



Untersuchungen zur Struktur und Dynamik freitragender flüssiger Filme

Dissertation
zur Erlangung des akademischen Grades
Dr. rer. nat.

vorgelegt von Frank Müller
geboren am 6. Juni 1979 in Zeitz

Magdeburg 2009

Genehmigt durch die Fakultät der Naturwissenschaften
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

eingereicht am: 28. April 2009

verteidigt am: 20. August 2009

Gutachter: Prof. Dr. Ralf Stannarius, Magdeburg
Prof. Dr. Jan Lagerwall, Halle

Betreuer: Prof. Dr. Ralf Stannarius, Magdeburg

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Freistehende flüssige Filme	5
	Stabilität dünner flüssiger Filme	5
	Oberflächenspannung und Filmgeometrie flüssiger Filme	6
	Der Meniskus eines freistehenden flüssigen Films	7
2.2	Seifenfilme	8
2.3	Flüssigkristalle und smektische Filme	9
	Flüssigkristalline Phasen und deren Eigenschaften	9
	Freistehende Flüssigkristallfilme und oberflächeninduzierte Orientierung	10
	Der Meniskus smektischer freistehender Filme	11
3	Das Reißen flüssiger freistehender Filme	15
3.1	Grundlagen	15
	Modell zum Reißen von Filmen	15
	Vergleich mit sphärischen Filmen	16
	Eigenschaften sphärischer Filme	18
3.2	Bisherige Literatur	19
	Die Reißgeschwindigkeit von planaren Filmen und Blasen	19
	Dynamik der Filmelemente	21
	Der Rand reißender Filme	21
	Der Einfluss eines umgebenden viskosen Mediums	23
3.3	Experimentelle Methoden	24
	Versuchsaufbau	24
	Bestimmung der Filmdicke von Blasen	26
	Messung von Geschwindigkeitsfeldern	28
	Die Laser-Streuung	29
3.4	Ergebnisse	32
	Das Reißen planarer smektischer Filme	32
	Dynamik des Reißens smektischer Blasen	33
	Die Form smektischer Blasen während des Reißens	37
	Geschwindigkeitsfelder des Films	39

	Erhöhung der Filmdicke während des Reißens	42
	Der Rand während des Reißens	45
	Einfluss der flüssigkristallinen Phase auf das Reißverhalten	46
	Das Reißen von Seifenblasen	47
	Laser-Streuung beim Reißen smektischer Blasen	51
	Streuung von monochromatischem Licht an undulierten smektischen Filmen bei Transmission	56
3.5	Propagation von Wellen in Flüssigkristallfilmen	58
	Kapillar- und peristaltische Wellen entlang eines Films	59
	Bewegung von Flüssigkeiten	60
	Ausbreitung der Wellen	61
	Abschätzung der Geschwindigkeit peristaltischer Wellen entlang ei- nes Flüssigkristallfilms	62
3.6	Diskussion	67
4	Der Katenoidenkollaps	71
4.1	Grundlagen	71
	Minimalfläche und Stabilität	71
	Berechnung der Krümmung	73
4.2	Bisherige Literatur	74
4.3	Experimentelle Methoden	76
	Versuchsaufbau	76
	Bestimmung der Filmdicke	77
4.4	Ergebnisse	78
	Dynamik des Kollapses	78
	Einfluss der Luft	82
	Die Filmdicke während des Kollapses	83
	Simulationen des Kollapses ohne Einfluss der Luft	84
4.5	Diskussion	87
5	Blasenschwingungen	89
5.1	Klassifizierung des Systems	89
5.2	Kugelflächenfunktionen	90
5.3	Bisherige Literatur	92
5.4	Experimentelle Methoden	93
	Versuchsaufbau	93
	Auswertung der digitalen Bilder	95
5.5	Ergebnisse	95
	Schwingung der Blasen	95
	Zerlegung der Schwingung in Moden	97
	Die Frequenzen der Schwingungen und deren Verhältnisse	98
	Die Dämpfung der zweiten Mode	99
5.6	Diskussion	100

6 Zusammenfassung	103
A Angaben zu 8CB	107
B Diskretisierung der Gleichungen	109
C Inhalt der CD	111
Literaturverzeichnis	113

Abbildungsverzeichnis

1.1	Gemälde von SIR JOHN EVERETT MILLAIS	1
1.2	Beispiele für Minimalflächen	2
1.3	Beispiel für das Reißen einer Seifenblase	4
2.1	Die Hauptkrümmungsradien eines Filmelements	6
2.2	Schematische Darstellung eines Meniskus	7
2.3	Tenside, die sich in Wasser in lamellaren Schichten ordnen	8
2.4	Schematische Darstellung der Schichtstruktur von smektischen Flüssigkristallen	11
2.5	Schematische Darstellung des Meniskus nach PIERANSKI <i>et al.</i>	12
2.6	Kontaktwinkel des Meniskus mit dem Film nach PICANO <i>et al.</i>	13
3.1	Schematische Darstellung eines reißenden Films	16
3.2	Blasengeometrie beim Reißen	17
3.3	LAPLACE-Druck in einer Blase	18
3.4	Schematische Darstellung der Aureole nach FRANKEL <i>et al.</i>	21
3.5	Zeitliche Entwicklung eines Randes nach FULLANA <i>et al.</i>	22
3.6	Schematische Darstellung der Strömungsverhältnisse um einen reißenden Film nach REYSSAT und QUÉRÉ	23
3.7	Fotografie des Versuchsplatzes	25
3.8	Schematischer Versuchsaufbau	26
3.9	Smektische Blase mit Interferenzen gleicher Neigung	27
3.10	Interferenz von monochromatischem Licht an einem dünnen Film	28
3.11	Glaspartikel, eingelagert in einer smektischen Schicht	29
3.12	Schematischer Versuchsaufbau für die Untersuchung der Laserstreuung	30
3.13	Schematische Darstellung der Intensitätsverteilungen während der Laserstreuung	31
3.14	Das Reißen eines planaren smektischen Films	32
3.15	Lineare Abhängigkeit des Lochradius' von der Zeit beim Reißen eines smektischen Films	33
3.16	Smektische Blasen verschiedener Filmdicke während des Reißens	34
3.17	Abhängigkeit des Öffnungswinkels smektischer Blasen von der Zeit	35
3.18	Geschwindigkeit des Randes reißender Blasen in Abhängigkeit von $\delta^{-1/2}$	36
3.19	Smektische Blase mit Bereichen verschiedener Filmdicke	37

3.20	Abhängigkeit der Form einer smektischen Blase während des Reißens von der Filmdicke	38
3.21	Ausbildung einer Krempe	39
3.22	Position auf dem Film positionierter Partikel während des Reißens .	40
3.23	Transversale Geschwindigkeit des Films in Abhängigkeit vom Winkel	41
3.24	Schematische Darstellung des Flusses durch ein Winkelement $d\varphi$.	42
3.25	Verschiebung der Interferenzringe einer smektischen Blase	43
3.26	Querschnitt des Randes beim Reißen eines Films	44
3.27	Instabilität des Randes: Ausbildung von Fingerstrukturen	45
3.28	Beispiele für Blasen, die während des Reißens eine Instabilität des Randes aufwiesen.	46
3.29	Das Reißen einer SmC*-Blase	47
3.30	Transmissionsbild einer Seifenblase	48
3.31	Filmdickenprofil zweier Seifenblasen	49
3.32	Position des Randes einer reißenden Seifenblase in Abhängigkeit von der Zeit	50
3.33	Änderung der Filmdicke von Seifenblasen während des Reißens . . .	51
3.34	Dunkelfeldbeobachtungen zur Verdeutlichung der Lichtstreuung . .	52
3.35	Laserstrahl, der von reißenden smektischen Blasen gestreut wird . .	53
3.36	Zeitliche Entwicklung der Laserstreuung	54
3.37	Abhängigkeiten der Laserstreuung von q	55
3.38	Undulationen auf smektischem Film moduliert	56
3.39	Berechnung der Transmission eines Laserstrahls durch einen undulierten Film	57
3.40	Überlagerung verschiedener Moden periodischer Auslenkungen der Schichten in einem Flüssigkristallfilm	61
3.41	Graphische Darstellung von Gl. 3.57	64
3.42	Dispersionsrelation einer peristaltischen Undulation entlang eines smektischen Films	65
3.43	Experimentelle Abschätzung der Geschwindigkeit sich ausbreitender Wellen entlang eines smektischen Films	66
4.1	Schematische Darstellung einer Katenoide	71
4.2	Stabiler und instabiler Zweig des Minimalradius' und der Fläche des Films in Abhängigkeit vom Abstand der Ringe	72
4.3	Hauptkrümmungslinien eines rotationssymmetrischen Films	74
4.4	Zeitskalen beim Kollaps von Katenoiden nach CHEN und STEEN . .	76
4.5	Versuchsaufbau zur Untersuchung kollabierender Katenoiden	77
4.6	Transmissionsbild einer Katenoide in monochromatischem Licht . .	78
4.7	Schematische Darstellung der z -Position des Minimalradius' r_0 in Abhängigkeit von der Zeit	79
4.8	Zeitserie, die den Kollaps dreier Katenoiden mit unterschiedlichen Filmdicken zeigt	80
4.9	Abhängigkeit des Minimalradius' r_0 von der Zeit	81

4.10	Geschwindigkeit des Minimalradius r_0 während der Inwärtsbewegung beim Kollaps	81
4.11	Kollapsrate v/R , aufgetragen über der Filmdicke der Katenoide . .	82
4.12	Zeitliche Entwicklung des horizontalen Querschnitts einer Katenoide	83
4.13	Abweichung von der Idealform einer Katenoide	84
4.14	Diskretisierter Film einer Katenoide	85
4.15	Vergleich der berechneten und der gemessenen Form einer Katenoide während des Kollapses	86
5.1	Schema zur Veranschaulichung der gewählten Kugelkoordinaten . .	90
5.2	Darstellung einzelner Moden bei der Entwicklung nach Kugelflächen- funktionen	91
5.3	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Untersuchung von Blasenschwingungen	93
5.4	Farbe des an einem Film reflektierten Lichts	94
5.5	Bilderserie einer schwingenden Seifenblase	96
5.6	Schwingende Seifenblase, aus zwei Richtungen beobachtet	97
5.7	Zeitliche Entwicklung der Moden $n = 0, \dots, 3$ einer schwingenden Blase	98
5.8	Frequenzverhältnisse und Schwingungsdauern in Abhängigkeit vom Blasenradius	99
5.9	Dämpfung der zweiten Mode in Abhängigkeit vom Radius	100
A.1	Struktur von 8CB	107

1 Einleitung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Dynamik dünner Flüssigkeitsfilme (Membranen). Membranen sind ein wichtiger Bestandteil biologischer Systeme. Sie dienen zur Abgrenzung verschiedener biologischer Einheiten. Zum Beispiel ist jede Zelle und jedes Zellorganell durch eine Membran, die nur für ausgewählte Stoffe durchlässig ist, von anderen Einheiten abgegrenzt. Eine wichtige Funktion von Membranen ist der Transport von Substanzen, die, eingeschlossen von einer Membran (Vesikel, rote Blutkörperchen), in hoher Konzentration an ihren Bestimmungsort gelangen.

Vom physikalischen Standpunkt aus gesehen stellen dünne Membranen ein besonderes hydrodynamisches System dar. Ein dünner Film ist durch *zwei Grenzflächen* von der Umgebung getrennt. Diese Grenzflächen erzeugen eine Oberflächenspannung. Die Flüssigkeit im Inneren eines Films fließt im wesentlichen in der Filmebene, das heißt man kann einen Film als zweidimensionale Flüssigkeit auffassen.

Analog zu biologischen Filmen können auch Seifen-Wasser-Gemische Membranen ausbilden. Diese erfreuen sich aufgrund ihrer geometrischen Ästhetik besonderer Beliebtheit (Abb. 1.1).

Neben geschlossenen Filmen (Blasen) gibt es zahllose weitere Formen, die mit



Abbildung 1.1: „Bubbles“ (Öl auf Leinwand) von SIR JOHN EVERETT MILLAIS aus dem Jahre 1886. Heute: National Museum Liverpool.

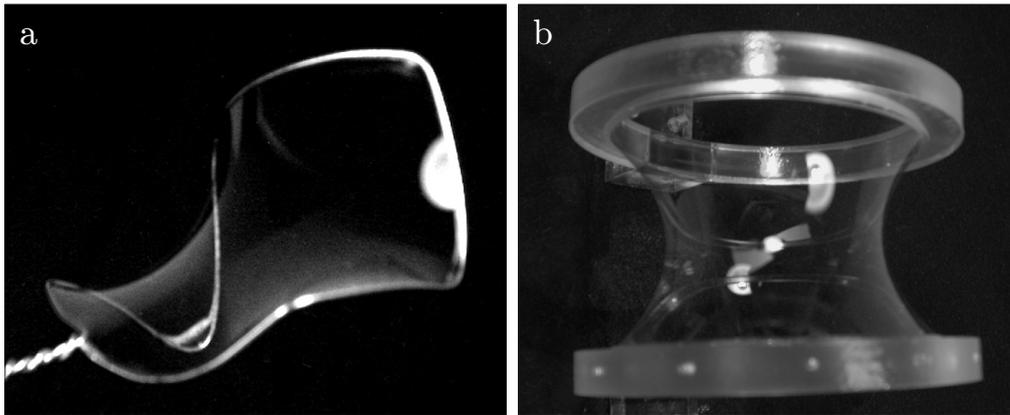


Abbildung 1.2: Beispiele für Minimalflächen. Die Filme befinden sich im Gleichgewicht und der LAPLACE-Druck ist überall Null, die Oberfläche ist also minimal. a) Die Geometrie eines Seifenfilms hängt von den Randbedingungen, also der Form des Rahmens, ab. b) Eine Katenoide entsteht, wenn ein dünner Film zwischen zwei Ringen aufgespannt wird.

dünnen Membranen hergestellt werden können. Ein zum Beispiel auf ein beliebig geformtes und geschlossenes Drahtgestell gespannter Film bildet aufgrund der Oberflächenspannung an den Grenzflächen zwischen Film und dem umgebenden Medium (Luft) eine Minimalfläche aus. Minimalflächen sind die Flächen mit der geringsten Oberfläche unter allen möglichen Flächen mit denselben Randbedingungen. Dies ist gleichbedeutend mit einem Zustand, bei dem der LAPLACE-Druck, welcher den Druckunterschied auf beiden Seiten des Films repräsentiert und proportional zur mittleren Krümmung des Films und dessen Oberflächenspannung ist, an jedem Punkt Null ist. Ein Beispiel einer solchen Minimalfläche für einen gegebenen Rand ist in Abb. 1.2a zu sehen. Die Form der Fläche hängt ausschließlich von den Randbedingungen ab. Ein weiteres Beispiel ist die Katenoide (Abb. 1.2b). Eine Katenoide entsteht, wenn ein Film zwischen zwei Ringen aufgespannt wird.

Bei einigen Geometrien, zum Beispiel einer Seifenblase, kann neben den Randbedingungen¹ eine zusätzliche Bedingung für die Form der Membran von Bedeutung sein. Einerseits tendiert auch eine Seifenblase dazu, die Oberfläche zu minimieren (aus diesem Grund ist eine sich im Gleichgewicht befindliche Seifenblase sphärisch), andererseits ist das Volumen im Inneren der Blase für alle Formen (Kugelform und Abweichungen davon) nahezu konstant. Im Gleichgewicht ist der LAPLACE-Druck ungleich Null, jedoch an allen Punkten des Films gleichgroß.

Wird eine Minimalfläche aus dem Gleichgewicht gebracht, so tendiert sie dazu, entweder die ursprüngliche oder eine andere stabile Form anzunehmen. Das heißt, es ist energetisch günstiger, die Fläche der Grenzschicht möglichst klein zu halten. Die zur Oberflächenspannung proportionale Energie, die bei der Minimierung der Oberfläche frei wird, wird teils in kinetische Energie umgewandelt und teils dissipiert.

¹Die Randbedingungen einer einzelnen Blase, die sich frei schwebend in einem Medium befindet, sind periodisch.

In der Natur finden sich häufig Membranen *im Nichtgleichgewicht*. Ein Beispiel ist die Taumelbewegung von Erythrozyten im Blut [1]. Auch in technologischen Anwendungen spielen Membranen und deren dynamische Eigenschaften, z.B. die Prozesse, die beim Tropfenabriss bei einem Mikro-Dosiersystem stattfinden, eine große Rolle. Zwar handelt es sich hierbei nicht um einen Film, dennoch beeinflussen die Oberflächenkräfte die Dynamik maßgeblich [2]. Eine andere Anwendung sind Schäume, die aus einer Vielzahl dünner Filme bestehen und deren Stabilität und Dynamik sowohl in technischen Bereichen, als auch in der Lebensmittelindustrie von enormer Bedeutung sind.

Während der vergangenen hundert Jahre erschienen zahlreiche Arbeiten, welche die Hydrodynamik dünner Filme zugänglich machen und welche die große Bedeutung in der Medizin und in technologischen Anwendungen bestätigen. Einige Beispiele sind in [3, 4, 5, 6, 7] zu finden.

In biologischen Systemen besitzen Membranen einen sehr komplizierten Aufbau. Sie bestehen aus einer Lipid-Doppelschicht, können durch ein Zytoskelett stabilisiert sein und enthalten Proteine und viele andere Bestandteile. Durch diesen komplexen Aufbau werden die dynamischen Eigenschaften von Membranen maßgeblich beeinflusst. Um grundlegende dynamische Prozesse gezielt zu untersuchen, wurden in der vorliegenden Arbeit Modellsysteme verwendet, die sich durch einen vereinfachten Aufbau auszeichnen, sich physikalisch jedoch nicht von realen biologischen Systemen unterscheiden.

Die hier untersuchten Filme bestanden aus einem Tensid-Wasser-Gemisch (Seifenlösungen) bzw. aus Flüssigkristallen. Prinzipiell unterscheidet sich die Dynamik dünner Flüssigkristallfilme nicht wesentlich von Seifenfilmen. Andererseits ist die Verwendung von Flüssigkristallen für die Herstellung von Filmen mit einigen Vorteilen verbunden. Diese Substanzen bilden homogene Filme mit einer oft einheitlichen Filmdicke aus, die berührungslos mithilfe eines optischen Verfahrens mit hoher Präzision gemessen werden kann. Weiterhin sind Flüssigkristallfilme sehr stabil und unterliegen, anders als Seifenfilme, keiner spontanen Lochbildung.

Es wurde die Dynamik dreier zweier verschiedener Systeme im Nichtgleichgewicht untersucht: Das Reißen von Blasen, der Kollaps von Katenoiden und die Schwingung von Blasen.

Das Reißen planarer bzw. sphärischer Filme beschäftigt Wissenschaftler schon seit Mitte des 19. Jahrhunderts. Ein Beispiel für das Reißen einer Seifenblase ist in Abb. 1.3 zu sehen. Eine der ersten Arbeiten hierzu erschien von DUPRÉ im Jahre 1867 [8]. Die Voraussetzung für einen Reißprozess ist das Auftreten eines Lochs im Film. Das Loch wächst mit der Zeit an, und das Filmmaterial, was sich nicht in der Nähe des Lochrandes befindet, verbleibt in Ruhe.

Eine Katenoiden ist nur stabil, so lange die den Film aufspannenden Ringe einen kritischen Abstand nicht überschreiten. Wird dieser aber überschritten, existiert keine Möglichkeit mehr, die Membran so auszurichten, dass die mittlere Krümmung an jedem Punkt gleich Null ist. Es findet ein rascher Übergang in einen neuen Gleichgewichtszustand statt. Am Ende dieses Vorgangs spannen die Ringe jeweils einen planaren Film auf.

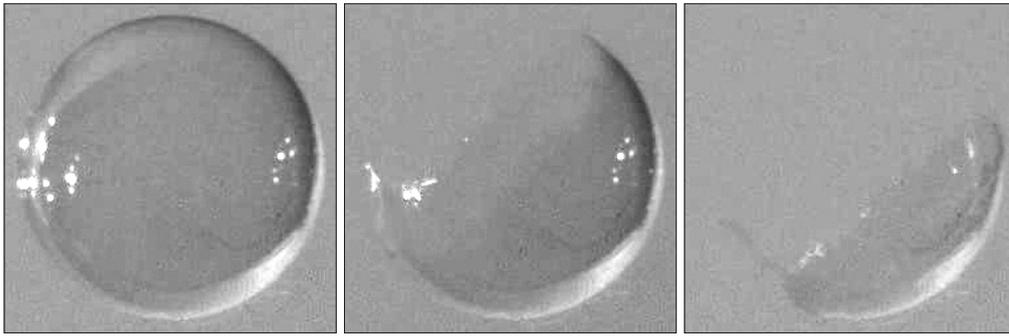


Abbildung 1.3: Beispiel für das Reißen einer Seifenblase mit einem Radius von 28 mm. Diese Bilderserie wurde mit einer Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommen. Der zeitliche Abstand zwischen den Bildern beträgt jeweils 4 ms. Die sphärische Form blieb während des Reißens erhalten. Das Loch wuchs an, bis dessen Rand alle Filmelemente in sich aufgenommen hatte.

Eine Blase, die sich im Gleichgewicht befindet, ist rund. Alle Abweichungen von dieser Form, zum Beispiel durch eine Druckschwankung in der umgebenden Luft, stellen einen Nichtgleichgewichtszustand dar. In diesem Fall tendiert die Blase dazu, wieder eine runde Form anzunehmen. Es ergeben sich gedämpfte Schwingungen der Blase. Nach dem Abklingen der Schwingungen befindet sich die Blase wieder im Gleichgewicht.

Bei allen drei dynamischen Vorgängen sind noch viele Fragen offen. Die vorliegende Arbeit soll helfen, allgemein gültige Prinzipien der Dynamik dünner Filme besser zu verstehen. Es werden Theorien zur Dynamik dünner Filme getestet. Dabei gilt den Phänomenen, die während des Übergangs in einen Gleichgewichtszustand auftreten, besonderes Interesse.

Die hier beschriebenen Prozesse finden innerhalb weniger Millisekunden statt. Aus diesem Grund kam während der Untersuchungen eine Hochgeschwindigkeitskamera zum Einsatz, die Aufnahmezeiten von bis zu 120000 Bildern pro Sekunde gestattete.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel wird ein Überblick über dünne freistehende Filme, deren Meniskus und den Einfluss der Oberflächenspannung auf sowohl statische als auch dynamische Eigenschaften gegeben. Die vorliegende Arbeit behandelt die Dynamik freistehender Seifenfilme und smektischer Flüssigkristallfilme. Beide Typen von Substanzen werden in diesem Kapitel näher erläutert. Dabei wird insbesondere auf für die Dynamik relevante Eigenschaften und Besonderheiten beider Substanzen-Typen eingegangen.

2.1 Freistehende flüssige Filme

Stabilität dünner flüssiger Filme

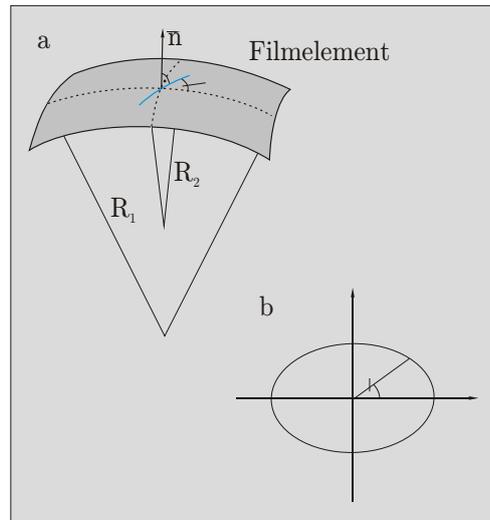
Reine flüssige Substanzen wie zum Beispiel Wasser sind nicht in der Lage, dünne freistehende Filme auszubilden, die im Gleichgewicht stabil sind. In einer Filmgeometrie kann die Flüssigkeit im Inneren des Films leicht fließen. Um dem entgegenzuwirken, muss der Flüssigkeit ein weiterer Stoff zugefügt werden, der stabilisierend wirkt. Dafür sind alle Stoffe geeignet, die im Lösungsmittel eine Ordnung herstellen. Beispiele hierfür sind Tenside (Seifen), eine besondere Form der Lipide. Diese Moleküle tendieren dazu, sich konzentrations- oder temperaturabhängig in verschiedenen Phasen anzuordnen. Dies ist auf den amphiphilen¹ Charakter der Tenside zurückzuführen. Das heißt, die verschiedenen Phasen bilden sich nur in einem Lösungsmittel mit polaren Molekülen heraus. Befindet sich ein System in der lamellaren Phase (Lipid-Doppelschichten, die voneinander durch Wasser getrennt sind), so ist es möglich, frei stehende Seifenfilme zu erzeugen. Seifenfilme können auch ohne Wasseranteil im Film gebildet werden. Solche Filme werden NEWTON'sche schwarze Filme genannt und bestehen aus nur einer Lipid-Doppelschicht.

Eine andere Möglichkeit dünne freistehende Filme herzustellen, bieten ionische Flüssigkeiten, also Flüssigkeiten, die ausschließlich Ionen enthalten. Es handelt sich um flüssige Salze, ohne dass sich das Salz dabei in einem Lösungsmittel wie Wasser befindet. Solche Substanzen spielen aber in der vorliegenden Arbeit keine Rolle, weshalb nicht näher auf sie eingegangen werden soll.

Weiterhin können Flüssigkristalle für die Bildung dünner freistehender Filme zum Einsatz kommen. Einerseits handelt es sich bei Flüssigkristallen um Substanzen mit

¹Amphiphile Moleküle haben sowohl einen geladenen (polaren, hydrophilen) als auch einen ungeladenen (apolaren, hydrophoben) Teil.

Abbildung 2.1: a) Die Hauptkrümmungsradien R_1 und R_2 entlang der Hauptkrümmungslinien (gestrichelt) für den Fall, dass R_1 und R_2 das gleiche Vorzeichen besitzen. b) Trägt man die Krümmung entlang einer Tangente, die den Winkel β zur Krümmungsebene mit dem Radius R_1 hat, in einem Polarplot auf, erhält man eine Ellipse. Die Hauptachsen der so entstehenden Ellipse entsprechen den Hauptkrümmungsradien.



Eigenschaften einer Flüssigkeit, andererseits ordnen sich die Moleküle auf mikroskopischer Skala wie in einem Kristall an. Dabei können sich verschiedene Phasen ausbilden, wobei die Temperatur und bei Flüssigkristallgemischen die Konzentration der Substanzen eine entscheidende Rolle spielen. Für die Herstellung dünner Flüssigkristallfilme ist kein Lösungsmittel notwendig.

Oberflächenspannung und Filmgeometrie flüssiger Filme

Die Grenzflächen zwischen der Flüssigkeit und der Umgebung eines dünnen Films sind wesentlich für die Ausbildung dünner Filme und deren Eigenschaften. An einer Grenzfläche existiert eine Oberflächenspannung σ , die auf die zwischen den Molekülen der Flüssigkeit wirkenden VAN-DER-WAALS-Kräfte zurückzuführen ist. Innerhalb eines Films ist die Summe der anziehenden Kräfte auf ein Molekül, die von den Nachbarmolekülen ausgehen, gleich Null. An einer Grenzfläche jedoch entfällt die Anziehung durch Nachbarmoleküle in eine Richtung und es ergibt sich eine Nettokraft. Das bedeutet, es resultiert eine Oberflächenspannung σ .

Die Oberflächenspannung spielt eine wesentliche Rolle für die Geometrie dünner freistehender Filme im Gleichgewicht und für die Dynamik im Nichtgleichgewicht. Wird die Fläche A eines Filmes erhöht, so erhöht sich die Oberflächenenergie im gleichen Maße:

$$\Delta E = 2\sigma \Delta A. \quad (2.1)$$

Ist der Film gekrümmt, ergibt sich daraus ein Druckunterschied Δp von einer Grenzfläche zur anderen. Dieser Druckunterschied wird LAPLACE-Druck genannt und ist durch

$$\Delta p = 2\sigma\kappa \quad (2.2)$$

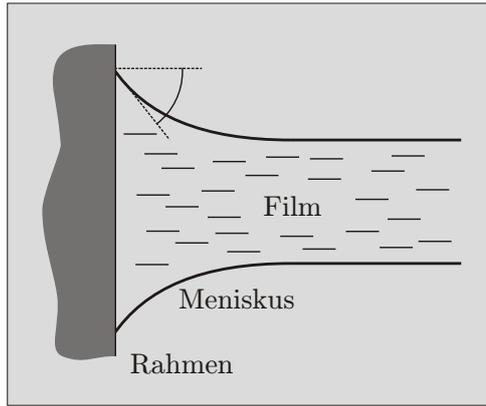


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung eines Meniskus. Der Meniskus führt zu einem Druckunterschied Δp im Film, der von der Krümmung κ_{Meniskus} abhängt.

definiert [9]. Der LAPLACE-Druck ist proportional zur Oberflächenspannung und zur mittleren Krümmung κ . Die Krümmung ist die Summe der inversen Radien R_1^{-1} und R_2^{-1} entlang der beiden Hauptkrümmungslinien (Abb. 2.1):

$$\kappa = \kappa_1 + \kappa_2 = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}. \quad (2.3)$$

Der Faktor 2 in Gl. 2.1 und Gl. 2.2 kommt durch das Vorhandensein zweier Grenzflächen an einem Film zustande, die zur Oberflächenenergie beitragen.

Der LAPLACE-Druck verschwindet genau dann, wenn die mittlere Krümmung (Gl. 2.3) Null ist. In diesem Fall befindet sich der Film im Gleichgewicht. Wird ein flüssiger Film auf einem festen Rahmen aufgespannt, existiert genau eine Lösung, so dass der Film im Gleichgewicht ist. Gibt es eine zusätzliche Nebenbedingung (z.B. konstantes Volumen im Inneren einer Blase), kann es sein, dass der LAPLACE-Druck ungleich Null, jedoch an jedem Punkt des Films gleichgroß ist, wenn sich das System im Gleichgewicht befindet.

Der Meniskus eines freistehenden flüssigen Films

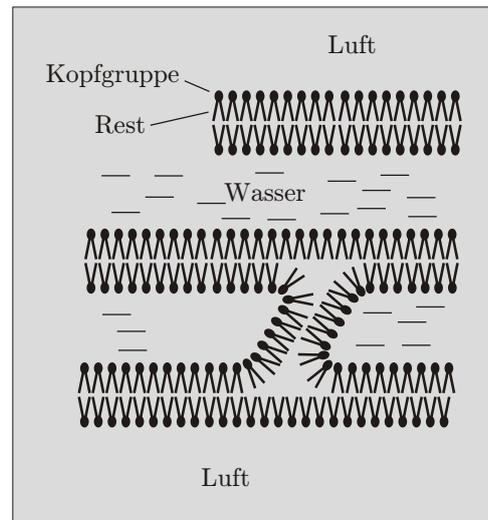
Ein freistehender Film, der von einem Rahmen aufgespannt wird, kann nicht losgelöst von diesem betrachtet werden. Die Verbindung zwischen Rahmen und Film hat die Form eines Meniskus. Ist die Oberfläche des Rahmens benetzend, ergibt sich eine konkave Krümmung der Grenzfläche des Films. Im entnetzenden Fall wäre die Krümmung konvex, allerdings kann mit einem entnetzenden Rahmen kein freistehender Film aufgespannt werden (fehlende Adhäsion).

Der Meniskus kann nicht losgelöst vom Film betrachtet werden. Er ist Bestandteil des Films und dient als Reservoir für das Filmmaterial. Zwischen Film und Meniskus ist ein Austausch von Material und Wärme möglich.

Den Kontaktwinkel α zwischen Meniskus und Rahmen (Abb. 2.2) kann man mithilfe der YOUNG-Gleichung

$$\cos(\alpha) = \frac{\sigma_s - \sigma_{s\text{-liq}}}{\sigma_{\text{liq}}} \quad (2.4)$$

Abbildung 2.3: Schematische Darstellung eines freistehenden Films aus Tensiden, die sich in Wasser zu lamellaren Schichten ordnen. Die amphiphilen Moleküle tendieren dazu, die geladenen Kopfgruppen dem Wasser zuzuwenden. Reale Systeme können wesentlich komplizierter sein als hier dargestellt.



berechnen. Hierbei stehen σ_s für die freie Oberflächenenergie des Festkörpers, $\sigma_{s\text{-liq}}$ für die Grenzflächenenergie zwischen Flüssigkeit und Festkörper und σ_{liq} für die Oberflächenspannung der Flüssigkeit.

Die Ausdehnung des Meniskus (vom Rand gesehen) im Gleichgewicht kann mithilfe der Kapillarlänge abgeschätzt werden [10]:

$$l_c = \sqrt{\frac{\sigma_{\text{liq}}}{\rho g}}. \quad (2.5)$$

Typische horizontale Größen eines Meniskus sind 2 mm, wodurch der Meniskus im Mikroskop leicht zu beobachten ist.

Abbildung 2.2 zeigt die schematische Darstellung eines Meniskus zwischen einem Film und einem benetzenden Rahmen. Im Querschnitt bildet sich ein exponentielles Profil heraus. Dieser Querschnitt entspricht dem Profil entlang einer Hauptkrümmungslinie. Die Krümmung entlang der zweiten Hauptkrümmungslinie ist vernachlässigbar klein. Befindet sich der Rahmen bei $x = 0$, kann das Profil des Meniskus in nicht unmittelbarer Nähe des Rahmens im statischen Fall durch

$$h(x) = h_0 e^{-\frac{x}{l_c}} \quad (2.6)$$

beschrieben werden.

2.2 Seifenfilme

Tenside bestehen aus amphiphilen Lipid-Molekülen. Das heißt, die Moleküle besitzen eine polare Kopfgruppe (hydrophil) und einen apolaren Rest (hydrophob). Diese Moleküle bilden in einem Lösungsmittel aus polaren Molekülen (Wasser) Gruppierungen, in denen die polare Kopfgruppe dem Lösungsmittel zugewandt ist. Die Wassermoleküle, die an die Lipidverbindungen grenzen, richten sich so aus, dass die zu den Kopfgruppen entgegengesetzt geladenen Teile der Wassermoleküle

an die Kopfgruppen angrenzen, es entsteht eine so genannte Hydrathülle. Geordnete Strukturen bilden sich also aufgrund des amphiphilen Charakters der Tenside heraus.

Wird ein Tensid in Wasser gelöst, können verschiedene Phasen entstehen. Welche Phase sich bildet, hängt zum Beispiel von der Temperatur oder der Konzentration der Tenside im Lösungsmittel ab. Wichtige Beispiele sind die lamellare Phase, bei der sich Lipid-Doppelschichten ausbilden, zwischen denen sich Lösungsmittel befindet, und die kubische Phase, bei der sich Lipidfilme sphärisch anordnen.

Mit einer sich in der lamellaren Phase befindlichen Lösung können frei stehende Filme hergestellt werden. Ein vereinfachtes Schema zeigt Abb. 2.3. Die Quervernetzung der Schichten ist möglich. Das Wasser zwischen den Schichten ist frei beweglich, wodurch eine lokale Änderung der Filmdicke möglich ist.

Seifenfilme können wesentlich komplizierter aufgebaut sein als hier dargestellt. Zum Beispiel kann es sich bei den Tensiden um ein Gemisch handeln. Als Lösungsmittel kommen neben Wasser auch andere Flüssigkeiten in Frage.

In dieser Arbeit werden Seifenlösungen als isotrop angesehen, da anisotrope Eigenschaften solcher Stoffgemische in Bezug auf die Dynamik von Seifenfilmen keinen Einfluss haben.

2.3 Flüssigkristalle und smektische Filme

Flüssigkristalline Phasen und deren Eigenschaften

Freistehende Filme aus Flüssigkristallen sind Hauptgegenstand dieser Arbeit. Flüssigkristalline Substanzen besitzen Eigenschaften von sowohl Flüssigkeiten als auch Festkörpern. Welche dieser Eigenschaften dominieren, das heißt, in welcher Phase sich der Flüssigkristall befindet, hängt von der Temperatur (thermotroper Flüssigkristall) oder bei Flüssigkristallgemischen von der Konzentration der Komponenten (lyotroper Flüssigkristall) ab. In der vorliegenden Arbeit wurde mit den thermotropen Substanzen 8CB und Felix16² gearbeitet.

Es sollen nur die wichtigsten Phasen, die bei diesen beiden Substanzen auftreten, aufgeführt werden. Einen genauen Überblick über die Phasensequenzen der verwendeten Substanzen findet man im Anhang A.

Diese Flüssigkristalle befinden sich bei höheren Temperaturen ($T > 41,5^\circ\text{C}$ bei 8CB und $T > 90^\circ\text{C}$ bei Felix16) in der isotropen Phase (I). Das heißt, es gibt keine Vorzugsrichtung bezüglich der Ausrichtung und keine ausgezeichnete räumliche Anordnung der stäbchenförmigen (kalamitischen) Moleküle.

Bei niedrigeren Temperaturen bildet sich die nematische Phase (N) aus. Es existiert eine Vorzugsrichtung der Direktoren³ \vec{n} und Translationsinvarianz in allen Richtungen. Der Ordnungsparameter, der durch

²Felix16 ist eine kommerzielle Mischung flüssigkristalliner Substanzen der Firma *Clariant*.

³Der Direktor bezeichnet die Ausrichtung eines stäbchenförmigen Moleküls.

$$S = \left\langle \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{2} \right\rangle \quad (2.7)$$

definiert ist, beträgt in der nematischen Phase etwa 0,4. Hierbei ist θ der Winkel zwischen dem Direktor \vec{n} der Moleküle und $\langle \vec{n} \rangle$. Die eckigen Klammern bezeichnen jeweils das räumliche Mittel der entsprechenden Größe.

Bei weiterer Abkühlung bildet sich die smektische Phase (Sm) heraus, die für die vorliegenden Substanzen in smektisch A und smektisch C* unterteilt werden kann. Der Ordnungsparameter einer in der smektischen Phase befindlichen Substanz ist größer als in der nematischen Phase des gleichen Flüssigkristalls.

Für die vorliegende Arbeit wurden Verbindungen in der smektischen A- (SmA) oder der smektischen C*-Phase (SmC*) untersucht. Diese Phasen zeichnen sich wie die nematische Phase durch eine Vorzugsrichtung der Moleküle aus. Zusätzlich ordnen sich die Moleküle in Schichten an, die Translationsinvarianz in Richtung senkrecht zur Schichtebene ist also gebrochen. Die Struktur einer smektischen A-Phase ist in Abb. 2.4 schematisch dargestellt. Der Direktor steht senkrecht zur Ebene der Schichten. Bei smektischen C-Phasen ist der Direktor zur Normalen der Schichtebenen gekippt. Die smektische C*-Phase (SmC*) weist zudem noch eine Chiralität der Moleküle auf (das bedeutet hier gleichzeitig eine Chiralität der Phase).

Durch die gebrochene Translationsinvarianz in z -Richtung ist die Bewegung eines Flüssigkeitselements in diese Richtung stark eingeschränkt. Der Flüssigkristall weist in dieser Richtung elastische Eigenschaften auf.

Ein Materialfluss in der Filmebene (x - y -Ebene) ist dagegen möglich. Dabei verschieben sich allerdings nicht einzelne Molekülschichten, da die Verschiebung solcher Schichten gegeneinander mit einem großen energetischen Aufwand verbunden ist, verglichen mit der Bewegung eines ganzen Filmelements.

Im Anschluss an die smektische Phase gibt es bei weiterer Abkühlung die kristalline Phase (Cr). Die Moleküle sind dann regelmäßig wie in einem Kristall angeordnet und es gibt eine Vorzugsrichtung in Bezug auf die Ausrichtung der Moleküle.

In diesem Abschnitt wurden ausschließlich die für die Arbeit relevanten flüssigkristallinen Phasen aufgeführt. Neben diesen existieren noch zahlreiche weitere [11].

Freistehende Flüssigkristallfilme und oberflächeninduzierte Orientierung

FRIEDEL zeigte 1922, dass es auch möglich ist, aus Flüssigkristallen freistehende Filme herzustellen, wenn ein solcher Film über der Öffnung eines Rahmens aufgespannt wird. [12]. In diesem Fall ist kein Lösungsmittel vonnöten. In einem endlich ausgedehnten Film mit zwei Grenzflächen induzieren die Grenzflächen eine Orientierung der Schichten [13]. Die Schichten der calamitischen Moleküle verlaufen parallel zu den Grenzflächen. In der smektischen A-Phase richten sich die Direktoren

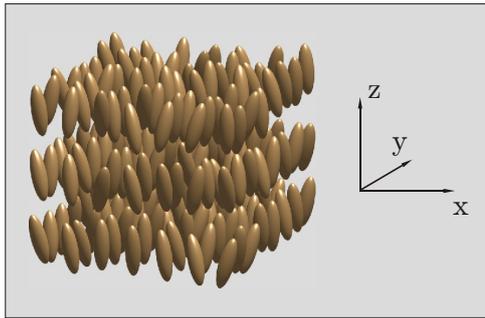


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Schichtstruktur von smektischen Flüssigkristallen, hier smektisch A (SmA). Die stäbchenförmigen Moleküle ordnen sich in Molekülschichten an und richten sich annähernd in einer Vorzugsrichtung aus.

ren der Moleküle senkrecht zur Filmebene aus⁴.

Wird ein Film über einer Öffnung gezogen, ist die Filmdicke kurz nach dem Ziehen nicht homogen. Bei zum Beispiel 8CB breiten sich die Bereiche kleinerer Filmdicke über den gesamten Film aus. Daher weisen aus 8CB hergestellte smektische Filme nach einer Relaxationszeit von weniger als einer Stunde eine einheitliche Dicke δ an jedem Punkt des Films auf. Auf diesen Effekt soll im nächsten Abschnitt eingegangen werden. Diese Herausbildung eines homogen dicken Films ist nicht bei allen flüssigkristallinen Substanzen zu beobachten. Im Falle von Felix16 weiten sich die Bereiche größerer Filmdicke aus.

Ein freistehender smektischer Film ist in Abb. 2.5 schematisch dargestellt. Für alle folgenden Betrachtungen sei ein Koordinatensystem so definiert, dass die smektischen Schichten parallel zur x - y -Ebene liegen und die Filmmnormale in z -Richtung zeigt (Abb. 2.4).

Die Filmdicke δ ist proportional zur Anzahl N der smektischen Schichten im Film. In einem Film homogener Filmdicke kann N zwischen zwei ($\delta = N\delta_0 \approx 5$ nm) und mehreren Tausend (δ in der Größenordnung von einigen Mikrometern) variieren. δ_0 bezeichnet die Dicke einer Molekülschicht.

In smektischen Filmen werden die Molekülschichten im Innern durch die Grenzflächen beeinflusst. Dieser Einfluss wird umso mehr abgeschwächt, desto größer die Filmdicke ist. Das Innere von Filmen mit einer Dicke in der Größenordnung von einigen Mikrometern kann als Bulk⁵-Material angesehen werden.

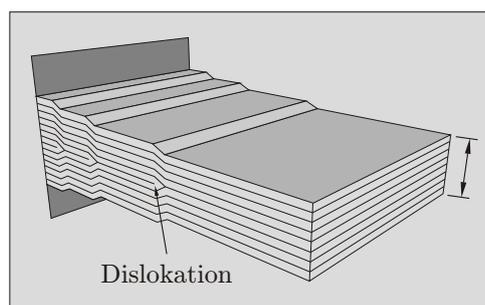
Der Meniskus smektischer freistehender Filme

Der Meniskus eines smektischen Films ist eine Anhäufung von Stufen. Abbildung 2.5 zeigt eine schematische Darstellung nach PIERANSKI [14]. Die Reduktion der Filmdicke um eine smektische Schicht geht mit einer Dislokation an der Stelle der Stufe einher. Diese Dislokationen werden von den Flüssigkristall-Luft-Grenzflächen abgestoßen und befinden sich daher im Inneren eines Films (Bulk-Dislokationen) [15].

⁴An den Grenzflächen eines Films in der smektischen A-Phase stehen die Moleküle nicht senkrecht zur Filmebene, sondern sind geneigt.

⁵Als "Bulk" wird das Teilvolumen einer Flüssigkeit bezeichnet, in dem der Einfluss vorhandener Grenzflächen vernachlässigbar klein ist.

Abbildung 2.5: Schematische Darstellung des Meniskus nach PIERANSKI *et al.* [14]. Im Wesentlichen besteht der Meniskus eines smektischen Films aus einer Anhäufung von Stufen. Diese entstehen durch Dislokationen, welche von den Flüssigkristall-Luft-Grenzflächen abgestoßen werden.



Prinzipiell kann der Meniskus eines smektischen Films in drei Regionen unterteilt werden [10]: I) nahe des Rahmens mit einer Vielzahl von Dislokationen, II) etwas weiter entfernt vom Rahmen mit einer geringeren Dichte von Dislokationen (Abb. 2.5) und III) weit entfernt vom Rahmen mit einer niedrigen Dichte von Dislokationen. Die Höhe des Meniskus eines smektischen Films am Rahmen ist wesentlich kleiner als bei herkömmlichen Flüssigkeiten.

In Region I können sich so genannte „giant dislocations“⁶ bilden. Diese Dislokationen ergeben sich auf Grund einer hohen Dichte von Dislokationen in der Nähe des Rahmens. Überschreitet die Dichte von Dislokationen einen kritischen Wert, schließen sich Dislokationen zusammen. Diese „giant dislocations“ weisen eine spezielle Struktur auf, auf die hier nicht eingegangen werden soll.

Die Form der Region II des Meniskus eines smektischen Films wurde von GÉMINARD *et al.* untersucht [16]. Die Autoren konnten zeigen, dass der Querschnitt des Meniskus in dieser Region kreisförmig ist (im Gegensatz zu isotropen Flüssigkeiten, bei denen das Profil des Querschnitts einem exponentiellen Verlauf folgt). Durch die Krümmung des Meniskus ergibt sich eine Druckdifferenz Δp , die durch

$$\Delta p = \frac{\sigma}{R_{\text{Meniskus}}}. \quad (2.8)$$

beschrieben werden kann. Der Druckunterschied, der sich durch die Krümmung des Meniskus ergibt, wird im Falle *smektischer* Filme durch eine Dekompression der Schichten im Film kompensiert [17]. Die Spannung des Films wird nicht mehr nur durch die Oberflächenspannung bestimmt, der Druckunterschied äußert sich in einer Erhöhung der Filmspannung:

$$\tau = 2\sigma + \Delta p\delta. \quad (2.9)$$

Die Abhängigkeit der Filmspannung von der Filmdicke wurde experimentell von SCHNEIDER bestätigt [18]. SCHNEIDER entwickelte eine Methode zur Untersuchung der Oberflächenspannung in Abhängigkeit von verschiedenen Parametern, wie Temperatur oder Filmdicke. Bei dieser Methode kamen Kraftmessungen an Katenoiden (zur näheren Erläuterung siehe Kapitel 4) aus flüssigkristallinen Substanzen zum Einsatz.

