

# Abstract

The effects of dipolar interparticle interaction on the magnetic properties of self-assembled structures of magnetic nanoparticles are studied in this thesis. As the magnetic properties of the individual nanoparticles can already greatly differ from bulk material, the presented studies proceed to first determine the non-interacting nanoparticle properties from dispersion before the magnetism in nanostructures is discussed. This allows to make unbiased conclusions onto which observations are an effect from interparticle interaction and which are an effect from the individual nanoparticles.

The collective magnetism is studied for four different types of magnetic nanostructures: loosely packed nanospheres, monolayers of long-range ordered nanocubes in square arrays, double layers of nanocubes in square arrays with non-magnetic spacer material of variable thickness in between, and at last three-dimensional colloidal crystals of nanocubes. The non-interacting nanoparticle properties are determined by small-angle X-ray and (polarized) neutron scattering on dilute dispersions, as well as complimentary electron microscopy, X-ray diffraction and vibrating sample magnetometry experiments. Then the structure and magnetism of the arranged particles is resolved by grazing-incidence small-angle scattering and reflectometry. The results are compared with the nanoparticle properties in dispersion, as well as with expectations of dipolar interaction for the nanoparticles on the determined interparticle distances, to conclude on collective magnetic effects.

For the detailed evaluation of the nanoparticle structural and magnetic properties, the superballed form factor is introduced and used for the case of cubically shaped nanoparticles to account for the deviation from a perfect cube shape by rounded surfaces. It is shown that the superballed form factor in comparison to the limiting cases of either a spherical or cubic form factor provides the best description of the observed scattering data in multiple cases. For the preparation of the monolayer structure, an evaporation-driven self-assembly procedure to achieve long-range order for oleic acid-ligated nanoparticles into a two-dimensional lattice is developed. It is shown that the method is capable to be extended to the preparation of double layers by combining the method with homogeneous inter layers, which is used to perform a first systematic study on interlayer dipolar interaction between nanoparticle layers.

# Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit werden die Effekte dipolarer Wechselwirkung auf die magnetischen Eigenschaften von selbstorganisierten Strukturen magnetischer Nanoteilchen diskutiert. Da die magnetischen Eigenschaften der Nanoteilchen selbst bereits stark von denen ausgedehnter Materialien abweichen können, werden zunächst die nicht-wechselwirkenden Nanoteilchen in Dispersion charakterisiert bevor der Magnetismus innerhalb von Nanostrukturen untersucht wird. Dies erlaubt unvoreingenommen Schlussfolgerungen ziehen zu können, welche Beobachtungen Interaktionseffekte sind und welche Effekte von den Nanoteilchen selbst ausgehen.

Der kollektive Magnetismus wird für vier verschiedene Arten magnetischer Nanostrukturen untersucht: lose gepackte Nanokugeln, Monolagen von langreichweitig geordneten Nanowürfeln in quadratischen Anordnungen, Doppelschichten der quadratischen Anordnungen mit nichtmagnetischem Zwischenmaterial variabler Dicke, so wie dreidimensionale kolloidale Kristalle aus Nanowürfeln. Die nicht-wechselwirkenden Eigenschaften der Nanoteilchen werden durch Kleinwinkel Röntgen- und (polarisierter) Neutronenstreuung an verdünnten Dispersionen, sowie durch komplementäre Elektronenmikroskopie-, Röntgenbeugungs- und Magnetometrieexperimente bestimmt. Anschließend wird die Struktur und der Magnetismus der angeordneten Teilchen durch Kleinwinkel Streuung unter streifendem Einfall und Reflektometrie bestimmt. Die Ergebnisse werden mit den Eigenschaften der nicht wechselwirkenden Nanoteilchen, sowie mit den Erwartungen für dipolare Wechselwirkung auf den ermittelten Längenskalen verglichen, um auf Effekte kollektiven Magnetismus zu schließen.

Zur detaillierten Bewertung der strukturellen und magnetischen Eigenschaften der Nanoteilchen wird der Superball-Formfaktor eingeführt und für kubisch geformte Nanoteilchen angewandt, um die Abweichung von einer perfekten Würfelform durch abgerundete Oberflächen zu beschreiben. Es wird gezeigt, dass im Vergleich zum kugelförmigen oder kubischen Formfaktor in mehreren Fällen dies die beste Beschreibung der beobachteten Streudaten liefert. Für die Herstellung der Monolagenstruktur wird ein auf Verdampfung basierendes Selbstorganisationsverfahren entwickelt, um eine weitreichende Ordnung für Ölsäure-beschichtete Nanoteilchen in einem zweidimensionalen Gitter zu erreichen. Es wird gezeigt, dass das Verfahren auf die Herstellung von Doppelschichten ausgedehnt werden kann, indem es mit homogenen Zwischenlagen kombiniert wird, um eine erste systematische Untersuchung für dipolare Wechselwirkung zwischen Nanoteilchenschichten durchzuführen.