

Elektro-optische Phänomene in nematischen Flüssigkristallen

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)

genehmigt durch die Fakultät für Naturwissenschaften
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

von

Jana Heuer

geboren am 05.02.1980 in Wernigerode

Gutachter:

Prof. Dr. Ralf Stannarius

Prof. Dr. Christian Wagner

eingereicht am 18.02.2009, verteidigt am 08.06.2009

Kurzfassung

Dipl.-Phys. Jana Heuer: Elektro-optische Phänomene in nematischen Flüssigkristallen

Flüssigkristalle sind durch ihre bemerkenswerten elektro-optischen Eigenschaften nicht nur Ausgangspunkt vieler Technologien, sondern auch fruchtbarer Gegenstand der Grundlagenforschung. Einerseits finden sie Anwendung in Displays, elektronischer Tinte oder adaptiven Linsen. Flüssigkristalle sind aber auch hervorragend geeignet, um beispielsweise Strukturbildungsphänomene und die dynamischen Eigenschaften periodisch angeregter Systeme im Allgemeinen zu untersuchen.

Die vorliegende Dissertation beschäftigt sich mit zwei Arten elektro-optischer Phänomene in nematischen Flüssigkristallen, mit der elektrohydrodynamischen Konvektion (kurz: Elektrokonvektion) sowie mit dem Fréederickszübergang. Der erste Themenschwerpunkt beinhaltet die Untersuchung der dynamischen Eigenschaften der Elektrokonvektionsmuster. Die räumlichen und zeitlichen Eigenschaften der elektrisch getriebenen Konvektionsmuster hängen von den zeitlichen Symmetrien der Anregungswellenform ab. Hier wird in Abhängigkeit dieser Symmetrien untersucht, wie sich die Eigenschaften der Konvektionsmuster ändern, wenn die Anregungsfunktion zeitlich gespiegelt wird.

Die Ausbildung neuartiger Strukturen in unkonventionellen flüssigkristallinen Materialien ist Inhalt des zweiten Themenschwerpunkts. Die Abhängigkeit der Art der Muster von den Anregungsparametern, die besonderen optischen Eigenschaften der Strukturen sowie die Übergänge zwischen verschiedenen Mustertypen werden untersucht.

Der Fréederickszübergang ist Thema des dritten Schwerpunkts. Diese Umorientierung des Direktors wird unter Einfluss eines inhomogenen elektrischen Feldes in Kombination mit einem Magnetfeld betrachtet. Ein bereits im Experiment beobachteter, die räumliche Symmetrie brechender Effekt wird theoretisch beschrieben und numerisch vorausgesagt.

Abstract

Dipl.-Phys. Jana Heuer: Electro-optic phenomena in nematic liquid crystals

Liquid crystals are due to their striking elektro-optic properties not only fundamental for many technologies but they are also object of fruitful basic research. On the one hand they are fundamental for the development of displays, electronic ink or adaptive lenses. But liquid crystals are also particularly suitable to investigate for example pattern forming phenomena und dynamic properties of periodically excited systems in general.

In the present dissertation, two electro-optic phenomena in nematic liquid crystals are studied: the electro-hydrodynamic convection (EHC) as well as the Fréedericksz transition. The first topic deals with the investigation of the dynamic properties of convection patterns. The spatio-temporal properties of the electrically driven patterns depend on the temporal symmetries of the excitation wave form. Here, depending on these symmetries, the changes of the properties of the EHC patterns are investigated when the excitation function is time reversed.

The formation of novel structures in unconventional liquid crystal materials is the second topic. The dependence of the type of the convection patterns on the excitation parameters, the certain optic properties as well as transitions between different pattern types are investigated.

The third topic is the Fréedericksz transition. This reorientation of the director ist studied under the influence of a combination of an inhomogeneous electric field and a magnetic field. An experimentally observed effect that breaks the spatial symmetry is described theoretically and investigated by means of numeric calculations.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Flüssigkristalle	7
2.1	Allgemeine Eigenschaften von Mesophasen	7
2.2	Bent-core-Mesogene	11
2.2.1	Faszinierende Eigenschaften	12
2.2.2	Nematische Phase	14
3	Elektro-optische Effekte	19
3.1	Fréederickszübergang	20
3.1.1	Fréederickszübergang im Magnetfeld	21
3.1.2	Fréederickszübergang im elektrischen Feld	24
3.1.3	Fréederickszübergang in alternativen Geometrien	26
3.1.4	Kombinierter Fréederickszübergang unter Einfluss magnetischer und elektrischer Felder	29
3.1.5	Optik des Fréederickszübergangs	30
3.1.6	Periodischer Fréederickszübergang	33
3.2	Flexoelektrischer Effekt	35
3.3	Elektrokonvektion	37
3.3.1	Mechanismus	40
3.3.2	Bedeutung und Einfluss der Anisotropien	44
3.3.3	Optische Charakterisierung der Konvektionsstrukturen	50

4	Dynamische Eigenschaften eines dissipativen strukturbildenden Systems	57
4.1	Modell	58
4.2	Analytische Untersuchung	61
4.3	Stabilitätsanalyse und numerische Trajektorien	63
4.3.1	Wellenformen	65
4.3.2	Numerische Ergebnisse	66
4.4	Experimentelle Schwellkurven und Trajektorien	70
4.4.1	Experimentelle Methode	70
4.4.2	Vergleich von experimentellen und numerischen Ergebnissen	74
4.5	Diskussion des Einflusses der Zeitumkehr der Anregung	81
5	Neue Konvektionsmuster in unkonventionellen Materialien	85
5.1	Experimentelle Methode	86
5.1.1	Polarisationsmikroskopie	87
5.1.2	Substanz und Zellparameter	88
5.1.3	Die dielektrische und die Leitfähigkeitsanisotropie	89
5.2	Longitudinale Konvektionsmuster oberhalb der Fréederickszschwelle	93
5.2.1	Wesentliche Merkmale der Longitudinalrollen .	93
5.2.2	Dynamik der Muster	96
5.2.3	Optisches Profil	98
5.3	Parameterkontrollierte Übergänge zwischen den verschiedenen Musterarten	102
5.4	Metastabile Domänen	109
5.5	Diskussion der unkonventionellen Elektrokonvektion . .	113
6	Fréederickszübergang im inhomogenen elektrischen Feld	119
6.1	Motivation - vorangegangene Experimente	120
6.2	Simulation des Direktorfeldes	124
6.3	Intensitätsprofile	135

6.4	Diskussion des Symmetriebruchs während des Fréedericksz- übergangs	142
7	Zusammenfassung und Ausblick	145
A	Übersicht über die verwendeten Mesogene	149
B	Materialparameter für die numerischen Berechnungen	151
C	Herleitung der Bedingung für die kombinierte Fréedericksz- schwelle	153
D	Verzeichnis der verwendeten Größen	157
	Literaturverzeichnis	161

1 Einleitung

Die Eigenschaft von flüssigkristallinen Schichten, ihr optisches Erscheinungsbild im äußeren elektrischen Feld drastisch und schnell ändern zu können, hat zu einer Revolution der Bildschirm- und Anzeigetechnologie geführt. Die Entwicklung von lichtemittierenden Displays zu Flüssigkristallanzeigen, welche entweder von hinten beleuchtet werden oder Umgebungslicht reflektieren [1,2], hat das alltägliche Leben entscheidend verändert. Flachbildschirme und mobile Displays haben durch ihr leichtes Gewicht, einen geringen Energieverbrauch sowie durch hohe Bildqualitäten das Wachstum der Märkte für drahtlose Kommunikation, mobiles Entertainment und mobiles Internet vorangetrieben und bilden damit eine Grundlage der modernen mobilen Gesellschaft. Elektronisches Papier (siehe z.B. [3] und Referenzen darin) ist bereits in Form von Prototypen auf dem Markt und könnte in Zukunft vermehrt in elektronischen Büchern, Zeitschriften und Werbeplakaten Verwendung finden.

Andere spannende Anwendungen von elektro-optischen Effekten flüssigkristalliner Materialien finden sich unter anderem im medizinischen Bereich, beispielsweise in Form von adaptiven Linsen für Brillen, welche ihre Fokusstärke verändern können. Das Auge verliert mit steigendem Alter seine Flexibilität und damit die Fähigkeit, einfallendes Licht zu fokussieren. Das Problem, nicht zufriedenstellend zwischen dem Fokus naher und ferner Objekte wechseln zu können, wurde bisher mit geteilten Brillengläsern gelöst, welche mehrere Segmente für die jeweils benötigte Fokusebene enthalten. Diese Technologie schränkt allerdings in der Regel das Sichtfeld ein und erfordert eine Bewegung des Kopfes. Eine Linse, deren Fokus man durch elektrische Anregung verändern kann, würde die-

se entscheidenden Nachteile vermeiden und eine mechanische Bewegung unnötig machen. Nematische Flüssigkristalle haben sich durch ihre spezifischen elektro-optischen Eigenschaften, nämlich eine schnelle Schaltbarkeit, verbunden mit geringen Arbeitsspannungen und hoher Beugungseffizienz als äußerst gut geeignete Materialien für die Entwicklung von adaptiven Linsen erwiesen (Überblick und Referenzen beispielsweise bei Li et al. [4]).

Faszinierend an nematischen Flüssigkristallen ist das Entstehen von Mustern, also von räumlich nicht homogenen Strukturen, unter dem Einfluss elektrischer Felder [5, 6]. Bei der Ausbildung von Strukturen in Natur [7] und Labor [8] verlieren räumlich und zeitlich gleichförmige Systeme unter der Einwirkung äußerer Störungen ihre Stabilität und entwickeln sich aus dem Gleichgewichtszustand in einen stationären Nichtgleichgewichtszustand. So können Muster mit periodischem oder chaotischem Verhalten in Raum und Zeit entstehen. Eine nematische Flüssigkristallschicht im äußeren elektrischen Feld stellt ein geeignetes Modellsystem zur Untersuchung von Strukturbildungsphänomenen dar. Wenn das System instabil wird, können periodische Verformungen der mittleren Molekülausrichtung auftreten, welche optisch als reiches Spektrum an räumlichen Mustern beobachtbar sind. Es werden sowohl regelmäßige Strukturen ausgebildet, wie beispielsweise Streifen, Gitter oder Zickzackmuster, als auch turbulente Texturen.

Eines dieser Strukturbildungsphänomene ist die elektro-hydrodynamische Konvektion (kurz Elektrokonnektion), bei welcher sich elektrisch getriebene Konvektionsmuster mit einer Vielfalt an räumlichen und zeitlichen Eigenschaften ausbilden. Wegen ihrer einfachen Kontrollierbarkeit ist die Elektrokonnektion ein hervorragendes Modellsystem, um dynamische Eigenschaften periodisch angeregter Systeme, insbesondere dissipativer musterbildender Systeme, zu studieren. Der Einfluss der Anregungsfunktion auf die raumzeitliche Charakteristik der Muster in solchen Systemen ist bereits Forschungsgegenstand gewesen. Die Faradayinstabilität beispielsweise ist eine Oberflächeninstabilität einer vertikal geschüttelten

viskosen Flüssigkeit [9, 10] und wurde unter dem Einfluss von periodischen Anregungen mit mehreren Frequenzkomponenten und Phasenverschiebungen zwischen diesen Komponenten untersucht [11–14]. Auch in der Elektrokonvektion selbst spielt der Einfluss der Anregungswellenform auf die Musterdynamik eine große Rolle [15, 16]. Betrachtet man Systeme, deren Grundzustand oberhalb eines kritischen Schwellwertes des kontrollierenden Anregungsparameters instabil wird, stellt sich eine wesentliche Frage: Bleibt das Schwellverhalten invariant unter Zeitumkehr der Anregungswellenform oder wird es signifikante Veränderungen geben? Die zweite interessante Fragestellung ist: Falls beide zeitgespiegelte Anregungsfunktionen dieselben Schwellwerte liefern, kann es dennoch wesentliche Unterschiede im zeitlichen Verhalten der dynamischen Systemvariablen geben? Diese beiden Fragen werden in dieser Arbeit anhand der Elektrokonvektion in nematischen Flüssigkristallen erörtert, wobei die Systemantwort unter Einfluss von Anregungsfunktionen mit verschiedenen zeitlichen Symmetrien sowohl experimentell wie auch theoretisch betrachtet wird.

Die Elektrokonvektion an nematischen Flüssigkristallen liefert nicht nur Erkenntnisse über die Dynamik periodisch getriebener Systeme, sondern auch über Mechanismen, welche zur Ausbildung von räumlich und zeitlich periodischen Strukturen führen. In den letzten Jahren wurden neuartige Konvektionsmuster beobachtet, welche in Substanzen aufgetreten sind, die ungewöhnliche Kombinationen der relevanten Materialparameter [17–20] aufweisen. Die Mechanismen, welche diesen Mustern zugrunde liegen, sind bisher nur zum Teil verstanden. Die detaillierte experimentelle Analyse des optischen Erscheinungsbildes dieser Muster sowie der Abhängigkeit des Schwellverhaltens von den Anregungsparametern können Anhaltspunkte für die Entwicklung entsprechender Modelle liefern. Das zweite Thema dieser Arbeit beschäftigt sich daher mit einer ausführlichen experimentellen Untersuchung neuartiger unkonventioneller Konvektionsstrukturen. Auch Übergänge zwischen verschiedenen Mustertypen, welche durch ein Material mit bisher wenig untersuchter

Materialparameterkombination hervorgebracht wurden, werden betrachtet.

In dieser Arbeit werden neben Strukturbildungsphänomenen auch nicht-periodische elektro-optische Effekte in nematischen Flüssigkristallschichten untersucht. Der Fréederickszeffekt ist als homogene Umorientierung der mittleren Molekülausrichtung im externen Feld das grundlegende Prinzip für eine große Anzahl an Displayanwendungen [1], wird aber auch zur Bestimmung von Materialkonstanten benutzt [21]. Da das Verhalten von Flüssigkristallen im äußeren Feld sehr komplex und unter anderem abhängig von der gewählten Geometrie ist [6], sind im Zusammenhang mit dem Fréederickszeffekt immer wieder neue Phänomene zu beobachten. Die Modellierung dieser Effekte ist Voraussetzung für eine gute Kontrollierbarkeit der anwendenden Systeme. Im dritten Themengebiet dieser Arbeit wird der Fréederickszeffekt unter Einfluss eines inhomogenen elektrischen Feldes in Kombination mit einem Magnetfeld betrachtet. Das Ziel dabei ist die theoretische Beschreibung und numerische Vorhersage eines bereits im Experiment beobachteten Effekts, bei welchem die Brechung der räumlichen Symmetrie eine herausragende Rolle spielt.

Der folgende Inhalt dieser Arbeit beginnt mit einer Einführung der hier relevanten Eigenschaften von Flüssigkristallen in Kapitel 2 sowie mit einer Vorstellung elektro-optischer Phänomene wie dem Fréederickszübergang oder der elektro-hydrodynamischen Konvektion in Kapitel 3. Die drei folgenden Kapitel enthalten die erzielten Ergebnisse in den drei erwähnten Themengebieten. Die Untersuchung des Einflusses der Zeitumkehr der Anregung auf die räumlichen und dynamischen Eigenschaften der Konvektionsmuster erfolgt in Kapitel 4, die Analyse unkonventioneller Konvektionsstrukturen in Kapitel 5 sowie die Modellierung des Fréederickszübergangs im inhomogenen äußeren Feld in Kapitel 6. Die Arbeit schließt mit Zusammenfassung und Ausblick in Kapitel 7 sowie mit einem Überblick über die im Experiment verwendeten Substanzen im Anhang. Der Anhang umfasst zusätzlich noch die Parameter, welche für die numerischen Berechnungen verwendet wurden, die Herleitung

der Fréederickszschwelle unter gleichzeitigem Einfluss eines elektrischen und eines magnetischen Feldes sowie ein Verzeichnis der verwendeten Größen.

2 Flüssigkristalle

Das Faszinierende an Flüssigkristallen ist ihr Phasenreichtum, der sie für immer neue Forschungs- und Anwendungsgebiete interessant werden lässt. Durch die Ausbildung eines ganzen Spektrums an Phasen, welche sich vor allen Dingen in den translatorischen Freiheitsgraden sowie den Punktgruppensymmetrien unterscheiden, sind einfach zu handhabende Übergänge zwischen wesentlichen Materialeigenschaften optimal zu realisieren. De Gennes und Prost [5], Stewart [21], Chandrasekhar [22] sowie Demus et al. [23] geben einen Überblick über die Physik der Flüssigkristalle. Für die vorliegende Arbeit spielt die Eigenschaft von Flüssigkristallen, eine erhebliche immanente Doppelbrechung zu besitzen, eine herausragende Rolle. In Kombination mit der Fähigkeit, sich im elektrischen Feld umorientieren zu können, wird die Beobachtung von außerordentlichen elektro-optischen Effekten ermöglicht, von denen hier einige untersucht werden sollen. Die dafür relevanten Eigenschaften nematischer Flüssigkristalle sind in Abschnitt 2.1 zusammengefasst. Die beobachteten Phänomene hängen zum Teil entscheidend davon ab, welches spezifische Material verwendet wird. Bent-core-Mesogene mit ihrer gebogenen Molekülform weisen außergewöhnliche Eigenschaften und Effekte auf (Abschnitt 2.2).

2.1 Allgemeine Eigenschaften von Mesophasen

Bestimmte organische Substanzen können in gewissen Temperatur- oder Konzentrationsbereichen flüssigkristalline Phasen bilden. In dieser Arbeit werden ausschließlich thermotrope Materialien betrachtet, welche

abhängig von der Temperatur verschiedene Mesophasen ausbilden, also Phasen zwischen dem festen und dem flüssigen Zustand. Diese „Mesogene“ genannten Substanzen sind bei bestimmten Temperaturen flüssig und isotrop, es gibt also keine mittlere Vorzugsorientierung der Moleküle (Abbildung 2.1, rechts). Eine Verringerung der Temperatur führt zur Ausbildung flüssigkristalliner Phasen, deren charakteristisches Merkmal eine räumliche Anisotropie ist. Das vollständige Phasenspektrum von Mesogenen findet sich in der Überblicksliteratur (z.B. [5, 21–23]). Für die vorliegende Forschungsarbeit wurden nematische Phasen verwendet, welche im Gegensatz zum isotropen Zustand eine Vorzugsorientierung besitzen (Abbildung 2.1, Mitte). Die Moleküle der Substanzen, welche flüssigkristalline Phasen ausbilden, bestehen in der Regel aus mehreren aromatischen Ringen, welche entweder direkt oder durch Verknüpfungsgruppen aneinander gebunden sind. Laterale Ketten befinden sich an den beiden Längsseiten des Moleküls. Die Längsachsen der Moleküle ordnen sich vorzugsweise parallel zu einander an. Es besteht allerdings keine langreichweitige Wechselwirkung zwischen den Schwerpunkten der Moleküle. Sowohl Translation als auch Rotation um die Moleküllängsachse sind möglich. Die mittlere Vorzugsrichtung der Moleküle wird durch den Einheitsvektor \mathbf{n} , den Direktor, beschrieben. Die Vektoren \mathbf{n} und $-\mathbf{n}$ sind in der nematischen Phase physikalisch nicht unterscheidbar. Bei Temperaturen unterhalb der nematischen Phase kommt es in vielen Mesogenen (den polymorphen Mesogenen) zu einem Übergang zu Phasen mit niedrigerer Symmetrie. Zur Abgrenzung der für diese Arbeit relevanten nematischen Phase soll hier nur noch die smektische genannt werden, welche zusätzlich zum Direktor \mathbf{n} noch eine Schichtstruktur mit wohldefiniertem Schichtabstand ausbildet (Abbildung 2.1, links). Die nematische Phase wird in vorliegender Forschungsarbeit bevorzugt, da diese die einfachste Mesophase mit der höchsten Symmetrie ist.

Durch die Bearbeitung der Oberfläche, welche ein nematisches Mesogen kontaktiert, kann eine gleichförmige Orientierung des Direktors erreicht werden. Wird diese oberflächeninduzierte Orientierung im Volu-

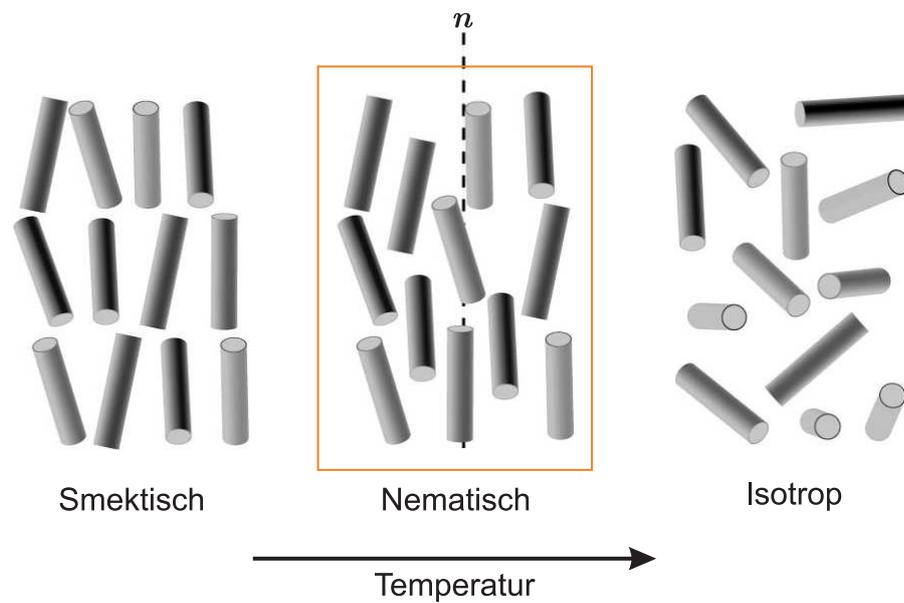


Abb. 2.1: Ausgewählte Phasen eines Mesogens mit dem Direktor \mathbf{n} in der nematischen Phase. Zylinder skizzieren Position und Orientierung der Moleküle.

men gestört, beispielsweise durch mechanische Verformung oder elektrische und magnetische Felder, wird in dem Direktorfeld eine Krümmungsspannung hervorgerufen. Die resultierenden Verformungen sind Kombinationen der drei grundsätzlichen Deformationsarten Spreizung (engl. splay), Verdrillung (engl. twist) sowie Biegung (engl. bend) (siehe Abbildung 2.2). Im Folgenden werden in Anlehnung an die gängige Literatur die englischen Begriffe verwendet. Die Direktororientierung besitzt eine be-

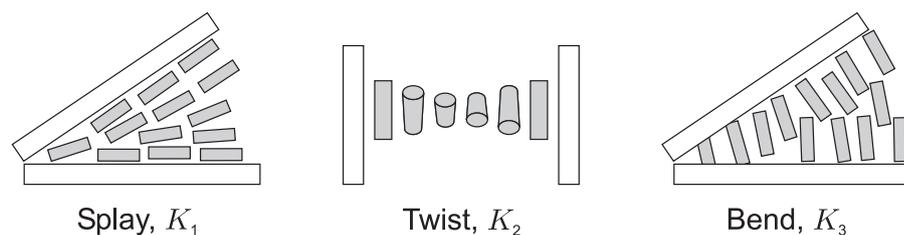


Abb. 2.2: Elastische Grunddeformationen des Direktorfeldes und zugehörige elastische Konstanten.

stimmte Elastizität. Das bedeutet, dass die anfängliche gleichförmige Orientierung des nematischen Direktors nach Aufhebung einer Störung, welche diesen Anfangszustand verändert hat, wieder zurückkehrt. Deshalb

wird eine freie Energiedichte angenommen, welche mit der Verformung des anisotropen Direktorfeldes einhergeht. Die Frank-Oseen-Theorie liefert die elastische freie Energiedichte bei Betrachtung der flüssigkristallinen Probe als inkompressibel (siehe z.B. [21]). Für Nematen mit gegebener Orientierung des Direktors an den angrenzenden Oberflächen, lautet diese

$$w_{\text{elast}} = \frac{1}{2} [K_1 (\nabla \cdot \mathbf{n})^2 + K_2 (\mathbf{n} \cdot \nabla \times \mathbf{n})^2 + K_3 (\mathbf{n} \times \nabla \times \mathbf{n})^2]. \quad (2.1)$$

Die elastischen Konstanten K_1 , K_2 und K_3 , geben die Stärke der Beiträge durch die drei Grunddeformationen Splay, Twist und Bend an. Der Beitrag der elastischen Verformungen zur freien Energiedichte ist stets positiv, $w_{\text{elast}} \geq 0$. Die gesamte freie Energie ergibt sich aus $\int_V w(\mathbf{n}, \nabla \mathbf{n}) dV$. Da in Forschung und technischer Anwendung üblicherweise äußere elektrische oder magnetische Felder angewendet werden, um das Direktorfeld auf eine gewünschte Art und Weise zu modulieren, fließen in die vollständige freie Energiedichte w außer der elastischen Energiedichte je nach Messaufbau noch die Beiträge der angelegten Felder ein.

Wie der Direktor sich im äußeren Feld verhält und ob das angelegte Feld stabilisierend oder destabilisierend auf den Grundzustand des Direktors wirkt, ist wesentlich von den Anisotropien der Materialkonstanten abhängig. Relevant sind hierbei die dielektrische Anisotropie $\Delta\varepsilon = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}$ und die Anisotropie $\Delta\sigma = \sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}$ der elektrischen Leitfähigkeit bei Anwendung eines elektrischen Feldes sowie die Anisotropie $\Delta\chi = \chi_{\parallel} - \chi_{\perp}$ der magnetischen Suszeptibilität im Magnetfeld. Die Indices \parallel bzw. \perp bezeichnen hierbei die jeweilige Größe parallel bzw. senkrecht zum Direktor. Flüssigkristalle sind diamagnetisch, d.h. χ_{\parallel} und χ_{\perp} sind beide negativ.

Der Grundzustand des Direktors ist abhängig von dessen Orientierung an den Oberflächen des angrenzenden Substrats. Eine bestimmte Direktororientierung kann durch die spezifische Behandlung der Oberflächen erzwungen werden. Üblicherweise wird das Mesogen in eine Zelle, bestehend aus zwei parallelen Glasplatten, gefüllt. Mit dem Auftragen verschiedener Substanzen auf die Innenseiten der Glasplatten kann die Rich-

tung des Direktors gesteuert werden. So wird eine geriebene Polyimidschicht zu einer planaren Grundorientierung des Direktors parallel zu den Glasplatten, also parallel zur Zellebene führen (Abbildung 2.3 (a)). Hingegen stellt sich eine homöotrope Anfangsausrichtung normal zur Zellebene (Abbildung 2.3 (b)) in der Regel ohne Oberflächenbehandlung ein bzw. wird durch Anwendung des Tensids DMOAP oder von Lecithin erzwungen. Auch eine Twistgeometrie des Grundzustands kann erzeugt

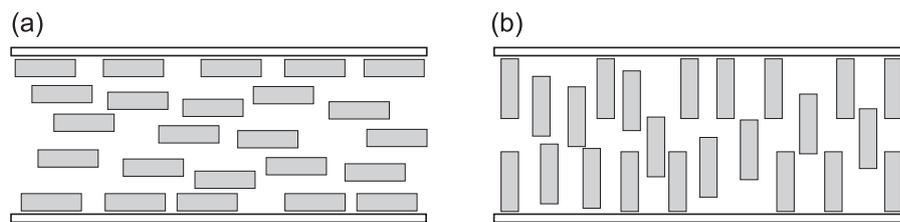


Abb. 2.3: Skizze des nematischen Direktorfeldes in planarer (a) und homöotroper Ausrichtung (b). Durchsichtige Balken kennzeichnen die Glasplatten. Das Verhältnis der Zelldicke zu den Glasplatten ist stark überhöht dargestellt.

werden, ist aber für die vorliegende Arbeit nicht relevant.

Wesentlich für die Entstehung elektro-optischer Effekte ist nicht nur die leichte Schaltbarkeit des Direktors im elektrischen Feld. Die optische Anisotropie der Mesogene ist grundlegend für Displayanwendungen aber auch für die in dieser Arbeit beobachteten Effekte. Besonders nematische Phasen weisen eine große Doppelbrechung im gesamten optischen Spektrum auf. Auf die optischen Eigenschaften der einzelnen Effekte wird in den jeweiligen Abschnitten in Kapitel 3 eingegangen.

2.2 Bent-core-Mesogene

Existenz und Eigenschaften der ausgebildeten Mesophasen hängen von der spezifischen Form der Moleküle ab. Die beiden typischsten Molekülformen sind Stäbchen sowie Scheiben. Während die Stabmoleküle calamitische Flüssigkristalle mit den konventionellen Phasen nematisch und smektisch bilden, bringen die Diskusmoleküle nematische und kolumnare Phasen, in denen sich die Moleküle säulenartig anordnen, hervor. Aber

auch exotische molekulare Geometrien wurden synthetisiert, welche zu einer Vielfalt an alternativen Mesophasen bzw. neuartigen Eigenschaften bestehender flüssigkristalliner Phasen führt (siehe Überblick von Blinov und Chigrinov [6] sowie von Goodby et al. [24]), darunter beispielsweise sternförmige Moleküle [25], Doppeldeckermoleküle [26] oder T-förmige Moleküle [27]. In den letzten Jahren richtete eine Mehrheit von Forschungsgruppen ihren Fokus auf Mesogene mit einer gebogenen Form des Molekülkerns, im Folgenden als Bent-core-Mesogene bezeichnet (engl. im Kern gekrümmt) [28, 29].

2.2.1 Faszinierende Eigenschaften

Grob skizziert besteht ein Bent-core-Molekül aus zwei stäbchenförmigen Segmenten mit einem Öffnungswinkel von $\gamma = 110^\circ$ bis weniger als 180° (Abbildung 2.4), welcher durch Frequenzverdopplung (engl. second harmonic generation, SHG), Röntgenbeugung oder kernmagnetische Resonanz (engl. nuclear magnetic resonance, NMR) ermittelt werden kann. Die Erzeugung flüssigkristalliner Phasen aus derart ungewöhnlich geform-

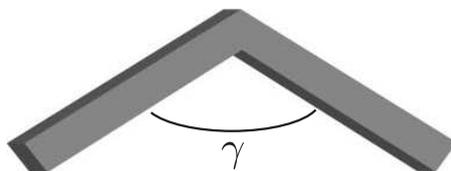


Abb. 2.4: Schema eines Bent-core-Moleküls mit Öffnungswinkel γ .

ten Molekülen war eine Herausforderung, deren Gelingen Mesogene hervorbrachte, welche durch besondere Eigenschaften ganz neuartige Forschungs- und Anwendungsfelder ermöglichen.

So können polare Phasen von klassischen stäbchenförmigen oder diskotischen Molekülen erzeugt werden, wenn diese Moleküle chiral sind. Prinzipiell ist aber die Chiralität der Moleküle keine Voraussetzung für die Ausbildung einer spontanen makroskopischen Polarisation. Das besondere an den Bent-core-Molekülen ist nun, dass diese dazu neigen, sich

aus sterischen Gründen ineinander liegend anzuordnen. Diese Ausrichtung polarer Moleküle hat ferro-, ferri- oder antiferroelektrische Eigenschaften der Phase zur Folge. Gekrümmte Moleküle sind also besonders geeignete Kandidaten für die Erzeugung polarer smektischer Phasen aus achiralen Molekülen (Abbildung 2.5), siehe z.B. Niori et al. [30]. Eine

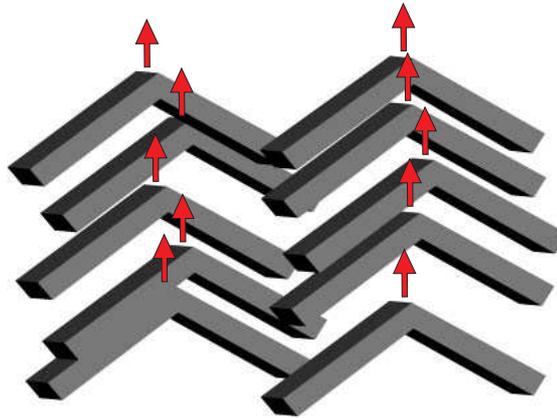


Abb. 2.5: Bent-core-Moleküle mit einem permanenten Dipolmoment (\uparrow) ordnen sich aus sterischen Gründen schichtweise an und bilden eine polare Phase.

weitere ungewöhnliche Eigenschaft ist die Ausbildung chiraler Phasen aus achiralen Bent-core-Molekülen in smektischen C Phasen, in welchen die Moleküle gegenüber der Schichtnormalen geneigt sind. Abbildung 2.6 zeigt zwei mögliche Anordnungen von Bent-core-Molekülen in einer chiralen smektischen C Phase. Im Beispiel links sind die Moleküle homogen aus der Schichtnormalen (\uparrow) heraus geneigt, die Dipole sind ebenfalls homogen ausgerichtet. Es handelt sich damit um eine synklone (SmC_S) und ferroelektrische (P_F) chirale Phase. Im Beispiel rechts alterniert zwar der Neigewinkel bezüglich der Schichtnormalen von Schicht zu Schicht, die Polarität aber ebenso. Damit liegt hier eine antikline antiferroelektrische chirale Phase vor (SmC_AP_A). Chirale Phasen können also auch aufgrund einer polaren Anordnung der Moleküle entstehen. Umgekehrt rufen chirale Phasen bestimmte makroskopische polare Eigenschaften hervor. Die Entstehung von ferroelektrischen bzw. antiferroelektrischen sowie homochiralen bzw. racemischen Phasen ist aneinander gekoppelt. Übergänge zwischen den vier Kombinationen dieser Phasen können durch den Ein-

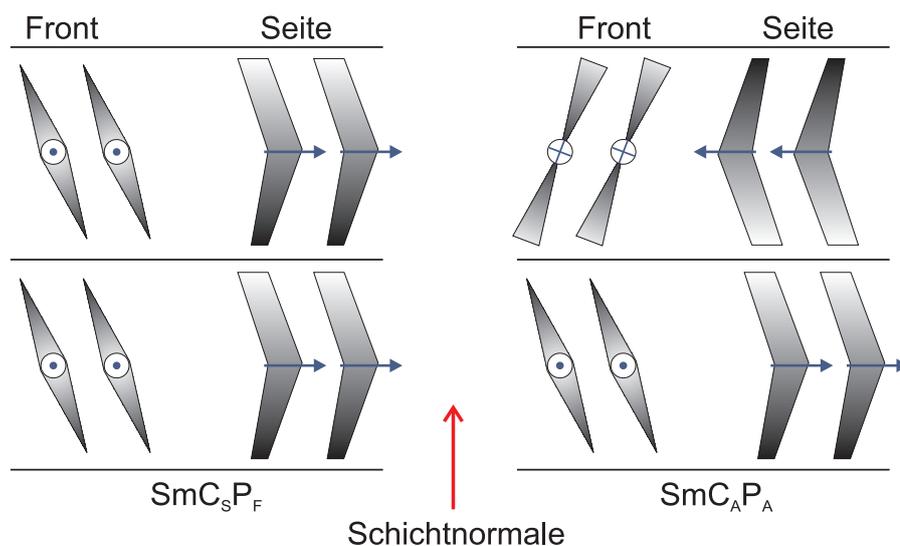


Abb. 2.6: Chirale smektische C Phasen aus achiralen Bent-core-Molekülen. Die Moleküle in den smektischen Schichten (—) sind bezüglich der Schichtnormalen (\uparrow) geneigt. Dunkel schattierte Bereiche befinden sich weiter hinten als die hell schattierten. Die Richtung der Dipole ist jeweils blau dargestellt.

fluss verschiedener elektrischer Felder gesteuert werden [29].

Beispiele für neuartige Mesophasen aus Bent-core-Molekülen, welche teilweise die oben erwähnten Eigenschaften aufweisen (siehe Übersicht von Takezoe und Takanishi [29]), sind die kolumnare B_1 -Phase und die polare B_2 -Phase, die innerhalb einer smektischen Schicht chiral ist, durch das Alternieren der Chiralität von Schicht zu Schicht jedoch makroskopisch racemisch erscheint. Die B_3 -Phase ist eine smektische Phase höherer Ordnung. Das Erscheinen transparenter dunkelblauer Domänen in der B_4 -Phase lässt auf eine Chiralität derselben schließen. Eine Anordnung der Moleküle in Schichten mit überlappenden Schichtgrenzen wird für die B_6 -Phase vermutet. Sehr außergewöhnliche Texturen bildet die B_7 -Phase aus, in welcher spiralförmige smektische Filamente, akkordeonähnliche oder auch schachbrettartige Texturen gefunden wurden.

2.2.2 Nematistische Phase

Aus Molekülen, welche weder calamitisch noch diskotisch sind, nematische Phasen zu bilden, birgt einige Schwierigkeiten in sich. In der nema-

tischen Phase können die Moleküle frei um ihre Längsachse rotieren. Da Bent-core-Moleküle dazu neigen, sich aus sterischen Gründen ineinander liegend anzuordnen (Abbildung 2.5), tendieren diese Mesogene eher zur Bildung von schichtförmigen bzw. smektischen Phasen. Dennoch ist es gelungen, nematische Bent-core-Phasen zu generieren, welche eine Reihe von faszinierenden Eigenschaften aufweisen [31].

Eine attraktive Eigenschaft von nematischen Bent-core-Mesogenen ist die Bildung einer biaxialen nematischen Phase [32–34]. Biaxiale nematische Phasen besitzen zusätzlich zum Direktor \mathbf{n} noch einen zweiten, zu \mathbf{n} orthogonalen Direktor \mathbf{m} und damit eine niedrigere Symmetrie als uniaxiale nematische Phasen (Abbildung 2.7 links). Während die uniaxiale nematische Phase der $D_{\infty h}$ -Symmetriegruppe angehört, besitzt die biaxiale nematische Phase eine D_{2h} -Symmetrie. Da erwartet wird, dass der Direktor \mathbf{m} schneller auf ein äußeres elektrisches Feld reagiert als der mit der Moleküllängsachse assoziierte Direktor \mathbf{n} , ist die Erforschung biaxialer nematischer Phasen im Hinblick auf Displayanwendungen bedeutsam. Bent-core-Moleküle sind besonders vielversprechend für die Bildung biaxialer nematischer Phasen, da bei ihnen die freie Rotation um die Moleküllängsachse eingeschränkt ist. Abbildung 2.7 zeigt die Molekülanordnung und die Direktoren in den beiden Phasen (links) sowie die zugehörigen Indexellipsoide (rechts) mit zwei Brechungsindizes in der uniaxialen und drei Brechungsindizes in der biaxialen Phase.

Die Existenz der biaxialen nematischen Phase wurde schon vor langer Zeit durch Molekularfeldberechnungen vorhergesagt [35] und zuerst in komplexen lyotropen Systemen [36] sowie in niedermolekularen thermotropen Systemen gefunden [37]. Simulationen wiesen die Stabilität biaxialer Phasen von Bent-core-Molekülen nach [38]. Dennoch sind die experimentellen Nachweise biaxialer Phasen in thermotropen Flüssigkristallen selten und umstritten [34, 39]. Der experimentelle Nachweis der biaxialen nematischen Phase kann durch unterschiedliche Methoden erfolgen (z. B. [29] und Referenzen darin), welche jedoch teilweise problematisch sind. Eine Untersuchung der Textur ergibt Informationen über die

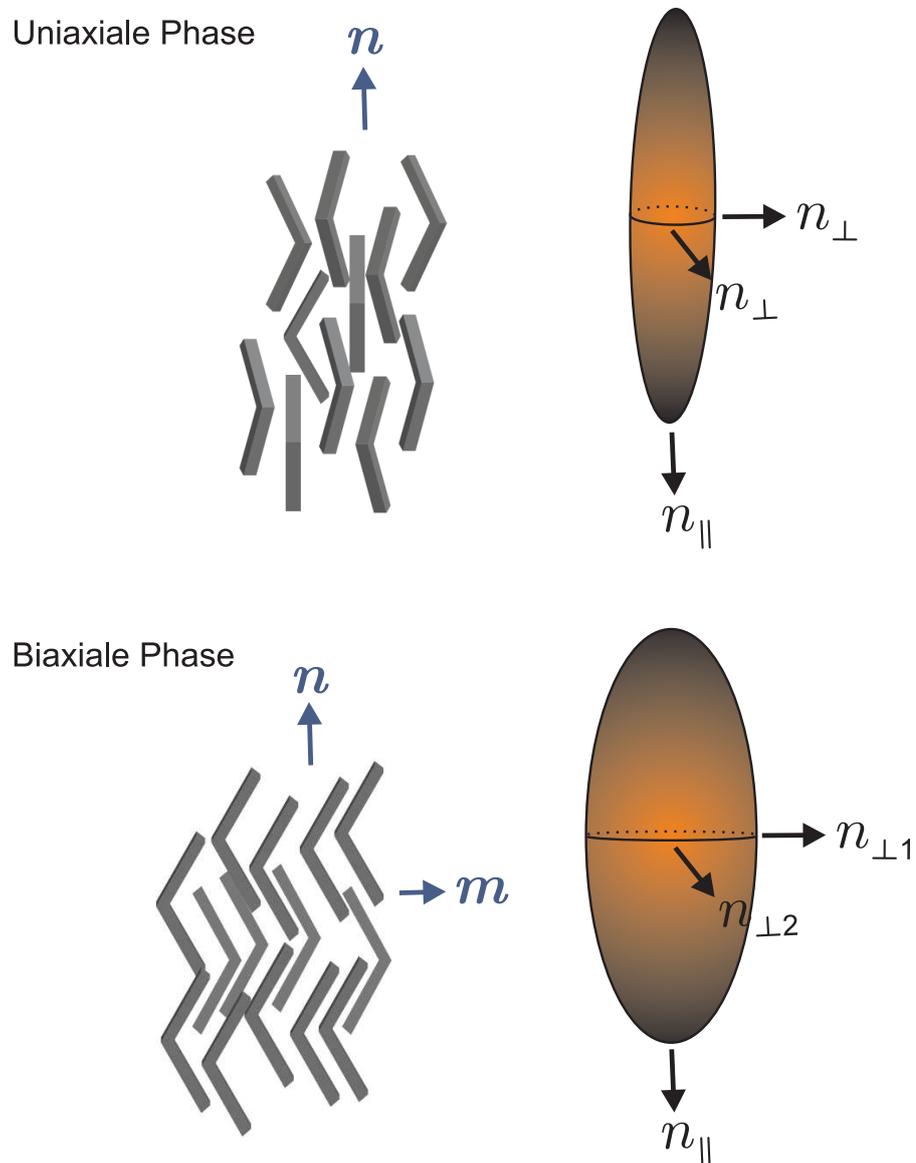


Abb. 2.7: Links: Molekülanordnung in der uniaxialen und der biaxialen Phase mit den Direktoren \mathbf{n} und \mathbf{m} . Rechts: Indexellipsoid für beide Phasen.

Art der topologischen Defekte. In biaxialen nematischen Phasen dürfen keine vierstrahligen (engl. four-brush) Defekte vorkommen, aber beispielsweise zweistrahlige (engl. two-brush). Die Abwesenheit von vierstrahligen Defekten ist allerdings kein Beweis für die Existenz der biaxialen nematischen Phase. Eine weitere Methode, um uniaxiale und biaxiale Phasen voneinander unterscheiden zu können, ist die Konoskopie, bei welcher die Probe im Polarisationsmikroskop in divergentem Licht betrachtet wird. Während bei uniaxialen Phasen zwei dunkle gekreuzte Linien im Sichtfeld erscheinen, entstehen in biaxialen Phasen zwei Isogyren, welche sich nicht mehr in der Mitte kreuzen. Doch auch diese Methode ist nicht unproblematisch, da in Abhängigkeit von der Dicke und der Homogenität der Probe uniaxiale Phasen als biaxial erscheinen können. Die Röntgenbeugung bei kleinen Beugungswinkeln liefert ein Paar diffuser Beugungsflecken für uniaxiale Phasen und eine Aufspaltung in zwei Paare für biaxiale Phasen. Das NMR-Spektrum einer mit H_2 markierten Probe zeigt eine quadrupolare Aufspaltung, also zwei Linienpaare, welche für die uniaxiale und die biaxiale nematische Phase spezifische Abstände besitzen. Doch auch hier ist die Eindeutigkeit der Methode umstritten [40].

Eine andere bemerkenswerte Eigenschaft von Bent-core-Nematiten ist die Entstehung einer außerordentlich großen flexoelektrischen Polarisations, wenn der Direktor einer Benddeformation ausgesetzt ist [31, 41, 42] (siehe dazu Kapitel 3).

Auch die Erforschung von Strukturbildungsphänomenen gewinnt mit der Verwendung von Bent-core-Mesogenen eine neue Qualität, da die nematischen Phasen dieser Substanzen bereits qualitativ neuartige Konvektionsmuster hervorgebracht haben [19, 31]. Die Untersuchung und Charakterisierung unkonventioneller Konvektionsstrukturen eines Bent-core-Nematiten ist daher auch Teil dieser Arbeit.

3 Elektro-optische Effekte

Elektrische und magnetische Felder können das Direktorfeld erheblich beeinflussen. Durch eine Flüssigkristallschicht transmittiertes Licht kann dadurch zum Beispiel Polarisationsänderungen, Beugungs- und Streueffekte erfahren. Damit bilden mesogene Phasen ein ideales Material, um mit einfach zu handhabenden Parametern von vor allen Dingen elektrischen Feldern komplexe optische Phänomene, von denen einige Thema dieser Arbeit sind, hervorzubringen und zu steuern.

Die Antwort des Direktors auf das äußere Feld ist dabei wesentlich abhängig von den Vorzeichen der Anisotropien der Materialkonstanten. Das Resultat können sowohl in der Zellebene gleichförmige Deformationen des Direktorfeldes sein, welche homogene optische Texturen hervorbringen, aber auch räumlich und/oder zeitlich periodische oder gar chaotische Direktorfelder mit entsprechend vielgestaltigen optisch beobachtbaren Mustern.

Einige elektro-optische Effekte wie beispielsweise der statische Fréederickszübergang (Abschnitt 3.1) oder der flexoelektrische Effekt (Abschnitt 3.2) basieren ausschließlich auf einer Direktorrotation ohne Bewegung des Materials. Andere Effekte sind außerdem hydrodynamischer Natur. Die elektro-hydrodynamische Konvektion etwa entsteht als Kombination von periodischer Direktorumorientierung und Wirbelströmung des flüssigkristallinen Materials (Abschnitt 3.3).

Im folgenden Kapitel werden hauptsächlich Deformationen des Direktors im elektrischen Feld beschrieben. Bei der Behandlung des Fréederickszübergangs ist es jedoch unumgänglich, auch auf magneto-optische Phänomene einzugehen.

3.1 Fréederickszübergang

Der Fréederickszübergang ist ein durch äußere Felder induzierter optischer Effekt, welcher unter anderem grundlegend für das Funktionieren von Flüssigkristalldisplays ist (für eine Übersicht siehe de Gennes und Prost [5], Stewart [21] sowie Virga [43]). Unter dem Einfluss äußerer elektrischer oder magnetischer Felder kann sich der Direktor \mathbf{n} in einer nematischen Phase umorientieren. Das bedeutet, dass sich die mittlere Ausrichtung der Moleküle des Mesogens bezüglich des Grundzustandes \mathbf{n}_0 ändert. Hierbei konkurriert die durch das äußere Feld induzierte Ausrichtung des Direktors innerhalb der Probe mit der Orientierung des Direktors an der Oberfläche, da beide durch rückstellende elastische Kräfte aneinander gekoppelt sind. Wird die Stärke eines destabilisierenden äußeren Feldes allmählich erhöht, wird \mathbf{n} oberhalb eines kritischen Wertes aus dem Grundzustand ausgelenkt. Dieser Schwellwert bestimmt die Fréederickszschwelle. Bei weiterer Erhöhung der Feldstärke erfolgt eine Umorientierung des Direktors, wobei die Direktorauslenkung in der Ebene parallel zu den Oberflächen, an denen \mathbf{n} verankert ist, überall gleich stark ist. Dieses Schalten des Direktors im äußeren Feld definiert den Fréederickszübergang. Voraussetzung für das Entstehen eines Fréederickszübergangs sind bestimmte Anforderungen an die Materialparameter. So muss die Anisotropie $\Delta\chi$ der magnetischen Suszeptibilität des Mesogens im Magnetfeld bzw. die dielektrische Anisotropie $\Delta\varepsilon$ im elektrischen Feld ein bestimmtes Vorzeichen besitzen. Die konkreten Bedingungen für die Werte der jeweils relevanten Anisotropie sind abhängig von der gewählten Geometrie und werden im folgenden für die speziellen Fälle erwähnt.

Die Splay- und Bendverformungen während des dynamischen Fréederickszübergangs verursachen nicht nur eine Rotation des Direktors, sondern auch eine Änderung der Position der Massenschwerpunkte der Moleküle. Dieser „Backfloweffekt“, also ein makroskopischer Fluss des nematischen Materials (siehe z.B. [6]), ist aber nicht grundlegend für die Veränderung der statischen optischen Textur während des Fréedericksz-

übergangs und wird daher nicht weiter ausgeführt.

Sowohl experimentell [44, 45] als auch theoretisch [46–49] wird der Fréederickszeffekt schon seit den 30er-Jahren untersucht. Self et al. [50] nehmen eine detaillierte theoretische Behandlung des Fréederickszübergangs im elektrischen Feld für verschiedene in der Anwendung relevante Erweiterungen und Parametergrenzfälle vor. Zu den aktuellen Forschungsthemen gehören beispielsweise Wände und Defekte während des Fréederickszübergangs [51–53], der optische bzw. lichtinduzierte Fréederickszeffekt [54], Ordnungseffekte [55], der Fréederickszübergang erster Ordnung [56] sowie der Fréederickszeffekt in Ferronematen [57].

Entsprechend der in vorliegender Arbeit untersuchten Fragestellung soll hier lediglich der Fréederickszübergang in homöotroper Geometrie betrachtet werden (siehe Abbildung 2.3 (b)), also eine Umorientierung des Direktors, welche im wesentlichen aus einer Benddeformation besteht. Für den Splay-Fréederickszübergang in der planaren Geometrie und den Twist-Fréederickszübergang in der Twistgeometrie erfolgt die theoretische Beschreibung analog, bis auf dass die elastischen Terme etwas abgewandelt und die veränderten Vorzeichenbedingungen für die Anisotropien der Materialkonstanten zu beachten sind.

3.1.1 Fréederickszübergang im Magnetfeld

Das Anlegen eines Magnetfeldes mit der Feldstärke \mathbf{H} kann ein Drehmoment auf den Direktor ausüben und denselben aus seinem Grundzustand auslenken. Die entsprechende freie Energiedichte beträgt

$$w_{\text{magn}} = -\frac{1}{2} \Delta\chi \mu_0 (\mathbf{n} \cdot \mathbf{H})^2. \quad (3.1)$$

Damit ergibt sich die Gesamtenergie pro Einheitsfläche über das Probenvolumen aus

$$W = \int_V (w_{\text{elast}} + w_{\text{magn}}) dV. \quad (3.2)$$

Da das Schalten des Direktors in der Zellebene homogen erfolgt, existieren keine dreidimensionalen Verformungseffekte. Eine Twistdeformation

tritt im Direktorfeld in der Regel nicht auf (siehe aber z.B. [58]), der elastische Anteil der freien Energiedichte (Gleichung 2.1) wird

$$w_{\text{elast}} = \frac{1}{2} [K_1 (\nabla \cdot \mathbf{n})^2 + K_3 (\mathbf{n} \times \nabla \times \mathbf{n})^2]. \quad (3.3)$$

Betrachtet wird der homöotrope Grundzustand des Direktors mit $\mathbf{n} = (0, 0, 1)$, das Magnetfeld befindet sich parallel zur Zellebene $\mathbf{H} = H(1, 0, 0)$ (Abbildung 3.1). Ist $\Delta\chi > 0$, wird \mathbf{n} dazu tendieren, sich parallel zum Ma-

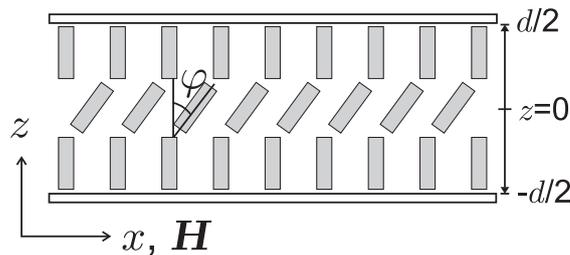


Abb. 3.1: Geometrie des magnetischen Fréederickszübergangs aus dem homöotropen Grundzustand heraus. Das Magnetfeld \mathbf{H} liegt in der Zellebene. Der Direktor wird um den Winkel φ aus der vertikalen Grundposition ausgelenkt. Die Dicke der Zelle beträgt d . Die geometrischen Verhältnisse, beispielsweise von Zelldicke zu Glasplatten, sind stark verzerrt dargestellt.

gnetfeld entlang der x -Achse auszurichten. Der Winkel φ ist die Auslenkung von $\mathbf{n} = (\sin \varphi(z), 0, \cos \varphi(z))$ aus dem, zu den Glasplatten senkrechten Grundzustand. Die beiden Richtungen der Direktorauslenkung φ und $-\varphi$ sind gleichwertig. Hier werden daher lediglich positive Winkel betrachtet. Der Direktor ist an den Oberflächen starr verankert, $\varphi(-d/2) = \varphi(d/2) = 0$.

Die Minimierung der Gesamtenergie aus Gleichung 3.2 gibt die Gleichgewichtsgleichung für \mathbf{n} (siehe beispielsweise Stewart [21]). Daraus erhält man den kritischen Wert H_F der Magnetfeldstärke an der Fréederickszschwelle

$$H_F = \frac{\pi}{d} \sqrt{\frac{K_3}{\mu_0 \Delta\chi}} \quad (3.4)$$

mit der Zelldicke d , der Bendkonstanten K_3 sowie der Anisotropie der magnetischen Suszeptibilität $\Delta\chi$. Ist $\Delta\chi$ des Mesogens bekannt, kann K_3 mit Hilfe des Bend-Fréederickszübergangs bestimmt werden.

Die Kenntnis der Fréederickszschwelle H_F ermöglicht es, das konkrete Direktorfeld für verschiedene Magnetfeldstärken in Abhängigkeit der vertikalen Raumkoordinate zu ermitteln, also $\varphi(H, z)$ zu berechnen. Für $0 \leq H \leq H_F$ existiert nur eine Lösung für das Direktorfeld, nämlich $\varphi \equiv 0$. Überschreitet die Feldstärke die Fréederickszschwelle, $H > H_F$, erhält man zwei Lösungen, nämlich das ungestörte sowie ein gestörtes Direktorfeld. Das gestörte Direktorfeld mit $\varphi \neq 0$ ist aber gegenüber dem ungestörten Grundzustand energetisch bevorzugt. Es handelt sich also um ein Bifurkationsszenarium, wobei die Stabilität der Lösung $\varphi = 0$ am Punkt $H = H_F$ von einer stabilen zu einer instabilen Lösung wechselt. Der Verlauf der maximalen Direktorauslenkung φ_{\max} ergibt sich aus [59]

$$\frac{H}{H_F} = \frac{2}{\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} d\beta \sqrt{\frac{1 + \kappa \sin^2 \varphi_{\max} \sin^2 \beta}{1 - \sin^2 \varphi_{\max} \sin^2 \beta}}, \quad \sin \beta = \frac{\sin \varphi}{\sin \varphi_{\max}}, \quad \kappa = \frac{K_1 - K_3}{K_3}.$$

Aus Symmetriegründen befindet sich φ_{\max} für die gewählte Geometrie stets in der vertikalen Mitte bei $z = 0$. Abbildung 3.2 (a) zeigt den Verlauf von φ_{\max} als Funktion der Magnetfeldstärke für die Näherung $K_1 = K_3$. Unterhalb der Fréederickszschwelle, $0 \leq H \leq H_F$, verbleibt der Direktor

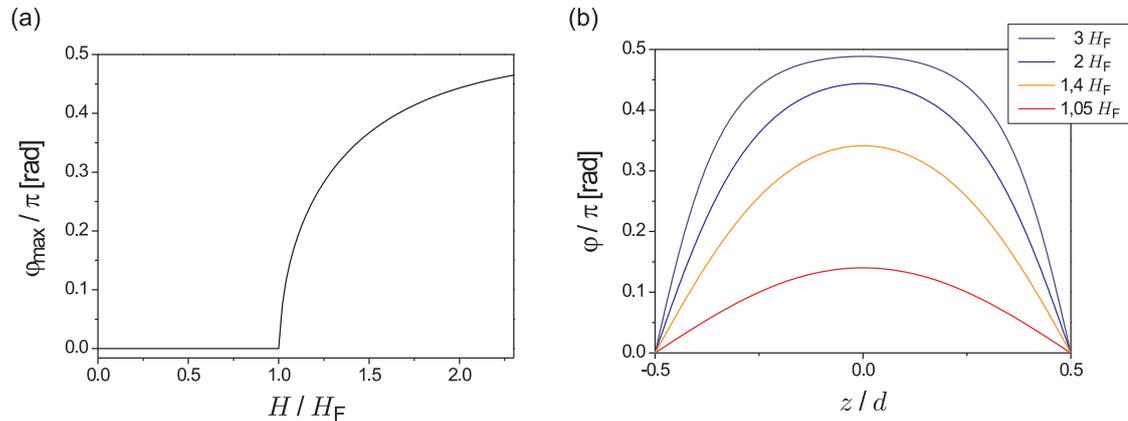


Abb. 3.2: (a) Maximale Direktorauslenkung φ_{\max} als Funktion der normierten Magnetfeldstärke. (b) $\varphi(z)$ für verschiedene Magnetfeldstärken H , $d = 50 \mu\text{m}$.

im unausgelenkten Grundzustand. Während des Fréederickszübergangs für $H > H_F$ steigt die Direktorauslenkung allmählich an, bis sie bei $\varphi_{\max} =$

$\pi/2$ sättigt. Dieser asymptotische Wert entspricht einem Direktor, welcher in der Ebene der maximalen Auslenkung parallel zur Zellebene ausgerichtet ist, in der Praxis aber meist zu hohe Feldstärken fordert, um erreicht werden zu können.

