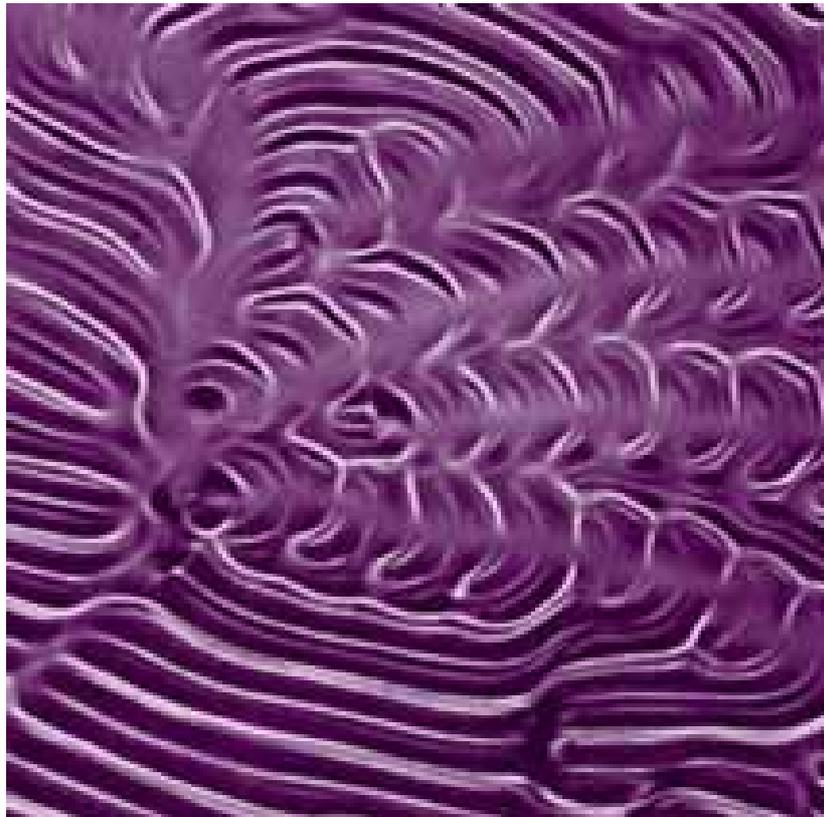


Thomas M. Bock

**Experimentelle Untersuchungen zum
Kodimension-2-Verhalten
von Instabilitäten der Elektrokonvektion in
einem nematischen Flüssigkristall**



Cuvillier Verlag Göttingen

Experimentelle Untersuchungen zum
Kodimension-2-Verhalten
von Instabilitäten der Elektrokonvektion in
einem nematischen Flüssigkristall

Von der Universität Bayreuth
zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
genehmigte Abhandlung

von

Thomas M. Bock

aus Neindorf-Beckendorf

1. Gutachter:	Prof. Dr. I. Rehberg
2. Gutachter:	apl. Prof. Dr. L. Kador
Tag der Einreichung:	28. 05. 2003
Tag des Kolloquiums:	14. 11. 2003

Bibliografische Information Der Deutschen Bibliothek

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.ddb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2003
Zugl.: Bayreuth, Univ., Diss., 2003
ISBN 3-89873-932-5

⊕ CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2003
Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen
Telefon: 0551-54724-0
Telefax: 0551-54724-21
www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2003
Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-89873-932-5

Zusammenfassung

Gegenstand dieser Arbeit ist die experimentelle Untersuchung des Wechselspiels zwischen Elektrokonvektion und Fréedericksz-Zustand in einem nematischen Flüssigkristall mit positiver dielektrischer Anisotropie.

Mit der Elektrokonvektion als dissipativem und dem Fréedericksz-Effekt als konservativem Phänomen werden eine räumlich periodische und eine homogene Instabilität in einem System zeitlich und räumlich parallel betrachtet. Dabei lassen sich in Abhängigkeit von der angelegten treibenden Spannung und deren Frequenz reine Elektrokonvektion, eine homogene Auslenkung der Moleküle des Flüssigkristalls im Fréedericksz-Zustand und die Superposition aus beiden beobachten.

Die optische Wiedergabe der unterschiedlichen Phänomene innerhalb des Systems erfolgt mittels eines modifizierten Schattenverfahrens. Durch den Einsatz einer Doppelbrechungsoptik gelingt es dabei, in einem Experiment die periodischen Elektrokonvektionsmuster in ihrem Verhalten zu analysieren und parallel dazu den Fréedericksz-Zustand zu detektieren.

Bei der Untersuchung des durch die treibende Spannung und deren Frequenz aufgespannten Phasenraumes für dieses System findet sich eine Frequenz, unterhalb dieser sich als primäre Instabilität des Grundzustandes mit steigender Spannung nur Elektrokonvektion beobachten lässt. Oberhalb dieser Frequenz lässt sich nur der Fréedericksz-Zustand nachweisen. Beide Instabilitäten formen an dieser Stelle einen so genannten Kodimension-2-Punkt.

Oberhalb des Konvektionseinsatzes, der mit der Ausbildung symmetrischer Rollenmuster einhergeht, zeigen sich in einer sekundären Instabilität asymmetrische Strukturen. Diese stellen durch ihre gebrochene Parität einen neuen Mustertyp in dieser Klasse von Experimenten dar. Die Paritätsbrechung lässt sich modellhaft durch die additive Überlagerung einer homogenen Auslenkung der Flüssigkristallmoleküle durch den Fréedericksz-Effekt und einer periodischen Modulation durch die Elektrokonvektion beschreiben.

Durch numerische Simulationen zur Optik des Schattenverfahrens auf der Basis dieses theoretischen Modells wird ein Ordnungsparameter für den Übergang zwischen der symmetrischen und asymmetrischen Konvektion abgeleitet. Dieser, auf das Experiment übertragen, ermöglicht eine genaue Vermessung des Einsatzes der paritätsbrechenden Instabilität.

Mit weiter steigender Spannung im Frequenzbereich der Elektrokonvektion wird diese instabil gegen einen unter Umständen von Domänenwänden modulierten Fréedericksz-Zustand. Durch die Analyse eines geeigneten Ordnungsparameters wird diese tertiäre Instabilität sowohl für steigende als auch für sinkende Spannungen in das experimentelle Phasendiagramm eingeordnet.

