

Thema: Experimentelle Realisierung von rauschinduziertem Transport mit periodischem Antrieb, FKZ: 13N7121  
Projektleiter: Prof. Dr. Peter Hänggi  
Institut für Physik, Universität Augsburg  
Universitätsstr. 1, 86135 Augsburg.

## Realisierung von rauschinduziertem Transport mit periodischem Antrieb

Christiane Kettner, Peter Hänggi (Universität Augsburg) und  
Frank Müller (Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik, Halle).

### 1 Einführung

Auf Mikrometerskalen verhalten sich Teilchen in einem Medium auf oftmals überraschende Weise anders, als man es von der Newtonschen Mechanik her erwarten könnte: Teilchen, auf die keine erkennbaren Kräfte wirken, laufen auseinander. Teilchen in einem Ratschenpotential (periodisches Potential von asymmetrischer Form) können sich entgegen der Richtung einer von außen angelegten Kraft bewegen [1]. Es sind sogar ausgeprägte Hysterese-Effekte in Kraft-Geschwindigkeitsdiagrammen entdeckt worden, ganz ähnlich denen von Magnetisierungskurven [2].

Der Hintergrund dieser Merkwürdigkeiten ist das Zusammenspiel von deterministischen Kräften mit stochastisch fluktuierenden Zufallskräften. Letztere resultieren aus unzähligen vielen Stößen der mikrometergroßen Teilchen mit den sie umgebenden, noch viel kleineren, Luft- oder Wassermolekülen, welche temperaturbedingte Zitterbewegungen ausführen. Die Tatsache, daß man es also nicht mit einigen wenigen Körpern in einem passiven Medium zu tun hat, sondern mit einem hochdimensionalen, gekoppelten System, führt zu interessanten, hochgradig nichtlinearen physikalischen Effekten.

### 2 Konzept einer Mikropumpe mit rauschinduziertem Transport

Die grundlegende Idee unseres Projekts ist es, die oben beschriebenen nichtlinearen Effekte zur Separation von mikroskopischen Teilchen im Bereich von ca.  $0.05 \mu m - 2 \mu m$  nach ihrer Größe zu verwenden. Eine konkrete Anwendungsmöglichkeit sehen wir in der Chemie, Medizin oder Biologie beim Analysieren von Gemischen aus Makromolekülen. Die vorgestellte Mikropumpe hat, da sie nach völlig andersartigen Prinzipien arbeitet als die bisher zu solchen Zwecken eingesetzten Geräte, bestimmte generische Vorteile gegenüber diesen, u.a. die Eignung zu großem Durchsatz, wegen hoher Parallelität und guter

Transportgeschwindigkeit, sowie das Fehlen von sterischen Effekten, die die Trennung bestimmter Teilchengrößen verhindern würden.

Das Kernstück unseres Geräts ist eine flache Scheibe aus makroporösem Silizium [3, 4] mit einer Ausdehnung von etwa  $1\text{ cm} \times 1\text{ cm}$ . Das linke Bild in Abb. 1 zeigt eine Aufnahme des Materials aus Referenz [4]. Die parallelen Poren, welche den Silizium-Wafer der Dicke nach durchbohren, haben eine Länge von ca.  $150\ \mu\text{m}$ . Da die Abstände zwischen den Poren immer in etwa ihrem maximalen Durchmesser entsprechen, befinden sich über 1.5 Millionen nahezu identische Poren in der Scheibe.

Die Porendurchmesser variieren in unserem Fall periodisch von  $1.4\ \mu\text{m}$  bis  $4\ \mu\text{m}$ , wie im rechten Bild von Abb. 1 schematisch darstellt. In dieser Abbildung, wie auch in den folgenden numerischen Berechnungen, wurde die asymmetrische Porenform durch zwei Sinusmoden modelliert.