Die Direktorauslenkung $\varphi(z)$ entlang der z -Achse errechnet sich aus [59]

$$\left(\frac{z}{d} + \frac{1}{2}\right) \frac{H}{H_F} = \frac{1}{\pi} \int_0^{\varphi(z)} d\varphi' \sqrt{\frac{\cos^2 \varphi' + \frac{K_1}{K_3} \sin^2 \varphi'}{\sin^2 \varphi_{\max} - \sin^2 \varphi'}}, \quad -\frac{d}{2} \leq z \leq 0.$$

Die Lösung für $0 \leq z \leq \frac{d}{2}$ erhält man aus der Ersetzung $z \rightarrow -z$. In Abbildung 3.2 (b) ist $\varphi(z)$ für verschiedene Magnetfeldstärken H oberhalb der Fréederickszschwelle für die Näherung $K_1 = K_3$ dargestellt. An den Rändern ist $\varphi(z = -d/2) = \varphi(z = d/2) = 0$, während das Maximum von $\varphi(z)$ stets bei $z = 0$ liegt, also in der vertikalen Mitte der Zelle. Die Auslenkung des Direktors in der vertikalen Mitte der Zelle nimmt für steigende Magnetfeldstärken zu und sättigt bei $\varphi = \pi/2$.

3.1.2 Fréederickszübergang im elektrischen Feld

Der Fréederickszübergang kann auch im elektrischen Feld beobachtet werden, und zwar sowohl im Gleichfeld als auch im Wechselfeld. Zur Demonstration des Effektes wird hier lediglich der Fall angelegter Gleichspannung betrachtet.

Das elektrische Feld liefert zur freien Energiedichte den Beitrag

$$w_{\text{elek}} = -\frac{1}{2} \mathbf{D} \mathbf{E} \quad (3.5)$$

mit der dielektrischen Verschiebung $\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_{\perp} \mathbf{E} + \varepsilon_0 \Delta \varepsilon (\mathbf{n} \cdot \mathbf{E}) \mathbf{n}$. Damit ergibt sich die Gesamtenergie pro Einheitsfläche über das Probenvolumen aus

$$W = \int_V (w_{\text{elast}} + w_{\text{elek}}) dV,$$

mit w_{elast} aus Gleichung 3.3.

Es wird wieder der homöotrope Grundzustand $\mathbf{n} = (0, 0, 1)$ betrachtet (Abbildung 3.3). Das elektrische Feld ist normal zur Zellebene angelegt, $\mathbf{E} = (0, 0, E(z))$. Wenn nun die Anisotropie $\Delta\varepsilon$ der Dielektrizitätskonstanten negativ ist, wird der Direktor wie im Falle des magnetischen Bend-Fréederickszübergangs versuchen, sich parallel zur Zellebene auszurichten. Die Fréederickszschwelle ist durch den kritischen Wert E_F gekennzeichnet. Mit der vorgegebenen Geometrie entsteht also auch

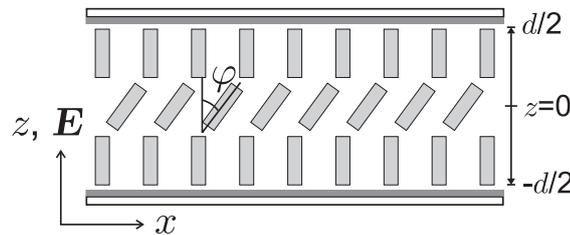


Abb. 3.3: Geometrie des elektrischen Fréederickszübergangs mit homöotropem Grundzustand. Das elektrische Feld \mathbf{E} ist normal zur Zellebene angelegt. Der Direktor wird um den Winkel φ aus der vertikalen Grundposition ausgelenkt. Die Dicke der Zelle beträgt d . Die Elektroden sind als graue horizontale Balken skizziert. Die geometrischen Verhältnisse, beispielsweise von Zelldicke zu Glasplatten, sind stark verzerrt dargestellt.

im elektrischen Feld ein Bend-Fréederickszübergang. Die Lösung erfolgt analog zum magnetischen Fréederickszübergang unter Einbeziehung eines zusätzlichen Effekts. Während das magnetische Feld von dem Mesogen nicht beeinflusst wird, verändert das anisotrope Material das elektrische Feld innerhalb der Zelle. E ist damit abhängig von z . Es wird das Potential $\Phi(x, z)$ mit $\mathbf{E} = -\nabla\Phi$ eingeführt. Für ein homogenes elektrisches Feld ist $\Phi(x, z) = \Phi(z)$. Es sei $\Phi(z = -d/2) = 0$ und $\Phi(z = d/2) = U$ die angelegte Spannung. Die Auslenkung des Direktors ist beim elektrischen Bend-Fréederickszübergang mit homöotropem Grundzustand in der x - y -Ebene entartet, es gibt für die Direktorauslenkung aus der Zellnormalen heraus keine ausgezeichnete Richtung. Betrachtet wird eine konstante y -Komponente des Direktors mit dem Lösungsansatz $\mathbf{n} = (\sin \varphi(z), 0, \cos \varphi(z))$ und der Randbedingung $\varphi(-d/2) = \varphi(d/2) = 0$. Die Gleichgewichtsgleichung für \mathbf{n} ergibt sich wieder aus der Minimierung

von W und liefert die kritische Fréederickszschwelle

$$U_F = \pi \sqrt{\frac{K_3}{\varepsilon_0 |\Delta\varepsilon|}}.$$

Die Direktorauslenkung verläuft in Abhängigkeit vom treibenden Parameter U und von der Koordinate z analog zu Abbildung 3.2. Aufgrund der gegenseitigen Beeinflussung von Direktor und elektrischer Feldstärke besitzt die dielektrische Anisotropie $\Delta\varepsilon$ einen erheblichen Einfluss auf die Direktorauslenkung [49]. Für große $\Delta\varepsilon$ sinkt die maximale Direktorauslenkung bei gegebenem Spannungsverhältnis U/U_F .

3.1.3 Fréederickszübergang in alternativen Geometrien

Die Anwendung des Fréederickszübergangs in der Displaytechnik motiviert die Untersuchung von Geometrien, die von den oben genannten abweichen. So sind nichtentartete Lösungen für das Direktorfeld relevant sowie auch kleine Reaktionszeiten des Direktors auf Veränderungen des äußeren Feldes. Bei der bisherigen Beschreibung des Fréederickszübergangs wurden feste Randbedingungen und eine Oberflächenorientierung des Direktors von $\varphi = 0$ betrachtet. Durch entsprechende Oberflächenbehandlung der Zelle kann der Direktor so verankert werden, dass er an den Oberflächen geneigt ist, also einen sogenannten Pretilt besitzt. Der Pretilt führt dazu, dass das gesamte Direktorfeld im Grundzustand, also ohne den Einfluss äußerer Felder, bereits ausgelenkt ist (Abbildung 3.4). Wird nun ein elektrisches oder magnetisches Feld angewendet, fin-

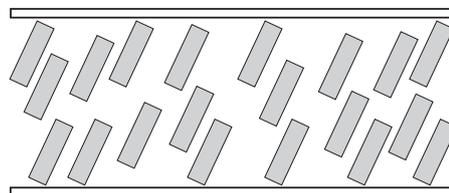


Abb. 3.4: Skizzierter Grundzustand mit Pretilt des Direktors an den Oberflächen.

det eine Umorientierung von \mathbf{n} statt, bei der die beiden Richtungen φ und $-\varphi$ der Direktorauslenkung nicht mehr gleichwertig sind. Es besteht eine

Vorzugsrichtung für die Auslenkung, die Lösungen für das Direktorfeld sind nicht mehr entartet [60].

Betrachtet man nun einen magnetischen Fréederickszübergang mit einem lateralen Magnetfeld wie in Abschnitt 3.1.1, muss die Randbedingung bei der Einbeziehung des Pretilts folgendermaßen lauten: $\varphi(-d/2) = \varphi(d/2) > 0$. Die Umorientierung des Direktors bei

$$H_F = \frac{\pi}{d} \sqrt{\frac{K_3}{\mu_0 \Delta\chi}}$$

ist nun kein scharfer Fréederickszübergang mehr wie in Abbildung 3.2 (a). Schon für $H = 0$ ist $\varphi_{\max} > 0$ und steigt dann in der Nähe von H_F auf eine Art und Weise stark an, dass kein scharfer Schwellwert mehr für die Umorientierung zu beobachten ist. Es findet keine Bifurkation mehr statt.

Ein ähnliches schwellenloses Schalten des Direktors ist zu erwarten, wenn das Magnetfeld in der Anordnung aus Abbildung 3.1 aus der Zellebene herausgekippt ist [21]. Die Aufhebung der Entartung der Lösungen für das Direktorfeld erfolgt analog zum Fall der Pretiltanordnung.

Der klassische Fréederickszübergang im Magnetfeld kann auf eine dritte Art und Weise modifiziert werden, nämlich durch das Einführen einer schwachen Verankerung des Direktors an den Grenzflächen der Platten [61]. Wird dann das Direktorfeld im homöotropen Grundzustand einem lateralen Magnetfeld ausgesetzt, findet für $H > H_F$ ein Fréederickszübergang statt, wobei der Direktor an den Grenzflächen den Winkel $\varphi_0(H)$ einnimmt, welcher für wachsende Feldstärken größer wird (Abbildung 3.5). Die Berechnung der Direktorauslenkung beinhaltet dann die Randbedingungen $\varphi(H, z = -d/2) = \varphi(H, z = d/2) = \varphi_0(H)$. Die Gesamtenergie enthält zusätzlich zum elastischen und zum magnetischen Beitrag (siehe Gleichungen 3.3 und 3.1) noch einen Term w_{oberfl} für die Oberflächenenergiedichte, welcher über den Rand S integriert wird:

$$W = \int_V (w_{\text{elast}} + w_{\text{magn}}) dV + \int_S w_{\text{oberfl}} dS$$

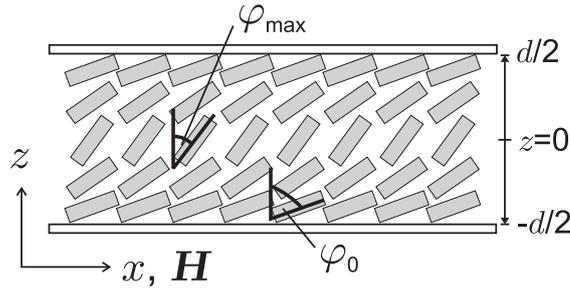


Abb. 3.5: Skizzierter Fréederickszübergang mit schwacher Verankerung. Der Direktor nimmt an den Grenzflächen den Winkel $\varphi_0(H)$ und bei $z = 0$ den Winkel $\varphi_{\max}(H)$ ein.

mit [21]

$$w_{\text{oberfl}} = \frac{1}{2} \tau_0 (1 + \omega (\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\nu})^2).$$

$\boldsymbol{\nu}$ ist der nach außen zeigende Einheitsvektor normal zur Grenzfläche mit dem Ansatz $\boldsymbol{\nu} = (0, 0, \pm 1)$. τ_0 mit der Einheit einer Energie pro Fläche ist positiv und ein Maß für die Stärke der Verankerung des Direktors an den Grenzflächen. Lautet der Direktoransatz wieder $\mathbf{n} = (\sin \varphi(z), 0, \cos \varphi(z))$, wird für $-1 < \omega < 0$ eine homöotrope Anordnung des Direktors energetisch bevorzugt, die planare Orientierung wird für den Fall $\omega > 0$ favorisiert. Die Gleichgewichtsgleichungen nach Minimierung der gesamten freien Energie führen zu einer Fréederickszschwelle für den Fall schwacher Verankerung von [21]

$$H_{\text{F,schwach}} = \frac{\tau_0 \omega}{\sqrt{K_3 \mu_0 \Delta \chi}} \tan \beta_0$$

bzw.

$$H_{\text{F,schwach}} = \frac{2}{d} \sqrt{\frac{K_3}{\mu_0 \Delta \chi}} \left(\frac{\pi}{2} - \beta_0 \right), \quad \beta_0 = \sin^{-1} \left(\frac{\sin \varphi_0}{\sin \varphi_{\max}} \right).$$

$H_{\text{F,schwach}}$ ist stets kleiner als die klassische Fréederickszschwelle H_{F} in Gleichung 3.4, nähert sich dieser aber für hohe Verankerungsstärken $\tau_0 \omega$ an. Wie auch beim klassischen Fréederickszübergang existiert für $H \leq H_{\text{F,schwach}}$ nur die unausgelenkte Lösung $\varphi \equiv 0$, während für $H > H_{\text{F,schwach}}$ sowohl die unausgelenkte als auch die ausgelenkte Lösung möglich sind. Die Lösung mit $\varphi_{\max} > 0$ ist aber energetisch bevorzugt. Der

Fréederickszübergang im Magnetfeld mit schwacher Verankerung des Direktors an den Grenzflächen bildet also eine scharfe Fréederickszschwelle aus. Der Vorteil gegenüber dem klassischen Übergang sind kleinere kritische Feldstärken sowie eine kürzere Reaktionszeit für die Auslenkung des Direktors aus dem Grundzustand heraus [6, 62].

3.1.4 Kombiniertes Fréederickszübergang unter Einfluss magnetischer und elektrischer Felder

Werden ein elektrisches und ein magnetisches Feld simultan angelegt, können sich in Abhängigkeit von der Lage der Felder bezüglich der Direktorgrundorientierung \mathbf{n}_0 und der Feldstärken verschiedene Verformungsregimes ausbilden. Wirkt eines dieser Felder auf den Grundzustand stabilisierend, während das andere das Direktorfeld destabilisiert, kann man mit wachsendem Anregungsparameter einen Fréederickszübergang erster Ordnung mit einem Sprung in der Direktorauslenkung beobachten [63, 64]. Dieser Fall zweier konkurrierender Felder wurde auch unter dem Einfluss von schwacher Verankerung und des Pretilts betrachtet [65, 66]. Wirken sowohl das elektrische wie auch das Magnetfeld destabilisierend auf den Direktorgrundzustand, können verschiedene Arten des Fréederickszübergangs ausgebildet werden. Befinden sich \mathbf{n}_0 , \mathbf{H} und \mathbf{E} alle orthogonal zueinander [67–69], bilden sich für große Magnetfeldstärken H und kleine elektrische Feldstärken E beispielsweise Twistverformungen aus. Splay- oder Splay-Bend-Verformungen treten bei kleinen H und großen E auf, während man gemischte Splay-Twist-Bend-Verformungen für vergleichbare Feldstärken erhält. Die vielfältigen Möglichkeiten, die Geometrien und die Materialparameter miteinander zu kombinieren, lassen ein reiches Spektrum an Effekten unter dem simultanen Einfluss elektrischer und magnetischer Felder zu (siehe z.B. auch Kini [66]).

3.1.5 Optik des Fréederickszübergangs

Durch das Schalten des Direktors während des Fréederickszübergangs sollen in technischen Anwendungen letztlich die optischen Eigenschaften der flüssigkristallinen Schicht auf die jeweils gewünschte Weise verändert werden. Andererseits kann vom optischen Profil bei äußeren Feldern auf die Direktorkonfiguration geschlossen werden. Basis für beide Forschungsfelder ist der grundlegende Zusammenhang zwischen dem Direktorfeld und dem transmittierten Licht (siehe beispielsweise [6, 23]).

Im Gegensatz zu isotropen Medien ist der Brechungsindex eines anisotropen Mediums abhängig von der Richtung und der Polarisationssebene des eingestrahlten Lichts. Nematische Phasen sind anisotrope Medien, welche im Fall stäbchenförmiger Moleküle optisch positiv sind. Ist das einfallende Licht parallel zur optischen Achse polarisiert, so ist der vom Licht erfahrene Brechungsindex n_{\parallel} größer als derjenige senkrecht zur optischen Achse n_{\perp} , $(n_{\parallel} - n_{\perp}) > 0$. n_{\parallel} und n_{\perp} sind nicht von der Richtung des einfallenden Lichtes oder der spezifischen Direktorverteilung abhängig. Der effektive Brechungsindex n_{eff} mit $n_{\perp} \leq n_{\text{eff}} \leq n_{\parallel}$, welcher vom außerordentlichen Strahl wahrgenommen wird, ist jedoch von dem Winkel ξ zwischen der optischen Achse bzw. dem Direktor und der Richtung des einfallenden Lichtes abhängig. Lokal ist er als

$$n_{\text{eff,lok}} = \frac{n_{\parallel} n_{\perp}}{\sqrt{n_{\parallel}^2 \cos^2 \xi(z) + n_{\perp}^2 \sin^2 \xi(z)}}.$$

quantifizierbar. Der über die Schichtdicke d gemittelte effektive Brechungsindex ist an der jeweiligen Position x

$$n_{\text{eff}} = \int_{-\frac{d}{2}}^{\frac{d}{2}} \frac{1}{d} \frac{n_{\parallel} n_{\perp}}{\sqrt{n_{\parallel}^2 \cos^2 \xi(z) + n_{\perp}^2 \sin^2 \xi(z)}} dz. \quad (3.6)$$

Der ordentliche Strahl erfährt in einem optisch positiven Medium den richtungsunabhängigen Brechungsindex n_{\perp} . Der ordentliche und der außerordentliche Strahl, welche senkrecht zueinander polarisiert sind, brei-

ten sich in dem anisotropen Medium mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten aus. Daraus resultiert der Gangunterschied für monochromatisches Licht der Wellenlänge λ_{Licht}

$$\phi = \frac{2\pi d}{\lambda_{\text{Licht}}} \Delta n \quad (3.7)$$

in Abhängigkeit von der Doppelbrechung $\Delta n = n_{\text{eff}} - n_{\perp}$. Die transmittierte Intensität nach Durchlaufen von Polarisator, doppelbrechendem Medium und Analysator

$$I = I_0 \sin^2 2\Theta \sin^2 \frac{\phi}{2} \quad (3.8)$$

ist abhängig von der Intensität I_0 des einfallenden Lichtes, von dem Winkel Θ zwischen dem Analysator und der Projektion der optischen Achse auf die Zellebene sowie vom Gangunterschied ϕ . Der erste Term verändert die Intensität bei Drehung der Probe zwischen zwei gekreuzten Polarisatoren, der zweite Term beeinflusst die Intensität in Abhängigkeit von der Stärke der Doppelbrechung der flüssigkristallinen Phase.

Betrachtet man eine nematische Phase mit homöotroper Geometrie des Grundzustands und senkrecht zur Zellebene einfallendes Licht, so fällt das Licht in Richtung der optischen Achse ein, $\xi = 0$. Damit ist auch der Gangunterschied zwischen ordentlichem und außerordentlichem Strahl $\phi = 0$ und die transmittierte Intensität ist $I = 0$ für jede Orientierung Θ . Eine gleichmäßig homöotrope Probe erscheint also zwischen zwei orthogonal gekreuzten Polarisatoren immer schwarz und wird daher pseudoisotrop genannt. In planarer Geometrie ist $\xi = 90^\circ$ und $n_{\text{eff}} = n_{\parallel}$. Die transmittierte Intensität besitzt dann bei zwei orthogonal gekreuzten Polarisatoren Maxima für $\Theta = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ, 315^\circ$ und Minima für $\Theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ$. Die Textur erscheint also immer dann schwarz, wenn der Direktor bzw. die optische Achse parallel zu einem der beiden Polarisatoren steht.

Im Folgenden soll das optische Profil des elektrischen Fréederickszübergangs für eine homöotrope Geometrie betrachtet werden, da dieser Grundzustand Ausgangspunkt für die Untersuchung des Fréederickszübergangs im inhomogenen elektrischen Feld in vorliegender Arbeit ist. Der

Direktor wird also oberhalb eines kritischen Feldes hauptsächlich durch eine Benddeformation um den Winkel φ aus dem homöotropen Grundzustand ausgelenkt (vergleiche Abbildung 3.3), d.h., der Direktor erfährt eine Neigung bezüglich der Zellnormalen. Es existiert keine Vorzugsrichtung für diese Neigung, die x - z -Ebene wird als lokale Neigeebene betrachtet. Der Brechungsindex n_{eff} , welchen der außerordentliche Strahl erfährt, ist abhängig von φ und ergibt sich aus Gleichung 3.6 durch die Substitution $\xi(z) \rightarrow \varphi(z)$. n_{eff} ist als Funktion der angelegten Spannung $U = Ed$ in Abbildung 3.6 (—) exemplarisch dargestellt. Für $U \leq U_F$

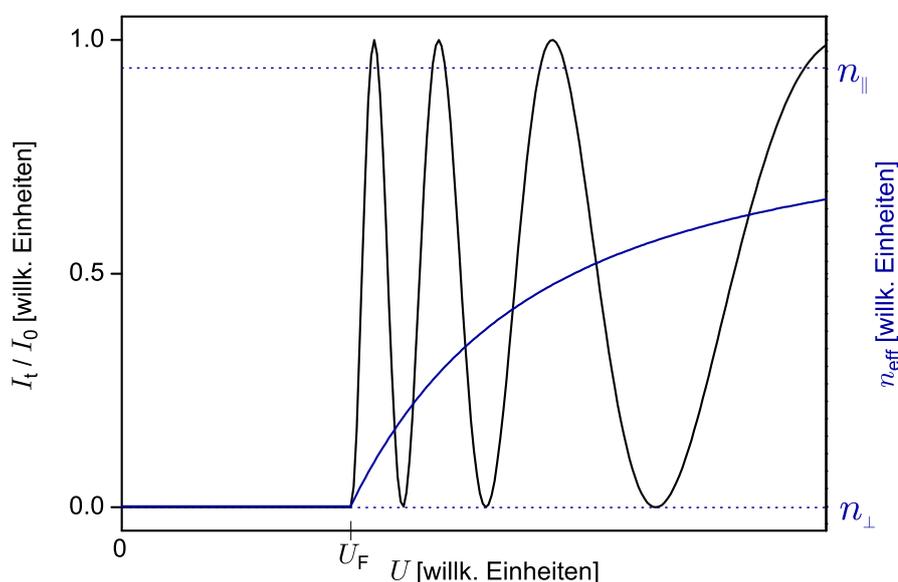


Abb. 3.6: Exemplarische Intensität I_t/I_0 (—) und effektiver Brechungsindex n_{eff} (—) während des Fréederickszübergangs aus dem homöotropen Grundzustand heraus. Berechnetes Beispiel für $d = 50 \mu\text{m}$, $\lambda_{\text{Licht}} = 633 \text{ nm}$, $n_{\perp} = 1,5$, $n_{\parallel} = 1,56$ und $N = 5$.

ist $n_{\text{eff}} = n_{\perp}$. Oberhalb der Fréederickszschwelle steigt der effektive Brechungsindex an und sättigt bei n_{\parallel} , wenn der Direktor vollständig geschaltet ist und sich im planaren Zustand befindet. Im Experiment wird dieser Sättigungszustand aufgrund der homöotropen Randbedingungen des Direktors aber nicht erreicht. Außerdem entstehen bei höheren Spannungen oft Konvektionseffekte, welche die homogene Textur zerstören.

Wenn das einfallende Licht mit der Intensität I_0 orthogonal zur Direk-

torneigeebene polarisiert ist, ist die Änderung des effektiven Brechungsindex nicht sichtbar. Zwei orthogonal gekreuzte Polarisatoren, welche um 45° zur Neigeebene verdreht sind, liefern die höchste Amplitude für die Intensitätsveränderung. Die normierte Intensität in Transmission nach Gleichung 3.8 lautet für diesen Fall

$$\frac{I_t}{I_0} = \sin^2 \frac{\phi}{2}. \quad (3.9)$$

Das externe elektrische Feld ändert also oberhalb der Fréederickszschwelle die Direktorauslenkung φ und damit den effektiven Brechungsindex n_{eff} . Dies führt nach Durchlaufen des Lichts durch Polarisator, nematische Schicht sowie Analysator zu einer Intensität, welche unterhalb von U_F Null ist und mit steigender Spannung $U > U_F$ oszilliert und dabei eine Anzahl N von Maxima mit $N = (n_{\parallel} - n_{\perp})d/\lambda_{\text{Licht}}$ aufweist (Abbildung 3.6 (—)). Der in Abbildung 3.6 dargestellte Intensitätsverlauf kann als Grauskalenzeile dargestellt werden. Werden mehrere dieser Zeilen aneinander gesetzt, entsteht das Grauskalenbild in Abbildung 3.7, welches das optische Profil so, wie es im Mikroskop erscheinen würde, repräsentiert.

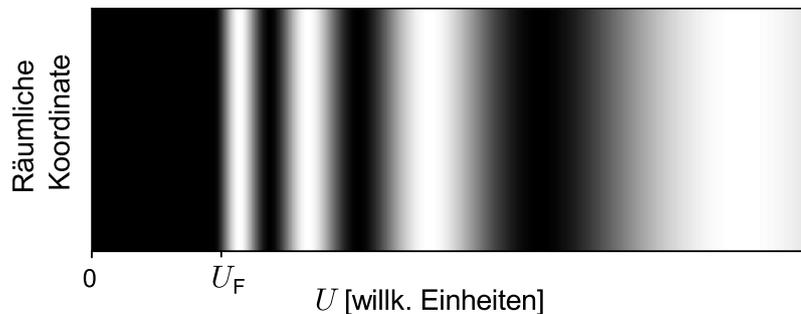


Abb. 3.7: Zu Abbildung 3.6 gehörendes Grauskalenbild.

3.1.6 Periodischer Fréederickszübergang

Der Fréederickszübergang wie er bis hierher beschrieben wurde, ist eine gleichförmige Umorientierung des Direktors im äußeren Feld. Das bedeutet, dass die Direktorauslenkung nur von der zur Substratoberfläche

normalen Raumkoordinate abhängt. Das Schalten des Direktors kann aber auch in Form von zweidimensionalen räumlich periodischen Mustern erfolgen, welche statisch oder kurzlebig (transient) sein können (Überblick bei Winkler et al. [70] oder Hinov et al. [71]). Dabei entstehen Domänen, in denen der Direktor Splay-, Twist- und/oder Benddeformationen unterliegt. In benachbarten Domänen erfolgt die Deformation jeweils in entgegengesetzter Richtung, so dass die Grenze zwischen zwei Domänen im Polarisationsmikroskop als Streifen sichtbar wird.

Statische periodische Fréederickszdomänen sind stabil, wenn das periodisch deformierte Direktorfeld eine niedrigere freie Energie besitzt als der gleichförmig deformierte Zustand. Die konkreten Eigenschaften der periodischen Textur sind abhängig von Art und Richtung des angelegten Feldes sowie von den Materialparametern. So können während des Twist-Splay-Fréederickszübergangs im Magnetfeld Streifen entstehen, welche parallel zur Anfangsorientierung \mathbf{n}_0 verlaufen [58]. Aber auch sich senkrecht zu \mathbf{n}_0 erstreckende Streifen, welche das optische Erscheinungsbild von Normalrollen in der Elektrokonvektion aufweisen, werden im elektrischen Wechselfeld mit einer Frequenz beobachtet, in deren Nähe $\Delta\varepsilon$ das Vorzeichen wechselt [72]. Im Gegensatz zur Elektrokonvektion ist hierbei allerdings kein Materialfluss involviert.

Die transienten Muster entstehen oberhalb der Fréederickszschwelle, sind aber nicht stabil, da der homogen deformierte Zustand eine niedrigere freie Energie besitzt. Dadurch wachsen die Domänen mit der Zeit und verschwinden letztlich ganz, während sich der homogen deformierte Zustand einstellt. Die Bildung transienter Domänen erfolgt während eines Relaxationsprozesses, bei welchem Materialfluss involviert ist (Backfloweffekt). Die theoretische Beschreibung muss also hydrodynamische Aspekte beinhalten (siehe z.B. Sagués und Arias [73] für den Splay-Fréederickszübergang im Magnetfeld). Die Richtung der als Streifen sichtbaren Domänengrenzen ist wieder abhängig von der gewählten Geometrie. Die Streifen können wie im Falle des Twist-Fréederickszübergangs im Magnetfeld senkrecht zur anfänglichen Direktorausrichtung \mathbf{n}_0 verlaufen [74–

76], wobei sie ein ähnliches optisches Erscheinungsbild wie die normalen Konvektionsrollen aufweisen. Parallel zu \mathbf{n}_0 orientierte Streifen sind beispielsweise beim Splay-Fréederickszübergang im elektrischen Feld zu beobachten [77].

Neuere Arbeiten befassen sich mit periodischen Strukturen während des Fréederickszübergangs mit und ohne vorhergehenden homogenen Übergang [78] und in Bent-core-Nematen [79].

3.2 Flexoelektrischer Effekt

Die Wechselwirkung zwischen einer flexoelektrischen, also einer makroskopischen Polarisation und einem äußeren elektrischen Feld kann zu einer Verformung des Direktorfeldes und damit zu verschiedenen elektrooptischen Phänomenen führen (Einführung bei Blinov und Chigrinov [6], Meyer et al. [80] sowie Dunmur et al. [81]). Umgekehrt kann eine Deformation des Direktorfeldes eine makroskopische Polarisation hervorrufen. In Abbildung 3.8 ist der flexoelektrische Effekt exemplarisch für die nematische Phase eines Bent-core-Mesogens skizziert, da der Effekt bei solchen nichtzylindersymmetrischen Molekülen besonders stark ausgeprägt ist [41]. Im unausgelenkten Direktorfeld ohne externes Feld können die Moleküle in der nematischen Phase frei um ihre Längsachse rotieren, die Dipolmomente sind in der Ebene senkrecht zum Direktor gleichverteilt (Abbildung 3.8 (a)). Unterliegt das Direktorfeld einer Bendverformung wie in Abbildung 3.8 (b), ändert sich die Packung der Moleküle aus sterischen Gründen. Es resultiert eine polare Achse. Das Entstehen des makroskopischen Dipolmoments hat seine Ursache in der Änderung der Orientierung des Direktors, nicht in einem eventuell auftretenden Materialfluss. Analog kommt der umgekehrte Effekt zustande, wenn die Wechselwirkung zwischen dem externen elektrischen Feld und den einzelnen Dipolmomenten zu einer Splay- oder Bendverformung des Direktors führt.

Die Beziehung zwischen der flexoelektrischen Polarisation $\mathbf{P}_{\text{flexo}}$ und

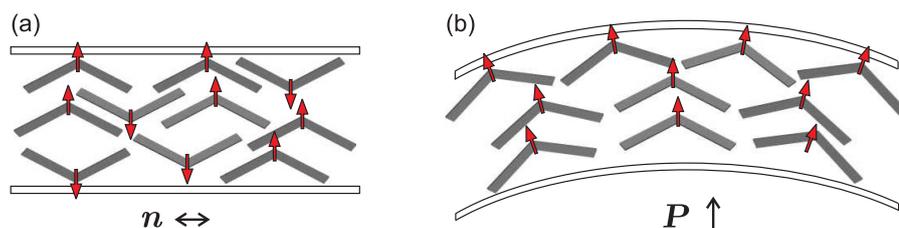


Abb. 3.8: Skizze des flexoelektrischen Effekts am Beispiel von Bent-core-Nematosen. (a) Unausgelenktes Direktorfeld, die einzelnen Dipolmomente (\uparrow) ergeben kein makroskopisches Dipolmoment. (b) Direktorfeld mit Bendverformung, es entsteht eine polare Achse \mathbf{P} . Der Effekt ist übertrieben dargestellt.

der Direktorfelddeformation mit den Koeffizienten e_1 und e_3 lautet

$$\mathbf{P}_{\text{flexo}} = e_1 \mathbf{n} (\nabla \cdot \mathbf{n}) + e_3 (\nabla \times \mathbf{n}) \times \mathbf{n},$$

Splayterm Bendterm

wobei der erste Term eine Polarisation durch Splayverformungen des Direktorfeldes beschreibt. Der zweite Term beruht auf Bendverformungen. Für eine gleichmäßige Orientierung des Direktors, welche nicht von den Koordinaten abhängig ist, wird $\mathbf{P}_{\text{flexo}} = 0$. Die flexoelektrische Polarisation ruft eine freie Energiedichte von $w_{\text{flexo}} = \mathbf{P}_{\text{flexo}} \mathbf{E}$ hervor.

Der flexoelektrische Effekt kommt besonders in dünnen Zellen ($d \lesssim 10 \mu\text{m}$) stark zum Tragen und kann eine große Rolle beim Fréederickszübergang spielen (z.B. [82–84]). Bilden sich etwa während einer Umorientierung des Direktors während des magnetischen Fréederickszübergangs Splay- oder Bendverformungen heraus, entsteht in dem Medium eine makroskopische Polarisation [82]. Durch die damit veränderte freie Energiedichte ändert sich zwar nicht die Fréederickszschwelle, aber die Direktorauslenkung oberhalb der kritischen Feldstärke. Derzhanski et al. [85] analysieren den flexoelektrischen Effekt im elektrischen Feld und dessen Einfluss auf die elektrische Fréederickszschwelle für eine Vielzahl an Kombinationen von Geometrien, Vorzeichen der dielektrischen Anisotropie und Verankerungsstärken.

Der zusätzliche Beitrag w_{flexo} zur freien Energiedichte kann zu einem räumlich periodischen Direktorfeld in Form von flexoelektrischen Domänen führen [86–88]. Die als Streifen sichtbaren Domänengrenzen verlau-

fen in planarer Geometrie in der Regel parallel zu \mathbf{n}_0 . Es wurden bereits flexoelektrische Domänen in inhomogenen elektrischen Feldern [71] oder mit asymmetrischen Randbedingungen [89] untersucht.

3.3 Elektrokonvektion

Wird ein elektrisches Feld an eine nematische Flüssigkristallschicht angelegt, kann ein drittes Phänomen räumlicher Strukturbildung auftreten, nämlich die Ausbildung von Konvektionsrollen (für Einführung und Überblick siehe [90–93]). Für die Entstehung der elektro-hydrodynamischen Konvektion (kurz Elektrokonvektion) ist im Gegensatz zu den statischen periodischen Fréederickszdomänen und zu den flexoelektrischen Domänen der Materialfluss wesentlich. Die raumzeitlich periodischen Modulationen des Direktorfeldes werden erst durch ein Flussfeld innerhalb der nematischen Schicht ermöglicht. Die Elektrokonvektion ist ein dissipatives und anisotropes Phänomen. Aufgrund seiner relativ einfachen Kontrollierbarkeit ist es ideal, um Musterbildung in anisotropen Flüssigkeiten zu untersuchen. Der Vorteil der elektrisch getriebenen Konvektion beispielsweise gegenüber der thermisch getriebenen Rayleigh-Bénard-Konvektion ist die praktisch beliebige Einstellbarkeit der Parameter, da die Relaxationszeiten des Rayleigh-Bénard-Systems auf einer wesentlich längeren Zeitskala liegen. Damit ist die Elektrokonvektion für die in dieser Arbeit untersuchten zeitlichen Charakteristika der Muster besonders gut geeignet. Außerdem ist die Realisierung großer Aspektverhältnisse sehr einfach. Deshalb können viele räumliche Perioden der Muster ohne laterale Randeffekte beobachtet werden. Die Konvektionsmuster sind durch das reiche Spektrum an räumlichen Mustern mit unterschiedlicher Dynamik und bei einer fortwährenden Entdeckung neuartiger Strukturen fruchtbarer Forschungsgegenstand. Einige Beispiele räumlicher Konvektionsstrukturen sind in Abbildung 3.9 dargestellt.

Williams [94] zählt zu den ersten Beobachtern der Elektrokonvektion in Flüssigkristallen, während Carr [95] und Helfrich [96] den grundle-

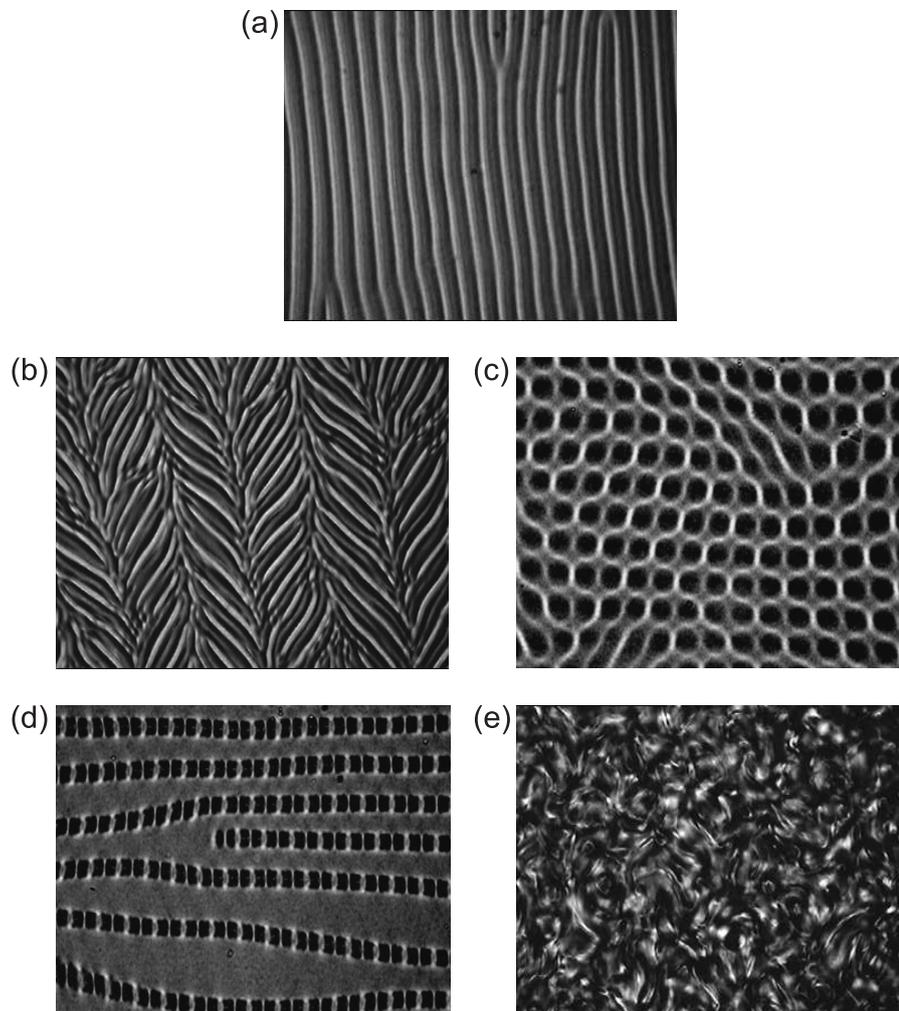


Abb. 3.9: Exemplarische Transmissionsbilder von Konvektionsstrukturen zwischen orthogonal gekreuzten Polarisatoren. (a) Subharmonische Normalrollen, (b) subharmonische Zickzackmuster, (c) Gitterstruktur, (d) bimodales Muster und (e) Turbulenz. Die Musterregimes werden im Abschnitt 3.3.1 eingeführt. Die Größe der Bilder beträgt $260 \mu\text{m} \times 195 \mu\text{m}$. Es wurde die Substanz Mischung 5 in planarer Geometrie bei einer Temperatur von $T = 30^\circ\text{C}$ verwendet (mehr dazu in Abschnitt 4.4.1). Das anregende elektrische Feld besitzt einen sägezahnförmigen Zeitverlauf. Die Zelldicke beträgt $d = 48,5 \mu\text{m}$ in den Abbildungen (a), (b) und (e) sowie $d = 20,2 \mu\text{m}$ in den Abbildungen (c) und (d). Frequenz f_0 und Amplitude U_0 der Anregungsspannung sind (a) $f_0 = 90 \text{ Hz}$, $U_0 = 150,2 \text{ V}$, (b) $f_0 = 80 \text{ Hz}$, $U_0 = 165,1 \text{ V}$, (c) $f_0 = 5 \text{ Hz}$, $U_0 = 0,9 \text{ V}$, (d) $f_0 = 105 \text{ Hz}$, $U_0 = 3,9 \text{ V}$, (e) $f_0 = 1 \text{ Hz}$, $U_0 = 38,6 \text{ V}$.

genden Mechanismus beschrieben haben, welcher zur Ausbildung der Muster führt und nach ihnen Carr-Helfrich-Mechanismus benannt wurde. Dieses Modell wurde für Wechselfeldanregung erweitert [97, 98]. Nach der linearen Analyse erfolgte die Betrachtung des schwach nichtlinearen Falls in der Form von Ginzburg-Landau-Gleichungen [99]. Das Einbeziehen nichtohmscher Beiträge zur elektrischen Leitfähigkeit bzw. der Ladungsdissoziation und Ladungsrekombination erweiterte das klassische Modell zum Modell der schwachen Elektrolyte (engl. weak-electrolyte model, WEM) [100, 101]. Das reiche Spektrum an Strukturen mit ihren räumlichen und zeitlichen Ausformungen wie Schrägrollen [102, 103], wurmartigen Strukturen [104], Chevrons [105], abnormalen Rollen [106–109], Wanderwellen [101, 110, 111], höheren Instabilitäten [105, 112] sowie die spezifische Dynamik der verschiedenen Musterregimes [15, 113, 114] wurden sowohl experimentell wie auch theoretisch detailliert betrachtet. Die aktuelle Forschung der letzten Jahre beschäftigt sich mit neuartigen Strukturen wie Crazy Rolls [115], alternierenden Twiststrukturen in achiralen Bent-core-Mesogenen [116] und lokalisierten Strukturen [117]. Breit gefächerte Zustandsdiagramme für die einzelnen Musterarten wurden gefunden [118]. Das raumzeitliche Chaos in der Elektrokonvektion bietet sowohl auf experimenteller [119] wie auf theoretischer Ebene [120, 121] nach wie vor neue Erkenntnisse. Auch die dynamischen Eigenschaften der Konvektionsstrukturen sind fruchtbares Forschungsgebiet, beispielsweise die Vergrößerung von Streifenmustern [122, 123], unterschiedliche Zeitskalen für die Ordnungsprozesse nach plötzlichen Anregungsparameteränderungen [124] oder das Abklingen von Mustern [125]. Die Dynamik von Defekten [126–128] und Defektgitter [129] werden untersucht. Eine etwas ausgefallene Anwendungs idee der Elektrokonvektion als echter Zufallsgenerator findet sich bei Gleeson [130]. Ein weiteres modernes Forschungsgebiet ist die Untersuchung der Interaktion zwischen der elektrisch getriebenen Konvektion und thermogravitationaler Konduktion [131, 132], welche interessante Übergänge zwischen beispielsweise monotonen und oszillierenden Musterregimes hervorbringt.

Auch in den Untersuchungen zur elektro-hydrodynamischen Konvektion ist mit einem Einfluss des flexoelektrischen Effektes zu rechnen, besonders bei der Verwendung von nichtzylindersymmetrischen Bent-core-Mesogenen. Hydrodynamische Muster, welche nicht normal zu \mathbf{n}_0 orientiert sind, sondern mit dieser Richtung einen bestimmten Winkel einschließen [133–135] sowie Muster, welche mit Materialparameterkombinationen entstehen, für die eine klassische Elektrokonvektion nicht vorhergesagt werden kann [136], können zum Teil mit dem flexoelektrischen Effekt erklärt werden. Es wurde nachgewiesen, dass dieser die Schwellkurven der Konvektionsstrukturen qualitativ beeinflusst [137] und Übergänge von flexoelektrischen zu elektro-hydrodynamischen Mustern [138, 139] stattfinden.

3.3.1 Mechanismus

Um die elektrisch getriebene Konvektion beobachten zu können, wird das nematische Mesogen typischerweise zwischen zwei parallele Glasplatten im Abstand zwischen 5 und 50 μm gefüllt. Die Ebene parallel zu den Glasplatten wird als Zellebene bezeichnet und ein elektrisches Wechselfeld $E(t) = U(t)/d$ wird normal zu dieser Zellebene angelegt. Damit sind die Spannungsamplitude U_0 , die Anregungsfrequenz f_0 sowie die Form der Anregungsfunktion $E(t)$ die Kontrollparameter des Systems. In Abbildung 3.10 ist der Carr-Helfrich-Mechanismus für das Beispiel planarer Grundorientierung sowie für ein Material mit negativer Dielektrizitätsanisotropie $\Delta\varepsilon = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp} < 0$ und positiver Leitfähigkeitsanisotropie $\Delta\sigma = \sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp} > 0$ skizziert. Die Indizes geben wie bisher die Richtung bezüglich des Direktors \mathbf{n} an. Im folgenden werden diese Mesogene als $(-, +)$ -Substanzen bezeichnet, wobei das erste Vorzeichen auf $\Delta\varepsilon$ verweist und das zweite auf $\Delta\sigma$. Durch die Dielektrizität wird eine dielektrische Verschiebung, durch $\Delta\sigma$ bei kleinen Fluktuationen der Direktorauslenkung eine Stromdichte in lateraler Richtung erzeugt (Abbildung 3.10 (a)). Es resultiert eine Separation der Raumladungen bzw. eine periodische Modulation der Raumladungsdichte, welche in Abbildung 3.10 (b)

stark vereinfacht skizziert ist. Die Wechselwirkung zwischen dem elektrischen Feld und den Ladungen, welche durch Verunreinigung und gegebenenfalls durch Dotierung in der nematischen Schicht vorhanden sind, erzeugt eine Scherspannung und damit ein Flussfeld in Form von räumlich periodischen Konvektionswirbeln. Der Fluss übt wiederum Drehmomente auf den Direktor aus (Abbildung 3.10 (c)), wobei die Drehmomente, die durch das elektrische Feld hervorgerufen werden, mit den Drehmomenten, die ihre Ursache in elastischen und viskosen Wechselwirkungen besitzen, konkurrieren. Durch $\Delta\varepsilon < 0$ wirken die elektrischen Drehmomente stabilisierend. Die Bedingung für die Instabilität des Grundzustands ergibt sich aus dem Gleichgewicht der Drehmomente. Es entsteht ein räumlich periodisches Direktorfeld mit dem Wellenvektor \mathbf{k} .

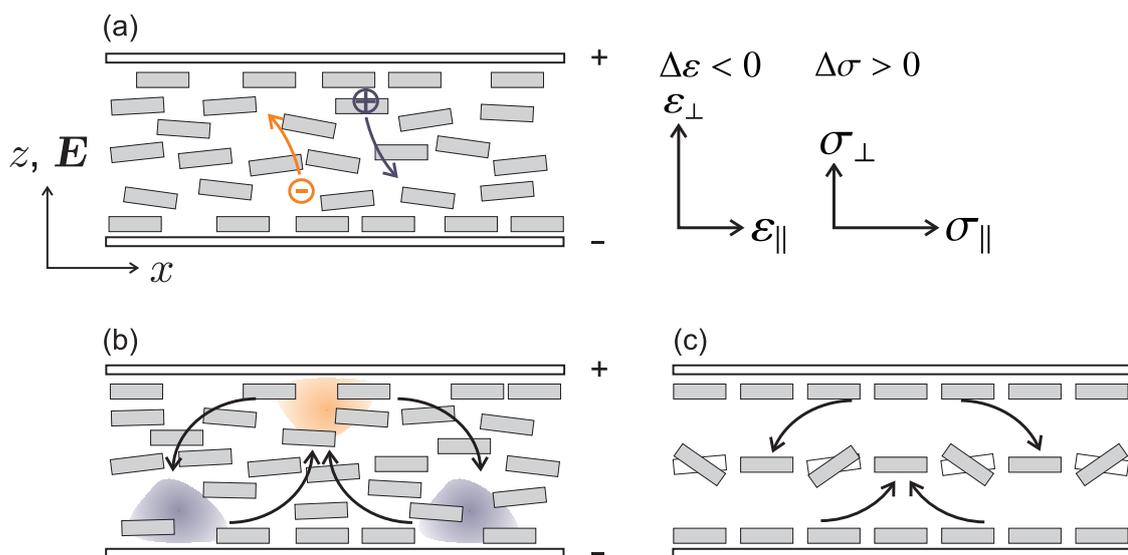


Abb. 3.10: Schematische Darstellung des Konvektionsmechanismus für das Beispiel einer planaren Grundorientierung und einer $(-, +)$ -Substanz ($\varepsilon_{\perp} > \varepsilon_{\parallel}$, $\sigma_{\parallel} > \sigma_{\perp}$), für die Erläuterung siehe Text. Eine hohe Dichte positiver Raumladungen ist blau angedeutet, hohe negative Raumladungsdichten sind rot skizziert. Schwarze Pfeile markieren den konvektiven Fluss für Wechselfeldanregung, graue Stäbchen den aktuellen lokalen Direktor, durchsichtige Stäbchen die vorherige Auslenkung.

Bei kleinen Amplituden U_0 werden die räumlichen Fluktuation von \mathbf{n} unterdrückt und das homogene, ungestörte Direktorfeld des Grundzustands stabilisiert. Oberhalb einer kritischen Schwellenspannung $U_0 = U_c$

werden die Fluktuationen aufgrund positiver Rückkopplung verstärkt. Der Grundzustand wird instabil und es bilden sich Konvektionsrollen und damit ein makroskopisches Muster aus. Die Konvektionsrollen werden stabilisiert, da elastische Rückstellmomente und viskose Dämpfung einem kontinuierlichen Anwachsen der Direktorauslenkung entgegenwirken. Je nach Vorzeichen der Anisotropien der Materialkonstanten sowie der gewählten Geometrie des Grundzustands bilden sich die Konvektionsrollen entweder als erste Instabilität durch eine Vorwärtsbifurkation oder aber erst oberhalb des Fréederickszübergangs aus. Standardmäßig bilden sich am Mustereinsatz, welcher durch die Schwellspannung U_c gekennzeichnet ist, Normalrollen (Abbildung 3.9 (a)), Schrägrollen (Abbildung 3.9 (c)) oder Wanderwellen aus, wobei letztere durch eine Hopfbifurkation charakterisiert sind. Die Art der Muster mit ihrer spezifischen Richtung des Wellenvektors \mathbf{k} und der Wellenlänge $\lambda = 2\pi/|\mathbf{k}|$ wird durch die entsprechende Wahl der Kontrollparameter U_0 und f_0 gesteuert.

Der frequenzabhängige Verlauf von Schwellspannung U_c und zugehöriger kritischer Wellenzahl k_c liefert die Schwellkurve (siehe Beispiel in Abbildung 3.11, oben), in welcher Übergangsfrequenzen zu erkennen sind, an denen sich die Zeitsymmetrien von Flussgeschwindigkeit, Direktorauslenkung und Ladungsfeld ändern. Die Übergangsfrequenzen f_{ti} separieren qualitativ voneinander unterscheidbare Musterregimes: Für einfache, beispielsweise sinus- oder rechteckförmige Anregungswellenformen, entstehen bei niedrigen Frequenzen sogenannte **konduktive** Rollen mit oszillierender Raumladungsdichte und quasistatischem Direktor (Abbildung 3.11, unten links). Sogenannte **dielektrische** Rollen mit oszillierendem Direktorfeld und quasistatischer Raumladungsdichte sind für hohe Frequenzen charakteristisch (Abbildung 3.11, unten rechts). Die oszillierenden Größen weisen hierbei dieselbe Periode wie die Anregung auf. Jedoch ändern sich an der Übergangsfrequenz nicht nur die dynamischen Eigenschaften des Systems, sondern auch der qualitative Verlauf der Schwellkurve. Sie ist konkav im konduktiven Regime und proportional zu $\sqrt{f_0}$ im dielektrischen Regime. Während $U_c(f)$ im dielektrischen

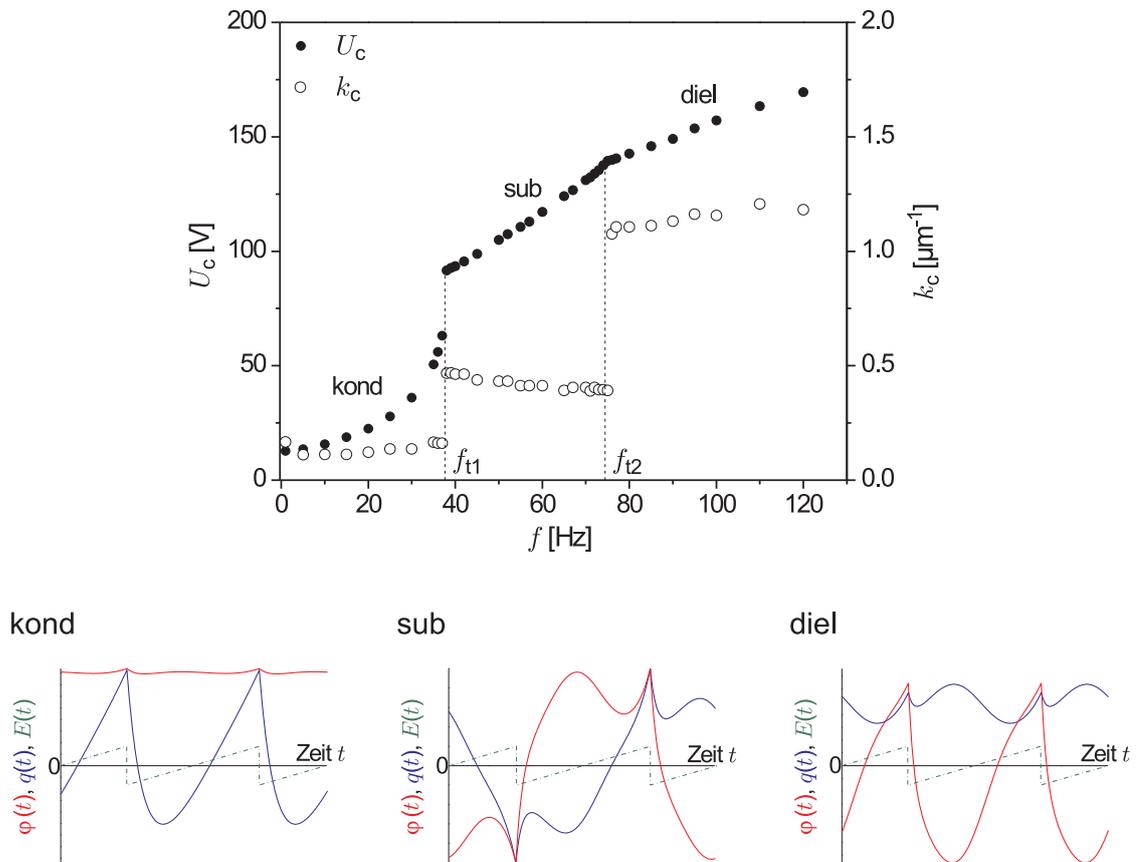


Abb. 3.11: Exemplarische Schwellkurve für eine Sägezahnanregung, d.h. Frequenzabhängigkeit von kritischer Spannung U_c und kritischer Wellenzahl k_c (oben). Die Übergangsfrequenzen f_{t1} und f_{t2} separieren das konduktive (kond), das subharmonische (sub) und das dielektrische Regime (diel). Unten sind die zeitabhängige Direktorauslenkung $\varphi(t)$ (—) und die Raumladungsdichte $q(t)$ (—) am Mustereinsatz mit zugehöriger Anregung $E(t)$ (- - -) für zwei Perioden der Anregungsspannung und jeweils für alle drei Regimes qualitativ dargestellt.

Regime proportional zur Zelldicke d ist, ist sie im konduktiven Regime unabhängig von d . Ist die Anregungswellenform komplexer, besteht sie beispielsweise aus einer Überlagerung mehrerer Rechteckwellen oder aus einer Sägezahnwellenform, können in einem Frequenzbereich zwischen dem konduktiven und dem dielektrischen Regime sogenannte **subharmonische** Konvektionsrollen entstehen. Im subharmonischen Regime wechseln sowohl die Raumladungsdichte als auch die Direktorauslenkung periodisch ihr Vorzeichen, allerdings mit der doppelten Anregungsperiode

(Abbildung 3.11, unten Mitte). Details zu den spezifischen dynamischen Eigenschaften der Musterregimes finden sich bei John et al. [15] und Stan-narius et al. [16].

Mit weiterer Erhöhung von U_0 treten nach den ersten Instabilitäten noch komplexere Muster wie Chevrons (Abbildung 3.9 (b)) oder Muster mit mehreren Moden auf (Abbildung 3.9 (d)). Diese höheren Instabilitäten (z.B. [105, 112]) werden bei steigender Spannung von turbulenten Mustern wie dem sogenannten dynamic scattering mode (Abbildung 3.9 (e)) abgelöst.

Prinzipiell kann ein elektrisches Gleichfeld ebenfalls zur Ausbildung von Konvektionsstrukturen führen. Jedoch kommt der Ionenfluss nach einer gewissen Zeit zum Erliegen und die Muster relaxieren. Daneben entstehen durch die Gleichspannung lokalisierte Strukturen, welche in der Regel vermieden werden sollen. Für die Untersuchung der Elektrokonvektion werden in dieser Arbeit daher ausschließlich Wechselfelder angewendet.

3.3.2 Bedeutung und Einfluss der Anisotropien

Voraussetzung für die Beobachtung der Elektrokonvektion ist die Anisotropie des Materials. Im elektrischen Feld spielen die Vorzeichen der Dielektrizitätsanisotropie $\Delta\epsilon$ sowie der Leitfähigkeitsanisotropie $\Delta\sigma$ eine wesentliche Rolle für die spezifische Ausprägung der Konvektion. Mit der Veränderung der Kombination beider Vorzeichen kann sich sogar der Mechanismus, welcher der Entstehung der Strukturen zugrunde liegt, wesentlich wandeln. Die klassischen Substanzen besitzen ein negatives $\Delta\epsilon$ und ein positives $\Delta\sigma$. Die Untersuchung neuartiger Mesogene mit unkonventionellen Materialparametern hat jedoch in letzter Zeit eine Reihe von andersartigen Konvektionsmustern hervorgebracht (Überblick bei Buka et al. [140]). Obwohl kein unmittelbarer Zusammenhang zwischen der Form der Moleküle und den Materialparametern besteht, sind die Bent-core-Mesogene dennoch gute Kandidaten für die Formierung bisher unbekannter Strukturen (siehe z.B. [140]). Im Folgenden werden die Mechanismen

vorgestellt, welche sich abhängig von der Kombination der Vorzeichen von $\Delta\varepsilon$ und $\Delta\sigma$ ausbilden. Hierbei wird in allen Fällen ein elektrisches Feld in z -Richtung, also normal zur Zellebene, betrachtet.

Klassische Mesogene

Die klassische Elektrokonvektion wird in $(-, +)$ -Substanzen beobachtet und lässt sich mit dem Standardmodell beschreiben. In Anlehnung an Bu-ka et al. [17], Tóth-Katona et al. [20] sowie Stannarius und Heuer [141] werden unter dem Begriff Standardmodell diejenigen Mechanismen verstanden, welche auf dem Carr-Helfrich-Modell mit seinen Erweiterungen für den dreidimensionalen Fall und für Wechselfelder basieren. Das WEM-Modell [100] sowie flexoelektrische Beiträge werden ausgeklammert.