Neben diesen Instabilitäten, deren Verhalten in der näheren Umgebung des Kodimension-2-Punktes in einem räumlich begrenzten sowie in einem quasi unendlichen System untersucht wird, findet man innerhalb des Konvektionsbereiches bimodale und chaotische Strukturen sowie Schrägrollenmuster.

Das Ergebnis dieser experimentellen Untersuchungen ist ein Phasendiagramm für die unmittelbare Umgebung des Kodimension-2-Punktes mit insgesamt fünf Instabilitätslinien. Dieses lässt sich mit dem Ergebnis einer theoretischen Analyse des Instabilitätsverhaltens dieses Systems auf der Basis linearer und nichtlinearer Rechnungen vergleichen. Da in dieser Simulation notwendige, aber unbekannt Parameterwerte durch modellhafte Annahmen ersetzt werden müssen, gelingt hier in erster Linie eine qualitative Annäherung zwischen Experiment und Theorie.

Im technischen Teil dieser Arbeit liegt das Hauptaugenmerk auf der Präparation des experimentellen Systems und hier besonders auf der Orientierung und Verankerung des Flüssigkristalls an den relevanten Systemgrenzen. Diese ist von essenzieller Bedeutung für die Modellhaftigkeit, die Stabilität und die Reproduzierbarkeit der Experimente. Es werden eine Reihe von Analysen zu in diesem Bereich typischen Materialkombinationen und Techniken vorgestellt.

Für euch, Kinder der Wissenschaft und der Weisheit, haben wir dies geschrieben. Erforschet das Buch und suchet euch unsere Ansicht zusammen, die wir verstreut und an mehreren Orten dargetan haben; was euch an einem Ort verborgen bleibt, das haben wir an einem anderen offengelegt, damit es faßbar werde für eure Weisheit.

Heinrich Cornelius Agrippa von Nettenheim,
De occulta philosophia, 3, 65 [1510]

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	9
2	Experimenteller Aufbau und Techniken	23
2.1	Versuchsaufbau	23
2.2	Elektrokonvektionssystem	26
2.2.1	Aufbau des Elektrokonvektionssystems	26
2.2.2	„Bauanleitung“	27
2.2.3	Elektrodenstrukturierung	31
2.2.4	Zelldickenbestimmung	32
2.3	Ausrichtung und Verankerung von Flüssigkristallen an Oberflächen	35
2.3.1	Analyse der Oberflächenstruktur	36
2.3.1.1	Atom-Kraft- und Raster-Elektronen-Mikroskopie	37
2.3.1.2	Röntgen-Reflektometrie	41
2.3.2	Visualisierung der Direktororientierung	43
2.3.2.1	Flüssigkristall in Bewegung	44
2.3.2.2	Triviale und nichttriviale Direktorprofile	46
2.4	Materialparameter	52
2.4.1	Leitfähigkeit und Permittivitätszahl	52
2.4.2	Elastizität und thermische Eigenschaften	58
2.5	Experimentsteuerung	64
2.5.1	Messtechnik	64
2.5.2	Die computergesteuerte Messung	66
2.5.3	Datenanalyse	68
2.6	Visualisierung	70
2.6.1	Optischer Aufbau	70
2.6.2	Schattenverfahren für Elektrokonvektion	72
2.6.2.1	Analytische Beschreibung	73
2.6.2.2	Numerische Simulationen	77
2.6.3	Doppelbrechungsverfahren	93
3	Elektrokonvektion bei schwach pos. dielektr. Anisotropie	97
3.1	Das experimentelle Phasendiagramm	98
3.1.1	Das System und seine Phänomenologie	98

3.1.2	Die Primärinstabilitäten des Grundzustandes	101
3.1.2.1	Qualitative Beobachtung	101
3.1.2.2	Elektrokonvektions- und Fréedericksz-Einsatz . .	103
3.1.2.3	Wellenzahlbestimmung am Konvektionseinsatz .	107
3.1.2.4	Datenanpassung an das Ein-Moden-Modell	111
3.1.3	Die paritätsbrechende Sekundärinstabilität der Elektrokonvektion	115
3.1.3.1	Qualitative Beobachtung	115
3.1.3.2	Ordnungsparameter	120
3.1.3.3	Paritätsbrechung im Phasendiagramm	124
3.1.4	Die tertiäre Instabilität der Elektrokonvektion	126
3.1.4.1	Qualitative Beobachtung	126
3.1.4.2	Ordnungsparameter	130
3.1.4.3	Übergänge zwischen Konvektion und Fréedericksz-Zustand im Phasendiagramm .	133
3.1.5	Das Phasendiagramm des räumlich begrenzten Systems . .	136
3.1.6	Das Phasendiagramm des unendlichen Systems	138
3.1.7	Weitere Phänomene	144
3.2	Ein Vergleich zwischen Theorie und Experiment	151
4	Zusammenfassung und Ausblick	155
	Formelzeichen und Symbole	159
A	Materialparameter und Bezugsquellen	161
B	Numerik des Schattenverfahrens	167
B.1	Differentialberechnung mit MAPLE V	167
B.2	Lichtwegsberechnung – Quelltext	170
C	Lokale Wellenzahlbestimmung	177
D	χ^2-Analyse zur Datenanpassung an das Ein-Moden-Modell	181
	Abbildungsverzeichnis	183
	Literaturverzeichnis	187

Kapitel 1

Einführung

The waves of the sea, the little ripples on the shore, the sweeping curve of the sandy bay between the headlands, the outline of the hills, the shape of the clouds, all these are so many riddles of form, so many problems of morphology, and all of them the physicist can more or less easily read and adequately solve.

D'Arcy Wentworth Thompson
On Growth and Form [1917]

Von Mustern, Milchkaffee und Modellen

Die Natur ist nicht uniform! Sie hat sich schon kurz nach dem Urknall gegen das Prinzip der räumlichen und zeitlichen Homogenität ihrer Phänomene entschieden. Angefangen bei den Bausteinen der Materie bis hin zu den Galaxien zeigt sich ihr Bestreben, auf mehr oder weniger großen Skalen mehr oder weniger komplexe Strukturen auszubilden. Letztendlich ist die Materie selbst nicht homogen verteilt, sondern sie konzentriert sich in einigen wenigen Orten im Universum, und die Erde ist einer von diesen.