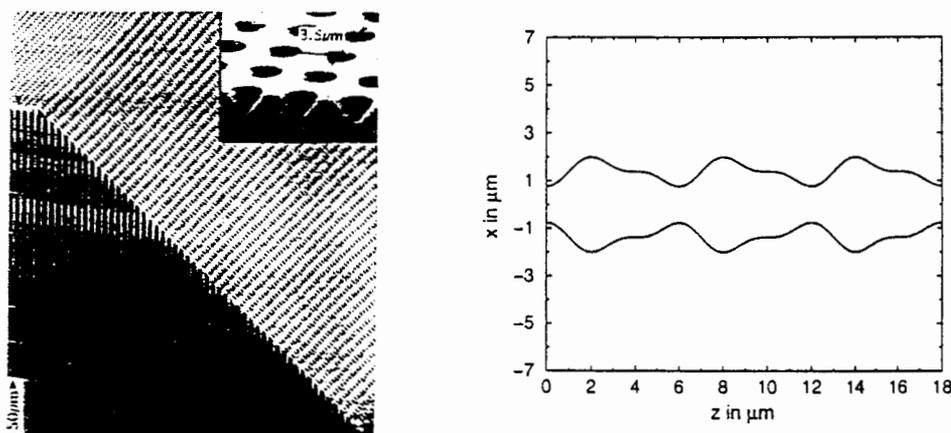


Abbildung 1: Links: Elektronenmikroskopische Aufnahme von makroporösem Silizium [4]. Rechts: Schematische Porenform: Schnitt entlang der Porenachse.

Die Siliziumscheibe steht in einem Becken mit einer Trägerflüssigkeit, die zeitlich periodisch hin- und hergepumpt wird, so daß alle Poren gleichmäßig durchströmt werden. Dabei soll die zeitgemittelte Strömung exakt verschwinden. Die nach der Größe zu trennenden Probeteilchen (wir verwenden Polystyrenkügelchen von Molecular Probes, Oregon) sind in der Trägerflüssigkeit enthalten. Der gewünschte Effekt besteht nun darin, daß sich trotz der im Mittel verschwindenden äußeren Kraft eine größenabhängige Nettobewegung der Kügelchen einstellt.

Aus theoretische Überlegungen läßt sich zwar auf die Existenz des Effekts schließen, nicht aber auf seine Größe. Zudem ist unser, speziell für dieses Projekt entwickelte Konzept der sog. „Driftratsche“ insofern neu, als es ohne das übliche Ratschenpotential auskommt und somit auch ohne Potentialmulden, in denen Teilchen lokalisiert werden können.

## 2.2 Berechnung des Strömungsverlaufs der Flüssigkeit

Der erste Schritt zur numerischen Beschreibung des Systems ist die Berechnung der Strömung der Flüssigkeit durch die Pore. Eine Abschätzung der relevanten Parameter wie Viskosität der Trägerflüssigkeit, Porendurchmesser, Strömungsgeschwindigkeit und der zeitlichen Periode des Pumpens ergibt, daß wir uns im laminaren und quasi-stationären Bereich befinden. Das bedeutet, daß Trägheitseffekte vernachlässigt werden können und sich die Navier-Stokes-Gleichung des System in guter Näherung auf folgende, zeitunabhängige Form bringen läßt:

$$\Delta \vec{v}(\vec{x}) = \frac{1}{\nu} \vec{\nabla} p(\vec{x}), \quad \text{mit } \vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0, \quad (1)$$

mit der dynamischen Viskosität  $\nu$  der als inkompressibel angenommenen Flüssigkeit. Sind aus Gleichung (1) das Geschwindigkeitsfeld  $\vec{v}(\vec{x})$  und das Druckfeld  $p(\vec{x})$  zu einem vorgegebenen Druckunterschied  $\Delta p_0$  zwischen Porenein- und ausgang bestimmt, dann ist wegen der Linearität der Gleichung auch das Geschwindigkeitsfeld für jeden anderen Druckunterschied  $\Delta p(t) = \Delta p_0 \cdot \sin(\omega t)$  bekannt. Das führt auf die komplette, wegen der quasi-stationären Näherung nur parametrisch zeitabhängige Lösung  $\vec{v}(\vec{x}, t) = \sin(\omega t) \cdot \vec{v}(\vec{x})$ .

## 2.3 Simulation der stochastischen Bewegung

Die Bewegungsgleichung eines Kügelchens in der viskosen Flüssigkeit wird zunächst im mit der Flüssigkeit mitbewegten Bezugssystem formuliert. Eine Abschätzung zeigt, daß auch hier die Bewegung reibungsdominiert ist, d.h. daß Bewegungen des Kügelchens relativ zur Flüssigkeit so stark gedämpft werden, daß Trägheitseffekte vernachlässigbar sind.

