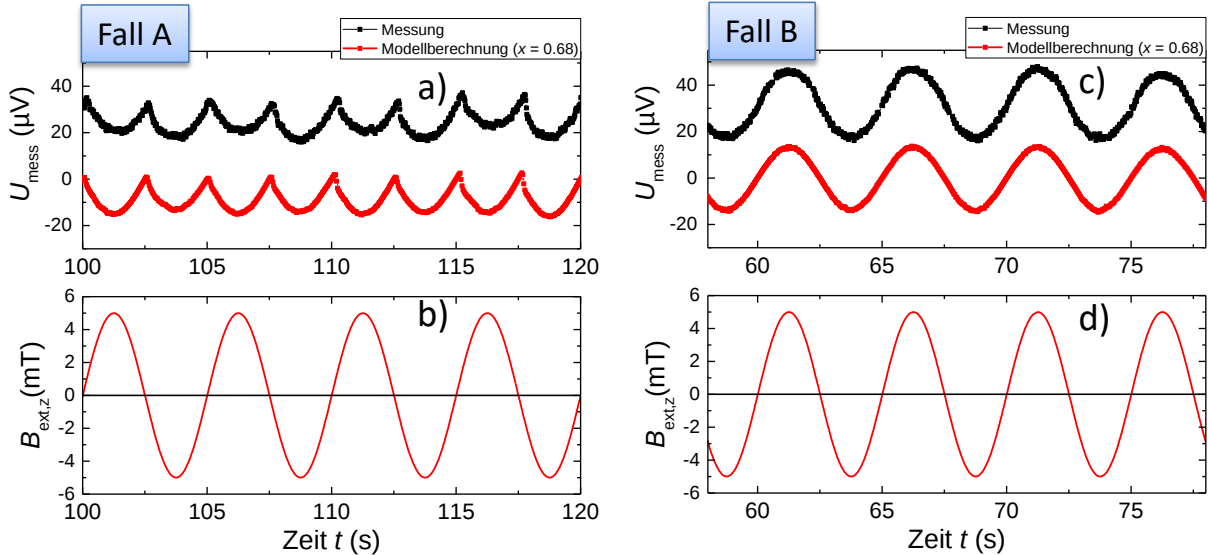


Abbildung 78: Signalverlauf für die in Abbildung 76 gezeigten Fälle der Partikelbewegung. Das gemessene Signal ist in a) und c) als schwarze Linie dargestellt. Die aus den Positionsdaten entsprechend Abbildung 76 mittels Gleichung (59) berechneten Sensorsignale sind als rote Linien in a) und c) gezeigt. Die Messungen (schwarze Kurven) wurde um einen Offset entlang der y-Achse verschoben, um eine einfachere Vergleichbarkeit mit den berechneten Signalverläufen (rote Kurven) zu ermöglichen. Für die Berechnung wurden folgende Parameter verwendet: $S_x = 25 \mu\text{V}/\text{Oe}$, $A = 4.5 \times 4.5 \mu\text{m}^2$, $z' = 2.4 \mu\text{m}$. Die unteren Abbildungen zeigen jeweils den Verlauf des externen Feldes $B_{\text{ext},z}(t)$ für Fall A (b)) und Fall B (d)).

Für Fall A ergibt sich entsprechend Abbildung 78a) das bereits in Abbildung 75 diskutierte Messsignal (schwarze Kurve) mit doppelter Frequenz im Vergleich zur Anregung $B_{\text{ext},z}(t)$ (siehe Abbildung 78b)). Im Fall B, der in Abbildung 78c) gezeigt ist und für den sich das Partikel nicht über die aktive Fläche des Sensors bewegt, ergibt sich ein Messsignal (schwarze Kurve) mit der gleichen Frequenz wie das Anregungssignal $B_{\text{ext},z}(t)$. Dies entspricht dem erwarteten Ergebnis, da für diesen Fall der Sensor durch die feste Position des Partikels bei jeder Halbwelle des externen Feldes $B_{\text{ext},z}(t)$ mit einem Partikelstreufeld unterschiedlichen Vorzeichens angesteuert wird, was zu einem Signal $U_p(t)$ mit gleicher

Frequenz f wie die externe Anregung in $B_{\text{ext},z}(t)$ führt. Dieser Umstand erlaubt aufgrund bekannter (zuvor kalibrierter) Sensitivität S_x des Sensors unter Berücksichtigung von Gleichungen (58) und (59) eine Berechnung des erwarteten Signalverlaufs $U_p(t)$. Dazu wird das in Gleichung (58) verwendete magnetische Moment m als direkt proportional zum angelegten Feld $B_{\text{ext},z}$ mit $m(t) = \frac{\chi_v V B_{\text{ext},z}(t)}{\mu_0}$ beschrieben und in Gleichung (59) eingesetzt.

Zusätzlich wird die gemäß Abbildung 76c) nahezu zeitunabhängige Partikelposition (x', y') des Partikels mit für die Modellierung verwendet. Aus der Anpassung des berechneten Signals (Abbildung 78c), rote Kurve) an die Messdaten (Abbildung 78c, schwarze Kurve) lässt sich bei bekannter Größe r_p des Partikels eine Suszeptibilität von $\chi_v = 0.68$ extrahieren. Dieser ist in gutem Einklang mit dem aus der Literatur für die M-280 Partikel bekannten Wertebereich. Unter Verwendung des für χ_v erhaltenen Wertes lässt sich für den Fall A einer Bewegung des Partikels über die aktive Fläche des Sensors ebenfalls die Sensorantwort berechnen. In Konsistenz zum in Fall B gezeigten, statischen Partikelverhalten ergibt sich für $\chi = 0.68$ auch hier eine gute Übereinstimmung des berechneten Sensorsignal (Abbildung 78a), rote Kurve) mit dem gemessenen Sensorsignal (Abbildung 78a), schwarze Kurve).

Die Ergebnisse zeigen, dass durch die Vermessung des Sensorsignals bei Anwesenheit eines Partikels sowohl die Suszeptibilität des Partikels χ aus dem Sensorsignal extrahiert werden kann als auch auf die Partikeldynamik durch das Vorhandensein einer $2f$ -Signalkomponente mit doppelter Frequenz im Vergleich zur Anregung $B_{\text{ext},z}(t)$ geschlossen werden kann. Da die Messung auf der magneto-resistiven Auswertung des zeitlich veränderlichen Sensorsignals beruht kann zur Bestimmung des magnetischen Moments auf eine optische Vermessung der Partikeltrajektorie verzichtet werden. Zusätzlich erlaubt die Methode eine Vermessung des magnetischen Partikelmoments auf Zeitskalen von wenigen Sekunden nach Kontakt des Partikels mit der aktiven Sensorfläche. Im Vergleich zur Bestimmung des magnetischen Moments aus der im vorherigen Kapitel gezeigten, optischen Methode weist die magneto-resistive Messung hier deutliche Vorteile auf.

Da die Bewegung des Partikels durch die harmonische Anregung in $B_{\text{ext},z}$ im viskosen Medium (hier: Wasser) stattfindet, ist prinzipiell ein Zusammenhang zwischen der Partikeldynamik und der Viskosität der Umgebung zu erwarten. Erste Ergebnisse (hier nicht dargestellt) zeigen, dass für höhere Anregungsfrequenzen $f > 5$ Hz das Partikel aufgrund der Bewegung in viskoser Umgebung der Anregung nicht mehr folgen kann und die Kanten des Sensors nicht mehr vollständig erreicht. Dieser Umstand könnte in Zukunft bei Verwendung einer Messmethode mit genügend hoher Bandbreite dazu benutzt werden, aus der Frequenzabhängigkeit des Sensorsignals Rückschlüsse auf die lokale Rheologie in direkter Nähe zur aktiven Fläche des Sensors zu ziehen.

4.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse zur Detektion von einzelnen magnetischen Beads mittels mikrostrukturierter GMR Sensoren vorgestellt und diskutiert. Zunächst wird auf die Wechselwirkung der zur Positionierung eingesetzten mikro-strukturierten Leiterbahnen und den mikro-strukturierten GMR Sensoren eingegangen. Durch die Zusammenlegung von Sensor- und Aktoreinheit findet aufgrund der geringen Abstände beider Strukturen ein Wärmeübertrag von der Aktor- zur Sensoreinheit statt. Dieser macht sich in einer transienten, temperaturbedingten Widerstandsänderung der Sensoren bemerkbar. Die dadurch im GMR Sensor verursachten Änderungen in der elektrischen Spannung können im Bereich von $\Delta U > 100 \mu\text{V}$ liegen, was eine Größenordnung oberhalb der erwarteten, durch die magnetischen Partikel verursachten Spannungsänderung im Sensor liegt. Dies macht ein im Rahmen der Doktorarbeit entwickeltes Messverfahren, basierend auf periodischer externer Anregung des Systems zur Detektion der Partikel notwendig.

Ein reproduzierbarer Nachweis von magnetischen Partikeln mit der mikrostrukturierten Sensoreinheit setzt eine hysteresefreie, lineare Sensorantwort voraus. Diese kann, wie im zweiten Abschnitt gezeigt wird, mittels eines entlang der leichten Richtung der freien Schicht angelegten, homogenen Feldes $H_{\text{ext},y}$ erzielt werden. Das zusätzliche Feld nimmt dabei Einfluss auf die Sensitivität S_x des Sensors. Dieser Umstand kann mittels eines um den Einfluss von $H_{\text{ext},y}$ erweiterten Stoner-Wohlfarth Modells beschrieben werden, was eine quantitative Vorhersage der Sensitivität in Abhängigkeit des zusätzlichen Feldes $H_{\text{ext},y}$ erlaubt.

Durch den gezielten Transport von einzelnen magnetischen Partikeln hin zur aktiven Sensorfläche kann eine magnetische Wechselwirkung zwischen den Partikeln und den ferromagnetischen Schichten der Sensorstruktur nachgewiesen werden. Die beobachtete Wechselwirkung ergibt sich in erster Näherung aus der Überlagerung des durch die Sensorstruktur verursachten Streufeldes mit dem zur Manipulation benötigten externen Feld. Die Berechnung der daraus resultierenden, magnetischen Energielandschaft in direkter Umgebung des Sensors erlaubt dabei eine Vorhersage des Partikelverhaltens in Sensornähe, die in gutem Einklang zu den experimentellen Befunden steht. Hierbei zeigen sowohl die experimentellen Ergebnisse als auch Modellrechnungen, dass die Wechselwirkung des Partikels mit dem Sensor im Nahfeld durch die Geometrie des Sensors beeinflusst wird. Dadurch ergibt sich eine für die Anwendung optimale Sensorgeometrie („Rechteck“), die eine reproduzierbare Positionierung von einzelnen M-280 Partikeln auf der aktiven Fläche des Sensors ermöglicht.

Im Rahmen der Arbeit wurde weiterhin ein Messschema basierend auf einer Anregung des Sensor-Partikel-Verbunds mit homogenem, periodischem Magnetfeld senkrecht zur Substratoberfläche entwickelt. Durch die Anregung ergibt sich eine im Rahmen der magnetischen Energielandschaft nachvollziehbare Bewegung des Partikels über die aktive Sen-

sofläche. Die Sensor-Partikelwechselwirkung bewirkt dabei - je nach Richtung des externen Feldes $B_{\text{ext},z}$ - eine stabile Gleichgewichtslage des Partikels oberhalb der Längskanten des Sensors, was zu einer reproduzierbaren, periodischen Sensorantwort führt. Durch die Bewegung des Partikels ergibt sich in Kombination mit der periodischen Anregung $B_{\text{ext},z}$ ein Sensorsignal bei der doppelten Frequenz $2f$ bezogen auf die Frequenz f der Anregung. Dies eignet sich, um eindeutig auf die An- oder Abwesenheit des Partikels rückzuschließen, da sich die $2f$ -Signalkomponente messtechnisch von Störeinflüssen, die durch die externe Anregung entstehen, trennen lässt.

Die beobachteten Sensorantworten lassen sich im Rahmen eines einfachen Modells, in denen das vom Dipolfeld des Partikels im Sensor induzierte Streufeld berücksichtigt wird, quantitativ vorhersagen. Berücksichtigt man zusätzlich die zeitabhängige Partikelposition, lässt ein Abgleich der Modellrechnung mit den experimentellen Daten eine Bestimmung der magnetischen Suszeptibilität eines einzelnen M-280 Partikels aus dem elektrisch gemessenen Sensorsignal zu. Die zur Bestimmung der Partikelsuszeptibilität benötigten Zeiten sind um mehr als eine Größenordnung geringer als die Zeiten, die für die in Kapitel 3 eingeführte Bestimmung der Partikelsuszeptibilität basierend auf optischer Beobachtung des Zweipartikelsystems benötigt wurden. Zusätzlich kann aufgrund des rein elektrisch basierten Messverfahrens auf den Einsatz von hochauflösender optischer Mikroskopie verzichtet werden. Im Vergleich zu den optisch basierten Methoden stellt die magnetoresistive Messung somit für integrierte Lab-On-Chip Systeme eine deutlich schnellere und einfacher umsetzbare Möglichkeit zur Bestimmung des magnetischen Moments einzelner magnetischer Partikel dar.

5 Zusammenfassung

Ziel der Arbeit war es, ein System zur vollintegrierten Manipulation und Detektion von einzelnen magnetischen Partikeln für eine Lab-On-Chip Umgebung zu entwickeln.

Für die Arbeit wurden in einem ersten Teilschritt magnetische Sensoren auf Basis des GMR Effekts hergestellt und mittels konventioneller optischer Lithographie mikrostrukturiert. Im Rahmen der Herstellung wurde die Eignung der Focused Ion Beam (FIB) Technik zur Nanostrukturierung der Sensoren untersucht. Dabei konnten in einem ersten Schritt Sensoren mit Dimensionen von $w < 200$ nm strukturiert werden. Die erzielten Ergebnisse zeigen jedoch, dass die nach der Nanostrukturierung verbleibende aktive Sensorfläche irreversibel geschädigt wurde. Die Schädigung konnte auf ein Eindringen von aus dem Primär-Ionenstrahl gestreuten Ga Ionen in die aktive Sensorfläche zurückgeführt werden. Die Streuionen konnten mittels hochauflösender EDX Messung lokal in der Nähe der Schnittkante quantitativ nachgewiesen werden. Die gezeigten Resultate zur Schädigung der Sensoren sind dabei in gutem Einklang mit durchgeführten Referenzexperimenten, bei denen gezielt der schädigende Einfluss durch Ionenbestrahlung in Abhängigkeit der eingestrahlten Ionendosis beobachtet und quantifiziert wurde. Wie anschließend sowohl durch Simulation der Ionentrajektorien im Schichtstapel des Sensors als auch experimentell gezeigt wird, kann der Einfluss der Streuionen während des Schneidens durch eine auf die Sensoren aufgebrachte Schutzschicht aus 50 nm SiO₂ stark reduziert werden. Dies erlaubt eine Nanostrukturierung ohne wesentliche Schädigung bis zu Sensorgrößen von $w = 300$ nm. Aus den getätigten Experimenten lässt sich eine untere Strukturgröße von $w = 100$ nm ermitteln, bis zu der noch ein GMR Effekt nachgewiesen werden kann. Nach der Nanostrukturierung zeigen die Sensoren eine Änderung des magneto-resistiven Verhaltens gegenüber dem mikrostrukturierten Ausgangszustand, die sich in einer Feldverschiebung der Sensorkennlinie und einer Reduktion der Sensitivität äußert. Beide Effekte zeigen eine deutlichere Ausprägung mit abnehmender Breite des nanostrukturierten Sensors. Dies kann im Rahmen eines um die Formanisotropie des Sensors erweiterten Stoner-Wohlfarth Modells beschrieben werden, was die quantitative Vorhersage des Sensorverhaltens im Anschluss an die Nanostrukturierung mittels FIB erlaubt.