Auch auf der Erde finden sich immer wieder Vorgänge, die zu einer Ausbildung von raum-zeitlichen Strukturen führen. Abbildung 1.1 zeigt einige Beispiele, die den Wissenschaftlern im Sinne des obigen Zitates immer wieder neue Rätsel aufgeben, obwohl sie auf den ersten Blick trivial erscheinen. In der Wüste formieren sich, wie in Abbildung 1.1 (a) gezeigt, mit Dünen und so genannten Sand-Rippeln periodische Strukturen auf unterschiedlichen Längen- und Zeitskalen (Bagnold (1941)). Fließende Lava erstarrt an der Oberfläche und bildet dabei, wie in Abbildung 1.1 (b) zu sehen, ein wellenförmiges Muster. Luftbewegungen in der Atmosphäre führen in entsprechender Höhe zu periodischen Wolkenstraßen, wie sie in Abbildung 1.1 (c) abgebildet sind.

Selbst in seiner unmittelbaren Alltagserfahrung findet der Mensch struktur-bildende Phänomene, beispielsweise in einer Menschenmenge, die sich selbst in

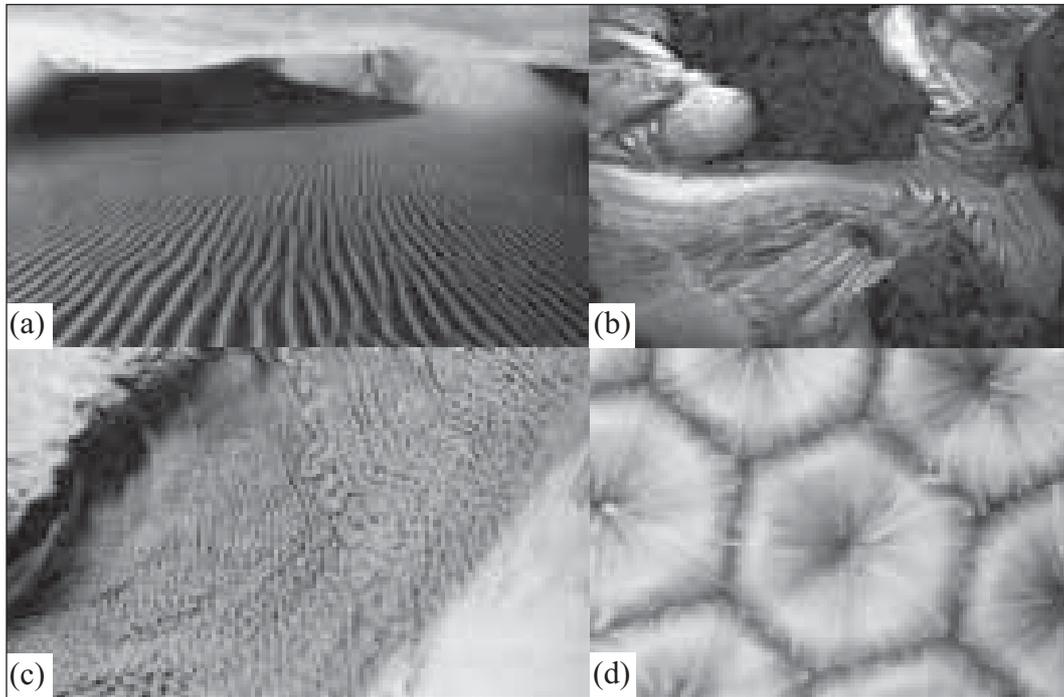


Abbildung 1.1: Strukturbildung in der Natur: (a) Sanddünen und Rippel-Strukturen; (b) Oberflächenwellen auf erstarrender Lava; (c) periodische Wolkenformationen; (d) *Rayleigh-Bénard*-Konvektion. Die Aufnahmen (a), (c) und (d) finden sich in Bell (1999), (b) im GEO-Magazin Heft 1 (1996).

einem rhythmischen Klatschen synchronisiert (Neda *et al.* (2000)), oder aber am Frühstückstisch. Auf diesem können diverse Flüssigkeiten Tropfen bilden, die unter Ausbildung bizarrer Muster trocken, oder sich Granulate nach Art eines Fluids bewegen (Nagel (1999)). Hat der Mensch dabei eine Tasse heißen Kaffees vor sich, in die er vorsichtig kalte Milch schüttet, so kann er unter Umständen ein Phänomen beobachten, das Strukturen, ähnlich den in Abbildung 1.1 (d) gezeigten, hervorbringt: thermisch getriebene Konvektion.

All diese Phänomene sind trotz ihres einfachen Erscheinungsbildes in ihrer jeweiligen Gesamtheit nur schwer beschreibbar. Möchte man ihre Prinzipien, ihre Dynamik und die Strukturbildung untersuchen, so ist das in der Regel nur unter Zuhilfenahme eines Modells möglich. In diesem wird das System von allen störenden Faktoren befreit und auf wesentliche Parameter reduziert, die es dennoch hinreichend gut beschreiben. Idealerweise sind es nur zwei: der so genannte Kontrollparameter, der den Antrieb des Systems widerspiegelt, und der so genannte Ordnungsparameter, der die Größe quantifiziert, die in Abhängigkeit des Kontrollparameters beobachtet wird.

Bei der in Abbildung 1.1 (d) gezeigten *Rayleigh-Bénard*-Konvektion (Bénard (1901), Rayleigh (1916)) erfolgt diese Modellbildung durch die Betrachtung eines zwischen zwei parallelen, senkrecht zur Schwerkraft orientierten Platten eingeschlossenen, isotropen Fluids. Zwischen den Platten herrscht ein Temperaturunterschied ΔT , wobei die untere Platte die Wärmere ist. Aus diesem Temperaturunterschied und der dritten Potenz der Schichtdicke d , die dem Abstand der Platten entspricht, wird unter Betrachtung der das System stabilisierenden Kräfte, d. h. der inneren Reibung des Fluides sowie der Wärmediffusion, und der destabilisierenden Auftriebskraft ein Kontrollparameter, die so genannte *Rayleigh-Zahl*, abgeleitet.