Die Zufallskräfte durch die thermischen Fluktuationen der Flüssigkeitsmoleküle können im thermischen Gleichgewicht, d.h. bei konstanter Temperatur  $T$ , durch weißes Rauschen beschrieben werden. Im ortsfesten System nimmt dann die Bestimmungsgleichung für die Bahnkurve  $\vec{x}(t)$  eines Kügelchens die Form einer sog. Langevin-Gleichung an, einer stochastischen Differentialgleichung erster Ordnung:

$$\dot{\vec{x}}(t) = \vec{v}(\vec{x}(t), t) + \sqrt{2D} \vec{\xi}(t). \quad (2)$$

Dabei ist  $D := kT/\eta$ , mit der Boltzmannkonstanten  $k$ , die thermische Diffusionskonstante. Die Stokesche Reibungskonstante  $\eta$  ist gegeben durch  $6\pi R \nu$ , mit dem Kugelradius  $R$  und der Viskosität der Flüssigkeit  $\nu$ . Die Vektor-Komponenten  $\xi_i(t)$ ,  $i = 1 \dots 3$  sind Gaußsche stochastische Prozesse, für die gilt  $\langle \xi_i(t) \rangle = 0$  und  $\langle \xi_i(t) \xi_j(t') \rangle = \delta(t - t') \delta_{ij}$ . Hier wie im Folgenden steht  $\langle \dots \rangle$  für eine Ensemblemittelung, d.h. eine Mittelung über verschiedene Realisierungen des Rauschens.

Die Lösung von (2) erfolgt durch numerische Integration bezüglich der Zeit, wobei  $\xi_i(t)$  jeweils von einem Zufallsgenerator geliefert wird. Dieses Verfahren wird im Folgenden als

Simulation bezeichnet. Statistische Aussagen wie die Ensemblemittelwerte  $\langle \vec{x}(t_{run}) \rangle$  oder  $\langle x^2(t_{run}) \rangle$  für eine beliebige Laufzeit  $t_{run}$  gewinnt man durch Mittelung über die Ergebnisse mehrerer Simulationen.

Zur unabhängigen Kontrolle haben wir noch ein alternatives Lösungsverfahren getestet: Dafür wird die Langevin-Gleichung (2) in eine Fokker-Planck-Gleichung, eine deterministische partielle Differentialgleichung für die Wahrscheinlichkeitsdichte  $P(\vec{x}, t)$  umgeschrieben, wobei  $P(\vec{x}, t)$  die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens am Ort  $\vec{x}$  zur Zeit  $t$  angibt. Diese Gleichung wird numerisch auf einem Ortsraumgitter gelöst. Allerdings hat sich herausgestellt, daß dieses Verfahren heikler ist als die Lösung von (2), denn wenn Lokalisierungseffekte in der Teilchenverteilung auftreten, weist  $P(\vec{x}, t)$  entsprechende Spitzen auf, was wegen der endlichen Feinheit des Gitters problematisch ist.

## 2.5 Ergebnisse der numerischen Berechnungen

Es ist uns gelungen, einen physikalisch sinnvollen Bereich im Parameterraum zu finden, in dem nennenswerte Transportgeschwindigkeiten von  $0.2 - 0.8 \mu m/s$  auftreten. Diese Werte sind ähnlich denen, die in biologischen Systemen auftreten, bei denen man rauschinduzierten Stofftransport vermutet [5].

Die relevanten Parameter in unserem System sind: Das Verhältnis der Viskosität der Trägerflüssigkeit zur Viskosität von Wasser, hier festgehalten bei  $1/2$ , die Pumpperiode  $t_p = 2\pi/\omega$ , hier festgehalten bei  $t_p = 0.025s$ , und die Amplitude des Pumpens: Sie wurde so angepaßt, daß ein Flüssigkeitsmolekül, welches auf der Porenachse in einer Engstelle startet, in einer halben Pumpperiode das 0.7-fache einer Porenperiode von  $6 \mu m$  zurücklegt. Dieser Werte wurde unter dem Gesichtspunkt der besten Ausnützung der Porensymmetrie gewählt.