In einem zweiten Schritt wurde ein System zur magnetischen On-Chip Manipulation von superparamagnetischen Partikeln entwickelt. Das System basiert dabei auf dem Konzept, mikro-strukturierte stromdurchflossene Leiterbahnen zur Erzeugung eines starken und lokalisierten Magnetfeldgradienten zu verwenden. Diese Technik wurde in dieser Arbeit um ein zusätzlich angelegtes, homogenes Feld erweitert, das die quantitative Kontrolle von Betrag und Richtung der auf die Partikel wirkenden Kräfte ermöglicht. In Modellrechnungen wurden zunächst die für die Lab-On-Chip Anwendung relevanten Kräfte in der Nähe der Leiterbahn in Abhängigkeit des Leiterbahnstroms I und der Ausrichtung und Stärke des zusätzlichen, homogenen Feldes B_{ext} berechnet. Die Ergebnisse zeigen,

Zusammenfassung

dass sich für das Lab-On-Chip Szenario eine optimale Konfiguration aus Stromführung parallel zur Substratoberfläche in Kombination mit externem Feld senkrecht zur Substratebene ergibt. Die Vorhersagen der Kräfteberechnung werden in Modellexperimenten bestätigt. Basierend auf der eingeführten Manipulationstechnik wurde in der Arbeit eine magnetische Ringfalle entwickelt, die es erlaubt, einzelne Partikel nahe des Energieminimums der Falle zu transportieren. Die Funktionsweise der Falle kann unter Berechnung der von der Falle erzeugten magnetischen Energielandschaft quantitativ beschrieben werden. Aus der Berechnung der dreidimensionalen Energie- und Kräfterlandschaft lassen sich quantitative Vorhersagen zur Langzeitstabilität der magnetischen Partikel treffen, die durch Experimenten bestätigt werden. Die Auswertung der Partikelfluktuations auf Basis der mittleren quadratischen Verschiebung (*MSD*) erlaubt einen Rückschluss auf die lokalen, mikro-rheologischen Eigenschaften der Partikelumgebung. Die extrahierten Diffusionskonstanten zeigen, dass die kurzzeitige, freie Diffusion der Partikel durch die Nähe der Partikel zur Substratoberfläche beeinflusst wird. Die Ergebnisse werden im Rahmen von bereits in der Literatur bekannten Konzepten, die die Nähe des Partikels zur Substratoberfläche berücksichtigen, modelliert. Unter Einbeziehung der elektrostatischen Wechselwirkung der Partikel mit dem Substrat lässt sich eine gute Übereinstimmung zwischen Modellvorhersagen und der experimentell aus der Brown'schen Bewegung der Partikel ermittelten Viskosität der Partikelumgebung finden. Aus Berechnung des *MSD* auf Zeitskalen von mehreren Minuten lässt sich die magnetische Fallenstärke bestimmen. Dies kann neben der Kalibration der Falle dazu eingesetzt werden, das magnetische Moment eines einzelnen, superparamagnetischen Partikels mit einer Genauigkeit von $\sim 10\%$ zu bestimmen. Eine weitere Methode zur Bestimmung des magnetischen Moments ergibt sich durch Betrachtung der durch Dipol-Dipol-Wechselwirkung gekoppelten Fluktuation eines in der Falle gefangenen Partikelpaars. Die Auswertung des mittleren Partikelabstands erlaubt dabei unter Einbeziehung des Gleichgewichts aus Fallenkräften und Dipol-Dipol-Kräften eine Berechnung des mittleren magnetischen Moments des Partikelpaars. Hierbei ergeben sich bei gleichbleibender Genauigkeit im Vergleich zur Bestimmung des magnetischen Moments aus Einzelpartikelmessungen aufgrund der stärkeren auf die Partikel wirkenden Fallenkräfte deutlich geringere Messzeiten im Bereich von nur wenigen Minuten.

Im letzten Abschnitt der Arbeit wird untersucht, wie sich die zuvor eingeführten Systeme zur Detektion und Manipulation zusammenführen lassen und welche Konsequenzen sich durch das Zusammenwirken beider Komponenten ergeben. Bei gleichzeitigem Betrieb der Manipulationseinheit und des Sensors lässt sich ein im Sensor erzeugtes Spannungssignal nachweisen. Dieses beträgt für die typisch zur Manipulation verwendeten Ströme $\Delta U > 100\ \mu\text{V}$ und übersteigt damit das durch die Anwesenheit des Partikels induzierte Signal deutlich. Das Signal ergibt sich als Konsequenz des Wärmeübertrags der Manipulationsleitung hin zur Sensorstruktur und stellt eine unerwünschte Wechselwirkung beider Systeme dar. Weitere Ergebnisse zeigen, dass die Sensorcharakteristik mittels eines entlang

Zusammenfassung

der intrinsischen, leichten Richtung der freien Schicht angelegten, homogenen Feldes $H_{\text{ext},y}$ linearisiert werden kann. Die Stärke des zusätzlichen Feldes reduziert zum einen die Hysterese der Transferkurve des Sensors und führt gleichzeitig zu einer geringeren Feldsensitivität des Sensors, was im Rahmen einer mikro-magnetischen Modellierung des Sensors beschrieben wird. Durch den gezielten Transport einzelner magnetischer Partikel zur aktiven Sensorfläche kann eine magnetische Wechselwirkung zwischen den Partikeln und den ferromagnetischen Schichten der Sensorstruktur nachgewiesen werden. Diese wird qualitativ durch Berechnung der magnetischen Energielandschaft in direkter Nähe zum Sensor in gutem Einklang zu den experimentell beobachteten Ergebnissen bestätigt. Die Ergebnisse zeigen, dass die Wechselwirkung im Nahfeld des Sensors durch dessen Geometrie beeinflusst wird, woraus sich eine für die Lab-On-Chip Anwendung optimale Sensorgeometrie ableiten lässt, die eine gezielte Positionierung von einzelnen M-280 Partikeln auf der aktiven Fläche des Sensors ermöglicht. Durch die Anregung des Partikels mit einem periodischen externen Feld senkrecht zur Substratoberfläche ergibt sich unter geeigneten Bedingungen eine oszillierende Bewegung des Partikels über die aktive Sensorfläche. Dies führt zu einer periodischen Sensorantwort bei Anwesenheit des Partikels in Sensornähe, die eine Frequenzkomponente bei der doppelten Frequenz $2f$ bezogen auf die Frequenz f der Anregung aufweist. Die beobachteten Sensorantworten zeigen dabei eine gute Übereinstimmung mit Modellrechnungen, aus denen das Sensorsignal in Abhängigkeit der Partikelposition bestimmt wird. Durch Abgleich von Modell und Experiment lässt sich im Rückschluss das magnetische Moment eines einzelnen M-280 Partikels bestimmen. Die Ergebnisse sind dabei in guter Übereinstimmung zu den in Kapitel 4 gezeigten Ergebnissen zur Bestimmung des magnetischen Moments aus Fluktuationsexperimenten.

Zusammenfassend zeigen die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit, dass sich basierend auf den vorgestellten Methoden ein vollintegriertes System zur Manipulation und Detektion von einzelnen Partikeln realisieren lässt. Durch den Einsatz von mikro-strukturierter Sensorik ergeben sich interessante Anwendungsmöglichkeiten solcher kombinierter Systeme. Wird beispielsweise die Sensoroberfläche funktionalisiert, lassen sich Bioanalyten direkt an den Sensor koppeln. Ein definierter Transport von einzelnen Partikeln hin zur Sensorfläche erlaubt dann das gezielte Anbinden der Partikel an die Analyten. Die in Kapitel 4 demonstrierte Wechselwirkung der Partikel mit dem Sensorstreufeld kann somit zur gezielten Aufbringung von Kräften auf die gekoppelten Analyten benutzt werden. Bei gleichzeitiger Messung des durch das Partikel induzierten Sensorsignals könnten dann Rückschlüsse auf die Mechanik der Analyten gezogen werden, die sonst nur im Rahmen von Experimenten mit optischen Fallen oder Kraftaufbringung mittels AFM zugänglich sind. Prinzipiell beinhaltet die elektrisch basierte Messung des Partikels immer eine Information zu dessen Position bezüglich des ortsfesten Sensors. Dies könnte künftig dazu eingesetzt werden, aus zeitabhängiger Messung der freien Fluktuation eines Partikels in Sensornähe Rückschlüsse auf die direkte Partikelumgebung zu ziehen. Eine rein elektrische Messung stellt dabei eine im Vergleich zur in Kapitel 3 erfolgreich demonstrierten, optisch basierten

Zusammenfassung

Messung der Mikrorheologie der Partikelumgebung einfach realisierbare, vollintegrierte Lösung auf Lab-On-Chip Ebene dar.

6 Literaturverzeichnis

- [1] Ito A., Shinkai M., Honda H., Kobayashi T., Medical application of functionalized magnetic nanoparticles, *Journal of Bioscience and Bioengineering* 100:1-11, 2005.
- [2] Mahmoudi M., Simchi A., Milani A., Stroeve P., Cell toxicity of superparamagnetic iron oxide nanoparticles, *Journal of colloid and interface science* 336:510-518, 2009.
- [3] Singh N., Jenkins G. J. S., Asadi R., Doak S. H., Potential toxicity of superparamagnetic iron oxide nanoparticles (SPION), *Nano Reviews* 1:10.3402/nano.v3401i3400.5358, 2010.
- [4] Qiao R., Jia Q., Hüwel S., Xia R., Liu T., Gao F., Galla H.-J., Gao M., Receptor-Mediated Delivery of Magnetic Nanoparticles across the Blood–Brain Barrier, *ACS Nano* 6:3304-3310, 2012.
- [5] Chouly C., Pouliquen D., Lucet I., Jeune J., Jallet P., Development of superparamagnetic nanoparticles for MRI: effect of particle size, charge and surface nature on biodistribution, *Journal of microencapsulation* 13:245-255, 1996.
- [6] Häfeli U. O., Riffle J. S., Harris-Shekhawat L., Carmichael-Baranauskas A., Mark F., Dailey J. P., Bardenstein D., Cell Uptake and in Vitro Toxicity of Magnetic Nanoparticles Suitable for Drug Delivery, *Molecular Pharmaceutics* 6:1417-1428, 2009.
- [7] Pankhurst Q. A., Connolly J., Jones S., Dobson J., Applications of magnetic nanoparticles in biomedicine, *Journal of physics D: Applied physics* 36:R167, 2003.
- [8] Torchilin V., Papisov M., Orekhova N., Belyaev A., Petrov A., Ragimov S., Magnetically driven thrombolytic preparation containing immobilized streptokinase-targeted transport and action, *Pathophysiology of Haemostasis and Thrombosis* 18:113-116, 1988.
- [9] Bauer W., Schulden K., Theory of contrast agents in magnetic resonance imaging: coupling of spin relaxation and transport, *Magnetic resonance in medicine* 26:16-39, 1992.
- [10] Na H. B., Song I. C., Hyeon T., Inorganic nanoparticles for MRI contrast agents, *Advanced Materials* 21:2133-2148, 2009.
- [11] Laurent S., Dutz S., Häfeli U. O., Mahmoudi M., Magnetic fluid hyperthermia: Focus on superparamagnetic iron oxide nanoparticles, *Advances in Colloid and Interface Science* 166:8-23, 2011.
- [12] Sun C., Lee J. S., Zhang M., Magnetic nanoparticles in MR imaging and drug delivery, *Advanced drug delivery reviews* 60:1252-1265, 2008.
- [13] Burtea C., Laurent S., Mahieu I., Larbanoix L., Roch A., Port M., Rousseaux O., Ballet S., Murariu O., Toubreau G., In vitro biomedical applications of functionalized iron oxide nanoparticles, including those not related to magnetic properties, *Contrast media & molecular imaging* 6:236-250, 2011.
- [14] Safarik I., Safarikova M., Magnetic techniques for the isolation and purification of proteins and peptides, *BioMagnetic Research and Technology* 2:7, 2004.
- [15] Berensmeier S., Magnetic particles for the separation and purification of nucleic acids, *Appl Microbiol Biotechnol* 73:495-504, 2006.
- [16] Hayes M. A., Polson N. A., Phayre A. N., Garcia A. A., Flow-based microimmunoassay, *Analytical chemistry* 73:5896-5902, 2001.

- [17] Ahmadv T. O., Joshi P., Zhang J., Nahan K., Caruso J. A., Zhang P., Paramagnetic relaxation based biosensor for selective dopamine detection, *Chemical Communications* 51:11425-11428, 2015.
- [18] Haeberle S., Zengerle R., Microfluidic platforms for lab-on-a-chip applications, *Lab on a Chip* 7:1094-1110, 2007.
- [19] Gijs M. A., Lacharme F. d. r., Lehmann U., Microfluidic applications of magnetic particles for biological analysis and catalysis, *Chemical reviews* 110:1518-1563, 2009.
- [20] Liu C., Stakenborg T., Peeters S., Lagae L., Cell manipulation with magnetic particles toward microfluidic cytometry, *Journal of Applied Physics* 105:102014, 2009.
- [21] Gijs M. M., Magnetic bead handling on-chip: new opportunities for analytical applications, *Microfluidics and Nanofluidics* 1:22-40, 2004.
- [22] Ejsing L., Hansen M., Menon A., Planar Hall effect magnetic sensor for microbead detection, *Extended Abstract, Eurosensors* 2003:1095, 2003.
- [23] Kurlyandskaya G., Levit V., Magnetic Dynabeads® detection by sensitive element based on giant magnetoimpedance, *Biosensors and Bioelectronics* 20:1611-1616, 2005.
- [24] Li G., Joshi V., White R. L., Wang S. X., Kemp J. T., Webb C., Davis R. W., Sun S., Detection of single micron-sized magnetic bead and magnetic nanoparticles using spin valve sensors for biological applications, *Journal of applied physics* 93:7557-7559, 2003.
- [25] Albon C., Weddemann A., Auge A., Rott K., Hütten A., Tunneling magnetoresistance sensors for high resolute particle detection, *Applied Physics Letters* 95:023101, 2009.
- [26] Edelstein R. L., Tamanaha C. R., Sheehan P. E., Miller M. M., Baselt D. R., Whitman L. J., Colton R. J., The BARC biosensor applied to the detection of biological warfare agents, *Biosensors and Bioelectronics* 14:805-813, 2000.
- [27] Schotter J., Kamp P. B., Becker A., Pühler A., Reiss G., Brückl H., Comparison of a prototype magnetoresistive biosensor to standard fluorescent DNA detection, *Biosensors and Bioelectronics* 19:1149-1156, 2004.
- [28] Eickenberg B., Meyer J., Helmich L., Kappe D., Auge A., Weddemann A., Wittbracht F., Hütten A., Lab-on-a-Chip Magneto-Immunoassays: How to Ensure Contact between Superparamagnetic Beads and the Sensor Surface, *Biosensors* 3:327-340, 2013.
- [29] Brzeska M., Panhorst M., Kamp P. B., Schotter J., Reiss G., Pühler A., Becker A., Brückl H., Detection and manipulation of biomolecules by magnetic carriers, *Journal of Biotechnology* 112:25-33, 2004.
- [30] Riedmüller B., Huber F., Herr U., Towards sub-200 nm nano-structuring of linear giant magneto-resistive spin valves by a direct focused ion beam milling process, *Journal of Applied Physics* 115:064307, 2014.
- [31] Riedmüller B., Sarma B., Hibst N., Herr U., Positioning of Superparamagnetic Particles by Superimposing Homogeneous Fields and Field Gradients, *IEEE Transactions on Magnetism* 50:1-4, 2014.
- [32] Riedmüller B., Ostermaier F., Herr U., Trapping of Superparamagnetic Particles With a Single Current-Conducting Micro-Ring, *IEEE Transactions on Magnetism* 53:1-6, 2017.
- [33] Ball P., Meet the spin doctors [hellip], *Nature* 404:918-920, 2000.