Im Fall der $(-, +)$ -Mesogene ist der zugrunde liegende Mechanismus anisotroper Natur (siehe Abbildung 3.10). Befindet sich der Direktor in planarer Grundorientierung, stabilisiert das vertikale elektrische Feld zunächst den Grundzustand. Konvektionsrollen entstehen oberhalb der kritischen Spannung U_c . Die primäre Bifurkation ist hierbei superkritisch, die Amplituden der Flussgeschwindigkeiten wachsen proportional zur Quadratwurzel $\sqrt{(U_0^2 - U_c^2)/U_c^2}$ der reduzierten Anregungsspannung. In der Nähe von U_c bilden sich Normalrollen aus, bei denen der Direktor aus der Zellebene heraus geneigt ist, d.h. die x - z -Ebene bildet die Neigeebene. Der Wellenvektor von Normalrollen liegt parallel zu \mathbf{n}_0 . Unterhalb der Lifshitzfrequenz f_L formieren sich Schrägrollen, deren Wellenvektor mit \mathbf{n}_0 einen Winkel einschließt, welcher jedoch viel kleiner als 90° bleibt. Das bedeutet, dass die Direktorauslenkung zusätzlich zur Neigung in der x - z -Ebene noch eine laterale Komponente besitzen muss. Bei Spannungen weit oberhalb von U_c treten höhere Instabilitäten auf. Um eine weitere Erhöhung der Direktorauslenkung zu vermeiden, bildet das System beispielsweise Zickzackrollen als zweite Bifurkation aus [105], bei denen \mathbf{k} nicht parallel zur x -Achse ist oder es entstehen abnormale Rollen, bei denen zwar \mathbf{k} in x -Richtung verbleibt, der Direktor aber aus der x - z -Ebene

herausgedreht ist [106–109].

Ist der Grundzustand des $(-, +)$ -Nematens homöotrop, findet bei genügend hohen Spannungen zunächst der Fréederickszübergang als gleichförmige Auslenkung des Direktors statt. Erst wenn der Direktor in der Zellmitte eine nahezu planare Ausrichtung erreicht hat, entsteht Elektrokonvektion in Form von Normal-, Schrägrollen oder Wanderwellen.

Die klassische Elektrokonvektion mit der $(-, +)$ -Substanz Mischung 5 wird in dieser Arbeit dazu benutzt, die dynamischen Eigenschaften der Konvektionsmuster in Abhängigkeit von den Zeitsymmetrien des Anregungsfeldes in Kapitel 4 zu untersuchen.

Unkonventionelle Mesogene

Konvektionsstrukturen in Materialien mit alternativen Vorzeichenkombinationen von $\Delta\varepsilon$ und $\Delta\sigma$ sind weniger untersucht worden. Unlängst wurden jedoch unkonventionelle Arten von Konvektionsrollen in Materialien mit $\Delta\varepsilon > 0$ und $\Delta\sigma < 0$ entdeckt [17, 141, 142], wobei die Molekülgestalt von Schwalbenschwanzformen [17] bis zu Bent-core-Mesogenen [141, 142] reicht. Diese Muster müssen nicht notwendigerweise denselben Ursprung haben, isotrope Mechanismen oder flexoelektrische Effekte könnten dabei eine Rolle spielen.

Verwendet man ein $(+, -)$ -Material mit homöotropem Grundzustand, geht der Grundzustand mit steigender Spannung direkt in das Konvektionsregime über - ohne vorhergehenden Fréederickszübergang. Da die Geometrie des Grundzustands in der Zellebene keine Anisotropie aufweist, wird diese Art der Konvektion isotroper Mechanismus genannt, wobei natürlich die Anisotropien der Materialkonstanten weiterhin eine wesentliche Rolle spielen [143, 144]. Die typischerweise auftretenden Muster sind schräge Zickzackrollen bei kleinen Frequenzen, sogenannte Soft-square-Muster bei höheren Frequenzen sowie Hard-square-Muster bei hohen Spannungen. Auch diese unkonventionelle Elektrokonvektion ist mit dem Standardmodell beschreibbar.

Ungewöhnliche Muster entstehen, wenn ein $(+, -)$ -Mesogen in plana-

rer Grundorientierung betrachtet wird. Die primäre Bifurkation ist der Fréederickszübergang. Erst für genügend große Auslenkungen des Direktors wird das in der Zellmitte homogene Direktorfeld zugunsten einer räumlich periodischen Modulierung destabilisiert. Die Muster, welche in dieser Geometrie gebildet werden, können im Gegensatz zu den konventionellen Normalrollen parallel zu \mathbf{n}_0 ausgerichtet sein [17, 141, 142] und werden deshalb Longitudinalrollen genannt. Prinzipiell sind auch diese unkonventionellen Muster noch mit dem Standardmodell beschreibbar. Stannarius [141] erläutert einen Mechanismus, welcher zur Herausbildung longitudinaler Rollen oberhalb des Fréederickszübergangs führt, wobei eine periodische Twistmodulation für das Entstehen der Longitudinalrollen verantwortlich ist. Dieses minimalistische Modell folgt im wesentlichen dem Carr-Helfrich-Modell und ist für Gleichspannungsanregung entwickelt worden.

Es wird eine kleine Anfangsfluktuation betrachtet, welche aus einer periodischen Modulation des Direktors mit einem Wellenvektor senkrecht zur Direktorgrundausrichtung \mathbf{n}_0 besteht (Abbildung 3.12). Diese Twistmode wächst nicht aus dem undeformierten Grundzustand $\mathbf{n} \equiv \mathbf{n}_0$ heraus, sondern aus einem gleichmäßig deformierten Zustand, nämlich aus einer homogenen Neigung des Direktors aus der Zellebene x - y (Abbildung 3.12, links). Durch diesen Splay-Fréedericksübergang wird der Direktor also in der x - z -Ebene geneigt. Die periodischen Direktorauslenkungen der Anfangsfluktuationen aus der Neigeebene heraus verursachen einen räumlich modulierten Ladungstransport und eine Ladungssegregation in y -Richtung. Dieser Vorgang ist analog zu den periodischen Tiltauslenkungen bei klassischen Carr-Helfrich-Strukturen, welche zu einer Ladungssegregation in x -Richtung führen. Die modulierten Ladungen interagieren über Coulombkräfte mit dem externen elektrischen Feld. Es entsteht ein Ladungsfluss (Abbildung 3.12, rechts), welcher über Scherspannungen die Direktorauslenkung beeinflusst. Die auslenkenden Drehmomente konkurrieren mit elastischen Rückstellmomenten. Das Resultat dieses Ansatzes ist, dass für das Entstehen der konvektiven Instabilität

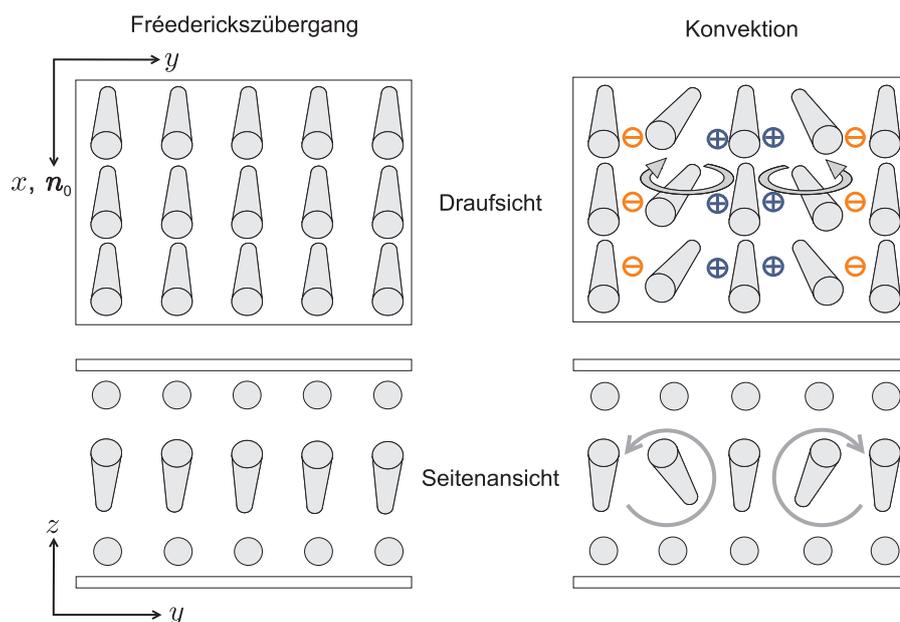


Abb. 3.12: Skizzierte Direktorkonfiguration für die Twistmodulation in Draufsicht (oben) und Seitenansicht (unten). Links: homogene Neigung nach dem Fréederickszübergang, rechts: periodische Modulation. Die Zylinder geben den lokalen Direktor an. \mathbf{n}_0 ist die Direktorgrundausrichtung, x - y die Zellebene.

eine vorhergehende homogene Splaydeformation des Direktors notwendig ist. Die Destabilisierung von Twistfluktuationen ist bereits vorgestellt worden [145], ohne jedoch den wesentlichen Aspekt des vorhergehenden Fréederickszübergangs zu betrachten. Im Unterschied zum Standardmodell und dem Modell von Goscianski und Léger [145] sind die Konvektionsrollen im Twistmodell [141] entlang \mathbf{n}_0 orientiert, also longitudinal. Das Modell macht keine Annahmen über die spezifische Form der Moleküle. Es ist für jedes nematische Mesogen mit den erforderlichen Viskositätskoeffizienten sowie den Anisotropien von Leitfähigkeit und dielektrischer Konstante gültig. Das Bent-core-Mesogen GTP 240 ist eine solche (+, -)-Substanz, welche in Kapitel 5 beschrieben wird und deren Longitudinalrollen sowie weitere vielfältige Strukturen ebenda untersucht werden.

Ein kaum untersuchter Fall ist die Konvektion in (+, +)-Mesogenen. Die experimentelle und theoretische Untersuchung einer Substanz mit $\Delta\sigma > 0$ und kleinem $\Delta\varepsilon > 0$ wurde von Dressel und Pesch [146] vor-

genommen. In Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz f_0 kann entweder die Elektrokonvektion oder der Fréederickszübergang die erste Instabilität bilden (Abbildung 3.13). In der Nähe der Frequenz, welche den

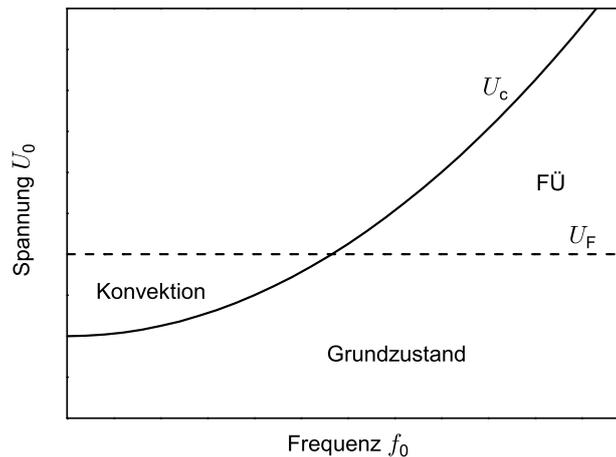


Abb. 3.13: Skizze der kritischen Kurven für die Elektrokonvektion U_c und den Fréederickszübergang U_F (FÜ) für eine Substanz mit $\Delta\sigma > 0$ und kleinem $\Delta\varepsilon > 0$.

Schnittpunkt beider Kurven kennzeichnet, kann eine Bistabilität zwischen dem Fréederickszübergang und der Elektrokonvektion entstehen [146]. Die Beschreibung der Instabilitätsschwellen erfolgte ebenfalls innerhalb des Standardmodells. Neuartige Instabilitäten als Konsequenz einer Konkurrenz von Fréederickszübergang und Elektrokonvektion wurden von de Lózar Muñoz et al. [147] experimentell nachgewiesen. Aufgrund der geringen Anzahl an Referenzen kann hier keine generelle Aussage über die Beschreibbarkeit der Muster in (+, +)-Substanzen innerhalb des Standardmodells getroffen werden. Es wird aber aufgrund des kleinen Betrages von $\Delta\varepsilon$ und der klassischen optischen Eigenschaften der Muster angenommen, dass der zugrunde liegende Mechanismus demjenigen der klassischen (-, +)-Konvektion ähnelt.

Nichtstandardelektrokonvektion

Ausgeschlossen ist die Formierung von Konvektionsstrukturen nach dem Standardmodell für eine nematische Phase mit $\Delta\varepsilon < 0$ und $\Delta\sigma < 0$. Den-

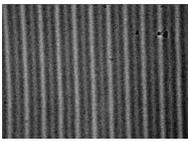
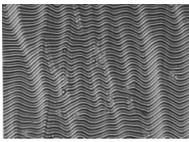
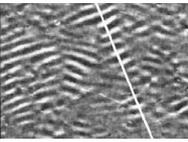
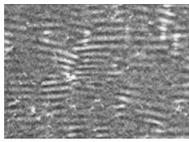
noch wurden Muster beobachtet [18–20], welche sich jedoch wesentlich von der konventionellen Konvektion in $(-, +)$ -Substanzen unterscheiden. Die Frequenzabhängigkeit von Schwellspannung und Wellenvektor, die Ausrichtung der Muster sowie die optische Charakteristik verhalten sich qualitativ anders. Wie auch in den $(+, -)$ -Materialien können hier longitudinale Rollen mit einem Wellenvektor senkrecht zu \mathbf{n}_0 entstehen. Die Longitudinalrollen bilden keine Shadowgraphmuster am Einsatz (siehe Abschnitt 3.3.3), ihr Kontrast ist schwach und sie sind nur mit zwei Polarisatoren beobachtbar. Erst bei Spannungen etwas oberhalb der kritischen Schwelle U_c kommt der Shadowgrappeffekt zum Tragen. Die Nichtstandardstrukturen sind erklärbar, wenn die Betrachtung der flexoelektrischen Polarisation in das Standardmodell eingeführt wird [136].

Tabelle 3.1 fasst die Charakteristiken der Muster in Abhängigkeit von den Vorzeichen der dielektrischen sowie der Leitfähigkeitsanisotropie zusammen. Betrachtet wurde nur die Konvektion in Zellen mit planarer Grundorientierung.

3.3.3 Optische Charakterisierung der Konvektionsstrukturen

Die Elektrokonvektion, ob in planarer oder homöotroper Geometrie beobachtet, führt zu einer räumlichen Modulation der Direktorauslenkung in der Probenzelle. Die Direktormodulation verursacht eine Veränderung des effektiven Brechungsindex für das senkrecht zur Zellebene einfallende polarisierte Licht. Bei planarem Grundzustand des Direktors ist der effektive Brechungsindex minimal im Zentrum der durch das Flussfeld hervorgerufenen Wirbel und maximal an deren Rändern, welche im Polarisationsmikroskop als weiße Streifen sichtbar sind. Mit den Gleichungen 3.6-3.8 ist es möglich, analog zum Fréederickszübergang, für jede beliebige bekannte Direktorverteilung die optische Charakteristik zu ermitteln. Hierbei werden allerdings nur reine Doppelbrechungseffekte berücksichtigt, für deren Beobachtung zwei Polarisatoren notwendig sind.

Klassische Konvektionsmuster, welche bei planarer Grundorientierung aus einer periodisch modulierten Neigung des Direktors in der x - z -Ebene

Vorzeichen von $\Delta\varepsilon$, $\Delta\sigma$	(-, +)	(+, -)	(+, +)	(-, -)
Konvektion	direkte Destabilisierung des Grundzustands	oberhalb FÜ	Destab. des Grundzustands oder Bistabilität von FÜ und Konvektion für $\Delta\varepsilon$ klein	direkte Destabilisierung des Grundzustands
Theoretische Beschreibung	Standardmodell	Standardmodell	Standardmodell (?)	Nichtstandard (Flexoelektrischer Effekt wesentlich)
Richtung der Rollen am Einsatz bezüglich \mathbf{n}_0	senkrecht zu \mathbf{n}_0 oder schräg zur Normalen auf \mathbf{n}_0	parallel und senkrecht	senkrecht	parallel und senkrecht
Optische Erscheinung am Einsatz	Shadowgraph	kein Shadowgraph	Shadowgraph	kein Shadowgraph
Referenzen	am häufigsten verwendet, Überblicksartikel [90–93]	[17] (kalamitische Substanz), [141, 148] (Bent-core-Mesogen)	[146, 147]	[18], [20] (kalamitische Substanz), [19] (Bent-core-Mesogen)
Beispielbilder				
		[17]	[18]	[19]

Tab. 3.1: Übersicht über die Eigenschaften der Elektrokonvektion in planarer Grundorientierung für die verschiedenen Kombinationen der Anisotropien. FÜ ist die Abkürzung für Fréederickszübergang. Beispielbilder: Abbildungen mit Genehmigung nachgedruckt aus [17] (Copyright 2002 durch die American Physical Society), [18] (Copyright 2004 APS) bzw. [19] (Copyright 2005 APS).

entstehen, sind jedoch prinzipiell ohne Polarisatoren sichtbar. Ursache hierfür ist der Shadowgrapheffekt [149–151], dessen Grundprinzip mit Hilfsmitteln geometrischer Optik zu verstehen ist. Durch die periodische Konvektion des nematischen Flüssigkristalls bei der klassischen Elektrokonvektion ist der effektive Brechungsindex lateral moduliert. Lichtstrahlen, welche die nematische Schicht durchlaufen, werden in Richtung eines höheren Brechungsindexes abgelenkt und weichen damit etwas von dem Weg normal zur Zellebene ab. Durch diese leichte Abweichung kommt es zu einer Fokussierung der Lichtstrahlen (Abbildung 3.14). Die Inten-

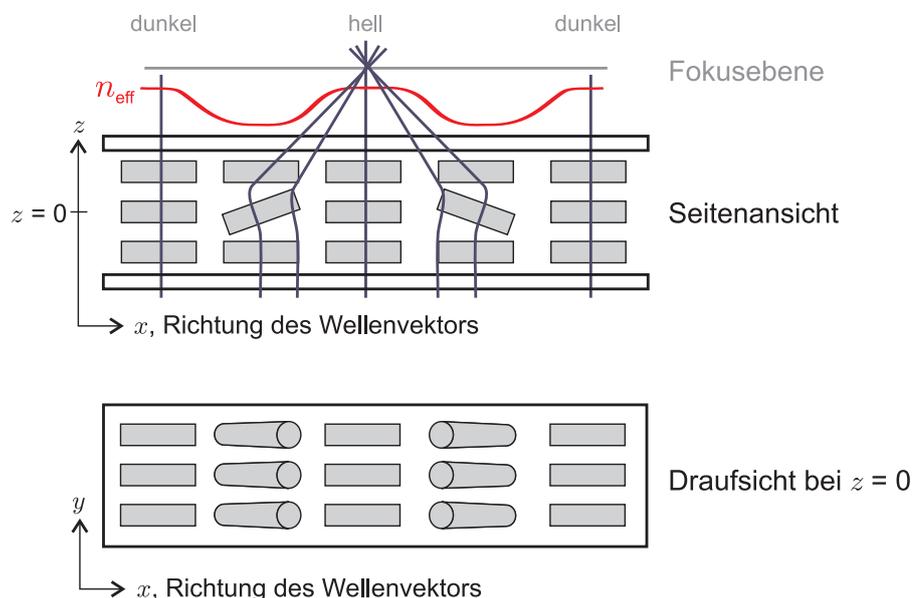


Abb. 3.14: Skizzierter Shadowgrapheffekt bei der klassischen Elektrokonvektion. Das einfallende Licht sei in x -Richtung polarisiert. Graue Balken geben den lokalen Direktor in Draufsicht und Seitenansicht an. Das räumlich periodische Direktorfeld führt zu einer lateralen periodischen Modulation des effektiven Brechungsindex n_{eff} (—) und damit zu einer Ablenkung der Lichtstrahlen (—). Das Resultat sind helle und dunkle Streifen in der Fokusebene (—).

sität des transmittierten Lichts besitzt also eine räumlich periodische Verteilung, welche das Konvektionsmuster direkt abbildet. Die Betrachtung der Fokusebene liefert eine Abfolge von hellen und dunklen Streifen, deren Wellenlänge der Breite zweier Konvektionsrollen entspricht. Da der Fluss zweier benachbarter Konvektionsrollen stets entgegengesetzt verläuft, entspricht die räumliche Wellenlänge des Konvektionsmusters

derjenigen der Intensitätsverteilung. Die Fokuslinien sind jedoch schmaler als die Konvektionsrollen (Abbildung 3.9 (a)), die hellen Streifen sind also von anderer Breite als die dunklen.

Eine genauere Beschreibung des periodisch modulierten Direktorfeldes als eine Kombination aus Amplituden- und Phasengitter, welche in einem Interferenzmuster als Kombination aus dem transmittierten Strahl und der Ausbreitung von ebenen Wellen resultiert, wurde von Trainoff und Cannel [151] vorgenommen. Eine exaktere Methode für die Untersuchung der optischen Eigenschaften der Konvektionsmuster, welche direkt von den Maxwellgleichungen ausgeht und insbesondere für Strukturen mit kleinen Wellenlängen passende Ergebnisse liefert, findet sich bei Bohley et al. [152].

Die Shadowgraphmuster sind also ohne Polarisatoren beobachtbar, wobei in der Regel ein Polarisator benutzt wird, um den Kontrast der Strukturen zu erhöhen. Der Polarisator muss dabei parallel zum Wellenvektor sein, d.h., dass beispielsweise im Falle der Normalrollen die Muster nicht sichtbar sind, wenn der Polarisator senkrecht zur Direktorneigeebene steht. In diesem Fall ist $n_{\text{eff}} = n_{\perp}$. Das Licht verlässt die Zelle unmoduliert, solange der Direktor nicht aus der x - z -Neigeebene heraus gekippt ist, wie beispielsweise bei Chevronmustern [112]. Wenn Muster beobachtet werden, welche keine Shadowgraphbilder hervorbringen, ist der effektive Brechungsindex in der Zellebene nicht oder nur schwach moduliert, d.h. der Direktor ist entweder gar nicht oder aber homogen aus der Zellebene heraus geneigt. Damit ist die Intensität des durchgehenden Lichts ohne Polarisatoren ebenfalls nicht messbar moduliert.

Das Entstehen von Interferenzmustern, welche nicht mittels Shadowgraphmethode visualisierbar sind, kann dadurch erklärt werden, dass die Polarisation des durchgehenden Lichts in der Zellebene moduliert ist. Ursache solcher Strukturen kann eine Verdrehung des Direktors in der Zellebene wie bei Chevrons oder den unkonventionellen Konvektionsmustern sein [108, 112, 114, 153]. Wenn ein gleichmäßig aus der Zellebene heraus geneigtes Direktorfeld aus der x - z -Neigeebene heraus gedreht ist

(z.B. Abbildung 3.12 rechts), bleibt die Wellenlänge des Twists in der Größenordnung der Zelle aufgrund der Verankerung des Direktors an den Zellplatten. Für dicke Zellen ist dann die Mauguinbedingung erfüllt [6], d.h. die Wellenlänge λ_{Licht} ist sehr klein gegenüber der Wellenlänge des Twists. In diesem Fall folgt die Polarisationsrichtung des linear polarisierten Lichts der Rotation des Direktors bzw. wird adiabatisch mitgeführt. Die Polarisationsrichtung dreht also in erster Näherung beim Verlassen der Zelle wieder zur Eingangsrichtung zurück. Die Direktorverdrillung beeinflusst dann nicht das optische Erscheinungsbild. Eine Störung dieser linear polarisierten Eigenmoden führt eine leichte Elliptizität des durch den Twist gehenden Lichts ein. Dies führt zu einer räumlich periodischen Modulierung der Elliptizität des Lichts, welche beispielsweise mit orthogonal gekreuzten Polarisatoren visualisierbar ist. Links- und Rechtsdrehungen des Direktors sind in dieser Konfiguration nicht unterscheidbar, der Kontrast zwischen verdrillten und nichtverdrillten Gebieten des Direktorfeldes in den Konvektionsmustern aber detektierbar. Durch ein leichtes Entkreuzen der Polarisatoren oder durch das Einfügen einer Phasenplatte kann der Kontrast noch erhöht werden [112, 114, 153].

Abbildung 3.15 zeigt, dass die unkonventionellen longitudinalen Twistmuster [141] keine Shadowgraphstrukturen hervorbringen. Bei einer Span-

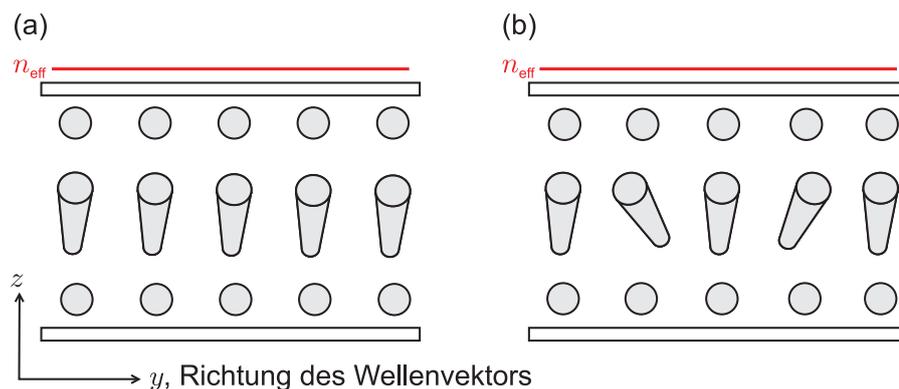


Abb. 3.15: Skizze der optischen Charakteristik der longitudinalen Twistrollen für $U_F < U_0 < U_c$ (a) und $U_0 > U_c$ (b) in Seitenansicht. Graue Zylinder geben den lokalen Direktor an. Das räumlich periodische Direktorfeld lässt den effektiven Brechungsindex n_{eff} (—) unmoduliert.

nung $U_F < U_0 < U_c$ neigt sich der Direktor im Zuge des Fréedericksz-

übergangs homogen aus der Zellebene heraus, effektiver Brechungsindex und Intensität bleiben nach Transmission des Lichts durch die Zelle homogen (Abbildung 3.15 (a)). Oberhalb der Konvektionsschwelle U_c tritt die räumlich periodische Twistmodulation des Direktorfeldes mit einem Wellenvektor in y -Richtung auf. Dabei verdreht sich der Direktor in der Zellebene, wobei der Neigewinkel aus der Zellebene heraus immer noch homogen bleibt (Abbildung 3.15 (b)). Der effektive Brechungsindex bleibt also in der x - y -Ebene weiterhin homogen. Eine periodische Intensitätsverteilung kommt hierbei dadurch zustande, dass die Elliptizität des transmittierten Lichtes in der Zellebene moduliert wird. Bei Verwendung zweier Polarisatoren werden die Twistdomänen sichtbar, ohne dass aber zwischen den im Uhrzeigersinn verdrehten und den gegen den Uhrzeigersinn verdrehten Domänen unterschieden werden kann. Das Einführen einer $\frac{\lambda}{4}$ -Platte, welche zur Direktorgrundorientierung \mathbf{n}_0 um 45° verdreht ist, kann die Unterscheidung der beiden entgegengesetzt verdrehten Domänen ermöglichen [112, 154]. Wird die $\frac{\lambda}{4}$ -Platte um -45° zu \mathbf{n}_0 verdreht, erhält man dieselbe Information, aber komplementäre Intensitäten.

Das räumlich periodische Direktorfeld kann auch als optisches Beugungsgitter dienen [155–158]. Das Konvektionsmuster erzeugt bei Bestrahlung mit monochromatischem kohärenten Licht ein Beugungsmuster auf einem entfernten Schirm. Dabei erscheint eine Reihe von Beugungsflecken, welche parallel zum Wellenvektor \mathbf{k} des Musters orientiert ist. Die Winkelverteilung ergibt sich aus

$$\frac{2\pi}{|\mathbf{k}|} \sin \vartheta = n\lambda_{\text{Licht}} \quad (3.10)$$

mit der Wellenzahl $|\mathbf{k}|$ des Konvektionsmusters, dem Beugungswinkel ϑ , der Wellenlänge des einfallenden Lichtes λ_{Licht} sowie der Beugungsordnung n . Das Amplitudengitter gibt dabei die gleiche räumliche Periodizität wieder wie das Direktorfeld und liefert damit einen Beitrag sowohl zu den geraden als auch zu den ungeraden Beugungsordnungen. Die Periodizität des Phasengitters ist hingegen doppelt so groß wie diejenige des

Direktorfeldes, es werden nur Beiträge zu den geraden Beugungsordnungen erzeugt [159]. Die Intensität des zweiten Beugungspeaks, welche aus der monochromatischen Beugung am Amplitudengitter und am Phasengitter resultiert, ist proportional zur vierten Potenz der Direktorauslenkung,

$$I_2 \propto \varphi^4. \quad (3.11)$$

4 Dynamische Eigenschaften eines dissipativen strukturbildenden Systems

Strukturbildende Systeme weisen nicht nur interessante räumliche Muster auf. Auch die Dynamik der Strukturen ist ein fruchtbares Forschungsfeld. Die elektro-hydrodynamische Konvektion bildet aufgrund der einfach zu handhabenden Systemparameter sowie der im Verhältnis beispielsweise zur thermisch getriebenen Rayleigh-Bénard-Konvektion schnellen Relaxationszeiten ein ideales System, um die zeitliche Entwicklung von Mustern zu untersuchen. Eine aktuelle Fragestellung ist z.B. der Einfluss der Anregungswellenform auf die Ausbildung und Charakteristika verschiedener dynamischer Musterregimes [15, 16, 160].

In dynamischen Systemen, bei denen die Gleichungen zeitumkehrsymmetrisch sind [161], hat die Zeitumkehr einer periodischen Veränderung der Systemparameter keinen qualitativen Einfluss auf die Systemdynamik. In vielen dynamischen Systemen ist diese Zeitumkehr in den dynamischen Gleichungen gebrochen, vor allen Dingen in Systemen, in welchen Dissipation eine Rolle spielt, wie dem gedämpften Pendel oder der Elektrokonvektion. In dieser Arbeit soll zum einen der Einfluss der Zeitumkehr der Anregungsfunktion $E(t) \rightarrow E(-t)$ auf die Schwellkurven und die Konvektionsstrukturen am Mustereinsatz untersucht werden. Zum anderen stellt sich die Frage, in welcher Weise die Zeitumkehr der Anregung die Dynamik der Systemvariablen beeinflusst.

Untersucht man die Elektrokonvektionsmuster hinsichtlich ihrer dynamischen Merkmale, ist es erforderlich die Eigenschaften der Anregung

zu betrachten. So erwartet man bei einer Anregung mit einer zeitumkehrsymmetrischen Wellenform, dass sich die Systemantwort, also die Eigenschaften der ausgebildeten Strukturen, bei einer zeitlichen Umkehr $t \rightarrow -t$ in der Anregungsfunktion nicht verändern. Der spannende Punkt ist die Verwendung von Anregungsfunktionen, welche unter Zeitumkehr nicht invariant sind. Das folgende Kapitel untersucht die Systemantwort für verschiedene Symmetrien der Anregungsfunktion, wobei die Ergebnisse im Wesentlichen in Referenz [162] publiziert sind. Abschnitt 4.1 führt kurz das Modell ein, auf welchem die analytische Untersuchung des Einflusses der Zeitumkehr einer beliebigen Anregungsfunktion auf das Schwellverhalten der Muster in Abschnitt 4.2 sowie die numerische Berechnung von Schwellkurven und Trajektorien für verschiedenen Anregungssymmetrien in Abschnitt 4.3 beruhen. Abschnitt 4.4 präsentiert experimentelle Daten und den Vergleich mit den numerischen Ergebnissen. Das Kapitel schließt in Abschnitt 4.5 mit einer Diskussion der vorgestellten Ergebnisse.

4.1 Modell

Das Modell, welches den Berechnungen von Schwellkurven und Trajektorien zugrunde liegt, folgt dem Standardmodell [16, 162]. Die fundamentale Dynamik der Elektrokonvektionsstrukturen in der Nähe des Muster-einsatzes wird durch ein einfaches linearisiertes Differentialgleichungssystem für zwei gekoppelte Systemvariablen beschrieben. Diese beiden dynamischen Variablen sind zum einen die Raumladungsdichte $\tilde{q}(\mathbf{r}, t)$ und zum anderen die Direktorauslenkung $\tilde{\varphi}(\mathbf{r}, t)$. Bei kleinen Flussfeldamplituden, bei welchen Trägheitseffekte vernachlässigt werden können, ist der Fluss direkt an das Direktorfeld gekoppelt, so dass Direktorauslenkung und Flussamplitude linear miteinander in Beziehung stehen.

Die Basis des Modells bilden die linearisierten Maxwell-, Navier-Stokes und Drehmomentgleichungen. Die Beschreibung ist zweidimensional, es werden also nur Normalrollen betrachtet mit einem Wellenvektor entlang

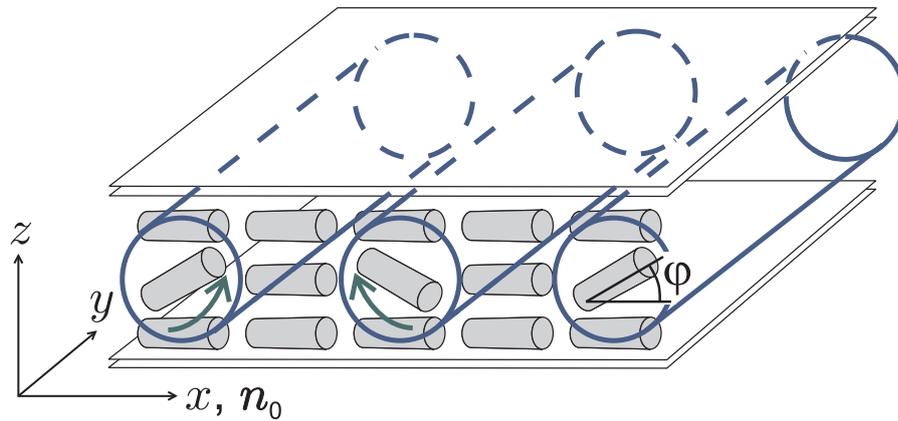


Abb. 4.1: Skizze der Konvektionszelle und Definition der Koordinaten, der Direktorauslenkung φ sowie der Direktoranfangsorientierung \mathbf{n}_0 . Grüne Pfeile verweisen auf das Geschwindigkeitsfeld, die Konvektionsrollen sind blau skizziert.

der Direktorgrundausrichtung \mathbf{n}_0 (Abbildung 4.1). Direktor-, Fluss- und Ladungsfelder sind gleichförmig in der Richtung senkrecht zu \mathbf{n}_0 in der Zellebene. Sie verändern sich also entlang der y -Achse nicht. Sie besitzen nur Komponenten in der Direktoreneigeebene, aufgespannt durch die Achse x , in der auch die Direktoranfangsorientierung \mathbf{n}_0 liegt, sowie der Zellnormalen z . Trotz der Vereinfachungen kann dieses Modell die experimentellen Beobachtungen, insbesondere bezüglich Schwellverhalten und Dynamik des Direktorfeldes, reproduzieren [16].

Es wird ein Testmodenansatz für die elektrische Ladungsdichte $\tilde{q}(\mathbf{r}, t)$ und die Direktorauslenkung $\tilde{\varphi}(\mathbf{r}, t)$ benutzt, um die räumliche Modulation von den zeitabhängigen Amplituden q und φ zu trennen:

$$\begin{aligned}\tilde{q}(x, z, t) &= q(t) \sin(k_x x) \cos(k_z z), \\ \tilde{\varphi}(x, z, t) &= \varphi(t) \cos(k_x x) \cos(k_z z).\end{aligned}\tag{4.1}$$

Hierbei bezeichnet $k_x = 2\pi/\lambda$ die Wellenzahl der Testmode, λ die räumliche Periodizität von Direktor-, Ladungs- und Geschwindigkeitsfeld, d die Zelldicke und $k_z = \pi/d$. Auf anspruchsvollere Testfunktionen, welche die Randbedingungen für das Flussfeld an den Glasplatten realistischer abbilden, wird zugunsten der Einfachheit der mathematischen Beschreibung verzichtet.

Die Zeitentwicklung der Amplituden $\varphi(t)$ und $q(t)$ wird durch zwei ge-

koppelte homogene lineare Differentialgleichungen beschrieben:

$$\frac{d}{dt}\vec{Z}(t) = \mathbf{A}(t)\vec{Z}(t) \quad (4.2)$$

mit

$$\vec{Z}(t) = \begin{pmatrix} q(t) \\ \varphi(t) \end{pmatrix}, \quad \mathbf{A}(t) = \begin{pmatrix} A_1 & A_2 E(t) \\ A_3 E(t) & A_4 + A_5 E^2(t) \end{pmatrix}.$$

Die Koeffizienten A_i enthalten Material- und Zellparameter (siehe Anhang B) sowie die Wellenzahl der Testmode. $E(t) = U(t)/d$ ist die elektrische Feldstärke, gegeben durch die an die Zelle angelegte Spannung $U(t)$. Die Zeitabhängigkeit von $\mathbf{A}(t)$ ist damit ausschließlich in den Koeffizienten $E(t)$ enthalten. Wenn das elektrische Feld die Periode T besitzt, dann ist \mathbf{A} ebenso periodisch mit $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}(t + T)$.

Die Floquetanalyse ist ein geeignetes Werkzeug, um Aussagen über die Lösung von linearen gewöhnlichen Differentialgleichungen mit periodischen Koeffizienten und über die Stabilität der periodischen Lösungen treffen zu können (siehe beispielsweise Amann [163]). Die Fundamentallösung des Differentialgleichungssystems 4.2 kann als

$$\vec{Z}(t) = \mathbf{P}(t)\vec{Z}(0)$$

geschrieben werden, wobei die Entwicklungsmatrix $\mathbf{P}(t)$ die Gleichung $\dot{\mathbf{P}}(t) = \mathbf{A}(t)\mathbf{P}(t)$ erfüllt mit $\mathbf{P}(0) = \mathbf{E}$ als Einheitsmatrix. Das Floquettheorem sagt aus, dass $\mathbf{P}(t + T) = \mathbf{P}(t)\mathbf{M}$. Die reguläre Transfermatrix \mathbf{M} mit den Eigenwerten bzw. Floquetmultiplikatoren μ_1 und μ_2 bestimmt die Entwicklung der dynamischen Variablen nach einer vollen Anregungsperiode. Es sei μ_1 derjenige Floquetmultiplikator mit dem größeren Absolutwert, $|\mu_1| \geq |\mu_2|$. An der Stabilitätsschwelle gilt $|\mu_1| = 1$. Der Grundzustand wird instabil, wenn $1 > |\mu_1| > |\mu_2|$ nicht mehr erfüllt ist. Zwischen den Elementen von $\mathbf{A}(t)$ und den Floquetmultiplikatoren gibt es keine direkte Beziehung (siehe beispielsweise Epstein [164]). Für homogene Differentialgleichungen wie in Gleichung 4.2 gilt

$$\mu_1\mu_2 = \det(\mathbf{M}) = \exp\left(\int_0^T \text{Tr}(\mathbf{A}(t)) dt\right), \quad (4.3)$$

siehe beispielsweise Hale [165]. Da die Koeffizienten der Matrix $\mathbf{A}(t)$ im Standardmodell für Elektrokonvektion reell sind, ist das Produkt $\mu_1\mu_2$ positiv. Die Floquetmultiplikatoren müssen also entweder beide reell oder komplex konjugiert sein und sind de facto reell für die hier untersuchten Probleme [16].

4.2 Analytische Untersuchung

Bevor die konkrete Dynamik der Direktorauslenkung sowohl numerisch als auch experimentell untersucht wird, soll auf das generelle Verhalten der Schwellkurven bei Zeitumkehr der Anregung eingegangen werden. Dazu werden zunächst die Ausführungen von Stannarius [16, 162] über das allgemeine Verhalten der charakteristischen Multiplikatoren bei der Zeitumkehr einer beliebigen Anregungswellenform wiedergegeben.

Eine wesentliche Eigenschaft der Matrix \mathbf{A} ist, dass ihre Nichtdiagonalelemente a_{12} und a_{21} der allgemeinen Schreibweise

$$\mathbf{A}(t) = \begin{pmatrix} a_{11}(t) & a_{12}(t) \\ a_{21}(t) & a_{22}(t) \end{pmatrix}$$

bis auf einen konstanten Faktor dieselbe Abhängigkeit von $E(t)$ aufweisen. Das heisst, es besteht die gleiche Zeitabhängigkeit in den Nichtdiagonalelementen. Durch die Einführung der dimensionslosen Variablen $\hat{q}(t) = \sqrt{a_{21}/a_{12}} q(t) = \sqrt{A_3/A_2} q(t)$ (der Zirkumflex wird im Folgenden weggelassen) sowie mit $a = \sqrt{a_{21}a_{12}} \text{sign}(E) = \sqrt{A_2A_3} E$ wird \mathbf{A} symmetrisiert:

$$\mathbf{A}(t) = \begin{pmatrix} a_{11}(t) & a(t) \\ a(t) & a_{22}(t) \end{pmatrix}.$$

\mathbf{A} wird innerhalb äquidistanter, infinitesimaler Zeitschritte $\delta t = t_{i+1} - t_i = T/N$ als konstant angenähert. Damit kann das Differentialgleichungssystem mit konstanten Koeffizienten innerhalb dieser Intervalle $\vec{Z}(t_{i+1}) = \mathbf{P}_i \vec{Z}(t_i)$ mit $\mathbf{P}_i = \exp(\mathbf{A}(t_i) \delta t)$ und $\delta t = T/N \rightarrow 0$ integriert werden.

Mit dem Produkt der \mathbf{P}_i für alle Intervalle N

$$\mathbf{P} = \lim_{N \rightarrow \infty} \prod_{i=0}^{N-1} \mathbf{P}_{N-i}$$

kann die Grundlösung $\vec{Z}(T) = \mathbf{P} \vec{Z}(0)$ für die vollständige Anregungsperiode bestimmt werden.

Für die Zeitumkehrfunktion von $E(t)$ kann $\vec{Z}(T)$ aus $\vec{Z}(0)$ nach dem gleichen Prinzip ermittelt werden. Hierbei müssen alle $\mathbf{A}(t_i)$ durch $\mathbf{A}(T - t_i)$ und die $\mathbf{P}(t_i)$ durch $\mathbf{P}(T - t_i)$ ersetzt werden. Um die Lösung in der Form $\vec{Z}(T) = \mathbf{P}_{\text{rev}} \vec{Z}(0)$ zu erhalten, werden die Matrizen \mathbf{P}_i in umgekehrter Reihenfolge multipliziert:

$$\mathbf{P}_{\text{rev}} = \lim_{N \rightarrow \infty} \prod_{i=1}^N \mathbf{P}_i \quad .$$

Aus der allgemeinen Eigenschaft für Matrizenprodukte

$$\left\{ \prod_{i=1}^N \mathbf{P}_i \right\}^T = \prod_{i=0}^{N-1} \mathbf{P}_{N-i}^T$$

und aus $\mathbf{P}_i = \mathbf{P}_i^T$ folgt, dass $\mathbf{P}_{\text{rev}} = \mathbf{P}^T$. Die Fundamentalmatrizen für Original- und Zeitumkehrwellenform sind also transponierte Matrizen der jeweils anderen. Damit sind die charakteristischen Multiplikatoren unabhängig von Wellenform oder Materialparametern für beide Anregungen immer identisch. Das bedeutet, dass eine beliebige Anregungswellenform und ihre Zeitumkehrfunktion stets die gleichen Schwellkurven, Musterwellenlängen und dynamische Regimes mit der jeweils charakteristischen Periodizität ergeben. Im Gegensatz dazu können sich die konkreten Trajektorien für die dynamischen Variablen sehr wohl für beide Wellenformen wesentlich unterscheiden. Ein identischer Verlauf von Direktor- und Ladungsfeld ist sogar nur für wenige spezielle Funktionstypen zu erwarten. Einfache Sinus- oder Rechteckanregungen, welche unter Zeitumkehr symmetrisch sind, d.h. $E(t_0 + t) = E(t_0 - t)$ für bestimmte t_0 , liefern triviale Weise die gleichen Trajektorien wie ihr zeitinvertiertes Pendant. Eine

antisymmetrische Anregung mit $E(t_0 + t) = -E(t_0 - t)$ wie beispielsweise die Sägezahnfunktion ergibt bei Zeitumkehr Trajektorien, welche sich von den ursprünglichen lediglich durch den Wechsel eines Vorzeichens unterscheiden. Anregungen, welche diese Symmetrien nicht erfüllen, werden im Allgemeinen nicht zu identischen Trajektorien führen.

4.3 Stabilitätsanalyse und numerische Trajektorien

In Referenz [162] wurde analytisch gezeigt, dass Zeitumkehrfunktionen $E(-t)$ immer zu den gleichen Eigenwerten führen wie die Originalanregungsfunktionen $E(t)$. Sie liefern stets die gleichen Schwellkurven, Wellenzahlen und Stabilitätsdiagramme. Dies gilt für alle drei Musterregimes bzw. für sämtliche Parameterbereiche des konduktiven, subharmonischen und dielektrischen Regimes. Um die allgemeinen analytischen Aussagen an Beispielen zu testen, werden im Folgenden die Schwellkurven sowie das dynamische Verhalten der Variablen $\varphi(t)$ und $q(t)$ in der Nähe der Einsatzschwelle für konkrete Wellenformen und Materialparameter numerisch bestimmt.

Die Stabilitätsanalyse sowie die Berechnung der Schwellkurven und der Trajektorien der beiden dynamischen Variablen $q(t)$ und $\varphi(t)$ kann im Fall stückweise konstanter Funktionen analytisch durchgeführt werden. Der Einfachheit halber wurden die Berechnungen für alle Wellenformen, also auch für Rechteck- und überlagerte Rechteckanregungen numerisch ausgeführt.

Die Entwicklung zweier unabhängiger Anfangsvektoren $\vec{Z}_1(0)$ und $\vec{Z}_2(0)$, welche für jeden Parametersatz gewählt werden, wird für eine vollständige Anregungsperiode durch Lösen von Gleichung 4.2 berechnet. Die Elemente von \mathbf{M} sind durch die Werte $Z_1(T)$ und $Z_2(T)$ bestimmt.

Um die Stabilität des Grundzustands $\vec{Z}(t) = (0, 0)$ zu testen, wird zunächst die Anregungsfunktion parametrisiert. Im Falle einfacher Rechteck- oder Sinusanregungen bilden die Periode $T = 1/f_0$ sowie die Amplitude U_0 der Spannung $U(t) = E(t)d$ die Parameter, welche systematisch vari-

iert werden. Für feste Frequenzen f_0 und Anregungswellenformen werden dann die Floquetmultiplikatoren in der U_0 - k_x -Ebene unter Verwendung der Testmoden in Gleichung 4.1 ausgerechnet. Abbildung 4.2 zeigt den Floquetmultiplikator μ_1 mit $|\mu_1| \geq |\mu_2|$. Die neutrale Kurve N (—) in der

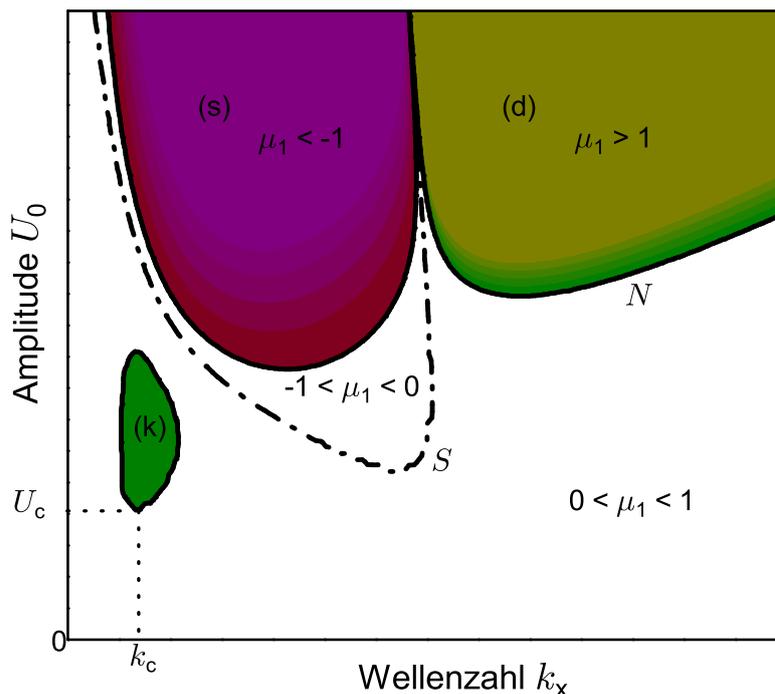


Abb. 4.2: Exemplarisches Stabilitätsdiagramm im Amplituden-Wellenzahl-Raum für eine konstante Anregungsfrequenz f_0 . Dargestellt ist der Floquetmultiplikator μ_1 , dessen Wert die Lösungsgebiete für konduktive (k), subharmonische (s) und dielektrische (d) Muster definiert. Die neutrale Kurve N und die Separatrix S kennzeichnen spezifische Lösungsgebiete (siehe Text). Die verwendete Anregung besitzt eine Sägezahnform, $f_0 = 35\text{Hz}$. Diese Abbildung dient lediglich der Veranschaulichung, die Materialparameter in der Rechnung weichen daher von denen im Anhang B ab.

zweidimensionalen Amplituden-Wellenzahl-Ebene ist durch $|\mu_1| = 1$ definiert und trennt die Bereiche mit $0 < |\mu_1| < 1$, in denen der Grundzustand stabil ist, von den Lösungsgebieten mit $|\mu_1| > 1$, in denen $\vec{Z}(t) = (0, 0)$ instabil wird. Das globale Minimum der neutralen Kurve bestimmt den kritischen Punkt (U_c, k_c) und damit die Einsatzschwelle der Konvektionsmuster für die gegebene Frequenz und Wellenform. Die Schwellkurve er-

gibt sich dann aus den jeweiligen kritischen Punkten für einen Satz von Frequenzen [15, 16, 160]. Die Separatrix S (-·-) trennt die Region mit $\mu_1 < 0$ von der Region mit $\mu_1 > 0$. Die Untersuchung der Zeitumkehr der Anregungswellenform wurde für zwei überlagerte Rechteckanregungen durchgeführt. In diesen Fällen wird die Frequenz beider Wellenkomponenten konstant gehalten, während beide Amplituden als Parameter für die Bestimmung der Stabilitätsdiagramme dienen. Von den Vorzeichen der μ_i lässt sich auf die Periodizität der Lösungen schließen. Sind beide Floquetmultiplikatoren positiv, ergeben sich T -periodische Lösungen, die dem konduktiven oder dielektrischen Regime entsprechen. T -antiperiodische und damit subharmonische Lösungen entstehen, wenn die μ_i negativ sind [160].

4.3.1 Wellenformen

Um eine einfach zu generierende Anregung mit einstellbarer zeitlicher Symmetrie zur Verfügung zu haben, wurde das System für das Zeitumkehrproblem mit einer Superposition aus zwei Rechteckwellen mit den Amplituden E_1 und E_2

$$E(t) = E_1 \operatorname{sign} \left(\sin \frac{2\pi t}{T_1} \right) + E_2 \operatorname{sign} \left(\sin \frac{2\pi(t + \delta)}{T_2} \right) \quad (4.4)$$

sowie deren Zeitumkehrfunktion $E(-t)$ angeregt. Das Frequenzverhältnis beider Komponenten ist 1:4, so dass $T_1 = 4T_2$. Im Folgenden wird $E(t)$ auch als Vorwärtsanregung und $E(-t)$ als Rückwärtsanregung bezeichnet.

Die Amplituden beider Komponenten dienen als systematisch veränderbare Parameter, während die Perioden konstant gelassen werden. Letztere wurden folgendermaßen gewählt: $T_1 = 10$ ms und $T_2 = 2,5$ ms. Damit befindet sich eine der beiden Frequenzen $f_{\text{low,high}} = 1/T_{1,2}$ unterhalb der Cut-off-Frequenz, welche für einfache Rechteckanregung das konduktive vom dielektrischen Regime trennt. Die zweite Komponente besitzt eine Frequenz oberhalb der Cut-off-Frequenz. Mit der Zeitverschiebung δ wird eine Verzögerung zwischen den einzelnen Rechteckwellen ein-

geführt, welche zu einer Phasenverschiebung $\theta = 2\pi\delta/T_2$ der höheren Frequenz gegenüber der kleineren führt.

Die Anregung für beispielhafte Phasenverschiebungen θ ist in Abbildung 4.3 skizziert. Für $\theta = 90^\circ$ (4.3 (c)) ist die Anregung vollständig zeitumkehrsymmetrisch, d.h. $E(t_0 + t) = E(t_0 - t)$ für bestimmte t_0 . Sie ist antisymmetrisch bezüglich Zeitumkehr für $\theta = 0^\circ$, also $E(t_0 + t) = -E(t_0 - t)$ für bestimmte t_0 (4.3 (a)), sowie asymmetrisch für $0^\circ < \theta < 90^\circ$, d.h. $E(t_0 + t) \neq \pm E(t_0 - t)$ für alle t_0 (4.3 (b)). Damit ist die Symmetrie der Anregungsfunktion bezüglich Zeitumkehr systematisch einstellbar.

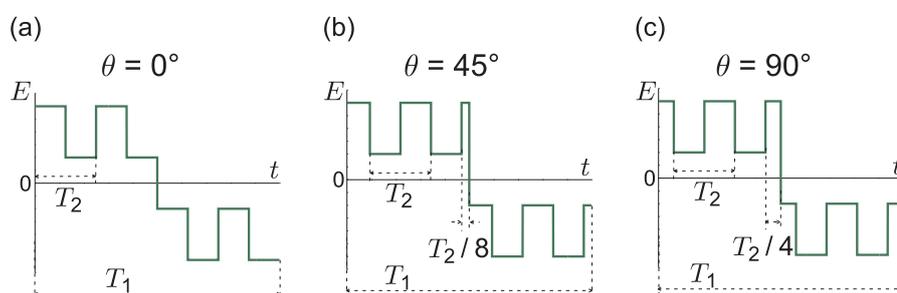


Abb. 4.3: Skizzierte Anregungswellenform, bestehend aus zwei überlagerten Rechteckfunktionen mit Phasenverschiebung θ . (a) $\theta = 0^\circ$, zeitumkehrantisymmetrische Wellenform, (b) $\theta = 45^\circ$, zeitumkehrasymmetrische Wellenform, (c) $\theta = 90^\circ$, zeitumkehrsymmetrische Wellenform.

4.3.2 Numerische Ergebnisse

Die veränderlichen Anregungsparameter, welche gewählt wurden, um die Trajektorien in Abhängigkeit von der Phasenverschiebung θ zwischen den beiden Komponenten der Anregung zu berechnen, sind die beiden Spannungsamplituden $U_{\text{low}} = E_1 d$ und $U_{\text{high}} = E_2 d$ mit jeweils fester Frequenz $f_{\text{low,high}}$ sowie die Phasenverschiebung θ selbst. Abbildungen 4.4 und 4.5 zeigen Trajektorien der Direktorauslenkung und der Raumladungsdichte im Raum $(\varphi(t), q(t))$ für das konduktive (4.4) und das dielektrische Regime (4.5). Das Augenmerk liegt auf der Abhängigkeit der Kurvenverläufe von der Anregungswellenform, welche durch die Phasenverschiebung θ repräsentiert ist, sowie auf dem Vergleich zwischen Originalanregung und deren zeitlichem Spiegelbild. Die zeitumkehrsymmetrische

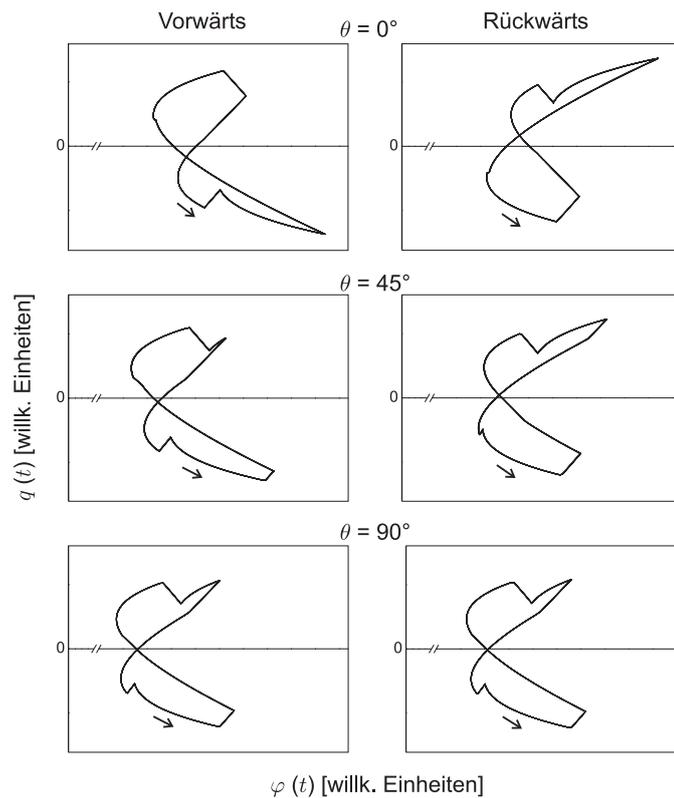


Abb. 4.4: Berechnete Trajektorien der Direktorauslenkung φ sowie der Raumladungsdichte q im Parameterraum $(\varphi(t), q(t))$ in der Nähe der Einsatzschwelle im konduktiven Regime. Es ist nur die Lösung für $\varphi > 0$ gezeigt, es existiert eine weitere für $\varphi < 0$. Die Anregung ist antisymmetrisch für $\theta = 0^\circ$ (oben), asymmetrisch für $\theta = 45^\circ$ (Mitte) und symmetrisch für $\theta = 90^\circ$ (unten) bezüglich Zeitumkehr. Verglichen werden die Trajektorien für die Originalanregung (links) mit denjenigen für die Zeitumkehrfunktion (rechts). Pfeile markieren den Umlaufsinn. $U_{\text{high}} = 10,1 \text{ V}$.