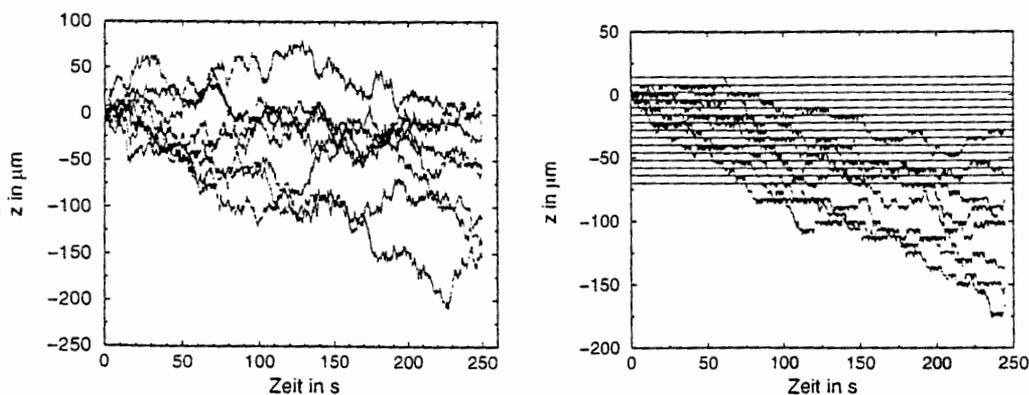


Abbildung 2: Trajektorien  $z(t)$  für Kugeldurchmesser von  $0.25 \mu m$ , bzw.  $0.7 \mu m$ .

Abb. 2 zeigt für diesen Standard-Parametersatz die z-Komponente der Trajektorien von Probekügelchen aus einer Simulationsrechnung, wobei nur jeder 500ste berechnete Punkt

aufgetragen wurde. Das linke Bild entspricht vergleichsweise kleinen Kügelchen mit einem Durchmesser von  $0.25 \mu m$ . Trotz starker Diffusion geht ihre mittlere Bewegung eindeutig zu negativen  $z$ -Werten hin, d.h. im rechten Bild von Abb. 1 nach links.

Das rechte Bild zeigt eine Simulation für Kügelchen mit einem Durchmesser von  $0.7 \mu m$ . Zusätzlich markiert mit horizontalen Linien sind hier die weitesten Stellen der Pore bei  $z = (2 \pm n \cdot 6) \mu m$  (vgl. Abb. 1 rechts). Der Transporteffekt ist nun viel deutlicher, zusätzlich stellt man Lokalisierungseffekte fest: Die Teilchen verweilen für längere Zeit zwischen Engstellen und den rechts davon liegenden weiten Stellen.

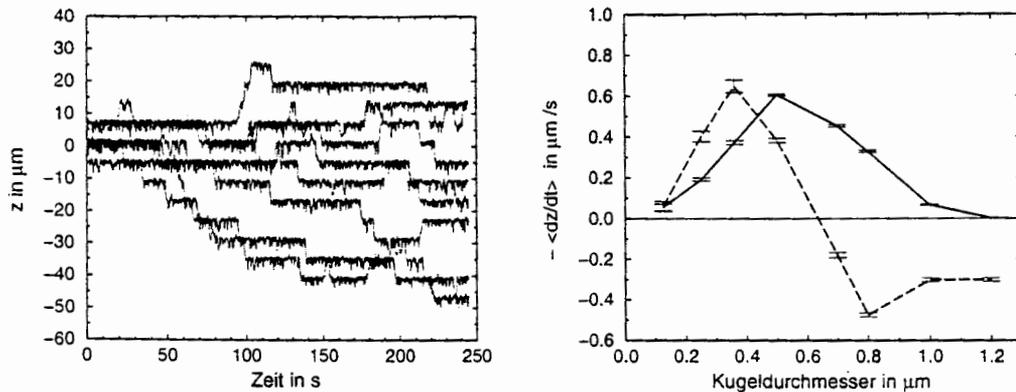


Abbildung 3: Links: Trajektorien für den Kugeldurchmesser  $1.0 \mu m$ . Rechts: Mittlere Transportgeschwindigkeit für bisherige Parameter, sowie für verdoppelte Pumpamplitude (gestrichelt).