Literaturverzeichnis

- [34] Endo Y., Fan P., Yamaguchi M., Effect of stripe height on the critical current density of spin-torque noise in a tunneling magnetoresistive read head with a low resistance area product below $1.0 \Omega \mu\text{m}^2$, *Journal of Applied Physics* 117:17A922, 2015.
- [35] Li G., Sun S., Wilson R. J., White R. L., Pourmand N., Wang S. X., Spin valve sensors for ultrasensitive detection of superparamagnetic nanoparticles for biological applications, *Sensors and Actuators A: Physical* 126:98-106, 2006.
- [36] Ito T., Okazaki S., Pushing the limits of lithography, *Nature* 406:1027-1031, 2000.
- [37] Bruckl H., Panhorst M., Schotter J., Kamp P. B., Becker A., Magnetic particles as markers and carriers of biomolecules, *IEE Proceedings - Nanobiotechnology* 152:41-46, 2005.
- [38] Wood D., Ni K., Schmidt D., Cleland A., Submicron giant magnetoresistive sensors for biological applications, *Sensors and Actuators A: Physical* 120:1-6, 2005.
- [39] Okazaki S., High resolution optical lithography or high throughput electron beam lithography: The technical struggle from the micro to the nano-fabrication evolution, *Microelectronic Engineering* 133:23-35, 2015.
- [40] Saitou N., Ozasa S., Komoda T., Tatsuno G., Uno Y., Variably shaped electron beam lithography system, EB55: II Electron optics, *Journal of Vacuum Science & Technology* 19:1087-1093, 1981.
- [41] Wieland M. J., de Boer G., ten Berge G. F., van Kervinck M., Jager R., Peijster J. J. M., Slot E., Steenbrink S. W. H. K., Teepe T. F., Kampherbeek B. J. MAPPER: high-throughput maskless lithography. 2010. p. 76370F-76370F-76310.
- [42] Katine J., Ho M. K., Ju Y. S., Rettner C., Patterning damage in narrow trackwidth spin-valve sensors, *Applied physics letters* 83:401-403, 2003.
- [43] Kubena R. L., Ward J. W., Stratton F. P., Joyce R. J., Atkinson G. M., A low magnification focused ion beam system with 8 nm spot size, *Journal of Vacuum Science & Technology B* 9:3079-3083, 1991.
- [44] Mayer J., Giannuzzi L. A., Kamino T., Michael J., TEM sample preparation and FIB-induced damage, *Mrs Bulletin* 32:400-407, 2007.
- [45] Persson A., Thornell G., Nguyen H., Rapid prototyping of magnetic tunnel junctions with focused ion beam processes, *Journal of Micromechanics and Microengineering* 20:055039, 2010.
- [46] Riedmüller B., Herr U., Nano-Patterning of GMR Spin Valves by FIB Technique, *IEEE Transactions on Magnetics* 48:3662-3665, 2012.
- [47] Binasch G., Grünberg P., Saurenbach F., Zinn W., Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange, *Physical Review B* 39:4828-4830, 1989.
- [48] Baibich M. N., Broto J. M., Fert A., Van Dau F. N., Petroff F., Etienne P., Creuzet G., Friederich A., Chazelas J., Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices, *Physical Review Letters* 61:2472-2475, 1988.
- [49] Fert A., Campbell I. A., Two-Current Conduction in Nickel, *Physical Review Letters* 21:1190-1192, 1968.
- [50] Meiklejohn W. H., Bean C. P., New Magnetic Anisotropy, *Physical Review* 102:1413-1414, 1956.

- [51] Nogués J., Schuller I. K., Exchange bias, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 192:203-232, 1999.
- [52] Stoner E. C., Wohlfarth E. P., A Mechanism of Magnetic Hysteresis in Heterogeneous Alloys, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series A, Mathematical and Physical Sciences* 240:599-642, 1948.
- [53] Lee C.-L., Bain J. A., Chu S., McHenry M. E., Separation of contributions to spin valve interlayer exchange coupling field by temperature dependent coupling field measurements, *Journal of Applied Physics* 91:7113-7115, 2002.
- [54] Schrag B., Anguelouch A., Ingvarsson S., Xiao G., Lu Y., Trouilloud P., Gupta A., Wanner R., Gallagher W., Rice P., Néel “orange-peel” coupling in magnetic tunneling junction devices, *Applied Physics Letters* 77:2373-2375, 2000.
- [55] Leal J. L., Kryder M. H., Interlayer coupling in spin valve structures, *Magnetics, IEEE Transactions on* 32:4642-4644, 1996.
- [56] Parkin S. S. P., Bhadra R., Roche K. P., Oscillatory magnetic exchange coupling through thin copper layers, *Physical Review Letters* 66:2152-2155, 1991.
- [57] Blamire M. G., Aziz A., Robinson J. W. A., Nanopillar junctions, *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 369:3198-3213, 2011.
- [58] Cacciola M., Osaci M., Studies about the attempt frequency influence on the effective relaxation time in a system of nanoparticles for magnetic hyperthermia, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 85:012021, 2015.
- [59] Ayala-Valenzuela O. E., Matutes-Aquino J. A., Galindo J. T. E., Botez C. E., ac susceptibility study of a magnetite magnetic fluid, *Journal of Applied Physics* 105:07B524, 2009.
- [60] Paulus H., Modifikation von Halbmetail und Halogenid–Dünnschichtsystemen durch Hochenergie–Ionenbestrahlung, *Doktorarbeit*, Universität Stuttgart, 2007
- [61] Ziegler J. F., Ziegler M., Biersack J., SRIM–The stopping and range of ions in matter (2010), *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 268:1818-1823, 2010.
- [62] Kempshall B. W., Schwarz S. M., Prenitzer B. I., Giannuzzi L. A., Irwin R. B., Stevie F. A., Ion channeling effects on the focused ion beam milling of Cu, *Journal of Vacuum Science & Technology B* 19:749-754, 2001.
- [63] Parkin S. S. P., Origin of enhanced magnetoresistance of magnetic multilayers: Spin-dependent scattering from magnetic interface states, *Physical Review Letters* 71:1641-1644, 1993.
- [64] Dieny B., Speriosu V. S., Metin S., Parkin S. S. P., Gurney B. A., Baumgart P., Wilhoit D. R., Magnetotransport properties of magnetically soft spin-valve structures (invited), *Journal of Applied Physics* 69:4774-4779, 1991.
- [65] Hempstead R. D., Krongelb S., Nepela D. A., Thompson D. A., Valstyn E. P. Antiferromagnetic-ferromagnetic exchange bias films. Google Patents; 1978.
- [66] Mauri D., Kay E., Scholl D., Howard J. K., Novel method for determining the anisotropy constant of MnFe in a NiFe/MnFe sandwich, *Journal of applied physics* 62:2929-2932, 1987.

- [67] Ming X., Tao Y., Guangming L., Zhengqi L., Cuixiu L., Ning Y., Zhenhong M., Wuyan L., Zhonghua W., Jun W., Study of Ni 80 Fe 20 /Fe 50 Mn 50 superlattice microstructures by transmission electron microscopy and x-ray diffraction, *Journal of Physics: Condensed Matter* 13:2891, 2001.
- [68] Ritchie L., Liu X., Ingvarsson S., Xiao G., Du J., Xiao J. Q., Magnetic exchange bias enhancement through seed layer variation in FeMn/NiFe layered structures, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 247:187-190, 2002.
- [69] Jungblut R., Coehoorn R., Johnson M. T., aan de Stegge J., Reinders A., Orientational dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown Ni₈₀Fe₂₀/Fe₅₀Mn₅₀ bilayers (invited), *Journal of Applied Physics* 75:6659-6664, 1994.
- [70] Matthes P., Albrecht M., Corrosion resistance of pseudo-spin-valve systems: Pd vs. Ta capping layers, *AIP Conference Proceedings* 1763:020002, 2016.
- [71] Jo S., Choi Y., Ryu S., Magnetic anisotropy of sputtered FeN films due to anisotropic columnar growth of grains, *Magnetics, IEEE Transactions on* 33:3634-3636, 1997.
- [72] Teng E., Ballard N., Anisotropy induced signal waveform modulation of DC magnetron sputtered thin film disks, *Magnetics, IEEE Transactions on* 22:579-581, 1986.
- [73] Fassbender J., Ravelosona D., Samson Y., Tailoring magnetism by light-ion irradiation, *Journal of Physics D: Applied Physics* 37:R179, 2004.
- [74] Guo Z. B., You D., Qiu J. J., Li K. B., Wu Y. H., Influence of Ga⁺ ion irradiation on magnetoresistance and exchange bias of IrMn/CoFe/Cu/CoFe/NiFe spin valve, *Solid State Communications* 120:459-462, 2001.
- [75] Persson A., Ericson F., Thornell G., Nguyen H., Etch-stop technique for patterning of tunnel junctions for a magnetic field sensor, *Journal of Micromechanics and Microengineering* 21:045014, 2011.
- [76] Fassbender J., Poppe S., Mewes T., Juraszek J., Hillebrands B., Barholz K.-U., Mattheis R., Engel D., Jung M., Schmoranzler H., Ehresmann A., Ion irradiation of exchange bias systems for magnetic sensor applications, *Applied Physics A* 77:51-56.
- [77] Chappert C., Bernas H., Ferré J., Kottler V., Jamet J.-P., Chen Y., Cambril E., Devolder T., Rousseaux F., Mathet V., Planar patterned magnetic media obtained by ion irradiation, *Science* 280:1919-1922, 1998.
- [78] Weller D., Baglin J. E. E., Kellock A. J., Hannibal K. A., Toney M. F., Kusinski G., Lang S., Folks L., Best M. E., Terris B. D., Ion induced magnetization reorientation in Co/Pt multilayers for patterned media, *Journal of Applied Physics* 87:5768-5770, 2000.
- [79] Zeper W. B., Greidanus F. J. A. M., Carcia P. F., Fincher C. R., Perpendicular magnetic anisotropy and magneto-optical Kerr effect of vapor-deposited Co/Pt-layered structures, *Journal of Applied Physics* 65:4971-4975, 1989.
- [80] Mougín A., Mewes T., Jung M., Engel D., Ehresmann A., Schmoranzler H., Fassbender J., Hillebrands B., Local manipulation and reversal of the exchange bias field by ion irradiation in FeNi/FeMn double layers, *Physical Review B* 63:060409, 2001.
- [81] Mougín A., Poppe S., Fassbender J., Hillebrands B., Faini G., Ebels U., Jung M., Engel D., Ehresmann A., Schmoranzler H., Magnetic micropatterning of FeNi/FeMn exchange bias bilayers by ion irradiation, *Journal of Applied Physics* 89:6606-6608, 2001.

- [82] Kim K. H., Akase Z., Suzuki T., Shindo D., Charging effects on SEM/SIM contrast of metal/insulator system in various metallic coating conditions, *Materials transactions* 51:1080-1083, 2010.
- [83] Kerr E., van Dijken S., Langford R. M., Coey J. M. D., Effects of Ga⁺ ion implantation on the magnetoresistive properties of spin valves, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 290–291, Part 1:124-126, 2005.
- [84] Willekens M. M. H., Rijks T. G. S. M., Swagten H. J. M., de Jonge W. J. M., Interface intermixing and magnetoresistance in Co/Cu spin valves with uncoupled Co layers, *Journal of Applied Physics* 78:7202-7209, 1995.
- [85] Blomeier S., McGrouther D., O'Neill R., McVitie S., Chapman J. N., Weber M. C., Hillebrands B., Fassbender J., Modification of the magnetic properties of exchange coupled NiFe/FeMn films by Ga⁺ ion irradiation, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 290–291, Part 1:731-734, 2005.
- [86] Mewes T., Lopusnik R., Fassbender J., Hillebrands B., Jung M., Engel D., Ehresmann A., Schmoranzler H., Suppression of exchange bias by ion irradiation, *Applied Physics Letters* 76:1057-1059, 2000.
- [87] Miltényi P., Gierlings M., Keller J., Beschoten B., Güntherodt G., Nowak U., Usadel K. D., Diluted Antiferromagnets in Exchange Bias: Proof of the Domain State Model, *Physical Review Letters* 84:4224-4227, 2000.
- [88] Chater R. J., McPhail D. S., Teaching SIMS fundamentals using the FIB ion microscope, *Applied Surface Science* 255:1519-1522, 2008.
- [89] Hofsäss H., Zhang K., Mutzke A., Simulation of ion beam sputtering with SDTrimSP, TRIDYN and SRIM, *Applied Surface Science* 310:134-141, 2014.
- [90] Orloff J., Swanson L., Utlaut M., High Resolution Focused Ion Beams: FIB and its Applications: Fib and Its Applications: The Physics of Liquid Metal Ion Sources and Ion Optics and Their Application to Focused Ion Beam Technology: Springer Science & Business Media; 2003.
- [91] Ward J., Kubena R., Utlaut M., Transverse thermal velocity broadening of focused beams from liquid metal ion sources, *Journal of Vacuum Science & Technology B* 6:2090-2094, 1988.
- [92] Hillmann M., 3-dimensionale Nanostrukturierung mittels fokussierter Ionenstrahlolithographie, PhD thesis, Ruhr-Universität Bochum, 2001
- [93] Pouchou J.-L., X-Ray Microanalysis of Thin Surface Films and Coatings, *Microchimica Acta* 138:133-152, 2002.
- [94] Lorch S., Herstellung, Charakterisierung und Anwendungen von Ionenstrahlgesputterten optischen Schichten, *Doktorarbeit*, Universität Ulm, 2006
- [95] Kubota H., Reiss G., Brückl H., Schepper W., Wecker J., Gieres G., Magnetoresistance and dipole shift of ultrasmall magnetic tunnel junctions characterized by conducting atomic force microscopy, *Japanese journal of applied physics* 41:L180, 2002.
- [96] Kubota H., Ando Y., Miyazaki T., Reiss G., Brückl H., Schepper W., Wecker J., Gieres G., Size dependence of switching field of magnetic tunnel junctions down to 50 nm scale, *Journal of Applied Physics* 94:2028-2032, 2003.
- [97] Engel-Herbert R., Hesjedal T., Calculation of the magnetic stray field of a uniaxial magnetic domain, *Journal of Applied Physics* 97:074504, 2005.

- [98] Aharoni A., Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms, *Journal of Applied Physics* 83:3432-3434, 1998.
- [99] Hertel R., Thickness dependence of magnetization structures in thin Permalloy rectangles: Dedicated to Professor Dr. Helmut Kronmüller on the occasion of his 70th birthday, *Zeitschrift für Metallkunde* 93:957-962, 2002.
- [100] Veloso A., Freitas P. P., Spin valve sensors with synthetic free and pinned layers, *Journal of Applied Physics* 87:5744-5746, 2000.
- [101] Coelho P., Leitao D. C., Antunes J., Cardoso S., Freitas P. P., Spin Valve Devices With Synthetic-Ferrimagnet Free-Layer Displaying Enhanced Sensitivity for Nanometric Sensors, *Magnetics, IEEE Transactions on* 50:1-4, 2014.
- [102] Ashkin A., Optical trapping and manipulation of neutral particles using lasers, *Proceedings of the National Academy of Sciences* 94:4853-4860, 1997.
- [103] Neuman K. C., Nagy A., Single-molecule force spectroscopy: optical tweezers, magnetic tweezers and atomic force microscopy, *Nature methods* 5:491-505, 2008.
- [104] Rubinsztein-Dunlop H., Nieminen T., Friesse M., Heckenberg N., Optical trapping of absorbing particles, *Advances in quantum chemistry* 30:469-492, 1998.
- [105] Helseth L., Fischer T., Johansen T., Paramagnetic beads surfing on domain walls, *Physical Review E* 67:042401, 2003.
- [106] Chu M., Shao Y., Peng J., Dai X., Li H., Wu Q., Shi D., Near-infrared laser light mediated cancer therapy by photothermal effect of Fe₃O₄ magnetic nanoparticles, *Biomaterials* 34:4078-4088, 2013.
- [107] Kroner A., Kardosh I., Rinaldi F., Michalzik R., Towards VCSEL-based integrated optical traps for biomedical applications, *Electronics Letters* 42:93-94, 2006.
- [108] Rief M., Gautel M., Oesterhelt F., Fernandez J. M., Gaub H. E., Reversible Unfolding of Individual Titin Immunoglobulin Domains by AFM, *Science* 276:1109-1112, 1997.
- [109] Furdulj V. I., Harrison D. J., Immunomagnetic T cell capture from blood for PCR analysis using microfluidic systems, *Lab on a Chip* 4:614-618, 2004.
- [110] Donolato M., Vavassori P., Gobbi M., Deryabina M., Hansen M. F., Metlushko V., Ilic B., Cantoni M., Petti D., Brivio S., On-Chip Manipulation of Protein-Coated Magnetic Beads via Domain-Wall Conduits, *Advanced materials* 22:2706-2710, 2010.
- [111] Gooneratne C. P., Giouroudi I., Liang C., Kosel J., A giant magnetoresistance ring-sensor based microsystem for magnetic bead manipulation and detection, *Journal of Applied Physics* 109:07E517, 2011.
- [112] Helseth L. E., Fischer T. M., Johansen T. H., Domain Wall Tip for Manipulation of Magnetic Particles, *Physical Review Letters* 91:208302, 2003.
- [113] Deng T., Prentiss M., Whitesides G. M., Fabrication of magnetic microfiltration systems using soft lithography, *Applied Physics Letters* 80:461-463, 2002.
- [114] Rida A., Gijss M. A. M., Manipulation of Self-Assembled Structures of Magnetic Beads for Microfluidic Mixing and Assaying, *Analytical Chemistry* 76:6239-6246, 2004.
- [115] Junho J., Shen J., Grodzinski P., Micropumps based on alternating high-gradient magnetic fields, *Magnetics, IEEE Transactions on* 36:2012-2014, 2000.
- [116] Gosse C., Croquette V., Magnetic Tweezers: Micromanipulation and Force Measurement at the Molecular Level, *Biophysical Journal* 82:3314-3329, 2002.