⁶giant dislocations: engl., riesige Dislokationen

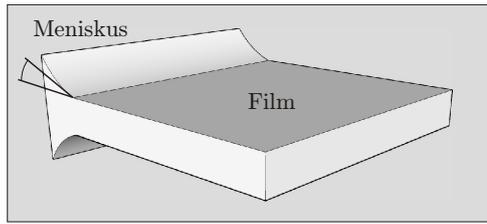


Abbildung 2.6: Bei smektischen Filmen einer Filmdicke von $\delta < 150$ nm ergibt sich ein Kontaktwinkel des Meniskus mit dem Film $\theta \neq 0$ [19]. Dadurch wird die Spannung des Filmes verringert (Gl. 2.10).

Die Dichte von Dislokationen in Region III ist, verglichen mit Region II, sehr gering. Im Gegensatz zu Region I und II hat die Region III nach Meinung der Autoren von [10] einen vernachlässigbar kleinen Einfluss auf den Film, so dass an dieser Stelle auf eine weitere Erläuterung dieser Region verzichtet wird.

Bei einem Film einer isotropen Flüssigkeit ist der Kontaktwinkel zwischen Meniskus und Film gleich Null. PICANO *et al.* [19] wiesen nach, dass der Kontaktwinkel θ zwischen Film und Meniskus bei *dünnen smektischen* Filmen mit weniger als 50 Schichten ($\delta < 150$ nm) ungleich Null ist (Abb. 2.6). Dadurch verringert sich die Filmspannung zu

$$\tau = 2\sigma + \Delta p \delta + f(\delta) = 2\sigma \cos \theta + \Delta p \delta. \quad (2.10)$$

Im dynamischen Fall, zum Beispiel beim Eintritt von Filmelementen in den Meniskus, ändert sich die Struktur des Meniskus. Die Dissipation Φ am Meniskus wurde von OSWALD *et al.* [17] am Beispiel der Ausbreitung von Dislokationsschleifen und von CAILLIER *et al.* [20] am Beispiel schrumpfender smektischer Blasen sowohl experimentell als auch theoretisch untersucht. In der zweiten Arbeit konnte gezeigt werden, dass die Dissipation Φ mit der Eintrittsgeschwindigkeit v_m des Films in den Meniskus in folgender Weise zusammenhängt:

$$\Phi = \frac{C\delta}{m} v_m^2. \quad (2.11)$$

Die Konstante m ist die Mobilität einer Dislokation [17] und beträgt im Falle von 8CB etwa 4×10^{-8} m² s/ kg [21]. Die Meniskus-Permeabilität C ist eine Funktion, die stark von der Anzahl der Schichten N abhängt. C weist bei $N = 25$ ein Maximum auf und geht für große N gegen Null. Der genaue Verlauf von $C(N)$ ist in [17] zu finden.

3 Das Reißen flüssiger freistehender Filme

Dieses Kapitel befasst sich mit dem Reißen dünner flüssiger freistehender Filme. Ein Film reißt, wenn sich in einem Film im Gleichgewicht ein Loch bildet oder erzeugt wird. Bei diesem Vorgang ist das System bestrebt, die Oberfläche zu minimieren. Dies geschieht durch die Vergrößerung des Lochs, wobei der den Film begrenzende Rand das Filmmaterial in sich aufnimmt. Eine genauere Beschreibung des Reißprozesses wird im ersten Teil dieses Kapitels mithilfe eines Modells beschrieben.

In Bezug auf die meisten im Detail analysierten Phänomene (Geschwindigkeit des Randes, Filmdickenänderungen, Streuung transmittierten Lichts) konnte qualitativ kein Unterschied zwischen dem Reißen planarer und sphärischer Filme (Blasen) gefunden werden. Es wurde insbesondere das Reißen sphärischer Filme untersucht, da diese Geometrie die berührungslose Beobachtung der Filmdicke mithilfe einer optischen Methode, die im Folgenden beschrieben werden soll, vor und während des Reißprozesses erlaubt. Es wird in diesem Kapitel weiterhin auf einige Effekte eingegangen, welche auf die anfängliche sphärische Form des Films zurückzuführen sind.

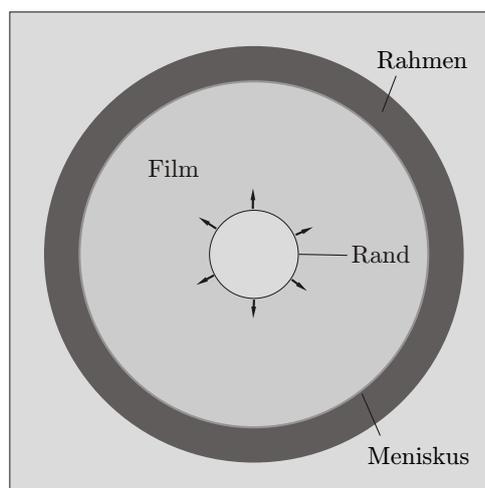
Insbesondere wurde das Reißen smektischer Blasen untersucht und mit Blasen aus einem Wasser-Tensid-Gemisch verglichen. Einige der beobachteten Phänomene, wie zum Beispiel die Streuung transmittierten Lichts, traten speziell im Fall der smektischen Filme auf und konnten bei Seifenblasen nicht beobachtet werden. Es wird gezeigt, dass diese Lichtstreuung auf die Ausbreitung von Wellen des sogenannten zweiten Schalls, also die Ausbreitung transversaler Wellen, zurückzuführen ist. Andere Besonderheiten wie das Anschwellen der Filmdicke, waren in beiden Systemen zu beobachten.

3.1 Grundlagen

Modell zum Reißen von Filmen

In diesem Abschnitt soll das Modell vorgestellt werden, welches bislang die wesentlichsten Aspekte des Reißens dünner Filme beschreibt. Abbildung 3.1 zeigt eine schematische Darstellung eines reißenden planaren Films. Folgende Punkte charakterisieren dieses Modell:

Abbildung 3.1: Schematische Darstellung eines reißenen Films. Die Oberflächenenergie des Films ist proportional zur Oberfläche des Films. Da mit dem Anwachsen des Lochs die Oberfläche verkleinert wird, ist ein Film mit einem Loch instabil. Der Rand bewegt sich nach außen und sammelt dabei das Filmmaterial ein. Der Rest des Films bleibt in Ruhe.



- Entsteht ein Loch in einem Film, so vergrößert sich der Radius des Lochs (das System ist bestrebt, die Oberfläche zu minimieren).
- Der Rand, der das Loch und den Film voneinander trennt, sammelt das gesamte Filmmaterial auf, die Filmelemente fernab vom Rand bleiben ungestört und in Ruhe.
- Das wachsende Loch in einem Film homogener Dicke bleibt kreisförmig, der Rand besitzt einen kreisförmigen Querschnitt, dessen Radius sich durch die Aufnahme der Filmelemente vergrößert.
- Die Filmelemente, die vom Rand aufgenommen werden, müssen in sehr kurzer Zeit auf Randgeschwindigkeit beschleunigt werden. Dies ist vergleichbar mit einem permanent stattfindenden unelastischen Stoß. Dabei wird die Hälfte der gewonnenen Oberflächenenergie dissipiert. Während der Aufnahme verformt sich das Filmelement drastisch.
- Nach CULICK [22] ergibt sich aus der Impulsbilanz eine Geschwindigkeit des Randes von

$$v_{\text{Culick}} = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho\delta}}. \quad (3.1)$$

ρ ist hierbei die Dichte des Filmmaterials. Diese Geschwindigkeit ist konstant während des gesamten Reißprozesses.

Vergleich mit sphärischen Filmen

Wie bei planaren Filmen folgt die erwartete Geschwindigkeit des Randes sphärischer Filme aus der Impulsbilanz [22]. Der Rand bewegt sich entlang des Films, ohne dass

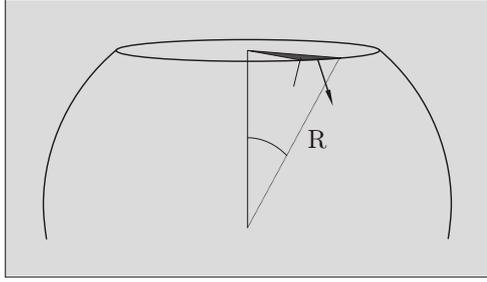


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Blasengeometrie beim Reißen.

die Lage der Membran sich wesentlich ändert. Streng genommen ist zu jedem Zeitpunkt eine radiale Beschleunigung des Randes notwendig, um die Erhaltung der sphärischen Form des verbleibenden Films zu gewährleisten. Die tangential und radial auf den Rand wirkenden Kräfte sind unabhängig von der Filmdicke und vom Radius der Blase immer von der gleichen Größenordnung. Andererseits würde eine radiale Verschiebung des Films eine Verschiebung der angrenzenden Luft nach sich ziehen. Die Luft kann also als Medium angesehen werden, welches eine Zwangsbedingung schafft, die den Rand auf der anfänglichen Kugel hält und somit eine Erhaltung der Kugelform für den verbleibenden Film gewährleistet. Die Erhaltung der sphärischen Form wird später in diesem Kapitel untersucht.

Für einen Blasenradius R ist F_t die tangentiale Kraft auf ein Filmsegment ζ am Rand (Abb. 3.2), welche den tangentialen Impuls des Segments erhöht. Dabei gilt

$$\frac{F_t}{\zeta} = \frac{1}{\zeta} \frac{d}{dt} (mv) = 2\sigma R \sin \varphi. \quad (3.2)$$

ζ ist der Winkel des betrachteten Segments, φ der Öffnungswinkel des Lochs. Der Rand des Segments enthält die Masse des Films, der vor dem Reißen im entsprechenden Sektor des Lochs war:

$$m = \rho \delta A_{\text{Kugelkappe}} = \rho \delta R^2 \zeta (1 - \cos \varphi). \quad (3.3)$$

R bezeichnet hierbei den Radius der Blase. Mit $v = R\dot{\varphi}$ erhält man die Bewegungsgleichung

$$2\sigma R \sin \varphi = \rho \delta R^3 \frac{d}{dt} ((1 - \cos \varphi) \dot{\varphi}) = \rho \delta R^3 \frac{d^2}{dt^2} (\varphi - \sin \varphi). \quad (3.4)$$

Mithilfe der Beziehung $\varphi = \omega t$ (ω ist die Winkelgeschwindigkeit des Randes) lässt sich diese Gleichung umschreiben zu

$$2\sigma R \sin \omega t = \rho \delta R^3 \frac{d^2}{dt^2} (\omega t - \sin \omega t) = \rho \delta R^3 \omega^2 \sin \omega t, \quad (3.5)$$

voraus sich

$$v = \omega R = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho \delta}} \quad (3.6)$$

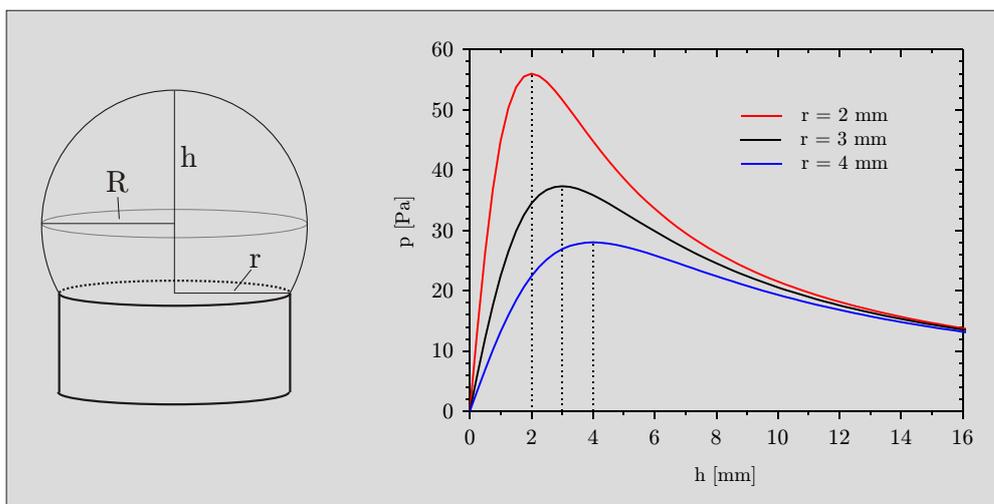


Abbildung 3.3: LAPLACE-Druck in einer Blase in Abhängigkeit von der Höhe h für verschiedene Kapillarenradien r . Der größte Druckunterschied Δp entsteht bei einem Blasenradius, der dem Radius der Kapillare entspricht, das heißt, in einer Hemisphäre.

ergibt.

Die hier hergeleitete Gleichung der Reißgeschwindigkeit *gilt nur für den Fall, dass der Film an jedem Punkt die gleiche Dicke δ aufweist.*

Eigenschaften sphärischer Filme

Blasen bestehen aus einem Flüssigkeitsfilm, welcher zwei Grenzflächen zum umgebenden Medium besitzt. In den hier durchgeführten Versuchen sitzt die Blase auf einer Kapillare auf (siehe Abschnitt 3.3). Aufgrund der Oberflächenspannung ist die Blase bestrebt, die Oberfläche zu minimieren, wobei das Volumen V im Innern der Blase und im Schlauchsystem bis zur Spritze (Vgl. Abb. 3.8) annähernd konstant bleibt. Es muss die Beziehung

$$\Delta p V = 4\sigma\kappa V = \text{konstant} \quad (3.7)$$

gelten. κ entspricht der mittleren Krümmung R^{-1} des Flüssigkeitsfilms. Die Druckdifferenz ergibt sich aus dem LAPLACE-Druck, der im speziellen Fall aus Abb. 3.3 auch als

$$\Delta p = \frac{4\sigma}{R} = \frac{8\sigma h}{r^2 + h^2} \quad (3.8)$$

geschrieben werden kann. Das heißt, der Druckunterschied zur Umgebung ist am größten, wenn der Radius der Blase gleich dem Kapillarradius ist.

Durch die Wirkung der Gravitation ist eine Blase nicht exakt rund, sondern wird abgeflacht. Inwieweit die Gravitation auf die Form einer Blase dominierend wirkt, kann durch die Bond-Zahl abgeschätzt werden. Diese setzt sich aus dem Verhältnis von Gravitationskraft pro Fläche zur Oberflächenkraft pro Fläche

$$Bo = \frac{\rho g \delta R}{4\sigma} \quad (3.9)$$

zusammen. g ist die Gravitationskonstante. Die Oberflächenspannung der hier verwendeten Substanzen liegt bei $\sigma \sim 0,03$ N/m, die Dichte des Filmmaterials ist von der Größenordnung $\rho \sim 10^3$ kg/m³. Für typische Werte für die Filmdicke $\delta \sim 1$ μ m und einen Blasenradius in der Größenordnung von $R \sim 1$ cm ergibt sich $Bo \approx 5 \times 10^{-4} \ll 1$. Aus diesen Betrachtungen ist zu schließen, dass der Einfluss der Gravitation sowohl auf die Form der Blase als auch auf die Richtung des Reißens vernachlässigbar klein ist.

3.2 Bisherige Literatur

Die Reißgeschwindigkeit von planaren Filmen und Blasen

Viele Aspekte des Reißens flüssiger Filme wurden in zahlreichen Veröffentlichungen bereits dokumentiert. An dieser Stelle sollen die wichtigsten Arbeiten, die sich mit diesem oder verwandten Themen befassen, aufgeführt werden.

Die ersten wissenschaftlichen Betrachtungen zum Reißen planarer Seifenfilme stammen von DUPRÉ aus dem Jahre 1867 [8, 23]. DUPRÉ nahm an, dass sich der Rand eines Loches vom Zentrum (als Zentrum wird der Punkt bezeichnet, an dem der Film zur Zeit t_0 reißt) fortbewegt. Nur dieser Rand sei in Bewegung und sammle das Filmmaterial auf, der Rest des Filmes sei in Ruhe. DUPRÉ ging davon aus, dass die gesamte Oberflächenenergie $E_{OF} = 2\sigma A$ (A ist die Oberfläche des Films) in die kinetische Energie des Randes $E_{kin} = \rho \delta A v^2 / 2$ umgewandelt wird, woraus sich die konstante Randgeschwindigkeit $v = \sqrt{4\sigma / \rho \delta}$ ergab. σ bezeichnet hierbei die Oberflächenspannung, ρ die Dichte und δ die Filmdicke des reißenden Filmes. Diese Beziehung wurde später von LORD RAYLEIGH¹ experimentell in grober Übereinstimmung bestätigt [24, 25].

Etwa 60 Jahre später deutete eine erneute experimentelle Untersuchung von RANZ auf eine Abweichung der gemessenen Geschwindigkeit von der berechneten hin [26]. Hier wurden reißende Seifenfilme, die stroboskopisch beleuchtet wurden, mithilfe mit einer herkömmlichen Kamera aufgenommen. Die Messungen ergaben einen Wert für die Geschwindigkeit, der gegenüber dem Modell ungefähr 10 % zu niedrig war.

CULICK [22] und TAYLOR [27] leiteten unabhängig voneinander eine korrigierte Gleichung für die Geschwindigkeit her, die auf der Impulsbilanz basiert. Der Rand wurde dabei als System variabler Masse betrachtet. Der Ansatz nach CULICK

¹J. W. Strutt (1842-1919), seit 1873 3. Lord Rayleigh, forschte auf mehreren Gebieten der Physik. 1904 erhielt er den Nobelpreis für die Bestimmung der Dichte der wichtigsten Gase und für die Entdeckung des Argons. Weitere wichtige wissenschaftliche Beiträge sind das Rayleigh-Jeans-Gesetz, die Rayleigh-Taylor-Instabilität, die Rayleigh-Streuung, die Rayleighverteilung und einige mehr.

$$F = \frac{d}{dt}(mv) = \frac{d}{dr} \left(\frac{mv^2}{2} \right) + \frac{v^2}{2} \frac{dm}{dr} \quad (3.10)$$

ergab eine Geschwindigkeit (Gl. 3.1), welche um den Faktor $\sqrt{2}$ kleiner als die von DUPRÉ vorgeschlagene ist [22]. Hierbei steht r für den Radius des Lochs.

DE GENNES berechnete eine um den Faktor 2 zu große Arbeit, die während dieses Prozesses geleistet würde [28]. DE GENNES schlug ein Modell vor, welches sowohl den Impuls- als auch den Energieerhaltungssatz in Betracht zieht. Nach diesem Modell würden Tropfen unter einem Winkel von 45° gleichermaßen nach oben und unten in Bezug auf die Filmebene abgestoßen.

Ein anderer Ansatz, der von MYSELS *et al.* bevorzugt wurde, basiert auf der Beschleunigung des ungestörten Filmes nahe des Randes auf Randgeschwindigkeit und der Idee, die Aufnahme der Filmelemente in den Rand als unelastischen, dissipativen Stoß zu betrachten. Bei diesem Stoß geht die Hälfte der Oberflächenenergie durch Dissipation verloren.

Eine experimentelle Bestätigung des oben angeführten Modells (Gl. 3.1) lieferten PANDIT *et al.* [29]. Die Autoren untersuchten das Reißen sphärischer Tensid-Filme, wobei Teepol² mit Wasser bzw. Glycerin gemischt wurde. Die Blasen wurden jeweils zwischen zwei Röhrchen positioniert, so dass die durchschnittliche Filmdicke mittels elektrischer Widerstandsmessungen bestimmt werden konnte. Es konnte gezeigt werden, dass das von CULICK vorgeschlagene Modell auch für sphärische Filme im Rahmen der Messgenauigkeit Gültigkeit besitzt.

Eine Abweichung der Geschwindigkeit nach CULICK (Gl. 3.1) konnte für Filme mit einer Dicke von weniger als 100 nm von MCENTEE und MYSELS in Experimenten nachgewiesen werden [30]. Die gemessene Geschwindigkeit nahm mit abnehmender Filmdicke gegenüber dem theoretischen Wert stark ab. EVERS *et al.* bestätigten diese Beobachtung [31, 32] durch die Untersuchung des Reißens sehr dünner viskoelastischer Filme und NEWTON'scher schwarzer Filme. Die Autoren nahmen an, dass sich sowohl die Einflüsse der umgebenden Luft, welche vom bewegten Film mitgezogen wird, als auch ein elastischer Anteil bei der Verformung eines Filmelements beim Eintritt vom Film in den Rand in einer Abweichung der Randgeschwindigkeit gegenüber dem theoretischen Wert widerspiegeln.

Der Einfluss der Viskosität auf das Reißverhalten wurde von DEBRÉGEAS *et al.* anhand *hochviskoser* PDMS³-Filme (Blasen) untersucht [33, 34]. Im Gegensatz zu Blasen aus NEWTON'schen Flüssigkeiten wächst die Geschwindigkeit des Randes mit der Zeit exponentiell an, bis nach einer charakteristischen Zeit $\eta\delta/2\sigma$ eine Grenzgeschwindigkeit erreicht wird [34], welche v_{Culick} (Gl. 3.1) entspricht. η steht hierbei für die Viskosität der Flüssigkeit. Diese Grenzgeschwindigkeit wird erreicht, sobald das Loch einen kritischen Radius $R_c = \eta\sqrt{2\delta/\sigma\rho}$ besitzt. In [34] wurde das Geschwindigkeitsfeld (mit Hilfe von silberbeschichteten Glaspartikeln) und die

²Teepol bezeichnet ein Gemisch aus Natriumsalzen von Sekundäralkylhydrogensulfaten mit etwa 8 bis 18 Kohlenstoffatomen.

³PDMS: Abk. für Polydimethylsiloxan

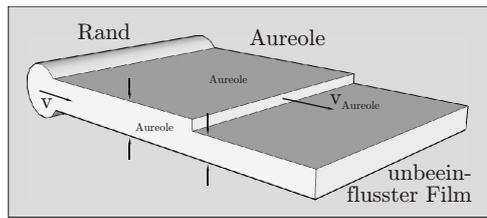


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Aureole nach FRANKEL *et al.* [35]. Eine Stufe der Filmdicke eilt dem Rand mit einer Geschwindigkeit von $v_{\text{Aureole}} \approx 1,75 v_{\text{Rand}}$ voraus. Die Oberflächenspannung verringert sich im Bereich der Aureole.

dynamische Schichtdickenänderung gemessen. Es konnte gezeigt werden, dass sich ein radiales Geschwindigkeitsfeld gemäß $v(r) \sim 1/r$ ausbildet und die Filmdicke zunimmt. Die Autoren führten dieses Verhalten auf *viskoelastische* Eigenschaften des Films zurück.

Dynamik der Filmelemente

Im Modell (Abschnitt 3.1, *Modell zum Reißen von Filmen*) wurde angenommen, dass Filmelemente, die sich nicht in der Nähe des Randes befinden, ungestört sind und in Ruhe verbleiben. Im Gegensatz dazu zeigte sich bei erneuten Beobachtungen (MCENTEE und MYSELS, 1968) des Reißens planarer Seifenfilme, bei denen SDBS⁴ bzw. NaLS⁵ als Tenside verwendet wurden, eine Störung, die von den Autoren Aureole genannt wurde. Sie eilt dem Rand mit $v_{\text{Aureole}} \approx 1,75 v_{\text{Rand}}$ voraus [30].

In einem Modell gingen FRANKEL und MYSELS [35] von einem abrupten, stufenweisen Anstieg der Filmdicke aus [35]. Eine schematische Darstellung der Aureole nach FRANKEL und MYSELS findet man in Abb. 3.4. Die Autoren nahmen an, dass sich die Oberflächenspannung aufgrund einer Kompression der Tensidmoleküle im Bereich der Aureole verringert. Es ergab sich folgende Gleichung für die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Aureole entlang des Films:

$$v_{\text{Aureole}}^2 = \frac{2(\sigma - \sigma_{\text{Aureole}}) \delta_{\text{Aureole}}}{\rho(\delta_{\text{Aureole}} - \delta)} \delta. \quad (3.11)$$

Weitere Arbeiten zu diesem Thema sind in [36, 37, 38, 39] zu finden.

Der Rand reißender Filme

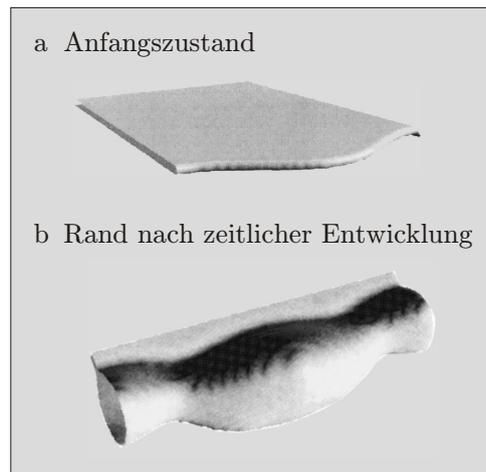
Der Rand besitzt laut Standardmodell (Abschnitt 3.1, *Modell zum Reißen von Filmen*) einen kreisförmigen Querschnitt. Das Loch wird als rund angenommen, so dass der Rand einen Ring bildet.

In theoretischen Abhandlungen von BRENNER *et al.* [40] und SÜNDERHAUF *et al.* [41] wurde der Querschnitt des Randes analysiert. Die Autoren betrachteten einen ebenen viskosen Film, der an einer Seite von einem geraden Rand mit kreisförmigen Querschnitt begrenzt war. Es wurde die zeitliche Entwicklung des

⁴SDBS: Abk. für Natriumdodecylbenzensulfonat

⁵NaLS: Abk. für Natriumdodecylsulfat

Abbildung 3.5: Zeitliche Entwicklung eines Randes nach FULLANA *et al.* [42]. Die Simulationen der zeitlichen Entwicklung basieren auf der Lösung der NAVIER-STOKES-Gleichung. a) Anfangszustand eines Films. b) späteres Stadium der zeitlichen Entwicklung des Randes. Das Volumen änderte sich nicht gleichförmig, sondern wuchs mit einer bestimmten Wellenlänge an. Abgedruckt mit Genehmigung von [42]. Copyright 1999, American Institute of Physics.



Filmquerschnitts mithilfe der zweidimensionalen NAVIER-STOKES-Gleichung numerisch gelöst. Dreidimensionale Effekte wurden nicht betrachtet. Für REYNOLDS-Zahlen $Re > 1$ ergab sich ein Anwachsen des Radius' (Querschnitt) des zylinderförmigen Randes. Für große Re wurden Kapillarwellen⁶, die dem Rand vorauslaufen, gefunden. Für $Re < 1$ tendierte das System zu einer globalen Erhöhung der Filmdicke. In diesem Fall wurde das Filmmaterial nicht vom Rand aufgenommen, sondern es fand eine Bewegung der Filmelemente vor dem Rand statt. SÜNDERHAUF *et al.* konnten zeigen, dass die Geschwindigkeit nach CULICK in jedem Falle erreicht wird. Es wurde die Beobachtung von DEBRÉGEAS *et al.* [34] bestätigt, dass die Dauer bis zum Erreichen der Grenzgeschwindigkeit v_{Culick} linear von der Viskosität abhängt.

Neben dem Querschnitt konnte auch eine Veränderung der dreidimensionalen Struktur, und somit eine Abweichung von der Vorstellung im Modell, das Loch sei kreisrund, experimentell nachgewiesen werden. PANDIT und DAVIDSON [29], EVERS *et al.* [32, 43], LIEBMAN *et al.* [44] und MCENTEE *et al.* [30] beobachteten bei Filmen aus Tensidlösungen eine Instabilität, die zur Destabilisierung des Randes und zur Bildung fingerähnlicher Strukturen (diese werden im Folgenden Finger genannt) führte. PANDIT und DAVIDSON stellen fest, dass die Finger umso länger werden, je höher die Viskosität des Flüssigkeitsfilms ist. EVERS *et al.* bestätigten das Auftreten von Fingern beim Reißen NEWTON'scher schwarzer Filme [32, 43]. Es wurde ein Zusammenhang der Randgeschwindigkeit v mit der Temperatur und der Wellenlänge dieser Unregelmäßigkeiten vermutet.

Theoretische Ansätze für das Verständnis der Fingerbildung während des Reißens eines Films gibt es von FULLANA *et al.* [42]. Die Autoren gehen davon aus, dass dieser Mechanismus nur das Auftreten großer Wellenlängen erklären kann. Als Anfangszustand wurde ein viskoser Film angenommen, der durch einen sinusförmigen Rand begrenzt wird (Abb. 3.5a). Die Berechnung der zeitlichen Entwicklung des Randes mithilfe der NAVIER-STOKES-Gleichung lieferte ein räumlich periodisches

⁶Kapillarwellen sind Wellen, deren Dynamik durch die Krümmung einer Grenzfläche und den damit entstehenden LAPLACE-Druck bestimmt wird.

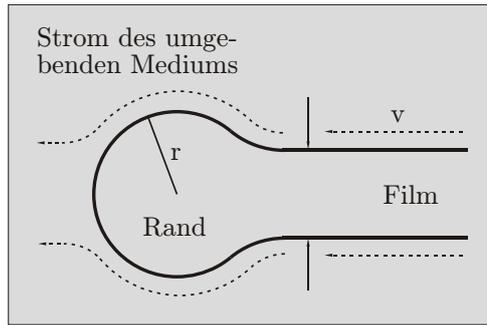


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Strömungsverhältnisse um einen reißenden Film nach REYSSAT und QUÉRÉ [47]. Der zylinderförmige Rand stellt einen Widerstand bei der Bewegung in einem viskosen Medium (z.B. Silikonöl) dar.

Anwachsen des Randvolumens (Abb. 3.5b).

Der Einfluss eines umgebenden viskosen Mediums

In den bisherigen Betrachtungen wurde der Einfluss der Umgebung außer Acht gelassen. Allerdings zeigte sich in experimentellen Studien, dass sich die Dissipation im mitbewegten umgebenden Medium beim Reißen dünner Seifenfilme ($\delta < 150$ nm) auf die Geschwindigkeit des Randes nach CULICK auswirkt.

MYSELS *et al.* maßen die Randgeschwindigkeit reißender Filme mit $5 \text{ nm} < \delta < 1000$ nm in vier verschiedenen Atmosphären (Wasserstoff, Helium, Luft, Neon) [45]. Die Abweichung der Randgeschwindigkeit von v_{Culick} (Gl. 3.1) wurde mit abnehmender Filmdicke größer. Diese Abweichung hing sowohl von der Viskosität als auch von der Dichte des Atmosphärgases ab.

Der von FRENS [46] gelieferte, theoretische Ansatz (Vgl. Gl. 3.10)

$$F - D = \frac{d}{dt}(mv) \quad (3.12)$$

mit $D = (1/2) C_{\text{Drag}} \rho_{\text{Luft}} A v^2$ ergab eine korrigierte Geschwindigkeit des Randes unter Einfluss des umgebenden Mediums:

$$v_{\text{Rand}} = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho\delta + \frac{1}{2} C_{\text{Drag}} \rho_{\text{Luft}} A}}. \quad (3.13)$$

A ist die projizierte Fläche des Randes senkrecht zur Bewegungsrichtung. Die Konstante C_{Drag} hängt stark von der Form des bewegten Objektes (im vorliegenden Fall die Form des Randes) und der REYNOLDS-Zahl Re ab, wobei diese Betrachtungen nur für konstante und kleine Re galten.

Der Einfluss des umgebenden Mediums wird umso deutlicher, desto höher dessen Viskosität ist. In einer Arbeit von REYSSAT und QUÉRÉ [47] wurde der Einfluss der Viskosität des umgebenden Mediums auf die Randgeschwindigkeit sowohl experimentell als auch theoretisch näher betrachtet. Dazu wurde im Experiment ein Seifenfilm in Silikonöl aufgespannt und in der Mitte des Films ein Loch erzeugt. Das Reißen wurde mithilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera beobachtet.

Die Randgeschwindigkeit wurde umso kleiner, desto höher die Viskosität der Umgebung ist. In einem Modell wurde der Rand (kreisförmiger Querschnitt) als

ruhend angenommen, nur der Film bewegte sich und übergab das Filmmaterial beim Eintritt in den Rand an diesen ab. Für kleine Re konnte die Geschwindigkeit des Randes hergeleitet werden:

$$v = \frac{\sigma}{2\pi\eta} \ln \left(\frac{4\eta}{\rho v r} \right). \quad (3.14)$$

Die Bedeutung der Variablen in Gl. 3.14 ergibt sich aus Abb. 3.6. η ist die Viskosität des umgebenden Mediums. Im betrachteten Fall ist v nicht konstant, da der Radius r des Randes mit der Zeit zunimmt und die Reibungskräfte dadurch anwachsen. Andererseits war diese Zeitabhängigkeit der Geschwindigkeit im Experiment kaum wahrnehmbar.

3.3 Experimentelle Methoden

Versuchsaufbau

Eine Fotografie des experimentellen Versuchsplatzes ist in Abb. 3.7 zu sehen, schematisch ist der Aufbau in Abb. 3.8 dargestellt.

Die Blasen wurden auf einer Glaskapillare mit typischen Durchmessern von 3,9-4,2 mm hergestellt. Dazu wurde erst mit einem Spatel eine kleine Menge Flüssigkristall bzw. Seifenlösung auf die Öffnung der Kapillare gebracht. Die Kapillare war über einen Schlauch mit einer Spritze verbunden, durch den mit Hilfe eines Schrittmotors eine sehr langsame Inflation der Blase möglich war.

Es wurden die thermotropen Flüssigkristalle 8CB (4'-Octyl-biphenyl-4-carbonitrile) und Felix16 (*Clariant*) sowie eine Tensidlösung (Pustefix, *Dr. Rolf Hein GmbH & Co. KG*) zur Herstellung von Blasen verwendet. Das die Filme umgebende Medium war in jedem Falle Luft.

Die Phasensequenzen der flüssigkristallinen Substanzen sind in Tab. 3.1 zu finden. Die Experimente wurden bei $(27 \pm 1)^\circ\text{C}$ durchgeführt. Das heißt, der Flüssigkristall 8CB befand sich in der smektischen A-Phase, Felix16 in der smektischen C*-Phase.

Die Herstellung der Blasen aus Tensidlösung (Pustefix) geschah prinzipiell wie im Falle smektischer Filme. Allerdings sind Seifenfilme nicht stabil. Das Lösungsmittel

Substanz	Phasensequenz
8CB	Cr 21,5°C SmA 33,5°C N 41,5°C I
Felix16	X -20°C SmC* 72°C SmA 85°C N 94-90°C I

Tabelle 3.1: Phasensequenz der verwendeten Flüssigkristalle 8CB und Felix16. Messungen mit 8CB wurden ausschließlich in der SmA-Phase und mit Felix16 in der SmC*-Phase durchgeführt. Die Bezeichnung und Eigenschaften der nicht näher erläuterten Phasen sind zum Beispiel in [11] zu finden.

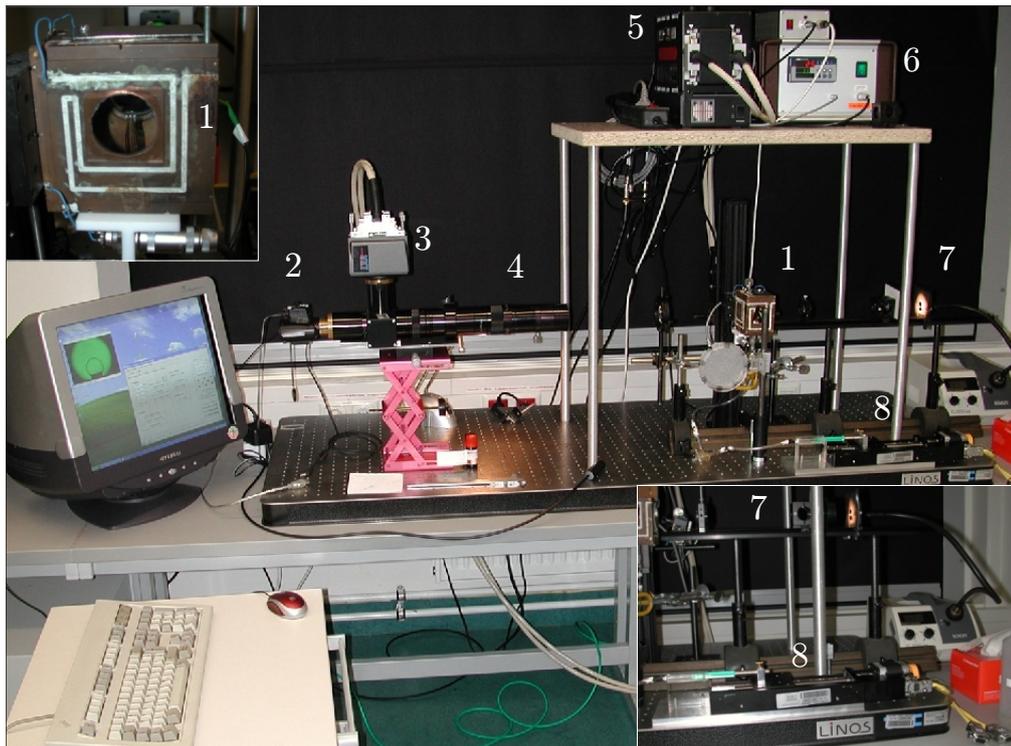


Abbildung 3.7: Fotografie des Versuchsplatzes. 1 - Kupferbox zur Temperierung, 2 - Digitalkamera, 3 - Aufnahmekopf der Hochgeschwindigkeitskamera, 4 - Fernfeldmikroskop, 5 - Prozessor der Hochgeschwindigkeitskamera, 6 - Temperatur-Regulier-Einheit für die Kupferbox, 7 - Beleuchtungssystem, 8 - Schrittmotor für die Präparation der Blasen

(Wasser) fließt in den Meniskus und der Film wird dünner, bis sich ein Loch bildet und der Film ohne äußere Einwirkung reißt.

Die Oberflächenspannung von 8CB in Luft beträgt $0,028 \text{ N/m}$. Die Oberflächenspannung von Felix16 ist nicht bekannt, wurde aber in der gleichen Größenordnung angenommen. Die Oberflächenspannung der verwendeten Seifenlösung wurde mithilfe der DU-NOÛY-Ringmethode zu $0,0336 \text{ N/m}$ bestimmt.

Das Licht einer Kaltlichtquelle (*Schott*, KL 2500 LCM) wurde mithilfe einer KÖHLER-Beleuchtung zu einem parallelen Strahl kollimiert. Die Blase wurde entweder mit weißem oder mit monochromatischem Licht beleuchtet. Monochromatisches Licht wurde erzeugt, indem ein Filter ($\lambda = 535 \text{ nm}$) im Strahlengang platziert wurde. Mittels eines Fernfeldmikroskops (*Infinity K2*, Objektiv: CF-3) wurde die Probe vergrößert.

Da der Reißprozess einer Blase nur wenige Millisekunden dauert, kam eine Hochgeschwindigkeitskamera (*Photron Ultima APX*) für die Aufnahmen zum Einsatz. Es handelte sich hierbei um ein Aufnahmekopf mit einer CCD-Matrix und einem Prozessor, in dem die aufgenommenen Daten zwischengespeichert wurden. Die Kamera konnte nur im s/w-Modus betrieben werden. Eine Aufnahme mit dieser Kamera erfolgt durch zwei Schritte. Zuerst wird die Kamera in den Aufnahmemodus versetzt, das heißt, der Arbeitsspeicher (2 GB) wird beschrieben. Sobald der Speicher

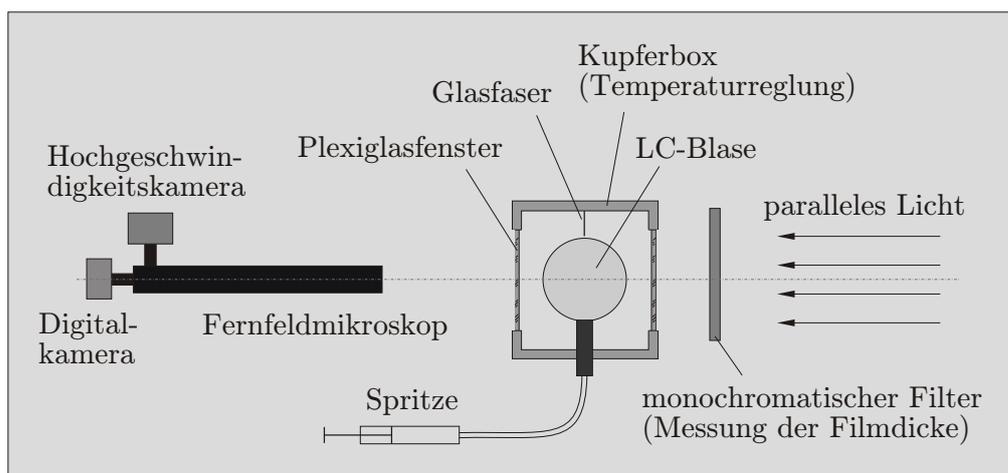


Abbildung 3.8: Schematischer Aufbau zur Beobachtung des Reißprozesses smektischer Blasen. Die Probe wird mit monochromatischem, parallelem Licht beleuchtet. Es wurden ein Fernfeldmikroskop und eine Hochgeschwindigkeitskamera eingesetzt, um das Reißen zu beobachten.

voll ist, wird der Speicher von vorn wieder überschrieben, so dass immer 2 GB der zuletzt aufgenommenen Daten darin befinden. Wird nun im zweiten Schritt der Trigger ausgelöst, ist dies mit einem Anhalten der Aufnahme verbunden. Die Bilder, die vor dem Auslösen des Triggers aufgenommen wurden, stehen für weitere Untersuchungen zur Verfügung.

Die typischen Aufnahmezeiten lagen bei 6000 bzw. 15000 Bildern pro Sekunde. Die Verschlusszeiten betragen jeweils $1/120000$ s, da durch diese kürzestmögliche Belichtungsdauer die Bewegungsunschärfe minimiert werden konnte.

Für einige Versuche wurde die Beleuchtung im oben beschriebenen Aufbau leicht abgeändert. In diesem Fall wurden die Blasen nicht in Transmission beobachtet, sondern von der Seite beleuchtet (Dunkelfeldbeobachtung). Dazu wurde weißes Papier zylinderförmig so um die Blase angeordnet, dass die Rotationsachse des Zylinders in der Beobachtungsrichtung lag. Von der Kamera aus gesehen hinter der Blase befand sich ein schwarzer Schirm. Senkrecht zur Beobachtungsrichtung wurden vier Lichtquellen auf die weiße Fläche gerichtet, so dass die Blase von möglichst homogenem, diffusem Licht beleuchtet wurde. Mit diesem Aufbau konnte die Lichtstreuung des Flüssigkeitsfilms während des Reißens beobachtet werden.

Da smektische Filme stabil sind, bedurfte es eines Einstichs mit einer Nadel, um den Reißprozess zu starten. Die Größe des Einstichs, die für die Initiation des Reißens genügt, hängt von der anfänglichen Filmdicke der Blase ab [48]. Daher wurde je nach Schichtdicke eine Glasfaser, eine Stahldraht ($\varnothing 50 \mu\text{m}$) oder ein Skalpell benutzt. Der Anstich erfolgte meist von oben (möglichst fern vom Meniskus).

Bestimmung der Filmdicke von Blasen

Wird ein dünner gekrümmter Film mit monochromatischem Licht durchleuchtet, ergibt sich ein Interferenzmuster, bei dem die Positionen der Interferenzmaxima

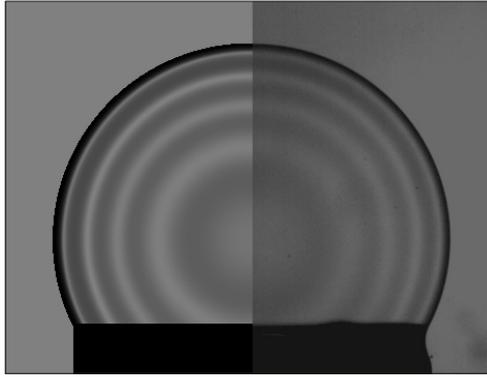


Abbildung 3.9: Das Bild zeigt sowohl das berechnete (links) als auch das aufgenommene (rechts) Transmissionsbild einer smektischen Blase ($R = 2,2$ mm), die mit monochromatischem, parallelem Licht beleuchtet wurde. Die Filmdicke konnte zu 3000 nm bestimmt werden.

von der Filmdicke und dem Einfallswinkel des Lichts abhängen. Im Falle *smektischer Blasen*, bei denen die Filmdicke im Gleichgewicht an jedem Punkt gleich ist, entsteht ein ringförmiges Interferenzmuster, wie in Abb. 3.9 dargestellt. Die rechte Seite der Abbildung wurde mit einer Digitalkamera aufgenommen. Es wurde die Substanz 8CB zur Herstellung des Films verwendet. Die Wellenlänge des Lichts betrug $\lambda = 535$ nm.

Die Winkelabhängigkeit der transmittierten Intensität soll anhand Abb. 3.10 erläutert werden. Diese Darstellung berücksichtigt die doppelbrechenden Eigenschaften flüssigkristalliner Substanzen nicht, es soll nur auf das vereinfachte Grundprinzip eingegangen werden.

Der größte Teil des eingestrahlt Lichts wird an Grenze 1 transmittiert. Der Winkel α' beträgt, unter Berücksichtigung der Brechung gemäß des SNELL'schen Gesetzes,

$$\sin \alpha' = \frac{n_{\text{LC}}}{n_{\text{Luft}}} \sin \alpha. \quad (3.15)$$

Der Brechungsindex $n_{\text{Luft}} = 1$. Der Weg des Lichts im Film bis zur Grenze 2 beträgt $s = \delta \cos \alpha'$. Ein Teil dieses Lichts wird an Grenze 2 reflektiert. Diese Lichtwelle erreicht Grenze 1 mit einem Gangunterschied von

$$d = 2s = \frac{2\delta}{\cos(\sin^{-1}(n_{\text{LC}} \sin \alpha))} \quad (3.16)$$

relativ zu einer an Grenze 1 einfallenden Lichtwelle (hellgrün in Abb. 3.10).

Es ergibt sich, abhängig vom Gangunterschied, konstruktive bzw. destruktive Interferenz. Das heißt, es bildet sich im Transmissionsbild des Films ein Muster aus, welches mit NEWTON'schen Ringen vergleichbar ist (Abb. 3.9). Im Falle smektischer Filme handelt es sich um Interferenzen gleicher Neigung, da die Filmdicke an jedem Punkt des Films gleich ist.