Bis zu einer kritischen Temperaturdifferenz bzw. Rayleigh-Zahl erfolgt der Wärmetransport im System nur durch Wärmeleitung. Mit dem Überschreiten des kritischen Wertes der Rayleigh-Zahl gewinnt der Auftrieb gegenüber der inneren Reibung. Das System wird instabil. Warmes, leichteres Fluid steigt nach oben und verdrängt dabei das kältere Fluid an der oberen Platte, das keine andere Möglichkeit hat, als nach unten auszuweichen. Der entsprechende Ordnungsparameter ist z. B. die Geschwindigkeit der sich ausbildenden Strömung. Es entstehen periodische Konvektionsrollen einer bestimmten Wellenlänge, die, neben den in Abbildung 1.1 (d) gezeigten hexagonalen Strukturen, in Abhängigkeit von den Randbedingungen und des Kontrollparameters Rayleigh-Zahl eine große Vielfalt von Mustern und eine reichhaltige raum-zeitliche Dynamik hervorbringen.¹

Anhand dieses Beispiels, das das Ordnungs- und Kontrollparameter-Konzept veranschaulicht, wird auch die nichtlineare Dynamik dieser Strukturbildungsphänomene deutlich. Unterhalb eines bestimmten Schwellwertes des Kontrollparameters ist der unstrukturierte Grundzustand stabil, und der Ordnungsparameter hat den Wert Null. Beim Erreichen des Schwellwertes reicht eine kleine Störung aus, um das System zu destabilisieren und den Ordnungsparameter daraufhin einen endlichen, von Null verschiedenen Wert annehmen zu lassen. Oft erfolgt dies unter Ausbildung einer so genannten kritischen Wellenzahl im System. Infolge dieser Instabilität geht das System in einen neuen Zustand über.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde mit der Elektrokonvektion in einem Flüssigkristall ein anderes Modellsystem der nichtlinearen Dynamik und Strukturbildung unter bestimmten neuen Aspekten betrachtet, das in seinen Grundzügen inzwischen ebenso klassischen Charakter trägt wie die Rayleigh-Bénard-Konvektion.

¹Eine sehr ausführliche Darstellung zur Problematik der Rayleigh-Bénard-Konvektion sowohl im Experiment als auch in der Theorie inkl. einer großen Zahl weiterer Referenzen findet sich in der Arbeit von Cross & Hohenberg (1993).

Flüssigkristalle

Ein Flüssigkristall vereint aufgrund seiner molekularen Eigenschaften zwei physikalische „Welten“ miteinander: Zum einen verhält er sich hydrodynamisch wie ein Fluid, zum anderen zeigt er richtungsabhängige Eigenschaften, wie sie ein Festkörper aufweist.

Mit *nematisch*, *smektisch* und *cholesterisch* unterscheidet man im Wesentlichen drei Arten von Flüssigkristallen aufgrund ihrer Ordnungseigenschaften. Die in den Experimenten dieser Arbeit verwendeten nematischen Flüssigkristalle, die den kleinstmöglichen Ordnungsgrad in dieser Einteilung besitzen, zeigen keine ausgezeichnete Ordnung bezüglich der Schwerpunkte ihrer Moleküle. Deren Längsachsen hingegen weisen, mit gewissen Schwankungen zwar, in eine wohl definierte, einheitliche Richtung. Diese Orientierung wird mit dem Konzept des so genannten Direktors (\hat{n}) beschrieben. Smektische Flüssigkristalle weisen zusätzlich eine schichtartige Anordnung der Schwerpunkte der Moleküle auf, dagegen zeigen cholesterische Flüssigkristalle eine helixartige Struktur. Eine ausführliche Darstellung der Physik von Flüssigkristallen findet sich beispielsweise in de Gennes & Prost (1993), Blinov & Chigrinov (1993) und Chandrasekhar (1994).

Im nematischen Flüssigkristall, der im Sinn der Optik als einachsig und doppelbrechend angesehen wird (s. a. Bergmann & Schaefer (1993)), werden zwei Richtungen unterschieden: die ordentliche, zur Molekülachse senkrecht (\perp) und die außerordentliche, parallel (\parallel) zur Molekülachse liegende. In diesen Richtungen weist der Brechungsindex n unterschiedliche Werte auf, deren Differenz $n_a = n_{\parallel} - n_{\perp}$ als optische Anisotropie bezeichnet wird. Parallel manifestieren sich auch die Anisotropien seiner Dielektrizitätskonstante $\epsilon_a = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$ und seiner elektrischen Leitfähigkeit $\sigma_a = \sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}$. Die elastischen Eigenschaften des nematischen Flüssigkristalls werden nach ihrem Charakter klassifiziert und in einer tensoriellen Beschreibung mit entsprechenden Konstanten k_{ii} versehen. Man unterscheidet dabei Verformungen durch Querverbiegung (engl. *splay*) - k_{11} , Verdrillung (*twist*) - k_{22} und Längsbiegung (*bend*) - k_{33} . Die viskosen Eigenschaften werden über sechs (davon fünf unabhängig) entsprechende Koeffizienten α_i beschrieben.

Das Hauptanwendungsgebiet von Flüssigkristallen besteht in ihrem Einsatz in Anzeige und Computerbildschirmen. Dabei wird unter Ausnutzung der optischen Anisotropie und der Möglichkeit, die Verdrillung oder die Querverbiegung von außen elektrisch zu schalten, die Transmission für polarisiertes Licht gesteuert. Örtlich aufgelöst wird so ein Kontrast oder auch über entsprechende Filter eine Farbwiedergabe erzeugt. Auch die Lichtstreuung durch turbulente Zustände, wie sie beim Anlegen hoher Spannungen auftritt, wird für diese Zwecke verwendet (Heilmeyer *et al.* (1968)). Eine ausführliche Darstellung über diese Anwendungen findet sich in Demus (1998).

Elektrokonvektion

Das Phänomen der Elektrokonvektion in einem Flüssigkristall wurde erstmals von Williams (1963) experimentell beobachtet und von Carr (1969) und Helfrich (1969) theoretisch beschrieben. Den beiden Letztgenannten verdankt der Mechanismus seinen Namen.