Literaturverzeichnis

- [117] Sakar M. S., Steager E. B., Kim D. H., Kim M. J., Pappas G. J., Kumar V., Single cell manipulation using ferromagnetic composite microtransporters, *Applied Physics Letters* 96:043705, 2010.
- [118] Huang C.-Y., Lai M.-F., Ger T.-R., Wei Z.-H., Cell culture arrays using micron-sized ferromagnetic ring-shaped thin films, *Journal of Applied Physics* 117:17B309, 2015.
- [119] Bu M., Christensen T. B., Smistrup K., Wolff A., Hansen M. F., Characterization of a microfluidic magnetic bead separator for high-throughput applications, *Sensors and Actuators A: Physical* 145–146:430-436, 2008.
- [120] Li F., Giouroudi I., Kosel J., A biodetection method using magnetic particles and micro traps, *Journal of Applied Physics* 111:07B328, 2012.
- [121] Basore J. R., Baker L. A., Applications of microelectromagnetic traps, *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 403:2077-2088, 2012.
- [122] Lee C. S., Lee H., Westervelt R. M., Microelectromagnets for the control of magnetic nanoparticles, *Applied Physics Letters* 79:3308-3310, 2001.
- [123] Basore J. R., Lavrik N. V., Baker L. A., Electromagnetic Micropores: Fabrication and Operation, *Langmuir* 26:19239-19244, 2010.
- [124] Rida A., Fernandez V., Gijs M. A. M., Long-range transport of magnetic microbeads using simple planar coils placed in a uniform magnetostatic field, *Applied Physics Letters* 83:2396-2398, 2003.
- [125] Smistrup K., Bruus H., Hansen M. F., Towards a programmable magnetic bead microarray in a microfluidic channel, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 311:409-415, 2007.
- [126] Deng T., Whitesides G. M., Radhakrishnan M., Zabow G., Prentiss M., Manipulation of magnetic microbeads in suspension using micromagnetic systems fabricated with soft lithography, *Applied Physics Letters* 78:1775-1777, 2001.
- [127] Basore J. R., Lavrik N. V., Baker L. A., Magnetically gated microelectrodes, *Chemical Communications* 48:1009-1011, 2012.
- [128] Beyzavi A., Nguyen N.-T., One-dimensional actuation of a ferrofluid droplet by planar microcoils, *Journal of Physics D: Applied Physics* 42:015004, 2008.
- [129] Ostermaier F., Force and Viscosity measurement for Lab-on-Chip Systems using magnetic Nanoparticles, Masterarbeit, Universität Ulm, 2017
- [130] Hultman T., Stahl S., Homes E., Uhlen M., Direct solid phase sequencing of genomic and plasmid DNA using magnetic beads as solid support, *Nucleic Acids Research* 17:4937-4946, 1989.
- [131] Wirix-Speetjens R., Fyen W., Xu K., De Boeck J., Borghs G., A force study of on-chip magnetic particle transport based on tapered conductors, *Magnetics, IEEE Transactions on* 41:4128-4133, 2005.
- [132] Kar G., Chander S., Mika T., The potential energy of interaction between dissimilar electrical double layers, *Journal of Colloid and Interface Science* 44:347-355, 1973.
- [133] Gregory J., Approximate expressions for retarded van der Waals interaction, *Journal of Colloid and Interface Science* 83:138-145, 1981.

Literaturverzeichnis

- [134] Janssen X. J. A., van Reenen A., van Ijzendoorn L. J., de Jong A. M., Prins M. W. J., The rotating particles probe: A new technique to measure interactions between particles and a substrate, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 373:88-93, 2011.
- [135] Qian H., Sheetz M. P., Elson E. L., Single particle tracking. Analysis of diffusion and flow in two-dimensional systems, *Biophysical Journal* 60:910-921, 1991.
- [136] Huang R., Chavez I., Taute K. M., Lukic B., Jeney S., Raizen M. G., Florin E.-L., Direct observation of the full transition from ballistic to diffusive Brownian motion in a liquid, *Nat Phys* 7:576-580, 2011.
- [137] Franosch T., Grimm M., Belushkin M., Mor F. M., Foffi G., Forro L., Jeney S., Resonances arising from hydrodynamic memory in Brownian motion, *Nature* 478:85-88, 2011.
- [138] Lukić B., Jeney S., Tischer C., Kulik A. J., Forró L., Florin E. L., Direct Observation of Nondiffusive Motion of a Brownian Particle, *Physical Review Letters* 95:160601, 2005.
- [139] Padgett M. J., Molloy J., McGloin D., Optical Tweezers: methods and applications: CRC Press; 2010.
- [140] Fonnum G., Johansson C., Molteberg A., Mørup S., Aksnes E., Characterisation of Dynabeads® by magnetization measurements and Mössbauer spectroscopy, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 293:41-47, 2005.
- [141] Chantrell R. W., Walmsley N., Gore J., Maylin M., Calculations of the susceptibility of interacting superparamagnetic particles, *Physical Review B* 63:024410, 2000.
- [142] O'handley R. C., Modern magnetic materials: principles and applications: Wiley; 2000.
- [143] Lim B., Reddy V., Hu X., Kim K., Jadhav M., Abedini-Nassab R., Noh Y.-W., Lim Y. T., Yellen B. B., Kim C., Magnetophoretic circuits for digital control of single particles and cells, *Nat Commun* 5, 2014.
- [144] González M. n., Argaraña C. E., Fidelio G. D., Extremely high thermal stability of streptavidin and avidin upon biotin binding, *Biomolecular Engineering* 16:67-72, 1999.
- [145] Rohrbach A., Stiffness of Optical Traps: Quantitative Agreement between Experiment and Electromagnetic Theory, *Physical Review Letters* 95:168102, 2005.
- [146] Ribezzi-Crivellari M., Ritort F., Force Spectroscopy with Dual-Trap Optical Tweezers: Molecular Stiffness Measurements and Coupled Fluctuations Analysis, *Biophysical Journal* 103:1919-1928, 2012.
- [147] Ambari A., Gauthier-Manuel B., Guyon E., Wall effects on a sphere translating at constant velocity, *Journal of Fluid Mechanics* 149:235-253, 1984.
- [148] Ambari A., Manuel B. G., Guyon E., Effect of a plane wall on a sphere moving parallel to it, *Journal de Physique Lettres* 44:143-146, 1983.
- [149] Faxén H., Einwirkung der Gefäßwände auf den Widerstand gegen die Bewegung einer kleinen Kugel in einer zähen Flüssigkeit, *Doktorarbeit*, Universität Uppsala, 1921
- [150] Rudhardt D., Bechinger C., Leiderer P., Direct Measurement of Depletion Potentials in Mixtures of Colloids and Nonionic Polymers, *Physical Review Letters* 81:1330-1333, 1998.
- [151] Korwin-Edson M. L., Clare A. G., Hall M. M., Goldstein A., Biospecificity of glass surfaces: streptavidin attachment to silica, *Journal of Non-Crystalline Solids* 349:260-266, 2004.

- [152] de Lint W. S., Zivkovic T., Benes N. E., Bouwmeester H. J., Blank D. H., Electrolyte retention of supported bi-layered nanofiltration membranes, *Journal of membrane science* 277:18-27, 2006.
- [153] Kestin J., Sokolov M., Wakeham W. A., Viscosity of liquid water in the range – 8 C to 150 C, *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 7:941-948, 1978.
- [154] McCluskey P. J., Vlassak J. J., Nano-thermal transport array: An instrument for combinatorial measurements of heat transfer in nanoscale films, *Thin Solid Films* 518:7093-7106, 2010.
- [155] Sinha B., Anandakumar S., Oh S., Kim C., Micro-magnetometry for susceptibility measurement of superparamagnetic single bead, *Sensors and Actuators A: Physical* 182:34-40, 2012.
- [156] Helseth L. E., Paramagnetic particles in an optical trap, *Optics Communications* 276:277-282, 2007.
- [157] Miller M. M., Sheehan P. E., Edelstein R. L., Tamanaha C. R., Zhong L., Bounnak S., Whitman L. J., Colton R. J., A DNA array sensor utilizing magnetic microbeads and magnetoelectronic detection, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 225:138-144, 2001.
- [158] Lee H., Purdon A. M., Westervelt R. M., Manipulation of biological cells using a microelectromagnet matrix, *Applied Physics Letters* 85:1063-1065, 2004.
- [159] Hall D. A., Gaster R. S., Lin T., Osterfeld S. J., Han S., Murmann B., Wang S. X., GMR Biosensor Arrays: A System Perspective, *Biosensors & bioelectronics* 25:2051-2057, 2010.
- [160] Faraudo J., Andreu J. S., Camacho J., Understanding diluted dispersions of superparamagnetic particles under strong magnetic fields: a review of concepts, theory and simulations, *Soft Matter* 9:6654-6664, 2013.
- [161] Baselt D. R., Lee G. U., Natesan M., Metzger S. W., Sheehan P. E., Colton R. J., A biosensor based on magnetoresistance technology¹, *Biosensors and Bioelectronics* 13:731-739, 1998.
- [162] Besse P.-A., Boero G., Demierre M., Pott V., Popovic R., Detection of a single magnetic microbead using a miniaturized silicon Hall sensor, *Applied Physics Letters* 80:4199-4201, 2002.
- [163] Tondra M., Porter M., Lipert R. J., Model for detection of immobilized superparamagnetic nanosphere assay labels using giant magnetoresistive sensors, *Journal of Vacuum Science & Technology A* 18:1125-1129, 2000.
- [164] Weddemann A., Auge A., Albon C., Wittbracht F., Hütten A., Toward the magnetoresistive detection of single magnetic nanoparticles: New strategies for particle detection by adjustment of sensor shape, *Journal of Applied Physics* 107:104314, 2010.
- [165] Janssen X., Van Ijzendoorn L., Prins M., On-chip manipulation and detection of magnetic particles for functional biosensors, *Biosensors and Bioelectronics* 23:833-838, 2008.
- [166] de Boer B. M., Kahlman J. A. H. M., Jansen T. P. G. H., Duric H., Veen J., An integrated and sensitive detection platform for magneto-resistive biosensors, *Biosensors and Bioelectronics* 22:2366-2370, 2007.

- [167] Hibst N., Nachweis magnetischer Nanopartikel in Flüssigkeiten mittels mikrostrukturierter GMR-Sensoren, Universität Ulm, Ulm, 2012
- [168] Fermon C., Pannetier-Lecoeur M., Biziere N., Cousin B., Optimised GMR sensors for low and high frequencies applications, *Sensors and Actuators A: Physical* 129:203-206, 2006.
- [169] Chiang T. W., Chang L. J., Yu C., Huang S. Y., Chen D. C., Yao Y. D., Lee S. F., Demonstration of edge roughness effect on the magnetization reversal of spin valve submicron wires, *Applied Physics Letters* 97:022109, 2010.
- [170] Jedlicska I., Weiss R., Weigel R., Linearizing the Output Characteristic of GMR Current Sensors Through Hysteresis Modeling, *Industrial Electronics, IEEE Transactions on* 57:1728-1734, 2010.
- [171] Liu X., Ren C., Xiao G., Magnetic tunnel junction field sensors with hard-axis bias field, *Journal of Applied Physics* 92:4722-4725, 2002.
- [172] Henriksen A. D., Rozlosnik N., Hansen M. F., Geometrical optimization of microstripe arrays for microbead magnetophoresis, *Biomechanics* 9:054123, 2015.
- [173] Rife J. C., Miller M. M., Sheehan P. E., Tamanaha C. R., Tondra M., Whitman L. J., Design and performance of GMR sensors for the detection of magnetic microbeads in biosensors, *Sensors and Actuators A: Physical* 107:209-218, 2003.
- [174] Wang W., Wang Y., Tu L., Feng Y., Klein T., Wang J.-P., Magnetoresistive performance and comparison of supermagnetic nanoparticles on giant magnetoresistive sensor-based detection system, *Scientific reports* 4, 2014.
- [175] Mirowski E., Moreland J., Russek S., Donahue M., Hsieh K., Manipulation of magnetic particles by patterned arrays of magnetic spin-valve traps, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 311:401-404, 2007.
- [176] García-Otero J., Porto M., Rivas J., Bunde A., Influence of Dipolar Interaction on Magnetic Properties of Ultrafine Ferromagnetic Particles, *Physical Review Letters* 84:167-170, 2000.
- [177] Guanxiong L., Wang S. X., Analytical and micromagnetic modeling for detection of a single magnetic microbead or nanobead by spin valve sensors, *IEEE Transactions on Magnetics* 39:3313-3315, 2003.
- [178] Rife J., Miller M., Sheehan P., Tamanaha C., Tondra M., Whitman L., Design and performance of GMR sensors for the detection of magnetic microbeads in biosensors, *Sensors and Actuators A: Physical* 107:209-218, 2003.
- [179] Vieira G., Henighan T., Chen A., Hauser A. J., Yang F. Y., Chalmers J. J., Sooryakumar R., Magnetic Wire Traps and Programmable Manipulation of Biological Cells, *Physical Review Letters* 103:128101, 2009.

7 Anhang

AI Kalibration des FIB Abtrags am GMR Sensorstapel

Abbildung 79 zeigt die experimentelle Kalibration des Abtrags des Sensorstapels durch das FIB Mikroskop in Abhängigkeit der Ionendosis D . Dazu wurde ein mikro-strukturierter Sensor im Bereich der aktiven Sensorfläche gemäß Abbildung 79a) mit unterschiedlichen Dosen $D > 5 \cdot 10^{16} / \text{cm}^2$ bestrahlt, die jeweils auf einer Fläche von $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ eingebracht wurden. Die jeweilige Dosis wurde dabei über die Eintragszeit $t = 400 \text{ ms}$ (1) bis $t = 3.2 \text{ s}$ (6) variiert. Eine AFM (Atomic Force Microscope) Messung desselben Bereichs ist in Abbildung 79b) und Abbildung 79c) gezeigt. Demnach wird mit steigender Dosis D eine wachsende Schichtdicke des Sensors abgetragen wobei die abgetragene Materialmenge entsprechend Abbildung 79d) in guter Näherung linear mit der eingestrahlichten Dosis skaliert. Dies lässt sich trotz der unterschiedlichen verwendeten Sensorschichten dadurch erklären, dass (bis auf die 5 nm dicken Ta Schichten) die verschiedenen Lagen des Sensors aus im Periodensystem direkt benachbarten Übergangsmetallen mit geringem Atommassenunterschied aufgebaut sind, wodurch sich nur geringe Unterschiede in der Sputterausbeute ergeben sollten. Daraus lässt sich abschätzen, dass der Sensorstapel mit einer Dicke von $d_{\text{sensor}} = 45 \text{ nm}$ bei einer Dosis von $D_{\text{ion}} = 1.15 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2$ komplett abgetragen wird. Um eventuelle Dickenschwankungen des Sensorstapels bei der Sputterherstellung auszugleichen und immer den kompletten Abtrag des Sensorstapels sicherzustellen, wurden die Sensoren mit einer Dosis von $D = 1.25 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2$ abgetragen.