Zur Bestimmung der Filmdicke δ von Blasen kam eine berührungslose Methode zum Einsatz, welche von STANNARIUS *et al.* entwickelt wurde [49]. Diese basiert auf der Berechnung des Transmissionsbildes für verschiedene Filmdicken, bis das aufgenommene Bild (Abb. 3.9 rechts) mit dem berechneten (Abb. 3.9 links) übereinstimmt. Bei dieser Methode wurden die doppelbrechenden Eigenschaften

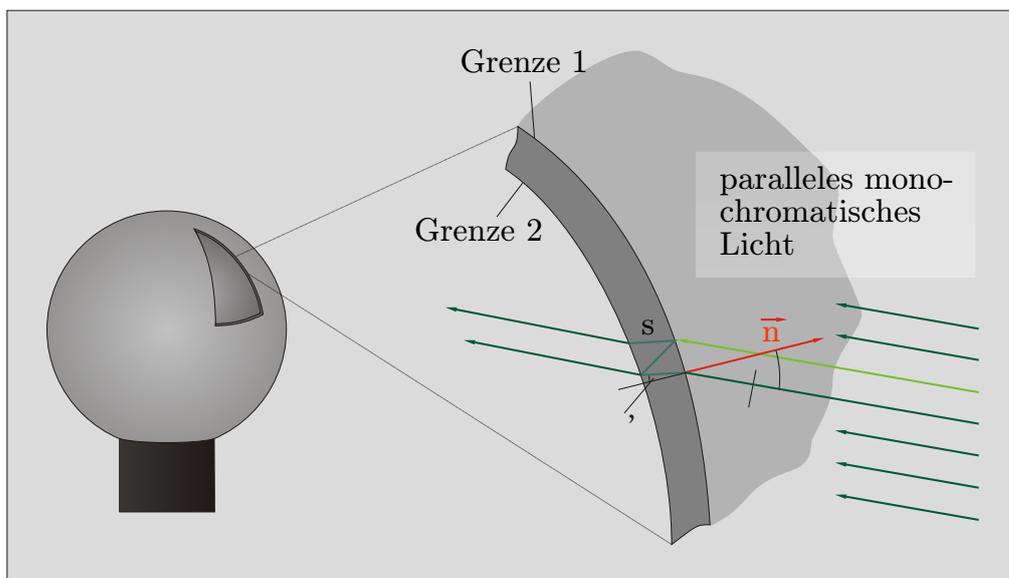


Abbildung 3.10: Schematische Zeichnung zur Erläuterung der Interferenz von monochromatischem Licht an einem dünnen Flüssigkristallfilm.

eines Flüssigkristalls mit in Betracht gezogen. Die Berechnung des Transmissionsbildes erfolgte mit der Software IDL 6.3 (*Research Systems, Inc.*).

Abbildung 3.9 zeigt jeweils sowohl das berechnete (links), als auch das aufgenommene (rechts) Transmissionsbild einer smektischen Blase. Die Interferenzringe des berechneten und des aufgenommenen Bildes sind in guter Übereinstimmung. Diese vergleichende δ -Bestimmung ist eindeutig und ergab für die Blase in Abb. 3.9 eine Filmdicke von 3000 nm.

Diese Methode ist für alle rotationssymmetrischen Filmgeometrien anwendbar, die Rotationssymmetrieachse muss dabei senkrecht zur Beobachtungsrichtung liegen. In einem Bereich von $500 \text{ nm} < \delta < 4000 \text{ nm}$ beträgt die Genauigkeit 10 nm. Für Filmdicken $100 \text{ nm} < \delta < 500 \text{ nm}$ und $\delta > 4000 \text{ nm}$ ist δ mit einer Genauigkeit von 20-30 nm bestimmbar. Für Filmdicken von weniger als 150 nm funktioniert diese Methode aufgrund einer zu hohen Ungenauigkeit nicht mehr.

Alternativ zur von STANNARIUS *et al.* beschriebenen Methode kann das Transmissionsbild nach der JONES-Methode berechnet werden [50].

Messung von Geschwindigkeitsfeldern

Es sollte das zeitabhängige Geschwindigkeitsfeld des Films beim Reißen smektischer Blasen untersucht werden. Gängige Methoden zur Bestimmung von Geschwindigkeitsfeldern sind die Laser-Doppler-Anemometry (LDA) [52, 53, 54] und die Particle-Image-Velocimetry (PIV) [55, 56, 57, 58]. Beide Methoden waren für die Untersuchungen ungeeignet, da zum einen ein relativ großes räumliches Gebiet beobachtet werden sollte und zum anderen eine zeitliche Auflösung vonnöten war, die es gestattet, während des Reißprozesses die Positionen mehrerer Tracerpartikel zu

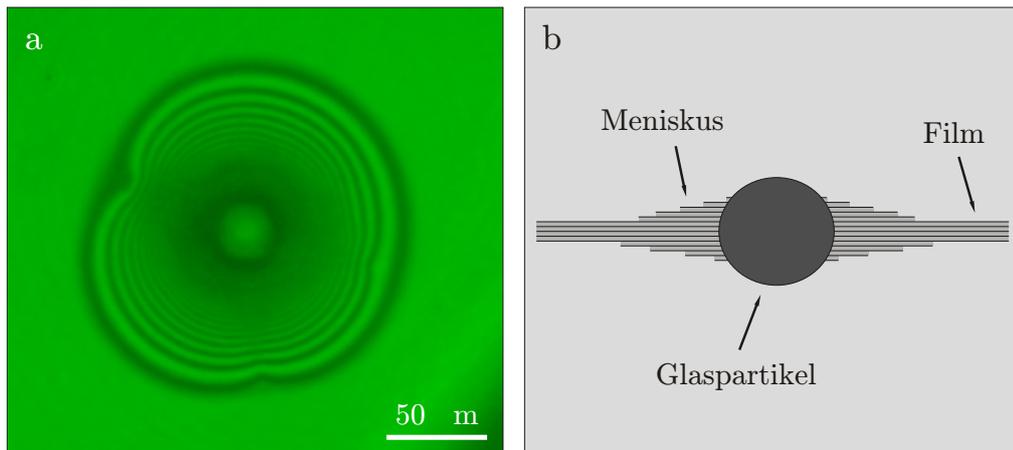


Abbildung 3.11: Glaspartikel, eingelagert in einer smektischen Schicht. Da die Partikel einen Durchmesser von rund $30\ \mu\text{m}$ aufweisen, ein typischer Film aber nur $0,5$ bis $5\ \mu\text{m}$ dick ist, ragt ein beträchtlicher Teil eines Partikels aus dem Film. Um das Partikel bildet sich ein Meniskus. a) Aufnahme eines Transmissionsbildes (monochromatisches Licht, $\lambda = 510\ \text{nm}$) mit einem Lichtmikroskop (*Zeiss*). b) schematische Zeichnung einer Inklusion in einem smektischen Film nach BOHLEY und STANNARIUS [51].

verschiedenen Zeitpunkten aufzunehmen. Zudem sollte es möglich sein, die Blase selbst zu beobachten.

Eine geeignetere Methode war das Aufbringen von Glaspartikeln (*Polysciences, Inc.*). Diese Partikel besitzen einen Durchmesser von etwa $30\ \mu\text{m}$. Das Aufbringen erfolgte einige Sekunden vor dem Reißen, als sich die Blase im Gleichgewicht befand. Dazu wurde eine kleine Menge der Glaspartikel auf einem Spatel platziert und aus einem Abstand (Spatel-Blase) von ungefähr $20\ \text{cm}$ vorsichtig aufgepustet.

Abbildung 3.11a zeigt ein Partikel in einem planaren, smektischen Film. Das Partikel wurde in Transmission mit monochromatischem Licht ($\lambda = 535\ \text{nm}$) mit einem Lichtmikroskop (*Zeiss*) beobachtet. Um das Partikel bildeten sich NEWTON'sche Interferenzringe, die auf einen Meniskus um das Partikel schließen lassen.

Nach BOHLEY und STANNARIUS ist ein Partikel dieser Größe im Film eingelagert [51]. Eine schematische Darstellung ist in Abb. 3.11b zu finden. Der Mittelpunkt des Partikels befindet sich in der Mitte des Films (symmetrische Anordnung), es bildet sich ein Meniskus heraus. Die schematische Darstellung des Meniskus in Abb. 3.11 ist insofern nicht korrekt, als dass die Erhöhung der Filmdicke um jeweils eine Molekülschicht mit einer Dislokation einhergeht (Vgl. Abschnitt 2.3, *Die Rolle des Meniskus*).

Die Laser-Streuung

In Experimenten zum Reißen smektischer Blasen wurde eine Verdunklung des transmittierten Lichts beobachtet. Es lag die Vermutung nahe, diese Abnahme sei auf eine Streuung des Lichts zurückzuführen.

Zur Untersuchung dieses Sachverhalts kam ein spezieller Versuchsaufbau zum

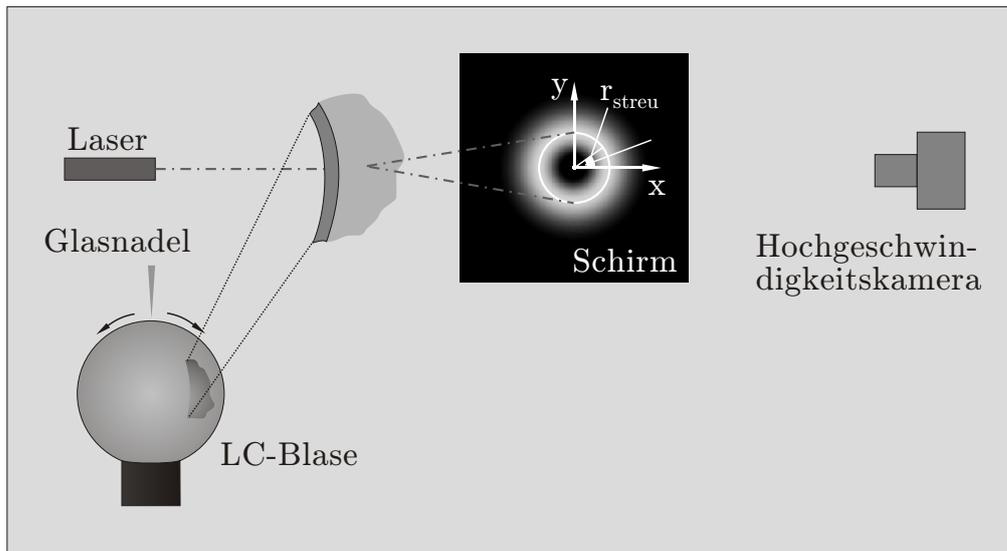


Abbildung 3.12: Schematischer Versuchsaufbau für die Untersuchung der Laserstreuung. Ein Laserstrahl wurde durch die Blase geleitet. Der auf einem Schirm auftreffende Strahl wurde mit einer Hochgeschwindigkeitskamera beobachtet.

Einsatz (Abb. 3.12). Es sollte untersucht werden, inwieweit ein Laserstrahl durch eine reiende smektische Blase gestreut wird.

Ein horizontal ausgerichteter Laserstrahl der Wellenlnge $\lambda = 670$ nm (rot) wurde so ausgerichtet, dass er durch die Mitte der Blase verlief. Befand sich die Blase im Gleichgewicht, wurde der Laserstrahl ungehindert durch die Blase transmittiert.

Das Reien der Blase wurde durch einen Einstich mittels einer Glasnadel in den Film mglichst weit oben an der Blase initiiert (Vgl. Abb. 3.12). Ein halbtransparenter Schirm wurde vom Laser aus gesehen hinter der Blase positioniert. Somit konnte die Verteilung der Intensitt des Laser-Lichts nach dem Passieren der Blase mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (*Photron*, *Ultima APX*), die aus der zur Blase entgegengesetzten Richtung auf den Schirm gerichtet war, beobachtet werden. Die Aufnahmegeschwindigkeit betrug 15000 Bilder pro Sekunde.

Es konnte eine Streuung beobachtet werden, so lange der Rand der reienden Blase nicht durch den Laserstrahl verlief. Diese Streuung ging im wesentlichen radialsymmetrisch vonstatten, sie erfolgte also fr alle Winkel θ in Abhngigkeit vom Abstand r zum Mittelpunkt des anfnglichen Laserpunkts (Primrstrahl).

Zur Auswertung wurde ein Programm mit der Software IDL 6.3 (*Research Systems, Inc.*) verwendet, welches die Intensitt I des Strahls in Abhngigkeit von der Zeit und vom Abstand r zum Mittelpunkt des ungestrten Laserstrahls berechnet:

$$I(r, t) = \int r I(\theta, r, t) d\theta. \quad (3.17)$$

Die Streuintensitt I wurde jeweils fr 100 verschiedene Radien r gem Gl. 3.17 fr jedes Bild der aufgenommenen Bildersequenz numerisch integriert ($I(r, t)$) und im Anschluss normiert. Abbildung 3.13 zeigt typische Verlufe von Intensittsver-

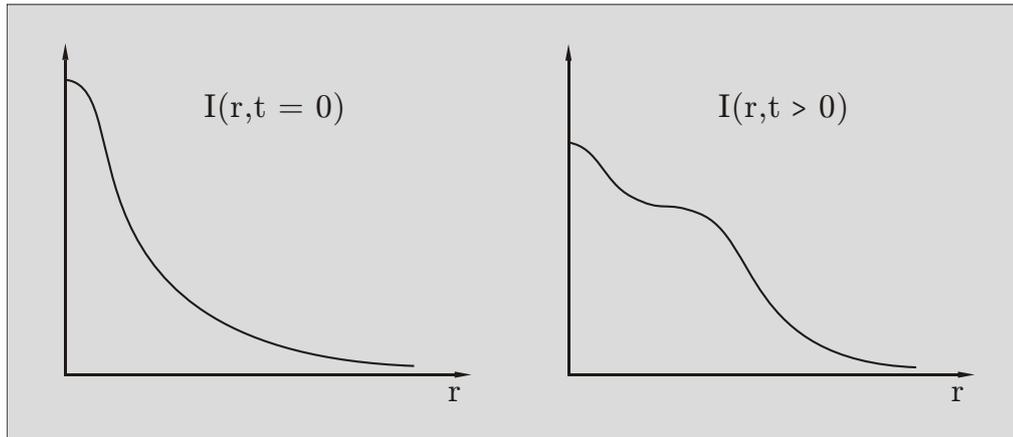


Abbildung 3.13: Schematische Darstellung der Intensitätsverteilungen zu den Zeitpunkten $t = 0$ (vor dem Reißen der Blase) und $t \neq 0$ (während des Reißens). Diese Graphen entstanden durch Summation der Intensitäten gemäß Gl. 3.17. Während des Reißens nahm die Intensität des Primärstrahls ab, es bildete sich hingegen ein Zuwachs der Intensität bei einem Abstand $r \neq 0$ vom Mittelpunkt des Primärstrahls.

teilungen vor (links) und während (rechts) des Reißens. Vor dem Reißen passierte der Laserstrahl die Blase nahezu ungehindert. Die Lichtintensität war bei $r \approx 0$ (in der Mitte der Laserstrahl-Abbildung auf dem Schirm) am größten und nahm nach außen hin schnell ab. Während des Reißens wurde die Intensität des Primärstrahls geringer, es bildete sich hingegen ein Zuwachs der Intensität bei einem Abstand $r > 0$ vom Mittelpunkt des Primärstrahls.

Für die Auswertung der Streuexperimente wurde die Intensität $I(r, t = 0)$, welche die Intensitätsverteilung vor dem Reißen der Blase widerspiegelt, zu jeder Zeit von der Verteilung $I(r, t \neq 0)$ abgezogen, so dass nur der gestreute Teil des Lichts übrig bleibt.

Es stellte sich im Experiment heraus, dass die Intensität der Streuung vom Streuwinkel abhängt. Nimmt man eine periodische Störung der Wellenlänge Λ des Films, die zur Streuung des Lichts führt, an, kann die Größenordnung der periodischen Störung mithilfe der Gleichung

$$\Lambda = \frac{\lambda D}{r_{\max}} \quad (3.18)$$

abgeschätzt werden. λ ist hierbei die Wellenlänge des verwendeten Lasers und r_{\max} der Radius des Kreises, welcher der maximalen Intensität der Streuung entspricht. Der Abstand D des Blasenmittelpunktes zum Schirm betrug 56 mm. Mithilfe der Gleichung

$$|\vec{q}| = \frac{2\pi}{\Lambda}. \quad (3.19)$$

kann die Wellenzahl der periodischen Störung abgeschätzt werden.

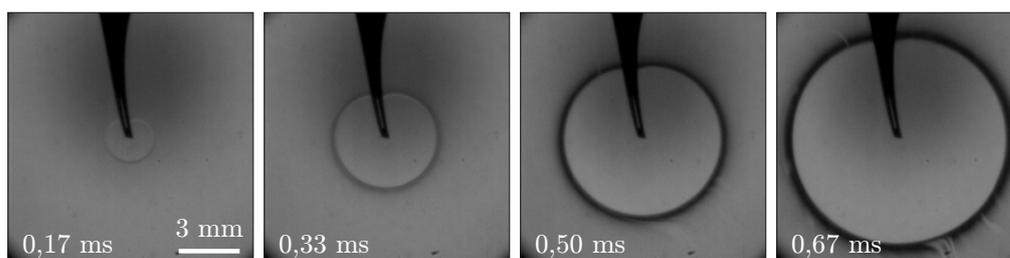


Abbildung 3.14: Das Reißen eines planaren smektischen Films (8CB), aufgespannt auf einen quadratischen Aluminiumrahmen mit einer Kantenlänge (Film) von 16 mm. Der Radius des Lochs im Film wuchs mit einer konstanten Geschwindigkeit an. Der Rand blieb bis kurz vor Erreichen des Rahmens kreisförmig.

3.4 Ergebnisse

Das Reißen planarer smektischer Filme

In Abb. 3.14 ist der Reißprozess eines *planaren* smektischen Films dargestellt. Die Bilderserie wurde mit dem in Abb. 3.8 dargestellten Versuchsaufbau aufgenommen. Die Aufnahmezeit betrug 6000 Bilder pro Sekunde. Im Strahlengang befand sich kein monochromatischer Filter. Zum Aufspannen des Films diente ein Aluminiumblech (0,8 mm stark), in das ein quadratisches Loch mit 16 mm Kantenlänge eingearbeitet war. Der Film wurde durch die Bewegung eines Bügels gezogen, der über der gesamten Öffnung verschoben werden konnte. Zur Herstellung des Films wurde der Flüssigkristall 8CB verwendet, da bei dieser Substanz die Filmdicke δ im Gleichgewicht an jedem Punkt des Films gleich groß ist. Wie oben beschrieben, sind smektische Filme stabil. Die Initiation des Reißprozesses geschah daher mit einer Glasnadel.

Die dynamische Entwicklung des Systems erfolgte weitgehend wie vom Modell (Abschnitt 3.1, *Modell zum Reißen von Filmen*) vorausgesagt. Der Rand des Lochs bewegte sich mit einer konstanten Geschwindigkeit nach außen. Die Abhängigkeit des Lochradius' von der Zeit ist in Abb. 3.15 dargestellt. Der Radius zu jedem Zeitpunkt wurde ermittelt, indem die Radien entlang vier verschiedener Ausrichtungen vermessen und das arithmetische Mittel dieser vier Werte gebildet wurde. Die Abweichungen der einzelnen Werte vom jeweiligen Mittelwert lagen in jedem Falle bei unter zwei Prozent. Das heißt, während des Reißens blieb der Rand des Lochs kreisförmig.

Die schwarze Linie entspricht dem Fit durch die Messpunkte. Der Anstieg der Linie spiegelt die Geschwindigkeit des Randes wider und wurde zu $v = 7,8$ m/s bestimmt. Unter der Annahme, dass Gl. 3.1 gelte, konnte mithilfe dieser Geschwindigkeit eine Filmdicke von etwa 920 nm abgeschätzt werden. Die zur Berechnung notwendigen stoffspezifischen Größen für 8CB sind im Anhang A zu finden.

Es wurde nicht der Versuch unternommen, die Filmdicke zu messen. Die Filmdicke smektischer *Blasen* kann im Vergleich zu planaren Filmen relativ einfach bestimmt werden. Eine berührungslose optische Methode, die eine Abschätzung

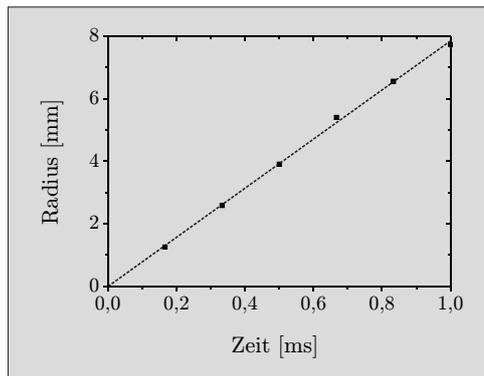


Abbildung 3.15: Lineare Abhängigkeit des Lochradius' von der Zeit beim Reißen eines smektischen Films. Die Reißgeschwindigkeit betrug $v = 7,8$ m/s. Die Filmdicke wurde gemäß Gl. 3.1 zu $\delta = 920$ nm bestimmt.

der Filmdicke rotationssymmetrischer Filmgeometrien (Blasen) erlaubt, wurde im Abschnitt 3.3, *Bestimmung der Filmdicke von Blasen*, erläutert. Bei konstanter Filmdicke ergibt sich ein ringförmiges Interferenzmuster (Abb. 3.9). Mit dieser Methode ist es möglich, die Filmdicke von Blasen selbst während des Reißens zu beobachten.

Dynamik des Reißens smektischer Blasen

In Untersuchungen zum Reißen sphärischer Filme (Blasen) konnte gezeigt werden, dass die Filmgeometrie keinen Einfluss auf die Dynamik des Reißens hat. Im Falle solcher reißender Blasen besteht allerdings, im Gegensatz zu planaren Filmen, die Möglichkeit, die Filmdicke selbst während des Reißens zu beobachten (Vgl. Abschnitt 3.3, *Bestimmung der Filmdicke von Blasen*). Es lag also nahe, die Dynamik des Reißprozesses anhand *sphärischer Geometrien* zu untersuchen.

Abbildung 3.16 zeigt das Reißverhalten sphärischer, smektischer Filme (8CB) mit verschiedenen Filmdicken. Die Zeitachse verläuft jeweils von oben nach unten. Es kam ein Versuchsaufbau zum Einsatz, der in Abb. 3.8 schematisch dargestellt ist.

Jede Spalte zeigt eine Blase, aufgenommen mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (Aufnahmerate: 15000 Bilder pro Sekunde). Die Bilder wurden durch Subtraktion des Hintergrundbildes (ohne Blase) korrigiert und der Kontrast wurde verstärkt. Der Zeitpunkt $t = 0$ wurde so gewählt, dass er mit dem Zeitpunkt der Entstehung des ersten Bildes übereinstimmt, auf dem ein Loch im Film beobachtet werden konnte. Der Reißprozess ging in jedem Falle in weniger als 5 ms vonstatten.

Die Filmdicken waren 100 nm, 580 nm und 1460 nm, die Blasenradien betragen 4,5 mm, 4,6 mm und 4,5 mm (v.l.n.r.). Die Filmdicke wurde ermittelt wie in Abschnitt 3.3, *Bestimmung der Filmdicke von Blasen*, beschrieben. Die Versuche wurden bei einer Temperatur von 27°C durchgeführt. Bei dieser Temperatur befindet sich der Flüssigkristall in der smektischen A-Phase.

Unabhängig von der Filmdicke blieb die sphärische Geometrie im unbeeinflussten Film während des Reißens weitgehend erhalten. Der Rand, der das Filmmaterial einsammelte, befand sich ungefähr auf der anfänglichen Kugeloberfläche.

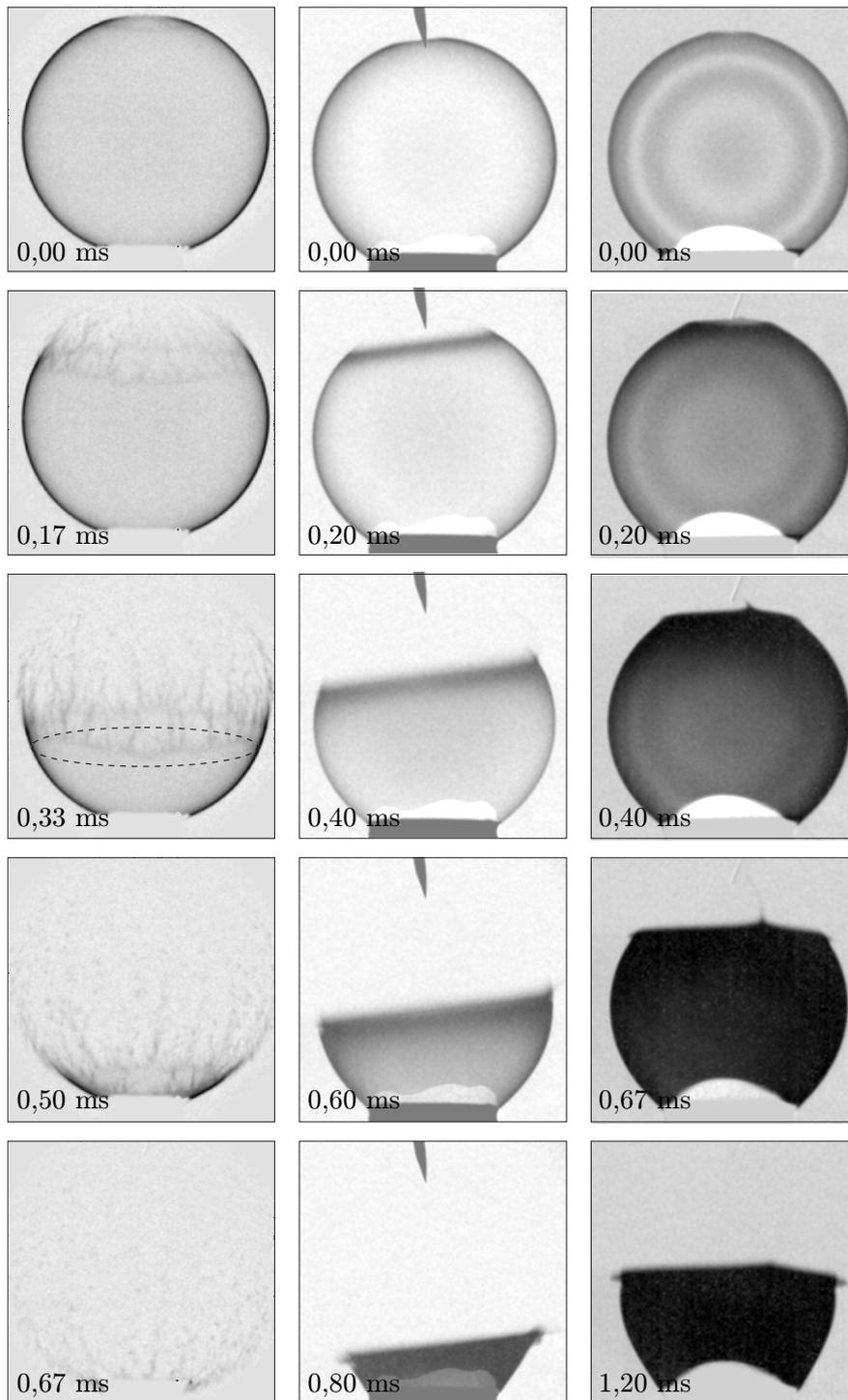


Abbildung 3.16: Diese Bilderserien zeigen das Reißverhalten smektischer Blasen (8CB), aufgenommen mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (15000 Bilder pro Sekunde). Die Zeitachse verläuft jeweils von oben nach unten. Die Filmdicken der Blasen waren 100 nm, 580 nm und 1460 nm, die Radien betragen 4,5 mm, 4,6 mm und 4,5 mm (v.l.n.r.). Die Versuche wurden bei einer Temperatur von 27°C durchgeführt. Die gestrichelte Linie im mittleren Bild der linken Spalte markiert die Position, an der sich der Rand nach Gl. 3.1 0,33 ms nach Beginn des Reißens befinden müsste. In den Videosequenzen *BubbleRupture-100nm.gif*, *BubbleRupture-890nm.gif* und *BubbleRupture-1460nm.gif* auf der CD ist der Reißprozess für Filme mit vergleichbaren Filmdicken zu sehen.

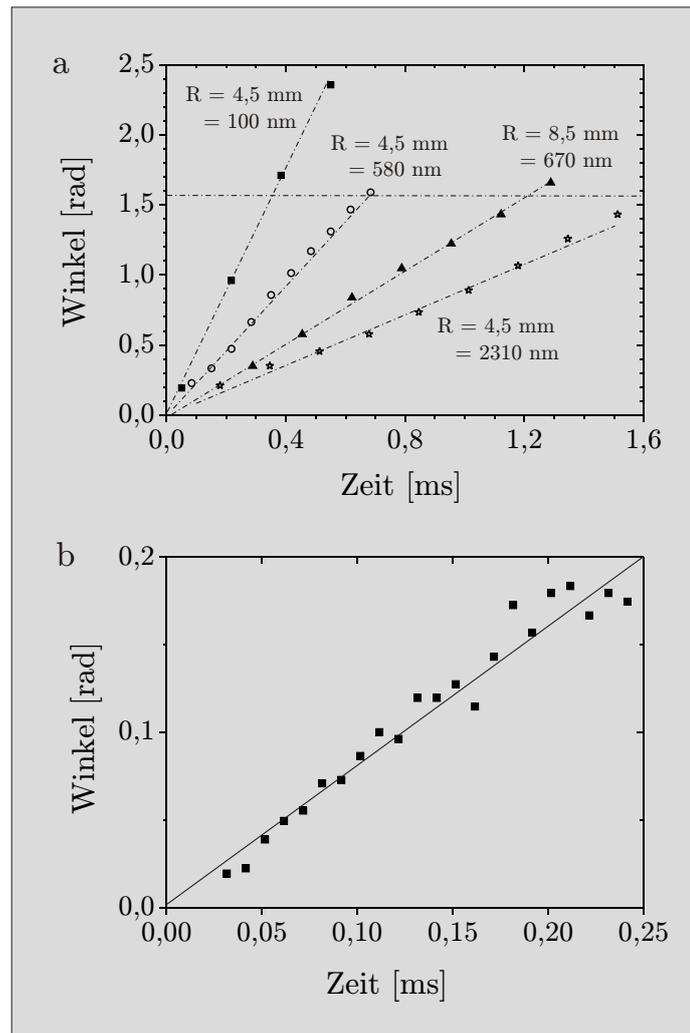


Abbildung 3.17: a) Zeitabhängigkeiten des Öffnungswinkels smektischer Blasen (8CB) verschiedener Filmdicken und Radien. Die Versuche wurden bei einer Temperatur von 27°C durchgeführt. Die Geraden entsprechen einem linearen Fit durch die Messwerte. Die Zeitachse wurde so gewählt, dass der Fit jeweils durch den Koordinatenursprung verläuft. b) Auch eine Untersuchung mit einer höheren zeitlichen Auflösung von 120000 Bildern pro Sekunde ergab eine lineare Abhängigkeit des Öffnungswinkels von der Zeit.

Abbildung 3.17a zeigt die Abhängigkeit des Öffnungswinkels φ (Abb. 3.2, S. 17) von der Zeit. Es sind vier Messergebnisse für Blasen mit jeweils unterschiedlichen Filmdicken bzw. Radien dargestellt. Die Abhängigkeit war linear, was dem in Abschnitt 3.1, *Modell zum Reißen von Filmen*, beschriebenen Vorstellungen entspricht. Die gestrichelten Linien entsprechen den linearen Fits durch die Messwerte. Die Koordinatenachsen wurden so gewählt, dass die Fitkurven jeweils durch den Koordinatenursprung verlaufen.

Nach Gl. 3.1 sollte die Reißgeschwindigkeit wie $\delta^{-1/2}$ von der Filmdicke abhängen. Dünnere Filme reißen demnach schneller. Diese Abhängigkeit war im Experiment gut nachzuweisen. In Abb. 3.17a ist Anstieg der Fitgeraden, und damit v , für Blasen

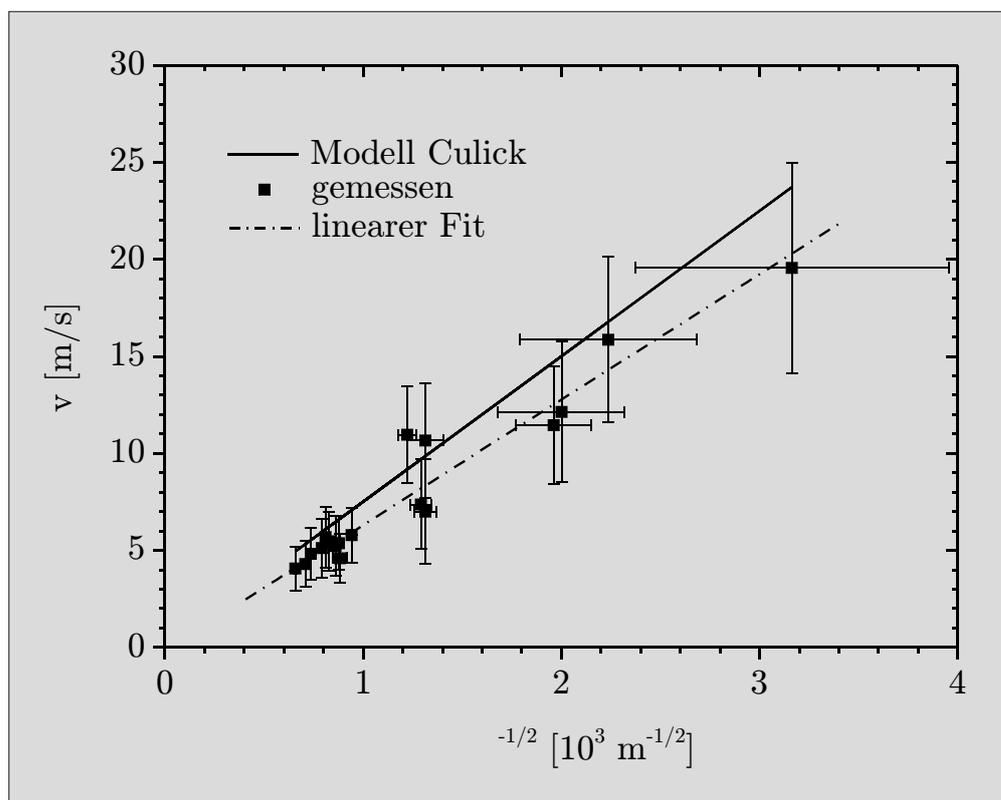


Abbildung 3.18: Geschwindigkeit des Randes reißender Blasen (8CB, aufgenommen bei 27°C) in Abhängigkeit von $\delta^{-1/2}$. Die gemessenen Geschwindigkeiten liegen deutlich unter den vom Modell vorausgesagten Werten (durchgehende Linie).

gleichen Radius' umso steiler, desto dünner der Film war, dessen Reißgeschwindigkeit untersucht wurde.

In Abb. 3.17b ist die zeitliche Abhängigkeit des Winkels einer reißenden smektischen Blase (8CB) dargestellt, aufgenommen mit der größtmöglichen Aufnahme­rate von 120000 Bildern pro Sekunde, die seitens der Kamera zur Verfügung stand. Die Filmdicke der Blase betrug 1950 nm, der Blasenradius 6,1 mm. Auch bei solch einer großen zeitlichen Auflösung konnte ein linearer Zusammenhang zwischen dem Öffnungswinkel und der Zeit nachgewiesen werden. Die Geschwindigkeit ist also, soweit es die Feststellung durch die angewendete Messmethode erlaubte, von Beginn des Reißens an konstant. Das bedeutet, das Reißen eines dünnen 8CB-Films kann als nicht-viskos angesehen werden. Im viskosen Fall wäre eine Abweichung von der Linearität dieser Beziehung zu verzeichnen (Abschnitt 3.2, *Die Reißgeschwindigkeit von planaren Filmen und Blasen*). Die Randgeschwindigkeit nach CULICK würde im viskosen Fall erst nach einer Beschleunigungsphase erreicht.

Mithilfe dieser Untersuchungen konnte der Versuch unternommen werden, den Faktor 2 in Gl. 3.1 zu verifizieren. Dazu wurde v über $\delta^{-1/2}$ für 18 Messungen aufgetragen (Abb. 3.18). Die gemessenen Werte der Geschwindigkeit betragen zwischen 4,1 und 19,6 m/s für Filmdicken im Bereich von 100 bis 2310 nm. Es stellte sich

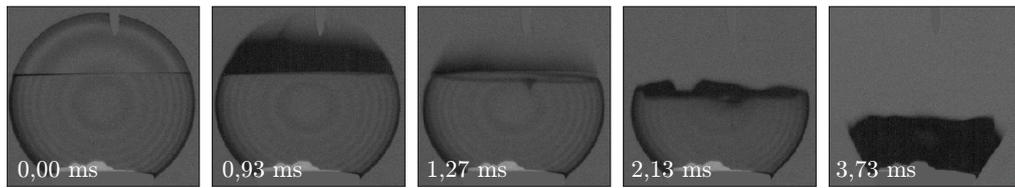


Abbildung 3.19: Eine smektische Blase mit Bereichen verschiedener Filmdicke (oben 1490 nm und unten 5630 nm). Diese sind durch eine horizontale Stufe (meniskusförmig) voneinander abgegrenzt. Während des Reißens tritt die beobachtete Lichtstreuung nur in dem Gebiet gleicher Filmdicke auf, in dem sich der sich fortbewegende Rand des Films befindet.

heraus, dass diese Abhängigkeit zwar linear ist, aber eine Abweichung vom Modell zu verzeichnen war. Der Anstieg des linearen Fits (gestrichelte Linie in Abb. 3.18) durch die Messwerte war etwa um 10 % zu niedrig, verglichen mit der vom Modell zu erwartenden Abhängigkeit.

Die gestrichelte Linie in Abb. 3.16 soll diesen Sachverhalt verdeutlichen. Sie entspricht der Position des Randes, die vom Modell nach 0,33 ms berechnet werden kann. Der mit der Hochgeschwindigkeitskamera beobachtete Rand liegt deutlich über dieser Linie.

An dieser Stelle soll auf zwei weitere Phänomene hingewiesen werden. Zum einen konnte eine Abnahme der Intensität des transmittierten Lichts festgestellt werden, die umso stärker war, je dicker die Filme waren (Abb. 3.16, rechte Spalte). Es trat sowohl eine globale Abnahme der transmittierten Intensität, als auch ein Vorschreiten einer dunklen Front in Richtung des Meniskus, die sich schneller als der Rand bewegte, auf. Eine solche Verdunklung der Blase wurde nur für Filmdicken größer als $\sim 1 \mu\text{m}$ beobachtet.

Wies eine Blase mehrere Bereiche konstanter Filmdicke auf, die durch eine Stufe voneinander abgetrennt waren, so trat jeweils nur in dem Bereich Lichtstreuung auf, in dem sich der Rand des reißenden Films befand. Abbildung 3.19 zeigt eine smektische Blase mit zwei Bereichen konstanter Filmdicke: oben 1490 nm und unten 5630 nm. Die Bereiche unterschiedlicher Filmdicke sind durch einen Meniskus voneinander abgetrennt.

Zum zweiten zeigte sich, dass der Rand im Falle dünner Filme (hohe Geschwindigkeiten des Randes) instabil wurde. Das heißt, der Rand blieb nicht kreisförmig, wie vom Modell vorausgesagt. Es bildeten sich fingerähnliche Strukturen (Abb. 3.16, linke Spalte). Solche Strukturen waren nur im Falle dünner Filme ($\delta < 0,5 \mu\text{m}$) detektierbar.

Auf die beiden zuletzt beschriebenen Effekte soll später gesondert eingegangen werden.

Die Form smektischer Blasen während des Reißens

In den vorangegangenen Betrachtungen wurde von einem statischen Verhalten der Filmelemente, die sich nicht in der Nähe des Randes befinden, ausgegangen. Dieses

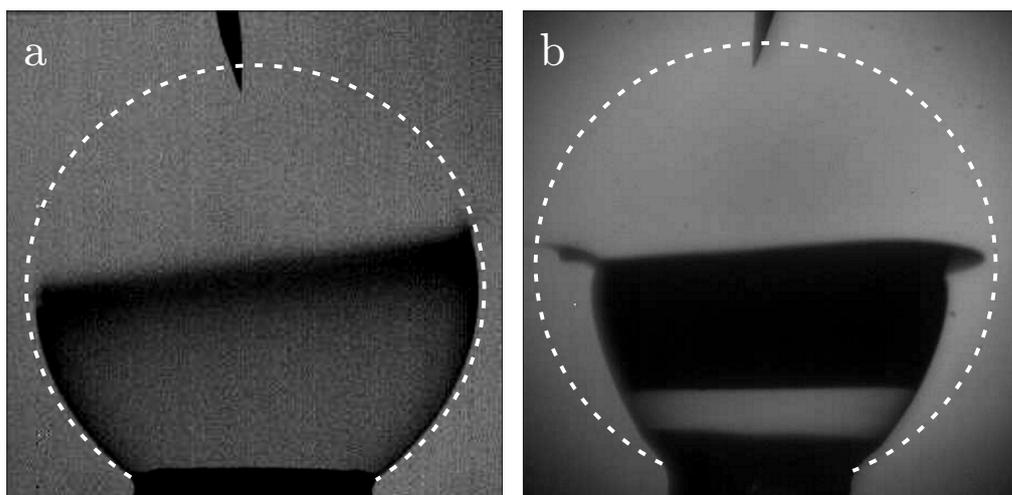


Abbildung 3.20: Abhängigkeit der Form einer smektischen Blase während des Reißens von der Filmdicke. Es wurde die Substanz 8CB verwendet, die Experimente fanden bei einer Temperatur von 27°C statt. a) Blase mit einer Filmdicke von 580 nm und einem Radius von 4,5 mm. Nachdem der Rand die obere Hemisphäre passiert hat, war keine deutliche Abweichung des Films unterhalb des Randes von der anfänglichen, idealen Kugelform (weißer, gestrichelter Kreis) zu erkennen. b) Der Film unterhalb des Randes bewegte sich in Richtung zum Mittelpunkt der Blase. Der Rand der Blase blieb (nahezu) auf der Kreisbahn. Die Filmdicke betrug 2310 nm, der Radius 4,4 mm.

Verhalten konnte für Filmdicken von weniger als 1 μm bestätigt werden.

In Abb. 3.20 ist die Form zweier smektischer Blasen unterschiedlicher Filmdicke dargestellt. In beiden Fällen wurde das Filmmaterial der oberen Hemisphäre vom Rand überstrichen. Die weiße gestrichelte Linie veranschaulicht die Form der Blase vor dem Beginn des Reißens.

Abbildung 3.20a zeigt eine Blase mit einer Filmdicke von $\delta = 580$ nm und einem Radius von 4,5 mm. Der Rand des Lochs befindet sich auf der weißen gestrichelten Linie. Der verbleibende Film behält die Form eines Kugelabschnitts.

Im Gegensatz dazu konnte für Filmdicken von mehr als 1 μm mit der verwendeten Methode eine Inwärtsbewegung des Films in Richtung des Mittelpunkts der Blase nachgewiesen werden, die Blase fiel in sich zusammen. Dieser Effekt ist in Abb. 3.20b dargestellt. Die hier dargestellte Blase wies eine Filmdicke von 2310 nm und einen Radius von 4,4 mm auf. Der Rand bewegte sich weiterhin auf der ursprünglichen Bahn (weiße gestrichelte Linie), aber es bildete sich eine Krempe aus. Dieser Effekt war umso stärker ausgeprägt, desto größer die Filmdicke war. Die zeitliche Veränderung einer Krempe ist in einer Detailaufnahme in Abb. 3.21 zu sehen. Der Radius der hier abgebildeten smektischen Blase betrug vor dem Reißen 5,6 mm. Die Filmdicke war 2560 nm. Die Krempe wuchs während des Reißens kontinuierlich an.

Wie bereits erwähnt, entsteht durch die Krümmung der Blase für die typischen Blasenradien in den hier beschriebenen Experimenten von etwa 5 mm ein Druckunterschied von einigen Zehn Pascal im Inneren der Blase im Vergleich zu Außen. Dieser Druckunterschied kann bei einer geschlossenen Blase nicht ausgeglichen wer-

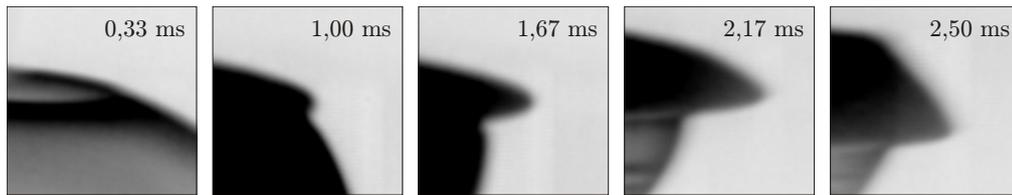


Abbildung 3.21: Zeitliche Entwicklung einer Krempe während des Reißens smektischer Blasen mit Filmdicken größer als $\sim 1 \mu\text{m}$. Der Radius der hier abgebildeten smektischen Blase (8CB) betrug vor dem Reißen 5,6 mm. Die Filmdicke war 2560 nm.

den. Sobald sich aber ein Loch im Film befindet, ist ein solcher Druckausgleich möglich und geht mit einer Bewegung der Filmelemente nach Innen einher.

Für Filme mit einer Dicke von mehr als $1 \mu\text{m}$ dauert das Reißen mehrere Millisekunden. Im Gegensatz dazu reißen dünne Filme ($\delta < 1 \mu\text{m}$) reißen zu schnell, als dass der Film in lateraler Richtung beschleunigt wird.

Eine Krempe konnte im Falle von Blasen aus einem Tensidgemisch [29] nicht nachgewiesen werden. Allerdings wurden für die Untersuchung in dieser Arbeit ausschließlich Seifenblasen mit geringeren Filmdicken verwendet.

Geschwindigkeitsfelder des Films

Im oben beschriebenen Modell (Abschnitt 3.1) wurden Filmelemente als ungestört angenommen, bis sie vom Rand eingesammelt werden. Die Betrachtungen des vorangegangenen Abschnitts legen allerdings nahe, dass Filmelemente einer reißenen Blase, die sich während des Reißens nicht in unmittelbarer Nähe zum Rand befinden, nicht unbeeinflusst bleiben.