Anregung mit $\theta = 90^\circ$ (unten) führt zu identischen Trajektorien für die Vorwärts- und die Rückwärtsanregung. Die Lösungen $(\varphi(t), q(t))$ sind äquivalent zu $(-\varphi(t), -q(t))$. Beide unterscheiden sich lediglich durch eine globale Verschiebung um die halbe räumliche Musterwellenlänge. Die zeitumkehrantisymmetrische Rückwärtsanregung für $\theta = 0^\circ$ ergibt sich in Abbildung 4.3 (a) aus der entsprechenden Vorwärtsanregung durch eine Spiegelung an beiden Koordinatenachsen. Folglich unterscheiden sich die beiden Lösungen für $E(t)$ und $E(-t)$ durch das Vorzeichen einer der beiden dynamischen Variablen. Reproduziert wird diese Eigenschaft durch die zugehörigen Trajektorien in den Abbildungen 4.4 und 4.5 (oben). Die

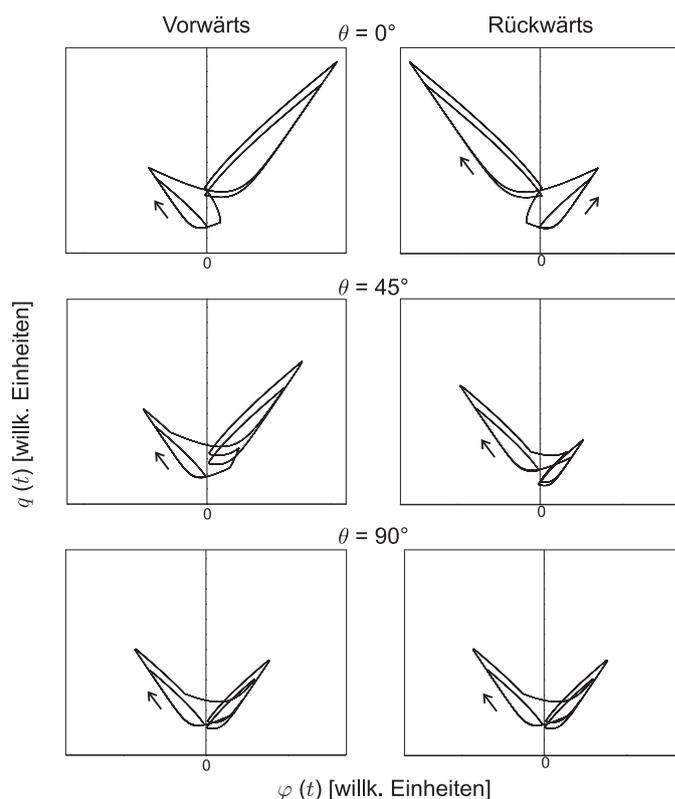


Abb. 4.5: Trajektorien analog zur vorhergehenden Abbildung 4.4 im dielektrischen Regime für die Phasenverschiebungen $\theta = 0^\circ$ (oben), $\theta = 45^\circ$ (Mitte) und $\theta = 90^\circ$ (unten). Es ist nur die Lösung für $q > 0$ gezeigt, es existiert eine weitere für $q < 0$. Pfeile markieren den Umlaufsinn. $U_{\text{high}} = 47,9 \text{ V}$.

zu $E(-t)$ gehörende Trajektorie kann in diejenige für $E(t)$ überführt werden, indem sie an der $q = 0$ -Achse im konduktiven Regime (Abbildung 4.4, oben) bzw. an der $\varphi = 0$ -Achse im dielektrischen Regime (Abbildung 4.5, oben) gespiegelt wird. Darüberhinaus ist der Verlauf beider Kurven und damit die Systemdynamik identisch. Wird die Phasenverschiebung kontinuierlich von $\theta = 0^\circ$ zu $\theta = 90^\circ$ variiert, ergibt der jeweilige Vergleich zwischen Vorwärts- und Rückwärtsanregung einen Übergang von spiegelsymmetrischen zu identischen Trajektorien. Für dazwischenliegende θ erhält man ein bedeutsames Ergebnis: die Trajektorien für $E(t)$ und $E(-t)$ unterscheiden sich mit steigender Phasenverschiebung immer stärker voneinander mit dem größten qualitativen Unterschied für $\theta = 45^\circ$ (Abbildung 4.4 und 4.5, Mitte). Die zwei Trajektorien sind in diesem Fal-

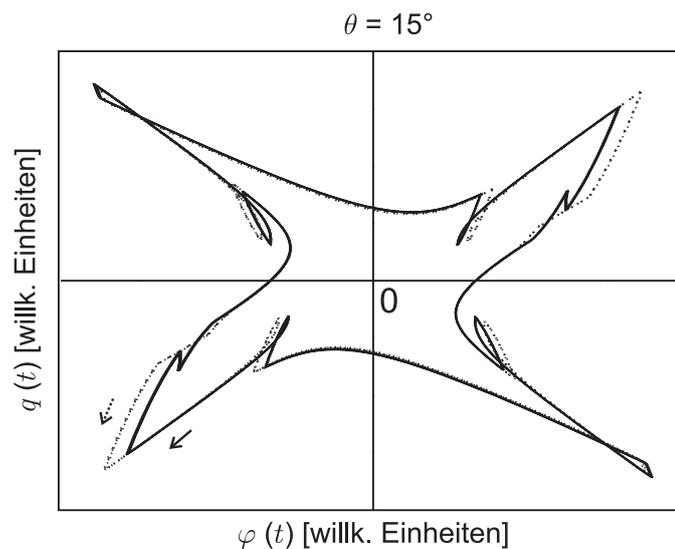


Abb. 4.6: Berechnete Trajektorien im $(\varphi(t), q(t))$ -Raum im subharmonischen Regime in der Nähe der Einsatzschwelle. Die Anregung ist zeitumkehrasymmetrisch mit $\theta = 15^\circ$. Die Trajektorie bezüglich $E(-t)$ ($\bullet\bullet\bullet$) wurde an einer Koordinatenachse gespiegelt, um sie mit derjenigen für die Vorwärtsanregung $E(t)$ (—) direkt vergleichen zu können. Pfeile markieren den Umlaufsinn. $U_{\text{high}} = 35,9 \text{ V}$.

le nicht mehr durch eine einfache Koordinatentransformation ineinander zu überführen und sind wesentlich verschieden im Verlauf.

In Abbildung 4.6 sind die Trajektorien im Raum $(\varphi(t), q(t))$ für eine zeitumkehrasymmetrische Anregung im subharmonischen Regime dargestellt. Es wurde eine Phasenverschiebung von $\theta = 15^\circ$ gewählt, da das subharmonische Regime für höhere θ verschwindet [15]. Die durch die Rückwärtsanregung ($\bullet\bullet\bullet$) erzeugte Trajektorie wurde an der $(q = 0)$ -Achse gespiegelt, um den Unterschied zu derjenigen der Vorwärtsanregung (—) zu unterstreichen. Im Gegensatz zu den konduktiven und dielektrischen Trajektorien, bedecken diejenigen im subharmonischen Regime alle vier Quadranten des Raums $(\varphi(t), q(t))$ [16]. Auch im subharmonischen Regime machen die numerischen Berechnungen deutlich, dass die Trajektorien für eine zeitumkehrasymmetrische Anregungswellenform und deren Zeitumkehrfunktion nicht durch eine einfache Koordinatentransformation ineinander zu überführen sind und sich qualitativ voneinander unterscheiden.

4.4 Experimentelle Schwellkurven und Trajektorien

Um die theoretischen Ergebnisse experimentell testen zu können, wurden Schwellkurven und zeitabhängige Intensitäten von Beugungsmustern in der Nähe der Einsatzschwelle für die interessanten Parameter gemessen.

4.4.1 Experimentelle Methode

Das Mesogen wird in kommerzielle Zellen aus zwei planparallelen Glasplatten gefüllt. Geriebene Polyimidschichten an den Innenseiten der Glasplatten sorgen für eine planare Oberflächenanordnung des Direktors in der nematischen Phase, also für eine Direktorgrundausrichtung \mathbf{n}_0 in x -Richtung (Abbildung 4.1). Für die Konvektionsexperimente wurde ausschließlich die planare Geometrie verwendet. Transparente Indium-Zinn-Oxid-Beschichtungen auf den Glasplatten dienen als Elektroden für das Anlegen des äußeren elektrischen Wechselfeldes normal zur Zellebene in z -Richtung. Die Anregungswellenform wird durch einen Agilent 33220A Funktionsgenerator erzeugt, welcher wiederum durch Ansteuerungsprogramme (Labview) bedient wird. Ein linearer Verstärker erhöht anschließend die Amplitude des Signals. Die Spannung über der Zelle wurde mit einem Keithley Multimeter gemessen, angegeben sind stets die Effektivwerte der Spannung (engl. root mean square, RMS-Werte). Die Temperatur der Probe wird mittels eines Linkam Heiztisches kontrolliert. So vorbereitet wird die Konvektionszelle mittels Laserbeugung untersucht.

Laserbeugung

Wird ein Laserstrahl normal zur Zellebene durch die Probe geschickt, entsteht auf einem entfernten Schirm ein Beugungsbild sobald die Konvektion einsetzt. Mit dieser Methode können die Schwellwerte U_c und k_c ermittelt werden. Der besondere Vorteil des Beugungsexperimentes ist jedoch die Möglichkeit, die zeitliche Entwicklung der Beugungsintensität gut aufgelöst messen und damit auf die Dynamik der Direktorauslenkung

schließen zu können (siehe Abschnitt 3.3.3 und Gleichung 3.11). Lokale Eigenschaften der Strukturen und Defekte sind hingegen nicht detektierbar. Abbildung 4.7 zeigt den Experimentieraufbau für die Laserbeugung. Die Konvektionsrollen bzw. die periodische Direktorauslenkung erzeugen sowohl eine periodische Phase ψ (—) des transmittierten Lichts als auch eine periodische Intensität I (—) am Ausgang der Zelle, wobei die Phase die doppelte Periode wie das Konvektionsmuster und die Intensität besitzt. Es wird ein Helium-Neon-Laser der Wellenlänge $\lambda_{\text{Licht}} = 632,8 \text{ nm}$ verwendet. Die Wellenzahlen ergeben sich aus dem Abstand x_n der Beugungsordnungen von der Position der nullten Beugungsordnung sowie dem Abstand x_{schirm} zwischen Schirm und Zelle über Gleichung 3.10 mit $\tan \vartheta(n) = x_n(n)/x_{\text{schirm}}$.

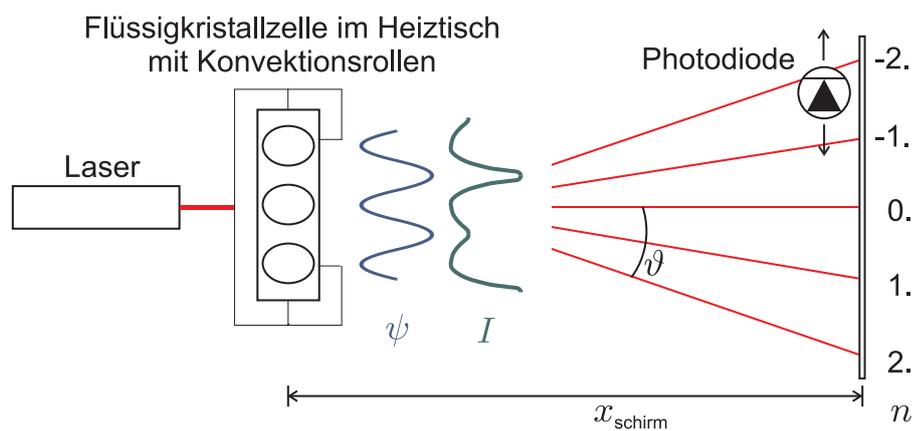


Abb. 4.7: Experimentieraufbau für die Laserbeugung. Der Verlauf von Phase ψ (—) und Intensität I des Lichts (—) am Zellenausgang sowie die Entstehung der Beugungsflecken mit der Ordnung n (—) sind angedeutet. Die Proportionen sind stark verzerrt dargestellt.

Der zeitliche Verlauf der Beugungsintensitäten wird mittels Photodiode aufgezeichnet. Obwohl der Beugungsfleck zweiter Ordnung mit steigender Anregungsamplitude theoretisch eher zu sehen ist als derjenige der ersten Beugungsordnung, wird hier der Beugungsfleck erster Ordnung betrachtet, da aufgrund der großen Wellenzahl im dielektrischen Regime die zweite Beugungsordnung auf dem Schirm sehr weit von der nullten Beugungsordnung entfernt ist. Die Beugungseffizienz nimmt jedoch mit steigendem Abstand ab und die zweite Ordnung ist im dielektrischen Muster-

regime kaum oder nur bei Spannungen weit oberhalb der Einsatzschwelle detektierbar.

Bestimmung der Schwellkurven

Wichtig für die Bestimmung der Schwellkurven ist die Parametrisierung der Anregung. Bei einfachen Anregungswellenformen wie Sinus- oder Rechteckanregungen besteht die Schwellkurve aus dem frequenzabhängigen kritischen Wert U_c für die Spannungsamplitude, bei welcher der Grundzustand instabil wird (auch Einsatzschwelle oder Mustereinsatz genannt) und der zu diesem Muster gehörigen kritischen Wellenzahl k_c .

In diesem Kapitel wird eine Anregung verwendet, welche aus einer Superposition zweier Rechteckwellen besteht (Gleichung 4.4). Die Parameter sind dann bei festen Frequenzen $f_{\text{low}} = 100$ Hz und $f_{\text{high}} = 400$ Hz die Amplituden U_{low} und U_{high} sowie die Phasenverschiebung θ zwischen beiden Komponenten. Für die Bestimmung einer Schwellkurve wird die niedrigfrequente Amplitude U_{low} bei festem θ und U_{high} solange erhöht, bis die Konvektion einsetzt (Abbildung 4.8, linker Pfeil). Die Wellenzahl k_c dieser ersten Instabilität wird bestimmt. Da f_{low} kleiner als die Cut-off-Frequenz zwischen konduktivem und dielektrischem Regime bei einfacher Rechteckanregung ist und f_{high} größer, ergibt der Schnittpunkt der Schwellkurve mit der Abszisse die kritische Spannung für dielektrische Rollen bei einer einfachen Rechteckanregung mit f_{high} . Der Schnittpunkt mit der Ordinate bestimmt den Einsatz konduktiver Rollen bei einer Rechteckanregung mit f_{low} . Im Falle großer Werte für U_{high} , wurde U_{high} bei konstanter Amplitude U_{low} variiert (Abbildung 4.8, rechter Pfeil).

Die Unterscheidung der einzelnen Musterregimes, welche durch die Übergangsspannungen (Abbildung 4.8, ---) separiert sind, ist wegen der sprunghaften Änderung der Wellenzahl an den Übergangsspannungen sowie der dynamischen Eigenschaften der Intensität der Beugungspeaks eindeutig.

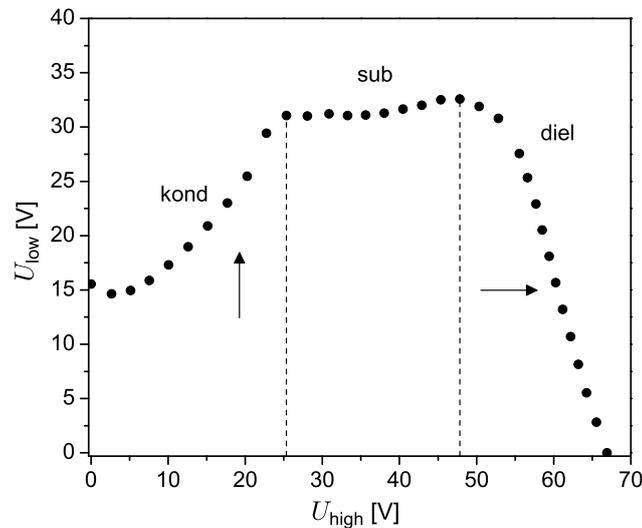


Abb. 4.8: Exemplarische Schwellkurve für eine Anregung aus zwei überlagerten Rechteckwellen mit den Amplituden U_{low} und U_{high} . Pfeile zeigen die Messrichtung an, gestrichelte Linien die Übergangsspannungen zwischen dem konduktiven (kond), subharmonischen (sub) und dielektrischen Regime (diel). $\theta = 0^\circ$.

Substanz und Zellparameter

Die Untersuchung der Dynamik der Konvektionsstrukturen erfolgte an der Substanz Mischung 5. Dies ist ein klassisches Mesogen mit negativer dielektrischer Anisotropie $\Delta\epsilon$ und positiver Leitfähigkeitsanisotropie $\Delta\sigma$. Es handelt sich um eine kalamitische Substanz, also bestehend aus stäbchenförmigen Molekülen, mit einer nematischen Phase bei Raumtemperatur. Dieses Material eignet sich aufgrund der Einfachheit der Molekülform sowie der bekannten Materialparameter [166] hervorragend, um generelle, von besonderen Eigenschaften des Mesogens unabhängige Aspekte der Elektrokonvektion zu untersuchen. Mischung 5 ist eine eutektische Mischung aus vier stäbchenförmigen Komponenten (Abbildung 4.9) und wird hier ausschließlich in der nematischen Phase untersucht. Die mit Mischung 5 gefüllte Zelle ist für eine planare Grundanordnung des Direktors präpariert und besitzt eine Zelldicke von $d = 20,2 \mu\text{m}$ sowie eine Elektrodenfläche von $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$. Die Temperatur wurde konstant auf $T = 30^\circ\text{C}$ gehalten.

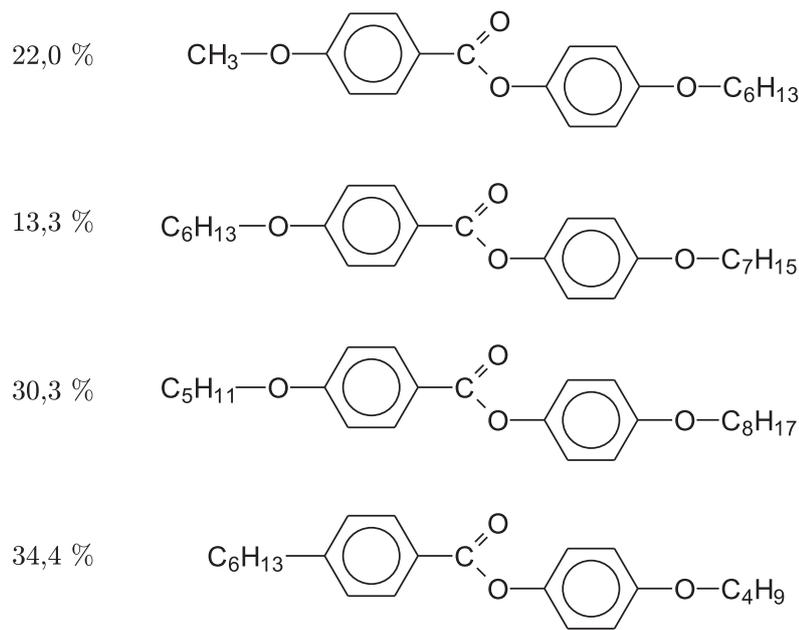


Abb. 4.9: Chemische Struktur der vier Komponenten des kalamitischen Mesogens Mischung 5.

4.4.2 Vergleich von experimentellen und numerischen Ergebnissen

Für den Mustereinsatz charakteristische kritische Spannungen und Wellenzahlen sind in Abbildung 4.10 in Abhängigkeit von der Anregungswellenform dargestellt. Verglichen werden jeweils die gemessenen Kurven für Vorwärts- (◦◦◦) und Rückwärtsanregung (•••). Die Schwellkurven für die zeitumkehrantisymmetrische Anregung ($\theta = 0^\circ$, oben) sind erwartungsgemäß identisch. Der triviale Fall der zeitumkehrsymmetrischen Wellenform ($\theta = 90^\circ$) ist hier nicht dargestellt. Besonderes Augenmerk verdienen die Schwellspannungen und Wellenzahlen für diejenigen Anregungen, welche unter Zeitumkehr asymmetrisch sind. Ausgewählt wurden Beispiele für die Phasenverschiebungen $\theta = 15^\circ$ (Mitte) sowie $\theta = 45^\circ$ (unten). Während im ersten Fall das subharmonische Regime noch beobachtet werden kann, ist dieses bei höheren Phasenverschiebungen nicht mehr sichtbar [16]. Trotz der zeitlichen Asymmetrie der Anregungswellenform sind die Kurven für Vorwärts- und Rückwärtsanregung in beiden Fällen identisch, womit das analytische Ergebnis, dass die Schwellkurven

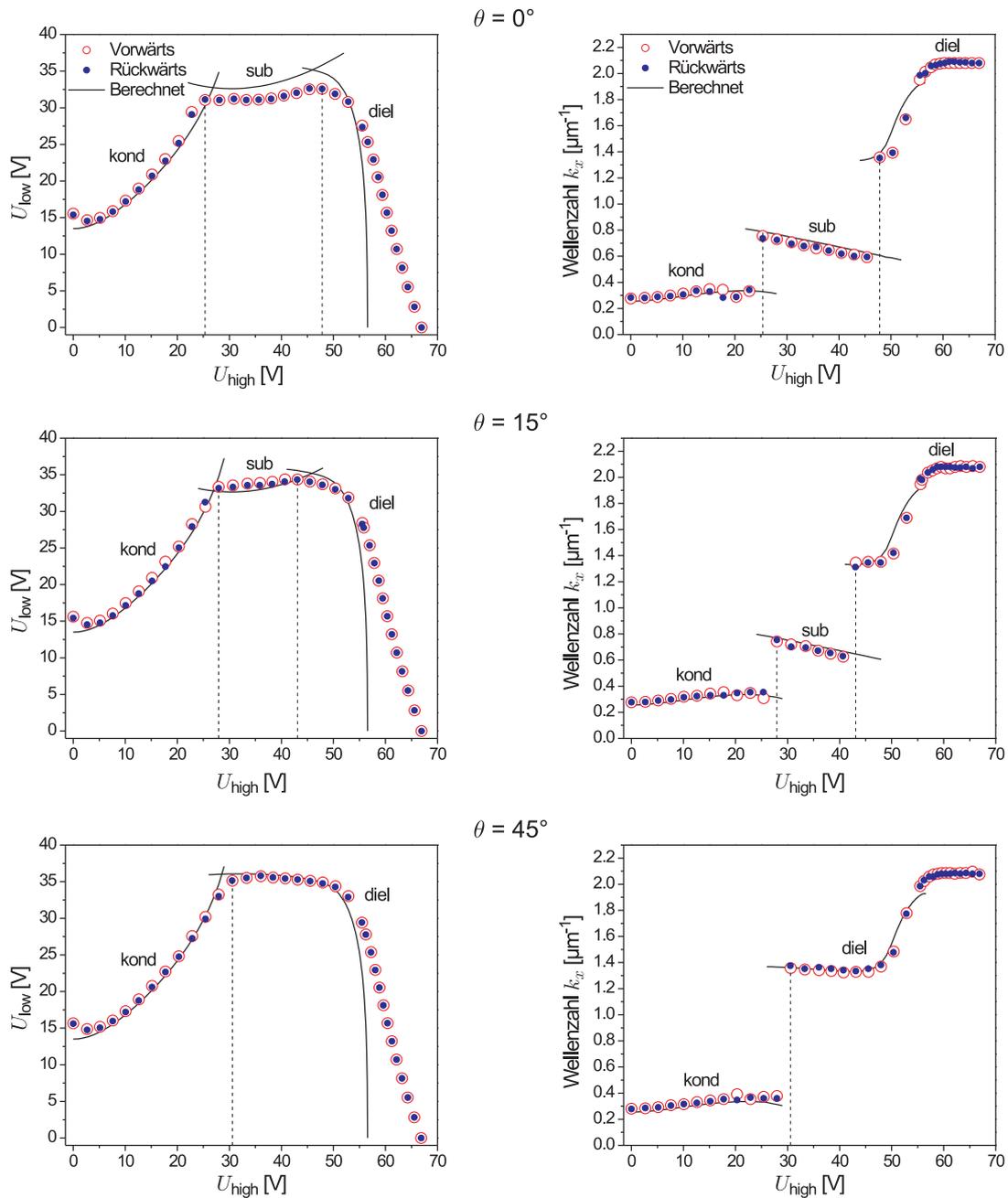


Abb. 4.10: Gemessene (Symbole) und berechnete (—) Schwellspannungen (linke Spalte) sowie entsprechende Wellenzahlen (rechte Spalte) in Abhängigkeit von der Anregungswellenform. Die Kurven für Vorwärts- (○ ○ ○) und Rückwärtsanregung (● ● ●) sind jeweils identisch für die Anregungen mit $\theta = 0^\circ$, $\theta = 15^\circ$ sowie $\theta = 45^\circ$. Gestrichelte Linien geben die gemessenen Übergangsspannungen zwischen konduktiven (kond), subharmonischen (sub) und dielektrischen Mustern (diel) wieder.

invariant unter Zeitumkehr der Anregungsfunktion sind, unterstützt.

In Abbildung 4.10 sind die numerisch berechneten Schwellkurven und Wellenzahlen eingetragen (—), welche für alle drei Wellenformen die Identität für Vorwärts- und Rückwärtsanregung reproduzieren. Sie geben die im Experiment bestimmten Übergänge zwischen den Musterarten wieder (- - -), sowie die Kurvenverläufe für die kritischen Spannungen und die Wellenzahlen. Nur im dielektrischen Regime bei großen Werten für U_{high} weichen die numerischen von den experimentellen Werten ab, was einem zu einfachen Ansatz für die Testmoden im zugrunde liegenden Modell geschuldet sein könnte.

Neben dem Schwellverhalten der Konvektionsstrukturen wurde auch die detaillierte Dynamik während einer Anregungsperiode experimentell untersucht. Hierzu wurde der zeitliche Verlauf der Intensität des Laserbeugungsspots erster Ordnung aufgenommen. Die Abbildungen 4.11 - 4.13 (links) zeigen die gemessene Intensität für Vorwärts- (—) und Rückwärtsanregung (—) für verschiedene Symmetrien der Anregungswellenform. Verglichen werden diese mit den entsprechenden gerechneten Trajektorien (Abbildungen 4.11 - 4.13, rechts) und zwar mit dem Quadrat der Direktorauslenkung $\varphi(t)$, welches in erster Näherung proportional zur Beugungsintensität ist. Dies ist gerechtfertigt, da nur das Amplitudengitter, nicht aber das Phasengitter zur Intensität des Beugungsflecks erster Ordnung beiträgt (siehe Abschnitt 3.3.3). Mit dieser Näherung kann der zeitliche Verlauf der experimentell bestimmten Intensitäten sehr gut reproduziert werden. Die zeitumkehrantisymmetrische ($\theta = 0^\circ$) sowie die zeitumkehrsymmetrische Wellenform ($\theta = 90^\circ$) führen im Experiment wie auch in der Rechnung zu identischen Kurven für die Vorwärts- und die Rückwärtsanregung. Der Vorzeichenwechsel von $\varphi(t)$ bei Übergang von $E(t)$ zu $E(-t)$ für $\theta = 0^\circ$ im dielektrischen (Abbildung 4.5) und im subharmonischen Regime erscheint in den Abbildungen 4.12 und 4.13 nicht, da zum Vergleich mit der gemessenen Intensität $\varphi^2(t)$ aufgetragen wurde. Im konduktiven Regime (Abbildung 4.11) entsteht für $\theta = 0^\circ$ und $\theta = 90^\circ$ im Experiment eine Verschiebung zwischen den Kurven

für Vorwärts- und Rückwärtsanregung, die ihre Ursache wahrscheinlich in der langen Zeit hat, welche das Muster benötigt, um sich zu stabilisieren. Diese Verschiebung ist im subharmonischen (Abbildung 4.12) und im

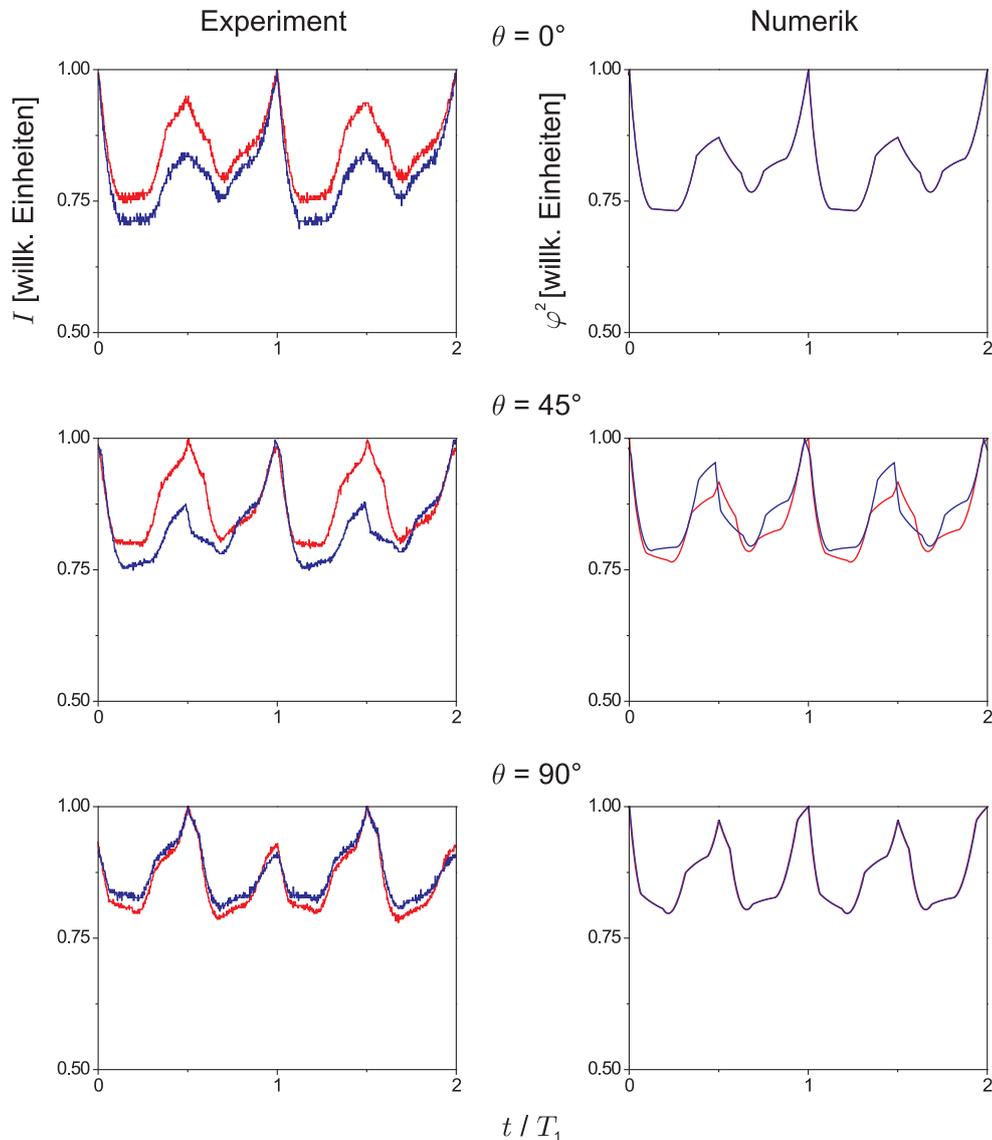


Abb. 4.11: Vergleich von gemessener Intensität (links) und gerechneten Trajektorien (rechts) für Vorwärts- (—) und Rückwärtsanregung (—) im konduktiven Regime in Abhängigkeit von der Phasenverschiebung θ . $U_{\text{high}} = 10, 1 \text{ V}$ wie in Abbildung 4.4.

dielektrischen Musterregime (Abbildung 4.13) nicht beobachtbar, da die Moden nach Überschreiten der Schwellspannung schneller anwachsen als im konduktiven Regime.

Die Trajektorien weisen die, in Abschnitt 3.3 beschriebene, typische Charakteristik der drei verschiedenen Musterregimes auf. Im konduktiven Regime oszilliert die Direktorauslenkung, besitzt aber keinen Nulldurchgang, also werden auch $I(t)$ und $\varphi^2(t)$ in Abbildung 4.11 nie Null. Im subharmonischen Regime besitzt $\varphi(t)$ einen Nulldurchgang pro Anregungsperiode T_1 . Im Gegensatz dazu weist das dielektrische Regime zwei Nulldurchgänge von $\varphi(t)$ pro Periode auf. So werden in Abbildung 4.13 auch $\varphi^2(t)$ und $I(t)$ mindestens zweimal pro Anregungsperiode Null, während $\varphi^2(t)$ und $I(t)$ im subharmonischen Regime nur einen Nulldurchgang besitzen (Abbildung 4.12).

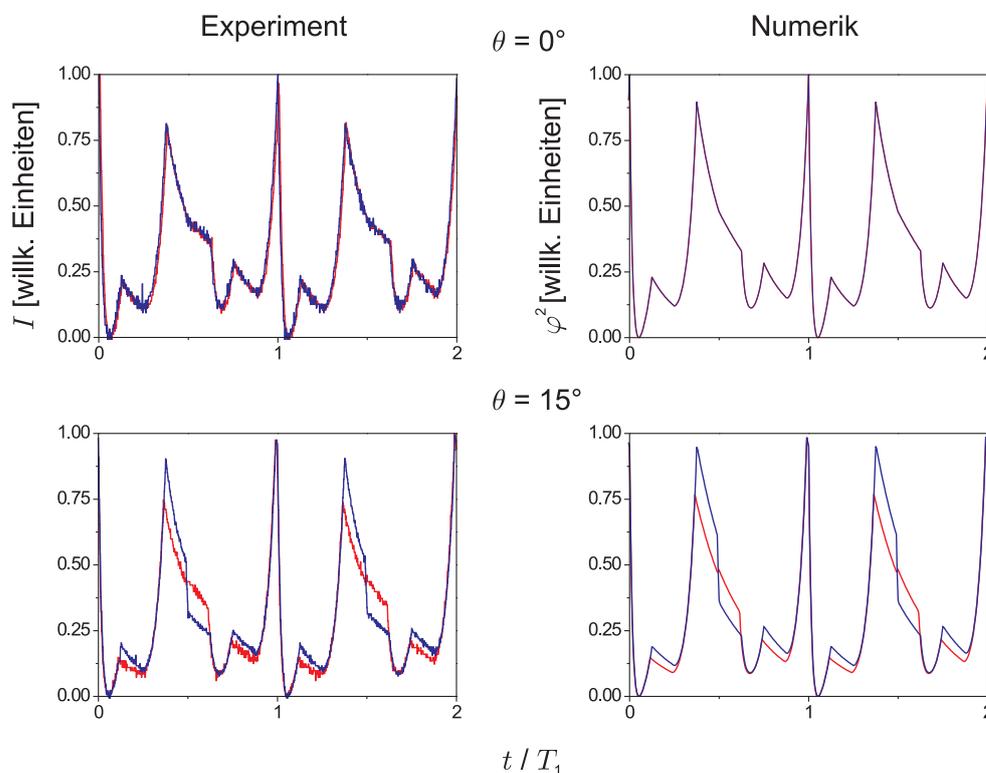


Abb. 4.12: Vergleich von gemessener Intensität (links) und gerechneten Trajektorien (rechts) für Vorwärts- (—) und Rückwärtsanregung (—) im subharmonischen Regime. $U_{\text{high}} = 35,9 \text{ V}$ wie in Abbildung 4.6.

Hervorzuheben sind die zeitabhängigen Kurven für eine zeitumkehrasymmetrische Anregung mit $\theta = 45^\circ$ im konduktiven (Abbildung 4.11) und im dielektrischen Regime (Abbildung 4.13) bzw. $\theta = 15^\circ$ im subhar-

moischen Regime (Abbildung 4.12). In allen drei Regimes unterscheiden sich die Intensitäten und Trajektorien für Vorwärts- und Rückwärtsanregung qualitativ, obwohl kritische Spannungen und Wellenzahlen identisch sind. Die numerischen Kurven reproduzieren die experimentell bestimmten im Detail, im subharmonischen und dielektrischen Regime mit sehr hoher Genauigkeit.

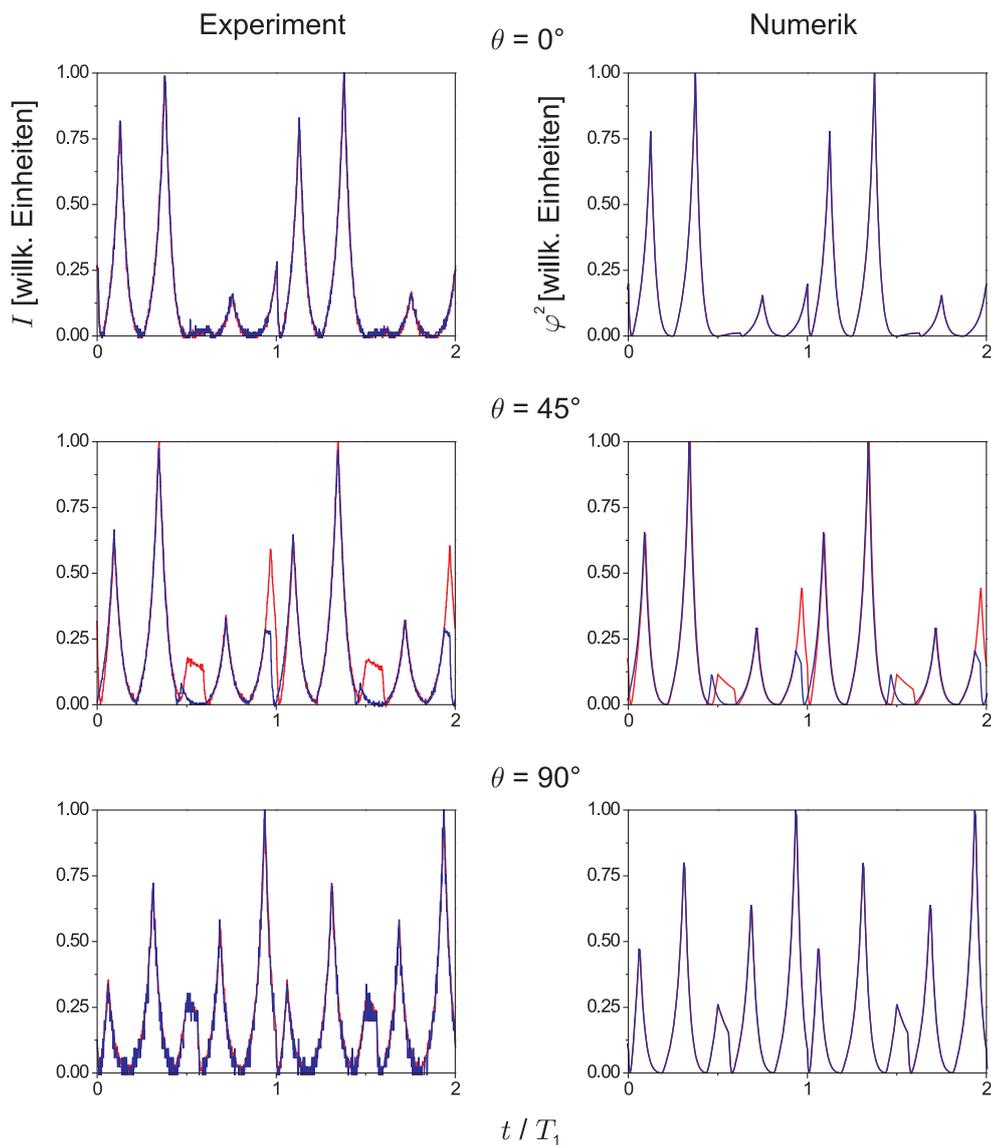


Abb. 4.13: Vergleich von gemessener Intensität (links) und gerechneten Trajektorien (rechts) für Vorwärts- (—) und Rückwärtsanregung (—) im dielektrischen Regime. $U_{\text{high}} = 47,9 \text{ V}$ wie in Abbildung 4.5.

Die Wahl der Anregungsfunktion lässt es zu, dass sich die zeitliche Symmetrie der Wellenform mit Veränderung der Phasenverschiebung θ schrittweise variieren lässt. Damit wird es möglich, einen graduellen Übergang von identischen Intensitätsverläufen für Vorwärts- und Rückwärtsanregung ($\theta = 0^\circ$ oder $\theta = 90^\circ$ mit $E(t_0 + t) = \pm E(t_0 - t)$) zu qualitativ unterschiedlichen Kurven zu realisieren (z.B. $\theta = 45^\circ$ mit $E(t_0 + t) \neq \pm E(t_0 - t)$). Dieser schrittweise Übergang ist in Abbildung 4.14 dargestellt. Der zeitliche Verlauf der gemessenen Intensität ist für Vorwärts-

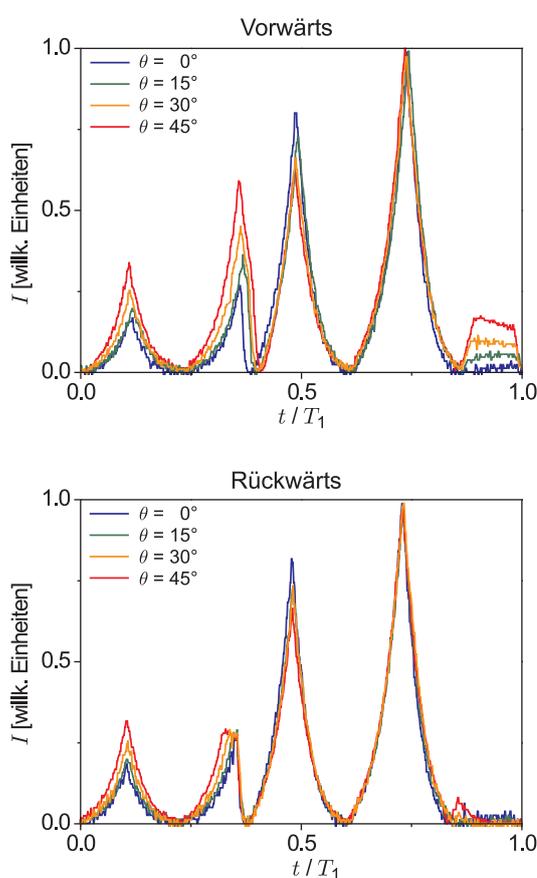


Abb. 4.14: Zeitlicher Verlauf der gemessenen Intensität innerhalb einer Periode T_1 für Vorwärts- (oben) und Rückwärtsanregung (unten) im dielektrischen Regime. Während die Kurven für $\theta = 0^\circ$ identisch sind (—), unterscheiden sie sich schrittweise stärker für steigende θ . $U_{\text{high}} = 47,9 \text{ V}$.

(oben) und Rückwärtsanregung (unten) identisch, wenn $\theta = 0^\circ$ beträgt (—). Für steigende Phasenverschiebungen nimmt auch der Unterschied im Kurvenverlauf zu, bis sich die Intensitäten für die zeitumkehrsymme-

trische Anregung mit $\theta = 45^\circ$ maximal unterscheiden (—).

4.5 Diskussion des Einflusses der Zeitumkehr der Anregung

Die Elektrokonvektion zeigt ein erstaunliches Verhalten, wenn die Anregungsfunktion $E(t)$ zeitlich gespiegelt wird: $E(t) \rightarrow E(-t)$. Schwellkurven, Musterart sowie Musterwellenlänge bleiben identisch, obwohl sich die spezifische Dynamik der Konvektionsstrukturen wesentlich unterscheiden kann.

Die analytische Untersuchung der dynamischen Gleichungen des EHC-Standardmodells in Referenz [162] haben gezeigt, dass jede periodische Anregung $E(t)$ mit beliebiger zeitlicher Symmetrie dieselben Schwellwerte und Wellenzahlen liefert wie ihre Zeitumkehrfunktion $E(-t)$. Numerische Rechnungen führen zu dem Ergebnis, dass zeitumkehrsymmetrische Anregungen mit $E(t_0 + t) = E(t_0 - t)$ für bestimmte t_0 sowie zeitumkehrantisymmetrische Wellenformen mit $E(t_0 + t) = -E(t_0 - t)$ für bestimmte t_0 stets Trajektorien ergeben, welche mit denen ihrer zeitlichen Spiegelbilder identisch sind. Hingegen entstehen bei zeitumkehrasymmetrischen Anregungsfunktionen mit $E(t_0 + t) \neq \pm E(t_0 - t)$ für alle t_0 deutlich unterscheidbare Trajektorien für die Vorwärts- und die Rückwärtsanregung, wobei die entsprechenden Schwellkurven identisch bleiben. Laserbeugungsmessungen haben die berechneten Ergebnisse bestätigt und zeigen, dass der zeitliche Verlauf der Intensität in der Nähe der Einsatzschwelle bei zeitumkehrasymmetrischer Anregung für Vorwärts- und Rückwärtsanregung differiert, wohingegen die Eigenschaften der Konvektionsmuster, also Musterregime, zeitliche Periode, räumliche Wellenlänge sowie Schwellspannungen innerhalb der experimentellen Genauigkeit für alle untersuchten Wellenformen unverändert bleiben.

Für Numerik und Experiment wurde eine stückweise konstante Anregung benutzt, um eine einfach zu generierende Funktion zu erhalten. Da das analytische Ergebnis jedoch für beliebige Anregungen gilt, können

ähnliche Ergebnisse beispielsweise auch für bestimmte Sägezahnanregungen sowie für Überlagerungen harmonischer Funktionen erwartet werden.

Nun kann der Verdacht auftauchen, dass die Stabilitätsschwellen eines jeden periodisch getriebenen, zweidimensionalen, linearen dynamischen Systems zeitumkehrinvariant sind. Ein Gegenbeispiel ist das parametrisch getriebene Pendel [167], bei welchem die Zeitumkehr der Anregung zu unterschiedlichen Trajektorien und Stabilitätsschwellen führt. Die Elektrokonvektion bringt also ganz spezielle dynamische Eigenschaften hervor. Ein allgemeines Argument, ob die Zeitumkehr multiplikativer Anregungsparameter in einem bestimmten System zu identischem Schwellverhalten führt, wurde bisher nicht offensichtlich.

Dennoch ist die brennende Frage, ob eine Generalisierung der analytisch hergeleiteten dynamischen Eigenschaften des Elektrokonvektionsmodells und eine Übertragung auf andere dynamische Systeme möglich ist, welche ebenfalls durch zwei dynamische Variablen beschrieben werden können. Eine hinreichende Bedingung ist die Symmetrisierbarkeit des Differentialgleichungssystems in den Nichtdiagonalelementen der Propagatormatrix. Diese Bedingung ist aber nicht notwendig. Damit könnte das beobachtete Phänomen auch in anderen dynamischen Systemen auftauchen, beispielsweise in alternativen musterbildenden Systemen, welche ebenfalls zeitlich periodisch angeregt werden. Die Faradayinstabilität etwa bildet raumzeitliche Muster aus, wenn eine viskose Flüssigkeit vertikal geschüttelt und damit die Beschleunigung periodisch moduliert wird [9, 10]. Der Einfluss der Anregung und der Form der treibenden Funktion auf die Stabilität und die Art der Muster ist auch in diesem System aktuelles Forschungsthema (z.B. [14]). Die Entstehung verschiedener Musterregimes in Abhängigkeit von der Phasenverschiebung zwischen den einzelnen Komponenten, wenn die Anregung eine Superposition aus mehreren Funktionen unterschiedlicher Frequenzen darstellt, wurde untersucht [11, 168–170]. Hierbei wurden auch Phasenverschiebungen betrachtet, welche einer Zeitumkehr der Anregungsfunktion entspre-

chen. Doch die konkreten Unterschiede der räumlichen und dynamischen Eigenschaften der Muster am Einsatz nach der Zeitumkehr sind unklar. Ein weiteres musterbildendes System, welches auch periodisch angeregt werden kann, ist die thermisch getriebene Rayleigh-Bénard-Konvektion. Theoretische Untersuchungen beschäftigen sich mit einer periodischen Modulation der Gravitationsbeschleunigung sowie dem Einfluss der Modulationsfrequenzen auf die Systemantwort [171, 172]. Doch der Einfluss der Zeitumkehr der Anregung auf die Stabilität und die Mustereigenschaften ist noch nicht untersucht worden. Auch die Taylor-Couette-Wirbel, welche eine Flüssigkeit zwischen zwei konzentrischen Zylindern, von denen einer rotiert, ausbilden kann, können unter periodisch modulierter Anregung beobachtet werden [173, 174]. Die Frage, ob eine Zeitumkehr der Anregung die Schwellkurven und Muster beeinflusst, ist jedoch auch in diesem System offen.

5 Neue Konvektionsmuster in unkonventionellen Materialien

Neuartige Konvektionsmuster, welche sich in der Orientierung sowie im optischen Erscheinungsbild von den klassischen Strukturen wesentlich unterscheiden, wurden bereits in modernen Materialien gefunden (Abbildung 5.1).

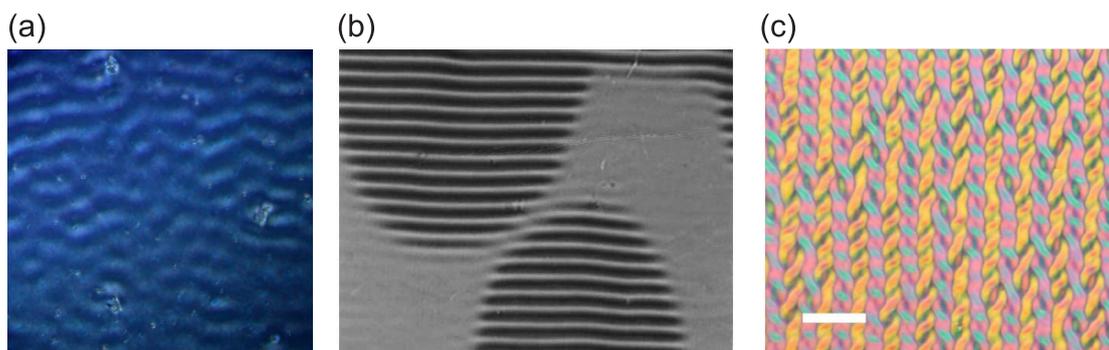


Abb. 5.1: Auswahl an Bildern neuartiger Konvektionsmuster. (a) Interferenzmuster, (b) scharfe Front zwischen konvektiven und nichtkonvektiven Bereichen, Abbildung mit Genehmigung nachgedruckt aus [17]. Copyright 2002 durch die American Physical Society. (c) „Strickmuster“, Abbildung mit Genehmigung nachgedruckt aus [19]. Copyright 2005 APS.

Auch das hier verwendete Bent-core-Mesogen GTP 240 bringt interessante Phänomene hervor, nicht nur im Bereich der Musterbildung. So zeigt die Untersuchung des elektrischen Splay-Fréederickszübergangs besondere Eigenschaften des optischen Gangunterschieds des transmittierten Lichts. Gemeinsam mit der Beobachtung von Brochard-Leger-Wänden mit einer außergewöhnlich hohen räumlichen Anisotropie kann daraus geschlossen werden, dass Materialkonstanten in dieser Substanz ungewöhnliche Werte annehmen [142]. Das Auftreten dieser bemerkens-

werten Effekte lässt erwarten, dass auch die Elektrokonvektion in diesem Bent-core-Nemateneuartigen zeigt. Die Ausbildung unkonventioneller Elektrokonvektionsmuster ist daher Thema dieses Kapitels.

Die neuartigen Strukturen werden experimentell untersucht, die Methode wird in Abschnitt 5.1 vorgestellt. Es werden die Eigenschaften von unkonventionellen Longitudinalrollen (Abschnitt 5.2) sowie Übergänge zwischen verschiedenen Musterarten (Abschnitt 5.3) beschrieben. Das Kapitel schließt mit der Untersuchung einer neuen, metastabilen Domäne in Abschnitt 5.4 sowie mit der Diskussion der präsentierten Ergebnisse in Abschnitt 5.5. Die Ergebnisse dieses Kapitels sind im Wesentlichen in den Referenzen [142, 148] publiziert.

5.1 Experimentelle Methode

Wie auch in Kapitel 4.4 werden die Konvektionsstrukturen in diesem Abschnitt mit planarer Geometrie des Grundzustandes untersucht. Der Aufbau der Zelle und die Ansteuerung bleiben gleich. Das elektrische Wechselfeld wird wieder senkrecht zur Zellebene angelegt, es wird eine einfache sinusförmige Anregung verwendet. Damit sind die Parameter der Anregung bei der Bestimmung der Schwellkurven die Frequenz f_0 und die Spannungsamplitude U_0 . Die Untersuchungen bei konstanter Frequenz erfolgen mit $f_0 = 1$ kHz, Ausnahmen sind angegeben. Optisch charakterisiert werden die unkonventionellen Muster mittels Polarisationsmikroskopie.

Die verschiedenen experimentellen Durchläufe wurden innerhalb einer Zeitspanne von mehreren Monaten und mit unterschiedlichen Zellen durchgeführt. Da der Absolutwert der elektrischen Leitfähigkeit für einzelne Zellen verschieden ist und sich auch über die Zeitspanne in jeder Zelle verändert, können die absoluten Werte der Schwellspannungen und Übergangsfrequenzen für unterschiedliche Messungen voneinander abweichen.

5.1.1 Polarisationsmikroskopie

Die Beobachtung der nematischen Texturen im Polarisationsmikroskop bietet einen leichten Zugang zu Phasenübergängen, Phasentypen sowie zu Änderungen der Textur, welche durch äußere Felder oder eine Variation der Temperatur bedingt sein können. Die Konvektionsmuster können räumlich gut aufgelöst werden, wobei eine Analyse der lokalen Details der Texturen sowie der Defekte möglich ist. Auch für eine Ermittlung der kritischen Werte U_c der Spannung und k_c der Wellenzahl ist die Polarisationsmikroskopie geeignet.

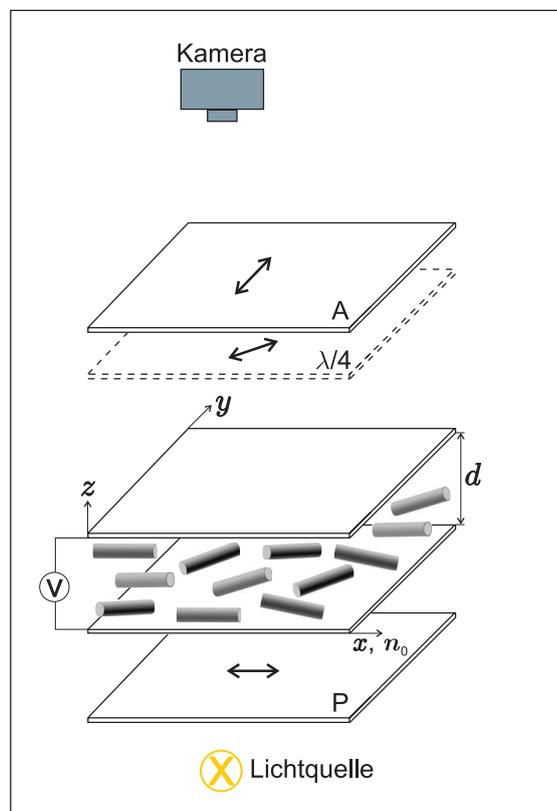


Abb. 5.2: Skizze der Elemente im Strahlengang des Polarisationsmikroskops bei Beobachtung in Transmission. Die Zelle mit der Dicke d , welche mit dem nematischen Flüssigkristall gefüllt ist, befindet sich zwischen dem Polarisator P und dem Analysator A, welche in der Regel orthogonal gekreuzt sind. Gegebenenfalls wird eine $\lambda/4$ -Phasenplatte mit einem Winkel von 45° zur Reiberichtung eingeführt. Die Spannung wird normal zur Zellebene angelegt. Die Darstellung ist nicht maßstabsgetreu.

Es wurde ein Zeiss Jenapol D Mikroskop mit orthogonaler Lichtein-

strahlung in Transmission verwendet, mit Ausnahme der optischen Profile in Abschnitt 5.2.3, welche mit einem Zeiss Axioskop 40 in Reflexion untersucht wurden. Die Mehrheit der Texturen wurde mit einer weißen Lichtquelle betrachtet, die Benutzung eines monochromatischen Filters bei einzelnen Aufnahmen ist vermerkt. Der Drehtisch, auf welchem der Heiztisch mit der Probe liegt, ermöglicht eine präzise konzentrische Drehung der Probenzelle. Im Strahlengang befinden sich Analysator und Polarisator (A und P in Abbildung 5.2), wobei beide dreh- und entfernbar sind, sowie gegebenenfalls noch eine $\lambda/4$ -Platte.

Die entstandenen Bilder werden mit einer handelsüblichen CCD-Kamera aufgenommen, Bildsequenzen mit einer Hochgeschwindigkeitskamera variabler Bildrate. Die digitalen Bilder werden anschließend bearbeitet, indem der Kontrast erhöht wird. Gegebenenfalls wird eine zweidimensionale Fouriertransformation bei Einzelbildern bzw. eine dreidimensionale Fouriertransformation bei Bildsequenzen mithilfe der Softwarepakete MatLab und IDL berechnet. Der Rückschluss vom optischen Erscheinungsbild der Konvektionsstrukturen auf die Art der Muster folgt den Prinzipien in Kapitel 3.

5.1.2 Substanz und Zellparameter

Die neuartigen Konvektionsmuster werden vom Bent-core-Mesogen GTP 240 ausgebildet, welches sowohl durch die Vorzeichenkombination $\Delta\varepsilon > 0$, $\Delta\sigma < 0$ als auch durch die gebogene Molekülform ungewöhnliche Eigenschaften besitzt, die die Entdeckung neuer Musterarten begünstigen. Die Moleküle bestehen aus einer Bent-core-Einheit, welche durch einen Spacer an ein kalamitisches Element gebunden ist [175] (Abbildung 5.3). Diese Technik ermöglicht es, in eine Bent-core-Struktur ein Nematogen einzuschließen bzw. nematische Phasen bei Bent-core-Mesogenen zu konstruieren. Die Phasensequenz ist: kristallin 160°C (smektisch C 149°C) nematisch $167,5^\circ\text{C}$ isotrop. Die Einklammerung der smektischen C Phase bedeutet, dass diese nur beim Abkühlen entsteht. Die Temperatur wurde auf 4 K unterhalb der Übergangstemperatur T_{iso} von der nematischen in

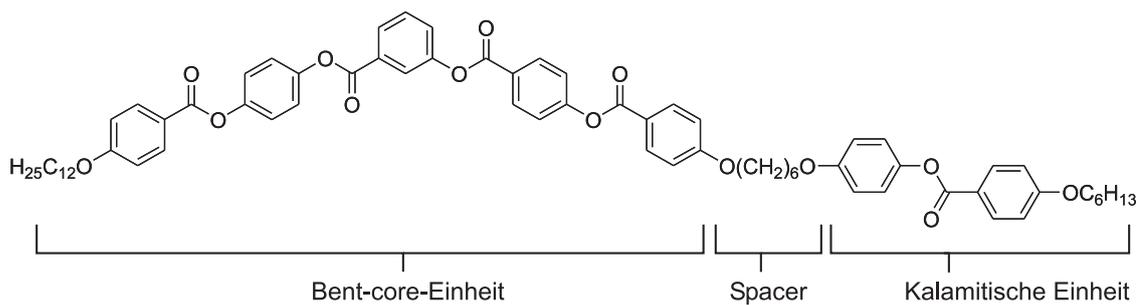


Abb. 5.3: Chemische Struktur des Bent-core-Mesogens GTP 240.

die isotrope Phase eingestellt, Ausnahmen sind angegeben. Die Substanz wurde ausschließlich in der nematischen Phase untersucht. Die Zelle, welche mit GTP 240 gefüllt ist, besitzt eine Dicke von $d = 25 \mu\text{m}$ sowie eine Elektrodenfläche von $11 \text{ mm} \times 11 \text{ mm}$.