Bringt man einen nematischen Flüssigkristall in einen Plattenkondensator und orientiert ihn dabei planar, d. h. mit dem Direktor parallel zu den Platten in der so definierten x -Richtung, so übt das elektrische Feld in z -Richtung zunächst bei einem $\epsilon_a < 0$ einen stabilisierenden Einfluss aus. Da in diesem Fall ϵ_{\perp} den größeren Betrag hat, ist es für die Moleküle günstiger, sich senkrecht zum Feld zu orientieren, da dadurch die Freie Energiedichte des Systems minimiert wird. Eine weitere Stabilisierung erfolgt durch die elastischen Rückstellkräfte im Flüssigkristall.

Befinden sich Ladungsträger im System, die entweder durch Verunreinigungen oder gezielte Dotierung erzeugt werden, so „sehen“ diese bei idealer planarer Ausrichtung nur die Leitfähigkeit σ_{\perp} senkrecht zu den Molekülen. Die fließenden Ladungsträger üben zwar ein Moment auf die Flüssigkristallmoleküle aus, das sich aber in der Summe aufhebt.

Bei einer positiven Anisotropie der Leitfähigkeit reicht eine kleine Störung der perfekten Orientierung, beispielsweise durch thermische Fluktuationen aus, um einen Strom entlang der Molekülachse hervorzurufen. Dies führt, wie in Abbildung 1.2 gezeigt, zur Ausbildung von periodisch im System verteilten Raumladungen, die durch das elektrische Feld beschleunigt werden. Durch den damit verbundenen Materialtransport entsteht eine hydrodynamische Strömung im Flüssigkristall, die auf den Direktor zurückwirkt und seine anfängliche Auslenkung weiter verstärkt. Dies führt zu einer weiteren Erhöhung des Stromes parallel zu den Molekülen. So entsteht eine positive, den Effekt verstärkende Rückkopplung. Ab einem bestimmten Schwellwert der angelegten Spannung siegt dessen destabilisierende Wirkung über die stabilisierenden Kräfte. Es kommt zu einer konvektiven Strömung im Flüssigkristall. Dabei bilden sich entlang der x -Richtung periodische Konvektionsrollen aus, wobei sich eine Wellenlänge λ bzw. Wellenzahl q definieren lässt. Die Strömung innerhalb der Rollen ist in Abbildung 1.2 durch die großen Pfeile symbolisiert.

Beim Anlegen einer Gleichspannung würde es zu einer Ladungstrennung kommen und die Konvektion würde aussterben. Man legt aus diesem Grunde eine Wechselspannung der Form $U(t) = \sqrt{2}U_0 \cos(2\pi ft)$ an, über die sich auch der Kontrollparameter des Systems

$$\varepsilon = \frac{U_0^2 - U_c^2}{U_c^2} \quad (1.1)$$

definiert, wobei U_c die Schwellspannung des Konvektionseinsatzes ist. Dieses ε beschreibt so den Abstand zur primären Instabilität des Systems.

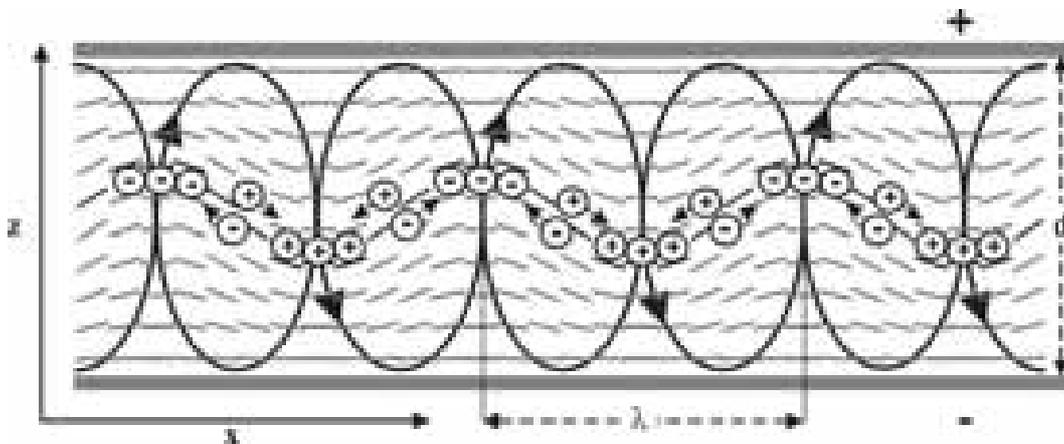


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung des *Carr-Helfrich*-Mechanismus der Elektrokonvektion mit Ladungsträgerbewegung und Strömung in einem planar orientierten, nematischen Flüssigkristall. z und x sind die ausgezeichneten Raumrichtungen des zweidimensionalen Effektes. Die grauen Stäbchen symbolisieren den Direktor \hat{n} an der jeweiligen Position, d ist der Abstand der Kondensatorplatten und λ ist die sich einstellende Wellenlänge der Konvektion. Die Symbole $+$ und $-$ an den Kondensatorplatten kennzeichnen deren aktuell dargestellten Ladungszustand.

Durch die Wechselfspannung bedingt, tauschen zwar die Raumladungen innerhalb einer Periode ihre Plätze, die Strömungsrichtung selbst ist davon aber unbeeinflusst. Die Frequenz f der treibenden Spannung ist ein zusätzlicher, externer Kontrollparameter.

Der Ordnungsparameter dieses Systems ist die durch die Strömung hervorgerufene Auslenkung des Direktors aus seiner Ruhelage, die über die Wirkung der optischen Anisotropie in einem *Schattenverfahren* messbar ist (Rasnat *et al.* (1989), Joets & Ribotta (1994)). Darüber hinaus werden durch dieses Verfahren die Orte im System sichtbar gemacht, an denen Auf- und Abströmung auftritt. Auf das Schattenverfahren wird in dieser Arbeit in Kapitel 2.6.2 gesondert eingegangen.

Die Elektrokonvektion wird seit nunmehr über 20 Jahren intensiv hinsichtlich der in ihr auftretenden Strukturbildung und deren Dynamik untersucht. In Abhängigkeit von den dabei betrachteten Substanzen und deren Materialeigenschaften sowie den Randbedingungen wurden eine Reihe von Strukturen und Phänomenen beschrieben, von denen einige exemplarisch in Abbildung 1.3 als Schattenbildaufnahmen dargestellt sind.