In diesem Abschnitt wird die Bewegung der Filmelemente in Richtung der Filmebene zwischen dem voranschreitenden Rand und dem Meniskus während der ersten Millisekunde des Reißens einer smektischen Blase (8CB) untersucht. Dies geschah mit der in Abschnitt 3.3, *Messung von Geschwindigkeitsfeldern*, beschriebenen Methode. Unmittelbar vor dem Reißen wurden Glaspartikel ($\varnothing \sim 30 \mu\text{m}$) durch Pusten aufgebracht, welche mit der Hochgeschwindigkeitskamera verfolgt werden konnten.

Abbildung 3.22 stellt eine smektische Blase (8CB, aufgenommen bei 27°C) zu zwei verschiedenen Zeitpunkten dar. Die Filmdicke betrug 2650 nm. Der Kontrast wurde verstärkt. Im linken Bild ist die Blase unmittelbar vor dem Reißen, im rechten Bild ist die gleiche Blase 1 ms nach Beginn des Reißens abgebildet. Die Geschwindigkeit des Filmrandes wurde zu $v = 3,9 \text{ m/s}$ bestimmt. Damit ergibt sich 1 ms nach dem Anstechen ein Öffnungswinkel von $\varphi = 0,58 \text{ rad}$ (φ bezeichnet den Winkel bezüglich der anfänglichen Lochposition, Vgl. Abb. 3.2).

Die ausgefüllten⁷ Kreise stellen in beiden Bildern die Positionen von drei Glas-

⁷Aufgrund der Qualität der Bilder sind die Glaspartikel nicht sehr gut auszumachen und wurden hier mit jeweils einem Punkt markiert. Einen guten Eindruck von der Bewegung bekommt man im Video *ParticlesMovement.gif*, das auf der mitgelieferten CD zu finden ist.

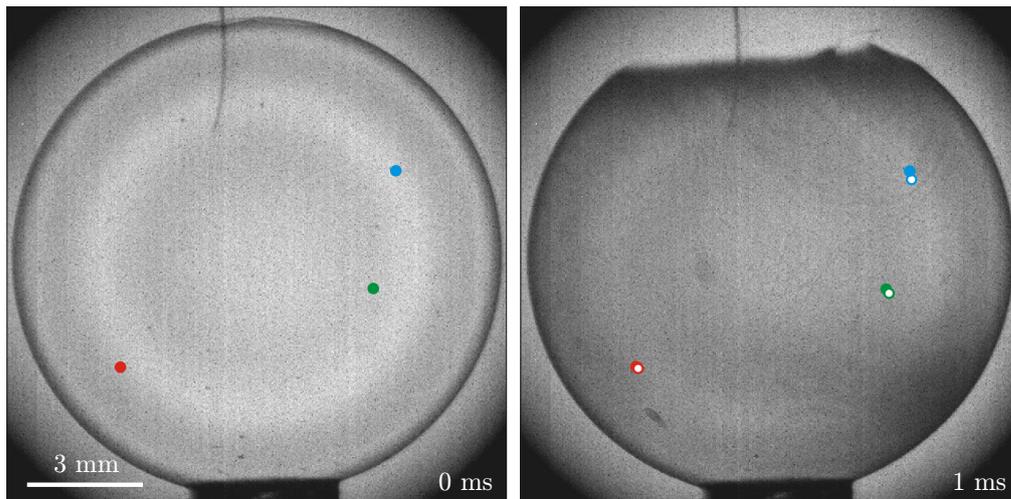


Abbildung 3.22: Hier ist eine smektische Blase (8CB, aufgenommen bei 27°C) dargestellt, auf der sich Glaspartikel befinden. Der Blasenradius betrug 6,7 mm die Filmdicke 2650 nm. Die anfängliche Position dreier Partikel ist durch farbig gefüllte Kreise in jedem der Bilder markiert. Die Partikel veränderten während des Reißens ihre Position. Die veränderte Position nach 1 ms ist im rechten Bild durch weiß gefüllte Kreise der entsprechenden Randfarbe gekennzeichnet.

partikeln unmittelbar vor dem Beginn des Reißens dar. Im rechten Bild markieren die weiß gefüllten Kreise die Positionen der gleichen drei Partikel 1 ms nach Beginn des Reißens.

Es zeigte sich, dass eine Bewegung der markierten Filmelemente in Richtung des Meniskus stattfand. Im rechten Bild befinden sich die durch die weiß gefüllten Kreise markierten Positionen unterhalb der Ausgangspositionen. Dieser Effekt ist besonders deutlich für die mit blau und grün markierten Partikel. Hieraus lässt sich schließen, dass der Rand nicht das gesamte Filmmaterial in sich aufnimmt und Filmelemente, die sich nicht in unmittelbarer Nähe des Randes befinden, vor sich her schiebt.

Nimmt man eine Bewegung der Filmelemente an, die ohne eine Änderung der Filmdicke einhergeht, müssten die Änderungen der Positionen und die Geschwindigkeiten symmetrisch zum Äquator ($\varphi = \pi/2$) sein. Ist die Geschwindigkeit eines Filmelements bei einem Winkel φ_1 bekannt (zum Beispiel an der mit dem blauen Punkt markierten Position), ergibt sich für ein inkompressibles Medium die Geschwindigkeit an einem anderen Punkt 2 bei einem Winkel φ_2 nach

$$v_2 = \frac{\sin \varphi_1}{\sin \varphi_2} v_1. \quad (3.20)$$

Hierbei sind v_i die Geschwindigkeiten und φ_i die Winkel, die zu den Positionen i gehören. Diese Beziehung ist in Abb. 3.23 durch die blaue Kurve dargestellt. Als Referenzgeschwindigkeit v_1 zum Referenzwinkel φ_1 wurde das gemessene Wertepaar $v(0,71) = 0,77$ m/s zugrunde gelegt. Unter der Annahme einer konstanten Filmdicke ist die Geschwindigkeit der Filmelemente am Äquator minimal. Bezüglich dieses Winkels $\varphi = \pi/2$ sind die Geschwindigkeiten benachbarter Filmelemente

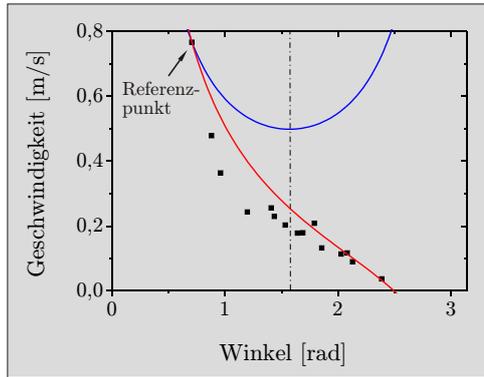


Abbildung 3.23: Transversale Geschwindigkeit des Films, gemittelt über 1 Millisekunde nach Beginn des Reißens, in Abhängigkeit vom Winkel. Die gemessenen Werte weichen stark von der blauen Kurve (nach Gl. 3.20) ab, so dass man auf eine Erhöhung der Filmdicke während des Reißens schließen kann. Wird eine Erhöhung der Filmdicke um 5 % angenommen, so kann mithilfe Gl. 3.23 eine passende Kurve rekonstruiert werden (rote Kurve). Zur Auswertung wurde die in Abb. 3.22 dargestellte Blase verwendet.

gemäß Gl. 3.20 größer.

Im Experiment konnte hingegen eine Abweichung vom Verlauf dieser Kurve gemessen werden. Die Messwerte sind in Abb. 3.23 durch die schwarzen Quadrate dargestellt. Die Geschwindigkeiten wurde bestimmt, indem die Positionen der Partikel zu Beginn des Reißens und sechs Bilder später verglichen wurde. Bei einer Aufnahme rate von 6000 Bildern pro Sekunde entspricht die Zeitdifferenz 1 ms. Die Geschwindigkeit des Partikel wurde während dieser Zeitdifferenz als konstant angenommen.

Diese gemessenen Geschwindigkeiten weichen stark von der blauen Kurve ab, was zusätzlich zur Bewegung des Films in Filmebene auf eine *Vergrößerung der Filmdicke* schließen lässt. Gilt die Annahme einer zeitlich konstanten Filmdicke nicht, so wird pro Zeiteinheit mehr Filmmaterial in ein Winkelement $d\varphi$ transportiert, als abfließen kann (Vgl. Abb. 3.24). In diesem Fall muss Gl. 3.20 umgeschrieben werden. Das Volumen pro Winkelement verhält sich wie

$$\Delta V = v_1 \Delta t 2\pi R \delta \sin \varphi_1 - v_2 \Delta t 2\pi R \delta \sin \varphi_2. \quad (3.21)$$

Die Änderung des Volumens geht mit dem Anstieg der Filmdicke einher:

$$\Delta V = A \Delta \delta. \quad (3.22)$$

Ersetzt man die Fläche des Winkelements durch $A = 2\pi R^2(\cos \varphi_1 - \cos \varphi_2)$, so ergibt sich

$$v_2 = \frac{\sin \varphi_1 v_1 - \frac{\Delta \delta}{\delta} \frac{R}{\Delta t} (\cos \varphi_1 - \cos \varphi_2)}{\sin \varphi_2}. \quad (3.23)$$

Diese Gleichung führt für $R = 6,7$ mm und $dt = 1$ ms zur roten Kurve in Abb. 3.23, wenn eine relative, *globale* Filmdickenänderung von $\Delta \delta / \delta = 0,05$ angenommen wird. Als Referenz wurden wieder der Winkel $\varphi_1 = 0,71$ rad und die dazugehörige Geschwindigkeit $v_1 = 0,77$ m/s verwendet.

Die hier vorgeschlagene Betrachtungsweise ist insofern unzureichend, als dass die Geschwindigkeit über den Zeitraum von 1 ms (sechs Bilder der Sequenz) gemittelt wurde. Dies war erforderlich, da die Verschiebung der Partikel für kürzere

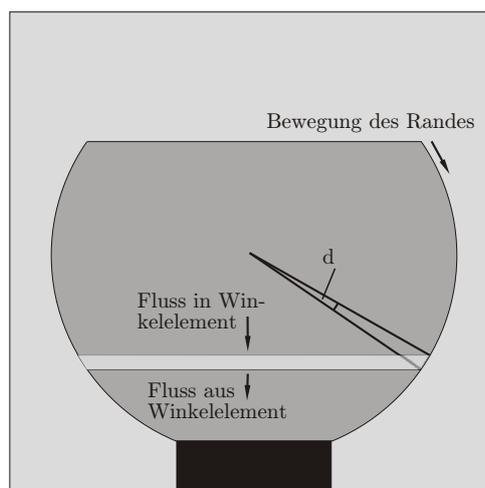


Abbildung 3.24: Schematische Darstellung des Flusses durch ein Winkelement $d\varphi$ einer reißenden Blase.

Beobachtungsdauern bei der gegebenen Auflösung (512×512 Pixel) umso weniger detektierbar ist, je weiter sie vom Rand entfernt waren. Die Messungenauigkeit führt für eine Mittelung über kleinere Zeiten zu nicht auswertbaren Ergebnissen. Für eine Analyse der Filmdickenänderung und der lateralen Geschwindigkeit in Abhängigkeit vom Abstand der Filmelemente zum Rand ist eine höhere räumliche Auflösung nötig.

Weiterhin stellt die in Abschnitt 3.4, *Dynamik des Reißens smektischer Blasen*, beschriebene Abnahme der Intensität des transmittierten Lichts ein Problem bei der Bestimmung der Partikelpositionen dar. Das heißt, die Partikel können nur für einen relativ kleinen Zeitraum zu Beginn des Reißens beobachtet werden. Im untersuchten Fall war die Dauer, während der die Positionen der Partikel bestimmt werden konnten, auf 1 Millisekunde beschränkt.

Erhöhung der Filmdicke während des Reißens

Im vorangegangenen Abschnitt wurde die Erhöhung der Filmdicke während des Reißens *smektischer* Blasen beschrieben. Die gemessenen Geschwindigkeiten von Glaspartikeln auf dem reißenden Film in Abhängigkeit vom Winkel φ konnten durch die Annahme des Filmdickenanstiegs in der Größenordnung von 5 % reproduziert werden. Ein weiteres Indiz, das auf eine Filmdickenänderung schließen lässt, wird in diesem Abschnitt beschrieben.

Wie im Abschnitt 3.3, *Bestimmung der Filmdicke von Blasen*, beschrieben, hängt das Interferenzmuster des von einer smektischen Blase transmittierten monochromatischen Lichts von der Filmdicke ab. Die Erhöhung der Filmdicke zieht das Wandern der Interferenzmaxima nach außen nach sich. Mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (6000 Bilder pro Sekunde) konnte dieses Verhalten beobachtet werden, sobald eine Blase zu reißen begann. In der Videosequenz *thickening.gif* auf der CD, die dieser Arbeit beigelegt ist, ist diese Veränderung der Positionen der Interferenzmaxima deutlich erkennbar.

Die Positionsveränderung der Interferenzringe ist in Abb. 3.25 dargestellt. Die



Abbildung 3.25: Das Bild zeigt die zeitliche Abhängigkeit des horizontalen Querschnitts durch eine smektische Blase. Der sphärische Film bestand aus der Substanz 8CB. Die Filmdicke betrug 2310 nm, der Radius 4,5 mm. Die Zeitachse verläuft von oben nach unten. Die Verschiebung der Interferenzringe (weißer Pfeil) bestätigt die im vorigen Abschnitt gefundene Erhöhung der Filmdicke.

Filmdicke der hier dargestellten Blase betrug 2310 nm, der Radius der Blase war 4,5 mm. Es wurde für neun Bilder der mit der Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommenen Bildersequenz der horizontale Querschnitt durch die Mitte der Blase extrahiert und in zeitlicher Reihenfolge aneinandergereiht. Die Zeitachse verläuft von oben nach unten, die Zeit $t = 0$ wurde so gewählt, dass die Initiation des Reißens zu diesem Zeitpunkt stattfand.

Die Veränderung der Position der Interferenzringe (weißer Pfeil in Abb. 3.25) nach außen ist deutlich erkennbar. Das Diagramm auf der rechten Seite zeigt die relative Filmdicke δ , bezogen auf die anfängliche Filmdicke δ_0 . Es konnte eine Erhöhung der Filmdicke in der Größenordnung von 2 % gemessen werden. Diese Änderung stimmt zumindest in der Größenordnung mit dem Ergebnis aus dem vorigen Abschnitt überein. Aus der Beobachtung der Bewegung von Glasparkeln auf dem Film wurde eine Erhöhung der Filmdicke von ~ 5 % abgeschätzt.

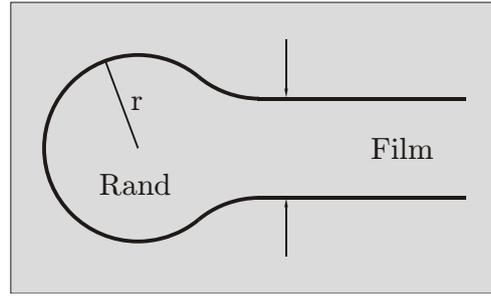
Im Abschnitt 3.4, *Dynamik des Reißens smektischer Blasen*, wurde die Verdunklung der Blasen mit Filmdicken von mehr als ~ 1 μm in Transmission beschrieben. Dieser Effekt erlaubt die Beobachtung der Interferenzringe nur während eines kurzen Stadiums zu Beginn des Reißens, so dass diese Beobachtungsmethode keine Aussagen über die tatsächliche Änderung der Filmdicke zulässt.

Solange die Ringe beobachtet werden konnten, blieben sie konzentrisch, was auf eine globale Erhöhung der Filmdicke schließen lässt. Die Ursache für diese globale Erhöhung der Filmdicke könnte der zusätzliche Druck sein, der von der Krümmung des Randes herrührt (Abb. 3.26). Mit dem Vorhandensein des Randes ist ein plötzlicher Druckanstieg im Inneren des Film verbunden. Dieser LAPLACE-Druck errechnet sich zu

$$dp = \frac{\sigma}{r}. \quad (3.24)$$

Der Radius r des Querschnitts des als zylinderförmig angenommenen Randes (entspricht dem 1. Hauptkrümmungsradius) hängt vom Öffnungswinkel φ (Abb. 3.2, S. 17) ab, da das Filmmaterial während des Reißens vom Rand aufgenommen wird und der Rand dadurch anschwillt. Die Krümmung entlang des 2. Hauptkrüm-

Abbildung 3.26: Idealisierter Querschnitt des Randes beim Reißen eines Films. Der Rand nimmt (fast) das gesamte Filmmaterial auf, wodurch der Radius r des Querschnitts anwächst.



mungsradius, der dem Radius des Lochs im Film entspricht, wird in den folgenden Betrachtungen vernachlässigt, da sie vergleichsweise klein ist. Nimmt man an, dass der Rand das gesamte Filmmaterial der überstrichenen Kugelkappe in sich aufammelt, so ergibt sich unter der Annahme der Volumenerhaltung der Radius r des Randes:

$$V_{\text{Rand}} = 2\pi \sin \varphi R 2\pi r^2 = 2\pi R^2 (1 - \cos \varphi) \delta = V_{\text{Kugelkappe}}. \quad (3.25)$$

Hierbei ist R der Radius der Blase, die Oberflächenspannung beträgt $\sigma = 0,028 \text{ N/m}$. Mithilfe von Gl. 3.25 ergibt sich aus Gl. 3.24 ein Druckunterschied von

$$dp = \sigma \sqrt{\frac{2\pi \sin \varphi}{R\delta (1 - \cos \varphi)}}. \quad (3.26)$$

Die Geschwindigkeit des Randes ist um mindestens zwei Größenordnungen kleiner als die Schallgeschwindigkeit im Flüssigkristall. Das heißt, die Ausbreitung des Druckunterschiedes Δp im Film kann als instantan angenommen werden.

Dieser Druckunterschied im Inneren des Films führt zu einer Dilatation der Filmelemente in Richtung der Filmmormalen. Das heißt, die Filmdicke wächst an. Die elastische Energie einer Fläche A im Falle einer Schichtkompression bzw. -dilatation ist nach [59] durch

$$w_{\text{kompr}} = \int \frac{1}{2} B \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 dx dy \quad (3.27)$$

gegeben. Diese Gleichung kann zu

$$F dz = B \underbrace{\frac{\partial u}{\partial z}}_{d\delta} dz \int dx dy. \quad (3.28)$$

umgeschrieben werden. Die Kraft F kann mithilfe der Beziehung $F = A dp$ ersetzt werden. Weiterhin gilt $\int dx dy = A$. Unter der Annahme, dass $dz \approx \delta$, kann man Gl. 3.28 zu

$$\frac{d\delta}{\delta} = \frac{dp}{B} = \frac{\sigma}{B} \sqrt{\frac{\pi \sin \varphi}{\delta R (1 - \cos \varphi)}}. \quad (3.29)$$

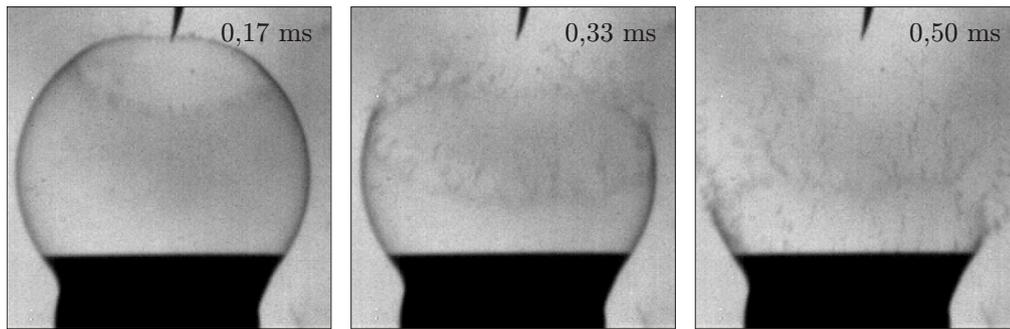


Abbildung 3.27: Ausbildung von Fingerstrukturen beim Reißen einer smektischen Blase (8CB) mit einer Filmdicke von (260 ± 30) nm. Der Rand bewegte sich mit einer Geschwindigkeit von etwa 14,7 m/s. Der Radius der Blase betrug 3,3 mm (hier wurde eine Kapillare mit einem Durchmesser von 4,6 mm verwendet). Das Experiment wurde bei einer Temperatur von 27°C durchgeführt. Diese Instabilität trat nur für Blasen mit Filmdicken bis ~ 350 nm auf.

ableiten.

Für die Blase in Abb. 3.25 mit einer Filmdicke von 2310 nm und einem Radius von 4,5 mm ergibt diese grobe Abschätzung eine Änderung der Filmdicke in der Größenordnung von 0,2 %. Für die Schichtkompressibilität B wurde ein Wert in der Größenordnung von $\sim 10^7$ N/m² angenommen. Aus dieser geringen Änderung der Filmdicke lässt sich schließen, dass die plötzliche Zunahme des inneren Drucks zu einer *globalen Vergrößerung der Filmdicke* beiträgt. Diese Änderung ist jedoch relativ klein im Vergleich zur im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Änderung (~ 5 %), die von der φ -abhängigen Geschwindigkeit der Filmelemente herrührt, so dass die Änderung des inneren Drucks nicht ausreicht, um die im Experiment gemessene Erhöhung der Filmdicke hervorzurufen.

Die Betrachtungen in diesem Abschnitt sind insofern nicht korrekt, als dass die Berechnungen für den statischen Fall und instantane Filmdickenänderung gelten. Weiterhin stellt die Annahme, die Abweichung der Schichten von der Gleichgewichtsposition $\partial u/\partial z$ sei linear abhängig von z , nur eine Näherung dar.

Der Rand während des Reißens

Im Modell im Abschnitt 3.1, *Modell zum Reißen von Filmen*, wurde die Annahme gemacht, der Rand des Films bleibe zu jeder Zeit kreisförmig (Abb. 3.1, S. 16) und sammle die Elemente des Films gleichmäßig auf. Der Querschnitt des Randes wird als kreisförmig idealisiert. Allerdings wurde von PANDIT und DAVIDSON festgestellt, dass der Rand reißender Blasen aus einem Tensidgemisch Instabilitäten ausbildet [29]. Es bilden sich Fingerstrukturen. Die zeitliche Entwicklung der Instabilitäten des Randes wurde von FULLANA und ZALESKI theoretisch untersucht [42]. Es wurde angenommen, dass die Instabilität äquivalent zur RAYLEIGH-PLATEAU-Instabilität⁸ ist.

⁸Die RAYLEIGH-PLATEAU-Instabilität ist eine durch die Kapillarkraft getriebene Instabilität eines zylindrischen flüssigen Körpers, welcher im Verlauf seiner Evolution von selbst in ei-

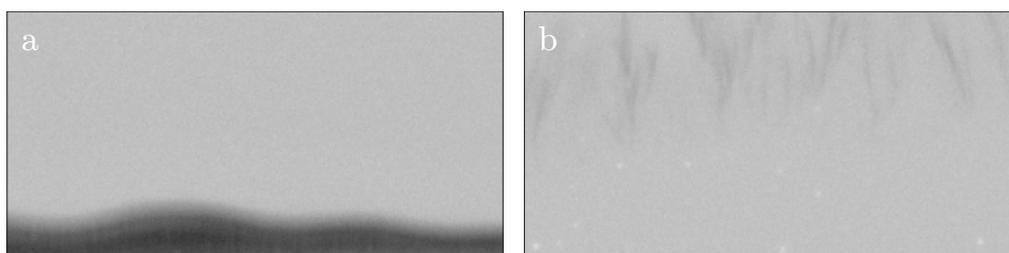


Abbildung 3.28: Weitere Beispiele für Blasen, die während des Reißens eine Instabilität des Randes aufwiesen. Die Filmdicken wurden zu a) 330 nm und b) 220 nm abgeschätzt. Eine Korrelation von Wellenlänge der Instabilität und der Filmdicke ist deutlich erkennbar.

Die Ausbildung der Fingerstrukturen konnte auch im Falle smektischer Blasen gefunden werden. Abbildung 3.27 zeigt eine reißende Blase mit einer anfänglichen Filmdicke von 260 nm und einem Radius von 3,3 mm zu verschiedenen Zeitpunkten. Die Zersetzung des Randes ist deutlich erkennbar. Eine solche Instabilität des Randes konnte für Blasen mit Filmdicken von weniger als ~ 350 nm nachgewiesen werden.

Im Falle planarer Filme wurde diese Zersetzung des Randes nicht gefunden (Vgl. Abb. 3.14). Allerdings wurde das Reißen planarer Filme nur für Dicken von mehr als 800 nm beobachtet, so dass auf das Auftreten von Fingern für vergleichsweise dünne Filme nicht geschlossen werden kann.

Die Randinstabilität wurde in sechs Experimenten beobachtet. Zwei Beispiele sind in Abb. 3.28 dargestellt. Diese Bilder zeigen einen vergrößerten Ausschnitt zweier Blasen, die vor dem Reißen eine Filmdicke von 330 nm bzw. 220 nm aufwiesen. In diesen Experimenten konnte zumindest tendenziell eine Abhängigkeit der Wellenlänge der Instabilität von der anfänglichen Filmdicke, und damit von der Reißgeschwindigkeit, erkannt werden. Die Quantifizierung dieses Zusammenhangs ist noch offen.

Einfluss der flüssigkristallinen Phase auf das Reißverhalten

Es sollte untersucht werden, welchen Einfluss die smektische Phase auf das Reißverhalten flüssigkristalliner Filme hat. Dazu wurde das Reißen von Blasen aus der Substanz Felix16 unter den gleichen Bedingungen wie für 8CB-Filme mit der Hochgeschwindigkeitskamera beobachtet. Felix16 befindet sich bei Raumtemperatur (23°C) in der smektischen C^* -Phase.

Bei den bisher beschriebenen Blasen aus 8CB bilden sich nach einer Relaxationszeit Filme homogener Dicke heraus, da sich Bereiche mit geringerer Filmdicke ausbreiten. Im Unterschied dazu breitet sich bei einem dünnen Film aus Felix16 nicht der Bereich der geringsten Filmdicke aus. Das heißt, es stellt sich nach einer Relaxationszeit kein Gleichgewicht ein, bei dem der Film an jeder Stelle die gleiche

ne Teilchenkette zerfällt. Der Teilchenabstand ist nicht beliebig, sondern überschreitet einen kritischen Wert, dabei wird die freie Energie (Oberflächenspannung) des Systems reduziert (treibende Kraft).

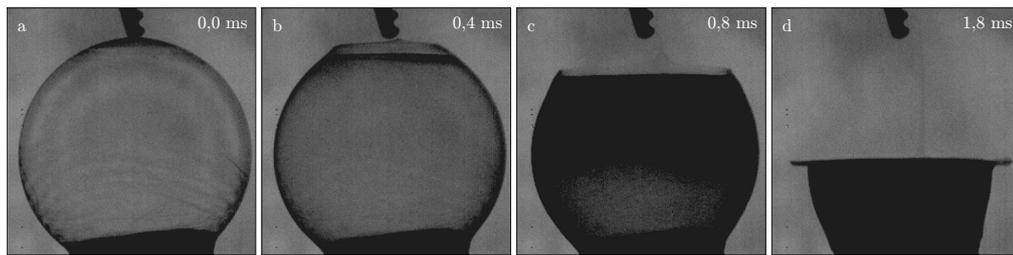


Abbildung 3.29: Das Reißen einer SmC*-Blase. Der Radius der Blase betrug 3,9 mm, die Filmdicke der oberen Hemisphäre war 1760 nm. Qualitativ existiert kein Unterschied zum Reißen einer SmA-Blase. Es zeigte sich, dass eine Erhöhung der Filmdicke und Streuung des transmittierten Lichts auftrat.

Filmdicke aufweist. Ein Beispiel einer smektischen Blase aus Felix16 ist in Abb. 3.29 zu sehen. Die Interferenzmuster sind nur im oberen Bereich konzentrische Ringe, das heißt, die Filmdicke ist dort homogen. Auf der unteren Hemisphäre steigt die Filmdicke zum Meniskus hin an. Dieser Bereich breitet sich mit der Zeit aus.

Wie im Falle von SmA-Blasen entsprach die Geschwindigkeit mit einer geringen Abweichung der nach CULICKS Modell berechneten. Das Loch breitete sich über den Film auf und sammelte dabei die Filmelemente in unmittelbarer Nähe ein.

Die Blase blieb kugelförmig, wobei, wie bei 8CB, eine Abweichung für Filmdicken von mehr als $\sim 1 \mu\text{m}$ festzustellen war. Diese Charakteristik entspricht der von SmA-Blasen.

Wie auch bei SmA-Blasen kam es sowohl zu einer Erhöhung der Filmdicke, was an der Veränderung der Position der Interferenzringe festzustellen war, als auch zur Streuung des transmittierten Lichts. In Abb. 3.29 ist deutlich zu erkennen, dass sich neben der globalen, einheitlichen Verdunklung des Films eine dunkle Front über den Film ausbreitet, die dem Rand vorseilt.

Das Reißen von Seifenblasen

In diesem Abschnitt wird die Dynamik smektischer Blasen während des Reißens mit der Dynamik von Seifenblasen verglichen. Im Unterschied zu smektischen Blasen können Seifenblasen nicht strikt als zweidimensionale Flüssigkeiten betrachtet werden, obwohl auch solche lyotropen Wasser-Tensid-Gemische flüssigkristalline Eigenschaften aufweisen (Translationsinvarianz und Ausrichtung der Moleküle auf kleinen Längenskalen).

Tensidmoleküle bilden, in Wasser gelöst, Strukturen aus Doppellipidschichten aus, wie in Abb. 2.3 dargestellt. Es treten auch Verzweigungen der Lipidschichten auf. Ein Transport des Wassers, in dem die Tenside gelöst sind und sich zu Lipidschichten anordnen, ist hauptsächlich in der Filmebene möglich. Daraus folgt, dass Veränderungen der Lipidschichtstruktur und eine Veränderung der Filmdicke aufgrund von Drainage auftreten können, sobald eine Volumenkraft auf die Flüssigkeitselemente im Film wirkt.

Die Folge ist ein Filmdickengradient in sphärischen Seifenfilmen, der auf die Gra-

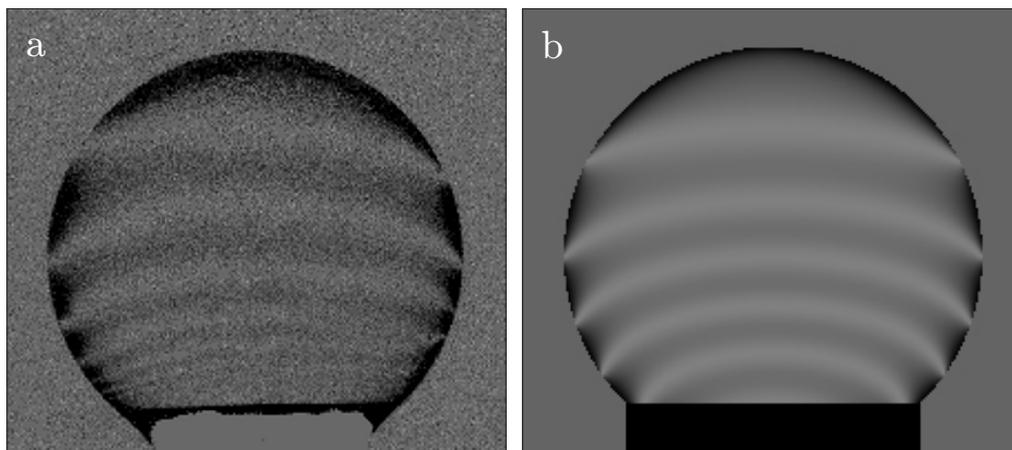


Abbildung 3.30: a) Transmissionsspektroskopisches Bild einer Seifenblase. Das rotationssymmetrische Filmprofil erzeugt, im Gegensatz zu smektischen Blasen mit konstanter Filmdicke, keine konzentrischen Ringe. Aus den Interferenzmaxima entlang des vertikalen Querschnitts durch die Blasenmitte kann die Filmdicke in Abhängigkeit des Winkels φ gewonnen werden. Die Filmdicke ist an der Oberseite der Blase am kleinsten, sie nimmt nach unten hin exponentiell zu. Der Radius der Blase war 3,8 mm. b) Transmissionsspektroskopisches Bild, das mit dem aus a) gewonnenen Filmprofil $\delta(\varphi)$ berechnet wurde. Die oberen vier Interferenzmaxima des berechneten Bildes stimmen mit den in a) dargestellten Interferenzmaxima gut überein. Eine Übereinstimmung der höheren Ordnungen konnte nicht mit einem exponentiellen Anstieg der Filmdicke berechnet werden.

vation zurückzuführen ist. Das Filmmaterial fließt nach unten. Das Ergebnis ist ein Film mit zeitabhängiger, rotationssymmetrischer (bezüglich der Achse parallel zur Gravitationsrichtung) Dicke. Anstelle konzentrischer Ringe, wie im Falle homogener smektischer Filme, entsteht ein Transmissionsspektroskopisches Bild (monochromatisches Licht, $\lambda = 535 \text{ nm}$), wie es in Abb. 3.30a zu sehen ist.

Das Profil der Filmdicke kann man aus den Interferenzmaxima entlang der vertikalen Linie durch den Blasenmittelpunkt gewinnen. Der Gangunterschied ändert sich jeweils um eine Ordnung, so dass bei bekanntem Einfallswinkel die Filmdicke an der Position der Maxima berechnet werden kann. Dabei wurde immer angenommen, dass das Interferenzmaximum, welches sich am nächsten an der höchsten Stelle der Blase befindet, das Maximum nullter Ordnung ist. Mit nullter Ordnung ist das Interferenzmaximum gemeint, bei dem der Gangunterschied des Lichts im Film gerade $\lambda/2$ beträgt, wobei λ die Wellenlänge des Lichts ist.

Zwei Profile sind exemplarisch in Abb. 3.31 dargestellt. Das Profil $\delta(\varphi)$ wächst exponentiell an und kann mit

$$\delta(\varphi) = A e^{B(1-\cos\varphi)} + C \quad (3.30)$$

mit den Konstanten A, B und C angepasst werden. Die entsprechenden Fitkurven sind in Abb. 3.31 durch die schwarzen Kurven wiedergegeben, die Fitparameter sind im Diagramm vermerkt.

Aufgrund der Rotationssymmetrie ist mit dem Profil die Filmdicke an jedem Punkt des Films bekannt. Da die Transmissionsspektroskopische Intensität von monochromatischem

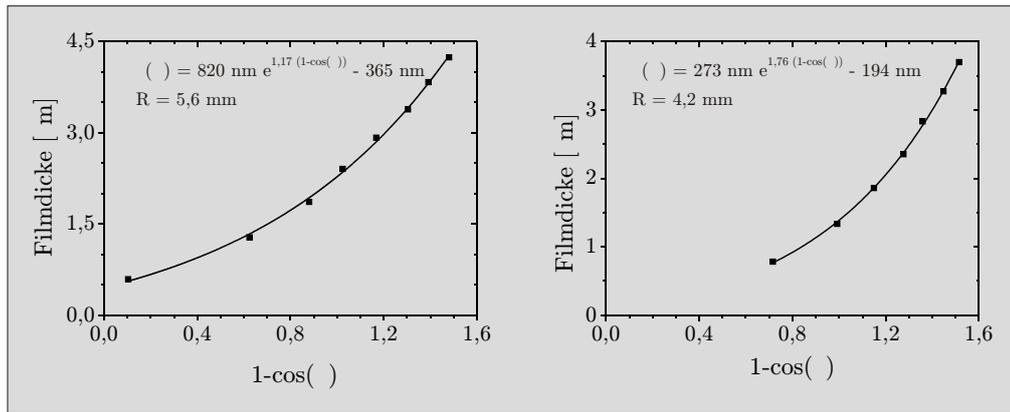


Abbildung 3.31: Das Filmdickenprofil zweier Seifenblasen. Das Profil kann aus den Interferenzmaxima gewonnen werden. Die Filmdicke wächst exponentiell mit $1 - \cos \varphi$, die entsprechenden Fitkurven sind schwarz dargestellt.

Licht von der Filmdicke und dem Einfallswinkel abhängt, kann analog zu smektischen Blasen, wie im Abschnitt 3.3, *Bestimmung der Schichtdicke von Blasen* beschrieben, das Transmissionsbild berechnet werden. Im Vergleich stimmt die so gewonnene Abb. 3.30b zumindest für die ersten vier Ordnungen der Interferenzmaxima gut mit dem aufgenommenen Bild in Abb. 3.30a überein.

Es konnte beobachtet werden, dass die Blase immer nahe der dünnsten Stelle des Films reißt. Diese Stelle befand sich jeweils in der Nähe des obersten Punktes der Blase. Das heißt, das Reißen geschah derart, dass es als rotationsymmetrischer Vorgang angesehen werden konnte. Zu jedem Zeitpunkt war also die Dicke aller Filmelemente, welche vom Rand aufgenommen wurden, gleich.

Da die Filmdicke bei Seifenblasen ortsabhängig ist, kann die Geschwindigkeit des Randes hier nicht mehr konstant sein. Die Kraft, die auf den Rand wirkt, muss die im Rand vereinigte Masse des Films beschleunigen, der vom Rand bereits überstrichen wurde. Der Ansatz, der auf der Impulsbilanz basiert und für konstante Filmdicken zu Gl. 3.1 führt, berücksichtigt jeweils gleiche Massen pro Flächeneinheit des Films. Im vorliegenden Fall muss die Abhängigkeit der Masse eines Filmelements vom Winkel φ in Betracht gezogen werden. Dabei wird der Eintritt eines Filmelements in den darüberstreichenden Rand als vollständig inelastischer Stoß betrachtet. Der Ansatz zur Berechnung der Geschwindigkeit, bzw. deren zeitlicher Änderung, lautet:

$$2\sigma \frac{dA}{dx} = m \frac{dv}{dt} + v \frac{dm}{dt}. \quad (3.31)$$

x bezeichnet hierbei den Abstand des Randes zur Position des Lochs zu Beginn des Reißens. dA ist die Änderung der Fläche beim Vorschreiten des Randes um dx . Mit $v = dx/dt$ ergibt sich

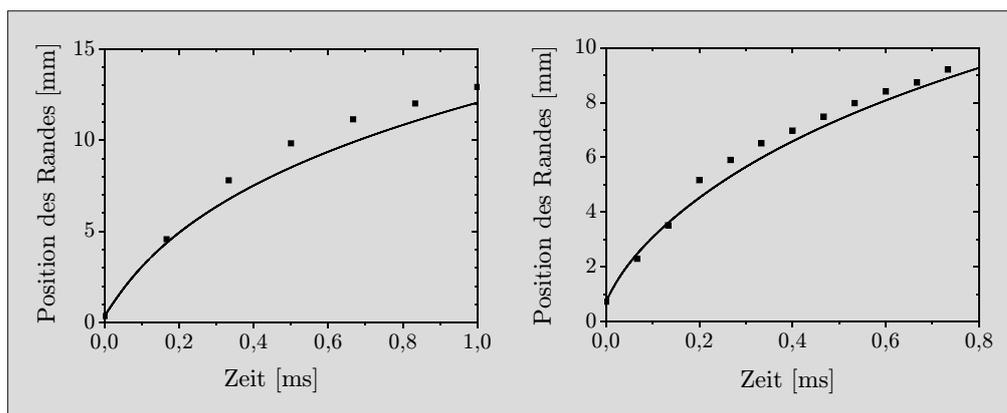


Abbildung 3.32: Positionen des Randes einer reißenden Seifenblase in Abhängigkeit von der Zeit. Die Position des Randes beschreibt den Abstand des Randes von der Position des Lochs, das zu Beginn des Reißens entstand. Die schwarzen Quadrate sind gemessene Werte der Blasen, deren Profile in Abb. 3.31 dargestellt sind. Die schwarzen Kurven wurden nach Gl. 3.34 numerisch berechnet, wobei die Kenntnis der Filmdickenprofile vonnöten war.

$$\frac{2\sigma}{v} \dot{A} = \int \rho \delta(\varphi) dA \dot{v} + v \frac{d}{dt} \int \rho \delta(\varphi) dA. \quad (3.32)$$

Die Änderung der Fläche kann mit

$$\dot{A} = 2\pi R^2 \dot{\varphi} \sin \varphi \quad (3.33)$$

beschrieben werden. Es ergibt sich die Gleichung

$$\dot{v} = \frac{\sin \varphi (2\sigma - v^2 \rho \delta(\varphi))}{\rho \int v \delta(\varphi) \sin \varphi dt}. \quad (3.34)$$

Diese Gleichung wurde numerisch gelöst. Für die Filmdickenprofile in Abb. 3.31 konnten die Abhängigkeiten der Randpositionen von der Zeit verfolgt werden (Kurven in Abb. 3.32). Dabei wurden iterativ die Geschwindigkeit v und der Winkel φ bestimmt und die Masse aufintegriert. Das Zeitintervall eines Iterationsschritts betrug $2,5 \times 10^{-5}$ ms. Der Zeitpunkt $t = 0$ in Abb. 3.32 wurde jeweils so gewählt, dass er mit dem Zeitpunkt der Bestimmung des ersten Messwertes übereinstimmt. Die anfängliche Geschwindigkeit bei $t = 0$ wurde für eine konstante Filmdicke, die der Filmdicke bei $\varphi = 0$ entsprach, mittels Gl. 3.1 abgeschätzt. Aus der Annahme einer konstanten Filmdicke im Bereich von $\varphi = 0$ bis zum ersten messbaren Öffnungswinkel konnte die Masse des Randes zu diesem Zeitpunkt näherungsweise bestimmt werden. Die Oberflächenspannung der verwendeten Seifenlösung beträgt 0,0336 N/m.

Die berechneten Kurven stimmten gut mit den gemessenen Werten (schwarze Quadrate in Abb. 3.32) überein, wenn auch die Randgeschwindigkeit systematisch um einige Prozent zu klein war.

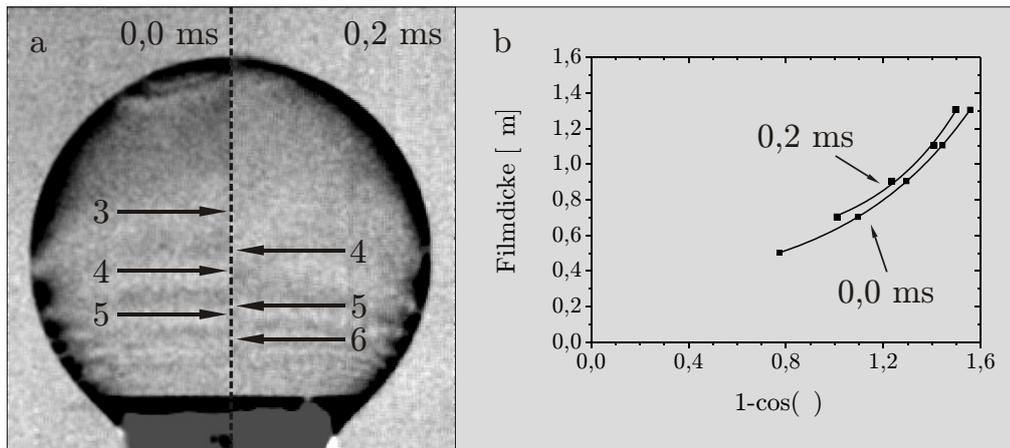


Abbildung 3.33: Änderung der Filmdicke von Seifenblasen während des Reißens. a) Das Bild zeigt jeweils die Hälfte einer Blase zum Zeitpunkt Null (letztes Bild vor dem Reißen) und zum Zeitpunkt $t = 0,2 \text{ ms}$. Die Verschiebung der Interferenzmaxima nach oben (rechtes Bild) zum späteren Zeitpunkt indiziert eine globale Änderung der Filmdicke. Das zum Zeitpunkt $t = 0,2 \text{ ms}$ entstandene Loch ist in der rechten Hälfte des Bildes nicht zu sehen, da es sich nicht exakt oben, sondern etwas links befindet. Während des Reißens wird der Film inhomogen, so dass zu einem späteren Zeitpunkt ($t > 0,2 \text{ ms}$) keine Interferenzmuster erkennbar sind. b) Filmdicken entlang der gestrichelten Linie in a) zu den entsprechenden Zeiten.

Beim Reißen smektischer Blasen konnte eine Erhöhung der Filmdicke nachgewiesen werden. Dieser Effekt wurde auch bei Filmen aus der verwendeten Tensidlösung beobachtet. Abbildung 3.33a zeigt die Verschiebung der Interferenzmaxima einer Blase zu zwei verschiedenen Zeitpunkten während des Reißens. Die Interferenzmaxima gleicher Ordnung sind jeweils mit einem Pfeil markiert. Es ist zu erkennen, dass sich die Maxima nach oben verschieben. Bei den oben dargestellten Filmdickenprofilen bedeutet dies eine *globale Erhöhung der Filmdicke*. Die Filmdicken entlang der gestrichelten Linie (Abb. 3.33a) zu den Zeiten $t = 0$ und $t = 0,2 \text{ ms}$ sind in Abb. 3.33b dargestellt.

Ein weiterer Effekt, der im Falle smektischer Blasen beobachtet werden konnte, war die Abnahme der Intensität des transmittierten Lichts während des Reißens (Abschnitt 3.4, *Dynamik des Reißens smektischer Blasen*). Diese Verdunklung trat beim Reißen von Seifenfilmen nicht auf (Abb. 3.30a). Somit liegt die Vermutung nahe, diese Abnahme der Intensität des transmittierten Lichts ist auf strukturelle Veränderungen in smektischen Strukturen zurückzuführen, welche sich entlang des Films ausbreiten.