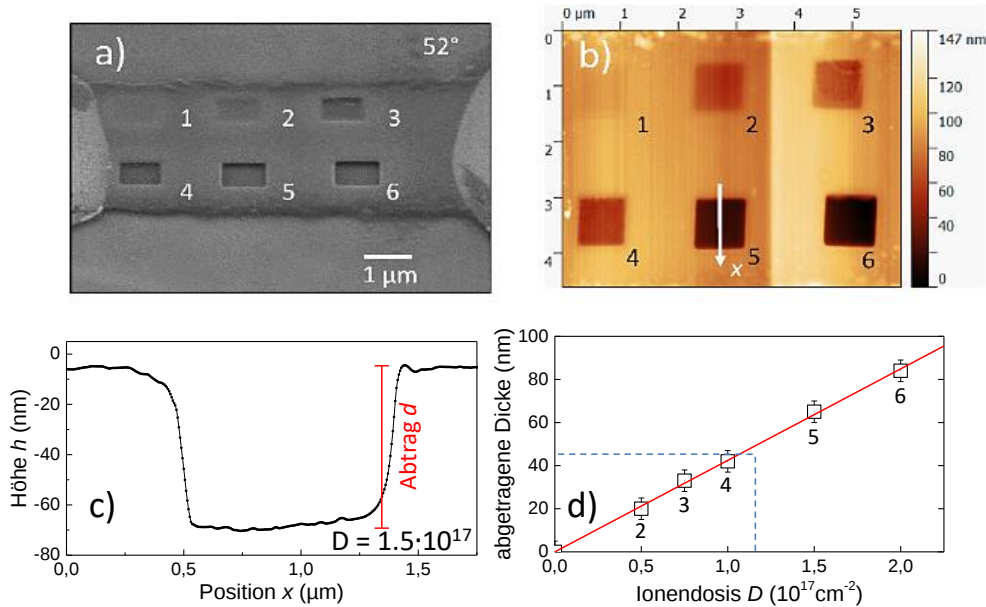


Abbildung 79: In a) ist eine REM Aufnahme unter einem Aufnahmewinkel von 52° gegenüber der Sensoroberfläche nach Abtragung mit von 1 bis 6 ansteigender Dosis gezeigt. Abbildung b) zeigt eine AFM Aufnahme desselben Bereichs. In c) ist das exemplarisch ausgewertete Höhenprofil entlang der in b) gezeigten weißen Linie aufgetragen. Der ausgewertete Abtrag in Abhängigkeit der eingestrahlichten Ionendosis D ist für die Flächen 2-6 in d) gezeigt. Die horizontale, gestrichelte Linie markiert dabei die Dicke des Sensors $d_{\text{sensor}} = 45 \text{ nm}$ und die vertikale, gestrichelte Linie markiert die zum vollständigen Abtrag des Sensors benötigte, minimale Dosis von $D = 1.15 \cdot 10^{17} / \text{cm}^2$.

A2 Kalibration zur Bestimmung des Ga Eintrags in den Sensorstapel per EDX

Um eine quantitative Abschätzung der in den Sensorstapel eingetragenen Ga Konzentration zu erhalten wurden zunächst definierte Flächen (mit einer Abmessung von $5 \times 5 \mu\text{m}^2$) des auf einer dünnen Si_3N_4 Membran aufgetragenen Sensorstapels mit unterschiedlichen Ga-Dosen D bestrahlt. Die Dosis D wurde dabei durch Variation der Einstrahlzeit bei einem konstanten Strahlstrom von $I = 30 \text{ pA}$ und $U = 30 \text{ kV}$ eingestellt. Abbildung 80a) zeigt eine REM Aufnahme der bestrahlten Bereiche bei einer Beschleunigungsspannung des Elektronenstrahls von $U = 2 \text{ kV}$. Die bestrahlten Bereiche sind als im Vergleich zur Umgebung hellere Flächen zu erkennen, was mit großer Wahrscheinlichkeit auf eine Änderung der Topographie der jeweiligen oberflächennahen Bereiche durch die Bestrahlung hindeutet. Anschließend wurden die EDX Spektren bei einer Beschleunigungsspannung von $U = 25 \text{ kV}$ jeweils in der Mitte der bestrahlten Bereiche gemessen und daraus der implantierte Ga Eintrag bestimmt. Abbildung 80b) zeigt exemplarische Spektren für die verschiedenen Bereiche.

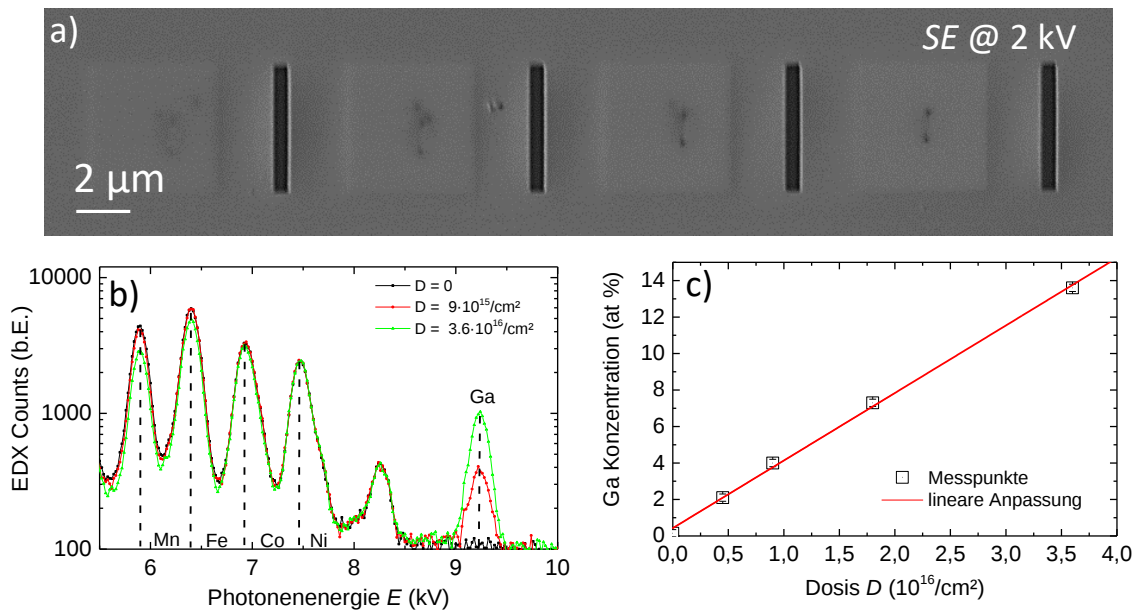


Abbildung 80: REM Aufnahme (mit 2 keV Elektronenenergie) der bestrahlten Bereiche (jeweils als hellere Bereiche). Die schwarzen Bereiche sind komplett entfernte Bereiche des Schichtstapels und der Membran und dienen als Referenzmarker für die bestrahlten Bereiche. In b) sind exemplarische Spektren für drei verschiedene, eingestrahelte Ga Dosen gezeigt. In c) ist die Ga Konzentration (normiert auf die EDX Signale der Schichten im Schichtstapel) als Funktion der eingestrahlenen Ionendosis gezeigt. Die rote Linie zeigt eine Anpassung der Messdaten mit einer resultierenden Steigung von $3.7 \text{ at}\% / (10^{16}/\text{cm}^2)$.

In beiden Fällen, bei denen eine Ga Bestrahlung durchgeführt wurde ($D = 3.6 \cdot 10^{16}/\text{cm}^2$ und $D = 0.9 \cdot 10^{16}/\text{cm}^2$) lässt sich klar ein Ga Signal im EDX Spektrum erkennen und somit der Ga Eintrag quantitativ bestimmen. Die quantitative Auswertung in Abhängigkeit der Dosis D ist in Abbildung 80c) dargestellt. Die gemessene Ga Konzentration nimmt dabei

in guter Näherung linear mit der eingestrahelten Dosis entsprechend $\text{Ga}[\%]/D = 3.7\%/10^{16}\text{cm}^{-2}$ zu. Entsprechend dieser Messung lässt sich durch Messung der Ga Konzentration auf die eingetragene Dosis D rückschließen, worauf im Hauptteil der Arbeit zurückgegriffen wird.

A3 Passive Bestrahlung von Sensoren in unmittelbarer Nähe zur aktiven Sensorfläche

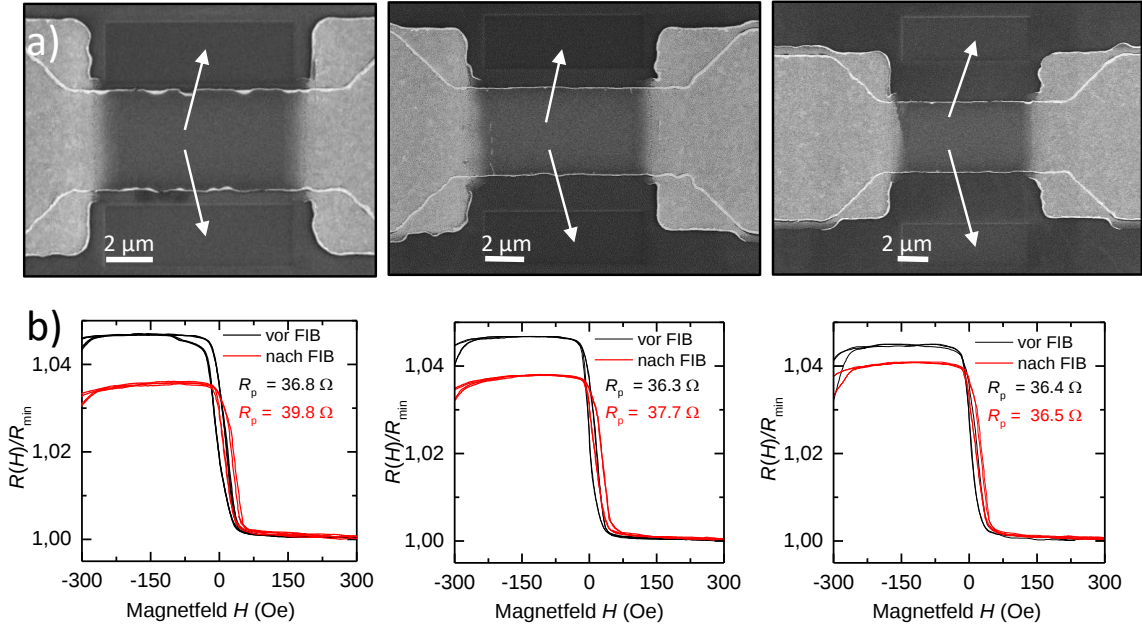


Abbildung 81: Bestrahlung neben der aktiven Fläche des Sensors in a). Die bestrahlten Flächen sind durch die weißen Pfeile in den Abbildungen markiert. In b) sind die entsprechenden magneto-resistiven Sensorkurven vor (schwarz) und nach (rot) Ga Bestrahlung in unmittelbarer Nähe zur aktiven Fläche der Sensoren gezeigt. Die Kurven sind jeweils auf den Widerstand in Parallelstellung $R_{\min}$ (wie in der Abbildung eingetragen) normiert.

Abbildung 81 zeigt ein Experiment, bei dem jeweils in unmittelbarer Nähe zur aktiven Fläche eine Dosis von $D = 2 \cdot 10^{17}/\text{cm}^2$ eingestrahlt wurde. Die bestrahlten Bereiche mit einer Ausdehnung von $2.7 \times 8 \mu\text{m}^2$ sind in den REM Aufnahmen in Abbildung 81a) jeweils durch die weißen Pfeile markiert als dunklere Bereiche zu erkennen. Die korrespondierenden MR Kurven in Abbildung 81b) zeigen, dass für alle Sensoren das MR Verhältnis durch die indirekte Bestrahlung abgenommen hat. Für die geringste Entfernung der bestrahlten Bereiche (Abbildung 81a), links) nimmt das GMR Verhältnis nach der Bestrahlung von ca. 4.6 % auf 3.5 % um ca. 25 % ab. Gleichzeitig nimmt der Sensorwiderstand von 36.8Ω auf 39.8Ω um ca. 8 % zu. Das Ergebnis legt nahe, dass obwohl die nominell bestrahlte Fläche einen klaren Abstand zum eigentlichen Sensor aufweist trotzdem noch ein relevanter Ioneneintrag in den Sensor stattfinden muss. Vergleicht man die gezeigten Ergebnisse mit den Ergebnissen aus der direkten Bestrahlung der aktiven Sensorfläche (vgl. Abbildung 17) so ergibt sich beispielsweise für den geringsten Abstand der bestrahlten Flächen

(Abbildung 81a), links) unter Berücksichtigung des Rückgangs des GMR Verhältnisses und der Widerstandserhöhung ein nomineller Ga Ioneneintrag Eintrag von ca. $4 \cdot 10^{13}/\text{cm}^2$. Dies entspricht einem Eintrag in der Größenordnung von lediglich 0.01% der in den nominell bestrahlten Flächen eingebrachten Ionendosen, zeigt aber, dass selbst ohne Kontakt des Hauptstrahls zur eigentlichen Sensorfläche eine signifikante Änderung des Sensorverhaltens zu verzeichnen ist. Die Beobachtung stützt die im Hauptteil der Arbeit getroffene Aussage, dass die irreversible Zerstörung des Sensors hauptsächlich auf die aus dem Hauptstrahl herausgestreuten Ionen zurückzuführen ist.

A4 Berechnung der Feldverschiebung H_{shift} nach R. Engel-Herbert

Für die Berechnung des Streufeldes der gepinnten Schicht wurde ein Ansatz nach Engel-Herbert, der in [97] gegeben ist, gewählt. Demnach ergibt sich das Streufeld $B_{\text{streu},x}$ der gepinnten Schicht (entsprechend Abbildung 82b) schematisch dargestellt) mit Ausrichtung der Magnetisierung entlang der x -Achse zu:

$$B_{\text{streu},x}(x, y, z) = -\frac{\mu_0 M_p}{4\pi} \sum_{i,j,k=1}^2 (-1)^{i+k} \frac{\left(x + (-1)^j \left(\frac{w}{2}\right)\right) \left(y + (-1)^i \left(\frac{l}{2}\right)\right)}{\left|x + (-1)^j \left(\frac{w}{2}\right)\right| \left|y + (-1)^i \left(\frac{l}{2}\right)\right|} \times \operatorname{atan} \left(\frac{\left|y + (-1)^i \left(\frac{l}{2}\right)\right| \left(z + (-1)^k \left(\frac{h}{2}\right)\right)}{\left|x + (-1)^j \left(\frac{w}{2}\right)\right| \sqrt{\left(x + (-1)^j \left(\frac{w}{2}\right)\right)^2 + \left(y + (-1)^i \left(\frac{l}{2}\right)\right)^2 + \left(z + (-1)^k \left(\frac{h}{2}\right)\right)^2}} \right) \quad (60)$$

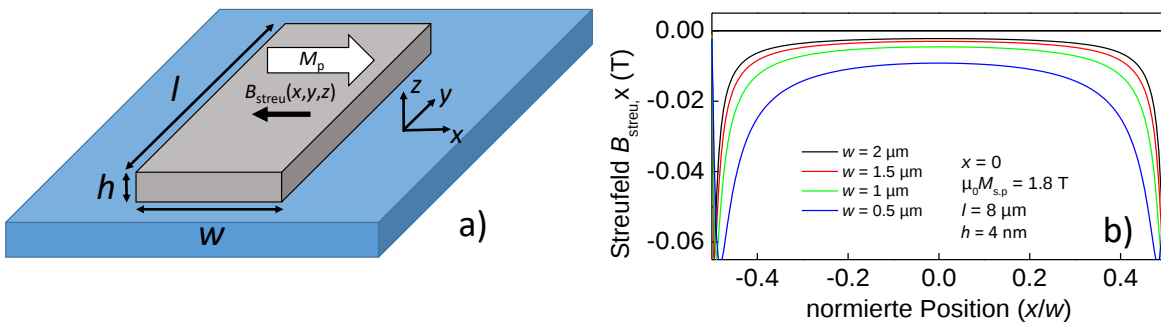


Abbildung 82: Skizze zur Berechnung des Streufeldes der gepinnten Schicht in a) und berechnete Verteilung der Streufeldkomponente $B_{\text{ext},x}$ in Abhängigkeit der Position in der freien Schicht in b). Die Position x ist zum Vergleich der berechneten Feldverläufe auf die jeweilige Sensorbreite w normiert. Die Berechnung wurde entlang der x Achse ($y = 0$) durch den Schwerpunkt der freien NiFe Schicht ($z = 9 \text{ nm}$) für eine Sensorlänge von $l = 8 \mu\text{m}$ und eine Sättigungsmagnetisierung der gepinnten Schicht von $\mu_0 M_{s,p} = 1.8 \text{ T}$ durchgeführt.