Die in Abbildung 1.3 (a) gezeigten, so genannten Normalrollen werden auch

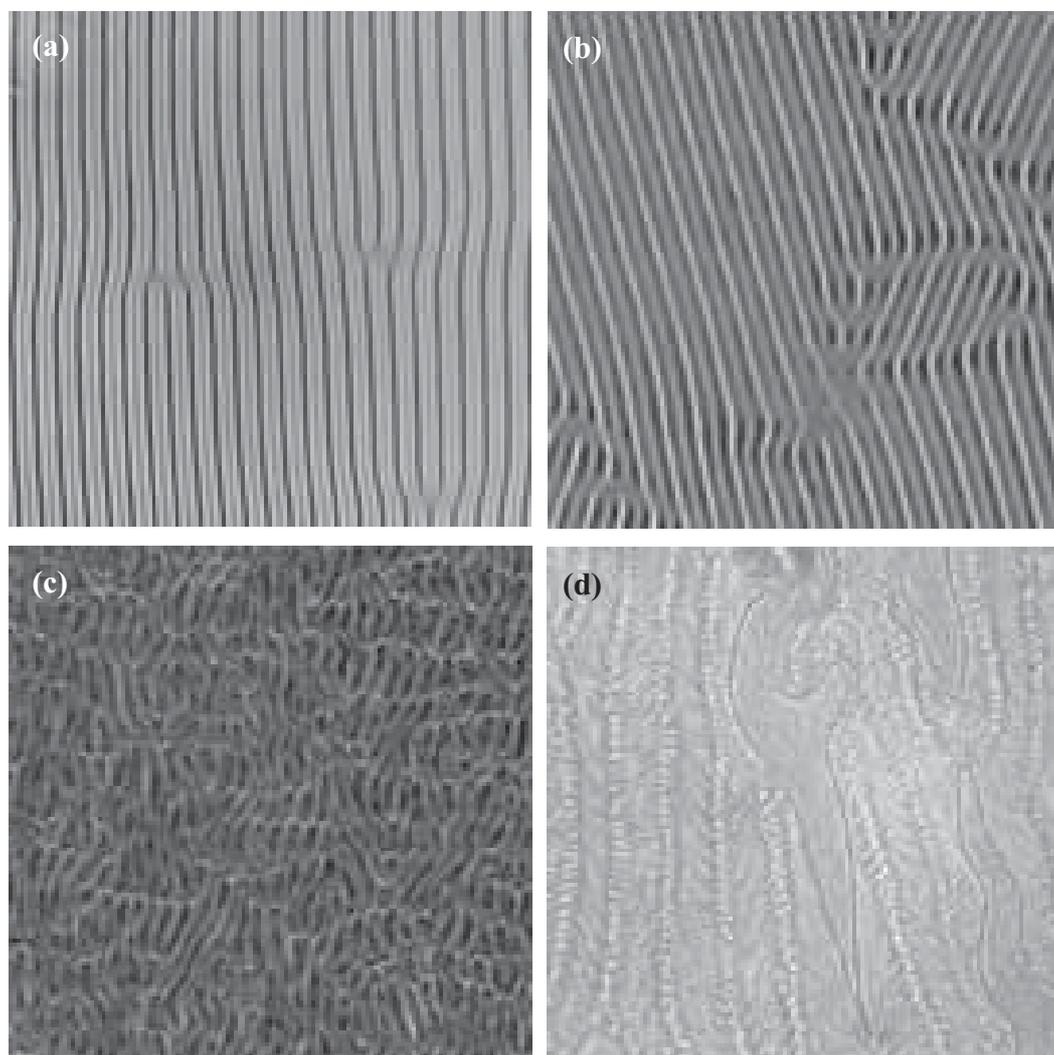


Abbildung 1.3: Elektrokonvektionsmuster: (a) Normalrollen mit Defekten; (b) Schrägrollen; (c) chaotische Strukturen; (d) dielektrische Rollen mit Texturdefekten.

nach ihrem Entdecker als *Williams*-Domänen bezeichnet. Diese stehen parallel zur y -Richtung des Systems. Darüber hinaus finden sich die in Abbildung 1.3 (b) dargestellten Schrägrollen (Ribotta *et al.* (1986), Zimmermann & Kramer (1985)), die einen Winkel mit der y -Richtung einnehmen. Dabei treten Domänen beider Orientierungen auf, was diesen Strukturen den anschaulichen Namen „Zick-Zack“² verliehen hat. Treten nach dem Einsatz der Konvektion sowohl Normalrollen als auch Schrägrollen in einem System auf, so existiert eine bestimmte Frequenz, oberhalb der nur Normalrollen beobachtet werden. An dieser

Stelle besitzt ein solches System einen so genannten *Lifshitz*-Punkt.

In den Abbildungen 1.3 (a) und (b) sind innerhalb des Rollenmusters Defekte zu erkennen, in denen sich zwei Rollenpaare zu einem vereinigen. Diese Defekte vermitteln eine Veränderung der Wellenlänge im System und wurden hinsichtlich ihrer Struktur und Dynamik eingehend untersucht (Rasenat *et al.* (1990), Toth *et al.* (2002)).

Legt man an das System eine genügend hohe Spannung an, so bilden sich raum-zeitlich chaotische Strukturen aus, wie sie in Abbildung 1.3 (c) dargestellt sind und beispielsweise von Rudroff & Rehberg (1997) untersucht wurden. Es werden auch stark turbulente Zustände beobachtet, die als *Dynamic-Scattering-Mode* bezeichnet werden (s. a. Kai *et al.* (1989)).

Oberhalb einer bestimmten so genannten *Cutoff*-Frequenz, die von der Relaxationszeit der Ladungsträger bestimmt wird, können diese dem elektrischen Feld nicht mehr folgen. Es kommt zur Ausbildung so genannter dielektrischer Rollen (Dubois-Violette *et al.* (1971), Schneider *et al.* (1992)), die Muster, wie in Abbildung 1.3 (d) dargestellt, erzeugen. Diese zeichnen sich durch eine geringere Wellenlänge und eine hohe Defektdichte aus.