Laser-Streuung beim Reißen smektischer Blasen

Wie in Abschnitt 3.4, *Dynamik des Reißens smektischer Blasen*, beschrieben, konnte im Falle *smektischer* Blasen mit Filmdicken größer als $1 \mu\text{m}$ während des Reißens eine Abnahme der Intensität des transmittierten Lichts nachgewiesen werden. Diese führte zur Verdunklung der Blasen. Dieser Effekt war um so stärker ausgeprägt,

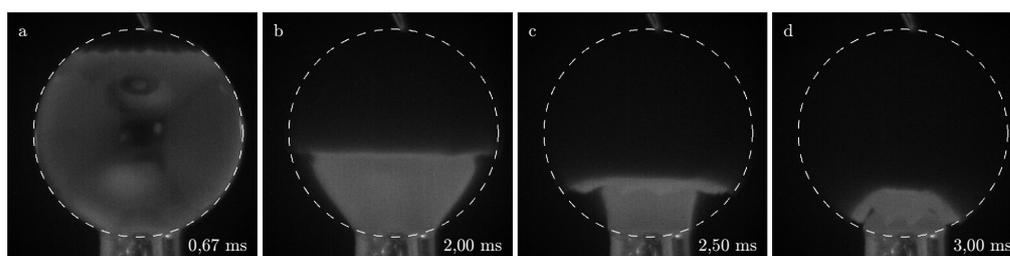


Abbildung 3.34: Das Reißen einer smektischen Blase, die senkrecht zur Beobachtungsrichtung mit diffusem, weißem Licht bestrahlt wurde. In Beobachtungsrichtung hinter der Blase befand sich ein schwarzes Tuch, wodurch der Kontrast verstärkt wurde. Es zeigte sich, dass das seitlich eingestrahlte Licht gestreut wurde. Es kam während des Reißens zu einer Erhöhung der detektierten Lichtintensität. Der Radius der Blase betrug 3,6 mm, die Filmdicke war 1950 nm. Der weiß gestrichelte Kreis markiert die Form der Blase vor Beginn des Reißens.

je größer die Filmdicke war. Für Seifenblasen konnte keine Abnahme der transmittierten Intensität gefunden werden. Diese Tatsache lässt den Schluss zu, dass dieser Effekt durch Strukturänderungen hervorgerufen wird, die auf spezifische Eigenschaften einer smektischen Phase zurückzuführen sind.

Abbildung 3.34 zeigt eine reißende smektische Blase (8CB), die mit einem Versuchsaufbau aufgenommen wurde, bei dem die Blase senkrecht zur Beobachtungsrichtung mit diffusem, weißem Licht bestrahlt wurde. In Beobachtungsrichtung hinter der Blase befand sich ein schwarzes Tuch, wodurch der Kontrast verstärkt wurde. Während des Reißens wurde die Intensität der Film heller. Das heißt, bei der Abnahme der Intensität in Transmission handelt es sich nicht um Absorption oder Reflexion, sondern um Lichtstreuung.

Es lag die Vermutung nahe, diese Lichtstreuung werde durch Inhomogenitäten des Films während des Reißens hervorgerufen. Zur Untersuchung dieses Effekts kam ein spezieller Versuchsaufbau zum Einsatz (Abb. 3.12). Dabei wurde ein Laserstrahl mithilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera beobachtet, der nach Transmission durch eine reißende smektische Blase auf einen semitransparenten Schirm traf. Der Laserstrahl verlief immer durch den Mittelpunkt der Blase.

In Abbildung 3.35 ist die zeitliche Entwicklung des gestreuten Laserstrahls, der durch den Mittelpunkt reißender Blasen verläuft, für drei Blasen mit den Filmdicken 770 nm, 1805 nm bzw. 4660 nm zu sehen. Die Bilder zeigen jeweils die Abbildung des gestreuten Laserlichts auf dem semitransparenten Schirm. Die Radien der drei Blasen betragen $R = (5,4 \pm 0,2)$ mm. Die Zeitachse verläuft von links nach rechts. Der Zeitpunkt $t = 0$ wurde so gewählt, dass das zu diesem Zeitpunkt entstandene Bild das letzte vor dem Beginn des Reißens war.

Es konnte festgestellt werden, dass die Streuung des Laserlichts unabhängig von der Filmdicke isotrop bezüglich des Winkels Θ (Abb. 3.12) war. Das heißt, es gab keine Vorzugsrichtung, in der das Licht gestreut wurde.

In Abschnitt 3.4, *Dynamik des Reißens smektischer Blasen* konnte für Filmdicken kleiner als $\sim 1 \mu\text{m}$ keine Streuung festgestellt werden. Die Verdunklung nahm für größere Filmdicken mit ansteigendem δ zu. Diese Beobachtung konnte im La-

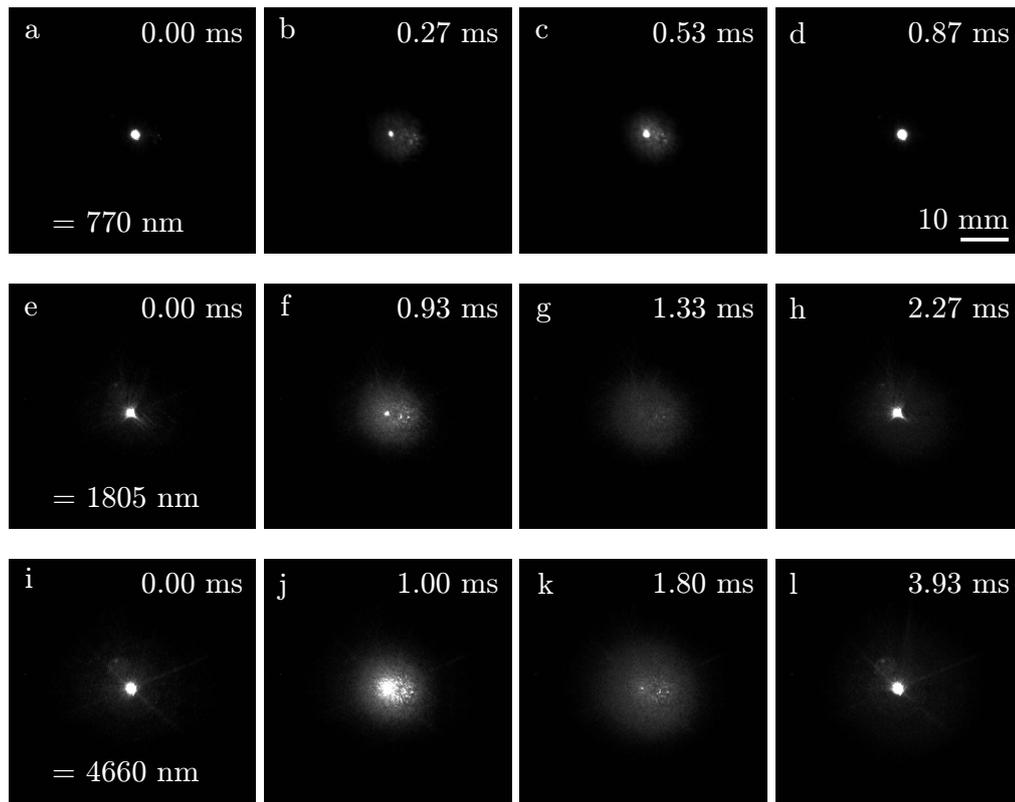


Abbildung 3.35: Laserstrahl, der durch reißende smektische Blasen gestreut wird. Die Zeitachse verläuft von links nach rechts. Die Intensität der Streuung verstärkt sich mit steigender Filmdicke (770 nm, 1805 nm bzw. 4660 nm). Für Filme mit einer Dicke von weniger als $\sim 1 \mu\text{m}$ bleibt der Primärstrahl immer sichtbar. Für größere Filmdicken findet eine vollständige Streuung des Strahls statt, bevor der Rand des Films den Strahl passiert.

serstreuexperiment bestätigt werden. Für Blasen mit einer Dicke von weniger als $\sim 1 \mu\text{m}$ war die Streuung so gering, dass der Primärstrahl immer sichtbar blieb. Für Blasen mit einer größeren Filmdicke bildete sich eine Korona aus und der Primärstrahl wurde vollständig von seiner ursprünglichen Ausbreitungsrichtung gestreut, bis der Rand des Film den Laserstrahl passierte.

Es konnten keine messbaren Unterschiede zwischen den Bildern festgestellt werden, bei denen der Strahl eine stationäre Blase vor dem Reißen passierte bzw. nachdem die Blase nicht mehr vorhanden war und der Strahl direkt auf den Schirm traf (linke und rechte Spalte in Abb. 3.35). Daraus kann man schließen, dass der Laserstrahl vor Beginn des Reißens nahezu unbeeinflusst durch die Blase hindurchgeht.

Die zeitliche Entwicklung des Streuprozesses ist in Abb. 3.36 dargestellt. Diese Bilder sind durch die Analyse der gleichen Blasen, deren Streubilder in Abb. 3.35 zu sehen sind, entstanden. In Abb. 3.36a-c sind die Intensitäten des gestreuten Laserstrahls auf dem Schirm zu sehen. Hierbei wurde die Intensität in Abhängigkeit des Radius (Abb. 3.12) gemäß Gl. 3.17 aufsummiert und im Anschluss $I(r, 0)$ von allen $I(r, t)$ subtrahiert. Intensitäten, die durch die Subtraktion negative Werte annahmen, wurden auf Null gesetzt. Diese Vorgehensweise wurde im Abschnitt 3.3,

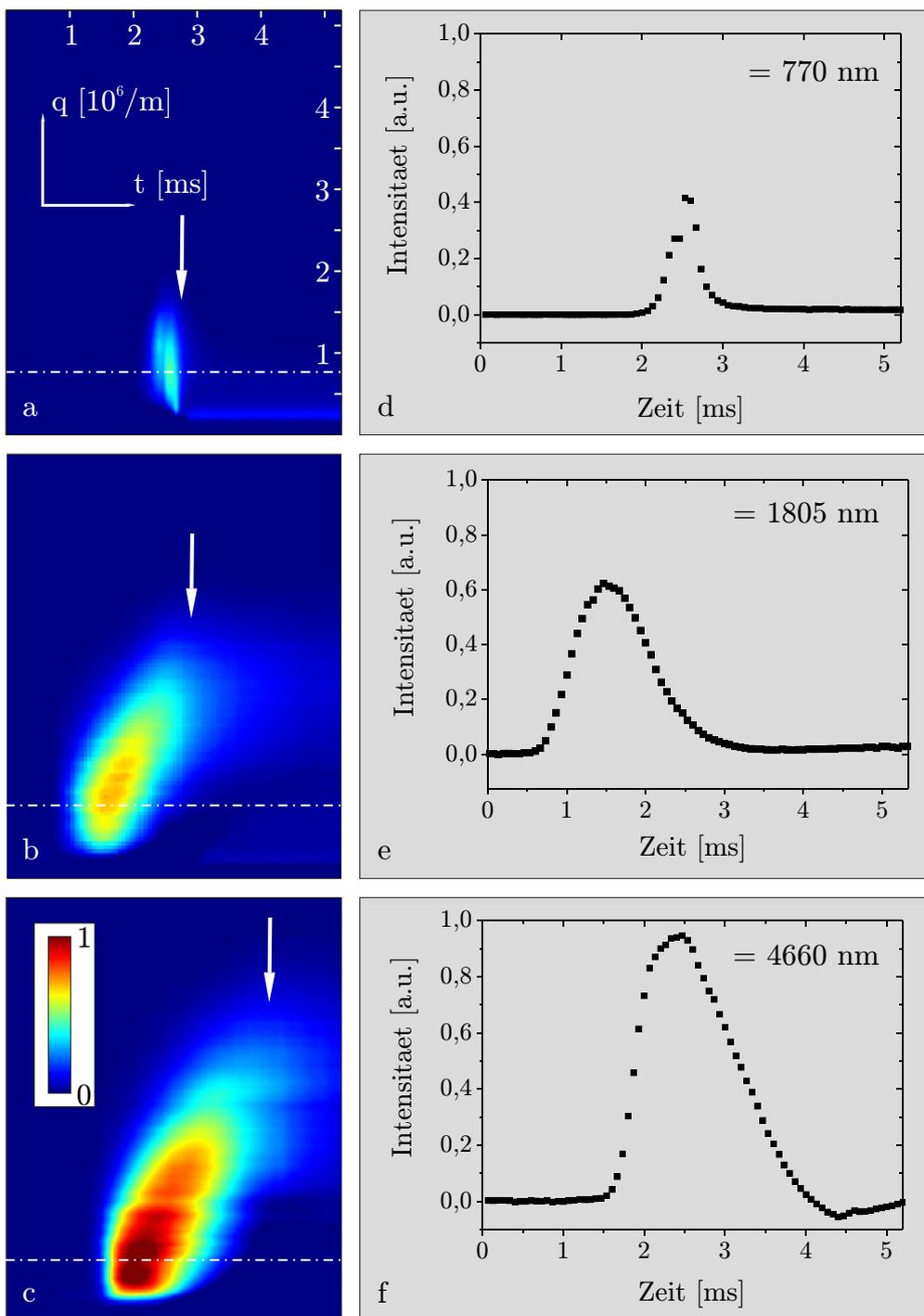


Abbildung 3.36: Zeitliche Entwicklung der Intensität der Laserstreuung in Abhängigkeit von der Wellenzahl q (zur Erläuterung der Wellenzahl q siehe Abschnitt 3.3, *Die Laser-Streuung*). In der linken Spalte ist die Intensität in einer Falschfarbendarstellung abgebildet. Die rechte Spalte zeigt die zugehörigen zeitlichen Verläufe der Intensitäten entlang der weißen gestrichelten Linien in der linken Spalte. Die Intensität des gestreuten Lichts wuchs mit der Filmdicke an.

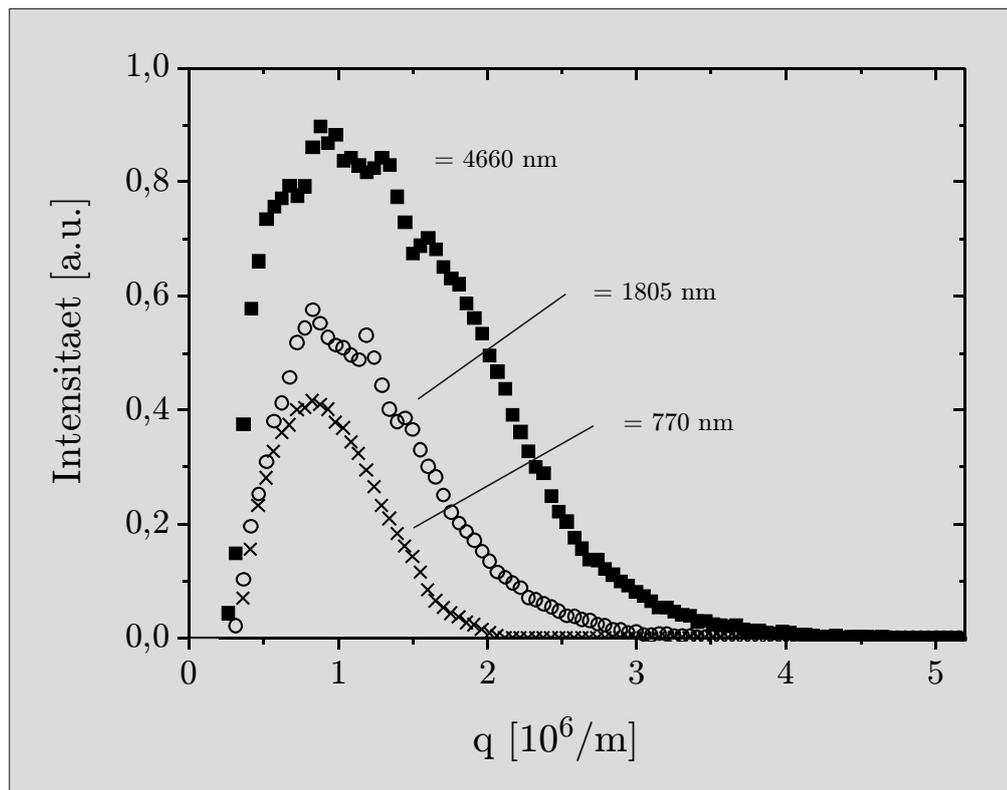


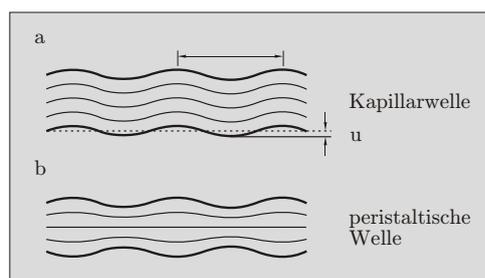
Abbildung 3.37: Abhängigkeiten der Laserstreuung von q . Diese Querschnitte entsprechen den vertikalen Querschnitten in Abb. 3.36, die jeweils durch das globale Maximum verlaufen. Die Fläche unter den Messwerten stellt ein Maß für die Intensität des gestreuten Lichts dar. Ein Zuwachs der Intensität mit steigender Filmdicke war deutlich nachweisbar.

Die *Laser-Streuung*, erläutert. Die Zeitachse in den Abb. 3.36a-c verläuft jeweils von links nach rechts.

Da die Störung, welche zur Laserstreuung führt, dem Rand vorausseilt, kann angenommen werden, dass es sich bei dieser Störung um Ausbreitung von Wellen entlang des Films handelt. Dabei kommt es zu einer Überlagerung von zahlreichen Wellen mit unterschiedlichen Wellenzahlen. Aus diesem Grund wurde der Radius r_{streu} durch ein Äquivalent des Wellenvektors, der eine periodische Störung (Undulation) des Films mit einer Wellenlänge beschreibt, nach Gl. 3.19 ersetzt. Diese Betrachtungsweise ist insofern unzureichend, als dass Mehrfachstreuung auftritt und der Laserstrahl zwei smektische Filme passiert (Vorder- und Rückseite der Blase). Das heißt, eine smektische Blase als streuendes System kann nicht als Gitter mit einer periodischen Störung der Wellenlänge Λ (Gl. 3.18) angesehen werden. Dennoch soll das Äquivalent eines Wellenvektors q hier verwendet werden, da hierdurch eine Quantifizierung der Streuung ermöglicht wird.

Die Blase mit einer Filmdicke von 770 nm rief nur eine, im Vergleich zu dickeren Filmen, geringe Streuung hervor. Für $\delta > 1 \mu\text{m}$ wuchs die Stärke der Streuung kontinuierlich an, bis sie ihr Maximum erreicht hatte. Die Streuung war umso intensiver, desto größer die anfängliche Filmdicke war. Das Maximum der Streuung war

Abbildung 3.38: Wellen entlang eines smektischen Films. Die Undulation setzt sich ins Innere des Films fort. Typische Wellenlängen sind $\Lambda \sim 10 \mu\text{m}$. Tatsächlich tritt in einem undulierten Film eine Überlagerung vieler solcher Wellen auf.



unabhängig von der anfänglichen Filmdicke bei einer Wellenzahl von $0,8 \times 10^6 \text{ m}^{-1}$ zu finden. Nachdem der Rand des reißenen Films den Laserstrahl passiert hat (weiße Pfeile), konnte für große Filmdicken immer noch Lichtstreuung detektiert werden. Dieser Effekt könnte von einem Rückstand von Filmmaterial herrühren, welches nicht vom sich fortbewegenden Rand aufgenommen wurde und in Form eines Nebels vorlag.

Die zeitlichen Abhängigkeiten der Intensitäten bei $q = 0,8 \times 10^6 \text{ m}^{-1}$ entlang der weißen gestrichelten Linien sind jeweils in Abb. 3.36d-f gezeigt. Qualitativ unterscheiden sich diese Kurven nicht. Die Reißgeschwindigkeit des Films, die durch die anfängliche Filmdicke bestimmt wird, spiegelt sich in diesen Graphen wider. Für größere Filmdicken und damit langsamere Geschwindigkeiten kann sich die Streuung während einer längeren Zeit ausbilden.

Abbildung 3.37 zeigt den Querschnitt der Intensitäten in Abhängigkeit von q . Diese Kurven entsprechen den vertikalen Querschnitten in Abb. 3.36, die jeweils durch das Maximum der Streuung verlaufen (nicht eingezeichnet). Unabhängig von der Filmdicke wurde das Maximum der Streuung bei $q \sim 0,8 \times 10^6 \text{ m}^{-1}$ gefunden. Dieser Betrag des Wellenvektors entspricht einer Wellenlänge des undulierten Films von etwa $8 \mu\text{m}$. Dieses Maß ist nicht aussagekräftig, da die periodischen Undulationen des Films, die zur Streuung führen, komplexer als einzelne Undulationen der Grenzflächen des Films sind. Dieser abgeschätzte Wert lässt jedoch den Schluss zu, dass die Wellenlängen der Undulationen bei einer Größenordnung von $\Lambda \sim 10 \mu\text{m}$ liegen.

Diese Abbildung macht auch deutlich, dass die Intensität des gestreuten Lichts (Fläche unter den gemessenen Werten in Abb. 3.37) stark von der Filmdicke abhing. Für größere Filmdicken nimmt die Fläche unter den Messwerten, die ein Maß für die Intensität des gestreuten Lichts darstellt, zu. Dies geht mit der Beobachtung der Abnahme transmittierten Lichts einher, die umso stärker ausgeprägt war, desto größer die Filmdicke war.

Streuung von monochromatischem Licht an undulierten smektischen Filmen bei Transmission

Im vorangegangenen Abschnitt wurde angenommen, dass die Streuung transmittierten Lichts auf eine periodische Störung des Films zurückzuführen ist. Dabei kann eine Überlagerung periodischer Undulationen der Grenzfläche angenommen. Diese

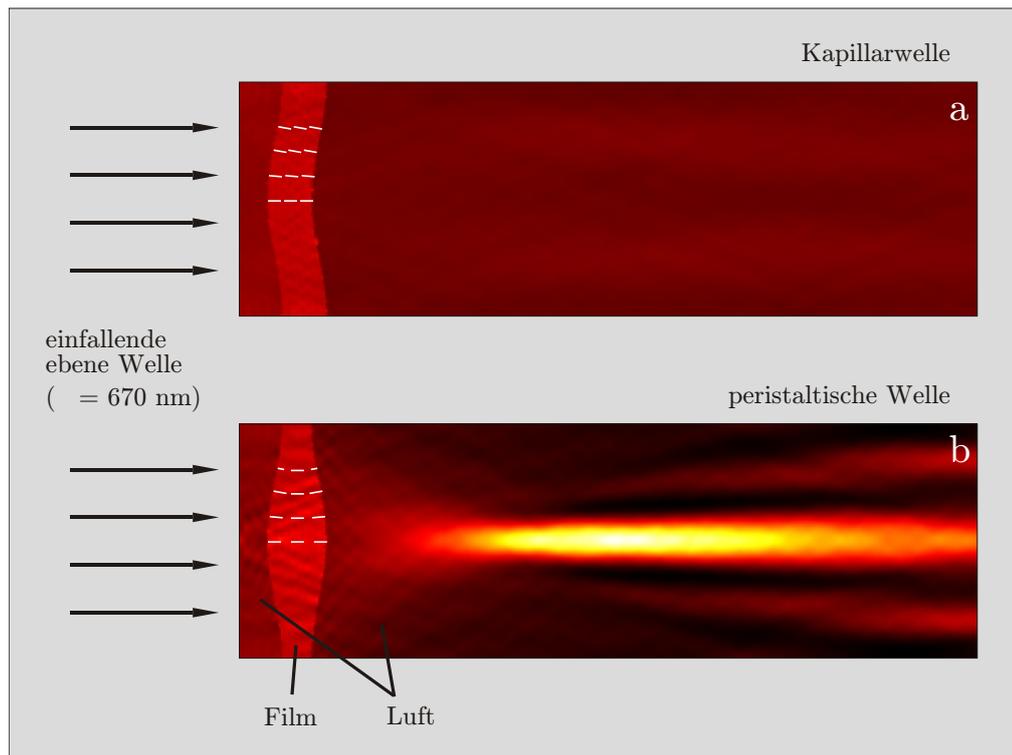


Abbildung 3.39: Berechnung des Nahfeldes der Transmission eines Laserstrahls durch einen undulierten smektischen Film. Es wurde zwischen den Idealfällen der rein peristaltischen Welle (Kompression der smektischen Schichten) und der Kapillarwelle unterschieden. Die Amplitude der Undulation betrug 33 %. Die Modulation einer peristaltischen Welle führte zur Streuung der ebenen Welle. Diese Streuung wurde nicht durch eine aufmodulierte Kapillarwelle hervorgerufen.

Undulationen setzen sich ins Innere des Films fort.

In diesem Abschnitt wird untersucht, auf welche Art eine einfallende ebene Welle einen periodisch undulierten Film passiert. Dabei wurde von zwei Idealfällen ausgegangen: Kapillarwellen und peristaltisch undulierte Wellen (Abb. 3.38a bzw. b).

Im realen System treten diese Moden nicht getrennt voneinander auf, sondern nur als Superposition beider Moden. Dennoch soll hier das Transmissionsverhalten der einzelnen Moden untersucht werden, da gezeigt werden soll, dass diese Art der Störungen Lichtstreuung hervorrufen können.

Es wurde das Nahfeld einer transmittierten Welle, die senkrecht zum Film einfällt, mithilfe der Finite-Elemente-Methode (FEM) untersucht. Für die Berechnung wurde die Software Comsol 3.4 verwendet. Diese Software löst die vollständigen MAXWELL-Gleichungen numerisch auf einem inhomogenen Gitter. Die beiden verwendeten Geometrien sind in Abb. 3.39a und c jeweils linksseitig dargestellt. Es wurde mit periodischen Randbedingungen bezüglich der oberen und unteren Grenze des Gebiets gerechnet. Die Wellenlänge der periodischen Störung wurde mit $10\ \mu\text{m}$, die Brechungsindizes mit $n_o = 1,5$ und $n_{ao} = 1,65$ angenommen. Die Wellenlänge der einfallenden Welle entsprach der des im Experiment verwendeten Lasers ($\lambda = 670\ \text{nm}$). Der Film war von einem Medium mit dem Brechungsindex 1

(Luft) umgeben.

Die Auslenkung der Grenzfläche, und damit auch die Ausrichtung der Direktoren, pflanzen sich ins Innere des Films fort. Das Direktorfeld (weiße Linien in Abb. 3.39) wurde als kontinuierlich angenommen, wobei der Direktor an der LC-Luft-Grenzfläche senkrecht zur Grenzfläche ausgerichtet ist. Die Amplitude der Undulation betrug 33 % der anfänglichen Filmdicke. Im Realfall ist die Auslenkung kleiner. Die Ablenkung des Lichts ist dann entsprechend schwächer, aber qualitativ gleich.

Die ebene Welle fällt von links auf den Film ein. Eine Ablenkung bei Transmission durch den peristaltisch undulierten Film ist offensichtlich. Diese Streuung ist ausreichend, um ein Verdunkeln der Blase während des Reißens zu verursachen. Die Undulation verursachen eine stark amplitudenabhängige Fokussierung. In dieser Betrachtung weisen die Bäuche der Undulation eine Wirkungsweise ähnlich einer Linse auf.

Durch den Film, dem eine Kapillarwelle aufmoduliert wurde, wird die ebene Lichtwelle nicht abgelenkt. Die Lichtwelle bleibt, abgesehen von numerischen Ungenauigkeiten, hinter den Film eben. Das heißt, selbst wenn Kapillarwellen vor dem Rand des reißenden Films vorhanden wären, könnten sie nicht optisch detektiert werden.

Im realen System ist von einem breiten Spektrum von Wellen mit verschiedenen Ausbreitungsrichtungen nach dem Anstechen des Films auszugehen. Dieses Spektrum spiegelt sich in der starken Streuung ohne Vorzugsrichtung des Lichts wider. Dieser Effekt führt zur Abschwächung des Lichts in Transmission und zu einem Aufhellen eines Films, der unter indirekter Beleuchtung beobachtet wird.

Daraus lässt sich schließen, dass sich nicht ausschließlich Kapillarwellen entlang des Films bewegen, sondern auch Moden, die zu einer Kompression der smektischen Schichten führen.

3.5 Propagation von Wellen in Flüssigkristallfilmen

In den vorangegangenen Abschnitten wurde die Streuung transmittierten Lichts durch smektische Blasen während des Reißens nachgewiesen, die bei Seifenblasen nicht beobachtet werden konnte. Es liegt die Vermutung nahe, dass diese Streuung durch Ausbreitung von Wellen entlang des Films hervorgerufen wird. Diese Undulationen entstehen vermutlich durch die Störung des Films am Rand des Lochs, welches sich während des Reißens vergrößert. Dabei finden permanent inelastische Stöße des Randes mit den Filmelementen statt, wodurch die Entstehung von Wellen induziert wird.

Die Wellenlänge der Undulationen liegt in der Größenordnung von 10 μm . Die Amplitude beträgt einige Nanometer. In isotropen Flüssigkeiten wird die Ausbreitung von Wellen solcher Größenordnungen ausschließlich durch die Oberflächenspannung getrieben. Handelt es sich um smektische Flüssigkristalle, kann die Kompression der Molekülschichten die Ausbreitung der Wellen wesentlich beeinflussen.

Die Biegung der Schichten leistet dazu einen Beitrag, der im Vergleich zur Kompression der Schichten vernachlässigbar klein ist.

Kapillar- und peristaltische Wellen entlang eines Films

In diesem Abschnitt sollen die Arten der möglichen Wellen näher erläutert werden.

Kapillarwellen können in jeder Flüssigkeit auftreten. Kapillarwellen sind Undulationen, deren Dynamik von der Oberflächenspannung dominiert wird. Die Oberflächenspannung resultiert in dem Bestreben der Oberfläche, sich möglichst glatt auszurichten. Das heißt, das Integral der mittleren Krümmung $\kappa_1 + \kappa_2$ über die gesamte Oberfläche wird dann minimal. Im Gegensatz zu Schwerewellen handelt es sich um Wellen, bei denen das Verhältnis von Gewichtskraft zur Kraft aus der Krümmung der Grenzfläche (Oberflächenkräfte) sehr klein ist [60]. Die schon in Abschnitt 3.1, *Eigenschaften sphärischer Filme* angeführte Bond-Zahl erlaubt eine Abschätzung, um welche der beiden Arten von Wellen es sich in einem bestimmten Fall handelt [61]. Für die Ausbreitung von Wellen entlang eines smektischen Films liegt es nahe, die Wellenlänge Λ und die Amplitude Δu der Undulationen als Ausdehnungen im Zähler anzunehmen. Es ergibt sich eine Bond-Zahl von

$$Bo = \frac{\text{Volumenkräfte}}{\text{Oberflächenkräfte}} = \frac{\rho g \Lambda \Delta u}{\sigma}. \quad (3.35)$$

g ist hierbei wieder die Gravitationskonstante, σ die Oberflächenspannung und ρ die Dichte des Materials. Die stoffspezifischen Werte für die Substanz 8CB, die hauptsächlich bei der Herstellung der Filme Verwendung fand, sind im Anhang A zu finden. Nimmt man für die Wellenlänge $\sim 10 \mu\text{m}$ und für die Amplitude $\sim 10 \text{ nm}$ (etwa 1 % von typischen Filmdicken) an, so lässt sich die Bond-Zahl zu $Bo \approx 5 \times 10^{-9} \ll 1$ abschätzen. Das heißt, der Einfluss der Gravitation auf die Dynamik der vorliegenden Wellen ist vernachlässigbar klein, es handelt sich um Kapillarwellen.

In gewöhnlichen Filmen aus isotropen Flüssigkeiten (z.B. Seifenfilmen) treten ausschließlich Kapillarwellen auf. Die Geschwindigkeit solcher Kapillarwellen auf einem Film ist

$$v_{\text{kapillar}} = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho\delta}}. \quad (3.36)$$

Kapillarwellen bewegen sich also genauso schnell fort wie der Rand des reißenen Films nach CULICK (Gl. 3.1).

Im Vergleich dazu tragen in einem *smektischen Film* elastische Eigenschaften zur Dynamik von Wellen entlang eines Films bei. Hierbei ist zwischen reinen Kapillarwellen und peristaltischen Wellen zu unterscheiden. Bei Kapillarwellen (Abb. 3.38a) kommt es zu einer Verbiegung der Schichten, die zusätzliche Energie kostet. In Gl. 3.37 spiegelt sich dieser Beitrag durch einem Term im Zähler wider:

$$v_{\text{kapillar}} = \sqrt{\frac{2\sigma + K_{11}q^2\delta}{\rho\delta}}. \quad (3.37)$$

K_{11} ist die Spreizungskonstante. Für $K_{11} \sim 10^{-11}$ N, typische Filmdicken von $\delta \sim 10 \mu\text{m}$ und $q \sim 10^6 \text{ m}^{-1}$ ergibt sich das Verhältnis $K_{11}q^2\delta/2\sigma$ von $\sim 2 \times 10^{-4}$. Der Beitrag zur potentiellen Energie, der sich aus der Biegung der Schichten ergibt, kann also gegenüber der Oberflächenspannung vernachlässigt werden.

Im Fall der peristaltischen Wellen kommt es zusätzlich zu einer Kompression der Schichten. Eine peristaltische Welle ist in Abb. 3.38b dargestellt. Hier beeinflussen auch die Krümmung der Oberfläche und die Biegung der Schichten die Dynamik der Wellen. Das Bestreben der Schichten, die ursprünglichen Schichtabstände wiederherzustellen, also einer Kompression bzw. Dilatation entgegenzuwirken, dominiert aber diesen Prozess.

In einem Film aus einem isotropen Material kann nicht zwischen diesen beiden Fällen unterschieden werden. Beide Formen bewegen sich wie Kapillarwellen fort, da keine molekularen Schichten existieren, die sich gegenseitig beeinflussen. Im smektischen Film dagegen ist die Reaktion der Schichten im Film auf eine äußere Krafteinwirkung komplizierter. Es tritt eine Überlagerung mehrerer Moden der beiden in Abb. 3.38 dargestellten Arten von Undulationen auf.

Bewegung von Flüssigkeiten

In den folgenden zwei Abschnitten sollen die Geschwindigkeiten verschiedener Moden der beiden in Abb. 3.38 dargestellten Wellenformen entlang eines smektischen Films abgeschätzt werden. Dazu ist die Kenntnis einiger hydrodynamischer Konzepte, die in diesem Abschnitt in einem kurzen Überblicks aufgeführt werden, erforderlich.

Für Flüssigkeiten gilt die Kontinuitätsgleichung [62]

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -(\nabla \cdot \rho \mathbf{v}), \quad (3.38)$$

die für inkompressible Flüssigkeiten (konstante Dichte) zu

$$(\nabla \cdot \mathbf{v}) = 0 \quad (3.39)$$

umgeschrieben werden kann. ρ bezeichnet die Dichte der Flüssigkeit.

Die NAVIER-STOKES-Gleichung beschreibt die zeitliche Impulsänderung eines Fluidelements, wenn Kräfte darauf wirken. Mit Gl. 3.39 und der Annahme, es handle sich um eine NEWTON'sche Flüssigkeit, lässt sich diese in der Form

$$\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v} \cdot \nabla)\mathbf{v} = \rho \mathbf{f} - \nabla p + \eta \Delta \mathbf{v} \quad (3.40)$$

schreiben [61]. \mathbf{f} bezeichnet die Volumenkräfte pro Masseinheit (z.B. Schwerkraft, elektrostatische Kraft), die auf ein Fluidelement wirken. Die Terme ∇p und

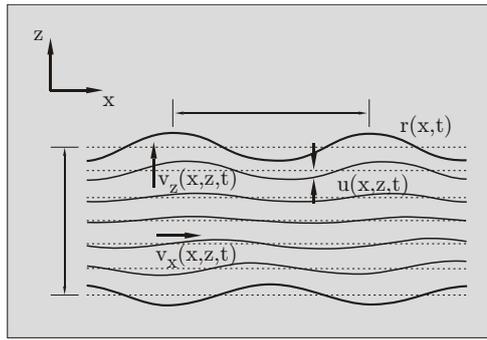


Abbildung 3.40: Überlagerung verschiedener Moden periodischer Auslenkungen der Schichten $u(x, z, t)$ in einem Flüssigkristallfilm.

$\eta\Delta v$ (η ...Viskosität) in Gl. 3.42 stehen für die Anteile des Spannungstensors, die den Druck- bzw. Viskositätskräften entsprechen. Für nichtviskose Flüssigkeiten ist $\eta\Delta v = 0$. Ref. [63] gibt einen guten Überblick über die verschiedenen Formen des Spannungstensors.

Ausbreitung der Wellen

Die Ausbreitung von Wellen in smektischem Material bzw. einem smektischen Film wurde von mehreren Autoren bereits theoretisch behandelt. Die ersten drei der grundlegenden Gleichungen, die im Falle smektischer Filme zum Tragen kommen, ergeben sich aus der Kontinuitäts- und der NAVIER-STOKES-Gleichung. Als orts- bzw. zeitabhängige Größen wurden die Geschwindigkeit der Flüssigkeitselemente v_i , der Druck p und die Auslenkung der Schichten u betrachtet, die jeweils von x , z und t abhängen. In einer vierten Gleichung konnte die zeitliche Ableitung der Schichtauslenkung $u(x, z, t)$ mit den Geschwindigkeitskomponenten senkrecht zur Filmebene und der Durchdringung der Mesogene durch die Schichtgrenzen in Beziehung gesetzt werden. Das vollständige System von Gleichungen sieht wie folgt aus:

$$\begin{aligned}
 \partial_x v_x + \partial_z v_z &= 0, \\
 \rho \partial_t v_x &= -\partial_x p + \partial_x \sigma'_{xx} + \partial_z \sigma'_{xz}, \\
 \rho \partial_t v_z &= -\partial_z p + \partial_x \sigma'_{xz} + \partial_z \sigma'_{zz} + B \partial_z^2 u - K \partial_x^4 u, \\
 \rho \partial_t u &= v_z + \lambda_p (B \partial_z^2 u - K \partial_x^4 u).
 \end{aligned} \tag{3.41}$$

Die Wahl des Koordinatensystems erfolgte wie in Abb. 3.40 dargestellt. Die z -Achse verlief parallel zur Filmenormalen. $\partial_i k$ steht für die partielle Ableitung von k nach i . Der viskose Spannungstensor σ'_{ij} kann für einen smektischen Flüssigkristall in der Form

$$\sigma'_{ij} = 2\eta_2 v_{ij} + 2(\eta_3 - \eta_2)(v_{iz} \delta_{jz} + v_{jz} \delta_{iz}) + \eta' v_{zz} \delta_{iz} \delta_{jz} \tag{3.42}$$

geschrieben werden. Es gilt $v_{ij} = \frac{1}{2}(\partial_i v_j + \partial_j v_i)$. η' entspricht nach der Harvard-Notation [64] $\eta' = \eta_1 + \eta_2 + 4\eta_3 - 2\eta_5 + \eta_4$. Nach EINSTEIN'scher Summenkonvention

wird in Gl. 3.42 über den Index z summiert. δ_{ij} ist das KRONECKER-Symbol. Die Permeationskonstante λ_p , die Schichtkompressibilität B und die Spreizungskonstante K für die zumeist verwendete Substanz 8CB sind im Anhang A zu finden.

CHEN und JASNOW wählten eine kontinuierliche hydrodynamische Beschreibung, um die Moden der Wellenausbreitung zu berechnen. Die innere Schichtstruktur wurde durch einen elastischen Term beschrieben, der die Kompressibilität der Schichten B enthält. Die Autoren beschrieben die Dynamik der Oberfläche [65] und der smektischen Schichten [66] in dünnen, frei stehenden Filmen. Die Anregung der Wellen erfolgte durch äußere Kräfte. In ihrem Modell zeigte sich, dass die beiden oben genannten Moden (Abb. 3.38) die Dynamik der Undulationen wesentlich bestimmen. Weitere Moden, die von der gegenseitigen Durchdringung der Schichten beeinflusst werden, mussten in Betracht gezogen werden, um die Randbedingungen zu erfüllen, hatten aber keinen Einfluss auf die Dynamik der Film-Luft-Grenzflächen.

Im Gegensatz zum kontinuierlichen Modell von CHEN und JASNOW behandelten PONIEWIERSKI *et al.* die Dynamik der einzelnen Schichten, die elastisch miteinander gekoppelt sind [67]. Die Autoren lösten ein System von Differentialgleichungen mit einer Anzahl von Gleichungen, die der Anzahl der Schichten entspricht. Die Lösungen sind ein Satz von Eigenmoden, die durch die Komponenten der Wellenvektoren in Richtung der Filmmormalen unterschieden werden.

Dieses diskrete Modell wurde auch von ROMANOV und UL'YANOV verwendet [68]. Die Autoren zeigten, wie das System von Differentialgleichungen aus der kontinuierlichen hydrodynamischen Beschreibung gewonnen werden kann.

Die Dispersionsrelation *reiner Kapillarwellen* war durch

$$\omega = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho\delta}}q \quad (3.43)$$

gegeben. Die Dämpfungsrate entsprach [68]

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\eta_3 q^2}{2\rho}. \quad (3.44)$$

Abschätzung der Geschwindigkeit peristaltischer Wellen entlang eines Flüssigkristallfilms

Wie in [69] gezeigt wurde, kann die Ausbreitungsgeschwindigkeit peristaltischer Undulationen entlang eines smektischen Films mithilfe der Gleichungen 3.41 abgeschätzt werden. Es sollte nun untersucht werden, ob die Geschwindigkeit der Undulationen von einer solchen Größenordnung ist, dass die Wellen dem Rand des reißenen Films vorauslaufen können.

Hierbei wurden alle dissipativen Terme in der NAVIER-STOKES-Gleichung vernachlässigt. Diese Vereinfachung ist äquivalent zur Annahme $\omega\tau \ll 1$. Weiterhin

wurde die Durchdringung der smektischen Schichten als vernachlässigbar klein angenommen, so dass die Permeationskonstante $\lambda_p = 0$ ist. K kann vernachlässigt werden, da $B\partial_z^2 u \gg K\partial_x^4 u$. Damit vereinfacht sich das Gleichungssystem 3.41 zu

$$\begin{aligned}\partial_x v_x + \partial_z v_z &= 0, \\ \rho \partial_t v_x &= -\partial_x p, \\ \rho \partial_t v_z &= -\partial_z p + B\partial_z^2 u, \\ \rho \partial_t u &= v_z.\end{aligned}\tag{3.45}$$

Für die Lösung der Gleichungen wurde der Ansatz

$$\begin{aligned}v_x &= \hat{v}_x \cos kz \exp i(\omega t - qx), \\ v_z &= i\hat{v}_z \sin kz \exp i(\omega t - qx), \\ p &= \hat{p} \cos kz \exp i(\omega t - qx), \\ u &= \hat{u} \sin kz \exp i(\omega t - qx).\end{aligned}\tag{3.46}$$

gewählt. k steht hierbei für die Wellenzahl senkrecht zur Filmebene, q für die Wellenzahl in der Filmebene. Mithilfe der ersten beiden Gleichungen des Systems 3.45 konnten die Geschwindigkeitskomponenten eliminiert werden:

$$\hat{v}_x = \frac{q}{\omega\rho} \hat{p}\tag{3.47}$$

bzw.

$$\hat{v}_z = \frac{q}{k} \hat{v}_x = \frac{q^2}{\omega\rho k} \hat{p}.\tag{3.48}$$

Damit können die letzten beiden Gleichungen des Systems zu

$$(q^2 + k^2)\hat{p} = Bk^3\hat{u}\tag{3.49}$$

und

$$\omega\hat{u} = \frac{q^2}{\omega\rho k} \hat{p}\tag{3.50}$$

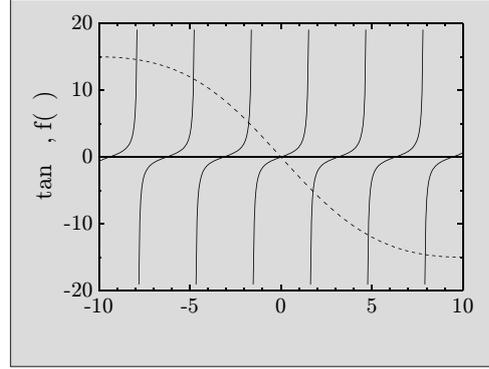
umgeschrieben werden.

Die erste Randbedingung des Spannungstensors für Flüssigkeitselemente an den Grenzflächen ist

$$\sigma_{xz} = \sigma_{xz}^{\text{ext}} = 0.\tag{3.51}$$

Diese Beziehung gilt im vorgeschlagenen Modell, da alle Viskositäten vernachlässigt werden. Weiterhin gilt die Randbedingung

Abbildung 3.41: Graphische Darstellung von Gl. 3.57 zur Lösung der Gleichung. Die beiden Kurven schneiden sich immer in der Nähe von $\alpha = (n - 1/2)\pi$.



$$\sigma_{zz} = \sigma_{zz}^{\text{ext}} \pm \sigma \partial_x^2 \zeta^\pm = -P^\pm + B \partial_z \zeta^\pm, \quad (3.52)$$

wobei $\zeta^\pm = u(\pm r)$ die Verschiebung der smektischen Schicht und $P^\pm = p(\pm r)$ der Druck an den Grenzflächen sind:

$$P^\pm = \hat{p} \cos kr \exp i(\omega t - qx), \quad (3.53)$$

$$\zeta^\pm = \pm \hat{u} \sin kr \exp i(\omega t - qx). \quad (3.54)$$

Die zz -Komponente des externen Spannungstensors in Gl. 3.52 ist durch

$$\sigma_{zz}^{\text{ext}} = -p_0 \quad (3.55)$$

gegeben.

Die Randbedingung, die durch Gl. 3.52 gegeben ist, führt zu

$$\hat{p} = (\sigma q^2 \tan kr + Bk) \hat{u}, \quad (3.56)$$

und mithilfe der Gleichungen 3.49 und 3.50 zu

$$\tan kr = -\frac{Bk}{\sigma(q^2 + k^2)}. \quad (3.57)$$

Diese Gleichung kann graphisch gelöst werden. Die Funktionen $\tan \alpha$ ($\alpha = kr$) und $f(\alpha) = -B\alpha r / (\sigma(q^2 r^2 + \alpha^2))$ (gestrichelte Linie) sind in Abb. 3.41 dargestellt.