5.1.3 Die dielektrische und die Leitfähigkeitsanisotropie

Da die Kombination der Vorzeichen der Anisotropien von elektrischer Leitfähigkeit und Dielektrizitätskonstanten wesentlich sind, um Aussagen über den Charakter der Instabilität treffen zu können (siehe Abschnitt 3.3), ist es entscheidend, Kenntnisse über die entsprechenden Materialparameter des hier verwendeten unkonventionellen Bent-core-Materials zu erlangen.

Die Elektrokonvektion tritt in dem Mesogen GTP 240 in planarer Geometrie nur oberhalb des Splay-Fréederickszübergangs auf. Für diese Reihenfolge der Instabilitäten muss $\Delta\varepsilon = \varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}$ notwendiger Weise positiv sein [21].

Durch unabhängige Experimente kann das Vorzeichen der Leitfähigkeitsanisotropie $\Delta\sigma$ und in grober Näherung auch ihr Absolutwert bestimmt werden. Dazu wurde ein Referenzwiderstand von $R_0 = 100 \text{ k}\Omega$ mit der mesogengefüllten Probenzelle in Reihe geschaltet und die Spannungsamplituden U_{Zelle} über der Zelle sowie U_R über dem Referenzwiderstand bei einer Anregungsfrequenz $f_0 = 1 \text{ kHz}$ aufgenommen. Genau genommen ist die Impedanz eine komplexe Größe, wenn die Zelle eine Parallel-

schaltung ohmscher und kapazitiver Elemente darstellt. Im hier verwendeten Material ist die ohmsche Leitfähigkeit jedoch recht hoch, die kapazitiven Beiträge können vernachlässigt werden. Die effektive Leitfähigkeit ergibt sich dann aus

$$\sigma_{\text{eff}}(U_{\text{Zelle}}) = \frac{d}{R_0 A} \frac{U_R}{U_{\text{Zelle}}},$$

mit der Elektrodenfläche $A = 1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ und der Zelldicke $d = 25 \text{ }\mu\text{m}$. Gemessen wurde bei einer Temperatur von $3,6 \text{ K}$ unterhalb der Übergangstemperatur T_{iso} zur isotropen Phase. Abbildung 5.4 zeigt die gemessenen Werte für $\sigma_{\text{eff}}(U_{\text{Zelle}})$ an ($\bullet\bullet\bullet$). Unterhalb der Fréederickszschwelle

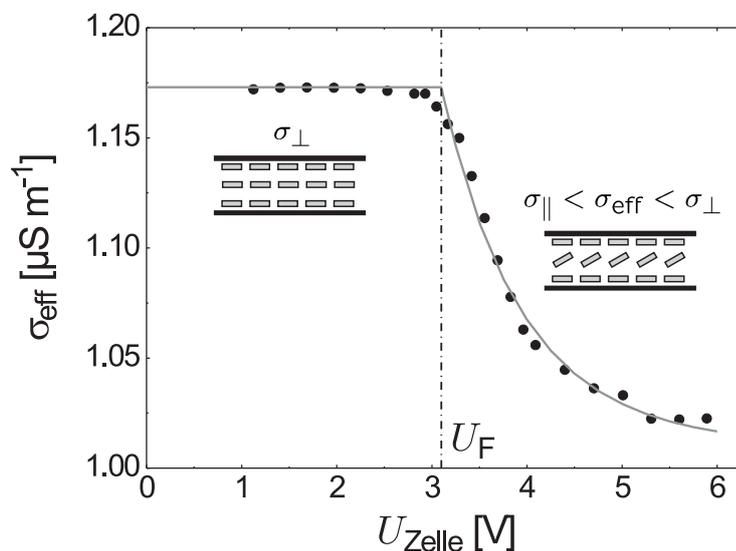


Abb. 5.4: Effektive Leitfähigkeit in Abhängigkeit von der Spannung U_{Zelle} . Verglichen werden die gemessenen Werte ($\bullet\bullet\bullet$) mit einem Fit (—). Die Fréederickszschwelle ist markiert ($\text{-}\cdot\text{-}$), die eingefügten Skizzen deuten den undeformierten Zustand unterhalb des Fréederickszübergangs (links) bzw. das homogen geneigte Direktorprofil an (rechts).

U_F ($\text{-}\cdot\text{-}$) bleibt der Direktor im undeformierten Zustand, die relevante Komponente für den Leitfähigkeitstensor ist σ_{\perp} (siehe Skizze in Abbildung 5.4), σ_{eff} bleibt praktisch konstant. Oberhalb der Fréederickszschwelle nimmt σ_{eff} ab, wobei der Direktor in der Zellmitte allmählich von einer senkrechten zu einer eher parallelen Ausrichtung bezüglich des angelegten elektrischen Feldes übergeht (siehe rechte Skizze). σ_{\parallel} liefert nun auch

einen größer werdenden Anteil zur effektiven Leitfähigkeit. Das Erscheinen des Fréederickszübergangs im Polarisationsmikroskop [142] korrespondiert mit dem Knick von σ_{eff} . Für größer werdende Werte der Spannung U_{Zelle} sollte σ_{eff} eigentlich weiter sinken und schließlich bei dem Wert σ_{\parallel} sättigen. Diese Marke wird allerdings in diesen Experimenten nicht erreicht, da der Direktor nicht zur asymptotisch homöotropen Ausrichtung gelangt, bevor die Elektrokonvektion einsetzt. Um reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten, wurde die Probe unmittelbar vor den Experimenten für mehrere Stunden kleinen Wechselspannungsamplituden ausgesetzt.

Aus Abbildung 5.4 kann sofort geschlussfolgert werden, dass $\sigma_{\parallel} < \sigma_{\perp}$, also ist $\Delta\sigma$ negativ. Für eine quantitative Analyse wurde $\sigma_{\text{eff}}(U_0)$ unter der Annahme errechnet, dass der resultierende Widerstand eine unendliche Reihenschaltung infinitesimal kleiner Widerstände darstellt:

$$\sigma_{\text{eff}}(U_0) = \left[\frac{1}{d} \int_0^d \frac{dz}{\sqrt{\sigma_{\parallel}^2 \sin^2 \varphi(U_0; z) + \sigma_{\perp}^2 \cos^2 \varphi(U_0; z)}} \right]^{-1}.$$

σ_{\parallel} und σ_{\perp} sind Fitparameter. Die Direktorauslenkung $\varphi(z)$ aus der Zellebene heraus kann aus der Inversion des elliptischen Integrals für U_0 mit der Fréederickszschwelle U_{F} berechnet werden [21]. Der Wert für die kritische Spannung U_{F} am Fréederickszübergang kann direkt aus dem Experiment abgeschätzt und angepasst werden (Abbildung 5.4, - · -). In das Modell für den Fit sind folgende Annahmen über die Materialparameter eingeflossen: Die elastischen Konstanten für Splay- und Benddeformationen werden gleichgesetzt, $K_1 = K_3 = K$, obwohl in unabhängigen Experimenten festgestellt wurde, dass $K_3 > K_1$ [142]. Außerdem wird $\varepsilon_{\parallel} \approx \varepsilon_{\perp}$ gesetzt, wenngleich aus der Existenz des Fréederickszübergangs $\varepsilon_{\parallel} > \varepsilon_{\perp}$ zu schließen ist. Beide Annahmen über die Materialkonstanten bedeuten eine Verstärkung der Direktorfluktuationen oberhalb der Fréederickszschwelle und führen damit zu einem erhöhten Wert für den Anpassungsparameter σ_{\parallel} gegenüber der tatsächlichen Größe. Dies führt zu einer Unterschätzung des Absolutwertes für $\Delta\sigma$ um 10 bis 20%. Für den

Fit in Abbildung 5.4 (—) wurden die folgenden Parameter verwendet: $U_F = 3,1 \text{ V}$, $\sigma_{\perp} = 1,17 \mu\text{S m}^{-1}$ und $\sigma_{\parallel} = 1,01 \mu\text{S m}^{-1}$. Damit ist der Verlauf der experimentellen Kurve qualitativ sehr gut reproduziert, die Grenzwerte für $U_0 < U_F$ und $U_0 \gg U_F$ werden durch das Modell korrekt bestimmt. Für eine Temperatur von $T - T_{\text{iso}} = -3,6 \text{ K}$ ergibt sich die Anisotropie der Leitfähigkeit $\Delta\sigma = -0,16 \mu\text{S m}^{-1}$ bzw. $\Delta\sigma/\sigma_{\perp} = -0,14$.

Die Veränderung von $\Delta\sigma$ mit steigender Temperatur ist in Abbildung 5.5 dargestellt. Das Ansteigen der Werte von $\Delta\sigma$ bzw. das Abfallen der Absolutwerte wird deutlich. Das bedeutet, dass die Anisotropie der elektrischen Leitfähigkeit ihren größten Absolutwert bei niedrigen Temperaturen in der Nähe der Übergangstemperatur zur smektischen C Phase besitzt. An der Übergangstemperatur T_{iso} zur isotropen Phase wird $|\Delta\sigma|$ minimal. In dem relevanten Temperaturbereich existiert demnach kein Vorzeichenwechsel von $\Delta\sigma$, die Substanz ist definitiv vom Typ (+, -) (vergleiche Tabelle 3.1).

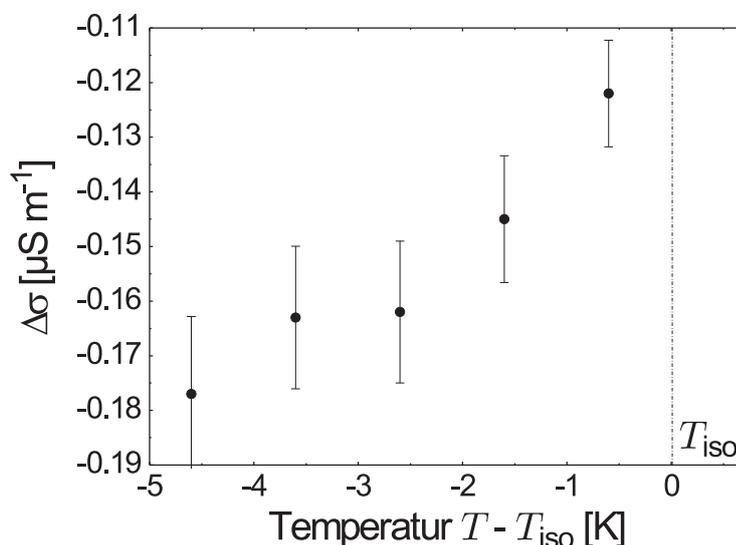


Abb. 5.5: Anisotropie der Leitfähigkeit in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Übergangstemperatur von der nematischen zur isotropen Phase ist markiert (-.-).

5.2 Longitudinale Konvektionsmuster oberhalb der Fréederickszschwelle

5.2.1 Wesentliche Merkmale der Longitudinalrollen

Konventionelle Materialien mit negativer dielektrischer sowie positiver Leitfähigkeitsanisotropie weisen in planarer Grundausrichtung Elektrokonvektion mit Normal- oder Schrägrollen an der Einsatzschwelle auf. Das hier untersuchte Bent-core-Mesogen GTP 240 des Typs (+, -) entwickelt unkonventionelle Muster oberhalb des Splay-Fréederickszübergangs, welche parallel oder nahezu parallel zur Direktorgrundausrichtung \mathbf{n}_0 orientiert sind (Longitudinalrollen) [141].

Die longitudinalen Konvektionsrollen sind in einem großen Temperaturbereich in der nematischen Phase beobachtbar und entstehen stets oberhalb des Fréederickszübergangs (Abbildung 5.6). Mit steigender Temperatur divergieren die beiden Schwellkurven. Für $T = 167^\circ\text{C}$ konnten kei-

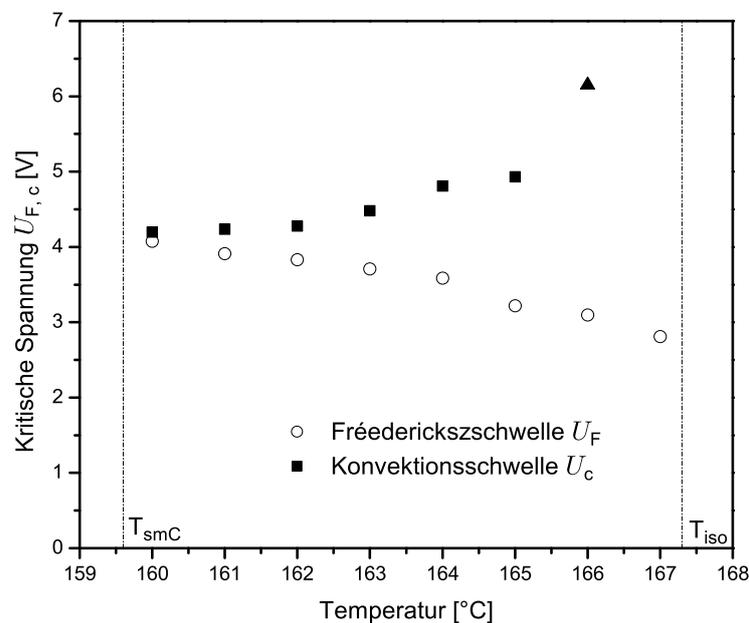


Abb. 5.6: Kritische Spannungen für den Fréederickszübergang und die longitudinalen Muster für Temperaturen zwischen T_{smC} und T_{iso} , also zwischen der smektischen C Phase und der isotropen Phase.

ne Konvektionsrollen mehr beobachtet werden, da hier bereits durch das elektrische Feld induzierte metastabile Domänen entstehen, welche eine Fortsetzung der Messung unmöglich machen. Bei $T = 166\text{ °C}$ (\blacktriangle) haben sich die longitudinalen Rollen bereits zu Normalrollen umorientiert.

Das (+, -)-Bent-core-Mesogen weist in einem breiten Parameterbereich der Anregung longitudinale Rollen auf, welche in Abbildung 5.7 für verschiedene Spannungen und Polarisatorstellungen gezeigt sind. Die Longitudinalrollen sind im wesentlichen parallel zur Direktorgrundausrichtung \mathbf{n}_0 orientiert, was im Gegensatz zu den klassischen Konvektionsrollen in (-, +)-Materialien steht. Letztere entwickeln in der Nähe der Einsatzschwelle Rollen, welche senkrecht zu \mathbf{n}_0 (Normalrollen) bzw. leicht geneigt zu dieser senkrechten Ausrichtung orientiert sind (Schrägrollen). Ein weiterer wesentlicher Unterschied zu den klassischen Normalrollen

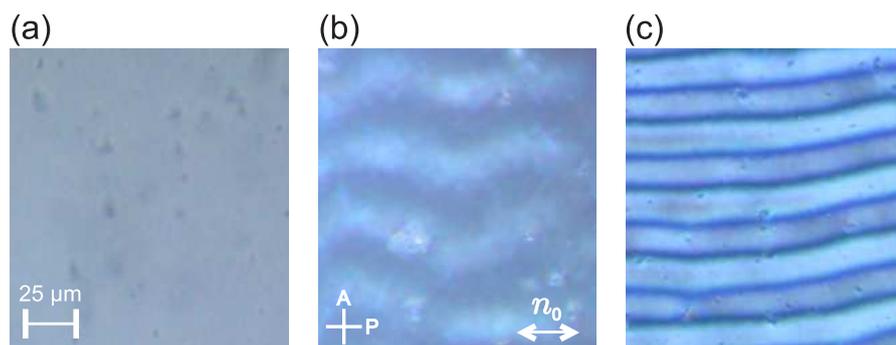


Abb. 5.7: Longitudinale Konvektionsrollen im Polarisationsmikroskop. (a) ohne Polarisatoren, $U_0 \approx U_c$, (b) gekreuzte Polarisatoren (A,P), $U_0 \approx U_c$, (c) gekreuzte Polarisatoren, $U_0 = 1,04 U_c$. $f_0 = 1\text{ kHz}$, $U_c = 6,5\text{ V}$.

ist das optische Erscheinungsbild der Longitudinalrollen. Direkt an der Schwellspannung U_c produzieren die Muster keine Shadowgraphbilder (Abbildung 5.7 (a)), sie sind nur mit zwei Polarisatoren sichtbar (Abbildung 5.7 (b)). Es handelt sich also um Interferenzbilder, welche nur durch die Modulation des optischen Phasenprofils von ordentlicher und außerordentlicher Welle entstehen. Alle drei charakteristischen Eigenschaften der Longitudinalrollen in der Nähe der Einsatzschwelle für Konvektionsmuster werden durch das Twistmodenmodell von Stannarius [141] reprodu-

ziert: das Auftreten oberhalb der Fréederickszschwelle, die parallele Ausrichtung bezüglich \mathbf{n}_0 sowie das Erscheinen als Nichtshadowgraphmuster. Da das Twistmodenmodell Muster liefert, welche keine Shadowgraphbilder am Einsatz produzieren, weil die z -Komponente des Direktors \mathbf{n} in der Zellebene nicht moduliert ist, werden die Nichtshadowgraphmuster im Folgenden als Twistmuster bezeichnet, obwohl sie alle drei Arten von Direktordeformationen enthalten. Die Direktorneigung in der Zellebene ist also im Prinzip homogen. Fokuseffekte sind hierbei vernachlässigbar und werden erst relevant, wenn ein paar Prozent oberhalb der Schwellspannung Shadowgraphmuster entstehen (Abbildung 5.7 (c)), also auch die Direktorneigung periodisch moduliert ist. Die Texturen bei hohen Spannungen und unter gekreuzten Polarisatoren (Abbildung 5.7 (c)) sind eine Überlagerung von Interferenz- und Beugungseffekten.

In Abbildung 5.8 (a) sind Longitudinalrollen bei Betrachtung mit orthogonal gekreuzten Polarisatoren (A, P) und $\lambda/4$ -Platte in der Nähe der Einsatzschwelle gezeigt, wobei \mathbf{n}_0 (—) parallel zum Polarisator ausgerichtet ist. Diese Kombination wirkt als zirkularer Polarisator, Regionen mit entgegengesetzter Direktorauslenkung φ erscheinen in Komplementärfarben (siehe Kapitel 3). Die Farbe benachbarter Streifen alterniert, woraus sich schließen lässt, dass benachbarte Konvektionsrollen tatsächlich eine entgegengesetzte Direktorauslenkung aufweisen. In den folgenden Abbildungen 5.8 (b-f) ist die Probe mit der Direktoranfangsorientierung gegenüber den Polarisatoren und der $\lambda/4$ -Platte gedreht. Für eine bessere Darstellung wurden die Bilder anschließend um den gleichen Winkel wieder zurückgedreht, so dass \mathbf{n}_0 in den Abbildungen stets in die gleiche Richtung zeigt. Der Farbkontrast zwischen benachbarten Streifen nimmt mit der Drehung solange ab, bis er bei einem Winkel von 45° zwischen Polarisator und \mathbf{n}_0 am geringsten ist (e), da mit dieser Anordnung nicht mehr zwischen links- und rechtsdrehenden Konvektionsrollen unterschieden werden kann. Bei negativer Drehung (d) erhält man das komplementäre Bild zur positiven Drehung (c), da die Anordnung nun dem inversen zirkularen Polarisator entspricht. Ist \mathbf{n}_0 genau um 90° zum

Polarisator gedreht (f), ergibt sich abgesehen von leichten Fluktuationen der Rollen wieder das Anfangsbild (a). Benachbarte Streifen entsprechen also im Einklang mit dem Twistmodenmodell [141] tatsächlich Rollen, in denen der Direktor jeweils entgegengesetzt ausgelenkt ist.

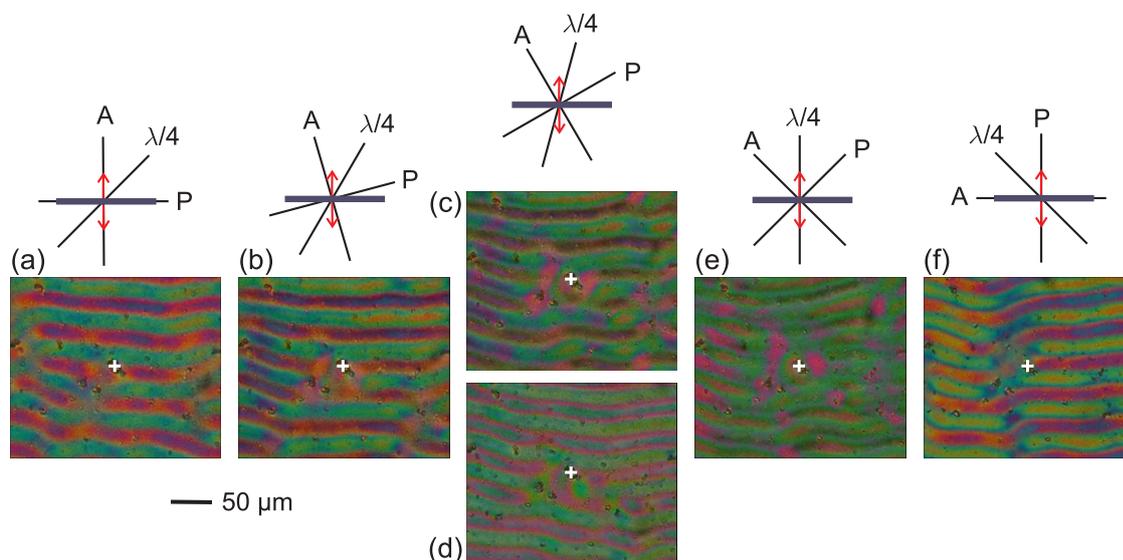


Abb. 5.8: Longitudinalrollen bei orthogonal gekreuzten Polarisatoren und $\lambda/4$ -Platte. $U_0 = 5,7 \text{ V}$, $T_{\text{iso}} - T = 7 \text{ K}$. Der Winkel zwischen \mathbf{n}_0 (—) und dem Polarisator P beträgt (a) 0° , (b) 15° , (c) 30° , (d) -30° , (e) 45° und (f) 90° . \leftrightarrow deutet die Twistrichtung des Direktors in den Rollen an. Das weiße Kreuz in der Mitte der Bilder entspricht einem festen Punkt bezüglich der Zelle, dessen Position invariant unter den vorgenommenen Drehungen ist.

5.2.2 Dynamik der Muster

Standardelektrokonvektion kann in Wechselfeldern drei verschiedene dynamische Musterregimes hervorbringen [15]. Konduktive Rollen sind stationär, das Direktorfeld ist nur schwach zeitabhängig, während das Ladungsfeld mit der Anregungsperiode alterniert. Im dielektrischen Regime fluktuiert das Direktorfeld mit der Periode der Anregung, dabei ist das Ladungsfeld stationär. Subharmonische Muster hingegen verändern sich mit der doppelten Anregungsperiode (siehe Abbildung 3.11). Die Analyse der longitudinalen Muster mittels Hochgeschwindigkeitskamera soll Aufschluss über die dynamischen Eigenschaften dieser Musterart geben

und sie mit den klassischen Regimes vergleichen. Zwar trifft das Twistmodenmodell [141] keine Vorhersage bezüglich der Musterdynamik unter Wechselfeldanregung, da es ausschließlich den Gleichspannungsfall behandelt und daher nur stationäre Strukturen vorhersagt. Dennoch sollten in Wechselfeldern aus Analogiegründen ähnliche Regimes zu finden sein wie in der klassischen EHC.

Um Fluktuationen der Konvektionsmuster registrieren zu können, wurden Bildsequenzen mit einer Bildrate von 2000 Bildern pro Sekunde aufgenommen. $f_0 = 500$ Hz war die Frequenz der sinusförmigen Anregung. Damit liegt ein Datensatz in zwei räumlichen und einer zeitlichen Dimension vor. Dieser Datensatz wurde einer dreidimensionalen Fouriertransformation in den Wellenvektor-Frequenz-Raum unterworfen. Dieses Spektrum in drei Dimensionen zeigt ein stationäres Muster, alle Peaks befinden sich in der Frequenzdomäne bei $f = 0$. Insbesondere gibt es keine messbaren Spitzen bei $f = f_0$ oder $f = 2f_0$. Dieses dynamische Verhalten hat sich für niedrigerer und höhere Frequenzen im beobachteten Bereich nicht qualitativ verändert. Die longitudinalen Rollen ähneln in ihrer Dynamik also den ebenfalls stationären klassischen konduktiven Mustern.

Um die räumlichen Eigenschaften der Longitudinalrollen zu analysieren, wurde aus dem dreidimensionalen Fourierspektrum ein zweidimensionaler Datensatz für den Wert $f = 0$ herausgeschnitten, so dass ein Spektrum für die räumlichen Koordinaten k_x und k_y entstanden ist. Diese Ebene enthält die zeitgemittelten Beiträge zum Amplitudenspektrum, also der Wurzel aus dem Powerspektrum. Abbildung 5.9 (a) zeigt ein Bild aus der fouriertransformierten Bildsequenz. Darunter (b) ist das Amplitudenspektrum für die zwei Raumkoordinaten dargestellt. Der Peak der Gesamtintensität bei $k_x = k_y = 0$ wurde Null gesetzt. Die Wellenzahlen k_x und k_y wurden mit der Referenzwellenzahl $k_d = 2\pi/d$ skaliert, die zur Wellenlänge d bzw. zur Schichtdicke gehört. Messbare Signale erscheinen nur entlang der k_y -Achse in der Nähe von $k_x = 0$, und zwar bei $k_y = 0, 59 k_d, 1, 18 k_d$ sowie $2, 36 k_d$. Wird die kleinste beobachtete Wellenzahl als k_0 bezeichnet, so liefern die Abstände der Peaks das Verhältnis

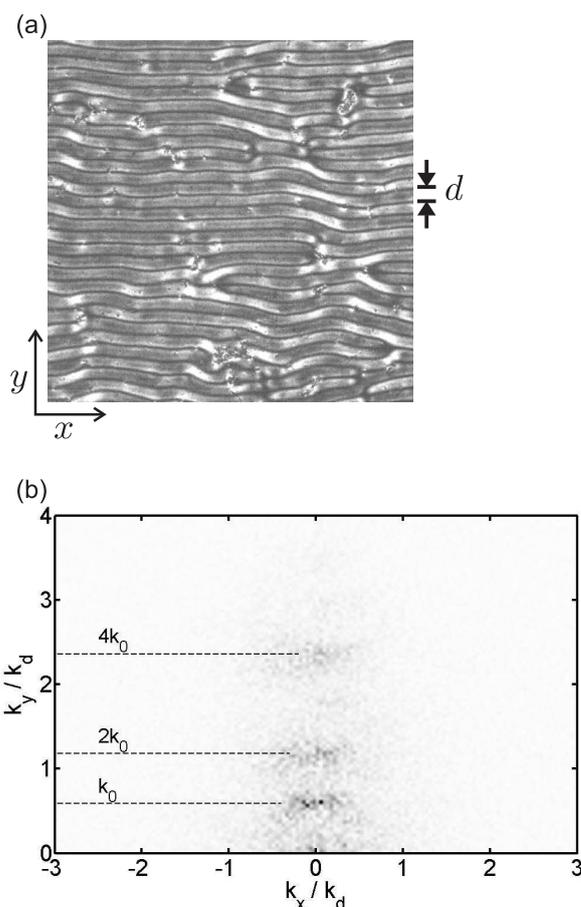


Abb. 5.9: (a) Longitudinalrollen unter gekreuzten Polarisatoren. Die Bildgröße entspricht $640 \mu\text{m} \times 640 \mu\text{m}$, Pfeile skizzieren die Zelldicke d . (b) Fourierspektrum der zu (a) gehörenden Bildsequenz. Dargestellt ist das Amplitudenspektrum im k_x - k_y -Raum. $f_0 = 500 \text{ Hz}$, $U_0 = 1,19 U_c$, $U_c = 4,31 \text{ V}$, räumliche Referenzwellenzahl $k_d = 2\pi/d$ mit $d = 25 \mu\text{m}$.

$k_0 : 2k_0 : 4k_0$. Da Signale ungleich Null nur entlang der k_y -Achse existieren, befindet sich der Wellenvektor in y -Richtung, also senkrecht zur Direktorgrundorientierung \mathbf{n}_0 . Damit spiegelt Abbildung 5.9 (b) longitudinale Muster mit einer Wellenlänge in der Größenordnung der Zelldicke d entsprechend Abbildung 5.9 (a) wider.

5.2.3 Optisches Profil

Um mehr Informationen über die Struktur der Longitudinalrollen zu erhalten, wurde deren optisches Profil detailliert in Reflexion betrachtet. Die Strukturen in Abbildung 5.10 (a), welche zwischen zwei orthogonal ge-

kreuzten Polarisatoren beobachtet wurden, sind keine reinen Interferenzmuster mehr und weisen eine komplizierte Struktur des Intensitätsprofils auf. Bei Drehung der Probe gegenüber dem Polarisator um 45° (Abbildung 5.10 (b)), verändert sich die Struktur.

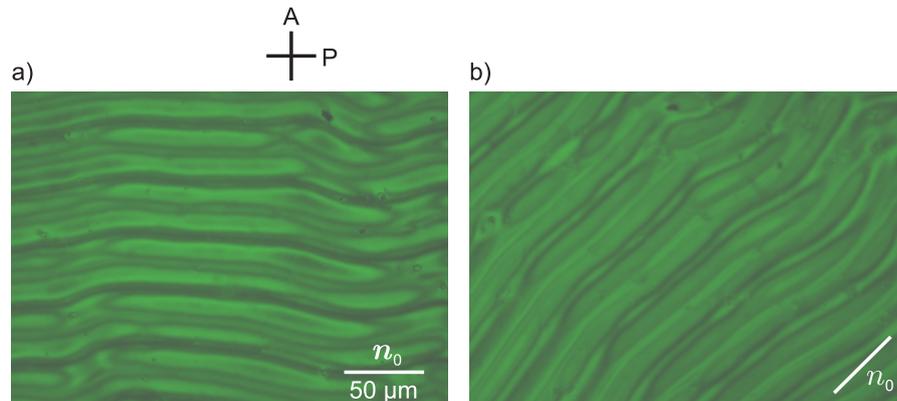


Abb. 5.10: Longitudinalrollen in Reflexion. (a) $\mathbf{n}_0 \parallel \mathbf{P}$, (b) Probe bezüglich des Polarisators um 45° gedreht. Die Polarisatoren (A, P) sind orthogonal gekreuzt, das Licht ist monochromatisch mit $\lambda_{\text{Licht}} = 546 \text{ nm}$, $U_0 = 1,03 U_c$.

Die Mikroskopaufnahmen der Longitudinalrollen sind in Abbildung 5.11 für steigende Spannungen dargestellt, wobei die Fokusebene, bei welcher die Interferenzmuster in der Nähe des Einsatzes am schärfsten erscheinen, beibehalten wurde. An der Einsatzschwelle bilden die Strukturen noch keine Shadowgraphmuster aus, der Kontrast ist relativ schwach (a). Mit steigender Spannung erhöht sich der Kontrast der nun sichtbaren Shadowgraphmuster, die Strukturen werden komplizierter (b - d). Das optische Profil der Longitudinalrollen kann in Abhängigkeit von der Spannung quantitativ analysiert werden, indem die Intensität entlang eines Schnittes parallel zum Wellenvektor des Musters betrachtet wird (Abbildung 5.11, Schnitt entspricht weißer gepunkteter Linie in (b)). Dieses Intensitätsprofil ist in Abbildung 5.12 für die Aufnahmen in Abbildung 5.11 dargestellt, wobei die y -Koordinate stets mit der räumlichen Musterwellenlängen λ_y normiert ist. Es sind jeweils zwei Musterwellenlängen dargestellt. Am und nahe des Einsatzes besitzt die Intensität zwei lokale Maxima pro Wellenlänge (\downarrow in Abbildung 5.12 (a)), oberhalb der Schwell-

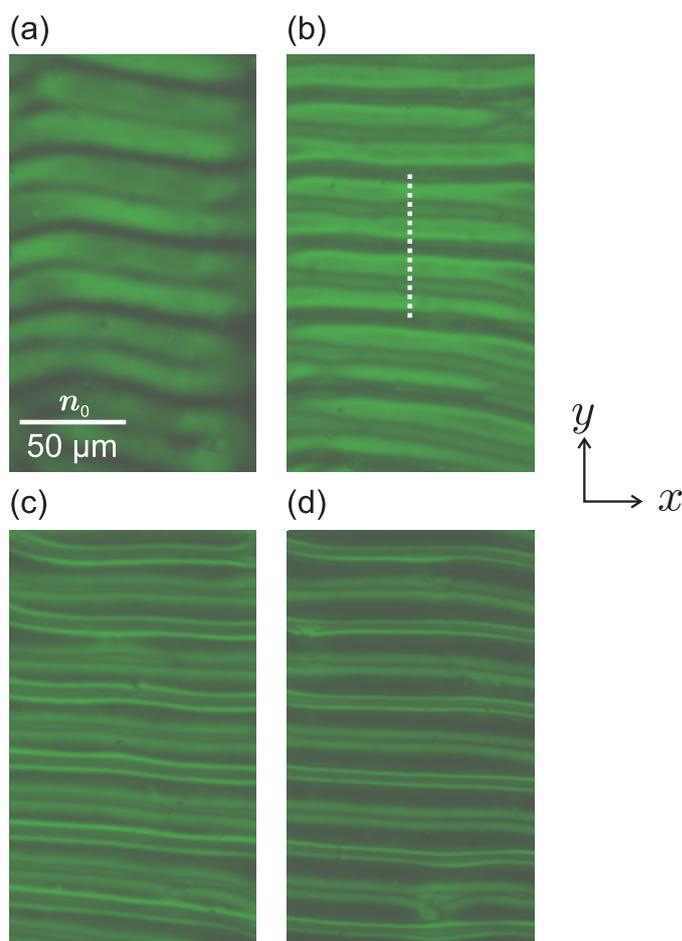


Abb. 5.11: Longitudinalrollen in Reflexion in Abhängigkeit von der Spannung. (a) $U_0 = 1,02 U_c$, (b) $U_0 = 1,03 U_c$, (c) $U_0 = 1,1 U_c$, (d) $U_0 = 1,18 U_c$. $\mathbf{n}_0 \parallel \mathbf{P}$. Die Polarisatoren sind orthogonal gekreuzt, das Licht ist monochromatisch mit $\lambda_{\text{Licht}} = 546 \text{ nm}$. Die Intensitätsprofile entlang eines Schnittes (z.B. weiße gepunktete Linie in (b)) sind in Abbildung 5.12 dargestellt.

spannung U_c wächst die Anzahl der lokalen Maxima allmählich auf vier an (z.B. Abbildung 5.12 (d)), es erscheinen also doppelt soviel Streifen wie am Mustereinsatz.

Die zweidimensionalen Fouriertransformierten der Aufnahmen in Abbildung 5.11 im Wellenzahlraum sind in Abbildung 5.13 dargestellt. Der Peak der Gesamtintensität $(k_x; k_y) = (0; 0)$ wurde Null gesetzt. Für alle Spannungen erscheinen Longitudinalrollen, das bedeutet $k_x = 0$ überall. Die Interferenzmuster (a) besitzen einen Peak bei der einfachen Wellenzahl $(k_x; k_y) = (0; 1,4 k_d)$ sowie bei der halben Wellenzahl $(0; 0,7 k_d)$.

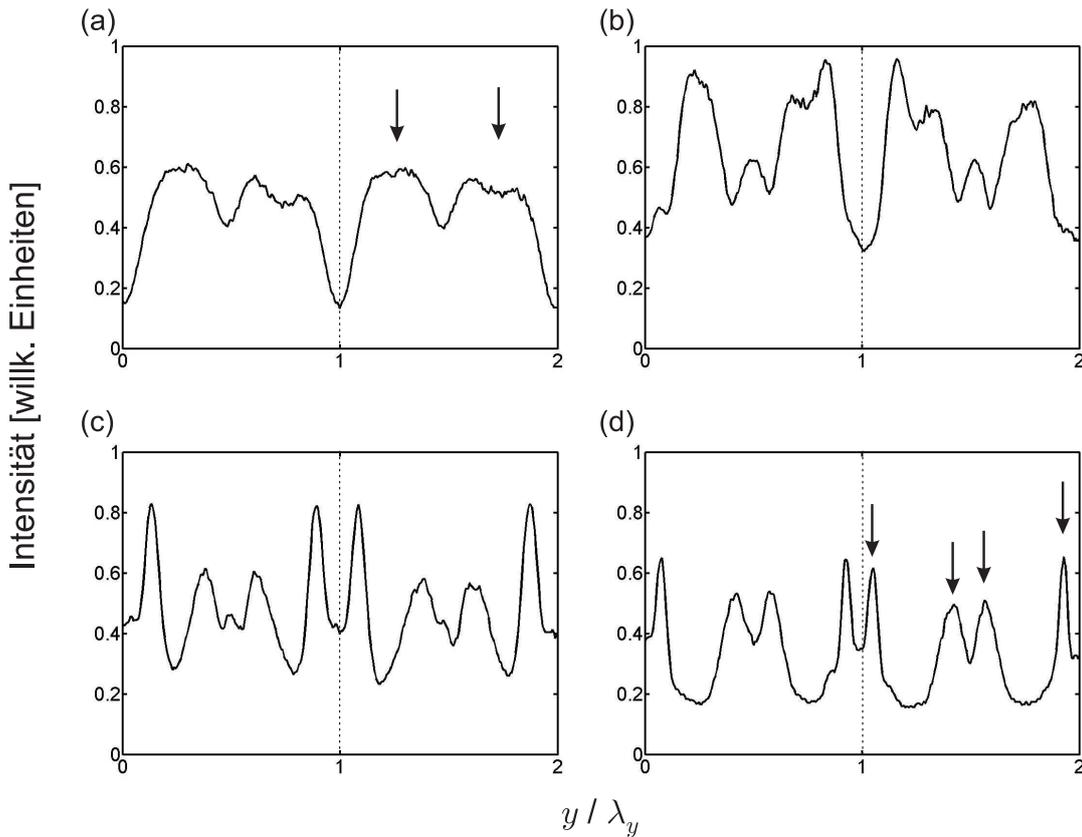


Abb. 5.12: Zu Abbildung 5.11 gehörende Intensitätsprofile entlang von Schnitten parallel zum Wellenvektor (siehe z.B. weiße gepunktete Linien in Abbildung 5.11 (b)) für steigende Spannungen. Die räumliche Koordinate y ist mit der Musterwellenlänge λ_y normiert. (a) $U_0 = 1,02 U_c$, $\lambda_y = 36,4 \mu\text{m}$, (b) $U_0 = 1,03 U_c$, $\lambda_y = 35,2 \mu\text{m}$, (c) $U_0 = 1,1 U_c$, $\lambda_y = 32,6 \mu\text{m}$, (d) $U_0 = 1,18 U_c$, $\lambda_y = 36,1 \mu\text{m}$. Die Wellenlänge λ_y ist markiert (- - -). Pfeile deuten auf die lokalen Maxima der Intensität.

Kommt zum reinen Doppelbrechungs- noch der Shadowgrappeffekt hinzu, verschwindet der Peak bei der halben Wellenzahl allmählich (b, c), während derjenige bei der doppelten Wellenzahl ($0; 2, 9 k_d$) zum Tragen kommt (c). Überwiegt der Shadowgrappeffekt vollständig, entstehen im Intensitätsprofil (Abbildung 5.12 (d)) immer noch vier statt zwei Streifen pro Wellenlänge. Aber aufgrund der Symmetrie der Doppelpeaks erscheint in der Fouriertransformierten im Wesentlichen wieder nur die einfache Wellenzahl ($0; 1, 4 k_d$). Der Übergang von reinen Interferenzmustern zu Strukturen, welche hauptsächlich auf dem Shadowgrappeffekt beruhen, findet mit steigender Spannung also allmählich über kompliziertere

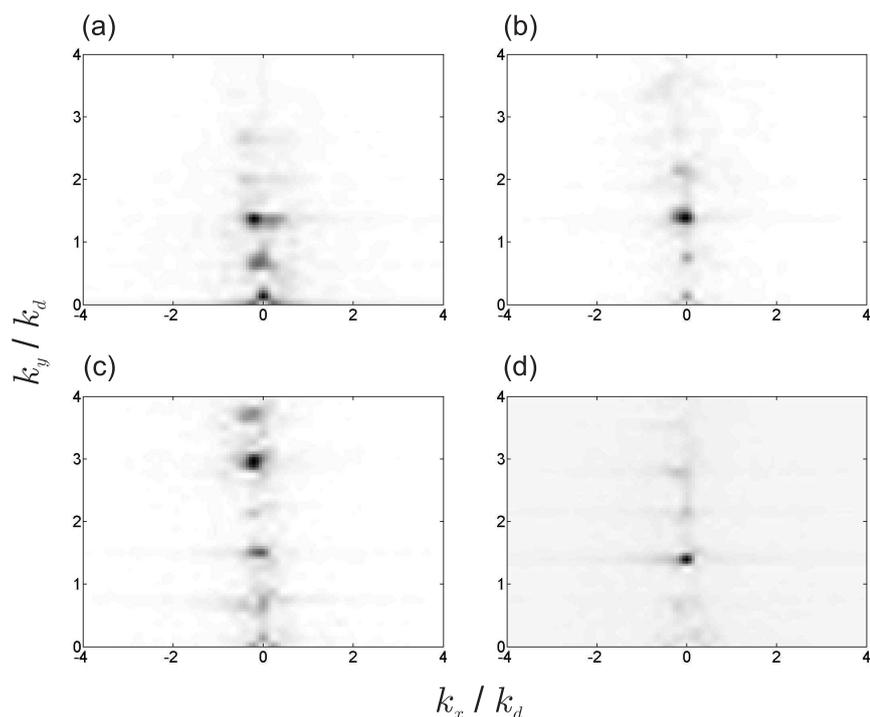


Abb. 5.13: Zu Abbildung 5.11 gehörende Fouriertransformierte im Wellenzahlraum. Die Wellenzahlen sind mit $k_d = 2\pi/d$ skaliert.

Mischstrukturen statt.

5.3 Parameterkontrollierte Übergänge zwischen den verschiedenen Musterarten

In der klassischen Elektrokonvektion entstehen Übergänge zwischen verschiedenen Musterregimes, wenn die Anregungsparameter verändert werden. Auch das Bent-core-Mesogen formt neben den Longitudinalrollen eine Vielfalt an weiteren Konvektionsstrukturen. Dem Modell zur Beschreibung der longitudinalen Muster liegt als Ansatz eine Twistverformung des Direktorfeldes zugrunde [141]. Im Folgenden werden die Longitudinalrollen sowie die Konvektionsmuster mit ähnlicher optischer Charakteristik als Twistrollen bezeichnet, um diese von anderen beobachteten Texturen unterscheiden zu können, obwohl sich die Entstehungsmechanismen der Twistmuster voneinander unterscheiden können.

Abbildung 5.14 zeigt die ersten Instabilitäten des Bent-core-Mesogens bei steigender Frequenz. Es ist ein Übergang von longitudinalen Twistrollen (TL, Abbildungen 5.9 (a) und 5.14 (a)) über zickzackförmige Twistrollen (TZ, Abbildung 5.14 (b)) zu normalen Twistrollen (TN, Abbildung 5.14 (c)) zu beobachten. Bei hohen Frequenzen um $f_0 = 6500$ Hz findet schließlich der Übergang zu den fluktuierenden Zickzackrollen statt (FZ, Abbildung 5.14 (d)), welche sich wesentlich von den Twistrollen unterscheiden. Die Spannungen in Abbildung 5.14 wurden etwas oberhalb der

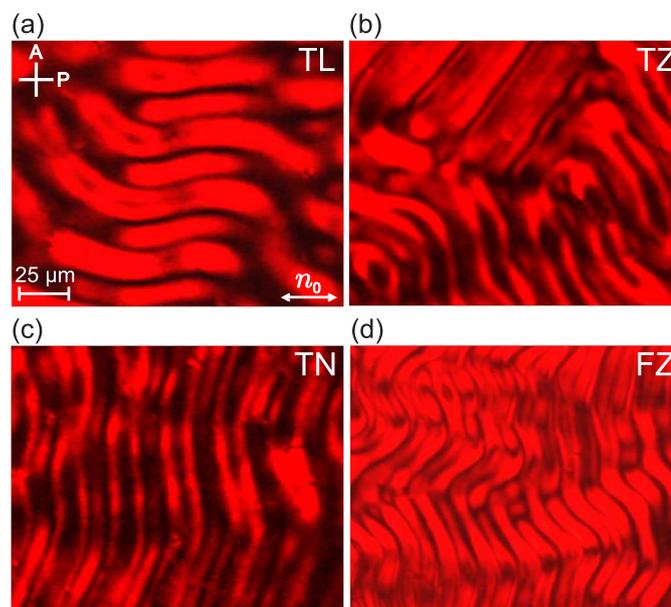


Abb. 5.14: Konvektionsrollen des Bent-core-Mesogens mit steigender Frequenz. (a) longitudinale Twistrollen (TL), $f_0 = 1000$ Hz, $U_0 = 1,1 U_c$, $U_c = 5,41$ V, (b) zickzackförmige Twistrollen (TZ), $f_0 = 3000$ Hz, $U_0 = 1,2 U_c$, $U_c = 6,1$ V, (c) normale Twistrollen (TN), $f_0 = 3650$ Hz, $U_0 = 1,1 U_c$, $U_c = 6,96$ V, (d) fluktuierende Zickzackrollen (FZ), $f_0 = 6500$ Hz, $U_0 = 1,2 U_c$, $U_c = 12,65$ V. Die Bilder sind bei orthogonal gekreuzten Polarisatoren (P, A) und monochromatischem Licht mit $\lambda_{\text{Licht}} = 632$ nm entstanden.

Schwellspannung gewählt, um den optischen Kontrast zu erhöhen. Die bezüglich der Direktorgrundorientierung \mathbf{n}_0 normal ausgerichteten TN-Rollen ähneln bis auf ihre unterschiedliche Ausrichtung in ihrem optischen Erscheinungsbild stark den TL-Rollen. Beide sind am Mustereinsatz nur mit zwei Polarisatoren sichtbar. Es handelt sich also sowohl bei den TL- als auch den TN-Rollen um Interferenzmuster, welche am Ein-

satz keine Shadowgraphbilder erzeugen. Da für solche Muster ein modulierter Twist notwendig ist, werden auch die Normalrollen als Twistmuster bezeichnet.

Nicht mehr den Twistmustern zuzuordnen sind FZ-Rollen. Diese Muster sind hoch lokalisiert, d.h. sie entstehen nicht gleichmäßig in der Zellebene, sondern breiten sich mit einer scharfen Grenze zum nichtkonvektiven Gebiet aus (Abbildung 5.15). Prinzipiell sind die FZ-Rollen als Sha-

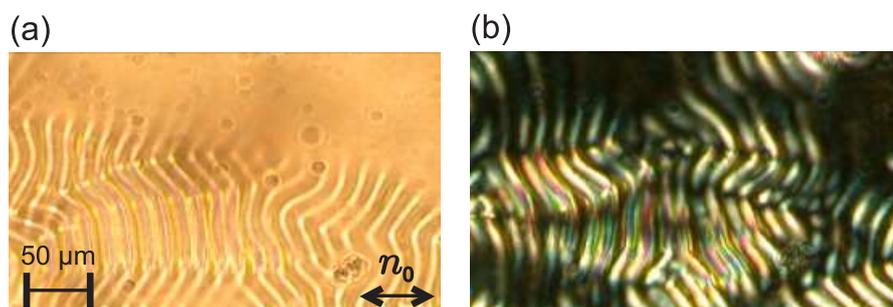


Abb. 5.15: Fluktuierende Zickzackrollen (FZ-Rollen) nahe der Schwellspannung ohne Polarisatoren (a), (b) der gleiche Ausschnitt mit Polarisatoren. $f_0 = 4000$ Hz, $U_0 = 16,3$ V.

adowgraphmuster, also ohne Polarisatoren sichtbar (Abbildung 5.15 (a)). Um zu entscheiden, ob auch direkt am Mustereinsatz Shadowgraphmuster entstehen, muss derselbe Grenzbereich der Konvektionsdomäne ohne und mit Polarisatoren aufgenommen und beide Versionen miteinander verglichen werden (Abbildung 5.15 (a) und (b)). Da die Grenzen der FZ-Domänen aber sehr stark und schnell schwanken, ist eine Aussage über die optische Charakteristik der FZ-Muster am Mustereinsatz nicht möglich.

Die vollständigen Parameterbereiche für die verschiedenen Musterarten und deren Übergänge sind in Abbildung 5.16 wiedergegeben. Die Ausrichtung der Konvektionsrollen bezüglich \mathbf{n}_0 , repräsentiert durch die Orientierung der Balken, ist in Abhängigkeit von den Anregungsparametern Frequenz und Spannung charakterisiert. Jeder Balken gibt die Hauptorientierung des Musterwellenvektors für den jeweilige Parametersatz an. Der Übergang zwischen TL- und TN-Mustern kann durch Frequenzänderung erreicht werden. Unterhalb von $f_0 = 3000$ Hz sind die Konvektionsmus-

ter am Einsatz longitudinal. Bei höheren Frequenzen oberhalb von ca. 4500 Hz entstehen Normalrollen. Der Übergang von TL- zu TN-Rollen erfolgt allmählich mit steigender Frequenz über das dazwischenliegende TZ-Regime. Zickzackrollen bestehen aus Segmenten mit jeweils einer von zwei gespiegelten Rollenrichtungen, wobei nur die Ausrichtung innerhalb eines Segmentes dargestellt ist. Der Übergang zwischen den Twistmustern und dem FZ-Regime ist scharf bei $f_0 = 6500$ Hz. Bei noch

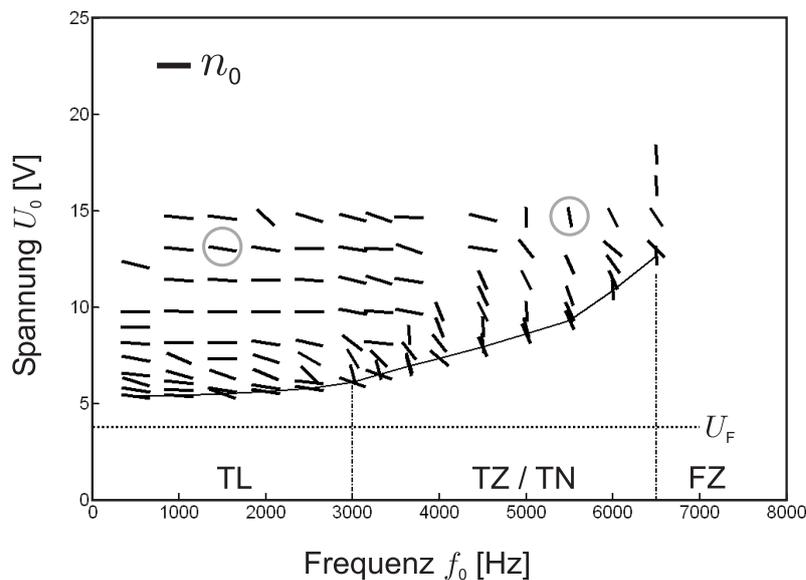


Abb. 5.16: Zustandsdiagramm für das Bent-core-Mesogen. Die Ausrichtung der Balken repräsentiert den Winkel der Konvektionsrollen bezüglich \mathbf{n}_0 . Die Übergangsfrequenz ($-\cdot-$) zwischen TL- und TZ-Rollen liegt bei $f_0 \approx 3000$ Hz, diejenige zwischen Twist- und FZ-Mustern bei $f_0 = 6500$ Hz. U_c ($—$) und U_F ($\bullet\bullet\bullet$) sowie die Frequenzen und Spannungen bezüglich Abbildung 5.18 (\circ) sind eingezeichnet. Die Temperatur beträgt wie bisher $T - T_{\text{iso}} = -4$ K.

höheren Frequenzen wird das FZ-Muster immer ungeordneter und erscheint nur noch punktuell im Sichtfeld. Für Abbildung 5.16 musste eine andere Zelle benutzt werden als für Abbildung 5.15, daher sind die Frequenzen in beiden Bildern nicht konsistent. Die kritische Spannung U_F ($\bullet\bullet\bullet$) für den Splay-Fréederickszübergang befindet sich stets unterhalb der Schwellkurve U_c ($—$) und besitzt innerhalb der Messgenauigkeit keine Frequenzabhängigkeit.

Ein Indiz, ob die verschiedenen Musterarten ähnliche Mechanismen zur

Ursache haben, liefert der Verlauf der Wellenzahlen, insbesondere an den Übergangsfrequenzen. In Abbildung 5.17 sind die Wellenzahl k_c (*** \star) bei $U_0 \approx 1,05 U_c$ und die Schwellspannung U_c (•••) in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz f_0 dargestellt. Im TL- und TZ-Regime steigt die Wellenzahl an und nimmt einen ähnlichen Verlauf wie die Schwellspannungskurve, während die Wellenzahl der TN-Rollen nahezu konstant bleibt. An der Übergangsfrequenz (-.-, rechts) zwischen TN- und FZ-Regime hingegen, springt die Wellenzahl zu höheren Werten. Neben den

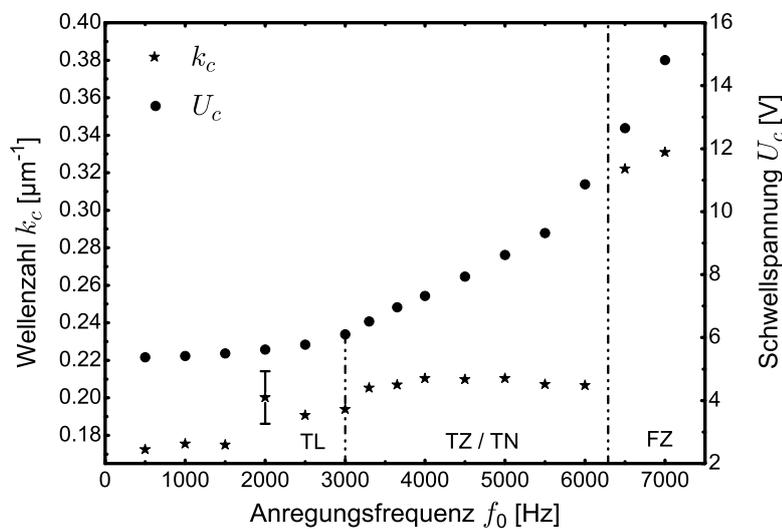


Abb. 5.17: Wellenzahl k_c (*** \star) nahe des Einsatzes bei $U_0 \approx 1,05 U_c$ und Schwellspannung U_c (•••) in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz f_0 . Die Übergangsfrequenzen sind markiert (-.-), der Fehler von U_c ist innerhalb der Symbolgröße.

wesentlich verschiedenen optischen und dynamischen Eigenschaften von Twist- und FZ-Mustern ist dies ein weiteres Indiz dafür, dass sich am Twist-FZ-Übergang die Art der Konvektion qualitativ ändert.