Abbildung 82b) zeigt den Verlauf der Streufeldkomponente $B_{\text{streu},x}$ berechnet nach Gleichung (14) unter Verwendung von Gleichung (14) für verschiedene Sensorbreiten w . Die Berechnung zeigt, dass das Streufeld, das die freie Schicht durchsetzt, mit abnehmender Sensorbreite zunimmt. Anschaulich begründet werden kann dies, indem man sich die Quelle des Streufelds als magnetische Oberflächenladungen der Co Schicht entlang der Kanten des Sensorstapels interpretiert. Die Ladungsdichte ist durch die Sättigungspolarisation von $\mu_0 M_{\text{sat}} = 1.8 \text{ T}$ unabhängig von der Sensorbreite vorgeben. Mit abnehmender Sensorbreite w nimmt der Polabstand ab, und erzeugt so ein stärkeres, negatives Streufeld außerhalb der Schicht.

A5 Berechnung des Entmagnetisierungsfaktors N_D nach A. Aharoni

Der Entmagnetisierungsfaktor N_D kann für ein ferromagnetisches Prima nach den Ausführungen von A. Aharoni [98] direkt analytisch angegeben werden. Die zugrundeliegende Geometrie der freien Schicht ergibt sich dabei entsprechend Abbildung 82. Der Entmagnetisierungsfaktor $N_{D,x}$ entlang der x -Richtung kann entsprechend [98] unter Einbeziehung von $a = l/2$, $b = b/2$ sowie $c = w/2$ wie folgt berechnet werden:

$$N_{D,x} = \frac{1}{\pi} \left[\ln \left(\frac{\sqrt{a^2 + b^2 + c^2} - a}{\sqrt{a^2 + b^2 + c^2} + a} \right) + \frac{a^2 - c^2}{2ac} \ln \left(\frac{\sqrt{a^2 + b^2 + c^2} - b}{\sqrt{a^2 + b^2 + c^2} + b} \right) + \frac{b}{2c} \ln \left(\frac{\sqrt{a^2 + b^2} + a}{\sqrt{a^2 + b^2} - a} \right) \right. \\ + \frac{a}{2c} \ln \left(\frac{\sqrt{a^2 + b^2} + b}{\sqrt{a^2 + b^2} - b} \right) + \frac{c}{2a} \ln \left(\frac{\sqrt{b^2 + c^2} - b}{\sqrt{b^2 + c^2} + b} \right) + \frac{c}{2a} \ln \left(\frac{\sqrt{b^2 + c^2} - b}{\sqrt{b^2 + c^2} + b} \right) + \frac{c}{2a} 2 \operatorname{atan} \left(\frac{ab}{c\sqrt{a^2 + b^2 + c^2}} \right) \\ + \frac{a^3 + b^3 - 2c^3}{3abc} + \frac{a^2 + b^2 - 2c^2}{3abc} \sqrt{a^2 + b^2 + c^2} + \frac{c}{ab} (\sqrt{a^2 + c^2} + \sqrt{b^2 + c^2}) \\ \left. - \frac{(a^2 + b^2)^{3/2} + (b^2 + c^2)^{3/2} + (a^2 + c^2)^{3/2}}{3abc} \right] \quad (61)$$

In der für die Arbeit vorliegenden Geometrie werden Sensoren mit $a = 4 \text{ } \mu\text{m}$, $b = 3 \text{ nm}$ und $90 \text{ nm} < c < 1 \text{ } \mu\text{m}$ betrachtet.

A6 Messtechnische Einschränkungen bei der Extraktion der Viskosität und der Fallenstärke aus Fluktuationsdaten

Im Rahmen der quantitativen Analyse der Partikelfluktuations muss betrachtet werden, wie präzise die Position der verwendeten Partikel durch das Tracking Verfahren bestimmt werden kann. Neben hardwareseitiger Ungenauigkeit bei der Positionsbestimmung (endliche Belichtungszeit des Charged Coupled Device (CCD) Chips der Kamera während Partikelbewegung und Rauscheigenschaften des CCD Chips) [130] liegt der softwareseitigen Ana-

lyse der Bilddaten zur Bestimmung der Partikelposition eine gewisse Ungenauigkeit zugrunde. Um den sich aus beiden Effekten ergebenden Fehler bei der Berechnung des *MSD* abschätzen zu können, wurde jeweils ein einzelnes, fest an der Oberfläche gebundenes Partikel betrachtet. Das Partikel wurde je über einen Zeitraum von $t = 30$ min beobachtet und dessen Position (x,y) um den zeitlichen Mittelwert der Partikelposition x_0, y_0 mittels Particle Tracking aus den Videodaten extrahiert. Abbildung 83 zeigt die gemessenen Partikelpositionen (zur besseren Übersicht über einen Zeitraum von 50 s), die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten $p(x)$ und $p(y)$ sowie die berechneten, zeitlichen Verläufe des *MSD*. Die in Abbildung 83a) (M-280) und Abbildung 83b) (MyOne) dargestellten nominellen Abweichungen vom zeitlichen Mittelwert zeigen, dass trotz der festen Bindung des Partikels an die Substratoberfläche eine Bewegung des Partikels im Bereich von wenigen Pixeln (px) detektiert wird.

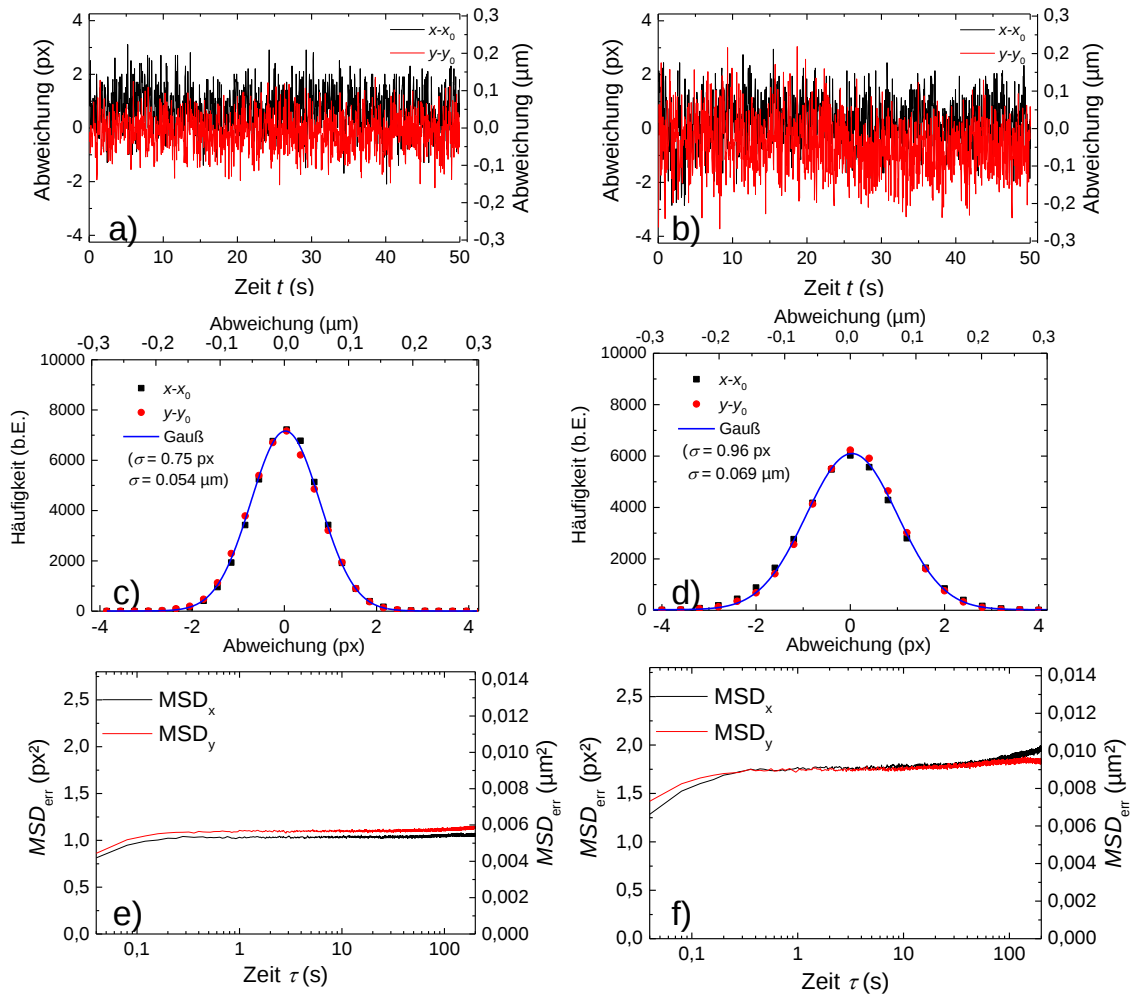


Abbildung 83: Untersuchung des durch das Partikeltracking gegebenen Detektionsfehlers für M-280 Partikel (linke Abbildungen) und MyOne Partikel (rechte Abbildungen). Positionsabweichungen von der Mittelpunktspostion (x_0, y_0) sind für das M-280 Partikel in a) und für das MyOne Partikel in b) dargestellt. Die zugehörigen Positionshistogramme sind in c) für ein M-280 und d) für ein MyOne Partikel gezeigt. Die unteren Abbildungen zeigen das berechnete *MSD* für das M-280 in e) und das MyOne Partikel in f). Ein Pixel (px) entspricht dabei einer Länge von 0.0718 μm .

Anhang

Berechnet man aus den Partikelpositionen über den kompletten Beobachtungszeitraum von $t = 30$ min die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten (siehe Abbildung 83c-d)), ergibt sich für beide Partikel eine gaußförmige Verteilung der gemessenen Positionsabweichung. Für diese lässt sich eine Standardabweichung von $\sigma = 0.75 \text{ px} = 0.054 \text{ }\mu\text{m}$ für das M-280 Partikel (c)) und $\sigma = 0.96 \text{ px} = 0.069 \text{ }\mu\text{m}$ für das MyOne Partikel durch Anpassung der Messdaten entsprechend Gleichungen (28) und (29) extrahieren. Diese gemessene Abweichung kann zur Abschätzung der Messunsicherheit bei der Detektion der Partikelposition herangezogen werden. Die Unsicherheit ist dabei für das M-280 Partikel geringer als für das MyOne Partikel, was an der im Vergleich zum M-280 Partikel geringeren Größe des Partikels des MyOne Partikels liegt. Dadurch stehen für die Bestimmung der Position für das M-280 Partikel mehr Pixel als Information zur Verfügung, was die Detektion der Position genauer macht. Bei der Berechnung des MSD ergibt sich für beide Partikel für ein großes Zeitfenster ($0.5 \text{ s} < \tau < 100 \text{ s}$) ein konstanter Wert für das MSD , der für M-280 Partikel $MSD < 0.0060 \text{ }\mu\text{m}^2$ (Abbildung 83e)) und für MyOne Partikel $MSD < 0.010 \text{ }\mu\text{m}^2$ (Abbildung 83f)) beträgt. Da der Verlauf des MSD im Hauptteil der Arbeit sowohl zur Berechnung der Viskosität sowie zur Berechnung der Fallenstärke herangezogen wird, müssen die sich durch den gezeigten Detektionsfehler ergebenden Grenzen für das MSD bei der Diskussion der Ergebnisse mit berücksichtigt werden. Aus den gezeigten Daten lassen sich dabei prinzipielle Grenzen für die Bestimmung der Viskosität und der Fallenstärke aus den Fluktuationsdaten angeben. Die Viskosität ist entsprechend Formel (33) aus der Steigung des MSD für Zeiten $\tau \ll \tau_t = 6\pi\eta r_p/k$ gegeben. Als erste Abschätzung wird hier davon ausgegangen, dass die maximale Zeit τ , bis zu der der lineare Zusammenhang zwischen MSD und der Zeit τ noch gegeben ist bei $\tau = 0.1\tau_t$ liegt. Die Viskosität kann dabei nur aus dem linearen Anstieg des MSD extrahiert werden, insofern der bis zum Zeitpunkt $\tau = 0.1\tau_t$ gemessene Anstieg des MSD (MSD_{mess}) signifikant größer als der durch den oben gezeigten Trackingfehler gegebene Fehler MSD_{err} ist. Für eine Genauigkeit besser 10% bei der Bestimmung von η muss daher gelten:

$$MSD_{\text{mess}} = MSD(\tau = 0.1\tau_t) > 10MSD_{\text{err}} \quad (62)$$

Setzt man Formel (26) in Formel (25) ein, so ergibt sich folgende Beziehung für MSD_{mess} :

$$MSD_{\text{mess}} = 0.2k_B T/k > 10MSD_{\text{err}} \quad (63)$$

Formel (63) zeigt, dass die Bedingungen, die zur erfolgreichen Messung der Viskosität aus den Fluktuationsdaten erfüllt sein müssen, unabhängig von der Viskosität selbst sind. Für eine erfolgreiche Messung muss nur die Fallenkonstante so gering gewählt werden, dass die in Formel (63) gezeigte Bedingung erfüllt ist. Unter den messtechnisch erfassten Fehlern für MSD_{err} ergibt sich demnach als Randbedingung zur Messung der Viskosität bei einer Temperatur von $T = 300$

Anhang

K eine maximale Fallenstärke von $k_{\max} = 0.02k_B T / MSD_{\text{err}} = 138 \text{ fN}/\mu\text{m}$ (M-280) bzw. $k_{\max} = 82.3 \text{ fN}/\mu\text{m}$ (MyOne).

Die Bestimmung der Fallenstärke ist limitiert durch den Wert des MSD für Zeiten $\tau \gg \tau_i$. Für eine sinnvolle Abschätzung der Fallenstärke muss der gemessene Wert $MSD(\tau \gg \tau_i)$ den durch den Trackingfehler gegebenen Wert MSD_{err} deutlich übersteigen. Aus (27) ergibt sich für eine Genauigkeit bei der Berechnung des MSD besser als 10% demnach:

$$\frac{2k_B T}{k} > 10MSD_{\text{err}} \rightarrow k < k_B T / (5MSD_{\text{err}}) \quad (64)$$

Dies führt zu maximal messbaren Fallenstärken von $k_{\max} = k_B T / (5MSD_{\text{err}}) = 141.8 \text{ fN}/\mu\text{m}$ für die M-280 Partikel und $k_{\max} = 78.0 \text{ fN}/\mu\text{m}$ für die MyOne Partikel.

A7 Einfluss des Manipulationsstroms auf die Temperatur der Manipulationsleitung und der flüssigen Partikelumgebung

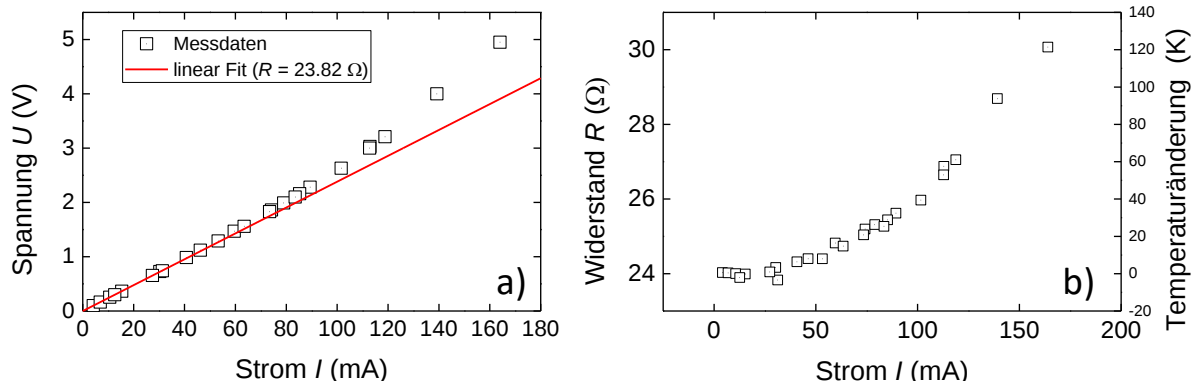


Abbildung 84: Exemplarische, statische Strom-Spannung Kennlinie (a)) im thermischen Gleichgewicht eines $\text{Au}[180 \text{ nm}]/\text{Ta}[20 \text{ nm}]$ Ringes mit Durchmesser $D = 104 \mu\text{m}$. Der Ringleiter wurde auf Si Substrat, das zuvor durch 300 nm SiO_2 passiviert wurde, abgeschieden. Der lineare Fit der Strom-Spannungskennlinie wurde für $I < 20 \text{ mA}$ durchgeführt und ergibt einen elektrischen Grundwiderstand von $R = 23.82 \Omega$. In b) ist der aus a) berechnete Widerstand $R = U/I$ für alle eingetragenen Ströme gezeigt. Die Temperaturerhöhung des Drahts wurde unter Annahme von $\alpha = 0.4\%/K$ ermittelt.