Nimmt man $B \sim 10^7 \text{ N/m}^2$, $\sigma \sim 0,03 \text{ N/m}$, $r \approx \delta/2 \sim 500 \text{ nm}$ und $q \sim 10^6 \text{ m}^{-1}$ an, so ergibt sich $Bk \gg \sigma(q^2 + k^2)$. Damit ist $kr \approx (n - 1/2)\pi$ (für ganzzahlige n), bzw.

$$k \approx (2n - 1) \frac{\pi}{\delta}. \quad (3.58)$$

Mithilfe dieser Beziehung, Gl. 3.49 und Gl. 3.50 erhält man die Lösung

$$\omega \approx \sqrt{\frac{B}{\rho}} \frac{kq}{\sqrt{k^2 + q^2}} \approx \sqrt{\frac{B}{\rho}} \frac{q}{\sqrt{1 + (q\delta)^2 ((2n - 1)\pi)^{-2}}}. \quad (3.59)$$

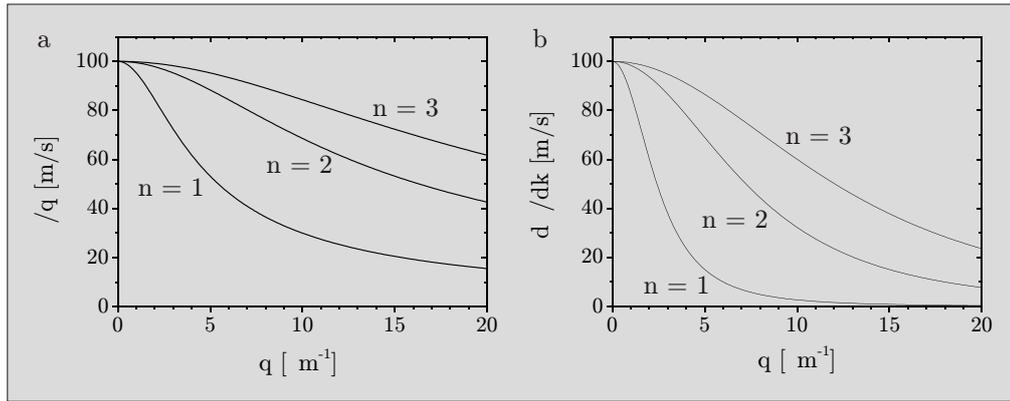


Abbildung 3.42: Dispersionsrelation einer peristaltischen Undulation entlang eines smektischen Films nach Gl. 3.59. a) Phasengeschwindigkeit ω/q und b) Gruppengeschwindigkeit $d\omega/dq$ für die ersten drei Moden der Wellen. In jedem Fall tendieren die Geschwindigkeiten für $q \rightarrow \infty$ gegen 0. Für $q \sim 10^6 \text{ m}^{-1}$ konnten Ausbreitungsgeschwindigkeiten in der Größenordnung von $\sim 10^2 \text{ m/s}$ berechnet werden. Den Berechnungen lagen folgende Werte zugrunde: $B \sim 10^7 \text{ N/m}^2$, $\sigma = 0,028 \text{ N/m}$, $r \approx \delta/2 \sim 500 \text{ nm}$ und $q \sim 10^6 \text{ m}^{-1}$.

Die Frequenzen der Undulationen hängen also von der Filmdicke ab. Für größere Filmdicken ergibt sich eine kleinere Geschwindigkeit.

Aus Gl. 3.59 lassen sich die Phasengeschwindigkeit ω/q (Abb. 3.42a) und die Gruppengeschwindigkeit $d\omega/dq$ (Abb. 3.42b) der Undulationen entlang des Films berechnen. In Abb. 3.42 ist jeweils die Geschwindigkeit der Moden $n = 1, 2, 3$ dargestellt. Sowohl die Phasen- als auch die Gruppengeschwindigkeiten der Moden streben für $q \rightarrow \infty$ gegen 0. In den Experimenten zur Laserstreuung wurden die Wellenzahlen der auftretenden Undulationen zu $q \sim 10^6 \text{ m}^{-1}$ abgeschätzt. Für Wellenzahlen dieser Größenordnung konnte eine Ausbreitungsgeschwindigkeit von $\sim 10^2 \text{ m/s}$ näherungsweise berechnet werden.

Bei der vorliegenden Form von Undulationen handelt es sich um den sog. zweiten Schall⁹. Dies ist gleichzusetzen mit der Ausbreitung transversaler Schwingungen, die in smektischen Materialien, nicht aber in herkömmlichen Flüssigkeiten auftreten können. Nach DE GENNES ist die maximale Geschwindigkeit des zweiten Schalls gegeben durch $\frac{1}{2}\sqrt{B/\rho} \approx 50 \text{ m/s}$ [64]. Diese Geschwindigkeit verläuft nicht in Richtung der Filmebene oder senkrecht dazu, sondern enthält Anteile beider Ausbreitungsrichtungen [70]:

$$\omega = \sqrt{\frac{B}{\rho}} \sin \gamma \cos \gamma. \quad (3.60)$$

γ bezeichnet hierbei den Winkel zwischen der Ausbreitungsrichtung der Schallwelle und den smektischen Schichten. Das heißt, die maximal erreichte Geschwindigkeit

⁹engl.: second sound, bezeichnet die Ausbreitung von Schall in einem smektischen Flüssigkristall, bei dem Geschwindigkeitskomponenten sowohl in Filmebene als auch senkrecht dazu überlagert sind.

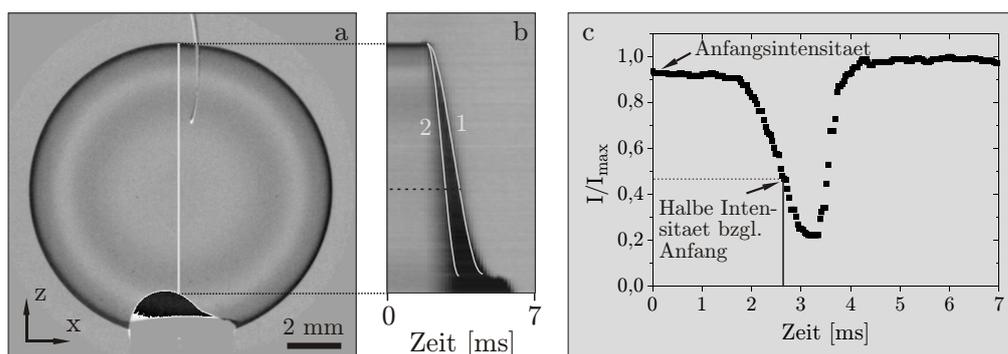


Abbildung 3.43: Experimentelle Abschätzung der Geschwindigkeit sich ausbreitender Wellen entlang eines smektischen Films. a) smektische Blase mit einer Filmdicke von 2380 nm und einem Radius von 5,6 mm. b) zeitliche Entwicklung des vertikalen Querschnitts (weiße Linie) in a. Linie 1 wurde an den Rand angepasst, Linie 2 entspricht der Position der sich ausbreitenden dunklen Front. c) zeitliche Entwicklung der Intensität entlang der horizontalen Linie durch den Blasenmittelpunkt (gestrichelt, schwarz). Die Position der Intensität, die der Hälfte der anfänglichen Intensität entsprach, führte zu Linie 2 in b).

des zweiten Schalls ist unter einem Winkel von 45° zur Filmebene zu finden. Im oben berechneten Fall bezieht sich die Geschwindigkeit aber auf die Bewegung der Undulationen *in der Filmebene*. Die Geschwindigkeit, die sich nach DE GENNES in Ausbreitungsrichtung des zweiten Schalls ergibt (Gl. 3.60), ist eine Überlagerung von Wellen, die sich mit der berechneten Geschwindigkeit in Filmebene bewegen und von Wellen senkrecht zur Filmebene. Durch die Projektion des zweiten Schalls in die Filmebene muss die oben berechnete Geschwindigkeit um den Faktor $\sqrt{2}$ schneller sein, als $\frac{1}{2}\sqrt{B/\rho}$. Somit ergibt sich in Bezug auf die Größenordnung eine gute Übereinstimmung des berechneten Werts mit Gl. 3.60.

Der berechnete Wert für die Ausbreitungsgeschwindigkeit von Undulationen kann mit experimentellen Daten verglichen werden. Während des Reißens wurde, wie oben beschrieben, eine dunkle Front beobachtet, die dem Rand vorausseilt. Ein Beispiel ist in Abb. 3.43 dargestellt.

Abbildung 3.43b zeigt den vertikalen Querschnitt (weiße Linie in Abb. 3.43a) einer Blase während des Reißens. Die z -Achse wurde so gesetzt, dass der Blasenmittelpunkt bei $z = 0$ liegt. Die Zeitachse in Abb. 3.43b verläuft von links nach rechts. Der gesamte Zeitabschnitt beträgt 7 ms. Der Querschnitt verlief durch die Mitte der Blase. Die Filmdicke der Blase betrug 2380 nm, der Radius 5,6 mm. Die graue Linie 1 in Abb. 3.43b kennzeichnet die Position des Randes der reißenden Blase. Diese Kurve entspricht einer Kosinusabhängigkeit, da die Geschwindigkeit des Randes konstant ist und die graue Kurve eine Projektion des (sich auf einer Kugel befindlichen) Randes auf die z -Richtung darstellt. Diese Kurve wurde an den schwarzen Rand angepasst.

Die Kurve 2 in Abb. 3.43b, welche die Position der Front markiert, wurde bestimmt, indem der horizontale Querschnitt $I(z, t)$ für jede z -Position analysiert wurde. Dabei wurde jeweils das Intensitätsprofil für jeden horizontalen Querschnitt

von $t = 0$ bis zu dem Zeitpunkt, zu dem die horizontale Linie die graue Kurve entlang des Randes schneidet, betrachtet. Das Profil für zum Beispiel den horizontalen Querschnitt durch $z = 0$ (gestrichelte schwarze Linie), ist in Abb. 3.43c dargestellt. Die Position der dunklen Front entsprach der Position im Querschnitt, bei der die Intensität auf die Hälfte der anfänglichen Intensität abgefallen war. Im Falle des horizontalen Querschnitts entlang der schwarzen gestrichelten Linie in Abb. 3.43b war dies bei $t \approx 16$ ms der Fall. Durch diese Werte für alle z konnte wiederum eine Kosinuskurve angepasst werden (graue Linie 2 in Abb. 3.43b).

Die dunkle Front bewegt sich im vorliegenden Fall mit etwa der doppelten Geschwindigkeit wie der Rand der reißenden Blase, also mit etwa 10 m/s. Diese Geschwindigkeit bezieht sich auf Kurve 2 in Abb. 3.43b. Tatsächlich ist schon deutlich vorher eine Verdunklung des Films nachweisbar. Das heißt, die gemessene Geschwindigkeit stimmt in der Größenordnung mit dem für diesen Fall nach Gl. 3.59 berechneten Wert von ~ 100 m/s gut überein. Dabei wurden die Filmdicke $\delta = 2310$ nm und die Wellenzahl $q = 10^6$ m⁻¹ zugrunde gelegt. Die Dichte ρ , die Schichtkompressibilität B und die Oberflächenspannung σ für 8CB sind Tab. A.1, S. 107 zu entnehmen.

Diese Übereinstimmung stützt die Annahme, die Lichtstreuung entsteht durch peristaltische Undulationen des Films, die durch den ständigen Zusammenstoß des Randes mit den Filmelementen initiiert werden. Für Filme mit mehr als 200 smektischen Schichten ($\delta \approx 600$ nm) ist die Geschwindigkeit in einem Bereich, der experimentell nachweisbar ist. Es konnte gezeigt werden, dass sich eine Überlagerung von peristaltischen und Kapillarwellen mit der Geschwindigkeit des zweiten Schalls ausbreitet.

Für geringere Filmdicken als 600 nm geschieht die Wellenausbreitung schneller. Die Ausbreitung von Undulationen kann als nahezu instantan angenommen werden. Allerdings hat eine auf einen Film aufmodulierte Undulation im Vergleich zu einem Film mit mehr als 200 Schichten umso weniger Einfluss auf die Transmission einer Lichtwelle. Die Amplitude der Undulationen der Welle hängt bei gleicher relativer Kompression der Schichten von der Filmdicke ab und ist in dünnen Filmen geringer. Da die Intensität der Streuung unmittelbar mit der Amplitude zusammenhängt, ist die Verdunklung des Films weder in Transmissionsbildern noch mittels Laserstreuung zu beobachten.

3.6 Diskussion

In diesem Kapitel wurde das Reißen flüssiger, nicht-viskoser Filme untersucht. Die Filmdicken lagen bei einer Größenordnung von einigen Mikrometern. Für die Untersuchungen wurde hauptsächlich die flüssigkristalline Substanz 8CB verwendet, da Filme aus diesem Material im Gleichgewicht eine einheitliche Dicke aufweisen. Diese Tatsache erlaubte selbst während des Reißens eine berührungslose Messung der Filmdicke mithilfe einer optischen Methode.

Bei der zumeist untersuchten Blasenform entstand ein Loch im Film, welches mit der Zeit anwuchs. In dieser Hinsicht glich dieser Prozess dem Reißen planarer Filme. Das Reißen erfolgte wie im bisher etablierten Modell von LORD RAYLEIGH, CULICK und anderen beschrieben.

Die Beziehung nach CULICK (Gl. 3.1), welche die Geschwindigkeit des Randes im reißen Film beschreibt, wurde von PANDIT und DAVIDSON für sphärische Geometrien bestätigt [29]. Allerdings konnte die Filmdicke in diesen Messungen nicht mit hoher Genauigkeit bestimmt werden, da diese in den verwendeten Seifenfilmen nicht homogen ist. Diese Inhomogenität äußerte sich in der Reißgeschwindigkeit, die auf der oberen Hemisphäre schneller vonstatten ging als auf der unteren (siehe Abbildungen in [29]). In der vorliegenden Arbeit konnte die Reißgeschwindigkeit in Abhängigkeit der anfänglichen Filmdicke mithilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera mit höherer Präzision gemessen werden. Das Gesetz von CULICK konnte prinzipiell verifiziert werden. Die Abhängigkeit der Reißgeschwindigkeit von $\delta^{-1/2}$ war linear. Allerdings war eine systematische Abweichung der gemessenen Werte der Geschwindigkeit von der von Gl. 3.1 vorausgesagten Geschwindigkeit zu verzeichnen. Die gemessenen Werte waren etwa 10 % zu klein.

Diese Diskrepanz zwischen experimentellen Daten für die Geschwindigkeit und dem Modell konnte auch für Seifenfilme gefunden werden, wobei die Abweichung hier nicht so stark ausgeprägt war.

Der Grund für diese Diskrepanz könnte der Übertrag des Impulses auf die den Film umgebende Luft sein: die Luftschichten nahe des Films bewegen sich mit. Die für smektische Filme um 10 % zu geringe Randgeschwindigkeit ist gerechtfertigt, wenn auf jeder Seite des Films mit einer Dicke der Größenordnung $\sim 1 \mu\text{m}$ eine $\sim 50 \mu\text{m}$ dicke Schicht Luft mitbewegt wird. Die Dichten von Luft und der flüssigkristallinen Substanz unterscheiden sich etwa um den Faktor 10^3 .

Die Annahme des Modells, dass es sich bei Filmen aus 8CB um Filme vernachlässigbar kleiner Viskosität handelt, ist gerechtfertigt, da selbst bei der höchsten zeitlichen Auflösung von 120000 Bildern pro Sekunde, die mit der verwendeten Kamera möglich war, eine lineare Reißgeschwindigkeit vom Beginn des Reißens an beobachtet werden konnte. Im Falle viskoser Flüssigkeiten ist die Reißgeschwindigkeit am Anfang des Reißprozesses niedriger [33] und erreicht die Geschwindigkeit nach CULICK erst nach einer Zeit $t \neq 0$ (der Zeitpunkt $t = 0$ wurde so gewählt, dass er dem Beginn des Reißens entspricht).

Eine weitere Annahme, die dem Modell zugrunde liegt, bezieht sich auf die Filmelemente, die sich nicht in der Nähe des Randes befinden. Es wird angenommen, dass diese Filmelemente in Ruhe verbleiben, bis sie vom Rand aufgenommen werden. Es konnte gezeigt werden, dass diese Annahme nicht gerechtfertigt ist. Dazu wurden vor dem Reißen von Blasen (8CB) Glaspartikel auf den Film gebracht. Es konnte eine Bewegung dieser Partikel nachgewiesen werden, bevor die Filmelemente, auf denen sich die Partikel befanden, vom Rand des Films aufgesammelt wurden. Die gemessene Bewegung der Flüssigkeitselemente in Filmebene gehen mit einer Erhöhung der Filmdicke einher, die auch experimentell nachgewiesen werden konnte. In einem einfachen Modell wurde die Erhöhung der Filmdicke durch

zusätzlichen LAPLACE-Druck, der auf die Krümmung am Lochrand zurückzuführen ist, abgeschätzt. Die Zunahme der Filmdicke beträgt nach diesem Modell etwa 0,2 %, so dass dieser zusätzliche Druck nicht als dominierende Ursache für den Zuwachs der Filmdicke in Frage kommt. Der Schub des Randes, der auf den Film übertragen wird und dort für eine Bewegung der Filmelemente in Filmebene sorgt, ist vermutlich eher der Grund für diesen Effekt.

Dieser Filmdickenzuwachs wurde auch für reißende Blasen aus einer Tensidlösung beobachtet, konnte hier allerdings nicht quantitativ analysiert werden, da Seifenfilme zu inhomogen sind, so dass die Filmdicke während des Reißens nicht gemessen werden kann.

Bei der Beobachtung reißender smektischer Blasen in Transmission konnte eine Verdunklung der Blasen festgestellt werden. Es wurde vermutet, dass die Abnahme der Intensität transmittierten Lichts durch Streuung hervorgerufen wird. Diese Annahme wurde durch die Beobachtung einer Aufhellung smektischer Blasen bestärkt, die senkrecht zur Beobachtungsrichtung mit diffusem Licht beleuchtet wurden. Die Vermutung, dass diese Streuung auf periodische Undulationen des Films zurückzuführen ist, wurde mithilfe von Laserstreuexperimenten bestärkt. Die Beobachtung eines Laserstrahls, der jeweils eine reißende Blase an der Vorder- und an der Rückseite passierte und durch den Blasenmittelpunkt verlief, erlaubte eine qualitative Analyse des Streuprozesses. Es konnte gezeigt werden, dass der Laserstrahl unabhängig von der Richtung (Winkel θ , Abb. 3.12, S. 30) gleichmäßig gestreut wird. Die Störung war in den beobachteten Fällen also isotrop.

Der Streuwinkel war unabhängig von der anfänglichen Filmdicke des Blase immer etwa gleich groß, es konnte keine systematische Abhängigkeit des Streuwinkels von der Filmdicke festgestellt werden. Diese Untersuchung ist insofern unzureichend, als dass die Streuung durch die verwendete Methode nicht quantifiziert werden konnte. Bei der Transmission eines Laserstrahls durch eine Blase passiert der Strahl den Film zwei Mal und es findet Mehrfachstreuung statt.

Bei diesen periodischen Störungen könnte es sich um Undulationen der smektischen Schichten handeln. Hierbei konnte mithilfe einer FEM-Simulation gezeigt werden, dass reine Kapillarwellen nicht zur Streuung einer ebenen Lichtwelle führen. Peristaltische Undulationen hingegen rufen eine solche Streuung hervor.

In einem Modell wurde die Ausbreitung von überlagerten Wellen entlang eines smektischen Films untersucht. Die Größenordnung der Ausbreitungsgeschwindigkeit wurde, abhängig von der Mode, zu ~ 100 m/s bestimmt. Das heißt, peristaltische Wellen, die durch die kontinuierliche Kollision des Filmrandes mit (nahezu) ruhenden Filmelementen induziert werden, eilen dem Rand voraus. Die Annahme eines nicht-viskosen Films im Modell ist dadurch gerechtfertigt, dass die Wellen, wären sie stark gedämpft, sich nicht entlang des Films ausbreiten würden.

Reine Kapillarwellen bewegen sich mit der gleichen Geschwindigkeit wie der Rand des Films. Das heißt, selbst wenn diese Undulationen zu einer Streuung des Lichts führten, könnten sie nicht nachgewiesen werden.

Die Betrachtungen von CULICK und TAYLOR zeigten, dass während des Reißens

dünnen Filme nicht die gesamte Oberflächenenergie in kinetische Energie umgewandelt wird. Etwa die Hälfte wird in andere Energieformen umgewandelt. Im Falle smektischer Filme wird ein Teil dieser Energie aufgewendet, um peristaltische Wellen zu induzieren. Der Rest wird dissipiert. Dieser Vorgang verletzt den Impulssatz nicht, da ausschließlich Bewegungen von Flüssigkeitselementen in Richtung der Filmnormalen zur Anregung dieser Kompressionswellen beitragen. Die Herausbildung peristaltischer Wellen geht also nicht mit einer Verringerung der Randgeschwindigkeit einher.

Bestand die Blase aus einem Film mit Bereichen unterschiedlichen Filmdicken, trat die Streuung des Lichts nur in dem Bereich auf, in dem sich der Rand des reißenen Films befand (Vgl. Abb. 3.19). Dieses begrenzte Auftreten des Verdunklungsprozesses stützt die Annahme, es handle sich um Lichtstreuung, hervorgerufen durch die Ausbreitung peristaltischer Undulationen der smektischen Schichten. Diese Wellen werden nicht über eine Filmdickenstufe hinaus transportiert, sondern daran reflektiert.

Während des Reißens von Blasen aus einer Tensidlösung konnte die Abnahme der Intensität von transmittiertem Licht experimentell nicht nachgewiesen werden. In diesem Fall existiert keine Schichtstruktur im Film. Die Filmelemente reagieren, anders als im smektischen Material, nicht elastisch auf Kompressionen, so dass peristaltische Moden nicht existieren. In solchen Filmen gibt es nur Kapillarwellen, die sich etwa mit der Geschwindigkeit des Randes fortbewegen und somit nicht nachgewiesen werden können.

4 Der Katenoidenkollaps

In diesem Kapitel werden Untersuchungen zum Kollaps smektischer Katenoiden dargelegt. Katenoiden sind Flüssigkeitsfilme, die zum Beispiel zwischen zwei Ringen entstehen. Sie kollabieren, sobald der Abstand der Ringe größer als ein kritischer Abstand ist. In diesem Fall sind Katenoiden instabil.

Die Filmdicke smektischer Katenoiden im Gleichgewicht ist an allen Punkten des Films gleich groß. Die anfängliche Filmdicke der Katenoiden konnte wie im vorigen Kapitel bestimmt werden, was eine Untersuchung des Einflusses der Filmträgheit auf die Dynamik während des Kollabierens erlaubte. Zusätzlich sind smektische frei stehende Filme selbst bei einem äußeren Luftdruck von $0,1 p_0$ (p_0 ...Normaldruck) stabil. Dadurch konnte die Rolle des umgebenden Mediums, im Experiment immer Luft, analysiert werden. Die Trägheit des Films und der Luft spiegeln sich in der Kollapsgeschwindigkeit, aber auch in der Form der Katenoide während des Kollapses wider.

4.1 Grundlagen

Minimalfläche und Stabilität

Eine Katenoide (auch Kettenlinie oder Kettenkurve) ist eine mathematische Kurve, die zum Beispiel den Durchhang einer an ihren Enden aufgehängten Kette unter Einfluss der Schwerkraft beschreibt. Durch Rotation einer solchen Kurve um eine Achse, die parallel zu den Aufhängepunkten im oberen Beispiel verläuft, entsteht eine Fläche, die der Minimalfläche eines zwischen zwei Ringen aufgespannten Films entspricht (Abb. 4.1). Diese Minimalfläche wird im folgenden als Katenoide bezeichnet.

Zum Spannen einer Katenoide werden zum Beispiel zwei zylindrische oder kreisförmige Rahmen mit einer Flüssigkeit benetzt, anschließend in Kontakt gebracht

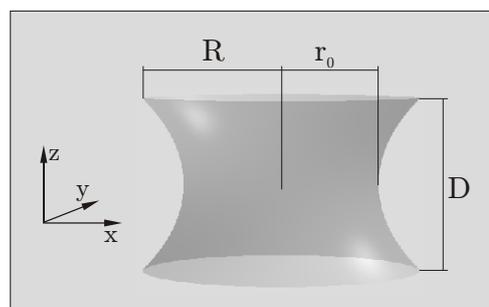


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung einer Katenoide. Eine solche Minimalfläche ist stabil, so lange der Abstand D der beiden Rahmen kleiner ist als $D_{\text{kritisch}} \approx 1,325 R$, wobei R für den Radius der Rahmen steht. r_0 bezeichnet den Minimalradius.

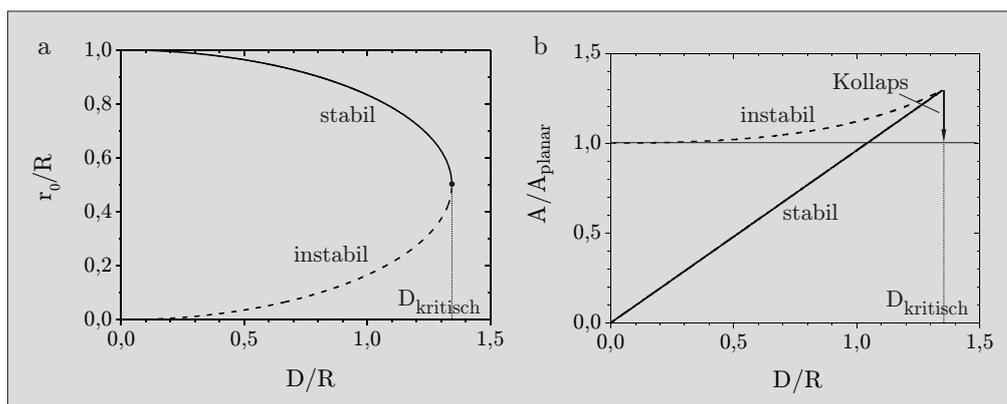


Abbildung 4.2: Stabiler und instabiler Zweig des Minimalradius' und der Fläche des Films in Abhängigkeit vom Abstand der Ringe, die eine Katenoide aufspannen. r_0 bezeichnet den Minimalradius. Im rechten Bild ist die Oberfläche des Films A über dem Abstand der Rahmen aufgetragen.

und wieder voneinander separiert. Die Energie, die zum Spannen des Films aufgebracht werden muss, ergibt sich aus dem Produkt der Oberflächenspannung und der Oberfläche:

$$E_{\text{OF}} = 2\sigma \int 2\pi r(z) ds = 4\pi\sigma \int_{-D/2}^{D/2} \underbrace{r(z) \sqrt{1 + (r'(z))^2}}_{\varphi} dz, \quad (4.1)$$

wobei die Bogenlänge ds definiert ist durch $ds = \sqrt{dz^2 + dr^2}$. Der Faktor 2 ergibt sich aus der Tatsache, dass bei einem Flüssigkeitsfilm zwei Grenzflächen existieren.

Da die Verringerung der Oberfläche die Verringerung der Energie bedeutet, tendiert das System dazu, eine minimale Oberfläche bei gegebenen Randbedingungen auszubilden. Das heißt, Katenoiden im Gleichgewicht stellen mathematische Lösungen des Minimalwertproblems dar. Mit der EULER-LAGRANGE-Gleichung

$$\varphi - \frac{\partial \varphi}{\partial r'(z)} r'(z) = \text{konstant} \quad (4.2)$$

kann die Minimalfläche berechnet werden. Hierbei sind φ der Integrand in Gl. 4.1 und $r(z)$ der Abstand des Films von der Rotationsachse (z -Achse) in Abhängigkeit von z . Man findet als Lösungsschar:

$$r(z) = \sqrt{x^2 + y^2} = r_0 \cosh\left(\frac{z}{r_0}\right). \quad (4.3)$$

Es handelt sich um eine Wendepunkt bifurkation mit einem stabilen und einem instabilen Zweig (Abb. 4.2a). Es lassen sich für Abstände der Ringe D , die einen kritischen Wert nicht übersteigen, also immer zwei Minimalradien r_0 finden, für die die Gleichung erfüllt ist. Der Minimalradius r_0 ergibt sich durch die Randbedingung

$R = r_0 \cosh(D/(2r_0))$. Im Experiment ist es praktisch unmöglich, eine Katenoide mit einem r_0 , welches zum instabilen Zweig gehört, zu erzeugen.

Für Abstände D , die über dem kritischen Wert $D_{\text{kritisch}} \approx 1,325 R$ liegen, lassen sich keine Lösungen von r_0 für Gl. 4.3 finden. In diesem Fall kann die Krümmung, und damit der LAPLACE-Druck, nicht mehr an jeder Stelle des Films Null sein, was zum Kollabieren der Katenoide führt. Dieses Kollabieren entspricht dem Pfeil in Abb. 4.2b.

Nach dem Kollabieren befindet sich der Film wieder im Gleichgewicht [71]. Die Ringe spannen nun jeweils einen planaren Film auf. Der Energiegewinn beim Kollabieren einer Katenoide bei $D \gtrsim D_{\text{kritisch}}$ lässt sich abschätzen, indem die Oberfläche der Katenoide für $D \lesssim D_{\text{kritisch}}$ mit der des Endzustandes vergleicht. Die Fläche des Films für $D \lesssim D_{\text{kritisch}}$ lässt sich wie folgt berechnen:

$$\begin{aligned}
 A_{\text{Anfang}} &= 2 \int 2\pi r(z) ds \\
 &= 4\pi \int_{-D/2}^{D/2} r(z) \sqrt{1 + (r'(z))^2} dz \\
 &= 4\pi \int_{-D/2}^{D/2} r_0 \cosh^2\left(\frac{z}{r_0}\right) dz \\
 &= \left[\frac{4}{3} \pi r_0^2 \cosh^3\left(\frac{z}{r_0}\right) \right]_{-D/2}^{D/2} \\
 &= \frac{8}{3} \pi r_0^2 \cosh^3\left(\frac{D_{\text{kritisch}}}{2r_0}\right) \tag{4.4}
 \end{aligned}$$

A kann mithilfe der Beziehung $D_{\text{kritisch}} \approx 1,325 R$ ausgerechnet werden.

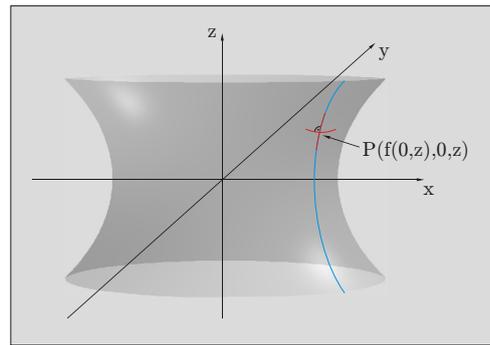
Die Fläche nach dem Kollabieren entspricht der Kreisfläche mit dem Radius der Ringe. Der Faktor 4 ist darauf zurückzuführen, dass jeder der beiden Ringe nach dem Kollaps einen planaren Film aufspannt, wobei beide Filme wiederum zwei Grenzflächen aufweisen:

$$A_{\text{End}} = 4\pi R^2 \tag{4.5}$$

Es stellt sich heraus, dass gegenüber der anfänglichen Oberflächenenergie nach dem Kollaps etwa 80 % der Energie verbleiben:

$$\frac{A_{\text{End}}}{A_{\text{Anfang}}} \approx 0,793. \tag{4.6}$$

Abbildung 4.3: Hauptkrümmungslinien eines rotationssymmetrischen Films. Die blaue Linie repräsentiert die Funktion (Gl. 4.3), die die Filmgeometrie durch Rotation um die z -Achse erzeugt. Die Hauptkrümmungslinien (rote Linien) stehen senkrecht aufeinander.



Berechnung der Krümmung

Die mittlere Krümmung einer Katenoide ist im stabilen Gleichgewichtszustand an jeder Stelle des Films gleich Null. κ_1 und κ_2 kompensieren sich gerade. Für $D > D_{\text{kritisch}}$ gilt dies nicht. Es ergibt sich ein LAPLACE-Druck verschieden von Null, der sich in der Beschleunigung der Flüssigkeitselemente in Richtung \vec{n} senkrecht zur Filmebene äußert:

$$\vec{a} = \frac{2\sigma}{\delta} (\kappa_1 + \kappa_2) \vec{n}. \quad (4.7)$$

δ steht hierbei für die Dicke des Films.

Eine Katenoide ist rotationssymmetrisch bezüglich der z -Achse in Abb. 4.3. Zur Berechnung des LAPLACE-Druckes ist die Kenntnis der Krümmungen der Hauptkrümmungslinien (rote Kurven in Abb. 4.3) an allen Punkten P entlang der erzeugenden blauen Kurve notwendig.

Die Krümmung κ ist die Summe der beiden Krümmungen κ_1 und κ_2 . κ_1 und κ_2 sind hierbei die Krümmungen der Hauptkrümmungslinien 1 und 2 am Punkt P. Im Falle rotationssymmetrischer Filme kann die Krümmung nach [72] wie

$$\kappa_1 = \frac{r''(z)}{\left(\sqrt{1 + (r'(z))^2}\right)^3} \quad (4.8)$$

und

$$\kappa_2 = \frac{1}{r(z) \sqrt{1 + (r'(z))^2}} \quad (4.9)$$

berechnet werden.

4.2 Bisherige Literatur

Der Kollaps von Katenoiden aus *Seifenfilmen* wurde von CRYER und STEEN beobachtet [73]. Es wurden Bilder mehrerer Katenoiden zu verschiedenen Zeitpunkten

des Kollapses aufgenommen. Aufgrund der hohem Reproduzierbarkeit konnten Bilderserien erzeugt werden, die den Kollaps solcher Katenoiden veranschaulichen.

Der Kollaps wurde in mehrere Abschnitte unterteilt: „necking“, „pinching“, „breaking“ und „relaxing“. Bis zum Zeitpunkt des „breaking“ blieb die axiale Symmetrie erhalten. Für die Beschreibung des Kollapses wurde ein Modell entwickelt, welches die Oberflächenenergien verschiedener statischer und axialsymmetrischer Zustände miteinander vergleicht und so der Kollaps-Trajektorie folgt.

Ein Ansatz für die theoretische Beschreibung des Katenoidenkollapses wurde von SETHIAN und CHOPP geliefert [74]. Die Autoren benutzten hierfür das Konzept von Hyperflächen, die auf der mittleren Krümmung an jedem Ort basieren. Diese Technik ist bekannt als „level set approach“ und führte nur für das Anfangsstadium des Kollapses zu einem zufriedenstellenden Ergebnis.

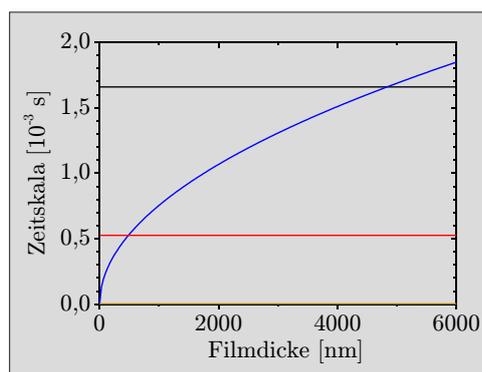
In einer nachfolgenden, und dieses Thema betreffend wichtigsten Arbeit von CHEN und STEEN versuchten die Autoren, den Kollaps einer Katenoide mit einem dynamischen Ansatz zu erklären [71]. Die Autoren schlugen Zeitskalen vor, welche bezüglich der Beiträge Viskosität und Trägheit von sowohl Luft als auch Filmmaterial für den Kollaps zugrunde gelegt werden können (Tab. 4.1, Abb. 4.4). Der Kollaps wird für den Fall simuliert, dass die Filmstärke relativ klein ($1 \mu\text{m}$) ist und damit die *Trägheit der Luft diesen Prozess dominiert*. Die Strömung der Luft im Inneren der Katenoide wurde als wirbelfrei angenommen, so dass die BERNOULLI-Gleichung Gültigkeit besitzt. Die Filmoberfläche wurde diskretisiert. Nun wurden in alternierender Reihenfolge die Beschleunigung $\vec{v}(\vec{x}, t)$ als Äquivalent zur Krümmung (Potential) und die Geschwindigkeit $\vec{v}(\vec{x}, t)$

$$\begin{bmatrix} \dot{\vec{v}} \\ \dot{\vec{x}} \end{bmatrix} \propto \begin{bmatrix} -\frac{\sigma}{\delta}(\kappa_1 + \kappa_2) \\ \vec{v} \end{bmatrix} \quad (4.10)$$

	Zeitskalen	Wert [s]
Trägheit der Luft	$\sqrt{\frac{\rho_{\text{Luft}} R^3}{\sigma}}$	$1,7 \times 10^{-3}$ bei p_0
		$5,2 \times 10^{-4}$ bei $p_0/10$
Trägheit des Films	$\sqrt{\frac{\rho_{\text{Film}} R^2 \delta}{\sigma}}$	$7,5 \times 10^{-4}$
Viskosität der Luft	$\frac{\mu_{\text{Luft}} R}{\sigma}$	$2,5 \times 10^{-5}$
Viskosität des Films	$\frac{\mu_{\text{Film}} \delta}{\sigma}$	$1,1 \times 10^{-6}$

Tabelle 4.1: Zeitskalen der verschiedenen Beiträge beim Kollaps von Katenoiden. Die Werte für die Zeitskalen wurden für $\delta = 1000 \text{ nm}$ berechnet. Die Werte der einzelnen Beiträge für $\delta \in [0 \text{ nm}, 6000 \text{ nm}]$ sind in Abb. 4.4 dargestellt. Weiterhin wurden folgende Werte für Berechnungen zugrunde gelegt: $\rho_{\text{Luft}} = 1,2 \text{ kg/m}^3$, $R = 4 \times 10^{-3} \text{ m}$, $\sigma = 0,028 \text{ N/m}$, $\rho_{\text{Film}} = 996 \text{ kg/m}^3$, $\mu_{\text{Luft}} = 1,8 \times 10^{-5} \text{ kg/m s}$, $\mu_{\text{Film}} = 3 \times 10^{-3} \text{ kg/m s}$.

Abbildung 4.4: Zeitskalen der verschiedenen Beiträge beim Kollaps von Katenoiden in Abhängigkeit von der Filmdicke δ nach CHEN und STEEN. Die Berechnung erfolgte wie in Tab. 4.1 beschrieben. Die Farben der Linien repräsentieren folgende Beiträge: schwarz - Trägheit der Luft, rot - Trägheit der Luft bei $p \approx 0,1 p_0$, blau - Trägheit des Films, grün - Viskosität der Luft, orange - Viskosität des Films.



berechnet. Die anfängliche Instabilität ($t = 0$) der Katenoide wurde erzeugt, indem zu einer stabilen Lösung für $D \lesssim D_{\text{kritisch}}$ (siehe Abschnitt 4.1) eine kleine Störung addiert wurde:

$$r(z) = r_0 \cosh\left(\frac{z}{r_0}\right) + A \left(\cosh\left(\frac{z}{r_0}\right) - \frac{z}{r_0} \sinh\left(\frac{z}{r_0}\right) \right). \quad (4.11)$$

Dieser Ansatz führte, wie von CRYER und STEEN [73] im Experiment beobachtet, während des Kollapses zum Abschnüren (Pinch-Off) der Flüssigkeitsbrücke an *zwei* z -Positionen. Im Bereich zwischen diesen beiden z -Positionen befand sich Luft im Inneren des Films. An den Stellen, an denen der schlauchartige Film abschnürte, riss er dann. Unmittelbar nach diesem Abriss bestand das System aus zwei von den Ringen aufgespannten, (noch) gekrümmten Filmen, und es verblieb eine frei schwebende, mit Luft gefüllte Blase, die Satelliten-Blase genannt wurde, in der Mitte.

CAILLIER befasste sich in seiner Diplomarbeit in einem kurzen Abschnitt mit dem Kollaps von Katenoiden aus Seifenfilmen [75]. Er untersuchte die Abhängigkeit der Hauptkrümmungen bei $z = 0$ von der Zeit. Die Ergebnisse sind in Übereinstimmung mit den Arbeiten von CRYER und CHEN [73, 71].

4.3 Experimentelle Methoden

Versuchsaufbau

Abbildung 4.5 zeigt eine schematische Darstellung des Versuchsaufbaus. Der Film wurde mit parallelem, monochromatischem Licht beleuchtet. In entgegengesetzter Richtung von der Katenoide befand sich ein Fernfeldmikroskop, das ein vergrößertes Bild auf die CCD-Matrix einer schnellen Kamera (hier 30000 Bilder pro Sekunde) projizierte. Die Belichtungszeit der Kamera war für jedes Bild in jedem Falle $1/120000$ s.

Die Katenoide wurde zwischen zwei kreisförmigen Aluminiumrahmen mit einem Radius von 4 mm aufgespannt. Dazu wurde der Rand eines Rahmens mit 8CB benetzt und anschließend beide Rahmen miteinander in Kontakt gebracht (der untere,

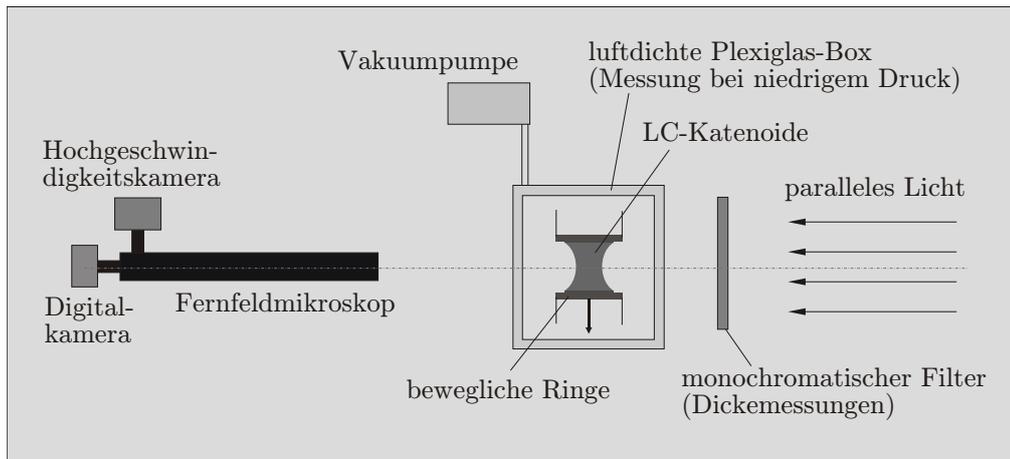


Abbildung 4.5: Versuchsaufbau zur Untersuchung kollabierender Katenoiden. Der Film wurde mit parallelem, monochromatischem Licht beleuchtet. In entgegengesetzter Richtung von der Katenoiden befand sich ein Fernfeldmikroskop, das ein vergrößertes Bild auf die CCD-Matrix einer schnellen Kamera (bis 30000 Bilder pro Sekunde) projizierte. Für Beobachtungen des Kollapses bei niedrigem Luftdruck befand sich die Katenoiden in einer Plexiglas-Box, die mit Hilfe einer Vakuumpumpe evakuiert werden konnte.

an einem Lineartisch befestigte Rahmen wurde mittels einer Mikrometerschraube bewegt). Dann wurde der Abstand beider Rahmen langsam vergrößert. Hierbei galt tendenziell: je schneller der Abstand der Rahmen vergrößert wurde, desto geringer war die Dicke des Films, sobald sich ein wohldefinierter Film mit zwei Menisken ausgebildet hat.

Für die Beobachtung des Kollapses wurden die Ringe auf einen Abstand $D \lesssim D_{\text{kritisch}}$ gebracht. Dann wurden sie voneinander separiert, so dass der kritische Abstand überschritten wurde. Dies geschah so langsam, dass die Bewegung der Ringe und die damit einhergehende Bewegung des Films keinen Einfluss auf den Kollapsprozess hatten.

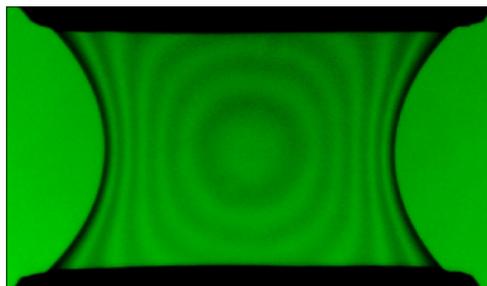
Die Messungen wurden sowohl bei Normaldruck p_0 als auch bei niedrigerem Druck $p = 0,1 p_0$ durchgeführt. Dies erlaubte eine Untersuchung des Einflusses der Luft auf den Kollaps. Zu diesem Zweck wurde die Katenoiden in einer transparenten Plexiglas-Box platziert, die mithilfe einer Vakuumpumpe evakuiert werden konnte. In diesem Fall fand die Benetzung der Rahmen vor der Evakuierung statt und die Separation der Rahmen erfolgte durch einen Lineartisch, der mit einem Schrittmotor angetrieben wurde.

Als Filmmaterial wurde der Flüssigkristall 8CB verwendet. Die Messungen wurden bei Raumtemperatur (23°C) durchgeführt, so dass sich die Substanz in der smektischen A-Phase befand (Anhang A).

Bestimmung der Filmdicke

Die Bestimmung der Filmdicke erfolgte wie in Abschnitt 3.3, *Bestimmung der Filmdicke von Blasen*, beschrieben. Katenoiden erzeugen allerdings in monochromati-

Abbildung 4.6: Transmissionsbild einer Katenoide in monochromatischem Licht. Die geschlossenen Kurven gleicher Helligkeiten sind Kurven gleicher Neigung zur Beobachtungsrichtung. Die Filmdicke wurde zu 4330 nm bestimmt.



schem, parallelem Licht keine ringförmigen Interferenzmuster, sondern solche wie in Abb. 4.6 dargestellt. Die Interferenzmaxima und -minima verlaufen entlang geschlossener Kurven gleicher Neigung des Films zur Beobachtungsrichtung. Ein solches Bild erlaubt die Bestimmung der Filmdicke, hier 4330 nm, durch Vergleich mit einem berechneten Bild, wie in Abschnitt 3.3, *Bestimmung der Filmdicke von Blasen*, beschrieben.

Ein solches Transmissionsbild wurde entweder vor dem Kollaps mit Hilfe einer Digitalkamera aufgenommen (Abb. 4.5) oder alternativ befand sich während des Kollapses ein monochromatischer Filter im Strahlengang, so dass die Filmdicke während dieses Prozesses beobachtet werden konnte.

4.4 Ergebnisse

Dynamik des Kollapses

Der Kollaps beginnt, sobald der kritische Abstand der beiden Ringe überschritten wird. Die zeitliche Entwicklung eines solchen Kollaps ist in Abb. 4.8 dargestellt. Die Zeitachse läuft von oben nach unten, die Zeitangaben beziehen sich auf die Differenz zum jeweils ersten Bild in einer Spalte. Die Spalten zeigen den Kollaps von Filmen mit verschiedenen Dicken (v.l.n.r.: 210 nm, 800 nm und 4330 nm).

Der Kollaps, wie zum Beispiel von CRYER und STEEN beschrieben, konnte reproduziert werden (Abb. 4.8, linke Spalte). Der minimale Radius r_0 verringerte sich mit der Zeit und die Flüssigkeitselemente am Minimalradius bewegten sich mit der größten Geschwindigkeit. Während dieser Inwärtsbewegung des Films existierten zwei Positionen $z, -z \neq 0$, die einen minimalen Radius r_0 aufwiesen (Abb. 4.7). In diesem späten Stadium bewegten sich die Flüssigkeitselemente an diesen z -Positionen mit der größten Geschwindigkeit. Die Luft zwischen diesen beiden Positionen im Inneren des Films wurde teilweise eingeschlossen und nach dem Reißen entstand eine mit Luft gefüllte Satelliten-Blase bei $z \approx 0$. Dieses Szenarium wird im Folgenden als Szenarium I bezeichnet. Der Prozess ist vollständig spiegelsymmetrisch bezüglich der x - y -Ebene.