Neben statischen Rollenmustern finden sich auch so genannte Wanderwellen. Das Konvektionsmuster bewegt sich dabei im System in $\pm x$ -Richtung, und es lassen sich ebenfalls Defekte und turbulente Strukturen beobachten (Rehberg *et al.* (1988), Steinberg *et al.* (1989), de la Torre Juarez & Rehberg (1990)).

Die in x -Richtung periodische Konvektion und die damit verbundene Direktormodulation kann in bestimmten Materialien wie MBBA von einer homogenen Twist-Mode überlagert sein, die eine sekundäre Instabilität des Konvektionszustandes erzeugt, bei dem so genannte abnormale Rollen auftreten. Diese wurden unter Verwendung einer speziellen Optik (Rudroff (1999)) eingehend untersucht (Huh *et al.* (1998), Rudroff *et al.* (1998), Rudroff *et al.* (1999)).

Die theoretische Beschreibung der Elektrokonvektion erfolgt im Rahmen der nichtlinearen Dynamik mittels einer linearen und nichtlinearen Stabilitätsanalyse auf der Basis ihrer hydrodynamischen, elektrodynamischen und kontinuumsmechanischen Grundgleichungen sowie der Materialparameter des Systems (Bodenschatz *et al.* (1988), Plaut & Pesch (1999)). Dabei werden neben der primären Instabilität des Grundzustandes, bei der im System Elektrokonvektion einsetzt, u. a. Schrägrollen, Wanderwellen und die Existenz der abnormalen Rollen erklärt.

Einen umfangreichen Überblick über experimentelle und theoretische Arbeiten bezüglich der Elektrokonvektion bietet sich in Rehberg *et al.* (1989) und Buka & Kramer (eds.) (1996) sowie in den Arbeiten von Kramer & Pesch (1995) und Kramer *et al.* (2001).

²Engl. „zig-zag“.

Fréedericksz-Übergang

Die periodische Elektrokonvektion, die nur durch ständige Energiezufuhr aufrechterhalten werden kann, ist ein Nichtgleichgewichtszustand. Im nematischen Flüssigkristall findet sich daneben mit dem so genannten *Fréedericksz*-Übergang ein homogener Gleichgewichtszustand, der einzig von der Existenz des elektrischen Feldes und der dielektrischen Anisotropie getragen wird. Dieser erstmals von Fréedericksz & Zolina (1933) beschriebene Effekt beruht wiederum auf der Minimierung der Freien Energie im System durch eine Ausrichtung der Moleküle im elektrischen Feld entsprechend ihrer dielektrischen Anisotropie.

Im Falle negativer dielektrischer Anisotropie wird dadurch, wie bereits erwähnt, der Grundzustand bei planarer Orientierung stabilisiert. Orientiert man einen solchen Nematen jedoch in der so genannten homöotropen Konfiguration, in der der Direktor senkrecht zu den Kondensatorplatten steht, so wird der Grundzustand destabilisiert. Wiederum werden bei einem Schwellwert der angelegten Spannung die bereits erwähnten elastischen Rückstellkräfte im Flüssigkristall überwunden, wodurch nun der Direktor homogen in x -Richtung ausgelenkt wird. Die Orientierung der Auslenkung ist dabei zufällig. Im Experiment lassen sich entsprechende Domänen unterscheiden, die durch Wände voneinander abgegrenzt sind (s. a. de Gennes & Prost (1993)). Da nematische Flüssigkristalle immer auch eine Anisotropie der magnetischen Suszeptibilität besitzen, lässt sich der Fréedericksz-Übergang auch durch das Anlegen eines Magnetfeldes erzeugen.

Auch diese Art von Systemen wurde intensiv untersucht. Dabei lag das Augenmerk unter anderem auf dem Einfluss der zusätzlichen Symmetriebrechung auf die Dynamik und Strukturbildung (Buka *et al.* (1989), Winkler *et al.* (1991), Richter (1995)).

Bei einem planar orientierten Flüssigkristall tritt die destabilisierende Wirkung des Fréedericksz-Effektes bei positiver dielektrischer Anisotropie ein. Abbildung 1.4 zeigt schematisch das resultierende Direktorprofil. Der Direktor ist hier homogen ausgelenkt. Zu den jeweiligen Rändern bei $z = 0$ und $z = d$ hin nimmt die Stärke der Auslenkung, bedingt durch die Verankerung seiner planaren Ausrichtung, stetig ab.

Ist die dielektrische Anisotropie so groß, dass der Fréedericksz-Übergang bei einer Spannung einsetzt, die – eine positive Anisotropie der Leitfähigkeit vorausgesetzt – unterhalb der Elektrokonvektionsschwelle liegt, so kann keine Elektrokonvektion im System existieren. Setzt man dagegen ein Material ein, das nur ein schwach positives ϵ_a aufweist, was dazu führt, dass Elektrokonvektion bereits bei einer Spannung unterhalb der Fréedericksz-Schwelle einsetzt, so können beide Instabilitäten parallel in einem System auftreten.

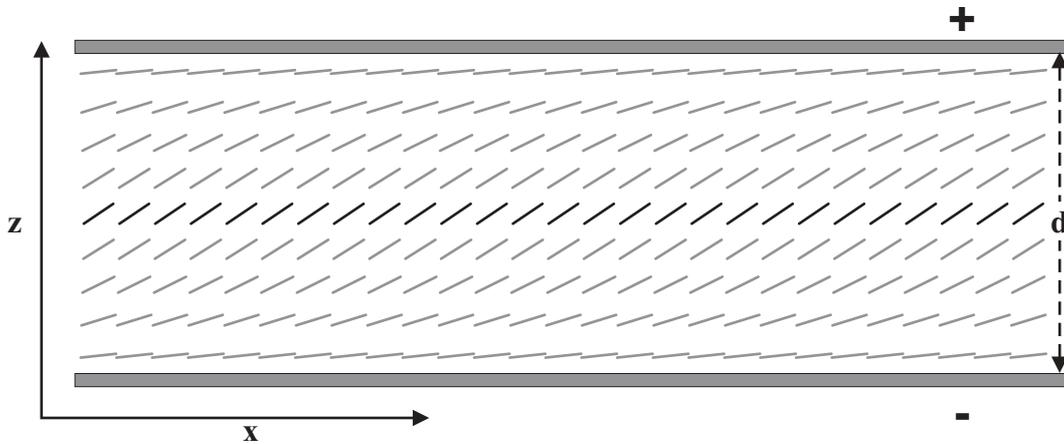


Abbildung 1.4: Schematische Darstellung des *Fréedericksz*-Überganges in einem planar orientierten, nematischen Flüssigkristall mit positivem ϵ_a . z und x sind die ausgezeichneten Raumrichtungen des zweidimensionalen Effektes. Die grauen Stäbchen symbolisieren den Direktor \hat{n} an der jeweiligen Position, und d ist der Abstand der Kondensatorplatten. Die Symbole $+$ und $-$ an den Kondensatorplatten kennzeichnen deren aktuell dargestellten Ladungszustand.

