## Kurzzusammenfassung

Die Integration von magnetischen Nanopartikeln in polymerbasierte weiche Gel-Matrices, so genannte Ferrogele, beinhaltet die Möglichkeit magnetische und gelartige Eigenschaften in einem Material zu vereinen.

Im Rahmen dieser Arbeit werden magnetoresponsive Hybridmaterialien basierend auf Polyacrylamid-Hydrogelen synthetisiert und charakterisiert. Der analytische Fokus liegt auf unterschiedlichen Wechselwirkungsgraden zwischen Matrix und Partikeln, welche mit externen Magnetfeldern untersucht werden.

Es werden neue Ferrohydrogele vorgestellt, in welchen spindelförmige Hämatit-Partikel als multifunktionale Vernetzer eine aktive Netzwerkkomponente darstellen. Die Vernetzung erfolgt während der Polymerisation durch kovalente Bindung der oberflächenfunktionalisierten Partikel an die Polyacrylamid-Matrix, wodurch eine starke magnetomechanische Partikel-Matrix-Wechselwirkung erwartet wird. Es wird gezeigt, dass der Vernetzungsgrad in diesen Ferrohydrogelen direkt von dem Partikelanteil und der Matrix abhängt und daher auch ihre Materialeigenschaften.

Eine genauere Analyse der Partikel-Matrix-Wechselwirkung in den partikelvernetzten Gelen wird mit Hilfe der Partikel als Nanosonden durchgeführt. Dafür werden anisotrope Polyacrylamid-Ferrohydrogele in Gegenwart eines Magnetfeldes hergestellt. Anschließend werden winkelabhängige magnetische Eigenschaften in Bezug auf die Partikel-Matrix-Wechselwirkung analysiert und evaluiert.

Das zweite untersuchte System mit den spindelförmigen Partikeln als Nanosonden sind chemisch vernetzte Polyacrylamid Ferrohydrogele, in welchen die Partikel in den Netzwerkmaschen eingebettet sind. Die Bestimmung der lokalen mechanischen Eigenschaften auf der Längenskala der Partikel erfolgt mittels Magnetisierungsmessungen in Kombination mit einem erweiterten Stoner-Wohlfarth Modell.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die präsentierten magnetoresponsiven, hydrogelbasierten Hybride neue magnetische Eigenschaften, basierend auf unterschiedlichen Mechanismen der Partikel-Matrix-Wechselwirkung, aufweisen. Die Ergebnisse geben einen wesentlichen Einblick in die Netzwerkarchitektur und die nanomechanischen Eigenschaften der untersuchten Ferrohydrogele. Dadurch wird das Potential magnetischer Nanosonden zur strukturellen Untersuchung und die Manipulation von weicher Materie mit (quasi-)statischen magnetischen Feldern aufgezeigt. Die Untersuchung der Wechselwirkungsart zwischen partikulären Füllern und der Polymer-Matrix ist ein wichtiger Schritt, um optimierte intelligente Materialien für Anwendungen wie weiche Aktuatoren, Sensoren oder Abscheidevorrichtungen zu entwickeln, für die Hybrid-Hydrogele vielversprechende Materialien sind.

## **Abstract**

The integration of magnetic nanoparticles into polymer-based soft gel matrices, resulting in so-called ferrogels, implies the possibility to combine magnetic and gel-like properties within a single material.

In this thesis, magnetoresponsive hybrid materials based on polyacrylamide (PAAm) hydrogels are synthesized and analyzed. The work focusses on different degrees of interaction between matrix and particles, analyzed with the particles as nanoprobes in external magnetic fields.

A new type of ferrohydrogel is considered, in which spindle-like hematite nanoparticles act as multifunctional crosslinkers. The surface-functionalized particles are covalently linked to the polyacrylamide hydrogel matrices during the polymerization to obtain a strong magnetomechanical particle-matrix interaction. It is demonstrated that the degree of crosslinking in these ferrohydrogels depends directly on the fraction of incorporated particles as well as the matrix and thus the material characteristics as well.

Further, the particles are used as nanoprobes to obtain more information about the interaction between particles and matrix with covalent bonding. In this case, anisotropic particle-linked PAAm ferrohydrogels are synthesized with an applied magnetic field during polymerization. Afterwards angle-dependent magnetic characteristics are analyzed and evaluated with respect to the particle-matrix interactions.

In conventionally crosslinked PAAm hybrid gels the particles are employed to determine local mechanical characteristics of soft matter. For this purpose, electrostatically stabilized hematite particles are introduced into the network meshes of PAAm gels. The samples are investigated with quasi-static magnetometry and analyzed with an extended Stoner-Wohlfarth model to determine the relative shear modulus.

In summary, the presented magnetoresponsive hydrogel-based hybrids show novel magnetic properties based on different mechanisms of particle-matrix interaction. The results provide a substantial insight into the network architecture and the nanomechanical characteristics of the ferrohydrogels, indicating the potential of magnetic nanoprobes for the structural investigation and the manipulation of soft matter by using (quasi-)static magnetic fields. The investigation of the nature of interaction between particulate fillers and the polymer matrix is an important step towards optimized systems including the development of smart materials for applications like soft actuators, sensors or separation devices, for which hybrid hydrogels are promising candidates.