Neben den Konvektionsmustern nahe der Schwellkurve bieten auch die höheren Instabilitäten neue Phänomene. Die Strukturen bei Spannungen fern vom Schwellwert in Abbildung 5.18 (links) gehören zu Frequenzen im longitudinalen Regime (a) sowie im Normalrollenregime (b). Die Bilder sind unter monochromatischem Licht mit einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Licht}} = 632 \text{ nm}$ entstanden. Beide Muster enthalten Moden mit einem Wellenvektor parallel zum Wellenvektor am Einsatz. Die gepunkteten Li-

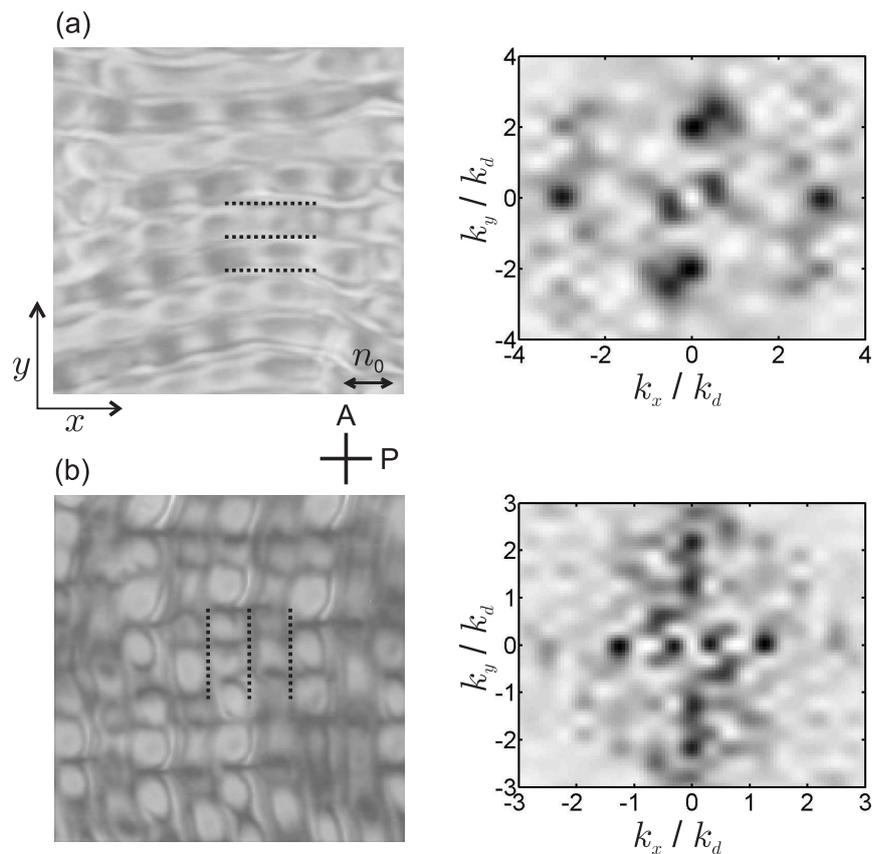


Abb. 5.18: Bilder höherer Instabilitäten (links) und zugehörige 2D Fourierpektren für die Raumkoordinaten (rechts). (a) $f_0 = 1500$ Hz, $U_0 = 2,37 U_c$, $U_c = 5,49$ V, Bildgröße $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$. (b) $f_0 = 5500$ Hz, $U_0 = 1,57 U_c$, $U_c = 9,32$ V, Bildgröße $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$. Frequenzen und Spannungen sind in Abbildung 5.16 markiert (\circ). Gepunktete Linien geben die Rollenausrichtung an der Einsatzschwelle wieder. Die Polarisatoren (A, P) sind orthogonal gekreuzt.

nien markieren die ursprünglichen Rollenausrichtungen an der Einsatzschwelle zur jeweiligen Anregungsfrequenz. Diese Komponenten werden jeweils durch eine Mode überlagert, deren Wellenvektor senkrecht zum Wellenvektor an der Einsatzschwelle steht. So entstehen die gitterartigen Strukturen. Für die Analyse der beobachteten Strukturen wurden die beiden Bilder in Abbildung 5.18 (links) einer zweidimensionalen Fouriertransformation in den k_x - k_y -Raum unterworfen (Abbildung 5.18 (rechts)). Der Peak der Gesamtintensität bei $k_x = k_y = 0$ wurde Null gesetzt, die Wellenzahlen mit $k_d = 2\pi/d$ skaliert. In beiden Spektren tauchen Peaks auf beiden Koordinatenachsen auf. Es existieren also räumliche Wellen-

zahlen in x - und in y -Richtung. Da die y -Komponente der Rollen in x -Richtung praktisch Null ist und umgekehrt, also keine Mischpeaks auf den Koordinatendiagonalen auftauchen, scheinen beide Moden voneinander unabhängig zu sein. Die Superposition zweier Moden wird damit unterstrichen.

Bis hierher wurden die Übergänge zwischen den verschiedenen Regimes in Abhängigkeit von den Anregungsparametern Frequenz und Spannung beschrieben. Da einige Materialparameter, insbesondere die Viskositäten, temperaturabhängig sind, ist ebenfalls eine qualitative Änderung der Konvektionsmuster mit variierender Temperatur zu erwarten. Die Orientierung der Konvektionsrollen bezüglich \mathbf{n}_0 an der Schwellspannung und in Abhängigkeit von der Temperatur ist in Abbildung 5.19 wieder-

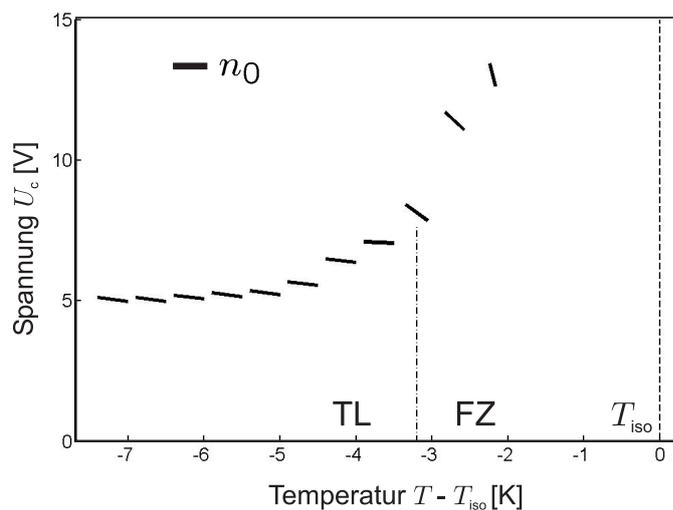


Abb. 5.19: Temperaturabhängige Ausrichtung der Rollen am Einsatz. Übergang zwischen TL- und FZ-Rollen bei $T - T_{\text{iso}} = -3,2$ K (-·-). $f_0 = 1000$ Hz.

gegeben. Es ist ein Übergang von longitudinalen Twistmustern zu fluktuierenden Zickzackrollen bei $T - T_{\text{iso}} = -3,2$ K beobachtbar (-·-), wobei wieder nur Segmente der Zickzackrollen mit einheitlicher Ausrichtung zur Auswertung herangezogen wurden. Die dazu gespiegelte Rollenrichtung ist nicht dargestellt. Während also in Abbildung 5.16 ($T - T_{\text{iso}} = -4$ K) bei einer Anregung von $f_0 = 1000$ Hz in Übereinstimmung mit Abbildung 5.19 longitudinale Rollen am Einsatz erscheinen, würden

an der selben Stelle bei $T - T_{\text{iso}} = -3 \text{ K}$ schon FZ-Rollen entstehen. Das bedeutet, dass sich die Übergangsfrequenz zwischen Twist- und FZ-Rollen mit steigender Temperatur zu niedrigeren Frequenzwerten hin verschiebt. Dass der temperaturabhängige Übergang zwischen beiden Regimes durch einen Vorzeichenwechsel der Anisotropie der Leitfähigkeit $\Delta\sigma$ verursacht wird, kann ausgeschlossen werden. Messungen ergeben, dass $\Delta\sigma$ im gesamten betrachteten Temperaturbereich negativ ist (siehe Abbildung 5.5). Das Anwachsen der Schwellspannung mit steigender Temperatur ist nicht sofort einleuchtend, da man erwarten würde, dass eine steigende Temperatur die charakteristischen Relaxationszeiten für Direktor und Ladung vermindern würde und damit auch die notwendige Spannung für die Musterbildung. Der Grund für diese temperaturabhängigen Änderungen könnte der zunehmende Abstand von der smektischen Phase bei höheren Temperaturen sein, welcher sowohl die Anisotropien von Dielektrizität und elektrischer Leitfähigkeit, als auch einige Viskositäten ändert.

5.4 Metastabile Domänen

Bisher wurden die Muster des Bent-core-Mesogens betrachtet, welche aus dem gleichmäßig geneigten Direktorfeld oberhalb der Fréederickszschwelle entstehen, wobei sich der Fréederickszübergang wiederum aus dem planaren Grundzustand heraus entwickelt. Das untersuchte Material liefert allerdings nicht nur neuartige Konvektionsstrukturen, sondern bildet auch einen weiteren, einen metastabilen Grundzustand aus. Dieser entsteht, wenn die Zelle hohen elektrischen Feldern von der Größenordnung 1 MV/m ausgesetzt ist [142] und bleibt nach Abschalten des Feldes bis zu ca. einer Stunde bestehen. Dieser metastabile Grundzustand kann sich über das gesamte Sichtfeld ausdehnen, bevor er bei ausgeschaltetem Feld wieder zum ursprünglichen stabilen Grundzustand relaxiert. Stabiler und metastabiler Grundzustand unterscheiden sich bei Abwesenheit äußerer Felder in ihrer effektiven Doppelbrechung um rund 15%, sind also optisch

klar voneinander zu unterscheiden. Beide Zustände können parallel existieren. Hierbei werden Domänen, in denen der metastabile Grundzustand vorliegt, von denen im ursprünglichen stabilen Grundzustand durch eine scharfe Phasengrenze voneinander getrennt. Eine mögliche Erklärung für das Entstehen des metastabilen Grundzustands ist ein Phasenübergang des Materials von einer uniaxialen nematischen Phase zu einer biaxialen nematischen Phase [176].

Die Koexistenz beider Domänen im Sichtfeld des Polarisationsmikroskops ist in Abbildung 5.20 erkennbar. Die Domänen, bezeichnet mit S

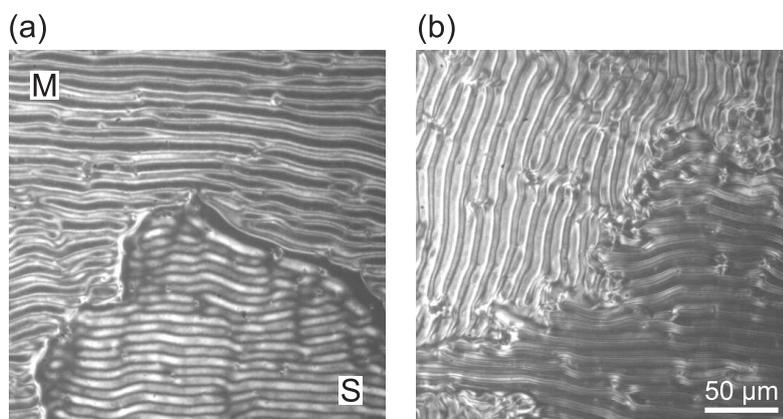


Abb. 5.20: Koexistenz von stabiler (S) und metastabiler (M) Domäne. (a) $U_0 = 1,28 U_c(M)$, (b) $U_0 = 5,56 U_c(M)$, $U_c(M) = 9 \text{ V}$, $U_c(S) = 10,5 \text{ V}$, $f_0 = 1 \text{ kHz}$. Der weiße Balken gibt neben der Längeneinheit noch die Richtung von \mathbf{n}_0 und dem Polarisator wieder. Polarisator und Analysator sind orthogonal gekreuzt.

für stabil und M für metastabil, sind nicht nur optisch durch die scharfe Phasengrenze voneinander klar unterscheidbar, sondern auch durch ihre verschiedenen Schwellspannungen. Sowohl die Fréederickszspannung U_F als auch die kritische Spannung für das Einsetzen der Elektrokonvektion U_c sind in den metastabilen Domänen stets um ca. 15% niedriger als in den stabilen Domänen. In Abbildung 5.20 (a) ist die angelegte Spannung höher als die Schwellspannung für beide Domänen: $U_0 > U_c(S) > U_c(M)$. In beiden Domänen haben sich bereits longitudinale Konvektionsrollen ausgebildet. Etwas Überraschendes geschieht bei noch höheren Spannungen: In Abbildung 5.20 (b) hat sich die Rollenorientie-

rung in der metastabilen Domäne um 90° gedreht, während die Rollen in der stabilen Domäne ihre Ausrichtung nicht verändert haben. In der metastabilen Domäne findet also ein spannungsinduzierter Übergang von longitudinalen zu Normalrollen statt. Dieser neuartige Effekt ist auch im vollständigen Zustandsdiagramm für die metastabile Domäne in Abbildung 5.21 dargestellt (z.B. entlang des grauen Pfeils). Die Winkel der Balken mit der Abszisse repräsentieren die Hauptorientierung der Konvektionsrollen bezüglich \mathbf{n}_0 . Die frequenzabhängigen Übergänge zwischen den verschiedenen Musterarten existieren in der stabilen und der metastabilen Domäne analog (vergleiche Abbildung 5.16), genau wie das Erscheinen der Konvektionsstrukturen oberhalb der Fréederickszspannung U_F . Die Schwellspannungen in den Abbildungen 5.20 und 5.22 unterscheiden sich etwas von denen im Phasendiagramm 5.21, da hier eine andere Zelle verwendet werden musste. Insbesondere sind in Abbildung 5.21 für die angegebene Temperatur und Anregung keine longitudinalen Rollen am Einsatz gefunden worden. Der Wellenvektor der Muster befindet sich aber bei Frequenzen unterhalb des TN-Regimes stets in schräger Orientierung zu \mathbf{n}_0 . Die Untersuchung der Zickzackrollen erfolgte wieder anhand von Segmenten mit einheitlicher Rollenausrichtung. Die dazu gespiegelte Richtung ist nicht dargestellt.

Die detailliertere Analyse des Winkels $\rho(U_0)$ der Konvektionsrollen bezüglich \mathbf{n}_0 in Abbildung 5.22 ($\bullet\bullet\bullet$, $\circ\circ\circ$) zeigt, dass sich die Rollen von einer longitudinalen Ausrichtung mit $\rho = 0^\circ$ in der Nähe der Schwellspannung U_c zu Normalrollen mit $\rho = 90^\circ$ bei höheren Spannungen entwickeln. Im dazwischenliegenden Spannungsbereich liegen Zickzackrollen vor, welche sowohl Segmente mit einer Ausrichtung ρ ($\bullet\bullet\bullet$) wie auch die dazu jeweils gespiegelten Segmente mit $-\rho$ ($\circ\circ\circ$) enthalten. Für eine einfachere Darstellung wird der Betrag $|\rho|$ gezeigt. Während des Übergangs zwischen TL- und TN-Rollen kommt es zu einem starken Anstieg der Wellenlänge λ des Musters ($\star\star\star$).

Ein wesentlicher Unterschied zwischen dem metastabilen und dem stabilen Grundzustand ist das Auftreten einer Hopfbifurkation in der meta-

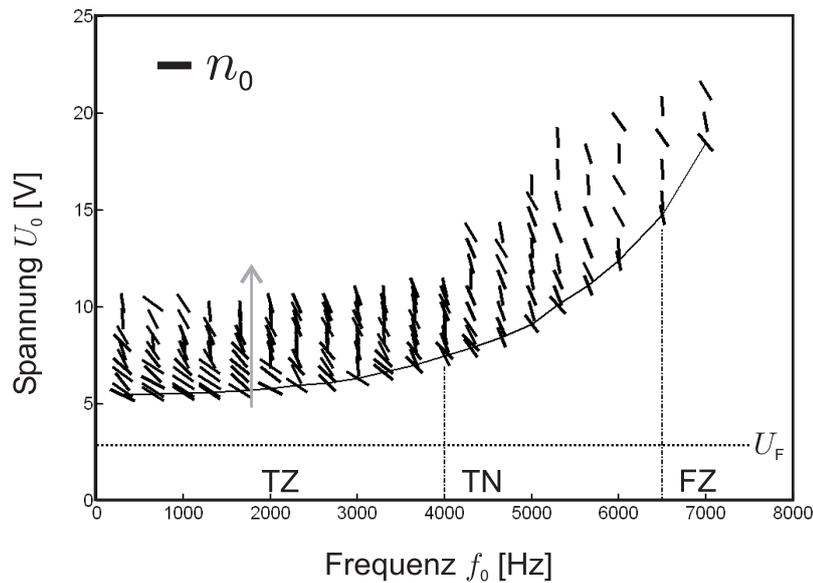


Abb. 5.21: Zustandsdiagramm für die metastabile Domäne. Die Orientierung der Balken gibt die Ausrichtung der Konvektionsrollen bezüglich \mathbf{n}_0 wieder. Der Übergang von TZ- zu TN-Rollen mit steigender Spannung ist durch den grauen Pfeil angedeutet. Die Übergangsfrequenzen (---) sind $f_0 \approx 4000$ Hz zwischen TZ- und TN-Rollen bzw. $f_0 \approx 6500$ Hz zwischen TN- und FZ-Rollen. U_F (•••) und U_c (—) sind eingezeichnet.

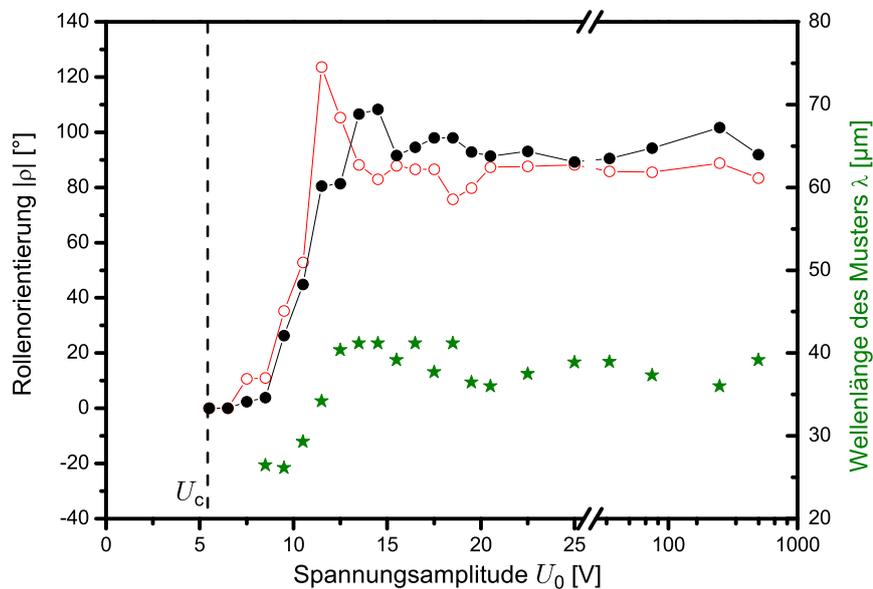


Abb. 5.22: Ausrichtung der Zickzackrollen (•••, ◦◦◦) sowie zugehörige Wellenlängen (***) in der metastabilen Domäne. $f_0 = 1$ kHz. Die Linien sollen den Blick leiten.

stabilen Domäne. Wanderwellen entstehen hier als erste Instabilität direkt am Mustereinsatz. Die Geschwindigkeit dieser, sich zeitlich gleichmäßig fortbewegenden Muster kann durch die Raum-Zeit-Graphik in Abbildung 5.23 abgeschätzt werden. Hierzu wurde eine Bildsequenz von Normal-

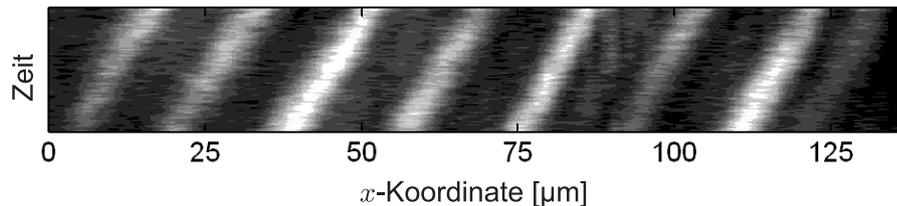


Abb. 5.23: Raum-Zeit-Darstellung wandernder Normalrollen in der metastabilen Domäne. Die Zeitachse umfasst 6,7 s. $f_0 = 1,5$ kHz, $U_0 = 1,01 U_c$, $U_c = 7,66$ V.

rollen so bearbeitet, dass jeweils dieselbe Zeile aus den einzelnen Bildern herausgeschnitten und nacheinander auf der Zeitachse dargestellt wurde. Das Muster bewegt sich mit einer Geschwindigkeit von ungefähr $1,8 \mu\text{m s}^{-1}$ im Bild nach rechts.

5.5 Diskussion der unkonventionellen Elektrokonvektion

Das verwendete Bent-core-Mesogen produziert im elektrischen Feld verschiedene unkonventionelle Musterregimes mit ungewöhnlichen Eigenschaften, insbesondere Longitudinalrollen, welche im Gegensatz zu konventionellen Konvektionsmustern parallel zu \mathbf{n}_0 ausgerichtet sind:

1. Mustereinsatz oberhalb der Fréederickszschwelle: Alle beobachteten Konvektionsmuster entstehen oberhalb der Fréederickszschwelle, sie entwickeln sich also für alle Frequenzen und Temperaturen aus einem homogen deformierten Direktorfeld heraus. Nematische Konvektionsmuster oberhalb des Fréederickszübergangs wurden bereits in einer anderen Geometrie, nämlich in homöotropen Zellen beobachtet. Hier entstehen die Strukturen oberhalb des Bend-Fréederickszübergangs [119, 177, 178]. Diese Strukturen und ihre zugrundeliegenden Mechanismen können jedoch nicht unmittelbar mit denjenigen in planarer Geometrie verglichen

werden. Die klassische Konvektion von $(-, +)$ -Nematen kann in homöotropen Zellen entstehen, da der Fréederickszübergang hierbei für eine nahezu planare Ausrichtung des Direktors in der Mitte der Zelle sorgt. In der planaren Zelle entstehen unkonventionelle Konvektionsmuster einer $(+, -)$ -Substanz aus einer durch den Fréederickszübergang verursachten homöotropen Ausrichtung des Direktors in der Zellmitte. Hingegen erzeugt das $(+, -)$ -Mesogen in homöotropen Zellen EHC-Rollen ohne vorhergehenden Fréederickszübergang [176]. Beiden Geometrien liegen also unterschiedliche Mechanismen zugrunde.

2. Optische Erscheinung als Nichtshadowgraphmuster: Sowohl die longitudinalen wie auch die normalen Rollen bilden am Mustereinsatz keine Shadowgraphbilder. Damit entsprechen beide Strukturtypen keiner konventionellen Elektrokonvektion. Abgesehen von unterschiedlichen Konvektionsmechanismen und Vorzeichen der Anisotropien weisen die Longitudinalrollen optische Gemeinsamkeiten mit Mustern bei Buka et al. [17], Kochowska et al. [18], Tóth-Katona et al. [20] und Wiant et al. [19] auf, besonders bezüglich ihrer Orientierung parallel zur Direktorgrundausrichtung. Für die Entstehung der parallelen Nichtstandardstrukturen bei Kochowska et al. [18] und Tóth-Katona et al. [20] sowie der parallelen Konvektionsrollen eines anderen Bent-core-Materials [19] ist in der Nähe der Instabilitätsschwelle ebenfalls nicht der Shadowgrappeffekt verantwortlich. Bei der unspezifischen Konvektion unterhalb des Einsatzes für die parallelen Shadowgraphmuster bei Buka et al. [17] könnte es sich um ähnliche Strukturen wie die hier beschriebenen handeln. Trotz einiger gemeinsamer optischer Eigenschaften sind jedoch die Ursachen für die erwähnten Strukturen verschieden. Während $\Delta\varepsilon$ in vorliegender Arbeit sowie bei Buka et al. [17] positiv ist, gilt $\Delta\varepsilon < 0$ für die Referenzen [18–20]. Für die letzte Gruppe kann das Standardmodell nicht mehr angewendet werden. Nichtstandardmodelle, welche Flexoelektrizität einschließen wurden dafür entwickelt [136].

Die optischen und strukturellen Eigenschaften der in vorliegender Arbeit untersuchten unkonventionellen Muster sowie von ungewöhnlichen

Referenz	Heuer et al. [148]	Buka et al. [17]	Kochowska et al. [18], Tóth-Katona et al. [20]
Parameter	f_0, U_0, T	-	f_0, U_0, T
optische Charakteristik	NR: kein Shadowgraph, LR: kein Shadowgraph	Parallele Rollen: eventuell kein Shadowgraph	NR: Shadowgraph, LR: kein Shadowgraph
theoretische Beschreibung	LR: Standardmodell	Standardmodell	NR: Standardmodell, LR: Nichtstandardkonvektion
Materialkonstanten	(+, -), kein Vorzeichenwechsel im relevanten Temperaturbereich	(+, -)	temperaturabhängiger Übergang von (-, -) zu (-, +)

Tab. 5.1: Zusammenfassung der Charakteristik longitudinaler Konvektionsrollen in der Literatur. Die Parameter geben die Kontrollgrößen an, falls ein Übergang von Longitudinal- (LR) zu Normalrollen (NR) existiert. Die optische Charakteristik bezieht sich auf Konvektionsrollen am Mustereinsatz.

Konvektionsmustern in ausgewählten Referenzen sind in Tabelle 5.1 zusammenfassend dargestellt.

3. Übergang zwischen longitudinalen und Normalrollen: In dem Bent-core-Mesogen, welches hier verwendet wurde, werden Übergänge zwischen longitudinalen und Normalrollen beobachtet, welche durch die Anregungsfrequenz, die Anregungsspannung sowie die Temperatur kontrolliert werden. Beide Musterarten sind Interferenzmuster am Einsatz, Shadowgraphmuster entstehen nur bei Spannungen einige Prozent oberhalb der Schwellspannung. Daher wird angenommen, dass beide Mustertypen zu strukturell ähnlichen Direktorfeldern gehören und durch ähnliche Mechanismen getrieben werden. Dies wird durch die Tatsache unterstützt, dass die Schwellkurve und die frequenzabhängige Wellenzahl beim Übergang zwischen beiden Musterarten keinen qualitativen Sprung aufweisen. Sie werden daher beide in Anlehnung an das Modell in Referenz [141] als Twistmuster bezeichnet. Allerdings kann dieses Modell keinen Übergang zu Normalrollen vorhersagen. Darüber hinaus ist es un-

wahrscheinlich, dass dieser vereinfachte Mechanismus für die longitudinalen Rollen auf einfache Weise adaptiert werden kann, um eine frequenzabhängige Änderung des Wellenvektors zu beschreiben, da kein Parameter in diesem Modell eine Frequenzabhängigkeit besitzt. Normale Twistrollen sind dennoch nicht identisch mit den klassischen Mustern in $(-, +)$ -Materialien, da keine Shadowgraphmuster am Einsatz entstehen.

Ein Übergang von longitudinalen Mustern zu Normalrollen in Abhängigkeit von der Frequenz ist bereits beobachtet worden [18, 20]. Dieser Übergang geschieht in einem Temperaturbereich, in welchem das Material einen Übergang von $\Delta\sigma < 0$ zu $\Delta\sigma > 0$ vollzieht. Daher wird er interpretiert als ein Übergang von normaler Standardkonvektion, welche in reinen $(-, +)$ -Materialien auftritt, zu longitudinalen Nichtstandardrollen, welche in $(-, -)$ -Materialien fern vom Übergang zum $(-, +)$ -Fall beobachtet werden. Der Übergang unterscheidet sich wesentlich von dem in dieser Arbeit beschriebenen, da in dem Bent-core-Mesogen GTP 240 keine der beiden Anisotropien das Vorzeichen mit der Temperatur wechselt. Diese beiden Übergangsmechanismen sind nicht vergleichbar.

Auch der Übergang von longitudinalen zu normalen Rollen mit steigender Spannungsamplitude bei Tóth-Katona et al. [20] kann nicht mit dem spannungskontrollierten Übergang in den metastabilen Domänen verglichen werden, da bei Tóth-Katona et al. [20] ein Übergang von longitudinalen Nichtstandardrollen zu normalen Standardrollen beschrieben wird. Die Longitudinalrollen in vorliegender Arbeit sind jedoch mit dem Standardmodell beschreibbar.

Ein dritter Übergang findet mit steigender Temperatur zwischen Twist- und fluktuierenden Zickzackmustern statt, welche am Einsatz Shadowgraphmuster zu sein scheinen. Der temperaturabhängige Übergang von parallelen Nichtstandardmustern zu normalen Standardrollen bei Tóth-Katona et al. [20] sieht dem Twist-FZ-Übergang sehr ähnlich. Jedoch ist bei letzterem im Gegensatz zu Tóth-Katona et al. [20] kein Vorzeichenwechsel der Leitfähigkeitsanisotropie zu beobachten. Auch hier sind also beide Mechanismen nicht vergleichbar.

Das Modell von Stannarius [141] wurde ohne Betrachtung der spezifischen Form der Moleküle entwickelt. Deshalb und weil ähnliche Muster auch durch anders geformte Moleküle entstanden sind [17], kann angenommen werden, dass die beobachteten Übergänge zwischen den ungewöhnlichen Musterregimes nicht in erster Linie durch die spezielle gebogene Bent-core-Struktur der Moleküle verursacht werden.

3. Metastabiler Grundzustand: Es wurden Konvektionsmuster beschrieben, welche innerhalb von metastabilen Domänen entstehen. Der Grundzustand dieser Domänen ist noch nicht vollständig verstanden, aber eine mögliche Erklärung findet sich bei Stannarius et al. [176]. Dort wird vermutet, dass die nematische Substanz bei einer Anwendung von hohen elektrischen Feldern biaxial wird bzw. einen metastabilen Zustand annimmt, welcher optisch als biaxial erscheint. Kumar et al. [79] beschreiben einen metastabilen Zustand oberhalb derjenigen Anregungsfrequenz, bei welcher die dielektrische Anisotropie ihr Vorzeichen wechselt und negativ wird. Aus diesem Zustand heraus findet ein Verankerungsübergang in einen entarteten planaren Zustand statt, welcher durch seine erhöhte Doppelbrechung und eine Relaxationszeit bei ausgeschaltetem Feld in der Größenordnung von Stunden dem metastabilen Grundzustand ähnelt, welcher in vorliegender Arbeit untersucht wurde.

Die optischen Eigenschaften der Muster, welche in den metastabilen Domänen der vorliegenden Arbeit oberhalb der Fréederickszschwelle auftreten, ähneln denen in den stabilen Domänen. Ein qualitativer Unterschied ist jedoch die Existenz von Wanderwellen in den metastabilen Domänen gegenüber den stationären Rollen der longitudinalen und normalen Muster in den stabilen Domänen. Ein ähnlich geartetes Phänomen wird bei Kumar et al. [179] beschrieben, wo eine Driftinstabilität auftritt, welche nur aus dem metastabilen entarteten planaren Grundzustand heraus entsteht, nicht aber in einer gängigen planaren Zelle mit demselben Material. Ein unmittelbarer Vergleich zwischen den Instabilitäten in der metastabilen Domäne in vorliegender Arbeit und denen bei Kumar et al. [79, 179] kann jedoch nicht vorgenommen werden, das es sich um

verschiedene Substanzen und Geometrien handelt.

4. Höhere Instabilitäten: Bei Spannungen fern von der Einsatzschwelle für die Konvektion werden kompliziertere Strukturen beobachtet. Bemerkenswert ist die bimodale Gitterstruktur weit oberhalb der Schwellspannung sowohl im longitudinalen als auch im normalen Twistregime. Da die Schwellkurve im Frequenzbereich zwischen TL- und TN-Mustern keine qualitative Veränderung zeigt, scheinen diese höheren Instabilitäten tatsächlich eine Überlagerung von longitudinalen und normalen Rollen zu sein.

Zusammenfassend wurde gezeigt, dass neuartige Elektrokonvektionsmuster in einem Material mit positiver Dielektrizitätsanisotropie und negativer Leitfähigkeitsanisotropie gefunden wurden. Diese Muster zeigen bisher unbeobachtete optische und strukturelle Eigenschaften. Das Wesen der beobachteten Übergänge zwischen den verschiedenen Mustertypen ist bislang unbekannt, es kann aber angenommen werden, dass ähnliche Strukturen in ähnlichen Substanzen, besonders in Bent-core-Mesogenen zu erwarten sind. Die Parameterkombination (+, -) scheint nämlich besonders häufig bei Bent-core-Substanzen vorzukommen, da diese eine starke Tendenz besitzen, geschichtete Strukturen zu bilden und z.B. die elektrische Leitfähigkeit dann in Schichtrichtung größer ist als entlang \mathbf{n} , also $\sigma_{\parallel} < \sigma_{\perp}$.

6 Fréederickszübergang im inhomogenen elektrischen Feld

Das Verhalten von nematischen Flüssigkristallen in inhomogenen äußeren elektrischen oder magnetischen Feldern ist ein für technische Anwendungen wie beispielsweise Displays relevantes Forschungsgebiet. Für entsprechende Technologien werden typischerweise Flüssigkristallzellen mit sehr kleinen Aspektverhältnissen verwendet (siehe beispielsweise [1]). Das bedeutet, dass die lateralen Dimensionen der Flüssigkristallzellen in der Größenordnung der Zelldicke sind. Randeffekte gewinnen in diesem Fall, im Gegensatz zu den in der Grundlagenforschung häufig verwendeten quasi-infiniten Zellen, einen großen Einfluss [180]. Auch in der Forschung bieten begrenzte / finite Zellen neue Einblicke, beispielsweise auf dem Gebiet der Strukturbildung. So ist die Anzahl der Konvektionsrollen in der Elektrokonvektion abhängig vom Aspektverhältnis [181]. Im folgenden Kapitel wird der Fréederickszübergang in einer Zelle mit kleinem Aspektverhältnis untersucht, wobei die Kombination aus einem magnetischen und einem inhomogenen elektrischen Feld angewendet wird. In früheren Experimenten wurde ein erstaunlicher Effekt einschließlich eines räumlichen Symmetriebruchs gefunden (Abschnitt 6.1), welcher in vorliegender Arbeit theoretisch belegt werden soll. Dazu werden das entsprechende Direktorfeld (Abschnitt 6.2) sowie das resultierende optische Profil berechnet (Abschnitt 6.3). Das Kapitel schließt mit der Diskussion des Vergleichs von experimentellen und berechneten Ergebnissen in Abschnitt 6.4.

6.1 Motivation - vorangegangene Experimente

Den Simulationen zum Fréederickszübergang sind Experimente vorangegangen, welche am Forschungsinstitut SZFKI in Budapest durchgeführt wurden [182]. Es wurden Gitterelektroden verwendet, um ein kleines Aspektverhältnis zu erlangen. Das kann erreicht werden, indem auf beiden Glasplatten parallele Elektroden angebracht und die Glasplatten anschließend so miteinander verbunden werden, dass gegenüberliegende Elektrodenstreifen senkrecht zueinander verlaufen (Abbildung 6.1 (a)). Sich überlappende Elektroden bilden eine Serie von Pixeln, in denen das Mesogen dem elektrischen Gleichfeld ausgesetzt ist (Abbildung 6.1 (b)). Für

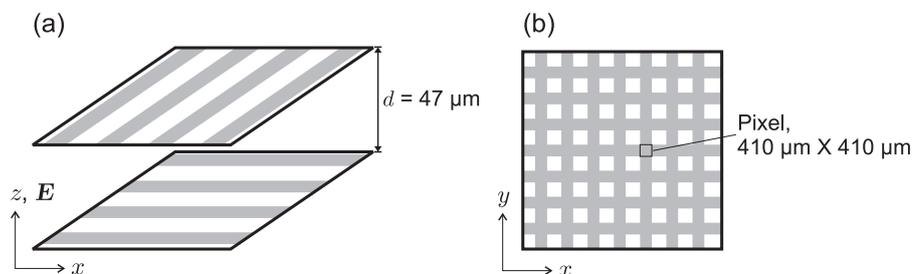


Abb. 6.1: Seitenansicht (a) und Draufsicht (b) einer Gitterzelle. Im Originalexperiment wurden Elektrodenstreifen unterschiedlicher Breite verwendet.

die experimentelle Beobachtung wurde ein Pixel mit den lateralen Abmessungen $410 \mu\text{m} \times 410 \mu\text{m}$ und der Zelldicke $d = 47 \mu\text{m}$ betrachtet. An den Kanten dieses Pixels entsteht ein inhomogenes elektrisches Feld, dessen Richtung und Stärke von dem Abstand zu den Kanten abhängig ist. Die verwendete nematische Substanz Merck Phase 5A, besitzt die gleichen Materialparameter wie Merck Phase 5 [111], insbesondere ist $\Delta\varepsilon < 0$, $\Delta\chi > 0$ und $\Delta\sigma > 0$.

Die Gitterzellen mit homöotroper Grundausrichtung des Direktors wurden zwischen zwei orthogonal gekreuzten Polarisatoren beobachtet. Bei Anlegen eines elektrischen Feldes erwartet man aufgrund von $\Delta\varepsilon < 0$ einen Bend-Fréederickszübergang. Wegen des kleinen Aspektverhältnisses ist das elektrische Feld an den Elektrodenkanten jedoch inhomogen (Abbildung 6.2).

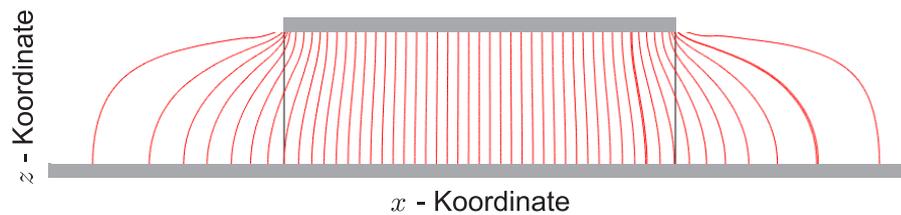


Abb. 6.2: Exemplarisch berechneter Gradient des elektrischen Potentials in der begrenzten Geometrie. Graue Balken skizzieren die Position der Elektroden.

Ist die angelegte Spannung $U = 0$, so ist der Direktor homöotrop orientiert, die Pixel bzw. ihre Kanten sind optisch nicht detektierbar. Bei Anlegen einer Spannung, welche kleiner als die Fréederickszspannung $U < U_F$ ist, bliebe der Direktor im homogenen elektrischen Feld weiterhin im Grundzustand. Bei der Beobachtung mit gekreuzten Polarisatoren erschiene ein schwarzes Sichtfeld. Im inhomogenen Feld schaltet der Direktor bereits dort, wo das elektrische Feld eine laterale Komponente besitzt. Das dielektrische Drehmoment kann eine Drehung des Direktors auch unterhalb von U_F erzeugen (vergleiche auch das Schalten des Direktors bei Pretilt oder schrägen Feldern in Abschnitt 3.1.3). Die Intensität bei Beobachtung mit zwei gekreuzten Polarisatoren ist abhängig von dem aktuellen effektiven Brechungsindex, also der Stärke der Direktorauslenkung (siehe Kapitel 3). Bei Spannungen unterhalb des Fréederickszübergangs (Abbildungen 6.3 (a) und (b)) existiert eine Direktordeformation nur dort, wo das elektrische Feld inhomogen ist. Zu sehen sind deshalb helle Streifen im Bereich der Pixelkanten. Am Fréederickszübergang (Abbildung 6.3 (c)) beginnt die Direktordeformation im gesamten Pixel. Die Intensität steigt nun auch im Inneren des Pixels, also in den Bereichen homogenen elektrischen Feldes. Die Streifen im Bild spiegeln die Interferenzordnungen wider (siehe Kapitel 3). Etwas oberhalb der Fréederickszspannung (Abbildung 6.3 (d)) ist der Direktor im gesamten Pixel aus dem Grundzustand ausgelenkt. Aufgrund der höheren Interferenzordnung sind die Streifen hoher Intensität dichter. In der Mitte des Pixels verbleibt allerdings ein Punkt mit der Intensität Null. Dies ist der Inversionspunkt, an dem sich aus Symmetriegründen Bereiche unter-

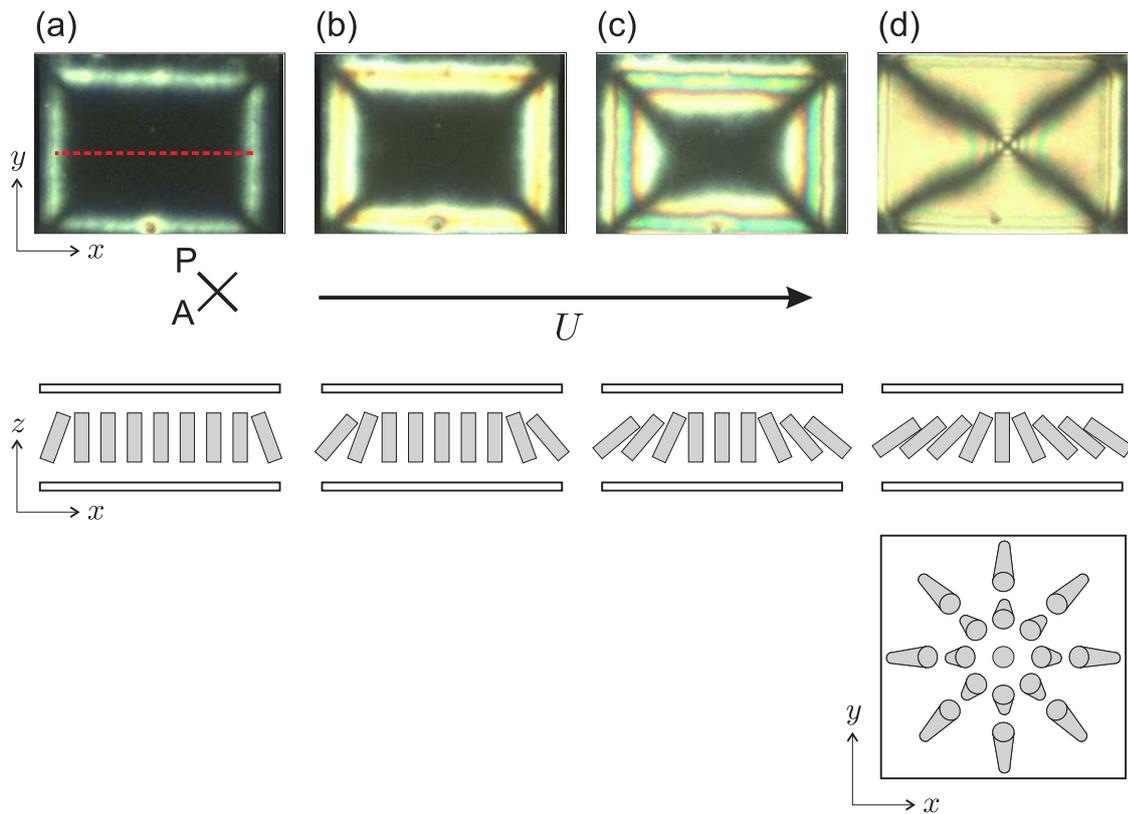


Abb. 6.3: Pixel zwischen gekreuzten Polarisatoren in Draufsicht bei angelegter Spannung (oben). (a) $U = 0,83 U_F$, (b) $U = 0,95 U_F$, (c) $U = 1,03 U_F$, (d) $U = 1,17 U_F$. Für den Schnitt durch die Mitte des Pixels (- - - in (a)) ist die jeweilige Direktorkonfiguration in Seitenansicht (Mitte), für (d) zusätzlich in Draufsicht (unten rechts) skizziert. Durchsichtige Balken markieren die begrenzenden Zellplatten. Es wurde weißes Licht verwendet. Die Größe der Bilder beträgt $438 \mu\text{m} \times 395 \mu\text{m}$.

schiedlicher Richtungen der Direktorauslenkung treffen (Skizze in Abbildung 6.3 (d) ganz unten). Die schwarzen diagonalen Streifen entsprechen Bereichen, in denen der Direktor parallel bzw. senkrecht zu den Polarisatoren orientiert ist. Die optische Textur der Probe im Bereich des Pixels weist unter Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes eine vierzählige Symmetrie auf.

Wird zum elektrischen Feld zusätzlich noch ein Magnetfeld in x -Richtung angelegt, wird die ursprüngliche vierzählige Symmetrie gebrochen (Abbildung 6.4 (a)). Innerhalb des Pixels formiert sich eine Inversionslinie (weiße gestrichelte Linie). Die beiden Seiten des Pixels, welche die-

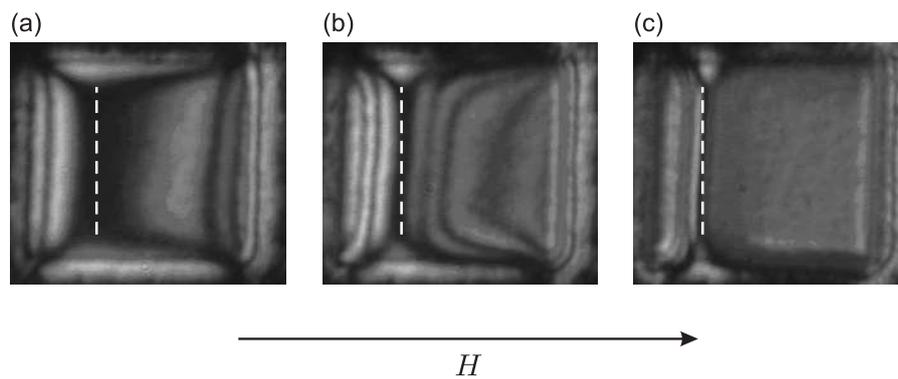


Abb. 6.4: Pixel zwischen gekreuzten Polarisatoren in Draufsicht bei angelegter Spannung $U = 0,8 U_F$ und zusätzlichem magnetischen Feld. (a) $H = 0,71 H_F$, (b) $H = 0,81 H_F$, (c) $H = 0,93 H_F$. H_F bezeichnet die kritische Feldstärke für den isolierten magnetischen Fréederickszübergang. Es wurde monochromatisches Licht mit $\lambda_{\text{Licht}} = 530 \text{ nm}$ verwendet. Die Größe der Bilder beträgt $438 \mu\text{m} \times 395 \mu\text{m}$.

se Linie voneinander trennt, sind jedoch entgegen der Erwartung nicht symmetrisch. Erstaunlicherweise verschiebt sich die Inversionslinie bei höheren Magnetfeldstärken zum linken Bildrand hin (Abbildungen 6.4 (b) und (c)). Um diesen Effekt besser verstehen zu können, sind in Abbildung 6.5 die entsprechenden Direktorfelder skizziert. Ist die Anisotropie $\Delta\chi$ der magnetischen Suszeptibilität des Mesogens positiv und das Magnetfeld parallel zur Zellebene, ordnet sich der Direktor parallel zum Magnetfeld aus (Abbildung 6.5 (a)). Es entsteht eine Inversionslinie in der Mitte des Pixels. Da die Richtungen parallel bzw. antiparallel zum Magnetfeld nicht unterscheidbar sind, besitzt das resultierende Direktorfeld eine zweizählige Symmetrie. Die experimentellen Beobachtungen in Abbildung 6.4 zeigen jedoch, dass diese Symmetrie gebrochen ist und die Position der Inversionslinie von der Stärke des Magnetfeldes abhängig ist. Dies ist nur dann möglich, wenn das Magnetfeld eben doch nicht exakt in der Zellebene liegt, sondern aus dieser Ebene leicht herausgekippt ist (Abbildung 6.5 (b)). Unter dieser Voraussetzung sind die Bereiche links und rechts der Inversionslinie nicht symmetrisch. Im Experiment könnte dieser Symmetriebruch durch eine ungenaue Justierung der Probe im Magnetfeld zustande kommen. Um die Vermutung zu belegen und die Abhängigkeit der Position der Inversionslinie von der Stärke des Magnet-

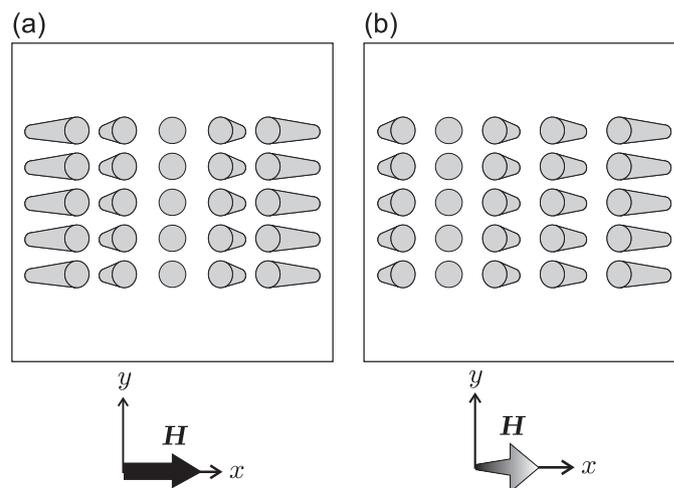


Abb. 6.5: Skizze der Direktorfelder mit zusätzlichem Magnetfeld in Draufsicht. (a) Das Magnetfeld ist parallel zur Zellebene. (b) Das Magnetfeld ist aus der Zellebene heraus gekippt. Dargestellt ist jeweils nur der Bereich, in welchem die Inversionslinie gerade ist und weit entfernt von den Kanten bei kleinen und großen y .

feldes nachweisen zu können, wurden Simulationen durchgeführt.

6.2 Simulation des Direktorfeldes

Für den numerischen Nachweis der Verschiebung der Inversionslinie durch eine Verkippung des Magnetfelds aus der Zellebene heraus, wurde mit der Software Comsol ein Programm erstellt, welche die Direktorfelder mit der Finite-Elemente-Methode berechnen kann. Grundlage für die Simulation der Direktorfelder ist die Kontinuumstheorie für nematische Flüssigkristalle. Die freie Energiedichte w für stationäre und reversible Direktordeformationen wird konstruiert (siehe Abschnitt 3.1). Die Integration und anschließende Minimierung von w ergibt die Gleichgewichtsgleichungen. Die Lösung der Gleichgewichtsgleichungen führt zu einer möglichen Direktorkonfiguration im Gleichgewicht.

Für die Simulationen wird ein zweidimensionales Modell für die Koordinaten x und z verwendet. Diese Vereinfachung wird benutzt, um den Rechenaufwand praktikabel zu halten. Es wird eine Geometrie betrachtet (Abbildung 6.6) mit einer in x -Richtung quasi unendlich ausgedehnten

unteren Elektrode bei $z = -d/2$ und einer in x -Richtung endlichen Elektrode bei $z = d/2$. Für den Direktor wird der Ansatz $\mathbf{n} = (\sin\varphi, 0, \cos\varphi)$ vorgenommen, wobei $\varphi(x, z)$ die Auslenkung des Direktors aus dem homöotropen Grundzustand heraus beschreibt. Durch den zweidimensionalen Ansatz wird also lediglich eine Direktorauslenkung in der x - z -Ebene betrachtet. Die Länge der Rechendomäne ist $l = 1000 \mu\text{m}$, die Höhe ent-

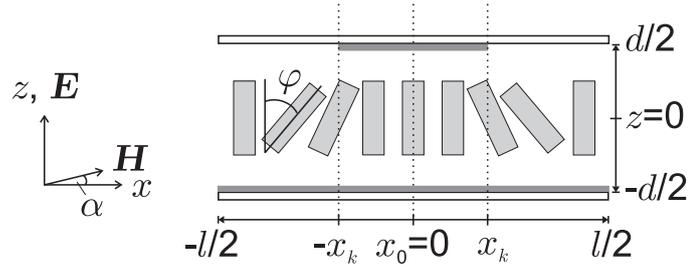


Abb. 6.6: Geometrie für die Simulation des Direktorfeldes mit elektrischem Feld \mathbf{E} und magnetischem Feld \mathbf{H} . Die durchsichtigen Balken skizzieren die Glasplatten der Zelle, die grauen Streifen repräsentieren die Elektroden. Das elektrische Feld \mathbf{E} wird in z -Richtung angelegt. Das Magnetfeld \mathbf{H} ist zur Zellebene um den Winkel α verkippt. Zur eingängigeren Darstellung wurde das Aspektverhältnis verzerrt abgebildet.

spricht der Zelldicke $d = 47 \mu\text{m}$. Die Länge der oberen Elektrode beträgt $x_k + |-x_k| = 410 \mu\text{m}$. Die Mitte des Pixels sowie der Rechendomäne ist mit x_0 bezeichnet.

Die freie Energiedichte w , welche der Berechnung des Direktorfeldes unter Einfluss magnetischer und elektrischer Felder zugrunde liegt, besteht aus drei Termen: dem rückstellenden elastischen Beitrag w_{elast} sowie den beiden auslenkenden Beiträgen w_{magn} und w_{elek} . Setzt man den Direktoransatz in Gleichung 3.3 ein, erhält man die elastische freie Energiedichte

$$w_{\text{elast}} = \frac{1}{2} K_1 (\cos^2 \varphi \varphi_{,x}^2 + \sin^2 \varphi \varphi_{,z}^2 - 2 \sin \varphi \cos \varphi \varphi_{,x} \varphi_{,z}) + \frac{1}{2} K_3 (\sin^2 \varphi \varphi_{,x}^2 + \cos^2 \varphi \varphi_{,z}^2 + 2 \sin \varphi \cos \varphi \varphi_{,x} \varphi_{,z}). \quad (6.1)$$

Der Index „ $,i$ “ benennt die Ableitung der jeweiligen Größe nach der Koordinate i .

Das elektrische Feld liefert zur freien Energiedichte den Term w_{elek} (Gleichung 3.5). Um eine konstante Integrationsvariable für die spätere

Minimierung der gesamten freien Energie zu erhalten, wird das Potential $\Phi(x, z)$ mit $\mathbf{E} = -\nabla\Phi$ eingeführt. Zusammen mit dem Direktoransatz wird w_{elek} zu

$$w_{\text{elek}} = -\frac{1}{2}\varepsilon_0 [\varepsilon_{\perp}(\Phi_{,x}^2 + \Phi_{,z}^2) + \Delta\varepsilon (\sin^2\varphi \Phi_{,x}^2 + \cos^2\varphi \Phi_{,z}^2 + 2\sin\varphi \cos\varphi \Phi_{,x}\Phi_{,z})]. \quad (6.2)$$

Das Anlegen eines Magnetfeldes verursacht ebenfalls ein zusätzliches Drehmoment auf den Direktor und ein Auslenken desselben aus seinem Grundzustand, beschrieben durch die entsprechende freie Energiedichte w_{magn} (Gleichung 3.1). Das Magnetfeld wird praktisch parallel zur Zellebene in x -Richtung angelegt, wobei ein kleiner Verkippungswinkel erlaubt sein soll. Dies führt zu dem Ansatz $\mathbf{H} = H(\cos\alpha, 0, \sin\alpha)$. Der magnetische Anteil an w wird damit

$$w_{\text{magn}} = -\frac{1}{2}\mu_0\Delta\chi H^2(\sin\varphi \cos\alpha + \cos\varphi \sin\alpha)^2. \quad (6.3)$$

Die Magnetfeldstärke soll im Folgenden in Einheiten des kritischen Wertes für den magnetischen Fréederickszübergang $H_{\text{F}}|_{U=0}$ geschrieben werden. Mit dem Ausdruck für die Bend-Fréederickszschwelle

$$H_{\text{F}} = \frac{\pi}{d} \sqrt{\frac{K_3}{\mu_0\Delta\chi}}$$

wird Gleichung 6.3

$$w_{\text{magn}} = -\frac{1}{2} \frac{K_3\pi^2}{d^2} \left(\frac{H}{H_{\text{F}}}\right)^2 (\sin\varphi \cos\alpha + \cos\varphi \sin\alpha)^2. \quad (6.4)$$

Mit den Gleichungen 6.1, 6.2 und 6.4 ergibt sich die gesamte freie Energiedichte $w = w_{\text{elast}} + w_{\text{elek}} + w_{\text{magn}}$, welche dann in Abhängigkeit der beiden Integrationsvariablen φ und Φ geschrieben ist und sich in den räumlichen Dimensionen x und z ausdehnt. Integration und Minimierung von w werden numerisch mit Hilfe der Finite-Elemente-Methode gelöst. Die zu rechnende Geometrie wird dazu in ein unregelmäßiges trianguläres Gitter mit diskreten Gitterpunkten zerlegt. Dazu wurde die Software Comsol benutzt, mit welcher dann auch die Gleichungen für die gewählten Gitterpunkte gelöst wurden. Für den Direktor wird eine feste Verankerung an

den Glasplatten, also $\varphi(z = -d/2) = \varphi(z = d/2) = 0$, sowie freie Randbedingungen für die vertikalen Ränder $x = -l/2$ und $x = l/2$ gewählt. Diese Randbedingungen repräsentieren die homöotrope Orientierung. Das Potential $\Phi(x, z)$ ist an der unteren Elektrode $\Phi(z = -d/2) = 0$ und an der oberen Elektrode $\Phi(-x_k \leq x \leq x_k, z = d/2) = U$. Es werden Gleichspannungen betrachtet, U ist also nicht zeitabhängig. An den übrigen horizontalen und vertikalen Rändern bleiben die Randbedingungen für das Potential frei. Ein Test mit periodischen Randbedingungen für φ und Φ liefert im Ergebnis nur marginale Veränderungen des Direktorfeldes an den vertikalen Rändern. Dass die freien Randbedingungen für das Potential außerhalb der Elektroden gerechtfertigt sind, zeigt ein Test der Laplacegleichung mit eben diesen Randbedingungen. Die Laplacegleichung repräsentiert den Vakuumfall unter Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes, es existieren also weder Direktor noch Anisotropien von Materialkonstanten. Dieser Test liefert das erwartete Profil des Potentials.

Ein exemplarisches, numerisch berechnetes Direktorprofil für $H = 0$ ist in Abbildung 6.7 (a) dargestellt. Aufgetragen ist der Winkel $\varphi(x, z)$, also die Stärke der Auslenkung des Direktors aus dem homöotropen Grundzustand. Die Angabe der Feldgröße erfolgt in Einheiten des kritischen Wertes für den isolierten elektrischen Fréederickszübergang $U_F|_{H=0}$. Wird ausschließlich ein elektrisches Feld angelegt, entwickelt sich ein Direktorprofil, welches bezüglich der Pixelmitte x_0 antisymmetrisch ist. Die Extrema der beiden Peaks besitzen entgegengesetzte Vorzeichen, da der Direktor auf beiden Seiten der Pixelmitte in entgegengesetzte Richtungen ausgelenkt ist. Außerdem befinden sich die Peaks in der Nähe der Kante der oberen Elektrode bei x_k und $-x_k$, also dort, wo das elektrische Feld inhomogen ist. Dies steht in Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen in Abbildung 6.3 (a) und (b), welche zeigt, dass unterhalb der Fréederickszspannung ein Schalten lediglich in der Nähe der Elektrodenkanten erfolgt. In Abbildung 6.7 (b) ist noch der Verlauf des Potentials gezeigt, welcher sich bei Veränderung des elektrischen Feldes oder bei Anlegen eines Magnetfeldes qualitativ nicht verändert und deshalb für

andere Parameterkombinationen nicht mehr dargestellt ist. Das Potential besitzt in x -Richtung stets eine gerade Symmetrie.