Dieses Szenarium ließ sich allerdings nur für Filmdicken $\delta < 1 \mu\text{m}$ finden. Im Falle von Filmdicken $\delta > 1 \mu\text{m}$ bildete sich ein Filament anstelle der Satelliten-Blase aus (Abb. 4.8, rechte Spalte). Das heißt, die Luft im Inneren der Katenoide

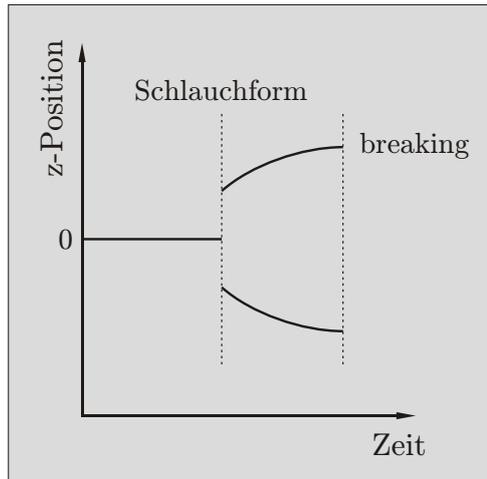


Abbildung 4.7: Schematische Darstellung der z -Position des Minimalradius' r_0 in Abhängigkeit von der Zeit. Der Abschnürprozess geschah im Falle dünner Filme an zwei z -Positionen, so dass sich eine Satelliten-Blase ausbildete.

konnte während des Kollapses vollständig entweichen. Es gab keine ausgezeichneten z -Positionen, an denen das Abschnüren stattfand (Szenarium II). Dennoch war die Geschwindigkeit der Flüssigkeitselemente am Minimalradius, ähnlich wie beim Szenarium I, nur bis zu einem Minimalradius von $> 0,25 R$ am größten. Dies wird durch die weißen Pfeile in Abb. 4.8 dargestellt.

In einem Filmdickenbereich $\delta \approx 1 \mu\text{m}$ existierten auch Szenarien, die ein Gemisch aus den beiden oben beschriebenen darstellen (Abb. 4.8, mittlere Spalte). Obwohl ein Abschnürprozess nicht erkennbar war, bildete sich eine, wenn im Vergleich zu Szenarium I auch kleine Satelliten-Blase aus (Szenarium III).

Die verschiedenen Szenarien bildeten sich für Minimalradien $r_0 < 0,25 R$ heraus. Für Minimalradien $r_0 > 0,25 R$ war die Form der Katenoide für alle Filmdicken gleich.

Das Vorhandensein verschiedener Erscheinungsformen legte eine Unterteilung des Kollapses in drei Stadien nahe. Im ersten, *frühen Stadium* konnte die Form des Randes der Katenoide insbesondere für $r_0 > 0,25 R$ im Querschnitt unabhängig von der anfänglichen Filmdicke immer mit der gleichen Funktion $r(z)$ beschrieben werden¹. Das zweite, *mittlere Stadium* umfasste den Abschnitt, in dem die Erscheinungsform stark von der Filmdicke (und dem äußeren Luftdruck, siehe später) abhing: Bildung eines Filaments oder einer Satelliten-Blase. Im dritten, *späten Stadium* entstanden aus dem geschlossenen Flüssigkeitsvolumen mehrere kleinere Volumina. In Szenarium I oder II trennte sich die Satelliten-Blase an den zwei Stellen ab, an denen das Abschnüren vonstatten ging. Handelte es sich um Szenarium III, riss das Filament an wenigstens einer Stelle. Unabhängig vom Szenarium verblieben immer zwei Filme, die am Ende des Kollapses als planare Filme über den Ringen aufgespannt waren.

Bezeichnet man denjenigen Abschnitt, in dem eine zeitliche Änderung von r_0 messbar ist, als Kollaps, so fand der Kollaps in jedem Falle in wenigen Millisekunden

¹Auch die später in Betracht gezogene Änderung des äußeren Luftdrucks hatte keinen Einfluss auf die Form der Katenoide bei $r_0 = 0,25 R$.

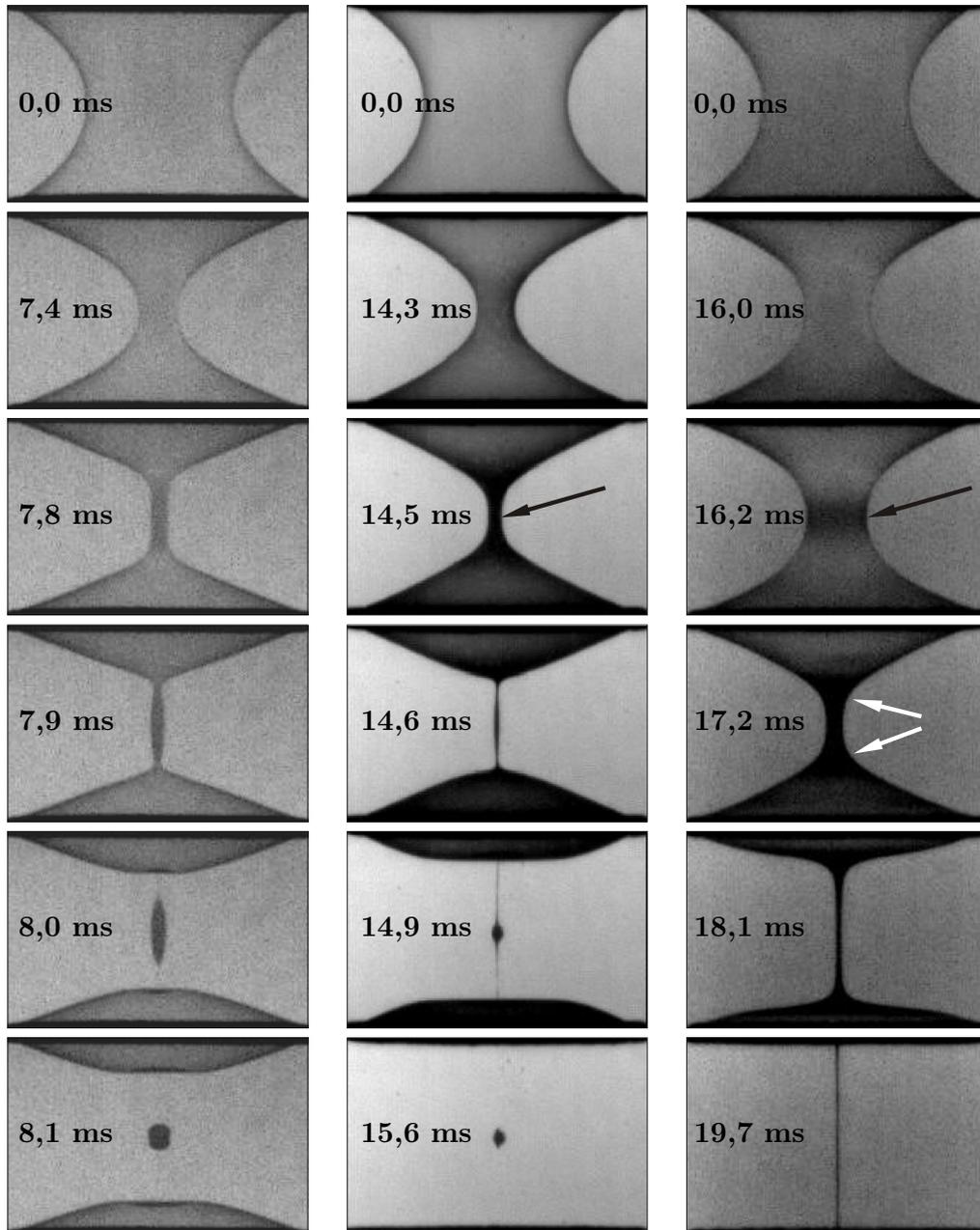


Abbildung 4.8: Zeitserie, die den Kollaps dreier Katenoiden mit unterschiedlichen Filmdicken (v.l.n.r.: 210 nm, 800 nm und 4330 nm) zeigt. Die Zeitachse läuft jeweils von oben nach unten. Es befand sich kein monochromatischer Filter im Strahlengang. Abhängig von der Schichtdicke trat ein charakteristisches Szenarium auf. Mit wachsender Schichtdicke nahm die Geschwindigkeit der Filmelemente am Minimalradius während des Kollapses ab. In den Videosequenzen *CatenoidCollapse-210nm.gif*, *CatenoidCollapse-580nm.gif* und *CatenoidCollapse-4330nm.gif* auf der CD ist der Kollaps der von Katenoiden mit vergleichbaren Filmdicken zu sehen.

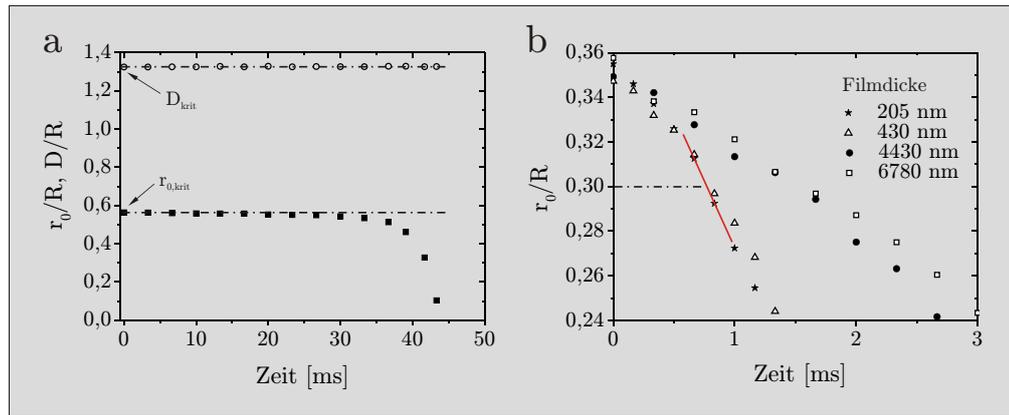


Abbildung 4.9: Abhängigkeit des Minimalradius' r_0 von der Zeit. a) Verlauf des Minimalradius' und des Abstands der Ringe D exemplarisch für eine kollabierende Katenoide während eines Beobachtungszeitraums von ~ 50 ms. Im Anfangsstadium des Kollapses ist keine Änderung des Minimalradius' messbar. Die Änderung von D blieb während des gesamten Vorgangs unmessbar klein. b) Abhängigkeit von r_0 von der Zeit während des Kollapses von vier Katenoiden mit unterschiedlichen Filmdicken. Die Beobachtungsdauer betrug etwa 3 ms. Der Zeitpunkt $t = 0$ wurde so gewählt, dass $r_0/R \approx 0,35$. Die Abnahme der Kollaps­geschwindigkeit mit zunehmender Filmdicke ist deutlich erkennbar.

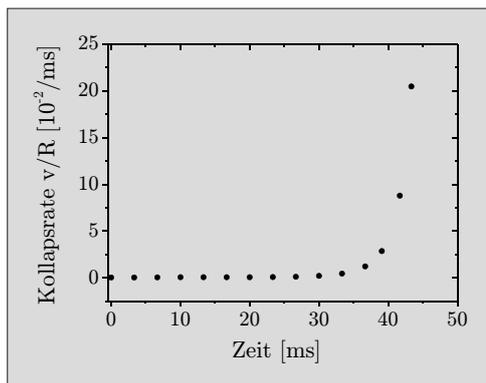


Abbildung 4.10: Geschwindigkeit (Kollapsrate) des Minimalradius r_0 während der Inwärtsbewegung beim Kollaps in Abhängigkeit von der Zeit. Die hier dargestellten Werte entsprechen der zeitlichen Ableitung einer Kurve, die an die gemessenen Werte des Minimalradius' r_0 in Abb. 4.9a angepasst wurde.

statt.

Neben den Erscheinungsformen des Kollapses unterschied sich dieser Prozess für verschiedene Filmdicken auch durch die Geschwindigkeit des Kollapses. Zur Untersuchung dieses Sachverhaltes wurde die Abhängigkeit des Minimalradius r_0 von der Zeit bei $r_0 \approx 0,3 R$ untersucht. Abbildung 4.9b zeigt die zeitliche Entwicklung von r_0 in diesem Bereich für Katenoiden mit vier verschiedenen Filmdicken. Es zeigte sich, dass der Parameter Filmdicke einen Einfluss auf die Kollaps­geschwindigkeit hat. Je größer die Filmdicke, desto größer die Trägheit. Bei gleich bleibender Kraft $dF = p_{\text{Laplace}} dA$ auf ein Flüssigkeitselement der Fläche dA verringerte sich die Kollaps­geschwindigkeit.

Für die quantitative Analyse der Geschwindigkeit kann die Kollapsrate $v/R = R^{-1} |dr_0/dt|$ bei $r_0/R = 0,3$ eingeführt werden. Die Kollapsrate entspricht dem Betrag des Anstiegs der roten Gerade in Abb. 4.9b. Die Abhängigkeit der Kollapsrate

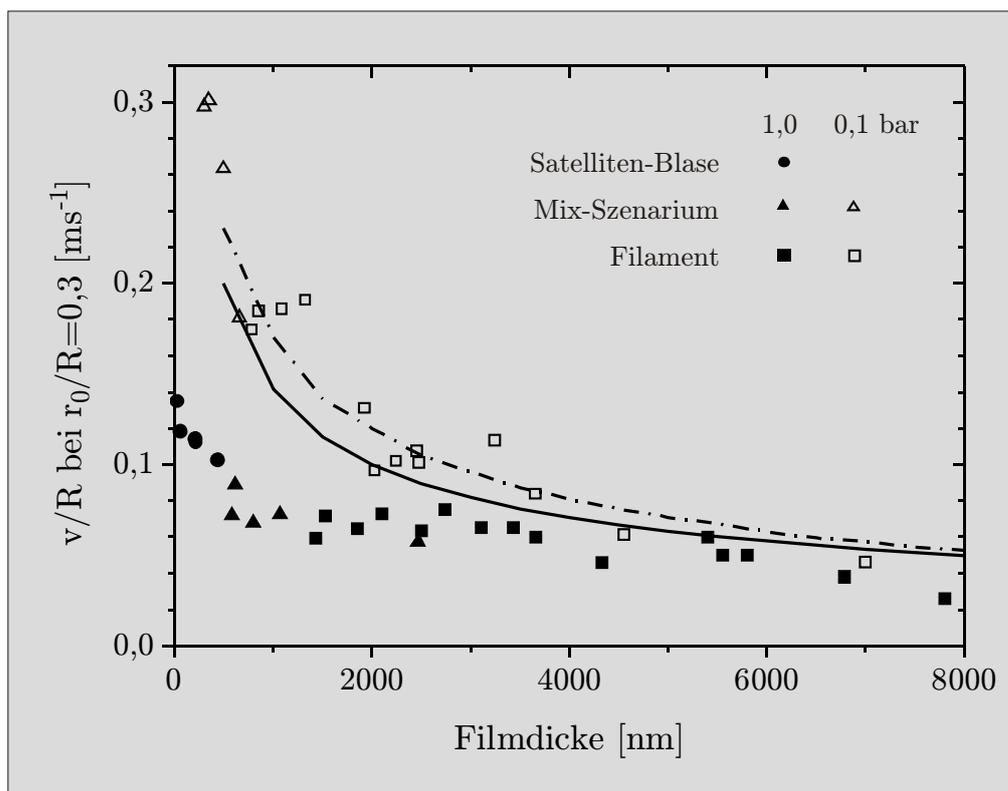


Abbildung 4.11: Kollapsrate v/R , aufgetragen über der Filmdicke der Katenoide. Die Erscheinungsform der Katenoide (Form der Symbole) hing stark von der Filmdicke und dem äußeren Luftdruck p ab. Mit abnehmender Filmdicke nahm die Kollapsrate zu; um so stärker, je geringer der äußere Luftdruck war. Bei einem Luftdruck $p = 0,1 p_0$ (p_0 ...Normaldruck) ließ sich eine Abhängigkeit der Kollapsrate v/R finden, die wie $v/R \sim \delta^{-n}$ von der Filmdicke abhängt. Die gestrichelte Linie repräsentiert die in den Simulationen (siehe unten) berechneten Kollapsraten.

von der Filmdicke bei Normaldruck wird in Abb. 4.11 durch die gefüllten Symbole repräsentiert. Die Form der Symbole spiegelt die Erscheinungsform (Szenarium) während des Kollapses wider.

Die Kollapsrate nahm mit abnehmender Filmdicke zu. Sie betrug zwischen $0,04$ und $0,06 \text{ ms}^{-1}$. Für Filmdicken von mehr als $1 \mu\text{m}$ (Szenarium III) war allerdings ein deutlich geringerer Anstieg von v/R mit abnehmender Filmdicke zu verzeichnen, als im Bereich $\delta < 1 \mu\text{m}$ (Szenarium I). Für $\delta < 1 \mu\text{m}$ konnten Kollapsraten zwischen $0,06 \text{ ms}^{-1}$ und $0,14 \text{ ms}^{-1}$ gefunden werden. Des weiteren wurde festgestellt, dass die Kollapsrate sich nicht wie $v/R \sim \delta^{-n}$ zur Filmdicke verhielt.

Handelte es sich um Filmdicken von mehr als $1 \mu\text{m}$, so war während des Kollapses ein Bereich bei $z \approx 0$ zu finden, in dem der Film das transmittierte Licht streute. Solche Bereiche sind in Abb. 4.8 durch schwarze Pfeile gekennzeichnet. Es könnte sich um Inselbildungen auf dem Film handeln, also um die Auflösung der smektischen Schichten und die Anlagerung überschüssigen Filmmaterials auf der Filmoberfläche. Eine genauere Charakterisierung der Ursache für die Streuung ist noch offen.

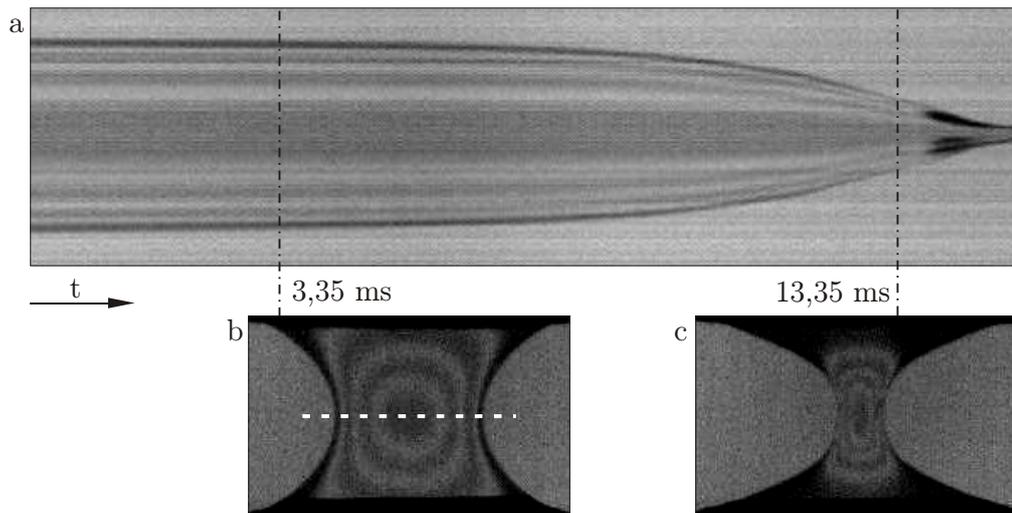


Abbildung 4.12: Zeitliche Entwicklung des horizontalen Querschnitts einer Katenoide (weiße, gestrichelte Linie) während des Kollapses. Im Strahlengang befand sich ein monochromatischer Filter ($\lambda = 535 \text{ nm}$).

Einfluss der Luft

Mit dem in Abschnitt 4.3 beschriebenen Versuchsaufbau war es auch möglich, den Katenoidenkollaps bei einem Luftdruck von $p = 0,1 p_0$ (p_0 ...Normaldruck) zu untersuchen. Das heißt, die Trägheit der Luft (die Viskosität ist vernachlässigbar klein, Tab. 4.1) kann als Parameter separat beeinflusst werden.

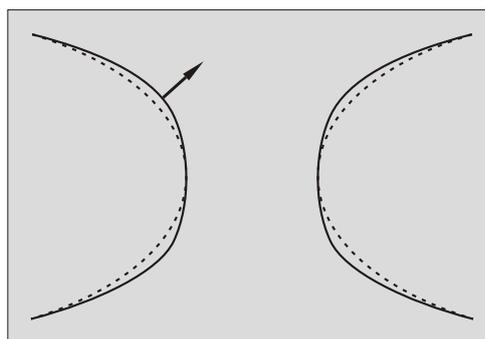
Im Vergleich mit Untersuchungen bei Normaldruck zeigte sich, dass die Erscheinungsform der Katenoide während des Kollapses stark vom Luftdruck abhing. Während bei Normaldruck die untere Grenze der Filmdicke, bei der noch Szenarium III auftrat, bei etwa 1500 nm lag, so lag diese Grenze bei einem Zehntel des Normaldrucks bei etwa 800 nm . Szenarium I tritt in diesem Fall nicht mehr auf.

Weiterhin unterscheidet sich die Kollapsrate bei $r_0/R = 0,3$ bei niedrigem Druck deutlich von der bei Normaldruck. Insbesondere für Filmdicken $\delta < 3 \mu\text{m}$ zeigte sich eine Zunahme der Kollapsrate, die um so stärker ausgeprägt war, je dünner der Film war. Für dünne Filme ($\delta \rightarrow 0$) konnte kein oberer Grenzwert für die Kollapsrate gefunden werden. Für $\delta > 3 \mu\text{m}$ unterscheiden sich die Werte der Kollapsrate für beide Drücke nicht. Wie auch bei Normaldruck strebt die Kollapsrate für den Grenzfall für große δ gegen 0. Bei $p = 0,1 p_0$ hing die Kollapsrate v/R wie $v/R \sim \delta^{-2}$ von der Filmdicke ab. Die durchgehende schwarze Linie in Abb. 4.11 entspricht hierbei einer Kurve durch die Messwerte, bei der $n = 1/2$ angenommen wurde.

Die Filmdicke während des Kollapses

Die Filmdicke konnte während des Kollapses beobachtet werden, wenn sich ein monochromatischer Filter ($\lambda = 535 \text{ nm}$, Abb. 4.5) im Strahlengang der Beleuchtung befand. Die Interferenzmuster, welche die Filmdicke charakterisieren, blieben bis

Abbildung 4.13: Die gestrichelte Kurve (Idealform) kann zu jedem Zeitpunkt durch Gl. 4.11 beschrieben werden. Im Experiment stellte sich heraus, dass eine Abweichung von der Idealform auftritt (durchgezogene Linie).



kurz vor dem Ende des zweiten Stadiums sichtbar.

Abbildung 4.12a zeigt den zeitlichen Verlauf des horizontalen Querschnitts, der durch die weiße Linie in Abb. 4.12b gekennzeichnet ist. Die Filmdicke betrug 2470 nm, die Erscheinungsform ist die als Szenarium III beschriebene. Der Zeitpunkt $t = 0$ wurde willkürlich so gewählt, dass keine Inwärtsbewegung der Filmelemente am Minimalradius nachweisbar war.

Eine Bewegung der Interferenzringe proportional zur Kollapsrate war deutlich erkennbar. Das bedeutet, das Verhältnis der Position der Interferenzordnungen zur Position des Minimalradius, und damit der Einfallswinkel des transmittierten Lichts, bleibt erhalten. Daraus lässt sich schließen, dass die Filmdicke während des Kollapses bis zu einem späten Stadium (hier etwa bis $r_0/R \approx 0,18$) konstant ist. Dieser Tatbestand war für verschiedene Filmdicken und Szenarien zutreffend. Die Erhaltung der Filmdicke während des Reißens war *nur im Falle von Katenoiden aus Flüssigkristallen* nachweisbar.

Da die Oberfläche des Films beim Kollaps abnimmt, bedeutet ein Gleichbleiben der Filmdicke, dass die Filmelemente, die sich nicht in der Mittelebene senkrecht zur Rotationsachse der Katenoide befinden, sich nicht senkrecht zum Film bewegen können (Trajektorie in Abb. 4.14). Die Verringerung der Oberfläche geht also, alternativ zur Änderung der Filmdicke, mit dem Abfluss des Materials in den Meniskus einher.

Simulationen des Kollapses ohne Einfluss der Luft

Im Experiment konnte gezeigt werden, dass eine Katenoide während des Kollabierens von der Idealform² abweicht. Es bildeten sich verschiedene Szenarien heraus, in denen sich die Form der Katenoide im Endstadium des Kollabierens unterschied. Zum Beispiel die Ausbildung einer Satelliten-Blase wurde sowohl von zahlreichen Autoren (z.B. CRYER und STEEN [73]) dokumentiert. Als Ursache für die Ausbildung einer Satelliten-Blase wurde die Luft angeführt, die aufgrund hoher Kollaps-geschwindigkeiten (also für dünne Filme) nicht vollständig aus dem Inneren der Katenoide entweichen konnte. Im Gegensatz dazu konnte die Abweichung von der

²Mit Idealform wird hier die Form bezeichnet, die durch Gl. 4.11 beschrieben werden kann (gestrichelte Linie in Abb. 4.13).

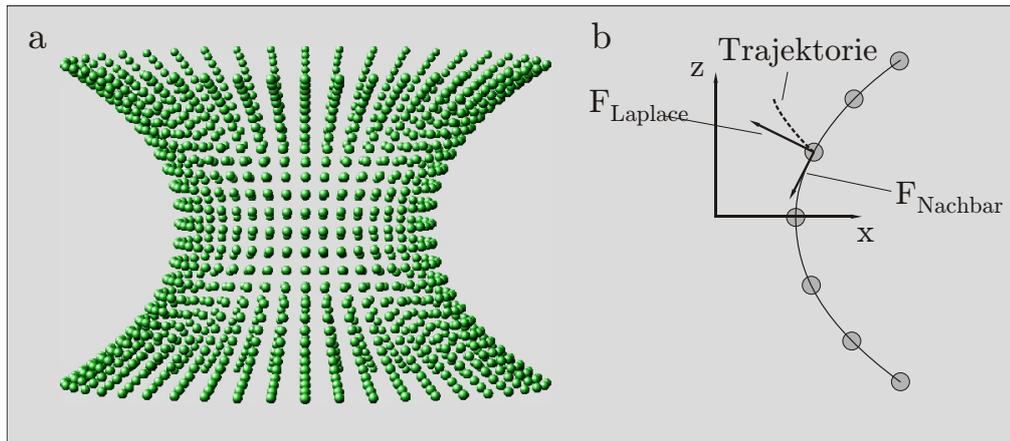


Abbildung 4.14: a) Schematische Darstellung eines diskretisierten Films einer Katenoide. b) der LAPLACE-Druck wirkt immer senkrecht auf ein Flüssigkeitselement. Andererseits gilt die Erhaltung der Filmdicke, so dass die Bewegung eines Flüssigkeitselements nicht ausschließlich parallel zur Filmnormale stattfindet.

Idealform auch im Falle von *smektischen* Katenoiden mit einer Filmdicke von mehr als $1 \mu\text{m}$ experimentell für den Fall belegt werden, *dass der äußere Luftdruck ein Zehntel des Normaldrucks betrug.*

Ein smektischer Film reagiert in die Richtung senkrecht zur Filmebene eher elastisch als flüssig auf eine Krafteinwirkung. Das heißt, die Filmdicke verändert sich nicht durch eine kleine Änderung des hydrostatischen³ Drucks, es bilden sich bis kurz vor dem Abschnüren keine Inseln. Das aufgrund der Minimierung der Oberfläche überschüssige Material muss also in den Meniskus abtransportiert werden. Dadurch liegt die Annahme nahe, *dass die Form durch die Erhaltung der Filmdicke während des Kollapses beeinflusst wird.*

Es wurden Simulationen durchgeführt, um diesen Sachverhalt zu prüfen. Dazu wurde in einem Matlab-Programm⁴ eine Katenoide mit einer diskretisierten Oberfläche erzeugt (Abb. 4.14). Das heißt, der modellierte Film bestand aus Partikeln, die miteinander gekoppelt waren. Die Filmdicke wurde als gleichbleibend angenommen. Der Abstand D (Abb. 4.1, S. 71) lag bei $\lesssim D_{\text{kritisch}}$. Die Instabilität wurde erzeugt, indem zur stabilen Lösung ein Beitrag gemäß Gl. 4.11 hinzuaddiert wurde.

Die Masse $m = \rho A \delta$ eines Partikels entsprach der eines von vier Partikeln eingeschlossenen Filmelements. Hierbei stehen A für die Oberfläche des Elements und δ für die Filmdicke. Die treibende Kraft, die zu einer Beschleunigung der Partikel führte, ergab sich aus dem LAPLACE-Druck und ließ sich mit der Gleichung

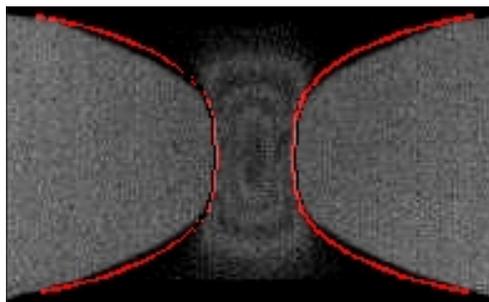
$$F = 2\sigma(\kappa_1 + \kappa_2)A. \quad (4.12)$$

berechnen. Für die Bestimmung der Krümmung wurde durch die Partikel in der x - z -

³Druckgradienten innerhalb des Film werden immer schneller ausgeglichen, als der Film sich bewegt, so dass der Druck als hydrostatisch angenommen werden kann.

⁴Das Programm CatenoidCollapse.m und die dazugehörigen Module sind auf der CD zu finden.

Abbildung 4.15: Vergleich der berechneten und der gemessenen Form einer Katenoide während des Kollapses. Es handelt sich hierbei um die gleiche Katenoide wie in Abb. 4.12. Die Filmdicke war 2470 nm. Die rote Linie ergibt sich aus der Simulation. Das Verhältnis r_0/R beträgt $\sim 0,17$.



Ebene (entspricht der blauen Linie in Abb. 4.3) ein Polynom 12. Grades angepasst. Diese Funktion konnte benutzt werden, um mit Gl. 4.8 und Gl. 4.9 κ an jedem Punkt des Films zu berechnen.

Während der Simulation wurden abwechselnd die Beschleunigung eines Flüssigkeitselements und die Änderung der Position während einer Zeitspanne Δt eines jeden Partikels bestimmt. Es handelte sich um ein System gekoppelter Massepunkte, die sich gemäß dem NEWTON'schen Gesetz $F = ma$ bewegen. Die Kraft wirkte immer in Richtung der Normalen zum Film.

Zusätzlich wurde eine Bedingung eingeführt, die eine konstante Filmdicke während des Kollapses gewährleistete. Diese Annahme sorgte dafür, dass die Flüssigkeitselemente, die sich nicht am Minimalradius befinden, sich nicht senkrecht zum Film bewegen konnten. Ein Teil der Kraft aus dem LAPLACE-Druck musste dazu aufgewendet werden, benachbarte Teilchen in lateraler Richtung (zum Meniskus) zu beschleunigen. Dadurch ergab sich die Bewegung entlang einer Trajektorie, wie sie in Abb. 4.14 schematisch dargestellt ist. Dem Kollapsprozess wurde in diesen Berechnungen die Erhaltung des Impulses zugrunde gelegt.

Die Trägheit (und Viskosität) der Umgebung ist gegenüber der Filmträgheit vernachlässigbar klein und wurde daher bei diesen Rechnungen nicht in Betracht gezogen.

Typische Werte während der Simulationen waren $A = 0,01 \text{ mm}^2$, $\Delta t = 0,05 \text{ ms}$ und $R = 4 \text{ mm}$. Der Abstand der ringförmigen Aufhängungen betrug $D \lesssim 1,325 R$, so dass eine kleine Abweichung der Form nach Innen gemäß Gl. 4.11 zum Kollaps der Katenoide führte.

Es konnte gezeigt werden, dass allein die Annahme von der Erhaltung der Filmdicke ausreicht, um eine Abweichung von der Idealform hervorzurufen. Wurde die Simulation durchgeführt, ohne dass die Bedingung der konstanten Filmdicke berücksichtigt wurde, so entsprach die Form der Katenoide bei $r_0/R \approx 0,17$ nahezu der Idealform, eine Abweichung war nicht nachweisbar.

Generell wurde die Form der Katenoide in diesen Rechnungen erst bei $r_0/R < 0,25$ beeinflusst. Es ist davon auszugehen, dass sich dieser Effekt im Experiment nicht in der Dynamik des Kollapses bei $r_0/R = 0,3$ (Abb. 4.11) widerspiegelt.

Die Kollapsrate bei $r_0/R = 0,3$, die durch die Simulationen bestimmt wurde, wird durch die Strich-Punkt-Linie in Abb. 4.11 repräsentiert. Diese Kurve hängt wie $\sim \delta^{-1/2}$ von der anfänglichen Filmdicke ab, was die Werte der Kollapsraten,

die für den Fall $p = 0,1 p_0$ (p_0 ...Normaldruck) gemessen wurden, gut beschreibt.

4.5 Diskussion

Bisherige Untersuchungen, zum Beispiel von STEEN *et al.*, beschränkten sich auf die Untersuchung des Kollapses von Katenoiden aus Seifenfilmen mit Größenordnungen von R im Bereich von bis zu einigen Zentimetern, so dass die das System umgebende Luft einen wesentlichen Einfluss auf die Dynamik besaß. Die Erscheinungsformen (Abschnürprozess, Satelliten-Blase), die in z.B. [73] beschrieben wurden, konnten in der vorliegenden Arbeit gut reproduziert werden.

Von CHEN und STEEN wurde gezeigt, dass die Dynamik wesentlich von den Parametern Filmträgheit und Luftträgheit abhängt [71]. Die Trägheit der Luft ist unabhängig von der Filmdicke bei gleichen äußeren Luftdrücken konstant. Die Beiträge der Viskositäten sind vernachlässigbar klein. Dies spiegelt sich in den Zeitskalen in Tab. 4.1 wider. So bestimmt bei einem Ringradius von $R = 4$ mm die Trägheit der Luft den Prozess, wenn die Filmdicke $\delta < 4$ μm ist.

Die Trägheit der Filmdicke beeinflusst nach CHEN und STEEN [71] die Dynamik des Films. Dieser Einfluss ist umso stärker, desto dicker der Film ist. Dieser Zusammenhang konnte in den Experimenten mit smektischen Katenoiden, deren Filmdicke mithilfe einer optischen Methode gemessen werden konnte, bestätigt werden.

Unabhängig von der Trägheit der Luft (proportional zum Luftdruck) nahm die Kollapsrate mit steigender Filmdicke ab. Es zeigte sich ein asymptotisches Verhalten der Kollapsraten für ansteigende Filmdicken. Im anderen Grenzfall ($\delta \rightarrow 0$) hing der Grenzwert stark vom äußeren Luftdruck, und damit von der Trägheit der Luft ab. Bei Normaldruck konnte für Filmdicke eine bestimmte Kollapsrate ($v/R \approx 0,14$ ms^{-1}) nicht überschritten werden. In Experimenten bei einem Zehntel des Normaldrucks zeigte sich, dass die Kollapsrate im Grenzfall $\delta \rightarrow 0$ deutlich höher war, verglichen mit den Messungen bei Normaldruck.

Weiterhin zeigte sich, dass die äußeren Parameter (Filmdicke, Luftdruck) neben der Dynamik die Erscheinungsform während des Kollapses beeinflussen. Im Falle dominanter Trägheit der Luft bildete sich eine Satelliten-Blase aus.

Bei einer geringeren Kollapsrate mit ansteigender Filmdicke konnte die Luft im Inneren der Katenoide entweichen. Die Bewegung des Gases im Inneren der Katenoide zeichnete sich durch eine geringere Geschwindigkeit aus, es bildete sich ein Filament.

Durch die Evakuierung der Plexiglas-Box, in der sich die Katenoide befand, konnte der Einfluss des äußeren Luftdrucks auf die Erscheinungsform separat untersucht werden. Ist der äußere Luftdruck geringer, muss weniger Gas entweichen. Dadurch konnte im Falle $p = 0,1 p_0$ auch für dünne Filme keine Satelliten-Blase während des Kollapses nachgewiesen werden. Es wurde schon bei Filmdicken ab 1 μm das Szenarium III (Filament) beobachtet. Dieser Effekt war umso stärker, desto weniger Gas sich im Inneren der Katenoide befand.

Kollabierte eine Katenoide, die aus einer flüssigkristallinen Substanz bestand, so blieb die Filmdicke während des Kollapses konstant. In Simulationen des Katenoidenkollapses, bei denen die Trägheit der Luft vernachlässigt wurde, äußerte sich diese Nebenbedingung in einer Abweichung von der Idealform der Katenoide für Verhältnisse von $r_0/R < 0,25$. Das heißt, die Luft, die nicht schnell genug aus dem Inneren der Katenoide entweichen kann, ist nicht die einzige Ursache für eine Abweichung der Katenoide von der Idealform während des Kollapses. Die Erhaltung der Filmdicke während des Kollapses verstärkt den Effekt der erhöhten Geschwindigkeit der Filmelemente bei $z \neq 0$ (Pfeil in Abb. 4.13).

Prinzipiell konnte keine Abweichung der Katenoide von der Normalform sowohl experimentell, als auch in Simulationen bis zu einem Verhältnis $r_0/R \approx 0,25$ festgestellt werden.

5 Blasenschwingungen

In diesem Kapitel sollen einführende Untersuchungen zum Schwingungsverhalten von Seifenblasen dargelegt werden. Es handelte sich um Blasen aus kommerziell erhältlicher Seifenlösung. Als umgebendes Medium diente Luft, die Seifenblasen schwebten auf einer Schicht Butangas. Eine Blase wurde zur Schwingung angeregt, wenn entweder zwei Blasen fusionierten oder eine von zwei zusammenhängenden Blasen platzte.

Für die Analyse des Schwingverhaltens wurde angenommen, dass die Form der Blase zu jedem Zeitpunkt als eine Linearkombination von Kugelflächenfunktionen dargestellt werden kann. Es sollte untersucht werden, wie sich die Amplituden der Moden zeitlich entwickeln und ob sich die Schwingungen der Moden gegenseitig beeinflussen.

In diesem Kapitel werden ausschließlich experimentelle Ergebnisse vorgestellt. Nach diesen Untersuchungen bestehen weiterhin offene Fragen, die es in weiterführenden Experimenten zu untersuchen gilt. Aus diesem Grund wird auf eine ausführliche Interpretation der bisher vorhandenen Ergebnisse verzichtet.

5.1 Klassifizierung des Systems

Bei dem untersuchten System handelt es sich um Tensidfilme, die geschlossen sind (Seifenblasen). Sowohl im Inneren als auch außerhalb einer solchen Blase befindet sich Luft. In der vorliegenden Arbeit werden ausschließlich frei schwebende Blasen betrachtet. Schwingungen von Blasen, die sich auf einer Kapillare befanden, wurden nicht untersucht.

Neben Seifenblasen existieren weitere Systeme, die vom physikalischen Standpunkt ähnlich sind, aber dennoch unterschieden werden müssen. So gibt es Gasblasen in einer Flüssigkeit, Flüssigkeitstropfen in einem Gas und Flüssigkeitstropfen in einer Flüssigkeit.

Bei Gasblasen in einer Flüssigkeit handelt es sich um Gasvolumina, deren Masse im Vergleich zum umgebenden Medium vernachlässigbar klein ist. Bei der Schwingung einer solchen Gasblase strömt die Flüssigkeit bei einer Verformung der Blase um diese herum. Es existiert, wie auch bei den nachfolgenden Geometrien, nur *eine* Grenzfläche, die zur Dynamik von Schwingungen beiträgt.

Die dazu inverse Geometrie ist ein Flüssigkeitstropfen in einem Gas, zum Beispiel ein Wassertropfen in Luft. Für nicht allzu kleine Tropfen, bei denen die Bond-Zahl einen kritischen, systemspezifischen Wert nicht unterschreitet, ist die Trägheit des Tropfens wesentlich, das umgebende Gas kann vernachlässigt werden.

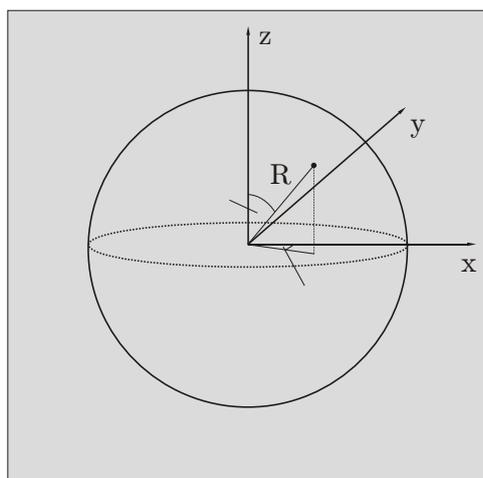


Abbildung 5.1: Schema zur Veranschaulichung der gewählten Kugelkoordinaten. Die Achse der Rotationssymmetrie entspricht der z -Achse.

Ein Beispiel für den letzten, oben erwähnten Fall eines Flüssigkeitstropfens in einer Flüssigkeit ist ein Öltropfen in Wasser. Hier sind die Dichten der beiden Medien in der gleichen Größenordnung. Demnach spiegelt sich die Trägheit beider Medien in der Dynamik solcher Tropfen wider. Auf eine genauere Spezifizierung der drei zuletzt genannten Systeme soll verzichtet werden, da sie in den nachfolgenden Betrachtungen keine Rolle spielen.

Im hier behandelten Spezialfall der Seifenblasen können die Dicken der erzeugten Tensidfilme zu weniger als 1 Mikrometer abgeschätzt werden. Das heißt, die Masse des Films gegenüber der Masse des umgebenden Mediums, also Luft, ist vernachlässigbar klein. Die Dynamik der Schwingungen einer Seifenblase wird also durch die umgebende Luft bestimmt.

Der Film einer Seifenblase wird durch *zwei* Grenzflächen von den benachbarten Medien abgetrennt. Prinzipiell ist also der Einfluss des Oberflächenspannung doppelt so groß auf die Dynamik wie in den drei weiteren erwähnten Fällen.

5.2 Kugelflächenfunktionen

Hier wird speziell die Form schwingender Blasen untersucht. Der Seifenfilm grenzt das Innere vom äußeren Gas ab. Die Trägheit des Films ist vernachlässigbar klein. Die Schwingung einer Seifenblase wird verursacht durch eine Auslenkung aus dem Gleichgewicht. Befindet sich eine Blase im Gleichgewicht, ist sie eine perfekte Kugel. Ein Luftstrom kann eine Veränderung dieser Form hervorrufen, wonach die Blase zu schwingen beginnt, um ihre Gleichgewichtsform wiederzuerlangen.

Bei einer Blasenschwingung ändert sich die Form der Blase mit der Zeit. Diese Formen können zu jeder Zeit mithilfe von Kugelflächenfunktionen beschrieben werden. Dazu wird Form der Blase in Kugelkoordinaten dargestellt. Eine Darstellung der hier verwendeten Kugelkoordinaten ist in Abb. 5.1 veranschaulicht.

Kugelflächenfunktionen zur Beschreibung von Objekten vom topologischen Ge-

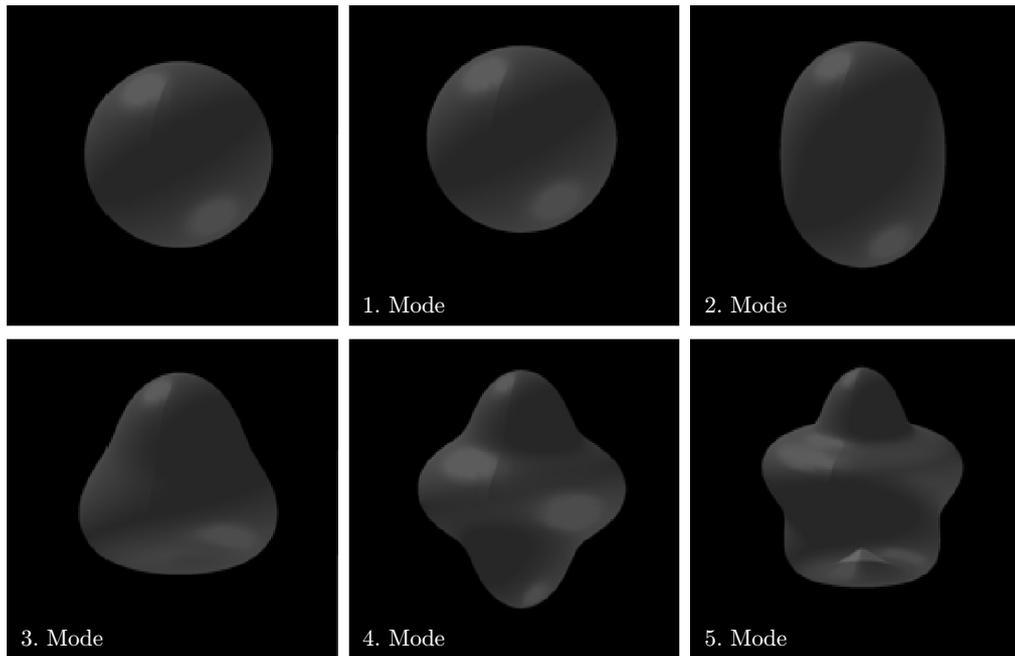


Abbildung 5.2: Darstellung einzelner Moden bei der Entwicklung nach Kugelflächenfunktionen. Im Bild links oben liefert ausschließlich die nullte Mode zur Reihenentwicklung (Gl. 5.1) einen Beitrag. Eine Änderung der Amplitude dieser Mode entspricht einer Änderung des Blasenradius'. Die anderen Bilder stellen eine der Schwingungsmoden mit $n = 1, \dots, 5$ und $m = 0$ dar. Hierbei ist jeweils ein Beitrag der entsprechenden Mode zu einer Blase mit einem Durchschnittsradius dargestellt. Ein Beitrag der ersten Mode äußert sich in einer Verschiebung der Blase (im Beispiel nach oben).

nus¹ 0 dienen. Ausgehend von der Kugelform beschreiben die Glieder einer Reihe die Abweichung von der Kugelform. Jedes einzelne Glied steht hierbei für eine Mode der stehende Welle, die die Randbedingung $R(0, \vartheta, t) = R(2\pi, \vartheta, t)$ erfüllt (Abb. 5.2). Durch Überlagerung von unendlich vielen Gliedern der Reihe

$$R(\varphi, \vartheta, t) = \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} A_{m,n} Y_n^m(\varphi, \vartheta) \underbrace{\cos(w_{m,n}t)}_{\text{Schwingung}} \underbrace{e^{-\tau t}}_{\text{Dämpfung}} \quad (5.1)$$

kann jede beliebige Form beschrieben werden², auch mit größeren Abweichungen von der Rotationssymmetrie [76]. Hier ist die zeitliche Entwicklung der einzelnen Moden Gegenstand der Untersuchungen.