Ganz deutlich wird der Lokalisierungseffekt bei großen Teilchen von  $1 \mu m$  Durchmesser, wie das linke Bild in Abb. 3 zeigt. Zudem geht die mittlere Transportgeschwindigkeit wieder zurück. Die Ursachen für dieses Verhalten sind zum einen die verstärkte Stokesche Reibung für größere Kügelchen, zum anderen einfach ihre Größe selbst:

Denn kleine Kügelchen schwimmen relativ kollisionsfrei mit der Flüssigkeitsströmung mit, und der Transport entsteht hauptsächlich durch Diffusion in schnellere oder langsamere Strömungsschichten. Dagegen kollidieren größere Kügelchen oft mit den Porenwänden, wodurch deren asymmetrische Form vermehrt zum Transport beitragen kann.

Vermutlich ist gerade durch die Überlagerung dieser zwei Effekte bei größeren Kügelchen eine Umkehr der Transportrichtung möglich, wie es das rechte Bild in Abb. 3 zeigt: Hier sind die (negativen) mittleren Transportgeschwindigkeiten  $\langle z(t_{run}) \rangle / t_{run}$  in  $\mu m/s$  aufgetragen. Die durchgezogene Linie entspricht den bisher verwendeten Parametern (siehe zweiter Absatz von 2.5), wohingegen die gestrichelte Linie einer verdoppelten Pumpamplitude entspricht. Hier bewegen sich die Kügelchen ab ca.  $0.6 \mu m$  Größe nach rechts durch die Poren (bzgl. Abb. 1, rechtes Bild), anstatt nach links.

## 3 Experimentelle Umsetzung

### 3.1 Erste Versuche

Bei dem Prototyp der Mikropumpe ist die poröse Siliziumscheibe in der Mitte eines geschlossenen Bassins befestigt, welches mit der Trägerflüssigkeit und einem Anteil gleichverteilter fluoreszierender Polystyrenkügelchen einer Größe gefüllt ist. An einer Stirnseite des Bassins wird über einen Schlauch durch die Kolbenbewegung eines Elektromotors Flüssigkeit hinein- und herausgepumpt. Die andere Stirnseite des Beckens ist mit einer elastischen Membran verschlossen. Durch die so erzeugte periodische Durchströmung der Poren setzt der Mikropumpen-Effekt ein, und die Konzentration der Polystyrenkügelchen steigt in einer Hälfte des Beckens deutlich an. Dieser Anstieg wird mittels Photolumineszenz nachgewiesen. Aktuell (Stand 3.2.99) sind diese Vorversuche in der Aufbauphase.

### 3.2 Nächste experimentelle Schritte

Das eigentlich Ziel der Experimente wird es sein, die praktische, schnelle und genaue Separation von Teilchen zwischen ca.  $0.1 \mu\text{m}$  und  $1.2 \mu\text{m}$  nachzuweisen. Dazu werden wir ein zu trennendes Gemisch mehrerer Teilchengrößen auf einer Seite des Geräts einspritzen. Die Parameter werden so justiert, daß gezielt nur kleinere Teilchen durch die Poren transportiert werden, weil größere nur in umgekehrter Richtung laufen können. Durch die schnelle Veränderlichkeit der Transportgeschwindigkeit mit der Größe kommen die kleineren Teilchen wiederum zu verschiedenen Zeiten im gegenüberliegenden Bassin an. Wenn dies nicht ausreicht, die kleineren Teilchen ihrerseits sauber nach ihrer Größe zu separieren, sollte man den Durchlauf mit ihnen wiederholen, wobei man die Pumpamplitude so justiert, daß wieder eine Umkehr der Transportgeschwindigkeit ausgenützt werden kann. Für technische Anwendungen kann auch eine Serienschaltung mehrerer Elemente in Betracht gezogen werden.

#### Referenzen:

- [1] R. Bartussek, P. Hänggi, Phys. Blätter **51** (1995) 506-507.
- [2] F. Jülicher, A. Ajdari, J. Prost, Rev. Mod. Phys. **69** (1997) 1269.
- [3] Posterbeitrag „Mikropumpen aus makroporösem Silizium“, F. Müller, Ch. Kettner, A. Birner, U. Gösele.
- [4] S. Ottow, V. Lehmann, H. Föll, J. Electrochem. Soc. **143** (1996), No.1, 385.
- [5] S. Leibler, Nature **370** (1994) 412.