Aufgrund des niedrigeren stromdurchflossenen Querschnitts der Manipulationsleitung von $A = 5 \cdot 0.2 \mu\text{m}^2 = 1 \mu\text{m}^2$ ergibt sich bei einem Stromfluss von $I = 10 \text{ mA}$ eine nominell sehr hohe Stromdichte von $J = I/A = 10^6 \text{ A}/\text{cm}^2$. Bei einem typischen Widerstand der Leiterbahnstruktur von $R \sim 20 \Omega$ werden dabei $P = I^2 R = 2 \text{ mW}$ Leistung dissipiert. Dies führt trotz der enormen Leistungsdichte nicht zur thermischen Zerstörung des Ringleiters während der Manipulationsexperimente, da die Wärme über das Si Substrat abgegeben

werden kann. Nach einiger Zeit stellt sich ein Temperaturgleichgewicht ein, so dass sich der Ringleiter bei einem festen Strom um eine bestimmte – vom Strom abhängige – Temperatur gegenüber der Umgebung erhöht. Abbildung 84 zeigt die Messung der Strom-Spannungs-Kennlinie im Temperaturgleichgewicht einer repräsentativen Manipulationsstruktur, aus der die Ringleitertemperatur grob abgeschätzt werden kann. Die I - V -Kennlinie (Abbildung 84a)) zeigt für Ströme bis $I = 50$ mA das erwartete lineare Verhalten, aus der ein elektrischer Widerstand von $\sim 23.8 \Omega$ für die Manipulationsstruktur abgeschätzt werden kann. Für höhere Ströme nimmt die Spannung überproportional zum Strom zu, was auf einen höheren Widerstand des Ringleiters durch Erwärmung zurückzuführen ist. Der aus den in a) gezeigten Daten berechenbare Widerstand $R=U/I$ ist in b) als Funktion des Stroms I eingetragen, Für Ströme $I > 50$ mA nimmt der Widerstand mit steigendem Strom I zu. Aus der Erhöhung des Widerstands gegenüber dem Widerstand bei geringen Strömen lässt sich unter Annahme eines spezifischen Temperaturkoeffizient von $\alpha = 0.4\%/K$ die Temperaturerhöhung ΔT zu $\Delta T = (R(I) - 23.82 \Omega) / (23.82 \Omega \cdot 0.004/K)$ berechnen. Diese ist in Abbildung 84b) aufgetragen. Gemäß den Messungen ergibt sich für den Ringleiter für einen Strom von $I = 160$ mA eine Temperaturerhöhung von $\Delta T = 120$ °C.

Abbildung 85a) zeigt eine Serie von Wärmebildaufnahmen des geschlossenen Flüssigkeitsreservoirs (in Draufsicht), die während der Manipulation mit einem Strom von $I = 60$ mA über einen Zeitraum von einer Stunde aufgenommen wurden. Die Wärmebildaufnahmen zeigen, dass radial ausgehend von der Manipulationsstruktur eine Temperaturerhöhung über einen relativ großen Bereich von einigen mm stattfindet. Die Messung wurde an den in Abbildung 85a) markierten Positionen (T_1 und T_2) quantitativ über den kompletten Zeitraum ausgewertet. Die sich daraus ergebende Differenztemperatur $T_2 - T_1$ ist in Abbildung 85b) gezeigt. Die Temperatur erhöht sich dabei nach dem Einschalten bei $t = 0$ s innerhalb weniger Minuten um mehrere °C bis sich nach ca. 20 min eine um ca. 8°C gegenüber der Umgebung (T_1) höhere Temperatur direkt über der Manipulationsstruktur eingestellt. Die Ergebnisse belegen somit, dass sich neben der Manipulationsstruktur die flüssige Umgebung messbar erwärmt, was im Einklang mit den in Kapitel 3.5.3 dargestellten Ergebnissen zur Bestimmung der Viskosität aus Fluktuationsexperimenten steht. Entsprechend Abbildung 85b) kann innerhalb der ersten 10 Minuten eine Temperaturänderung um ca. 7° C verzeichnet werden, während die Temperatur innerhalb der restlichen 50 min nur um ein weiteres Grad auf $\Delta T = 8^\circ\text{C}$ ansteigt. Somit muss für alle Experimente, bei denen eine konstante Temperatur innerhalb der Messzelle benötigt wird, eine thermische Einschwingzeit des Systems von ca. 10 min berücksichtigt werden.

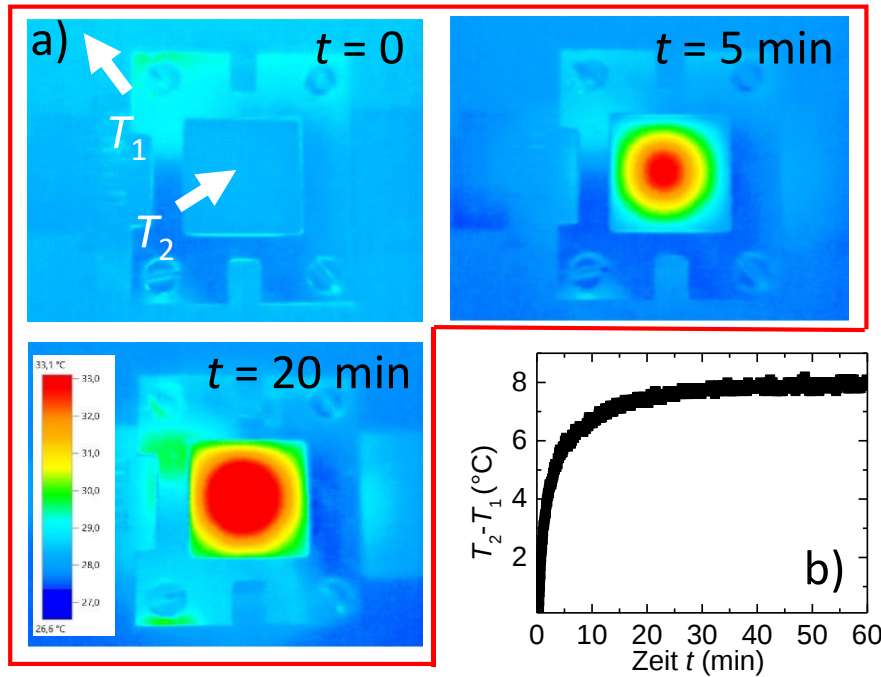


Abbildung 85: Erwärmung des Flüssigkeitsreservoirs durch Betrieb der Manipulationsleitung bei einem Strom von $I = 60 \text{ mA}$ gemäß Wärmebildaufnahmen (in a)). Der Strom wird zum Zeitpunkt $t = 15 \text{ s}$ zugeschaltet und über den kompletten Messzeitraum von $t = 60 \text{ min}$ eingepreßt. Die weißen Pfeile in der linken, oberen Abbildung markieren die Position der Manipulationsstruktur (T_2) und einen Punkt außerhalb des Flüssigkeitsreservoirs (T_1). Zur Auswertung der bolometrischen Daten wurde ein Emissionsgrad von 0.94 (gültig für Acrylglas) angenommen. In b) ist die Differenztemperatur $T_2 - T_1$ als Funktion der Aufnahmedauer gezeigt.

A8 Verwendung von phosphathaltigem Puffer in Manipulationsexperimenten

Typischerweise werden Experimente, bei denen die Wechselwirkung der Partikel mit einer Substratoberfläche oder untereinander wichtig ist, in einer Pufferlösung durchgeführt. Dies ermöglicht es, bei einem stabilen pH Wert mit einer reproduzierbaren Ionenkonzentration zu arbeiten. Für viele in-vitro Untersuchungen kommt dabei sogenannter PBS (phosphate buffered saline) Puffer zur Verwendung, der das Arbeiten bei einem biologisch verträglichen pH Wert von ca. 7.4 ermöglicht, was für Arbeiten mit lebenden Zellorganismen für deren Überleben während des Experiments wichtig ist. Hierbei spielt für die Wechselwirkung der Partikel mit der Substratoberfläche insbesondere die Ionenkonzentration eine wichtige Rolle, da dadurch die elektrostatische Wechselwirkung (siehe auch Ausführungen zur DLVO Theorie entsprechend Kapitel 3.2.3) beeinflusst wird. In Experimenten wurde zunächst versucht, den Einfluss qualitativ zu ermitteln. Dazu wurden Gemische aus je 100 ml destilliertem Wasser und einer unterschiedlichen Menge PBS ($x = 0 \text{ ml}$ bis $x = 10 \text{ ml}$) hergestellt. Diese wurden im Verhältnis 2000:1 mit M-280 Partikeln vermischt und auf eine mit einer 300 nm dicken SiO_2 Schicht passivierte Si Oberfläche gegeben. Anschließend wurden die Trajektorien einzelner M-280 Partikel mittels Particle-Tracking bestimmt. Die Ergebnisse sind exemplarisch in Abbildung 86a) gezeigt. Die Messungen zeigen, dass sich bis zu einer Menge von $x = 1 \text{ ml}$ PBS die Partikel noch frei über

der SiO₂ Oberfläche bewegen. Ab einer Beimischung von $x = 3$ ml sind einzelne Partikel zu sehen, die fest an die Oberfläche gebunden sind und kaum mehr messbare Fluktuation aufzeigen. Bei Verwendung von 10 ml PBS sowie unverdünntem PBS (nicht grafisch dargestellt) sind alle beobachteten Partikel fest an die Oberfläche gebunden. Erklärt werden kann dies unter Berechnung der Energielandschaft $E(z)$ und der daraus resultierenden Aufenthaltswahrscheinlichkeit $p(z)$, wie in Kapitel 3.5.3 beschrieben. Beide Größen sind für die jeweilige, experimentelle Bedingung in Abbildung 86b) dargestellt. Mit höherer PBS Konzentration verschiebt sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Partikel hin zu niedrigeren Höhen z . Dies kann durch die mit steigender PBS Konzentration geringere Debye Länge λ_D begründet werden. Dadurch wird die abstoßende DLVO Wechselwirkung mit steigender PBS Konzentration kurzreichweitiger, was zum geringeren mittleren Abstand des Partikels zur Substratoberfläche führt. Für die höchste PBS Konzentration (10 ml PBS) beträgt der mittlere Abstand des Partikels $\bar{z} = 86$ nm. Dies ist in derselben Größenordnung wie die Rauigkeit der verwendeten SiO₂ Oberfläche (siehe AFM Messung in Abbildung 86c)). Da auch das Partikel selbst eine Rauigkeit in der gleichen Größenordnung wie die Oberfläche aufweist, ist es sehr wahrscheinlich, dass das Partikel punktuell in Kontakt mit der Oberfläche gerät. Dadurch können starke Bindungen durch Van-der-Waals Kräfte oder eine Bindung der Streptavidin-Hülle an die SiO₂ Oberfläche entstehen [134], die die Fluktuation des Partikels verhindern.

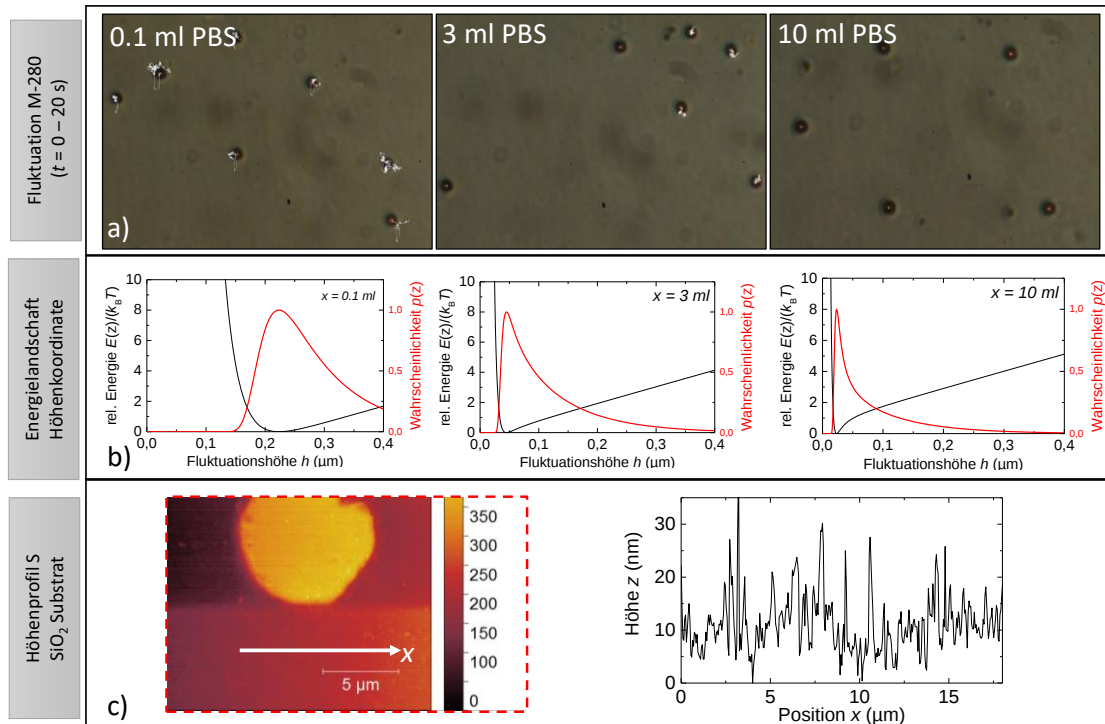


Abbildung 86: Beobachtete Partikelbewegung in a) und berechnete Energie in Abhängigkeit der Fluktuationshöhe in b) für verschiedene Beimischungsmengen von PBS (Mengenangabe jeweils in Abbildung) zu jeweils 100 ml Wasser. Für die Berechnung wurden folgende Parameter angenommen: $I_{\text{ion,PBS}} = 0.16$ mol/l, $\xi_p = -15$ mV, $\xi_s = -60$ mV, $\rho_p = 1.4$ g/cm³, $\rho_w = 0.995$ g/cm³, $A = 4.1 \cdot 10^{-21}$ J/m, $\lambda = 100$ nm, $T = 300$ K, $\epsilon_r = 79$. Die beiden unteren Abbildungen in c) zeigen einen AFM Scan der SiO₂ Oberfläche, innerhalb der Manipulationsstruktur (links, Höhenangabe in nm) sowie ein Höhenlinienprofil (rechts) entlang des links eingezeichneten weißen Pfeils.

A9 Grundlegende Untersuchung zum langzeitigen Betrieb der Manipulationsstrukturen

Bei der Durchführung von Langzeitmessungen (über Zeiträume von mehreren Stunden) müssen besondere Anforderungen an die Manipulationsstruktur sowie die Flüssigkeitsumgebung gestellt werden, die im Folgenden diskutiert werden. Abbildung 87 zeigt eine zeitliche Abfolge von Mikroskopaufnahmen der Manipulationsstruktur beim Betrieb in deionisiertem Wasser (spezifische Leitfähigkeit $< 10 \mu\text{S}/\text{cm}$) bei einem konstanten, eingepprägtem Strom von $I = 80 \text{ mA}$ durch die Ringstruktur, was bei einem ohmschen Widerstand der Struktur von $R = 21.4 \Omega$ einem Spannungsabfall von $U = 1.71 \text{ V}$ entspricht.