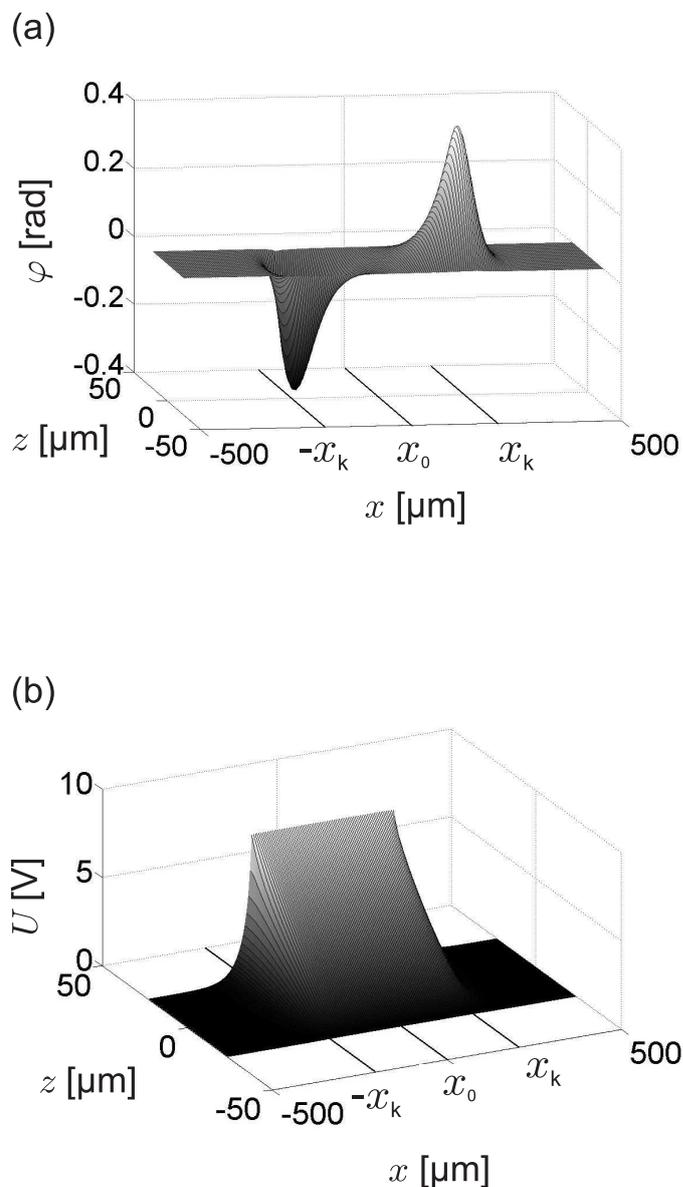


Abb. 6.7: Numerisch berechnetes Direktorprofil (a) und Potentialverlauf (b). $U = 0,95 U_F$, $H = 0$, $\alpha = 0^\circ$.

Den quantitativen Verlauf der Direktorauslenkung $\varphi(x)$ zeigt Abbildung 6.8 (a) für einen horizontalen Schnitt ($z = 0$) durch die Rechendomäne (siehe Skizze oberhalb des Diagramms). Wie auch im Experiment, erfolgt eine Direktorauslenkung schon für Spannungen weit unterhalb der Frée-

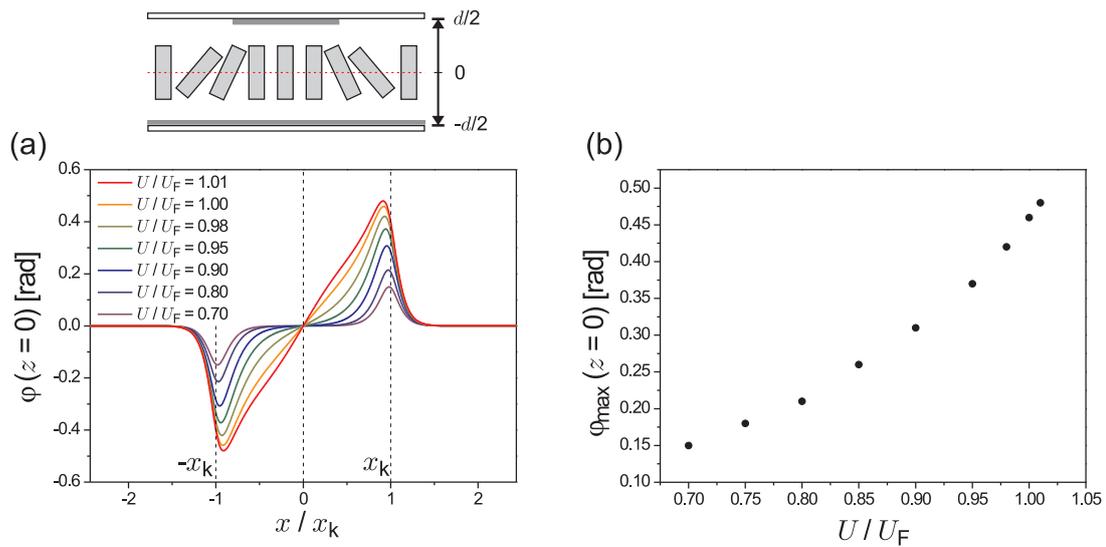


Abb. 6.8: (a) Direktorauslenkung φ für $z = 0$ (siehe Skizze oberhalb des Diagramms) für verschiedene Spannungen. (b) Maximalwert von φ als Funktion der Spannung. $H = 0$.

derickszschwelle U_F , und zwar in der Nähe der Elektrodenkanten $\pm x_k$, wo das elektrische Feld inhomogen ist. Diese Auslenkung findet allmählich und ohne kritische Schwellspannung statt. Für kleine Spannungen befindet sich zwischen beiden Peaks in der Pixelmitte um x_0 ein Bereich, in dem der Direktor nicht ausgelenkt ist (Abbildungen 6.7 (a) und 6.8 (a)). In Abbildung 6.8 (a) ist hervorgehoben, dass sich dieser Bereich mit steigender Spannung solange verkleinert, bis bei $U = U_F$ nur noch ein Inversionspunkt existiert, welcher die beiden Bereiche mit entgegengesetzten Direktorauslenkungen voneinander trennt. Dieser Inversionspunkt befindet sich für jegliche Spannung genau in der Mitte des Pixels, das Direktorfeld ist bezüglich x_0 antisymmetrisch. Dieses Ergebnis steht im Einklang mit den experimentellen Beobachtungen in Abbildung 6.3, welche zeigen, dass die schwarze Fläche, also die Fläche mit $\varphi = 0$ mit steigender Spannung kleiner wird und sich am Fréederickszübergang zu einem Inversionspunkt entwickelt hat. Die vierzählige Symmetrie kann durch die numerischen Berechnungen nicht reproduziert werden, da diesen ein zweidimensionales Modell zugrunde liegt. Auffällig ist, dass der Direktor außerhalb der Elektrodenkanten für $x > |x_k|$ sehr schnell relaxiert. Die

Wahl der freien vertikalen Randbedingungen für $\varphi(x = \pm l/2)$ sowie der Länge der Rechendomäne sind dadurch einmal mehr gerechtfertigt.

Der Maximalwert φ_{\max} der Direktorauslenkung befindet sich im homogenen elektrischen Feld stets bei $z = 0$. Aufgrund der Inhomogenität des Feldes ist die Position von φ_{\max} bezüglich $z = 0$ leicht verschoben. Abbildung 6.8 (b) zeigt, dass $\varphi_{\max}(z = 0)$ mit steigender Spannung wächst. Für ein homogenes elektrisches Feld würde man erwarten, dass $\varphi_{\max} = 0$ für $U \leq U_F$ und für $U > U_F$ rapide ansteigt (analog zu Abbildung 3.2 (a)). In Abbildung 6.8 (b) wird deutlich, dass im inhomogenen elektrischen Feld bereits bei $U \leq U_F$ eine Umorientierung erfolgt und keine Fréederickszschwelle mehr zu beobachten ist. Dies erinnert an das schwellenlose Schalten des Direktors in der Geometrie mit Pretilt (siehe Abschnitt 3.1.3).

Bemerkenswert ist, dass das Direktorprofil $\varphi(x_i, z)$ bezüglich $z = 0$ nicht symmetrisch bzw. antisymmetrisch ist. In Abbildung 6.9 sind Schnitte von

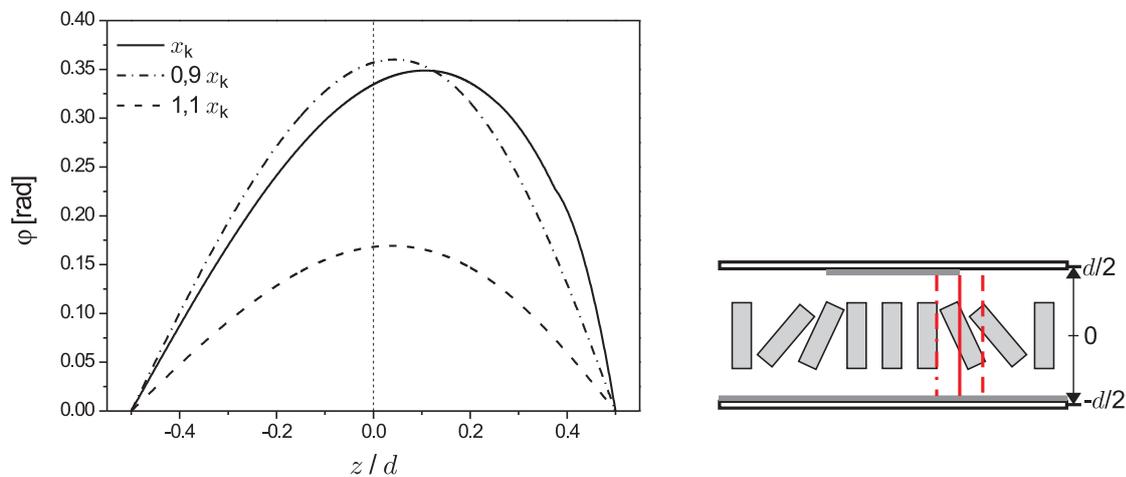


Abb. 6.9: Direktorauslenkung φ entlang mehrerer vertikaler Schnitte durch die Rechendomäne (siehe Skizze neben dem Diagramm). Betrachtet wurde ein Schnitt an der Kante der Elektrode (—), ein Schnitt innerhalb des Pixels (- - -) sowie ein Schnitt außerhalb des Pixels (- - -).

φ entlang der z -Koordinate an verschiedenen x -Positionen gezeigt (siehe Skizze neben dem Diagramm). Direkt an der Elektrodenkante (—) ist die Asymmetrie der Direktorauslenkung bezüglich $z = 0$ am größten, da hier

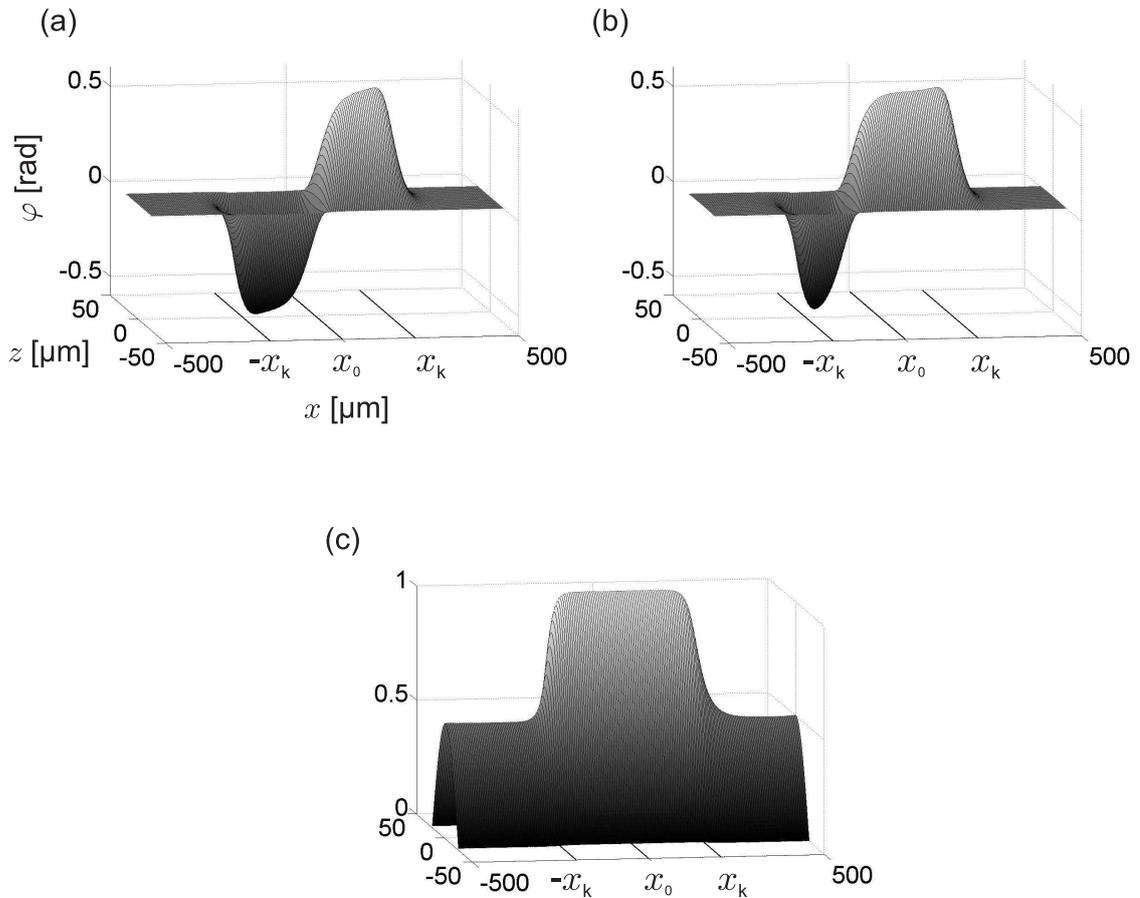


Abb. 6.10: Numerisch berechnete Direktorprofile. (a) $U = 0,8 U_F$, $H = 0,71 H_F$, $\alpha = 0^\circ$, (b) $U = 0,8 U_F$, $H = 0,71 H_F$, $\alpha = 0,1^\circ$, (c) $U = 0,8 U_F$, $H = 1,05 H_F$, $\alpha = 0,1^\circ$.

auch die Feldlinien am stärksten gekrümmt sind. Entfernt man sich von dem Punkt x_k , nimmt die Asymmetrie des Profils ab. Innerhalb des Pixels (---) klingt φ_{\max} weniger schnell ab als außerhalb des Pixels (-·-).

Kommt zum elektrischen noch ein Magnetfeld hinzu, verändert sich zwar das Direktorprofil, bleibt aber weiterhin antisymmetrisch bezüglich der Pixelmitte x_0 (Abbildung 6.10 (a)). Die Angabe der Feldgrößen erfolgt in Einheiten der kritischen Werte für den isolierten elektrischen ($U_F|_{H=0}$) bzw. den isolierten magnetischen Fréederickszübergang ($H_F|_{U=0}$). Die Bedingung für die kombinierte Fréederickszschwelle bei Anwendung eines elektrischen Feldes zusammen mit einem Magnetfeld in der vorliegenden Geometrie, aber mit homogenem elektrischen Feld und exakt in der Zel-

lebene liegendem Magnetfeld, ist

$$\frac{U^2}{U_F^2} + \frac{H^2}{H_F^2} = 1$$

(siehe Anhang C). Dieser Schwellwert ist in Abbildung 6.10 (a) mit $\frac{U^2}{U_F^2} + \frac{H^2}{H_F^2} = 1,14$ bereits überschritten. Die Folge ist, dass der Direktor bereits im gesamten Bereich des Pixels deformiert ist, bis auf den Punkt im Zentrum beider Elektroden. Dort ändert die Direktorauslenkung ihr Vorzeichen, $\varphi = 0$. Dieser Inversionspunkt erscheint im Experiment aufgrund der zusätzlichen y -Dimension als Inversionslinie. Die Vermutung, dass ein Magnetfeld in der Zellebene keine Verschiebung der Defektlinie aus der Pixelmitte heraus verursachen kann, wird durch das berechnete Direktorprofil bestätigt.

Eine dramatische Veränderung der Direktorauslenkung entsteht, wenn das Magnetfeld aus der Zellebene leicht herausgekippt ist (Abbildung 6.10 (b)). Die horizontale Symmetrie des Direktorprofils ist nun gebrochen, der Inversionspunkt nach links verschoben. Die Verschiebung der Inversionslinie in Abbildung 6.4 kann also tatsächlich durch ein Magnetfeld hervorgerufen werden, welches nicht exakt parallel zur Zellebene ausgerichtet ist. In Abbildung 6.10 (c) ist nicht nur die kombinierte Fréederickszschwelle überschritten, sondern auch die kritische Spannung H_F für den isolierten magnetischen Fréederickszübergang. Deshalb ist φ überall positiv. Die Direktorauslenkung wechselt also ihr Vorzeichen nicht und es existiert kein Inversionspunkt mehr.

In Abbildung 6.11 ist die maximale Direktorauslenkung $\varphi_{\max}(H, z = 0)$ in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke für eine endliche Verkipfung des Magnetfeldes aus der Zellebene heraus dargestellt. Für sehr kleine Feldstärken existiert bereits ein $\varphi_{\max} \neq 0$, es gibt keinen scharfen Übergang vom unausgelenkten in den ausgelenkten Direktorzustand. Damit ähnelt das Diagramm sehr dem Fréederickszübergang mit einem Pretilt des Direktors an den Substratoberflächen, hier liegt ebenfalls keine Bifurkation vor. Da das entsprechende Diagramm für $\alpha = 0^\circ$ mit Ab-

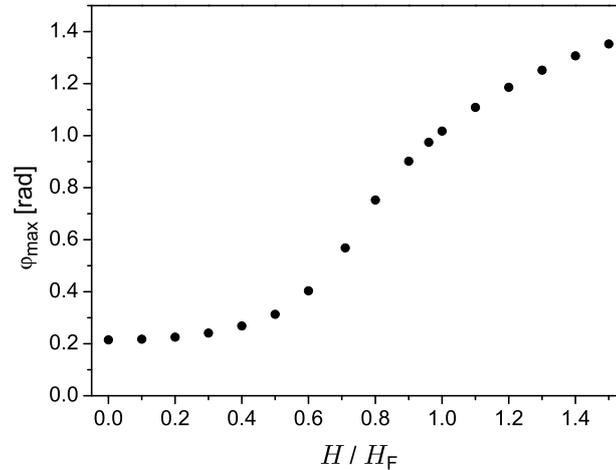


Abb. 6.11: Maximale Direktorauslenkung φ_{\max} in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke. $U = 0,8 U_F$, $\alpha = 0,02^\circ$.

bildung 6.11 praktisch identisch ist, wird angenommen, dass die Aufhebung der Entartung der Zustände φ und $-\varphi$ nicht durch die Verkippung des Magnetfeldes verursacht wird. Bereits die Inhomogenität des elektrischen Feldes bestimmt in Abhängigkeit von x die jeweilige Richtung der Direktorauslenkung (siehe auch Abbildung 6.8 (b)).

Abbildung 6.12 (a) zeigt die Direktorauslenkung für einen Schnitt durch das Direktorfeld in x -Richtung für $z = 0$ (analog zu Abbildung 6.8 (a)). Der Inversionspunkt x_s , also der Schnittpunkt der Kurven mit $\varphi = 0$, verschiebt sich für größer werdende Verkippungen α des Magnetfeldes immer weiter aus der Mitte des Pixels heraus zu dessen Rand. Der quantitative Verlauf des Betrags des Inversionspunktes $|x_s|$ als Funktion des Winkels α ist in Abbildung 6.12 (b) dargestellt. Für ein Magnetfeld mit $\alpha = 0^\circ$, das also exakt parallel zur Zellebene ausgerichtet ist, befindet sich der Inversionspunkt genau in der Mitte des Pixels, $x_s = x_0$. $|x_s|$ steigt mit wachsendem α und sättigt schließlich bei einer Position $|x_s| < |x_k|$, welche sich noch innerhalb des Pixels befindet. Abbildung 6.12 (b) macht deutlich, dass die Simulation der Direktorfelder die Hypothese bestätigt, dass eine leichte Verkippung des Magnetfeldes von etwa $\alpha \approx 1^\circ$ aus der Zellebene heraus, tatsächlich zu einer signifikanten Verschiebung des In-

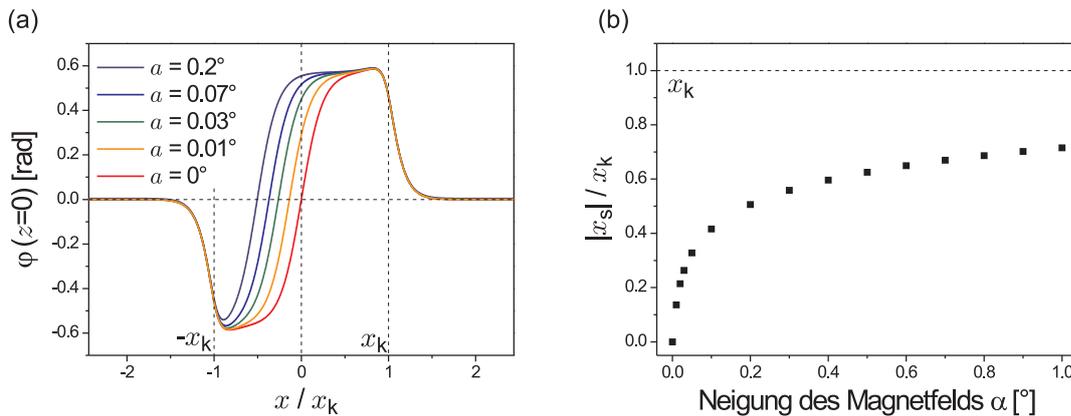


Abb. 6.12: (a) Direktorauslenkung entlang eines Schnittes mit $z = 0$ für verschiedene Kippwinkel α des Magnetfeldes. (b) Verschiebung der Inversionslinie als Funktion des Winkels α . $U = 0,8 U_F$, $H = 0,71 H_F$.

versionspunktes bzw. der Inversionslinie im Experiment führt.

Die Verschiebung des Inversionspunktes ist nicht nur vom Kippwinkel α abhängig, sondern auch von der Magnetfeldstärke. In Abbildung 6.13 werden die experimentell gewonnenen Werte für $|x_s|$ (■ ■ ■) mit den gerechneten Werten in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke für verschiedene Winkel α verglichen. Für einen Wert von $\alpha = 0,02^\circ$ reproduziert die theoretische Kurve den Verlauf der experimentellen für nicht zu hohe Werte der Feldstärke sehr gut. Oberhalb von $H \approx 0,9 H_F$ weicht der Kurvenverlauf ab, die beobachtete Verschiebung des Inversionspunktes ist kleiner als die vorhergesagte. Ein Blick auf Abbildung 6.4 (b) verdeutlicht den Grund für diese Abweichung. In der größeren Umgebung des oberen und unteren Randes des Bildes bzw. des Pixels sind die Linien gleicher Direktorauslenkung stark gekrümmt, $|x_s|$ nimmt stark ab. Mit steigender Magnetfeldstärke und größerer Direktorauslenkung werden auch diese Randeffekte stärker, so dass man hier nicht mehr davon ausgehen kann, dass der gemessene Wert für $|x_s|$ demjenigen eines quasi-infiniten Aufbaus, wie er in den Simulationen betrachtet wurde, entspricht. Die starken Randeffekte im Experiment sind auch der Grund dafür, dass der berechnete Winkel α für die vorgegebenen Feldgrößen unrealistisch klein ist. Auffällig in Abbildung 6.13 ist weiterhin, dass die Verschiebung $|x_s|$

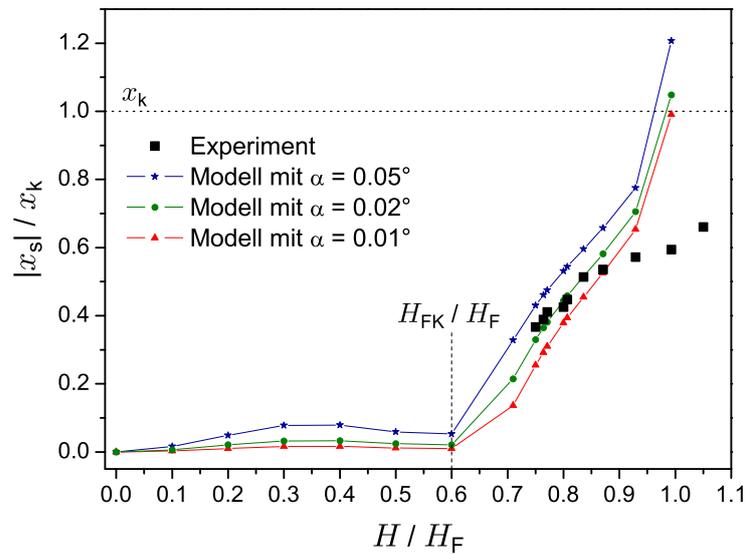


Abb. 6.13: Verschiebung der Inversionslinie bezüglich x_0 als Funktion der Magnetfeldstärke. Verglichen werden die experimentellen Werte (■ ■ ■) mit den für verschiedene α gerechneten. $U = 0,8 U_F$.

die Kante x_k der oberen Elektrode überschreitet. Bezogen auf das Experiment bedeutet dies, dass sich die Inversionslinie außerhalb des Pixels befindet, was auch bereits beobachtet wurde. Ein markanter Punkt im Diagramm 6.13 ist derjenige Wert der Magnetfeldstärke $H_{FK} = 0,6 H_F$, bei welchem für das gegebene elektrische Potential der kombinierte Fréederickszübergang auftritt. Oberhalb dieses Wertes nimmt der Anstieg der Kurve stark zu, da mit dem kombinierten Fréederickszübergang auch die Direktorauslenkung stärker anwächst.

6.3 Intensitätsprofile

Für die verschiedenen Direktorfelder wurde die Intensität des transmittierten Lichts unter Verwendung der Gleichungen 3.6, 3.7 und 3.9, also für den Fall zweier gekreuzter Polarisatoren, welche um 45° zur Direktorneigeebene verdreht sind, gerechnet. Die Wellenlänge des eingestrahlten Laserlichts beträgt $\lambda_{\text{Licht}} = 530 \text{ nm}$, die Brechungsindizes lauten $n_\perp = 1,558$

und $n_{\parallel} = 1,848$. Da die Direktorauslenkung durch die Inhomogenität des elektrischen Feldes in der Zellebene nicht gleichmäßig ist, muss mit einer Ablenkung der Lichtstrahlen in Richtung des größeren effektiven Brechungsindex gerechnet werden. Rechentests ergaben jedoch, dass die Strahlablenkung nur wenig Einfluss auf das Intensitätsprofil hat. Deshalb und wegen des erhöhten Rechenaufwandes wurde dieser Aspekt in den folgenden Rechnungen vernachlässigt und nur die reinen Doppelbrechungseffekte betrachtet.

Die folgenden vier Abbildungen (6.14 - 6.17) zeigen jeweils den Verlauf

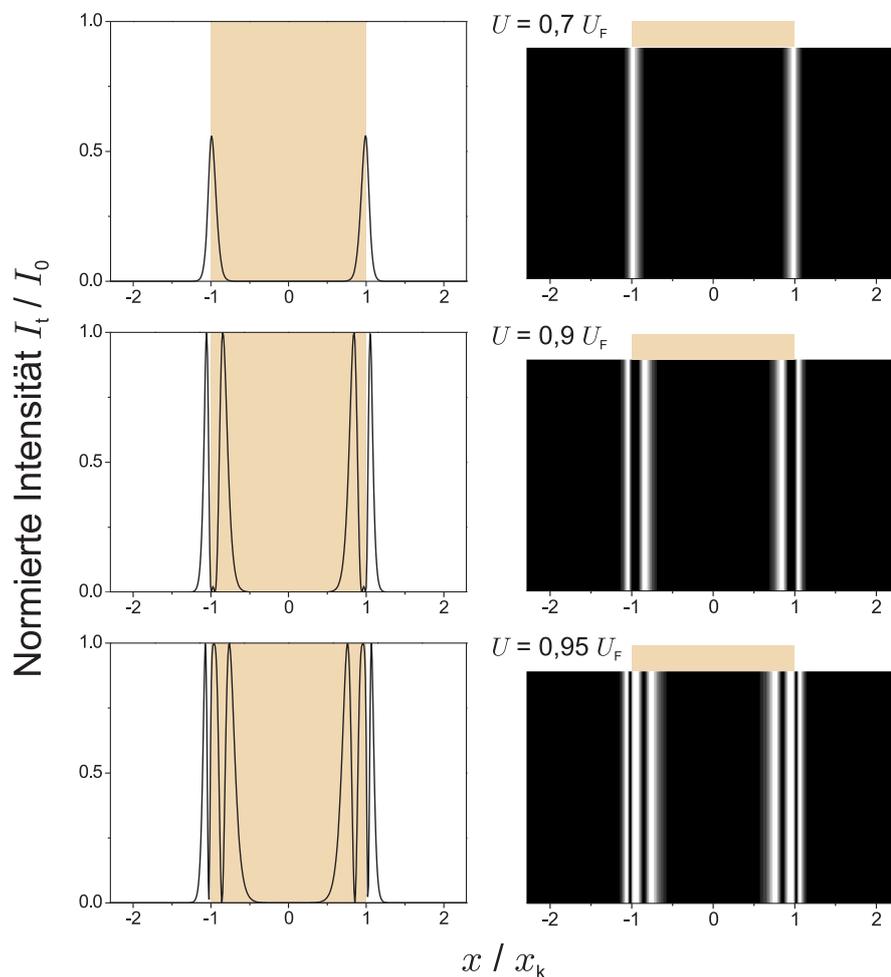


Abb. 6.14: Gerechnete transmittierte Intensität für verschiedene elektrische Potentiale mit $H = 0$ in x -Richtung (linke Spalte). Die rechte Spalte zeigt die zugehörigen Grauskalenbilder. Beigefarbene Balken markieren die Ausdehnung der endlichen oberen Elektrode in x -Richtung.

der normierten Intensität I_t/I_0 nach Durchlaufen von Polarisator, Probe und Analysator entlang der x -Koordinate (linke Spalte) sowie die entsprechenden Grauskalenbilder (rechte Spalte). Letztere entstehen für die

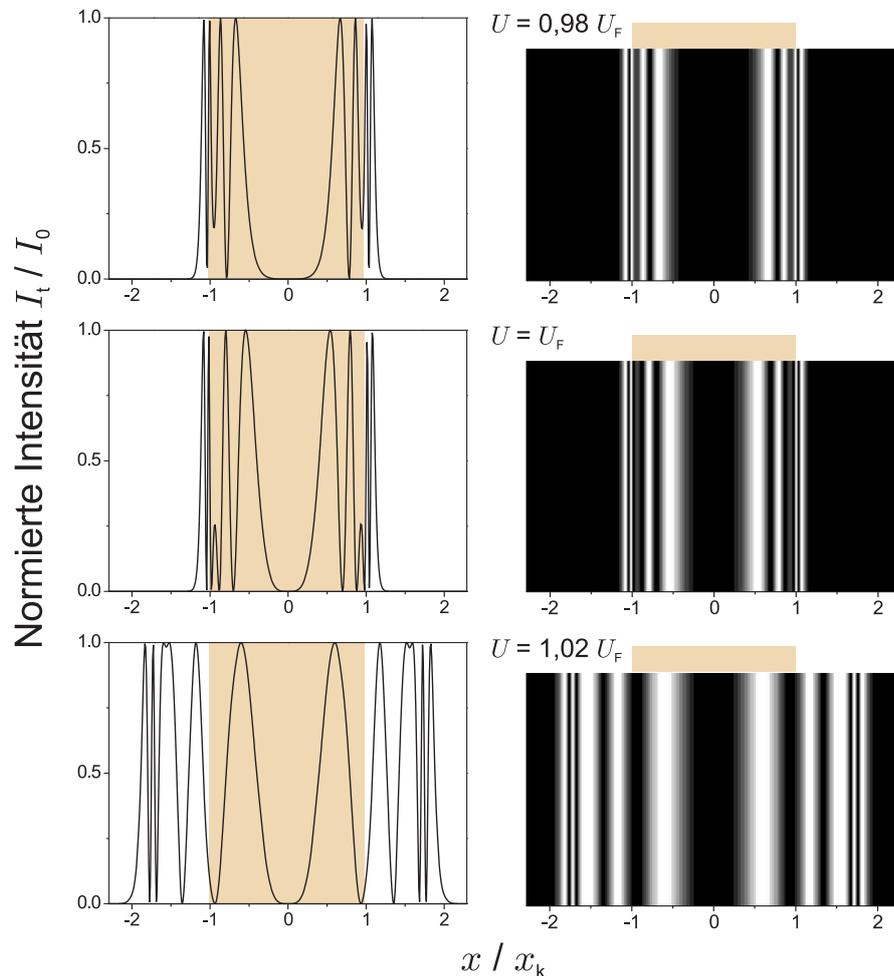


Abb. 6.15: Fortsetzung der Abbildung 6.14

gerechneten Direktorfelder (Abbildungen 6.14, 6.15 und 6.17), indem der jeweilige Intensitätsverlauf in Grauskaleneinheiten umgewandelt und mehrere dieser Grauskalenzeilen aneinander gesetzt werden. Diese gerechneten Grauskaleneinheiten imitieren die Textur, wie sie im Polarisationsmikroskop in der x - y -Ebene für eine in y -Richtung unendliche Zelle erscheint. Die beigefarbenen Balken geben die Ausdehnung der oberen Elektrode in x -Richtung an. Die Abbildungen 6.14 und 6.15 zeigen die Intensitäten für

verschiedene Spannungen ohne den Einfluss eines äußeren Magnetfeldes. Wie auch in den experimentell beobachteten Mikroskopbildern in Abbildung 6.3 erkennbar ist, entstehen bei niedrigen Spannungen zunächst nur Peaks in der Nähe der Elektrodenkante, welche dann mit steigender Spannung in die Pixelmitte hineinwandern, wobei die Anzahl der Intensitätsmaxima pro Seite von $N = 1$ bei $U = 0,7 U_F$ (Abbildung 6.14, oben) auf $N = 5$ bei $U = 1,02 U_F$ (Abbildung 6.15, unten) ansteigt. N bleibt damit weit unterhalb der maximal möglichen Anzahl an Intensitätsmaxima $N_{\max} = (n_{\parallel} - n_{\perp}) d / \lambda_{\text{Licht}} = 26$. Ein qualitativer Sprung ist für Spannungen oberhalb von $U = U_F$ zu beobachten (Abbildung 6.15). Hier werden die Deformationen des Direktorfeldes so stark, dass auch weit entfernt von den Elektrodenkanten Intensitätsmaxima auftreten.

Experimentell beobachtete Intensitätsprofile für $H = 0$ unter monochromatischem Licht sind in Abbildung 6.16 dargestellt. Für eine einfachere Auswertung wurden Ausschnitte gewählt, welche die Ränder in y -Richtung aussparen. Vergleicht man die gerechneten Intensitätsprofile mit den experimentell beobachteten, fällt zunächst auf, dass die gemessenen Intensitätsextrema weicher ineinander übergehen als die gerechneten. Eine Ursache hierfür könnte sein, dass in den Simulationen lediglich die Änderung der Doppelbrechung berücksichtigt wurde, nicht jedoch Beugungseffekte, welche das Profil verschmieren. Wie stark die Beugungseffekte tatsächlich sind, kann eine Beobachtung der Texturen ohne oder mit nur einem Polarisator in zukünftigen Experimenten aufklären. Die Anzahl der Maxima werden durch die Rechnungen exakt vorhergesagt und steigen im gleichen Maße wie im Experiment. Das exakte Profil kann jedoch nicht reproduziert werden, da das Direktorfeld im Experiment eine vierzählige Symmetrie besitzt, welche das zweidimensionale Modell nicht wiedergeben kann. Besonders ab Spannungen von $U \geq 0,98 U_F$ sind die Streifen hoher Intensität in Abbildung 6.16 (rechte Spalte) nicht mehr homogen in y -Richtung, sondern werden bereits punktförmig.

In Abbildung 6.17 sind die Intensitäten für eine konstante Spannung in Abhängigkeit der Magnetfeldstärke dargestellt, wobei das Magnetfeld

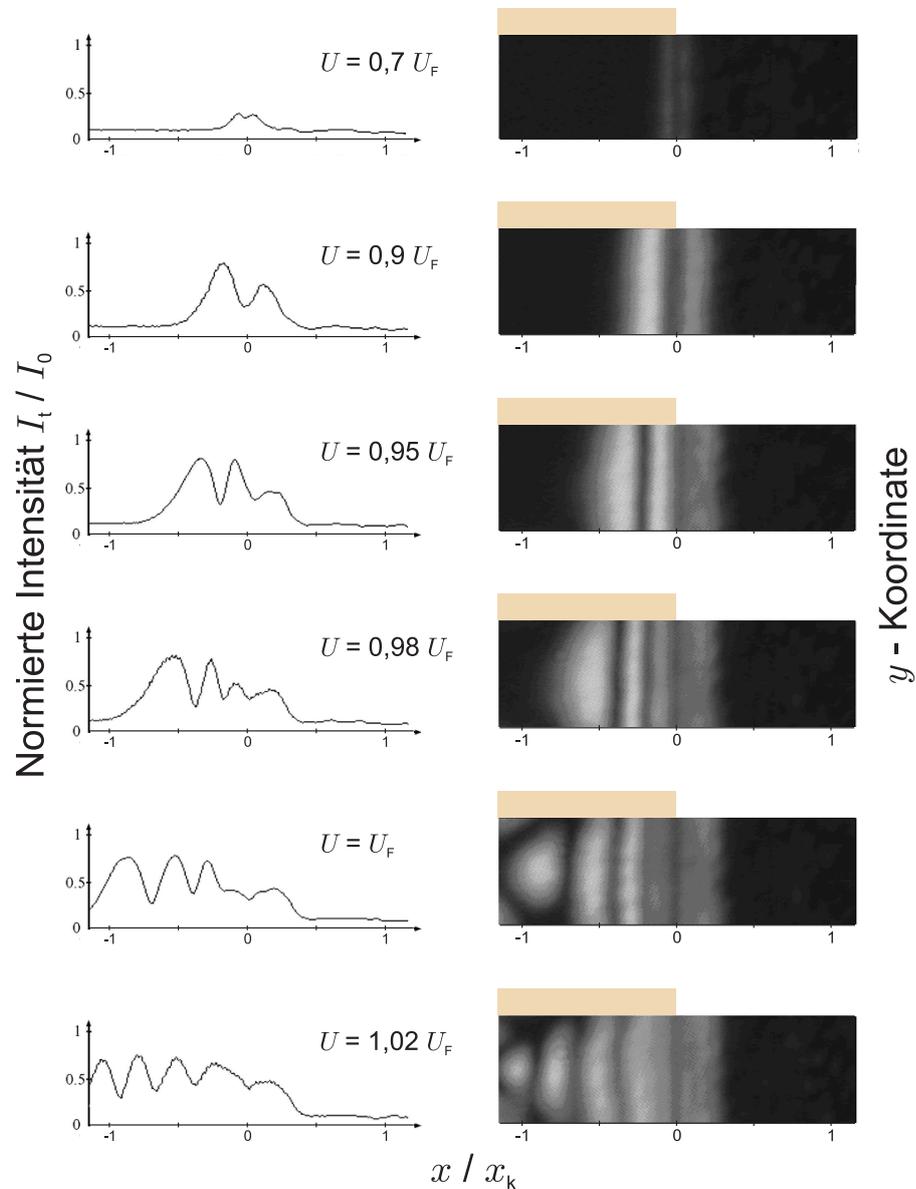


Abb. 6.16: Gemessene transmittierte Intensität für verschiedene elektrische Potentiale mit $H = 0$ in x -Richtung (linke Spalte). Die rechte Spalte zeigt die ursprünglichen Grauskalenbilder. Die y -Koordinate umfasst $150,4\mu\text{m} = 0,73x_k$. Die Diagramme wurden freundlicherweise von N. Éber zur Verfügung gestellt. Beigefarbene Balken geben wieder die Ausdehnung der endlichen Elektrode in x -Richtung an.

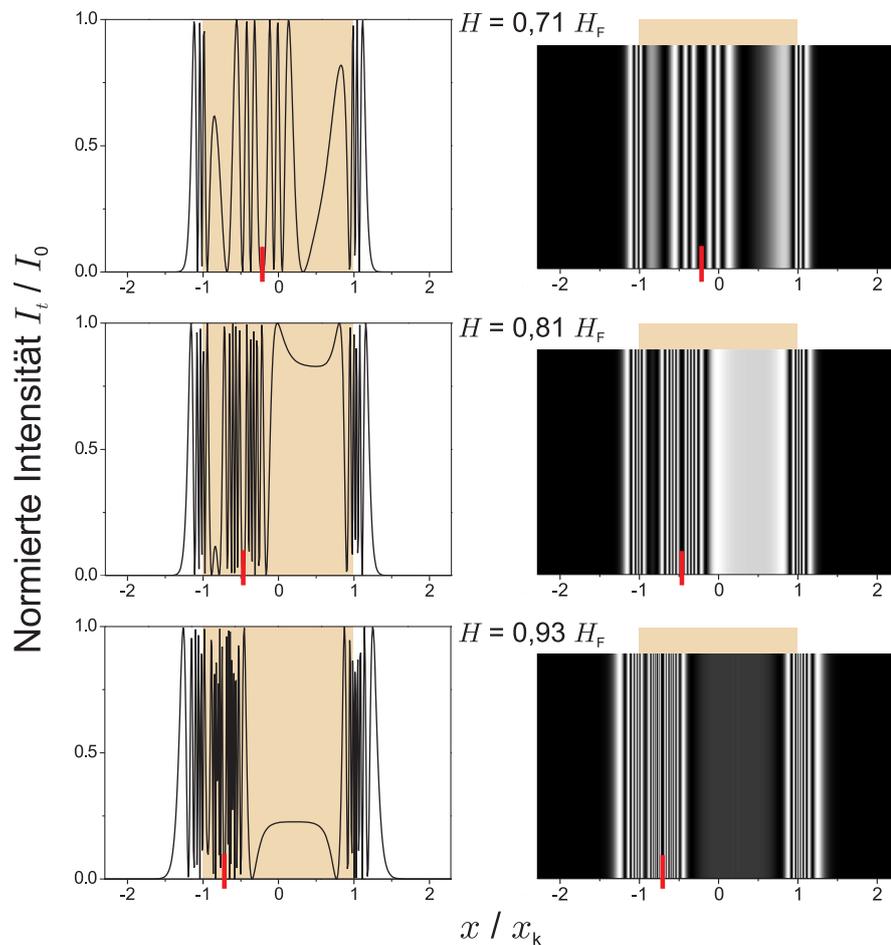


Abb. 6.17: Gerechnete transmittierte Intensität für verschiedene Magnetfeldstärken mit $U = 0,8 U_F$ in Abhängigkeit von x (linke Spalte). Die rechte Spalte zeigt die zugehörigen Grauskalenerbilder. $\alpha = 0,02^\circ$. Rote Striche markieren die Position des Inversionspunktes x_s , beigefarbene Balken die laterale Ausdehnung der endlichen Elektrode.

um einen festen Winkel α aus der Zellebene heraus gekippt ist. Die roten Striche geben den Ort x_s des Inversionspunktes an. Bestimmt wurde dieser Punkt durch das lokale Minimum des effektiven Brechungsindex entlang der x -Achse. n_{eff} ist in Abbildung 6.18 (a) mitsamt dem rotmarkierten Inversionspunkt dargestellt. Abbildung 6.18 (b) zeigt die zugrunde liegende Direktorauslenkung $\varphi(x, z)$. Qualitativ reproduzieren die Intensitätsprofile in Abbildung 6.17 die gemessenen in Abbildung 6.4. Die Erhöhung der Anzahl der Maxima, das Schmalwerden der Peaks sowie die Verschiebung des Inversionspunktes bzw. der Inversionslinie sind er-

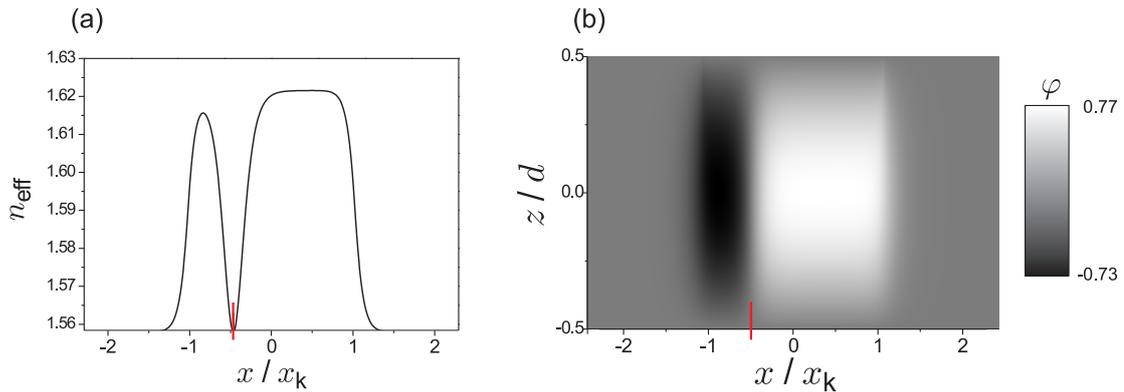


Abb. 6.18: Gerechneter effektiver Brechungsindex n_{eff} (a) und zugehöriges Direktorfeld (b) für $H = 0,81 H_F$, $U = 0,8 U_F$ und $\alpha = 0,02^\circ$. Die Werte entsprechen denen in Abbildung 6.17 (Mitte).

kennbar. Die Anzahl N der Intensitätsmaxima ist im Gegensatz zu dem Fall $H = 0$ in Abbildung 6.14 höher, da für hohe Magnetfeldstärken die Direktorauslenkung stärker wird (siehe Abbildung 6.11) und damit der effektive Brechungsindex steigt. Bemerkenswert ist, dass N für $x < x_s$ und $x > x_s$ nicht gleich sein muss, da auch die absolute Direktorauslenkung nicht mehr symmetrisch bezüglich x_s ist (siehe beispielsweise Abbildung 6.18 (b)). Während für $H = 0,71 H_F$ die Anzahl der Intensitätsmaxima $N = 7$ für $x < x_s$ und $x > x_s$ beträgt, wird N mit steigender Magnetfeldstärke für beide Seiten ungleich, und zwar je stärker, desto mehr sich die Inversionslinie zum Rand hin verschiebt. Im Fall $H = 0,81 H_F$ ist $N = 11$ für $x < x_s$ und $N = 12$ für $x > x_s$, während bei $H = 0,93 H_F$ $N = 12$ für $x < x_s$ und $N = 17$ für $x > x_s$ beträgt. Dabei bleibt N für alle betrachteten Fälle unterhalb der maximal möglichen Anzahl an Maxima $N_{\text{max}} = 26$. Allerdings gibt es im gerechneten Profil mehr und sehr viel schärfere Maxima als im Experiment. Die Ursache dafür könnte sein, dass im Experiment aufgrund der Randeffekte in y -Richtung eine Drehung des Direktors in der Zellebene entsteht und damit ein Verschmieren des optischen Profils.

6.4 Diskussion des Symmetriebruchs während des Fréederickszübergangs

Es wurde beobachtet, dass in einer homöotropen nematischen Schicht mit kleinem Aspektverhältnis ein Symmetriebruch im Direktorfeld entsteht, wenn die Probe simultan einem elektrischen und einem Magnetfeld ausgesetzt ist. Zu beobachten ist der Symmetriebruch anhand eines Inversionspunktes im Direktorfeld, welcher durch die Inhomogenität des elektrischen Feldes erzeugt wird, sich unter Einfluss eines lateralen Magnetfeldes zu einer Inversionslinie ausdehnt und sich mit steigender Feldstärke verschiebt. Die numerische Simulation bestätigt die Vermutung, dass der im Experiment beobachtete Effekt tatsächlich durch eine Verkipfung des Magnetfeldes aus der Zellebene heraus verursacht wird. Interessant ist, dass der Fréederickszübergang nicht scharf erfolgt und dass die Direktorauslenkung selbst bei $H = 0$ nicht Null ist. Es liegt hier also keine Bifurkation vor, bei welcher die beiden Auslenkungen φ und $-\varphi$ entartet sind. Dies ähnelt sehr dem Fréederickszübergang mit einem Pretilt des Direktors im Grundzustand, wobei im vorliegenden Fall die Inhomogenität des elektrischen Feldes für die Aufhebung der Entartung verantwortlich ist.

Quantitativ betrachtet, liefert die Berechnung der beobachteten Verschiebung der Inversionslinie allerdings zu kleine Verkipfungswinkel des Magnetfeldes. Die Ursache ist, dass die Simulation nur zweidimensional erfolgt, die y -Richtung wird vernachlässigt. Dies ist gerechtfertigt, wenn das experimentelle System einerseits symmetrisch in y -Richtung ist, was ohne Einschränkung der Allgemeinheit vorausgesetzt werden kann. Andererseits müssten die Effekte der Ränder in y -Richtung vernachlässigbar sein, was in den experimentellen Beobachtungen offensichtlich nicht der Fall ist. Das dürfte die Hauptursache dafür sein, dass die Simulationen die experimentellen Ergebnisse zwar qualitativ umfassend erklären, aber quantitativ nur ungenügend vorhersagen. Am Forschungsinstitut SZFKI in Budapest wurden die Experimente bereits mit Streifenelektroden wiederholt, welche entlang der y -Achse quasi-infinit ausgedehnt sind. Die

vorläufigen Ergebnisse zeigen, dass damit Simulation und Experiment tatsächlich auch quantitativ besser übereinstimmen. Eine andere Möglichkeit für eine bessere Übereinstimmung wäre die Implementierung des Problems in drei Dimensionen, wobei dann die Randeﬀekte mitbetrachtet werden würden. Dies würde allerdings den numerischen Aufwand erheblich erhöhen.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Die Fähigkeit von Flüssigkristallen, sich im elektrischen Feld umorientieren zu können, sowie die große immanente Doppelbrechung führen zu bemerkenswerten elektro-optischen Phänomenen in mesogenen Phasen. In dieser Dissertationsschrift werden zwei dieser Phänomene, die Elektrokonvektion sowie der Fréederickszübergang in der nematischen Phase betrachtet.

Das erste Thema dieser Arbeit beschäftigt sich mit den generellen dynamischen Eigenschaften der Elektrokonvektionsmuster. Insbesondere wurde untersucht, wie eine Zeitumkehr der periodischen Anregungsfunktion das Verhalten der Muster verändert. Dabei bezieht sich diese Frage zum einen auf das Schwellverhalten der Strukturen und zum anderen auf die Entwicklung der Muster in Abhängigkeit von der Zeit. Das analytische Ergebnis, dass eine Anregungsfunktion mit beliebiger Wellenform und deren Zeitumkehrfunktion immer dieselben Schwellkurven, Wellenzahlen und Musterregimes liefern, wurde numerisch getestet und die numerischen Berechnungen experimentell reproduziert.

Die zeitabhängige Direktorauslenkung ist ein Maß für die ebenfalls zeitabhängige Amplitude des Musters und qualitativ abhängig von den Symmetrien der Anregungswellenform. Bei einer zeitumkehrsymmetrischen Wellenform liefern die beiden zeitgespiegelten Funktionen identische Trajektorien, da die Anregungsfunktionen identisch sind. Ist eine Anregungsfunktion bezüglich der Zeitumkehr antisymmetrisch, kann diese durch Vorzeichenumkehr der Auslenkung in ihre zeitgespiegelte Funktion transformiert werden. Daher sind auch die Trajektorien für die beiden zeitgespiegelten Anregungsfunktionen bis auf einen Vorzeichenwechsel

einer der beiden dynamischen Variablen identisch. Der spannendste Fall sind Anregungsfunktionen, welche bezüglich der Zeitumkehr asymmetrisch sind. Die beiden zeitgespiegelten Funktionen führen dann zu qualitativ unterschiedlichen Trajektorien, welche nicht durch einfache Koordinatentransformationen ineinander überführbar sind. Sowohl die numerischen Berechnungen als auch deren experimentelle Reproduktion führen zu diesem Ergebnis.

Die Analyse der Elektrokonvektionsmuster in Abhängigkeit von der Anregungswellenform erfolgte in dieser Arbeit ausschließlich für Muster in der Nähe des Einsatzes, also für Anregungsspannungen, welche ungefähr dem kritischen Schwellwert entsprechen. Für zukünftige Untersuchungen wäre die Frage interessant, wie sich die Trajektorien im nicht-linearen Bereich (weit) oberhalb der Einsatzschwelle für die Muster verhalten und ob der qualitative Unterschied der Trajektorien bei einer zeitumkehrasymmetrischen Wellenform und deren Zeitumkehrfunktion verschwindet oder zunimmt.

Generell ist noch die Frage offen, wie sich andere periodisch getriebene, strukturbildende Systeme wie die Faradayinstabilität unter Zeitumkehr der Anregung verhalten und ob die Ergebnisse für die Elektrokonvektion auf diese Systeme übertragbar sind.

Die spezifischen Eigenschaften der Konvektionsmuster, welche durch eine Bent-core-Substanz erzeugt wurden, die sich sowohl durch eine ungewöhnliche Form der Moleküle wie auch durch eine ungewöhnliche Kombination der Materialparameter auszeichnet, bilden das zweite Thema dieser Dissertationsschrift. Diese unkonventionellen Strukturen unterscheiden sich von den klassischen Konvektionsmustern durch ihre Ausrichtung bezüglich der Direktorgrundorientierung, durch das optische Erscheinungsbild in der Nähe der Einsatzschwelle sowie durch das Entstehen als zweite Instabilität oberhalb des Fréederickszübergangs. Es wurden nicht nur longitudinale Konvektionsmuster entdeckt und detailliert beschrieben, sondern auch Übergänge zwischen verschiedenen neuartigen Mustertypen durch unterschiedliche Kontrollparameter. Die Charakterisierung der un-

konventionellen Muster und der Übergänge erfolgten experimentell. Die zugrunde liegenden Mechanismen sind bisher kaum verstanden, der Einfluss beispielsweise des Flexoeffekts auf die Musterentstehung und die Charakteristik der Strukturen ist noch unbekannt und damit eine offene Frage für zukünftige Untersuchungen. Die unkonventionellen Konvektionsmuster können auch oberhalb eines neuartigen metastabilen Grundzustands entstehen, welcher hier untersucht wurde. Eine bedeutende künftige Aufgabe ist der eindeutige Nachweis, ob es sich bei der Entstehung des metastabilen Grundzustands um die Ausbildung einer lange gesuchten biaxialen nematischen Phase handelt.

Nematische Phasen von Bent-core-Mesogenen sind erst kürzlich synthetisiert worden und aufgrund ihrer einzigartigen Materialeigenschaften hochinteressant für Anzeige- und Messanwendungen. Sie vereinigen leichtes Ausrichtungsvermögen und Schaltbarkeit kalamitischer Materialien mit biaxialen optischen Eigenschaften, potentiellen polaren Effekten und spontaner elektrischer Polarisation und liefern dadurch neue Arten elektro-optischer Schaltprozesse. Eine weiterführende Erforschung der Elektrokonvektionsmechanismen und Instabilitäten, welche von diesen Materialien ausgebildet werden, ist bedeutend für ihre umfassende technische Anwendbarkeit.

Als drittes Thema dieser Arbeit wurde in Kooperation mit N. Éber und Á. Buka vom Forschungsinstitut SZFKI in Budapest der Fréedericksz-übergang bei Anregung mit einer Kombination aus einem elektrischen und einem Magnetfeld in begrenzter Geometrie untersucht, wobei diese Geometrie für die Inhomogenität des elektrischen Feldes verantwortlich ist. Es wurde numerisch gezeigt, dass ein räumlicher Symmetriebruch in der optischen Textur der Probe und damit im Direktorfeld durch eine leichte Verkipfung des Magnetfeldes bezüglich der Zellebene erzeugt wird. Der vorhergesagte Effekt ist allerdings viel stärker als der im Experiment gefundene. Verantwortlich dafür sind Randeffekte im Experiment, welche in den numerischen Rechnungen durch die zweidimensionale Behandlung des Problems nicht betrachtet werden. Eine Wieder-

holung des Experiments mit einer Geometrie, bei welcher die Randeffekte nicht zum Tragen kommen, wurden in Budapest bereits begonnen. Zukünftige Untersuchungen könnten sich nicht nur mit diesen Experimenten beschäftigen, sondern auch mit einer dreidimensionalen Modellierung des Systems. Das Ziel beider Ansätze wäre eine bessere quantitative Übereinstimmung zwischen Experiment und Modell.

Eine weitergehende Forschungsrichtung ist die Untersuchung der Elektrokonvektion in dieser begrenzten Geometrie. Es wurden bereits Konvektionsmuster im inhomogenen elektrischen Feld ohne zusätzliches Magnetfeld gefunden, welche die vierzählige Symmetrie des vorhergehenden Fréederickszübergangs behalten [182]. Die Veränderung der Anzahl an Konvektionsrollen ist ein Effekt, welcher durch das kleine Aspektverhältnis hervorgerufen wird [181] und weitere qualitative Unterschiede zur Elektrokonvektion in quasi-infiniten Geometrien erwarten lässt.

A Übersicht über die verwendeten Mesogene

Zur Übersicht sind im Folgenden die im Text bereits erwähnten Substanzen zusammengefasst, welche in den eigenen Experimenten benutzt wurden.

Mischung 5

Die Experimente zur Untersuchung der Dynamik der Konvektionsstrukturen in Abhängigkeit von der Anregungswellenform in Kapitel 4 wurden mit der Substanz Mischung 5 durchgeführt. Mischung 5 ist eine eutektische Mischung aus vier stäbchenförmigen Komponenten (Abbildung A.1). Diese Substanz liegt bei Raumtemperatur in der nematischen Phase mit $\Delta\varepsilon < 0$ und $\Delta\sigma > 0$ vor. Bei $T = 69,2^\circ\text{C}$ findet ein Übergang in die isotrope Phase statt [166].

GTP 240

Die unkonventionellen Konvektionsstrukturen in Kapitel 5 wurden in der Substanz GTP 240 beobachtet, deren Moleküle aus einer Bent-core-Einheit bestehen, welche durch einen Spacer an ein calamitisches Element gebunden ist [175] (Abbildung A.2). Die Phasensequenz lautet: kristallin 160°C (smektisch C 149°C) nematisch $167,5^\circ\text{C}$ isotrop. In der nematischen Phase ist $\Delta\varepsilon > 0$ und $\Delta\sigma < 0$.

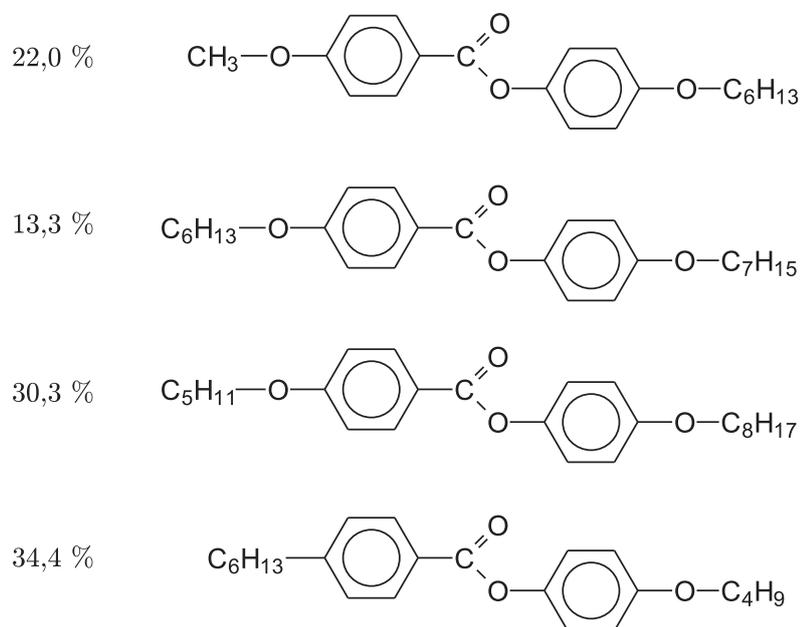


Abb. A.1: Chemische Struktur der vier Komponenten des kalamitischen Mesogens Mischung 5.