Experimentelle und theoretische Vorarbeiten

In der Literatur finden sich nur wenige Beispiele für Experimente, in denen Elektrokonvektion in einem planaren System bei positiver dielektrischer Anisotropie und positiver Anisotropie der Leitfähigkeit untersucht wurde. Das Hauptaugenmerk dieser Arbeiten liegt dabei auf dem Nachweis der Existenz von Elektrokonvektion und der Katalogisierung der beobachtbaren Phänomene in Abhängigkeit vom Betrag der positiven dielektrischen Anisotropie.

In der Arbeit von De Leu *et al.* (1972) wurde im Flüssigkristall DIBAB bei einem $\epsilon_a = 0.4$ durch starke Dotierung die Schwellwertspannung der primären, dielektrisch geprägten Instabilität des *Fréedericksz*-Überganges derart verändert, dass aus deren Verlauf in Abhängigkeit von der Frequenz auf die Existenz eines hydrodynamischen Zustandes im System geschlossen wurde. Dabei wurden transiente Ringstrukturen beobachtet, in denen mittels kleiner Partikel Bewegung nachgewiesen werden konnte.

Durch die gezielte Mischung von MBBA mit einem anderen Flüssigkristall, der ein $\epsilon_a = 20$ besaß, gelang es Barnik *et al.* (1975) das ϵ_a der Mischung zwischen -0.6 und 0.6 zu variieren und dabei erstmals zwischen $\epsilon_a = 0$ und 0.2 Elektrokonvektion im Sinne der Williams-Domänen nachzuweisen. Für größere ϵ_a war nur der *Fréedericksz*-Zustand zu beobachten.

In den Arbeiten von P. R. Kishore (Kishore & Murty (1983), Kishore (1985),

Kishore *et al.* (1993)) wurden die Phänomene oberhalb des Instabilitätseinsatzes in unterschiedlich dicken Systemen der Mischung MBBA-MBCA katalogisiert. Durch Veränderung des Mischungsverhältnisses wurden ϵ_a -Werte zwischen -0.4 und $+0.7$ präpariert. Dabei zeigten sich in den Experimenten, die bei einer festen Frequenz der treibenden Spannung durchgeführt wurden, fünf wesentliche Systemzustände oberhalb des Instabilitätseinsatzes:

- 1.) $\epsilon_a = 0.2$ – stabile Elektrokonvektionsmuster in Form von Normalrollen und bei Spannungserhöhung starke Turbulenz;
- 2.) $\epsilon_a < 0.4$ – stabile Elektrokonvektionsmuster in Form von Normalrollen und bei Spannungserhöhung schwache Turbulenz;
- 3.) $0.4 < \epsilon_a < 0.47$ – zeitlich und räumlich instabile Elektrokonvektionsmuster und bei Spannungserhöhung Restabilisierung von ringförmigen Domänen;
- 4.) $0.47 < \epsilon_a < 1.28$ gitterartige Strukturen und bei Spannungserhöhung wiederum Restabilisierung von ringförmigen Domänen.

Oberhalb von $\epsilon_a = 1.28$ wurden nur restabilisierte Zustände aus Fréedericksz-Domänenwänden gefunden. Darüber hinaus wurde die stabilisierende Wirkung eines Magnetfeldes (in Richtung der planaren Orientierung) auf den Konvektionszustand und eine damit verbundene Absenkung des Schwellwertes gezeigt (Kishore *et al.* (1993)).

All diese Arbeiten weisen auf das Auftreten vielfältiger Instabilitäten des Systems oberhalb der Konvektionsschwelle hin. Bisher wurden diese Phänomene, die möglicherweise aus der Überlagerung periodischer und homogener Zustände resultieren, nicht hinsichtlich ihres genauen Charakters und ihrer Quantitäten untersucht.

Aus anderen Experimenten bezüglich der bereits erwähnten abnormalen Konvektion und der thermischen Konvektion in einem Flüssigkristall unter Anwesenheit eines magnetischen Feldes in Richtung des Temperaturgradienten (Dressel *et al.* (2002)) weiß man, dass die gleichzeitige Überlagerung homogener und periodischer Zustände in einem System komplexe Phasendiagramme hervorbringt. Diese zeichnen sich insbesondere durch das Auftreten so genannter Kodimension-2-Punkte (c2-Punkte) aus, in denen sich Instabilitätslinien treffen. Dies bedeutet, dass in einem solchen 2-dimensionalen Phasendiagramm an einem solchen Punkt eine minimale Veränderung eines der Kontrollparameter ausreicht, um das System zwischen den aufeinander treffenden Instabilitäten wechseln zu lassen.

Im Rahmen seiner Doktorarbeit hat Bernd Dreßel (Universität Bayreuth) ein theoretisches Phasendiagramm für ein planares Elektrokonvektionssystem bei positiver dielektrischer Anisotropie aufgestellt (Dressel (2002a), Dressel & Pesch (2003)). Grundlage des Modells sind die bereits erwähnten, die Elektrokonvektion beschreibenden hydro- und elektrodynamischen sowie kontinuumsmechanischen Grundgleichungen (Bodenschatz *et al.* (1988)). Die eingehenden Materialparameter wurden analog zu denen des Flüssigkristalls MBBA gewählt, wobei dessen negatives ϵ_a durch einen schwach positiven Wert ersetzt wurde. Diese Mo-