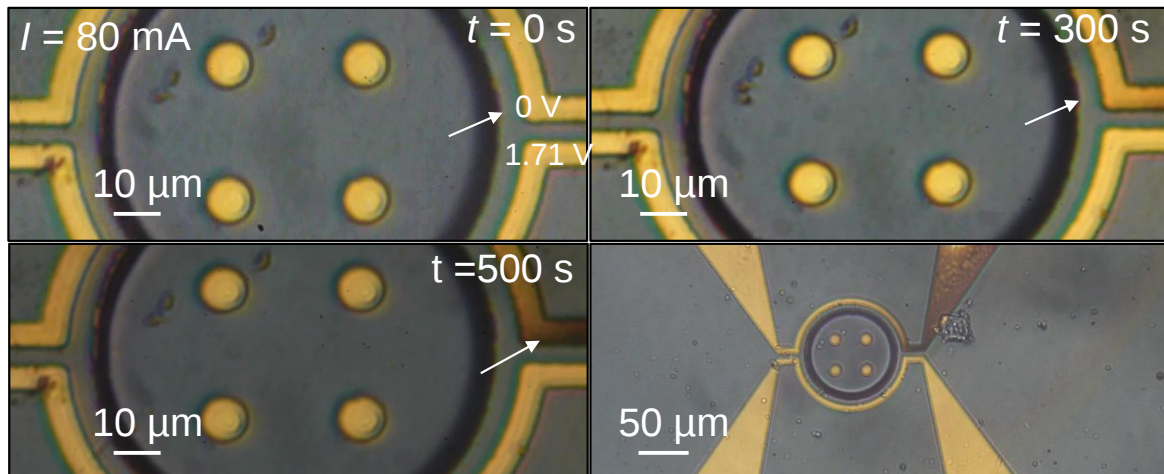


Abbildung 87: Zeitliche Abfolge eines Manipulationsexperiments in destilliertem Wasser. Der Strom beträgt während des gesamten Experiments $I = 80 \text{ mA}$ bei einer Spannungsdifferenz von $\Delta\phi = 1.71 \text{ V}$ bezogen auf das Nullpotential am Leiterbahnkontakt rechts oben im Bild.

Die Messung zeigt, dass sich nach Einschalten des Stroms bei $t = 0 \text{ s}$ über den Zeitraum von mehreren Minuten die negativere Elektrode (markiert mit weißem Pfeil) dunkel verfärbt. Mit zunehmender Zeit nimmt der Grad der Verfärbung kontinuierlich zu. Nach $t = 500 \text{ s}$ hat sich ein großer Teil der Zuleitung zur Ringstruktur dunkel verfärbt (siehe Abbildung 87, rechts unten)). Dieses Phänomen lässt sich bei allen Experimenten, bei denen Stromstärken $I > 20 \text{ mA}$ verwendet werden, beobachten. Die Verfärbung ist für hohe Stromstärken im Vergleich zu geringeren Stromstärken ausgeprägter und schon bei geringeren Experimentzeiten zu beobachten. EDX Messungen an den kontaminierten Bereichen (siehe Abbildung 88a) für REM Aufnahme des kontaminierten Bereichs) zeigen Ablagerungen aus Cu sowohl auf der Leiterbahnfläche als an den Kanten der Leiterbahn. Da kein Cu zur Herstellung der magnetischen Fallen eingesetzt wurde, muss das Material einer anderen Quelle entstammen. Abbildung 88b) zeigt eine exemplarische REM Aufnahme einer Platinenleiterbahn auf der Trägerplatine, die mittels Au Dünndraht (links im Bild zu sehen) durch Drahtbonden mit der eigentlichen Manipulationsstruktur verbunden war. Die Platinenleiterbahn besteht aus einer mehrere μm dicken Cu Schicht, die von einem

Schichtstapel aus Ni und Au abgedeckt ist. Die Leiterbahn weist deutliche Ausbrüche bzw. Krater auf an denen sowohl die Au und Ni Schichten als auch ein Teil der Cu Schicht abgetragen wurden. Das dort abgetragene Cu kann sich anschließend an der Manipulationsstruktur anlagern. Eine mögliche Erklärung dafür ergibt sich aus dem elektrochemischen Abbau der Cu Elektrode im Elektrolyt während des Experiments. Die Kupferatome werden in der Flüssigkeit in ionisierter Form von Cu^+ oder Cu^{2+} hin zur negativen Elektrode der Manipulationsstruktur transportiert und dort angelagert. Für diese Erklärung spricht zusätzlich, dass eine Umpolung des Manipulationsstroms und damit die Umpolung der Zuleitungen zu einer Ablösung eines Teils der sichtbaren Kontamination führen und sich die Kontamination anschließend an der nach Umpolung negativeren Elektrode der Manipulationsstruktur wieder anlagert.

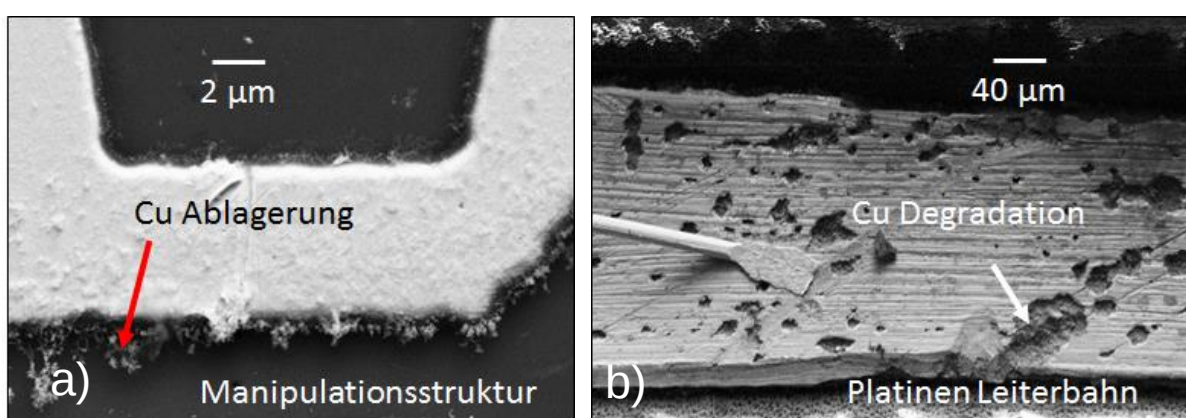


Abbildung 88: REM Aufnahme einer Manipulationsstruktur nach Verwendung in destilliertem Wasser bei einem Manipulationsstrom von $I = 83 \text{ mA}$ (a) und exemplarisch gezeigte REM Aufnahme einer degradierten Platinenleiterbahn (b)). Die Leiterbahn war mittels Au Wirebond (links im Bild zu sehen) mit der Manipulationsstruktur verbunden.

Da unklar ist, in wie weit sich eventuell noch in der Flüssigkeit gelöste Cu Ionen auf die Manipulierbarkeit der Partikel auswirken, muss die Leiterbahndegradation vermieden werden, um während Langzeitexperimenten möglichst konstante Randbedingungen gewährleisten zu können. Um die Kontamination der magnetischen Falle zu verhindern, wurde der Aufbau der gesamten Einheit aus Platine und Manipulationsstruktur entsprechend der Darstellung in Abbildung 89 abgeändert. Zunächst wird die Platinenleiterbahn bis auf kleine Bereiche mittels wasserfestem Silikonspray (violett) abgedeckt und damit vom späteren Flüssigkeitsreservoir isoliert. Die magnetische Falle wird anschließend aufgebracht und mittels Drahtbonden an die noch offenen Bereiche der Platinenleiterbahn kontaktiert. Diese Bereiche werden anschließend ebenfalls von der flüssigen Umgebung isoliert. Im letzten Schritt wird das mittels eines PDMS Rings eingegrenzte Flüssigkeitsreservoir aufgebracht und komplett verschlossen. In allen unter Isolation der Platine von der Flüssigkeitsumgebung durchgeführten Langzeitexperimenten konnte selbst über Zeiträume von mehreren Stunden keine optisch erkennbare Ablagerung von Cu auf der Manipulationsstruktur mehr festgestellt werden.

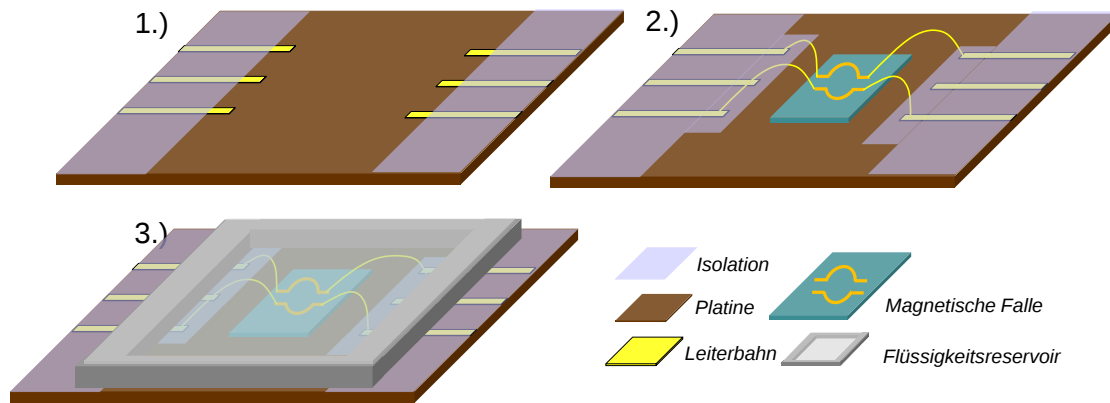


Abbildung 89: Aufbau des Messsetups zur Langzeitbeobachtung von Partikelfluktuationen in der Falle: 1.) Isolation der Platinenleiterbahn. 2.) Einbringen der Fallenstruktur und Kontaktierung mittels Wirebonden. Abschließende Isolation der noch ungeschützten Platinenleiterbahnen. 3.) Aufbringen des durch PDMS umrahmten, nach oben abgeschlossenen Flüssigkeitsreservoirs.

A10 Langzeit-Fallenexperimente mit PBS-Wasser Gemischen

Wie oben beschrieben werden Experimente, in denen lebende Zellorganismen verwendet werden, typischerweise in einer definierten Pufferlösung durchgeführt. Um die Eignung der in der Arbeit verwendeten Methode zur Partikelmanipulation für den Betrieb in PBS-Lösung zu untersuchen, wurde die Falle in einer PBS Lösung mit 1 vol% PBS Gehalt in Betrieb genommen. Dabei wurde ein einzelnes Partikel, das sich im inneren Bereich der Ringspule befindet, durch Zuschalten eines Ringstroms von $I = 70 \text{ mA}$ in einem externen Feld von $B_{\text{ext},z} = 3.3 \text{ mT}$ in Richtung der Fallenmitte transportiert. Dabei konnte beobachtet werden, dass sich über typische Zeiträume von wenigen Minuten starke Verunreinigungen in der Flüssigkeit in der Nähe der strombelasteten Leiterbahn ausbilden.

Abbildung 90a) zeigt eine optische Aufnahme der Leiterbahnstruktur für den Betrieb über einen Zeitraum $t = 10 \text{ min}$ nach dem Trocknen der Flüssigkeit. Vor allem im unteren Teil der Leiterbahn ist die Kontamination, die sich während des Experiments in der Flüssigkeit gebildet hat, als bräunliche Ablagerung im Bereich der Leiterbahn gut zu erkennen.

Abbildung 90b) zeigt eine SEM Aufnahme der Leiterbahnstruktur. Im Bereich zwischen den Zuleitungen lassen sich Kristallite innerhalb der abgelagerten Kontamination erkennen. Eine per EDX vermessene Elementverteilung (in Abbildung 90c) und Abbildung 90d) zeigt, dass die Kristallite im Wesentlichen aus Na und Cl bestehen. Die beiden Elemente bilden dabei den Hauptionenanteil innerhalb der PBS Lösung ($\sim 100 \text{ g/l}$). Dies bedeutet, dass während des Experiments Salzkristalle aus der PBS Lösung ausfallen, die sich in der Nähe der Leiterbahnstruktur anlagern können. In Abbildung 90e) ist eine EDX Verteilung des Elements Cu gezeigt, was sich ebenfalls in der Nähe der Leiterbahn anlagert. Dieses kann entsprechend den vorher gezeigten Befunden erneut der Degradation der Platinenleiterbahn zugeordnet werden, da sich im PBS Puffer nominell keine Cu Ionen in gelöster Form befinden und die Platinenleiterbahn für dieses Experiment nicht von der

flüssigen Umgebung isoliert war. Unter den hier aufgezeigten Bedingungen (hohe Strombelastung der Leiterbahn) lässt sich aufgrund der beobachteten Kontamination kein langzeitstabiles Experiment bei definiertem PBS Gehalt von 1 vol% durchführen, weshalb für alle Langzeitexperimente bei hoher Strombelastung auf die Beimengung von PBS verzichtet wurde und in reinem, destilliertem Wasser gearbeitet wurde. Zukünftig sollte zur Vermeidung des Ausfällens der im PBS enthaltenen Salze die Ringstruktur mit einem flächig abgeschiedenen Oxid oder Nitrid zur elektrischen Passivierung abgedeckt werden.

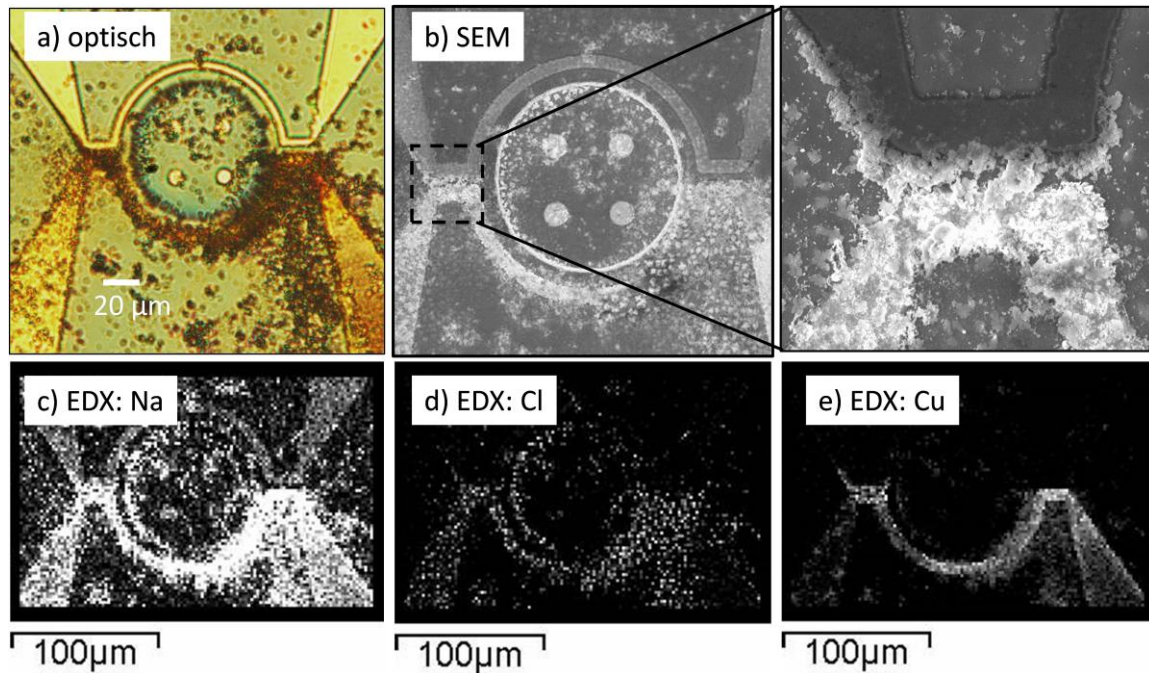


Abbildung 90: Kontamination der Ringfalle durch die PBS-Wasser-Lösung während eines Fallenexperiments. In a) ist eine optische Aufnahme der Fallenstruktur nach dem Manipulationsexperiment bei einem Strom von $I = 70 \text{ mA}$ gezeigt nach einer Zeit von $t = 10 \text{ min}$ gezeigt. In b) ist eine REM Aufnahme und ein daraus vergrößertes Ausschnitt gezeigt. Die entsprechenden mittels EDX ermittelten Elementverteilungen sind in c) (Na), d) (Cl) und e) (Cu) dargestellt.