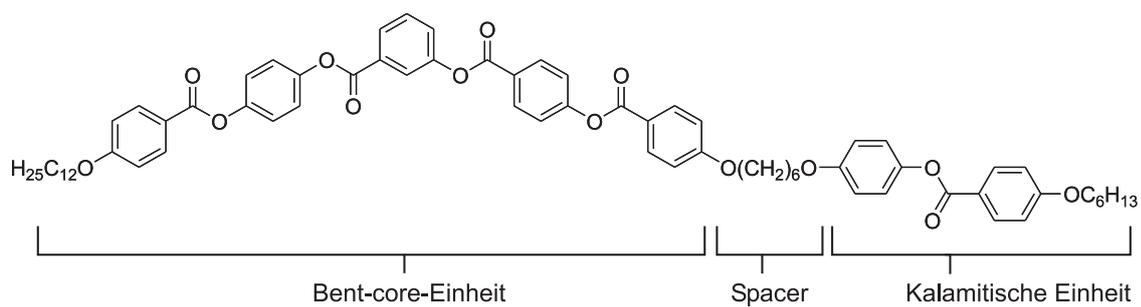


Abb. A.2: Chemische Struktur des Bent-core-Mesogens GTP 240.

B Materialparameter für die numerischen Berechnungen

Dynamik von Konvektionsstrukturen

Den Berechnungen der Schwellkurven und Trajektorien in Kapitel 4 sind die Materialparameter der Substanz Mischung 5 zugrunde gelegt [15,166], welche in den Zeitumkehrexperimenten benutzt worden ist. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Viskositäten γ_i und η_i sowie den verunreinigungsbedingten Abweichungen der Leitfähigkeiten im Experiment sind diese Parameter leicht angepasst worden. Die Materialparameter wurden in cgs-Einheiten verwendet und werden zusätzlich in Klammern in SI-Einheiten angegeben:

$$\begin{aligned}\sigma_{\parallel} &= 320 \text{ s}^{-1} && (3,56 \cdot 10^{-8} \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}), \\ \sigma_{\perp} &= 213 \text{ s}^{-1} && (2,37 \cdot 10^{-8} \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}), \\ \gamma_1 &= 3,78 \text{ g cm}^{-1} \text{ s}^{-1} && (0,378 \text{ Pa s}), \\ \gamma_2 &= -3,78 \text{ g cm}^{-1} \text{ s}^{-1} && (-0,378 \text{ Pa s}), \\ \eta_1 &= 4,0 \text{ g cm}^{-1} \text{ s}^{-1} && (0,40 \text{ Pa s}), \\ \eta_2 &= 0,4 \text{ g cm}^{-1} \text{ s}^{-1} && (0,04 \text{ Pa s}), \\ \alpha_1 &= 0,2 \text{ g cm}^{-1} \text{ s}^{-1} && (0,02 \text{ Pa s}), \\ \varepsilon_{\parallel} &= 5,6 && (5,6), \\ \varepsilon_{\perp} &= 6,0 && (6,0), \\ K_1 &= 14,90 \cdot 10^{-7} \text{ g cm s}^{-2} && (14,90 \cdot 10^{-12} \text{ N}), \\ K_3 &= 13,76 \cdot 10^{-7} \text{ g cm s}^{-2} && (13,76 \cdot 10^{-12} \text{ N}), \\ d &= 20,2 \cdot 10^{-4} \text{ cm} && (20,2 \cdot 10^{-6} \text{ m}).\end{aligned}$$

Die Viskositäten sind über die Lesliekoeffizienten α_i wie folgt mitein-

ander verknüpft:

$$\begin{aligned}\gamma_1 &= \alpha_3 - \alpha_2, & \eta_1 &= \frac{1}{2}(\alpha_4 + \alpha_5 - \alpha_2), \\ \gamma_2 &= \alpha_3 + \alpha_2, & \eta_2 &= \frac{1}{2}(\alpha_3 + \alpha_4 + \alpha_6).\end{aligned}$$

Fréederickszübergang im inhomogenen elektrischen Feld

In die Berechnungen der Direktorfelder und Intensitätsprofile in Kapitel 6 gingen folgende Materialparameter in SI-Einheiten ein, welche an die Experimente, die am SZFKI in Budapest mit der Substanz Phase 5A durchgeführt wurden, angelehnt sind:

$$\begin{aligned}\varepsilon_{\parallel} &= 5,033, & K_1 &= 9,8 \cdot 10^{-12} \text{ N}, \\ \varepsilon_{\perp} &= 5,217, & K_3 &= 12,7 \cdot 10^{-12} \text{ N}.\end{aligned}$$

C Herleitung der Bedingung für die kombinierte Fréederickszschwelle

Betrachtet wird der kombinierte Fréederickszübergang unter Einfluss eines elektrischen und eines magnetischen Feldes mit homöotropem Grundzustand (Abbildung C.1). Hergeleitet werden soll die Bedingung für die

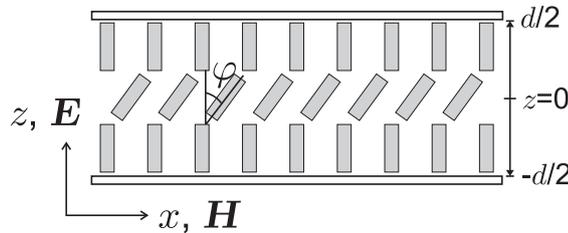


Abb. C.1: Geometrie des kombinierten Fréederickszübergangs aus dem homöotropen Grundzustand heraus. Das Magnetfeld \mathbf{H} liegt in der Zellebene, das elektrische \mathbf{E} senkrecht dazu. Der Direktor wird um den Winkel φ aus der vertikalen Grundposition ausgelenkt. Die Dicke der Zelle beträgt d . Die geometrischen Verhältnisse, beispielsweise von Zelldicke zu Glasplatten, sind stark verzerrt dargestellt.

kombinierte Fréederickszschwelle in Abhängigkeit von der Schwellspannung U_F für den isolierten elektrischen Bend-Fréederickszübergang und des Schwellwertes für die Feldstärke H_F für den isolierten magnetischen Bend-Fréederickszübergang.

Der elastische, elektrische und magnetische Anteil an der freien Energiedichte lauten (siehe auch Gleichungen 3.3, 3.5 und 3.1):

$$\begin{aligned} w_{\text{elast}} &= \frac{1}{2} [K_1 (\nabla \cdot \mathbf{n})^2 + K_3 (\mathbf{n} \times \nabla \times \mathbf{n})^2], \\ w_{\text{elek}} &= -\frac{1}{2} \mathbf{D} \mathbf{E} = -\frac{1}{2} \varepsilon_0 \varepsilon_{\perp} E^2 - \frac{1}{2} \varepsilon_0 \Delta \varepsilon (\mathbf{n} \cdot \mathbf{E})^2, \\ w_{\text{magn}} &= -\frac{1}{2} \Delta \chi \mu_0 (\mathbf{n} \cdot \mathbf{H})^2. \end{aligned}$$

Der Term $-\frac{1}{2} \varepsilon_0 \varepsilon_{\perp} E^2$ in w_{elek} ist unabhängig von der Orientierung von \mathbf{n} und wird daher im Folgenden vernachlässigt. Mit dem Ansatz $\mathbf{n} =$

$(\sin \varphi(z), 0, \cos \varphi(z))$ für den Direktor ergibt sich

$$\begin{aligned} w_{\text{elast}} &= \frac{1}{2}(K_1 \sin^2 \varphi + K_3 \cos^2 \varphi)(\varphi')^2, \\ w_{\text{elek}} &= -\frac{1}{2}\Delta\varepsilon\varepsilon_0 E^2 \cos^2 \varphi, \\ w_{\text{magn}} &= -\frac{1}{2}\Delta\chi\mu_0 H^2 \sin^2 \varphi \end{aligned}$$

mit $' = \frac{d}{dz}$. φ ist in der betrachteten Geometrie nur von der z -Richtung abhängig und homogen in x - und y -Richtung. Die elektrische Feldstärke E wird als unabhängig von z angenommen, da hier nur die Nähe der Fréederickszschwelle mit $\varphi_{\text{max}} \rightarrow 0$ betrachtet wird. Die gesamte freie Energiedichte ist $w = w_{\text{elast}} + w_{\text{elek}} + w_{\text{magn}}$. Die Gleichgewichtsbedingung ergibt sich aus der Euler-Lagrange-Gleichung

$$\frac{d}{dz} \left(\frac{\partial w}{\partial \varphi'} \right) - \frac{\partial w}{\partial \varphi} = 0$$

und lautet

$$\begin{aligned} (K_1 \sin^2 \varphi + K_3 \cos^2 \varphi)\varphi'' + (K_1 - K_3)(\varphi')^2 \sin \varphi \cos \varphi \\ + \Delta\chi\mu_0 H^2 \sin \varphi \cos \varphi - \Delta\varepsilon\varepsilon_0 E^2 \sin \varphi \cos \varphi = 0. \end{aligned}$$

Da hier nur Aussagen über die Fréederickszschwelle selbst getroffen werden, kann die Gleichung für die Gleichgewichtsbedingung linearisiert werden und vereinfacht sich dann zu

$$K_3\varphi'' + \Delta\chi\mu_0 H^2 \varphi - \Delta\varepsilon\varepsilon_0 E^2 \varphi = 0.$$

Mit dem Ansatz für die Direktorauslenkung

$$\varphi = \varphi_{\text{max}} \cos\left(\frac{\pi}{d}z\right)$$

gilt für das Gleichgewicht

$$-K_3\varphi_{\text{max}} \frac{\pi^2}{d^2} \cos\left(\frac{\pi}{d}z\right) + \Delta\chi\mu_0 H^2 \varphi_{\text{max}} \cos\left(\frac{\pi}{d}z\right) - \Delta\varepsilon\varepsilon_0 E^2 \varphi_{\text{max}} \cos\left(\frac{\pi}{d}z\right) = 0$$

bzw.

$$-1 + \frac{\Delta\chi\mu_0 d^2}{K_3 \pi^2} H^2 - \frac{\Delta\varepsilon\varepsilon_0 d^2}{K_3 \pi^2} E^2 = 0.$$

Nach dem Einsetzen der Spannung U sowie der Ausdrücke U_F und H_F für die Schwellwerte der isolierten Fréederickszübergänge

$$U_F^2 = -\pi^2 \frac{K_3}{\varepsilon_0 |\Delta\varepsilon|} \quad (\Delta\varepsilon < 0), \quad H_F^2 = \frac{\pi^2}{d^2} \frac{K_3}{\mu_0 \Delta\chi}, \quad E = \frac{U}{d}$$

erhält man die Bedingung für die kombinierte Fréederickszschwelle:

$$\frac{H^2}{H_F^2} + \frac{U^2}{U_F^2} = 1.$$

D Verzeichnis der verwendeten Größen

A	Elektrodenfläche
d	Zelldicke
D	dielektrische Verschiebung
e_1	flexoelektrische Splaykonstante
e_3	flexoelektrische Bendkonstante
E	elektrisches Feld
E_1	Amplitude des elektrischen Feldes der niedrigfrequenten Komponente bei Rechtecküberlagerung
E_2	Amplitude des elektrischen Feldes der hochfrequenten Komponente bei Rechtecküberlagerung
f_0	Frequenz der Anregung bei einfacher Wellenform
f_{high}	Frequenz der hochfrequenten Komponente bei Rechtecküberlagerung
f_i	Frequenz, bei der $\Delta\varepsilon$ das Vorzeichen wechselt
f_{low}	Frequenz der niedrigfrequenten Komponente bei Rechtecküberlagerung
f_L	Lifshitzfrequenz
f_{ti}	Übergangsfrequenzen zwischen den Musterregimes
H	Magnetfeld
H_F	kritische Feldstärke an der Fréederickszschwelle
H_{FK}	kritische Magnetfeldstärke beim kombinierten Fréederickszübergang und festem U
I_0	Intensität des einfallenden Lichts
I_2	Intensität des zweiten Beugungsflecks

I_t	transmittierte Intensität
\mathbf{k}	Wellenvektor der Konvektionsmuster
k_0	kleinste beobachtete Wellenzahl
k_c	Wellenzahl der Konvektionsmuster am Einsatz
$k_d = 2\pi/d$	
K_1	elastische Splaykonstante
K_2	elastische Twistkonstante
K_3	elastische Bendkonstante
l	Länge der Rechendomäne
\mathbf{m}	zweiter Direktor in biaxialen Phasen
\mathbf{n}	nematischer Direktor
\mathbf{n}_0	Grundorientierung des Direktors
n	Beugungsordnung
n_{\parallel}	Brechungsindex parallel zur optischen Achse
n_{\perp}	Brechungsindex senkrecht zur optischen Achse
n_{eff}	effektiver Brechungsindex
$\Delta n = n_{\text{eff}} - n_{\perp}$	
N	Anzahl der Intensitätsmaxima
$\mathbf{P}_{\text{flexo}}$	flexoelektrische Polarisierung
q	Raumladungsdichte
R_0	Referenzwiderstand
T	Periode der Anregungsfunktion
T_1	Periode der niedrigfrequenten Komponente bei Rechtecküberlagerung
T_2	Periode der hochfrequenten Komponente bei Rechtecküberlagerung
T_{iso}	Temperatur am Übergang von der nematischen zur isotropen Phase
U_0	Amplitude der Wechselspannung
U_c	kritische Spannung an der Konvektionsschwelle
U_F	kritische Spannung an der Fréederickszschwelle
U_{high}	Amplitude der hochfrequenten Komponente bei

	Rechtecküberlagerung
U_{low}	Amplitude der niedrigfrequenten Komponente bei Rechtecküberlagerung
U_R	Spannung über dem Referenzwiderstand
U_{Zelle}	Spannung über der Zelle
w	gesamte freie Energiedichte
w_{elast}	elastischer Anteil der freien Energiedichte
w_{elek}	elektrischer Anteil der freien Energiedichte
w_{flexo}	flexoelektrischer Anteil der freien Energiedichte
w_{magn}	magnetischer Anteil der freien Energiedichte
w_{oberfl}	Oberflächenanteil der freien Energiedichte bei schwacher Verankerung
W	freie Energie
x_0	laterale Mitte von Pixel und Rechendomäne
x_k	laterale Koordinate der Kante der oberen Elektrode
x_n	Abstand des n-ten Beugungsflecks vom nullten Beugungsfleck
x_s	laterale Koordinate der Inversionslinie bzw. des Inversionspunktes
x_{Schirm}	Abstand zwischen Schirm und Zelle
α	Kippwinkel des Magnetfeldes bezüglich der Zellebene
$\sin \beta = \frac{\sin \varphi}{\sin \varphi_{\text{max}}}, \sin \beta_0 = \frac{\sin \varphi_0}{\sin \varphi_{\text{max}}}$	
γ	Öffnungswinkel des Bent-core-Moleküls
δ	Zeitverschiebung zwischen zwei Rechteckkomponenten
ε_{\parallel}	Dielektrizitätskonstante parallel zum Direktor
ε_{\perp}	Dielektrizitätskonstante senkrecht zum Direktor
$\Delta\varepsilon$	dielektrische Anisotropie
θ	Phasenverschiebung zwischen zwei Rechteckkomponenten
Θ	Winkel zwischen dem Analysator und der Projektion der optischen Achse auf die Zellebene

ϑ	Beugungswinkel
$\kappa = \frac{K_1 - K_3}{K_3}$	
λ	räumliche Wellenlänge der Konvektionsmuster
λ_{Licht}	Wellenlänge des einfallenden monochromatischen Lichts
\mathbf{v}	Einheitsvektor normal zur Grenzfläche
ξ	Winkel zwischen der optischen Achse und der Richtung des einfallenden Lichts
ρ	Winkel der Konvektionsrollen bezüglich \mathbf{n}_0
σ_{\parallel}	elektrische Leitfähigkeit parallel zum Direktor
σ_{\perp}	elektrische Leitfähigkeit senkrecht zum Direktor
σ_{eff}	effektive Leitfähigkeit
$\Delta\sigma$	Leitfähigkeitsanisotropie
$\tau_0\omega$	Verankerungsstärke
ϕ	Gangunterschied
Φ	elektrisches Potential
φ	Auslenkung des Direktors aus dem Grundzustand
φ_0	Winkel des Direktors an den Grenzflächen mit Pretilt
φ_{max}	maximale Direktorauslenkung
χ_{\parallel}	magnetische Suszeptibilität parallel zum Direktor
χ_{\perp}	magnetische Suszeptibilität senkrecht zum Direktor
$\Delta\chi$	Anisotropie der magnetischen Suszeptibilität
ψ	Phase des transmittierten Lichts

Literaturverzeichnis

- [1] LUEDER, E.: Liquid crystal displays: Addressing schemes and electro-optical effects. Wiley, Chichester, 2001.
- [2] WU, S.-T. und D.-K. YANG: Reflective Liquid Crystal Displays. John Wiley, Chichester, 2001.
- [3] LENSSEN, K.-M.H., P.J. BAESJOU, F.P.M. BUDZELAAR, M.H.W.M. VAN DELDEN, S.J. ROSENDAAL, L.W.G. STOFMEEL, A.R.M. VERSCHUEREN, J.J. VAN GLABBEEK, J.T.M. OSENGA und R.M. SCHURBIERS: *Invited paper: Novel design for full-color electronic paper*. Digest of Technical Papers - SID Internat. Sympos., 39:685, 2008.
- [4] LI, G., P. VALLEY, M. S. GIRIDHAR, D. L. MATHINE, G. MEREDITH, J. N. HADDOCK, B. KIPPELEN und N. PEYGHAMBARIAN: *Large-aperture switchable thin diffractive lens with interleaved electrode patterns*. Appl. Phys. Lett., 89:141120, 2006.
- [5] DE GENNES, P. G. und J. PROST: The Physics of Liquid Crystals. Clarendon Press, Oxford, 1993.
- [6] BLINOV, L. M. und V. G. CHIGRINOV: Electrooptic Effects in Liquid Crystal Materials. Springer, New York, NY, 1994.
- [7] BALL, P.: The Self-made Tapestry: Pattern Formation in Nature. Oxford University Press, Oxford, 1999.
- [8] CROSS, M. C. und P. C. HOHENBERG: *Pattern formation outside of equilibrium*. Rev. Mod. Phys., 65:851, 1993.
- [9] MILES, J. und D. HENDERSON: *Parametrically Forced Surface Waves*. Annu. Rev. Fluid Mech., 22:143, 1990.
- [10] MÜLLER, H. W., R. FRIEDRICH und D. PAPATHANASSIOU: *Theoretical and experimental studies of the Faraday instability* in Lecture notes in Physics. Editors: F. BUSSE and S. C. MÜLLER, Springer, 1998.
- [11] EDWARDS, W. S. und S. FAUVE: *Patterns and quasi-patterns in the Faraday experiment*. J. Fluid Mech., 278:123, 1994.
- [12] ARBELL, H. und J. FINEBERG: *Spatial and Temporal Dynamics of Two Interacting Modes in Parametrically Driven Surface Waves*. Phys. Rev. Lett., 81:4384, 1998.
- [13] TOPAZ, C. M., J. PORTER und M. SILBER: *Multifrequency control of Faraday wave patterns*. Phys. Rev. E, 70:066206, 2004.
- [14] HUEPE, C., Y. DING, P. UMBANHOWAR und M. SILBER: *Forcing function control of Faraday wave instabilities in viscous shallow fluids*. Phys. Rev. E, 73:016310, 2006.
- [15] JOHN, T., J. HEUER und R. STANNARIUS: *Influence of excitation wave forms and frequencies on the fundamental time symmetry of the system dynamics, studied in nematic electroconvection*. Phys. Rev. E, 71:056307, 2005.

- [16] STANNARIUS, R., J. HEUER und T. JOHN: *Fundamental relations between the symmetry of excitation and the existence of spatiotemporal subharmonic structures in a pattern-forming dynamic system*. Phys. Rev. E, 72:066218, 2005.
- [17] BUKA, Á., B. DRESSEL, W. OTOWSKI, K. CAMARA, T. TOTH-KATONA, L. KRAMER, J. LINDAU, G. PELZL und W. PESCH: *Electroconvection in nematic liquid crystals with positive dielectric and negative conductivity anisotropy*. Phys. Rev. E, 66:051713, 2002.
- [18] KOCHOWSKA, E., S. NÉMETH, G. PELZL und Á. BUKA: *Electroconvection with and without the Carr-Helfrich effect in a series of nematic liquid crystals*. Phys. Rev. E, 70:011711, 2004.
- [19] WIAN, D., J. T. GLEESON, N. ÉBER, K. FODOR-CSORBA, A. JÁKLI und T. TÓTH-KATONA: *Nonstandard electroconvection in a bent-core nematic liquid crystal*. Phys. Rev. E, 72:041712, 2005.
- [20] TÓTH-KATONA, T., A. CAUQUIL-VERGNES, N. ÉBER und Á. BUKA: *Nonstandard electroconvection with Hopf bifurcation in a nematic liquid crystal with negative electric anisotropies*. Phys. Rev. E, 75:066210, 2007.
- [21] STEWART, I. W.: *The static and dynamic continuum theory of liquid crystals*. Taylor and Francis, 2004.
- [22] CHANDRASEKHAR, S.: *Liquid Crystals*. Cambridge University Press, Cambridge, 1992.
- [23] *Handbook of Liquid Crystals, Fundamentals*. Editoren: D. DEMUS, J. GOODBY, G. W. GRAY, H.-W. SPIESS und V. VILL, Wiley-VCH, Weinheim, 1998.
- [24] GOODBY, J. W., D. W. BRUCE, M. HIRD, C. IMRIEC und M. NEAL: *An introduction to Materials Discussion No. 4: Molecular topology in liquid crystals*. J. Mater. Chem., 11:2631, 2001.
- [25] LEHMANN, M., M. JAHR und J. GUTMANN: *Star-shaped oligobenzoates with a naphthalene chromophore as potential semiconducting liquid crystal materials?* J. Mat. Chem, 18:2995, 2008.
- [26] NEKELSON, F., H. MONOBE, M. SHIRO und Y. SHIMIZU: *Liquid crystalline and charge transport properties of double-decker cerium phthalocyanine complexes*. J. Mat. Chem., 17:2607, 2007.
- [27] PREHM, M., F. LIU, U. BAUMEISTER, X. ZENG, G. UNGAR und C. TSCHERSKE: *The giant-hexagon cylinder network - A liquid-crystalline organization formed by a T-shaped quaternary amphiphile*. Angew. Chem., 46:7972, 2007.
- [28] PELZL, G., S. DIELE und W. WEISSFLOG: *Banana-shaped compounds - A new field of liquid crystals*. Adv. Mater., 11:707, 1999.
- [29] TAKEZOE, H. und Y. TAKANISHI: *Bent-Core Liquid Crystals: Their Mysterious and Attractive World*. Jap. J. Appl. Phys., 45:597, 2006.
- [30] NIORI, T., T. SEKINE, J. WATANABE, T. FURUKAWA und H. TAKEZOE: *Distinct ferroelectric smectic liquid crystals consisting of banana shaped achiral molecules*. J. Mater. Chem., 6:1231, 1996.
- [31] JÁKLI, A., M. CHAMBERS, J. HARDEN, M. MADHABI, R. TEELING, J. KIM, Q. LI, G. G. NAIR, N. ÉBER, K. FODOR-CSORBA, J. T. GLEESON und S. SPRUNT: *Extraordinary properties of nematic phases of bent-core liquid crystals*. Proc. SPIE, 6911:691105, 2008.
- [32] MADSEN, L. A., T. J. DINGEMANS, M. NAKATA und E. T. SAMULSKI: *Thermotropic biaxial nematic liquid crystals*. Phys. Rev. Lett., 92:145505, 2004.
- [33] ACHARYA, B. R., A. PRIMAK und S. KUMAR: *Biaxial nematic phase in bent-core thermotropic mesogens*. Phys. Rev. Lett., 92:145506, 2004.

- [34] LUCKHURST, G. R.: *A missing phase found at last?* Nature, 430:413, 2004.
- [35] FREISER, M. J.: *Ordered states of a nematic liquid.* Phys. Rev. Lett., 24:1041, 1970.
- [36] YU, L. J. und A. SAUPE: *Observation of a biaxial nematic phase in potassium laurate-1-decanol-water mixtures.* Phys. Rev. Lett., 45:1000, 1980.
- [37] MALTHÊTE, J., N. H. TINH und A. M. LEVELUT: *New mesogens with six, four, or three paraffinic chains.* J. Chem. Soc., Chem. Commun.:1548, 1986.
- [38] TEIXEIRA, P. I. C., A. J. MASTERS und B. M. MULDER: *Biaxial nematic order in the hard-boomerang fluid.* Mol. Cryst. Liq. Cryst., 323:167, 1998.
- [39] LUCKHURST, G. R.: *V-shaped molecules: New contenders for the biaxial nematic phase.* Angew. Chem. Int. Ed., 44:2834, 2005.
- [40] GALERNE, Y.: *Comment on 'Colloidal interactions and transport in nematic liquid crystals'.* Phys. Rev. Lett., 101:029801, 2008.
- [41] HARDEN, J., B. MBANGA, N. ÉBER, K. FODOR-CSORBA, S. SPRUNT, J. T. GLEESON und A. JÁKLI: *Giant Flexoelectricity of Bent-Core Nematic Liquid Crystals.* Phys. Rev. Lett., 97:157802, 2006.
- [42] HARDEN, J., R. TEELING, J. T. GLEESON, S. SPRUNT und A. JÁKLI: *Converse flexoelectric effect in a bent-core nematic liquid crystal.* Phys. Rev. E, 78:031702, 2008.
- [43] VIRGA, E. P.: *Variational theories for liquid crystals.* Chapman and Hall, London, 1994.
- [44] FRÉDERICKSZ, V. und A. REPIEWA: *Theoretisches und Experimentelles zur Frage nach der Natur der anisotropen Flüssigkeiten.* Zeitschr. Physik, 42:532, 1927.
- [45] FRÉDERICKSZ, V. und V. ZOLINA: *Forces causing the orientation of an anisotropic liquid.* Trans. Faraday Soc., 29:919, 1933.
- [46] OSEEN, C. W.: *The theory of liquid crystals.* Trans. Faraday Soc., 29:883, 1933.
- [47] ZOCHER, H.: *The effect of a magnetic field on the nematic state.* Trans. Far. Soc., 29:945, 1933.
- [48] FRANK, F. C.: *On the theory of liquid crystals.* Discuss. Faraday Soc., 25:19, 1958.
- [49] DEULING, H. J.: *Deformation of Nematic Liquid Crystals in an Electric Field.* Mol. Cryst. Liq. Cryst., 19:123, 1972.
- [50] SELF, R. H., C. P. PLEASE und T. J. SLUCKIN: *Deformation of nematic liquid crystals in an electric field.* Eur. J. Appl. Math., 13:1, 2002.
- [51] CHEVALLARD, C., M. NOBILI und J.-M. GILLI: *Ising wall instability in a nematic liquid crystal.* Liq. Cryst., 28:179, 2001.
- [52] KRISHNAMURTHY, K. S. und R. BALAKRISHNAN: *Electric field effects on director pattern and disclinations in free standing nematic films of 8CB.* Liq. Cryst., 29:383, 2002.
- [53] DE LÓZAR, A., W. SCHÖPF, I. REHBERG, D. SVENŠEK und L. KRAMER: *Transformation from walls to disclination lines: Statics and dynamics of the pincement transition.* Phys. Rev. E, 72:051713, 2005.
- [54] DEMETER, G. und L. KRAMER: *Light-induced pattern formation in nematic liquid crystals.* Mol. Cryst. Liq. Cryst., 366:807, 2001.
- [55] BISCARI, P. und P. CESANA: *Ordering effects in electric splay Freedericksz transitions.* Cont. Mech. Thermodyn., 19:285, 2007.

- [56] WEN, B. und C. ROSENBLATT: *First-order Fréedericksz transition above the nematic-smectic-A phase transition*. Phys. Rev. Lett., 89:195505, 2002.
- [57] ZAKHLEVNYKH, A. N.: *Threshold magnetic fields and Fréedericksz transition in a ferronematic*. J. Magnetism Magn. Mat., 269:238, 2004.
- [58] LONBERG, F. und R. B. MEYER: *New ground state for the splay-Fréedericksz transition in a polymer nematic liquid crystal*. Phys. Rev. Lett., 55:718, 1985.
- [59] VERTOGEN, G. und W. H. DE JEU: *Thermotropic Liquid Crystals*. Springer, 1988.
- [60] YAMADA, H.: *Fréedericksz transition in a film of nematic liquid crystal in the magnetic field with pretilt angle*. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 108:93, 1984.
- [61] NAEMURA, S.: *Measurement of anisotropic interfacial interaction between a nematic liquid crystal and various substrates*. Appl. Phys. Lett., 33:1, 1978.
- [62] NEHRING, J., A. R. KMETZ und T. J. SCHEFFER: *Analysis of weak-boundary-coupling effects in liquid-crystal displays*. J. Appl. Phys., 47:850, 1976.
- [63] FRISKEN, B. J. und P. PALFFY-MUHORAY: *Electric field induced twist and bend Freedericksz transitions in nematic liquid crystals*. Phys. Rev. A, 39:1513, 1989.
- [64] FRISKEN, B. J. und P. PALFFY-MUHORAY: *Freedericksz transitions in nematic liquid crystals: the effects of an in-plane electric field*. Phys. Rev. A, 40:6099, 1989.
- [65] KINI, U. D.: *Magnetic and Electric Field Induced Periodic Deformations in Nematics*. J. Phys. II France, 5:1841, 1995.
- [66] KINI, U. D.: *Crossed fields induced periodic deformations in nematics: Effect of weak anchoring*. Liq. Cryst., 21:713, 1996.
- [67] DEULING, H. J., E. GUYON und P. PIERANSKI: *Deformation of nematic layers in crossed electric and magnetic fields*. Solid State Comm., 15:277, 1974.
- [68] DEULING, H. J., Á. BUKA und I. JÁNOSSY: *Two Freedericksz transitions in crossed electric and magnetic fields*. J. Phys. (Paris), 37:965, 1976.
- [69] BARBERO, G., E. MIRALDI und C. OLDANO: *Critical values of the elastic-constant ratio for the periodic twist-splay distortion in nematic liquid crystals*. Phys. Rev. A, 38:519, 1988.
- [70] WINKLER, B. L., H. RICHTER, I. REHBERG, W. ZIMMERMANN, L. KRAMER und A. BUKA: *Nonequilibrium patterns in the electric-field-induced splay Fréedericksz transition*. Phys. Rev. A, 43:1940, 1991.
- [71] HINOV, H. P., I. BIVAS, M. D. MITOV, K. SHOUMAROV und Y. MARINOV: *A further experimental study of parallel surface-induced flexoelectric domains (PSIFED) (flexo-dielectric walls)*. Liq. Cryst., 30:1293, 2003.
- [72] CHIGRINOV, V. G., T. V. KORKISHKO, M. I. BARNIK und A. N. TRUFANOV: *Freedericksz Transition in Electric Fields Near the Dielectric Sign Reversal Frequency*. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 129:285, 1985.
- [73] SAGUÉS, F. und F. ARIAS: *Dynamics of transient domain structures in nematic liquid crystals: The splay Fréedericksz transition*. Phys. Rev. A, 38:5367, 1988.
- [74] GUYON, E., R. MEYER und J. SALAN: *Domain structure in the nematic Fréedericksz transition*. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 54:261, 1979.

- [75] LONBERG, F., S. FRADEN, A. J. HURD und R. E. MEYER: *Field-induced transient periodic structures in nematic liquid crystals: The twist-Fréedericksz transition*. Phys. Rev. Lett., 52:1903, 1984.
- [76] GRIGUTSCH, M., N. KLÖPPER, H. SCHMIEDEL und R. STANNARIUS: *Transient structures in the twist Fréedericksz transition of low-molecular-weight nematic liquid crystals*. Phys. Rev. E, 49:5452, 1994.
- [77] BUKA, Á., M. DE LA TORRE JUÁREZ, L. KRAMER und I. REHBERG: *Transient structures in the Fréedericksz transition*. Phys. Rev. A, 40:7427, 1989.
- [78] FIGUEIRINHAS, J. L., L. N. GONÇALVES und J. P. CASQUILHO: *Periodic distorted nematic director structures in the intermediate fréedericksz transition geometries*. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 410:49, 2004.
- [79] KUMAR, P., U. S. HIREMATH, C. V. YELAMAGGAD, A. G. ROSSBERG und K. S. KRISHNAMURTHY: *Electroconvection in a homeotropic bent-rod nematic liquid crystal beyond the dielectric inversion frequency*. J. Phys. Chem. B, 112:9753, 2008.
- [80] MEYER, R. B.: *Piezoelectric effects in liquid crystals*. Phys. Rev. Lett., 22:918, 1969.
- [81] Physical Properties of Liquid Crystals: Nematics. Editoren: D. A. DUNMUR, A. FUKUDA und G. R. LUCKHURST, IEE, London, 2001.
- [82] DEULING, H. J.: *On a method to measure the flexo-electric coefficients of nematic liquid crystals*. Solid State Comm., 14:1073, 1974.
- [83] BROWN, C. V. und N. J. MOTTRAM: *Influence of flexoelectricity above the nematic Fréedericksz transition*. Phys. Rev. E, 68:031702, 2003.
- [84] ELSTON, S. J.: *Flexoelectricity in nematic domain walls*. Phys. Rev. E, 78:011701, 2008.
- [85] DERZHANSKI, A., A. G. PETROV und M. D. MITOV: *One-dimensional dielectric-flexoelectric deformations in nematic layers*. J. Phys. (Paris), 39:273, 1978.
- [86] BOBYLEV, Y. P., V. G. CHIGRINOV und S. A. PIKIN: *Threshold flexoelectric effect in nematic liquid crystal*. J. Phys. (Paris) Colloq., 40:331, 1978.
- [87] BARNIK, M. I., L. M. BLINOV, A. N. TRUFANOV und B. A. UMANSKI: *Flexo-electric domains in liquid crystals*. J. Phys. (Paris), 39:417, 1978.
- [88] PIKIN, S. A.: *Structural Transformations in Liquid Crystals*. Gordon and Breach, New York, 1991.
- [89] PALTO, S. P., N. J. MOTTRAM und M. A. OSIPOV: *Flexoelectric instability and a spontaneous chiral-symmetry breaking in a nematic liquid crystal cell with asymmetric boundary conditions*. Phys. Rev. E, 75:061707, 2007.
- [90] KRAMER, L. und W. PESCH: *Convection instabilities in nematic liquid crystals*. Annu. Rev. Fluid Mech., 27:515, 1995.
- [91] KRAMER, L. und W. PESCH: *Electrohydrodynamic instabilities in nematic liquid crystals* in Pattern Formation in Liquid Crystals. Editoren: A. BUKA und L. KRAMER, Springer, NY, 1996.
- [92] PESCH, W. und U. BEHN: *Electrohydrodynamic convection in nematics* in Evolution of spontaneous structures in dissipative continuous systems. Editoren: F. H. BUSSE und S. C. MÜLLER, Springer, Heidelberg, 1998.
- [93] BUKA, A., N. ÉBER, W. PESCH und L. KRAMER: *Convective patterns in liquid crystals driven by electric field* in Self-Assembly, Pattern Formation and Growth Phenomena in Nano-Systems. Editoren: A. A. GOLOVIN und A. A. NEPOMNYASHCHY, Springer, Secaucus, NJ, 2006.

- [94] WILLIAMS, R.: *Domains in liquid crystals*. J. Chem. Phys., 39:384, 1963.
- [95] CARR, E. F.: *Influence of electric and magnetic fields on the dielectric constant and loss of the liquid crystal Anisaldazine*. J. Chem. Phys., 38:1536, 1963.
- [96] HELFRICH, W.: *Conduction-induced alignment of nematic liquid crystals - basic model and stability considerations*. J. Chem. Phys., 51:4092, 1969.
- [97] ORSAY LIQUID CRYSTAL GROUP: *Hydrodynamic Instabilities in Nematic Liquids Under ac Electric Fields*. Phys. Rev. Lett., 25:1642, 1970.
- [98] DUBOIS-VIOLETTE, E., P. G. DE GENNES und O. PARODI: *Hydrodynamic instabilities of nematic liquid crystals under a.c. electric fields*. J. Physique, 32:305, 1971.
- [99] BODENSCHATZ, E., W. ZIMMERMANN und L. KRAMER: *On electrically driven pattern-forming instabilities in planar nematics*. J. Phys. (Paris), 49:1875, 1988.
- [100] TREIBER, M. und L. KRAMER: *Bipolar Electrodiffusion Model for Electroconvection in Nematics*. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 261:311, 1995.
- [101] DENNIN, M., M. TREIBER, L. KRAMER, G. AHLERS und D. CANNELL: *Origin of Traveling Rolls in Electroconvection of Nematic Liquid Crystals*. Phys. Rev. Lett., 76:319, 1996.
- [102] RIBOTTA, R., A. JOETS und L. LEI: *Oblique Roll Instability in an Electroconvective Anisotropic Fluid*. Phys. Rev. Lett., 56:1595, 1986.
- [103] ZIMMERMANN, W. und L. KRAMER: *Oblique-Roll Electrohydrodynamic Instability in Nematics*. Phys. Rev. Lett., 55:402, 1985.
- [104] TU, Y.: *Worm structure in the modified Swift-Hohenberg equation for electroconvection*. Phys. Rev. E, 56:R3765, 1997.
- [105] ROSSBERG, A.G. und L. KRAMER: *Pattern formation from defect chaos - a theory of chevrons*. Physica D, 115:19, 1998.
- [106] PLAUT, E., W. DECKER, A. G. ROSSBERG, L., W. PESCH, A. BELAIDI und R. RIBOTTA: *New Symmetry Breaking in Nonlinear Electroconvection of Nematic Liquid Crystals*. Phys. Rev. Lett., 79:2367, 1997.
- [107] HUH, J.-H., Y. HIDAKA und S. KAI: *Observation and determination of abnormal rolls and abnormal zigzag rolls in electroconvection in homeotropic liquid crystals*. Phys. Rev. E, 58:7355, 1998.
- [108] RUDROFF, S., V. FRETTE und I. REHBERG: *Relaxation of abnormal rolls in planarly aligned electroconvection*. Phys. Rev. E, 59:1814, 1999.
- [109] MÜLLER, M., W. SCHÖPF und I. REHBERG: *Experimental observation of a nonpitchfork acceleration instability in a nematic liquid crystal*. Phys. Rev. E, 76:041704, 2007.
- [110] REHBERG, I., S. RASENAT, J. FINEBERG, M. DE LA TORRE JUAREZ und V. STEINBERG: *Temporal modulation of travelling waves*. Phys. Rev. Lett., 61:2449, 1988.
- [111] TREIBER, M., N. ÉBER, Á. BUKA und L. KRAMER: *Travelling waves in electroconvection of the nematic Phase 5: A test of the weak electrolyte model*. J. de Physique II, 7:649, 1997.
- [112] AMM, H., R. STANNARIUS und A. G. ROSSBERG: *Optical characterization of chevron texture formation in nematic electroconvection*. Physica D, 126:171, 1999.
- [113] SCHNEIDER, U., M. DE LA TORRE JUAREZ, W. ZIMMERMANN und I. REHBERG: *Phase shift of dielectric rolls in electroconvection*. Phys. Rev. A, 46:1009, 1992.

- [114] AMM, H., M. GRIGUTSCH und R. STANNARIUS: *Spatio-temporal analysis of electroconvection in nematics*. Z. Naturforsch. A, 53:117, 1998.
- [115] BUKA, Á., P. TÓTH, N. ÉBER und L. KRAMER: *Electroconvection in homeotropically aligned nematics*. Physics reports, 337:157, 2000.
- [116] TANAKA, S., S. DHARA, B. K. SADASHIVA, Y. SHIMBO, Y. TAKANISHI, F. ARAOKA, K. ISHIKAWA und H. TAKEZOE: *Alternating twist structures formed by electroconvection in the nematic phase of an achiral bent-core molecule*. Phys. Rev. E, 77:041708, 2008.
- [117] TATSUMI, S., M. SANO und A. G. ROSSBERG: *Observation of stable phase jump lines in convection of a twisted nematic liquid crystal*. Phys. Rev. E, 73:011704, 2006.
- [118] FUNFSCHILLING, D., B. SAMMULI und M. DENNIN: *Patterns of electroconvection in the nematic liquid crystal N4*. Phys. Rev. E, 67:016207, 2003.
- [119] ZHOU, S.-Q. und G. AHLERS: *Spatiotemporal chaos in electroconvection of a homeotropically aligned nematic liquid crystal*. Phys. Rev. E, 74:046212, 2006.
- [120] OPREA, I., I. TRIANDAF, G. DANGELMAYR und I. B. SCHWARTZ: *Quantitative and qualitative characterization of zigzag spatiotemporal chaos in a system of amplitude equations for nematic electroconvection*. Chaos, 17:023101, 2007.
- [121] HIDAKA, Y., K. TAMURA und S. KAI: *Soft-mode turbulence in electroconvection of nematics*. Prog. Theor. Phys. Suppl., 161:1, 2006.
- [122] GOMEZ-SOLANO, J. R. und D. BOYER: *Coarsening in potential and nonpotential models of oblique stripe patterns*. Phys. Rev. E, 76:041131, 2007.
- [123] GRIFFITH, M. und M. DENNIN: *Impact of noise on domain growth in electroconvection*. Phys. Rev. E, 74:027201, 2006.
- [124] FUNFSCHILLING, D. und M. DENNIN: *Early time evolution of Fréedericksz patterns generated from states of electroconvection*. Phys. Rev. E, 73:057201, 2006.
- [125] ÉBER, N., S. A. ROZANSKI, S. NÉMETH, Á. BUKA, W. PESCH und L. KRAMER: *Decay of spatially periodic patterns in a nematic liquid crystal*. Phys. Rev. E, 70:061706, 2004.
- [126] KAMAGA, C., F. IBRAHIM und M. DENNIN: *Dislocation dynamics in an anisotropic stripe pattern*. Phys. Rev. E, 69:066213, 2004.
- [127] TÓTH-KATONA, T., J. R. CRESSMAN, W. I. GOLDBURG und J. T. GLEESON: *Persistent global power fluctuations near a dynamic transition in electroconvection*. Phys. Rev. E, 68:030101, 2003.
- [128] TÓTH, P., N. ÉBER, T. M. BOCK, Á. BUKA und L. KRAMER: *Dynamics of defects in electroconvection patterns*. Europhys. Lett., 57:824, 2002.
- [129] OIKAWA, N., Y. HIDAKA und S. KAI: *Formation of a defect lattice in electroconvection of nematics*. Phys. Rev. E, 70:066204, 2004.
- [130] GLEESON, J. T.: *Truly random number generator based on turbulent electroconvection*. Appl. Phys. Lett, 81:1949, 2002.
- [131] IL'IN, V. A. und B. L. SMORODIN: *Nonlinear Regimes of Electroconvection in a Low-Conducting Liquid*. Tech. Phys. Lett, 33:355, 2007.
- [132] IL'IN, V. A. und B. L. SMORODIN: *Dynamics of electroconvective structures in a weakly conducting liquid*. J. Appl. Mech. Tech. Phys., 49:362, 2008.

- [133] MADHUSUDANA, N. V. und V. A. RAGHUNATHAN: *Influence of flexoelectricity on electrohydrodynamic instabilities in nematics*. Liq. Cryst., 5:1789, 1989.
- [134] THOM, W., W. ZIMMERMANN und L. KRAMER: *The influence of the flexoelectric effect on the electrohydrodynamic instability in nematics*. Liq. Cryst., 4:309, 1989.
- [135] LANGE, A., R. MÜLLER und U. BEHN: *Oblique rolls in nematic liquid crystals driven by stochastic fields: one-dimensional theory including the flexoeffect and three-dimensional theory*. Z. Physik B, 100:477, 1996.
- [136] KREKHOV, A., W. PESCH, N. ÉBER, T. TÓTH-KATONA und Á. BUKA: *Nonstandard electroconvection and flexoelectricity in nematic liquid crystals*. Phys. Rev. E, 77:021705, 2008.
- [137] TÓTH-KATONA, T., N. ÉBER, Á. BUKA und A. KREKHOV: *Flexoelectricity and competition of time scales in electroconvection*. Phys. Rev. E, 78:036306, 2008.
- [138] DELEV, V. A., A. P. KREKHOV und L. KRAMER: *Crossover between flexoelectric stripe patterns and electroconvection in hybrid aligned nematics*. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 366:849, 2001.
- [139] MAY, M., W. SCHÖPF, I. REHBERG, A. KREKHOV und A. BUKA: *Transition from longitudinal to transversal patterns in an anisotropic system*. Phys. Rev. E, 78:046215, 2008.
- [140] BUKA, Á., N. ÉBER, W. PESCH und L. KRAMER: *Isotropic and anisotropic electroconvection*. Phys. Rep., 448:115, 2007.
- [141] STANNARIUS, R. und J. HEUER: *Electroconvection in nematics above the splay Fréedericksz transition*. Eur. Phys. J. E, 24:27, 2007.
- [142] TAMBA, M.-G., W. WEISSFLOG, A. EREMIN, J. HEUER und R. STANNARIUS: *Electro-optic characterization of a nematic phase formed by bent core mesogens*. Eur. Phys. J. E, 22:85, 2007.
- [143] BUKA, Á., B. DRESSEL, L. KRAMER und W. PESCH: *Isotropic Convection Scenarios in an Anisotropic Fluid*. Phys. Rev. Lett., 93:044502, 2004.
- [144] PETROV, M., E. KESKINOVA und B. KATRANCHEV: *The electroconvection in the nematic liquid crystal with short range smectic C order*. J. Mol. Liq., 138:130, 2008.
- [145] GOSCIANSKI, M. und L. LÉGER: *Electrohydrodynamic instabilities above a nematic to smectic A (or C) transition*. J. Physique (Paris), 36:C1–231, 1975.
- [146] DRESSEL, B. und W. PESCH: *Competition between electroconvection and Fréedericksz distortions in nematic liquid crystals with slightly positive dielectric anisotropy*. Phys. Rev. E, 67:031707, 2003.
- [147] DE LÓZAR MUÑOZ, A., T. BOCK, M. MÜLLER, W. SCHÖPF und I. REHBERG: *The corkscrew instability of a Fréedericksz domain wall in a nematic liquid crystal*. New. J. Phys., 63:1367, 2003.
- [148] HEUER, J., R. STANNARIUS, M.-G. TAMBA und W. WEISSFLOG: *Longitudinal and normal electroconvection rolls in a nematic liquid crystal with positive dielectric and negative conductivity anisotropy*. Phys. Rev. E, 77:056206, 2008.
- [149] RASENAT, S., G. HARTUNG, B. L. WINKLER und I. REHBERG: *The shadowgraph method in convection experiments*. Experiments in Fluids, 7:412, 1989.
- [150] PLAUT, E., A. JOETS und R. RIBOTTA: *Optical characterization of the director field in a distorted nematic layer*. J. Phys. III France, 7:2459, 1997.
- [151] TRAINOFF, S. P. und D. S. CANNELL: *Physical optics treatment of the shadowgraph*. Phys. Fluids, 14:1340, 2002.

- [152] BOHLEY, C., J. HEUER und R. STANNARIUS: *Optics of 2-D periodic anisotropic patterns investigated with the FDTD method*. J. Opt. Soc. Am. A, 22:2818, 2005.
- [153] AMM, H., M. GRIGUTSCH und R. STANNARIUS: *Optical Characterization of Electroconvection in Nematics*. Mol. Cryst. Liq. Cryst., 320:11, 1998.
- [154] DENNIN, M.: *Direct observation of a twist mode in electroconvection*. Phys. Rev. E, 62:6780, 2000.
- [155] HIRATA, S. und T. TAKO: *Optical properties of Williams domain*. Jpn. J. Appl. Phys., 21:675, 1982.
- [156] KONDO, K., M. ARAKAWA, A. FUKUDA und E. KUZE: *Light Propagation in Williams Domains as analyzed numerically by Geometrical Optics*. Japan J. Appl. Phys., 22:394, 1983.
- [157] KOSMOPOULOS, J. A. und H. M. ZENGINOGLU: *Geometrical optics approach to the nematic liquid crystal grating: numerical results*. Appl. Opt., 26:1714, 1987.
- [158] ZENGINOGLU, H. M. und J. A. KOSMOPOULOS: *Linearized wave-optical approach to the grating effect of a periodically distorted nematic liquid crystal layer*. J. Opt. Soc. Am. A, 14:669–675, 1997.
- [159] JOHN, T., U. BEHN und R. STANNARIUS: *Laser diffraction by periodic dynamic patterns in anisotropic fluids*. Eur. Phys. J. B, 35:267, 2003.
- [160] JOHN, T. und R. STANNARIUS: *Preparation of subharmonic patterns in nematic electroconvection*. Phys. Rev. E, 70:025202, 2004.
- [161] LAMB, J. S. W. und J. A. G. ROBERTS: *Time-reversal symmetry in dynamical systems: A survey*. Physica D, 112:1, 1998.
- [162] HEUER, J., T. JOHN und R. STANNARIUS: *Time reversal of the excitation wave form in a dissipative pattern-forming system*. Phys. Rev. E, 78:036218, 2008.
- [163] AMANN, H.: *Gewöhnliche Differentialgleichungen*. De Gruyter, Berlin, 1983.
- [164] EPSTEIN, I. J.: *On systems of linear differential equations with periodic coefficients: Algebraic and topological aspects*. J. Diff. Eqn., 1:206, 1965.
- [165] HALE, J.: *Ordinary differential equations*. Krieger Publishing Comp., Malabar, FL, 1980.
- [166] SHI, J., C. WANG, V. SURENDRANATH, K. KANG und J. T. GLEESON: *Material characterization for electroconvection*. Liq. Cryst., 29:877, 2002.
- [167] STANNARIUS, R.: *Time-reversal of parametrical driving and the stability of the parametrically excited pendulum*. Am. J. Phys., 77:164, 2009.
- [168] MÜLLER, H. W.: *Periodic Triangular Patterns in the Faraday Experiment*. Phys. Rev. Lett., 71:3287, 1993.
- [169] EDWARDS, W. S. und S. FAUVE: *Parametrically excited quasicrystalline surface waves*. Phys. Rev. E, 47:R788, 1993.
- [170] KUDROLLI, A., B. PIER und J. P. GOLLUB: *Superlattice patterns in surface waves*. Physica D, 123:99, 1998.
- [171] VOLMAR, U. E. und H. W. MÜLLER: *Quasiperiodic patterns in Rayleigh-Benard convection under gravity modulation*. Phys. Rev. E, 56:5423, 1997.
- [172] BOULAL, T., S. ANISS, M. BELHAQ und R. RAND: *Effect of quasiperiodic gravitational modulation on the stability of a heated fluid layer*. Phys. Rev. E, 76:056320, 2007.

- [173] DONNELLY, R. J.: *Experiments on the stability of viscous flow between rotating cylinders, III. Enhancement of stability by modulation.* Proc. Roy. Soc. A, 281:130, 1964.
- [174] RILEY, N.: *The steady streaming induced by a vibrating cylinder.* J. Fluid Mech., 68:801, 1975.
- [175] TAMBA, M.-G., B. KOSATA, K. PELZ, S. DIELE, G. PELZL, Z. VAKHOVSKAYA AND, H. KRESSE und W. WEISSFLOG: *Mesogenic dimers composed of a calamitic and a bent-core mesogenic unit.* Soft matter, 2:60, 2006.
- [176] STANNARIUS, R., A. EREMIN, M.-G. TAMBA, G. PELZL und W. WEISSFLOG: *Field-induced texture transitions in a bent-core nematic liquid crystal.* Phys. Rev. E, 76:061704, 2007.
- [177] ZHOU, S.-Q., N. ÉBER, Á. BUKA, W. PESCH und G. AHLERS: *Onset of electroconvection of homeotropically aligned nematic liquid crystals.* Phys. Rev. E, 74:046211, 2006.
- [178] HERTRICH, A., W. DECKER, W. PESCH und L. KRAMER: *The electrohydrodynamic instability in homeotropic nematic layers.* J. Phys. II France, 2:1915, 1992.
- [179] KUMAR, P., U. S. HIREMATH, C. V. YELAMAGGAD, A. G. ROSSBERG und K. S. KRISHNAMURTHY: *Drifting periodic structures in a degenerate-planar bent-rod nematic liquid crystal beyond the dielectric inversion frequency.* J. Phys. Chem. B, 112:9270, 2008.
- [180] WANG, C.-D. und G.-C. YANG: *The width effect of electrode in the Fredericksz transition of nematic liquid crystals.* Chin. Phys., 6:422, 1997.
- [181] MULLIN, T., S. J. TAVENER und G. I. BLAKE: *Electrohydrodynamic convection in small aspect ratio devices.* J. Non-Newt. Fluid Mech., 119:61, 2004.
- [182] ÉBER, N., J. HEUER, G. TÁTRAI und Á. BUKA: *Director distortions and singularities in inhomogeneous fields.* Unveröffentlicht.

Für die hier verwendeten Abbildungen aus Buka et al. [17], Kochowska et al. [18] und Wiant et al. [19] gelten folgende Bestimmungen englischen Rechts: „Readers may view, browse, and/or download material for temporary copying purposes only, provided these uses are for noncommercial personal purposes. Except as provided by law, this material may not be further reproduced, distributed, transmitted, modified, adapted, performed, displayed, published, or sold in whole or part, without prior written permission from the American Physical Society.“

Eigene Publikationen

- [1] JOHN, T., J. HEUER und R. STANNARIUS: *Influence of excitation wave forms and frequencies on the fundamental time symmetry of the system dynamics, studied in nematic electroconvection*. Physical Review E, 71:056307, 2005.
- [2] STANNARIUS, R., J. HEUER und T. JOHN: *Fundamental relations between the symmetry of excitation and the existence of spatiotemporal subharmonic structures in a pattern-forming dynamic system*. Physical Review E, 72:066218, 2005.
- [3] BOHLEY, C., J. HEUER und R. STANNARIUS: *Optics of 2-D periodic anisotropic patterns investigated with the FDTD method*. Journal of the Optical Society of America A, 22:2818, 2005.
- [4] HEUER, J., T. JOHN und R. STANNARIUS: *Reentrant EHC patterns under superimposed square wave excitation*. Molecular Crystals and Liquid Crystals, 449:11, 2006.
- [5] TAMBA, M.-G., W. WEISSFLOG, A. EREMIN, J. HEUER und R. STANNARIUS: *Electro-optic characterization of a nematic phase formed by bent core mesogens*. European Physical Journal E, 22:85, 2007.
- [6] STANNARIUS, R. und J. HEUER: *Electroconvection in nematics above the splay Fréedericksz transition*. European Physical Journal E, 24:27, 2007.
- [7] HEUER, J., R. STANNARIUS, M.-G. TAMBA und W. WEISSFLOG: *Longitudinal and normal electroconvection rolls in a nematic liquid crystal with positive dielectric and negative conductivity anisotropy*. Physical Review E, 77:056206, 2008.
- [8] HEUER, J., T. JOHN und R. STANNARIUS: *Time reversal of the excitation wave form in a dissipative pattern-forming system*. Physical Review E, 78:036218, 2008.

Lebenslauf

Jana Heuer

- 1998 Allgemeine Hochschulreife,
Gerhart-Hauptmann-Gymnasium Wernigerode
- 1999 - 2004 Studium der Physik, Universität Leipzig
- 2004 - 2005 Diplomarbeit mit dem Thema: „Einfluss der Symmetrie der
Anregungsform auf die fundamentale Systemdynamik in der nema-
tischen Elektrokonvektion“,
Betreuer:
Prof. Dr. Stannarius (Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg),
Prof. Dr. Käs (Universität Leipzig)
- 2005 - 2009 Promotion zu elektro-optischen Phänomenen in nematischen
Flüssigkristallen,
Betreuer: Prof. Dr. Stannarius,
Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

Danksagung

Vielen Dank an:

- Ralf Stannarius für die wohlwollende Betreuung, die fruchtbaren Diskussionen und Ideen, die ausführliche Einführung in das Fachgebiet, den immensen Quell an Fach- und Allgemeinwissen, die Möglichkeit, eine eigene Arbeitsweise zu entwickeln und für die Motivationsschübe in sauren Zeiten
- Christian Bohley für die Rettung bei Problemen mit Simulationen, für das Herausführen aus Sackgassen, für das Korrekturlesen und für die Kongenialität in vielen Dingen
- Ágnes Buka und Nándor Éber für die sehr herzliche Aufnahme in Budapest und der Arbeitsgruppe am SZFKI, für wertvolle Diskussionen und die Lösung so manchen gordischen Knotens
- Maria-Gabriela Tamba und Wolfgang Weißflog für die Synthese und Bereitstellung der immer wieder herausfordernden Substanz GTP 240 und für die freundschaftliche Kooperation
- Thomas John für die Bereitstellung der Programme für die lineare Stabilitätsanalyse, die Unterstützung in technischen Fragen sowie für die Fähigkeit, jedes Problem lösen zu können
- Jürgen Weißenborn, Olaf Born, die Werkstatt und Ines-Ute Grodrian für die kreative und zuverlässige Lösung von technischen Problemen
- Birgit Leßner und Erika Matthies für die Unterstützung im Kampf mit der Bürokratie
- Frank M., Alexandru, Alexey und allen anderen Kollegen in der ANP für eine Arbeitsgruppe, die einen nicht nur wissenschaftlich, sondern auch persönlich trägt
- Werner Pesch für wertvolle Diskussionen
- mein zweites Rückgrat

Diese Arbeit wurde unterstützt durch das Promotionsstipendium des Landes Sachsen-Anhalt.