¹Unter dem Genus (Geschlecht) einer kompakten Fläche versteht man in der Topologie die Anzahl der Löcher der Fläche. Das Geschlecht einer Fläche ist definiert als die maximale Anzahl von möglichen Schnitten, so dass die Fläche nach allen gemachten Schnitten immer noch zusammenhängend ist. Die Kugeloberfläche hat das Geschlecht 0, da sie keine Löcher hat, bzw. jeder Schnitt sie in zwei nicht zusammenhängende Abschnitte teilt. Der Torus hat das Geschlecht 1.

²Einzige Beschränkung ist, dass der Funktionswert $R(\varphi, \vartheta, t)$ zu einem Satz von Argumenten φ, ϑ, t eindeutig sein muss.

Eine Änderung der nullten Mode bedeutet eine Änderung des Volumens. Bei einem Flüssigkeitstropfen in einer Flüssigkeit oder in einem Gas ist dies aufgrund der Inkompressibilität des Tropfens ausgeschlossen. Im Falle einer Gasblase in Gas oder in einer Flüssigkeit hingegen kann diese Volumenschwingung prinzipiell auftreten.

Ein Beitrag der ersten Mode steht für eine lineare Verschiebung des Objekts. Dies geht mit einer Verschiebung des Volumenschwerpunkts einher. Diese Verschiebung ist in Abb. 5.2 dargestellt, hier ist die Blase nach oben verschoben.

Im Rahmen der Untersuchungen wurden Bildsequenzen mithilfe einer schnellen Kamera (1000 bzw. 2000 Bilder pro Sekunde) aufgenommen. Das heißt, für die Auswertung liegen Bilderserien vor, welche die Form der Blase zu aufeinanderfolgenden Zeitpunkten widerspiegeln. Hierbei war die Achse der Rotationssymmetrie der untersuchten Filme immer nahezu senkrecht zur Beobachtungsrichtung. Es wurde daher immer angenommen, dass die Blase zu jedem Zeitpunkt rotationssymmetrisch war. In diesem idealisierten Fall (die Form gehört zur Symmetriegruppe D_∞) existiert keine Abhängigkeit der Form vom Winkel ϑ , es gilt $m = 0$. In Abb. 5.1 ist die z -Achse gleichzeitig die Symmetrieachse. Damit ergibt sich eine vereinfachte Beschreibung der Geometrie zu jedem Zeitpunkt:

$$R(\varphi) = \sum_{n=0}^{\infty} A_n Y_n^0(\varphi), \quad (5.2)$$

wobei $Y_n^0(\varphi)$ durch die Relation

$$Y_n^0(\varphi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \sqrt{\frac{2n+1}{2}} \frac{1}{2^n n!} \frac{d^n}{d(\cos^2 \varphi)^n} (\cos^2 \varphi - 1)^n \quad (5.3)$$

beschrieben wird.

Die Amplituden der einzelnen Moden aus einer gegebenen Funktion $R(\varphi)$ lassen sich mithilfe der FOURIER-Transformation berechnen:

$$A_n = 2\pi \int_0^\pi R(\varphi) Y_n(\varphi) \sin(\varphi) d\varphi. \quad (5.4)$$

5.3 Bisherige Literatur

Die Schwingung eines Tropfens oder eine Blase wurde von LAMB beschrieben [77]. In dieser Arbeit ist ein Modell dargelegt, in dem die Schwingung in die einzelnen Moden zerlegt und für jede Mode die Frequenz ermittelt wurde. Dieses Modell gilt für alle oben beschriebenen Fälle, unabhängig davon, ob sich eine Gasblase oder ein Flüssigkeitstropfen in Gas oder Flüssigkeit befindet. Alle Fluide werden in diesem Modell als inkompressibel angenommen. Die Frequenzen ω_n der einzelnen Schwingungen in Abhängigkeit von der Mode n lassen sich danach durch

$$\omega_n = \sqrt{\frac{n(n+1)(n-1)(n+2)\sigma}{((n+1)\rho + n\rho')R^3}} \quad (5.5)$$

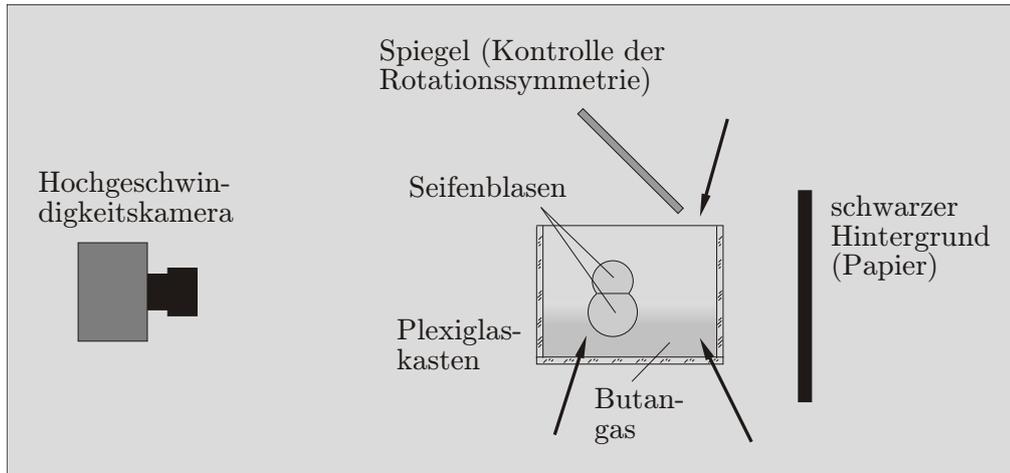


Abbildung 5.3: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Untersuchung von Blasen-schwingungen. Die Blasen befanden sich in einem mit Butangas teilweise gefüllten Plexiglas-kasten. Die Beobachtung der Schwingungen erfolgte mit einer Hochgeschwindigkeitskamera. Die Pfeile veranschaulichen die diffuse Beleuchtung, welche in Beobachtungsrichtung gesehen von der Seite mit weißem Licht erfolgte.

berechnen. R entspricht dabei dem Durchschnittsradius, σ der Oberflächenspannung, ρ der Dichte des Mediums im Inneren des Systems und ρ' der Dichte des umgebenden Mediums.

Für einen flüssigen Tropfen in zum Beispiel Luft ist die Dichte der Luft vernachlässigbar gegenüber der Dichte der Flüssigkeit. Dann vereinfacht sich Gl. 5.5 zu

$$\omega_n = \sqrt{\frac{n(n-1)(n+2)\sigma}{\rho R^3}}. \quad (5.6)$$

Diese Beziehung wurde auch von LANDAU und LIFSHITZ in [78] dokumentiert.

Für den Fall schwingender Blasen sind die Dichten innerhalb und außerhalb der Blase gleich. Weiterhin muss die Oberflächenspannung mit dem Faktor 2 multipliziert werden, da der Film zwei Grenzflächen aufweist. Gleichung 5.5 wird also zu

$$\omega_n = \sqrt{\frac{n(n+1)(n-1)(n+2)2\sigma}{(2n+1)\rho R^3}}. \quad (5.7)$$

5.4 Experimentelle Methoden

Versuchsaufbau

Abbildung 5.3 zeigt eine schematische Darstellung des Versuchsaufbaus, mit dem die Schwingungen von Seifenblasen untersucht wurden. Die Blasen wurden aus kom-

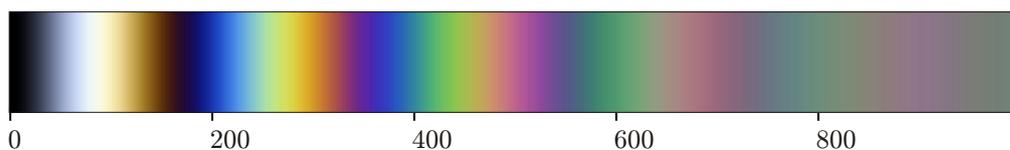


Abbildung 5.4: Berechnete Farbe des an einem Film reflektierten Lichts in Abhängigkeit von der Filmdicke δ in nm. Für Filmdicken von mehr als 1 Mikrometer gehen die farbigen Reflexe in Grau über. Sehr dünne Filme reflektieren weißes Licht nicht oder kaum, sie erscheinen schwarz.

merziell erhältlicher Seifenlösung (*Pustefix*, Dr. Rolf Hein GmbH & Co. KG) hergestellt. Die Oberflächenspannung wurde mittels DU-NOÛY-Ringmethode bestimmt und betrug $0,0336 \text{ N/m}$. Für die Untersuchung wurden Seifenblasen mit typischen Durchmessern von 3 bis 6 cm in einen Plexiglaskasten ($210 \text{ mm} \times 210 \text{ mm} \times 180 \text{ mm}$) gebracht. Dort schwebten im Idealfall mehrere Blasen auf einer Schicht Butangas ($\rho_B \approx 2,25 \rho_{\text{Luft}}$). Kam es zufällig zur Berührung zweier Blasen, bildete sich eine PLATEAU-Grenze³.

Die Schwingung der Blasen wurde auf zwei verschiedene Arten initiiert. Entweder riss die PLATEAU-Fläche, das heißt aus beiden Blase entstand eine. Oder eine Blase riss jenseits der PLATEAU-Grenze. Die Filmelemente, die zur reißen Blase gehörten, werden teilweise vom Rand des Films aufgesammelt. Es bleibt die intakte Blase übrig, die nicht rund ist und sich damit nicht im Gleichgewicht befindet.

Die Schwingungen wurden mit einer Hochgeschwindigkeitskamera (*Photron*, Ultima APX) aufgezeichnet. Die Aufnahmezeit betrug hier in jedem Fall 1000 Bilder pro Sekunde.

Die Blasen wurden seitlich mit möglichst diffusem, weißem Licht beleuchtet. Dazu wurden die Seitenwände des Plexiglaskastens mit weißem Papier beklebt. Dieses Papier wurde mit Öl bestrichen, so dass von außen kommendes Licht mit hoher Effizienz ins Innere des Plexiglaskastens gelangen konnte. Die Beleuchtung der weißen Flächen erfolgte mithilfe mehrerer Kaltlichtquellen (*Schott*, KL 2500 LCM). Der Hintergrund in Beobachtungsrichtung wurde mit schwarzem Papier verkleidet, so dass die das weiße Licht streuenden Blasen möglichst kontrastreich aufgenommen werden konnten.

Im oben beschriebenen Aufbau wurde zusätzlich ein Spiegel (45° zur Beobachtungsrichtung gekippt) eingesetzt, der es erlaubte, die Blase aus zwei Richtungen zu beobachten. Somit war es möglich zu prüfen, ob die Rotationssymmetrie während der Schwingung tatsächlich erhalten blieb.

Die Filmdicken der Blasen konnten durch die Beobachtung in Reflexion abgeschätzt werden. Dazu wurden Reflexe weißen Lichts von mehr als 60 Blasen mit einer Digitalkamera im Farbmodus aufgenommen. Diese Reflexe waren ausnahmslos farbig oder schwarz. Zum Vergleich ist die Farbe der Reflexe in Abhängigkeit von der Filmdicke in Abb. 5.4 dargestellt. Für Filmdicken δ von weniger als 30 nm

³Die PLATEAU-Grenze ist der Teil des Films, der zu beiden Blasen gehört. Dabei bildet sich diese Grenze so aus, dass der Kontaktwinkel zu den Filmen der zwei sich berührenden Blasen 120° beträgt.

erscheinen die Reflexe schwarz. Ist die Filmdicke größer als 30 nm, sind die Reflexe farbig und gehen für $\delta > 1 \mu\text{m}$ in grau über. Farbige Reflexe lassen also auf Filmdicken von weniger als 1 Mikrometer schließen.

Eine exakte Messung der Filmdicken war nicht möglich, da die Filmdicke einer Seifenblase nicht an jedem Punkt gleich groß ist und sich zeitlich schnell ändert. Aus diesem Grund wurde die Filmdicke in diesen exemplarischen Versuchen lediglich abgeschätzt.

Die Form der hier untersuchten Blasen im Gleichgewicht kann mithilfe der Bond-Zahl untersucht werden. Die Bond-Zahl beschreibt das Verhältnis von Oberflächenkräften (aus Oberflächenspannung) zu Volumenkräften, im vorliegenden Fall zur Gravitation. Sie ist, wie in Abschnitt 3.1, *Eigenschaften sphärischer Filme*, beschrieben, für den vorliegenden Fall definiert durch Gl. 3.9, S. 19. Für typische Blasenradien in der Größenordnung von 5 cm und Filmdicken von $\sim 1 \mu\text{m}$ ergibt sich eine Bond-Zahl von $\sim 4 \times 10^{-3} \ll 1$. Daraus ergibt sich, dass die untersuchten Blasen als perfekt rund angenommen werden können.

Auswertung der digitalen Bilder

Die Auswertung der digitalen Bilderserien geschah mithilfe des IDL-Programms *KFF v3.0.pro*. Die zum Programm gehörigen Module sind auf der mitgelieferten CD im Ordner *KFF* zu finden. Mit diesem Programm wurde jedes Bild eingelesen. Dann wurde jeweils die Kante digital erfasst und die Symmetrieachse bestimmt. Die Funktion $R(\varphi)$ wurde, ausgehend vom Volumenschwerpunkt der Blase, für 600 Argumente φ ermittelt. Im Anschluss wurden die Amplituden der einzelnen Moden nach Gl. 5.4 berechnet. Dabei wurden nur die ersten 16 Glieder der Reihe in Betracht gezogen. Für die Verwendung der Gleichungen im Programm war es nötig, diese in eine diskrete Form zu bringen. Die umgeformten Gleichungen sind im Anhang B zu finden.

5.5 Ergebnisse

Schwingung der Blasen

Abbildung 5.5 zeigt eine schwingende Seifenblase zu verschiedenen Zeitpunkten. Die Anregung der Schwingung erfolgte durch die Fusion zweier Blasen zu einer. Das heißt, es bildete sich eine PLATEAU-Grenze, die dann riss. Die beiden Blasen wiesen vor der Fusion einen Radius von 23 mm bzw. 21 mm auf. Nachdem die Schwingung der fusionierten Blase abgedämpft war, betrug der Durchschnittsradius⁴ dieser Blase 28 mm.

⁴Als Durchschnittsradius wird der Radius bezeichnet, den die Blase nach dem Abklingen der Schwingung aufweist. Dieser entspricht dem Beitrag der nullten Mode zur Reihenentwicklung in Gl. 5.2.

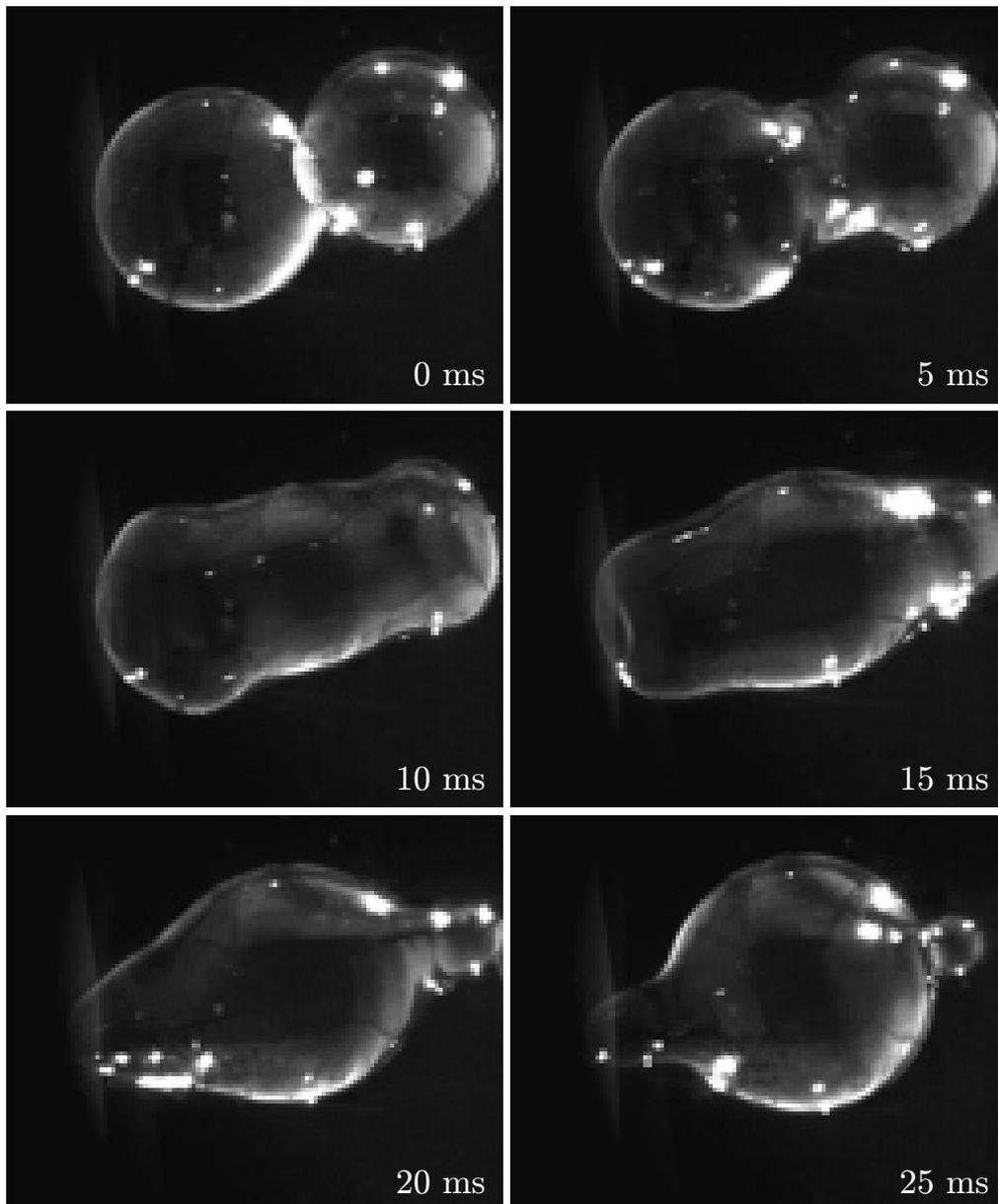


Abbildung 5.5: Bilderserie einer schwingenden Seifenblase. Im Bild links oben ist die Ausgangssituation zu sehen. Zwei Blasen berühren sich und bilden eine PLATEAU-Grenze. Nach der Fusion beider Blasen betrug der Durchschnittsradius der fusionierten Blase 28 mm. In diesem Fall wurde auf die zweite Beobachtungsrichtung mittels Spiegel verzichtet. Im Video *BubbleOscillation.gif* auf der CD ist die Schwingung einer ähnlichen Blase zu sehen.

Die in Abb. 5.5 dargestellte Blase eignete sich nicht zur Auswertung, da die Symmetrieachse nicht senkrecht zur Beobachtungsrichtung ausgerichtet war. Es wurden die Schwingungen von insgesamt neun Blasen beobachtet, bei denen diese Bedingung nahezu erfüllt war.

In Experimenten, in denen ein um 45° zur Beobachtungsrichtung gekippter Spiegel zum Einsatz kam, konnten Blasen aus zwei Richtungen gleichzeitig beobachtet



Abbildung 5.6: Schwingende Seifenblase mit einem Durchschnittradius von etwa 47 mm, aus zwei Richtungen beobachtet. Die direkte Beobachtung ist im unteren Teil zu sehen. Der obere Teil entspricht dem Bild im 45° gekippten Spiegel, also der Abbildung senkrecht zur direkten Beobachtungsrichtung. Im oberen Bild ist zu erkennen, dass die Rotationssymmetrie der Blase erhalten blieb. Die Annahme $m = 0$ (keine Abhängigkeit bzgl. ϑ) ist also gerechtfertigt.

werden. Dadurch konnte die Annahme von der Erhaltung der Rotationssymmetrie während der Schwingung bestätigt werden. Eine Momentaufnahme einschließlich des Spiegelbildes (senkrechte Beobachtungsrichtung) ist in Abb. 5.6 dargestellt. Damit besitzt die Annahme $m = 0$ (keine Abhängigkeit bzgl. ϑ) Gültigkeit.

Zerlegung der Schwingung in Moden

Die Entwicklung der Schwingungen nach Kugelflächenfunktionen ergab, dass jede einzelne Mode ein Schwingverhalten aufweist. Die Abhängigkeiten der Moden $n = 0, \dots, 3$ einer Blase mit einem Durchschnittradius von 26 mm sind in Abb. 5.7 dargestellt. Die nullte Mode zeigte hier kein Schwingverhalten. Bei den neun untersuchten Blasen traten allerdings auch Fälle auf, in denen eine Schwingung mit einer sehr kleinen Amplitude, verglichen mit den Moden $n > 0$, nachweisbar war.

Die zeitliche Abhängigkeit der Amplitude $A(t)$ der höheren Moden ($n = 1, \dots$) kann im Falle einer gedämpften Schwingung als

$$A(t) = A_0 \sin(Bt + C) e^{-Dt} \quad (5.8)$$

mit den Konstanten A_0 , B , C und D dargestellt werden. Das heißt, die Amplitu-

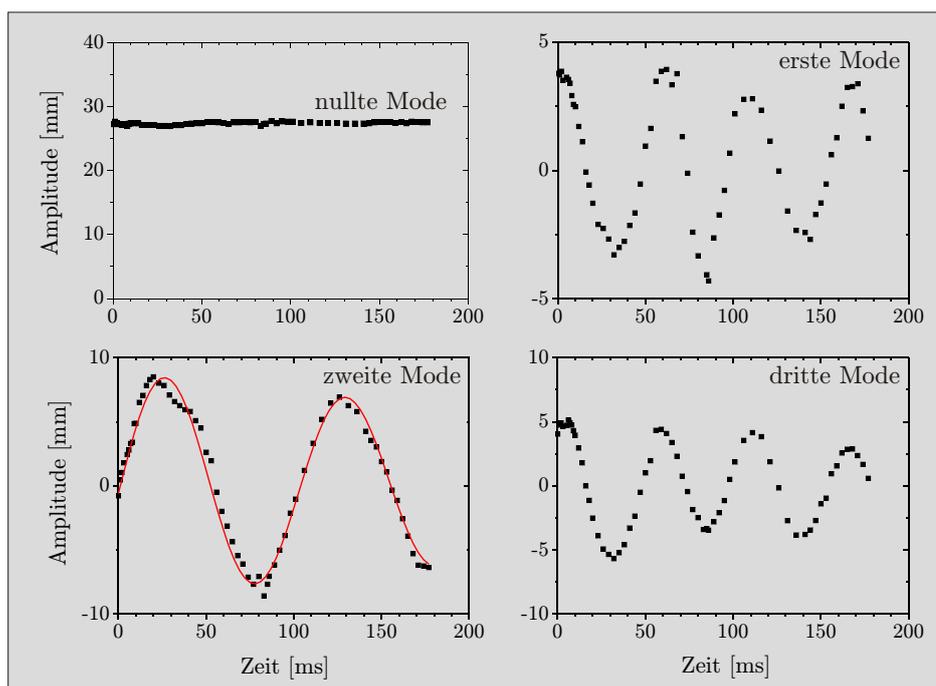


Abbildung 5.7: Zeitliche Entwicklung der Amplitude der Moden $n = 0, \dots, 3$ einer schwingenden Blase mit einem Durchschnittsradius von 26 mm. Die nullte Mode zeigt kein Schwingverhalten. Die Schwingung der Amplitude höherer Moden ist gedämpft. Die rote Kurve stellt eine gedämpfte Schwingung gemäß Gl. 5.8 dar, die an die Messwerte angepasst wurde.

denschwingung erfolgt, außer für die nullte Mode, um den Nullpunkt. Es konnte allerdings nur die gemessene Kurve der zweiten Mode gut mithilfe dieser Funktion angepasst werden, was in Abb. 5.7 durch die rote Kurve repräsentiert wird.

Bei Moden $n \neq 2$ traten Schwebungen der Oszillationen auf, die lokalen Hoch- und Tiefpunkte der Werte lagen nicht auf einer einhüllenden Kurve $A_0 e^{-D t}$. Dieser Umstand führt zu dem Schluss, dass die Schwingungen der Moden nicht vollständig entkoppelt sind. In erster Näherung hängen die Amplituden der ersten und dritten Mode direkt voneinander ab. Insbesondere die Überlagerung beider Moden ergibt eine Kurve, die sehr gut durch Gl. 5.8 angepasst werden kann. Allerdings ist auch eine Kopplung zweier *beliebiger* Moden prinzipiell möglich. Erste Untersuchungen mittels FOURIER-Analyse bestärken diese Annahme. Hier sind für jede Mode mehrere Peaks bei verschiedenen Schwingungsfrequenzen zu finden. Die Schwingungen aller Moden beinhalten im untersuchten Fall Frequenzanteile der zweiten Mode. Eine quantitative Analyse dieser Kopplungen steht aber noch aus.

Die Ursache für eine Kopplung könnte die Bedingung $V \approx$ konstant sein. Die Untersuchung dieses Aspekts bleibt an dieser Stelle offen.

Die Frequenzen der Schwingungen und deren Verhältnisse

Jede Mode oszillierte mit einer Schwingungsdauer τ in der Größenordnung von einigen 10 ms. Für $n \geq 2$ ein und derselben Blase stieg die Frequenz $\omega = \tau^{-1}$ für höhere

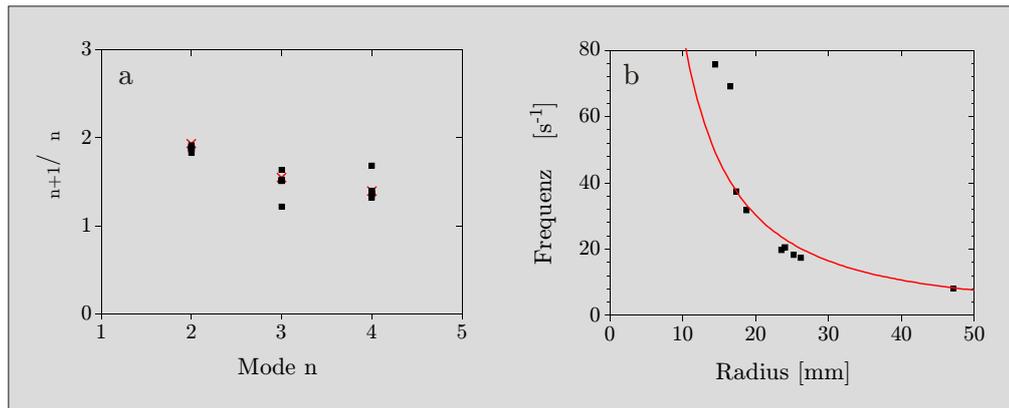


Abbildung 5.8: a) Frequenzverhältnisse ω_{n+1}/ω_n der Moden für $n \geq 2$. Die Kreuze entsprechen den nach Gl. 5.7 berechneten Werten, die schwarzen Quadrate sind gemessene Verhältnisse für sechs der analysierten Blasen. Nur für diese Blasen konnte die Frequenzen der Moden $n > 2$ mit einer Genauigkeit bestimmt werden, die eine Auswertung der Frequenzverhältnisse zulässt. b) Abhängigkeit der Frequenz ω vom Durchschnittsradius der Blase. Es ergab sich eine gute Übereinstimmung der gemessenen Werte mit denen vom Modell (rote Kurve) von LAMB vorausgesagten Frequenzen im Bereich von 14 – 47 mm.

Moden an. Die Verhältnisse der Frequenzen ω_{n+1}/ω_n für $n \geq 2$ sind in Abb. 5.8a zu sehen. Die schwarzen Quadrate kennzeichnen hierbei die Verhältnisse für sechs der analysierten Blasen. Die roten Kreuze wurden nach Gl. 5.6 berechnet. Die Zunahme der Schwingungsfrequenz mit der Mode in den vorliegenden Experimenten stimmte qualitativ mit dem von LAMB erarbeiteten Modell überein.

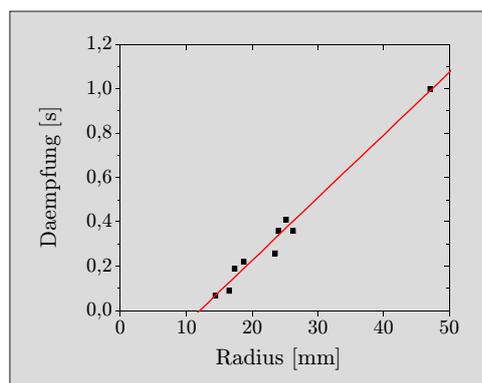
Ein weiterer Aspekt, dem im Rahmen der Untersuchungen Interesse galt, ist die Abhängigkeit der Frequenzen vom durchschnittlichen Radius der schwingenden Blase. Für diese Untersuchungen wurde die Schwingungsfrequenz ω der jeweils zweiten Mode der untersuchten Blasen über dem Radius aufgetragen. Die gemessenen Werte sind in Abb. 5.8b dargestellt. Es stellte sich heraus, dass die Abhängigkeit $\omega(R)$ im Bereich von $14 \text{ mm} < R < 47 \text{ mm}$ gut mit dem von LAMB vorgeschlagenen Modell (rote Kurve in Abb. 5.8b) übereinstimmte.

Die Dämpfung der zweiten Mode

Die Schwingungen waren, unabhängig von der Mode n , gedämpft. Eine Dämpfungskonstante konnte aber nicht in jedem Fall ermittelt werden, da die Schwingungen einiger Moden nicht durch Gl. 5.8 angepasst werden konnten. Für die zweite Mode war dies immer möglich, so dass die Abhängigkeit der Dämpfung der zweiten Mode vom Durchschnittsradius aufgetragen werden kann. Diese Abhängigkeit ist in Abb. 5.9 zu sehen.

Es zeigte sich eine lineare Abhängigkeit der Dämpfung vom Radius. Die gemessenen Werte (schwarze Quadrate) wurden im Diagramm durch eine lineare Funktion angepasst (rote Linie). Dabei ist zu beachten, dass die Bestimmung der Dämpfung für Blasenradien von weniger als 14 mm noch offen ist. Die Abhängigkeit

Abbildung 5.9: Dämpfung der zweiten Mode in Abhängigkeit vom Radius. Die rote Linie entspricht einem linearen Fit durch die Messwerte.



der Dämpfung für kleinere Blasenradien wird vermutlich nicht dem linearen Verlauf folgen, da die Trägheit des Films für kleinere Blasenradien immer mehr an Bedeutung gewinnt.

5.6 Diskussion

Wie schon in der Einleitung dieses Kapitels erwähnt, handelt es sich bei den dargestellten Ergebnissen um einführende Experimente zum Thema Blasenschwingungen.

Es konnte gezeigt werden, dass die Schwingungen von Seifenblasen nach den Moden von Kugelflächenfunktionen zerlegt werden können. Für $n > 0$ weisen die Amplituden der Moden ein Schwingverhalten auf, sobald die Blase zu oszillieren beginnt.

Diese beobachteten Schwingungen sind gedämpft. Die gemessenen Werte der Amplituden der einzelnen Moden konnten, bis auf jeweils die zweite Mode, nicht durch Gl. 5.8 angepasst werden, da die lokalen Extrempunkte der Amplituden nicht auf der Einhüllenden $A_0 e^{-D t}$ lagen. Eine Kopplung der einzelnen Moden ist in jedem Falle anzunehmen. Die Ursache für die Kopplung und inwieweit sich die verschiedenen Moden gegenseitig beeinflussen, bleibt an dieser Stelle offen.

Die gemessenen Frequenzen für die Schwingung der zweiten Mode verschiedener Blasen stimmen gut mit den Werten überein, die mithilfe des von LAMB vorgeschlagenen Modells berechnet wurden. Diese Tatsache stützt die Annahme, die Dynamik von Schwingungen von Blasen mit Durchschnittsradien von einigen Zentimetern wird hauptsächlich durch die Trägheit der Luft innerhalb und außerhalb der Blasen bestimmt. Der Film selbst, der als Grenze zwischen beiden Gasvolumina dient, hat keinen Einfluss auf die Dynamik.

Damit ergibt sich auch, dass die gemessenen Verhältnisse der Frequenzen ω_{n+1}/ω_n mit den berechneten Werten nach LAMB (Gl. 5.7) für Moden $n > 1$ übereinstimmen.

Die Untersuchung der Frequenzen für kleinere Blasenradien als 14 mm ist noch offen. Die Schwingung einer Blase im Grenzfall $R \rightarrow 0$ sollte der Schwingung eines Tropfens entsprechen, da in diesem Fall die Trägheit des Films dominiert. Somit besitzt in diesem Regime Gl. 5.6 Gültigkeit, wobei ρ der Dichte der Seifenlösung

entspricht.

Wie anfangs erwähnt, sind noch weiterführende Untersuchungen für ein tiefgreifenderes Verständnis der Schwingung von Seifenblasen notwendig.

6 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Dynamik dreier Systeme mithilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera untersucht:

- das Reißen dünner flüssiger Filme,
- der Kollaps von Katenoiden und
- die Schwingung von Blasen.

Während der Untersuchungen zum Reißen dünner Filme wurde vorwiegend mit der flüssigkristallinen Substanz 8CB gearbeitet. Hierbei war es aufgrund der Ausbildung der homogenen Filmdicke an jedem Punkt des Films und der daraus resultierenden Interferenzmuster der verwendeten Blasengeometrien möglich, die Filmdicke selbst während des Reißens zu beobachten. Typische Filmdicken smektischer Blasen waren $\sim 1 \mu\text{m}$.

Es zeigte sich, dass das in Abschnitt 3.1, *Modell zum Reißen von Filmen*, beschriebene Modell Gültigkeit besitzt. Insbesondere konnte Gl. 3.1 (S. 16) nach CULICK verifiziert werden, wenn auch die gemessenen Geschwindigkeiten für alle Filmdicken etwa 10 % zu niedrig gegenüber den berechneten Werten waren. Aufnahmen mit der größtmöglichen Aufnahmegeschwindigkeit von 10^5 Bildern pro Sekunde bestätigten die im Modell zugrunde gelegte Annahme, die Flüssigkeit verhalte sich während dieses Prozesses wie eine nicht-viskose Substanz. Selbst bei dieser hohen zeitlichen Auflösung konnte keine Abweichung von der linearen Abhängigkeit der Reißgeschwindigkeit von der Zeit nachgewiesen werden.

Ein Phänomen, welches spezifisch für Filme aus 8CB beobachtet wurde, ist die Streuung transmittierten Lichts. Diese Streuung ist vermutlich auf periodische Undulationen der smektischen Schichten zurückzuführen. Dieser so genannte zweite Schall, der nur als Überlagerung peristaltischer und Kapillarwellen auftreten kann, eilt dem Rand des reißenden Films voraus und verursacht die Streuung des Lichts. Die Geschwindigkeit dieser Wellen konnte zu $\sim 50 \text{ m/s}$ abgeschätzt werden, was in Bezug auf die Größenordnung mit experimentellen Daten übereinstimmt. Diese Art von Undulationen können in einem Seifenfilm nicht auftreten, da sich hier keine Schichtstruktur wie im smektischen Flüssigkristall ausbildet. Daher wurde keine Streuung transmittierten Lichts an reißenden Seifenblasen gefunden.

Es wurde eine Erhöhung der Filmdicke während des Reißens festgestellt, die auch im Falle von Blasen aus einer Tensidlösung auftrat. Diese Erhöhung der Filmdicke lag in der Größenordnung einiger Prozent. Die Abnahme der Intensität des transmittierten Lichts aufgrund der Lichtstreuung verhinderte im Falle von 8CB

allerdings die Beobachtung der Filmdicke während des gesamten Reißprozesses. Bei Seifenblasen wird der Film während des Reißens inhomogen, so dass dann keine Interferenzmuster erkennbar sind und die Filmdicke nicht quantitativ analysiert werden konnte.

Die Untersuchung des Katenoidenkollaps fand ausschließlich mit der Substanz 8CB statt. Die Katenoiden wurden zwischen zwei Ringen mit einem Radius R von 4 mm gezogen.

Vorangegangene Studien von z.B. STEEN *et al.* [73, 71] konnten in den durchgeführten Experimenten reproduziert werden.

Es wurde der Einfluss der Trägheiten der Luft und des Filmmaterials auf die Dynamik kollabierender Katenoiden untersucht. Der Einfluss der Filmträgheit konnte durch Aufnahmen des Kollapses verschieden dicker Filme analysiert werden. Der Einfluss der Luft wurde durch die Evakuierung der Luft in einer Plexiglaskiste, in der sich die Katenoide befand, separat untersucht. Die Trägheiten der Luft und des Films spiegelten sich sowohl in der Kollapsgeschwindigkeit, als auch in der Form der Katenoiden während des Kollapses wider.

Die Kollapsgeschwindigkeit wurde mit ansteigender Filmdicke geringer, was auf die größere Trägheit zurückzuführen ist. Desweiteren wirkte sich die geringere Trägheit der Luft in der evakuierten Plexiglaskiste für kleine Filmdicken auf die Kollapsgeschwindigkeit aus. Dünnere Katenoiden kollabierten bei geringerem Luftdruck deutlich schneller. Im Falle größerer Filmdicken ($\delta > 4 \mu\text{m}$) war die Kollapsgeschwindigkeit bei allen Luftdrücken gleich.

Es wurden drei Erscheinungsformen der Katenoiden während des Kollapses gefunden. Im ersten Szenarium wird etwas Luft im Inneren der Katenoide eingeschlossen, es entsteht eine Satelliten-Blase. Diese Erscheinungsform war nur für geringe Filmdicken bei Normaldruck zu finden. Die zweite Möglichkeit war die Ausbildung eines Filaments. In diesem Fall konnte die Luft im Inneren der Katenoide vollständig entweichen. Dieses Szenarium konnte für große Filmdicken ($\delta > 4 \mu\text{m}$) oder bei geringeren Luftdrücken auch schon für Filmdicken von $\sim 1 \mu\text{m}$ beobachtet werden. Es konnte auch eine Mischung beider Erscheinungsformen nachgewiesen werden. Einerseits bildete sich ein Filament heraus, andererseits konnte nicht die gesamte Luft im Inneren der Katenoide entweichen, so dass sich eine Satelliten-Blase ausbildete. Dieses Szenarium war für Filmdicken von rund $1 \mu\text{m}$ zu finden.

Die Filmdicke blieb in jedem Falle für Minimalradien größer als $\sim 0,25 R$ erhalten. Die Katenoiden weisen in diesem Regime immer die Idealform auf (S. 84). Dies konnte aus experimentell ermittelten Katenoidenformen verifiziert werden. Dabei wurde festgestellt, dass, wird die Trägheit der den Film umgebenden Luft außer Acht gelassen, die Erhaltung der Filmdicke für eine charakteristische Formgebung wesentlich ist.

Der dritte Themenkomplex dieser Arbeit beschäftigt sich mit der Schwingung von Seifenblasen. Diese Blasen befanden sich in einem Plexiglaskasten und schwebten auf einer Schicht Butan. Bei der Fusion zweier Blasen bildet sich eine sog. PLATEAU-

Grenze, die, wenn sie reißt, die Blase zu Schwingungen anregt. Der Rand der Blasen für jedes Bild der mit der Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommenen Sequenzen wurde mithilfe eines Computerprogramms detektiert. Im Experiment konnte bestätigt werden, dass für diese Auswertung die Blasen als rotationssymmetrisch angenommen werden können.

Eine Zerlegung der Blasenform in Kugelflächenfunktionen ergab eine gedämpfte Amplitudenschwingung der einzelnen Moden für $n > 0$.

Die Frequenzen ω der einzelnen Moden hingen stark von den durchschnittlichen Blasenradien R ab. Es wurde für $R > 14$ mm ein Zusammenhang zwischen dem Blasenradius und der Frequenz der zweiten Mode gefunden, der im Falle der neun ausgewerteten Blasen gut mit den Frequenzen, die sich nach dem Modell von LAMB berechnen lassen, übereinstimmen. Die Frequenzen der jeweils zweiten Mode konnten sehr gut durch das Anpassen einer Fitfunktion bestimmt werden. Für die anderen Moden war dies nicht der Fall, da die Extrempunkte der Messwerte nicht auf der Einhüllenden eine gedämpften Schwingung lagen.

Es ist davon auszugehen, dass die Schwingungen der einzelnen Moden einer Blase miteinander gekoppelt sind. Inwieweit dies der Fall ist und was die Ursache für die Kopplungen ist, bleibt an dieser Stelle offen.

Die Dämpfung der zweiten Mode hing stark vom durchschnittlichen Radius der Blase ab. Für Radien von mehr als 14 mm (kleinere Blasen wurden nicht analysiert) wuchs die Dämpfung linear mit dem Radius an.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse stellen lediglich die Grundlage für weitere Untersuchungen dar.

A Angaben zu 8CB

Bei 8CB (4'-Octyl-biphenyl-4-carbonitrile) handelt es sich um eine aus stäbchenförmigen (kalamitischen) Molekülen bestehende Substanz. Die Phasensequenz dieses thermotropen Flüssigkristalls ist Cr 21.5°C SmA 33.5°C N 41.5°C I.

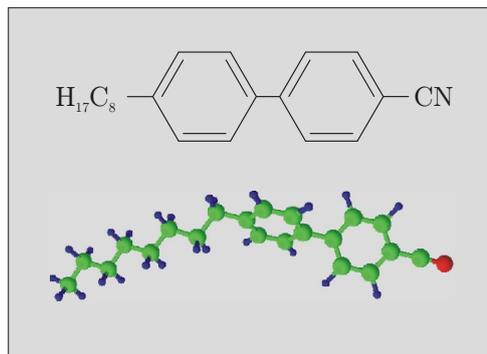


Abbildung A.1: Struktur der flüssigkristallinen Substanz 8CB. Die Moleküle sind stäbchenförmig.

Materialparameter	Wert
ρ Dichte	996 kg/m ³
σ Oberflächenspannung	0,028 N/m
η_3 Viskosität bezüglich Scherung in der Ebene	0,03 Pa s
n_{\parallel} Brechungsindex (senkrecht zum Direktor)	1,67
n_{\perp} Brechungsindex (parallel zum Direktor)	1,50
S Ordnungsparameter	0,39
B Schichtkompressibilität	$\sim 10^7$ N/m ²
K Spreizungskonstante	$\sim 10^{-11}$ N
M molare Masse	291,44 g/mol
λ_p Permeationskonstante	$\sim 10^{-17}$ m ⁴ /N s

Tabelle A.1: Materialparameter der Substanz 8CB.

B Diskretisierung der Gleichungen

Gleichung 5.3 kann mithilfe des binomischen Satzes umgeformt werden. Dazu wird zuerst $\cos(\varphi)$ substituiert:

$$\cos(\varphi) = x$$

Man kann schreiben

$$\begin{aligned} \frac{d^n}{dx^n}(x^2 - 1)^n &= \frac{d^n}{dx^n} \sum_{k=0}^n \binom{n}{k} (x^2)^k (-1)^{n-k} \\ &= \sum_{k=0}^n \binom{n}{k} \frac{d^n}{dx^n} x^{2k} (-1)^{n-k} \\ &= \sum_{k=0}^n \frac{n!}{k!(n-k)!} (-1)^{n-k} \frac{(2k)!}{(2k-n)!} x^{2k-n} \\ &= \sum_{k=0}^n \frac{n!(2k)!}{k!(n-k)!(2k-n)!} (-1)^{n-k} \underbrace{x^{2k-n}}_{=0 \text{ für } n > 2k}. \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

Hierbei wurde die Beziehung

$$\begin{aligned} \frac{d^n}{dx^n} x^{2k} &= \frac{d^{n-1}}{dx^{n-1}} 2k x^{2k-1} \\ &= \frac{d^{n-2}}{dx^{n-2}} 2k(2k-1) x^{2k-2} \\ &= 2k(2k-1) \dots (2k-n+1) x^{2k-2} \\ &= \frac{(2k)!}{(2k-n)!} x^{2k-n} \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

verwendet.

Die Amplituden der einzelnen Moden werden mit der FOURIER-Transformation in diskretisierter Form berechnet. Damit wird Gl. 5.4 zu

$$\begin{aligned} A_n &= 2\pi \sum_{i=0}^{298} \int_{\varphi_i}^{\varphi_{i+1}} R(\varphi) Y_n(\varphi) \sin(\varphi) d\varphi \\ &= 2\pi \sum_{i=0}^{298} R_i \int_{\varphi_i}^{\varphi_{i+1}} Y_n(\varphi) \sin(\varphi) d\varphi. \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

C Inhalt der CD

Reißende Blasen

- **BubbleRupture-100nm.gif** zeigt das zeigt das Reißen einer smektischen Blase mit einer Filmdicke von 100 nm, Wiedergabegeschwindigkeit: 1:3000 (Ref. S. [34](#))
- **BubbleRupture-890nm.gif** zeigt das zeigt das Reißen einer smektischen Blase mit einer Filmdicke von 890 nm, Wiedergabegeschwindigkeit: 1:3000 (Ref. S. [34](#))
- **BubbleRupture-1460nm.gif** zeigt das zeigt das Reißen einer smektischen Blase mit einer Filmdicke von 1460 nm, Wiedergabegeschwindigkeit: 1:3000 (Ref. S. [34](#))
- **ParticlesMovement.gif** zeigt die Bewegung von Tracerpartikeln auf dem Film während des Reißens einer smektischen Blase (Ref. S. [39](#))
- **thickening.gif** zeigt das Wandern der Interferenzringe nach Außen, was auf eine Erhöhung der Filmdicke schließen lässt (Ref. S. [42](#))

Katenoidenkollaps

- **CatenoidCollapse-210nm.gif** zeigt den Kollaps einer Katenoide mit einer Filmdicke von 210 nm, Wiedergabegeschwindigkeit: 1:3000 (Ref. S. [80](#))
- **CatenoidCollapse-580nm.gif** zeigt den Kollaps einer Katenoide mit einer Filmdicke von 580 nm, Wiedergabegeschwindigkeit: 1:3000 (Ref. S. [80](#))
- **CatenoidCollapse-4330nm.gif** zeigt den Kollaps einer Katenoide mit einer Filmdicke von 4330 nm, Wiedergabegeschwindigkeit: 1:3000 (Ref. S. [80](#))
- **CatenoidCollapse.m** im Ordner CatenoidCollapse: Programm zur Simulation kollabierender Katenoiden, notwendige Module befinden sich im gleichen Ordner (Ref. S. [85](#))

Schwingende Blasen

- **BubbleOscillation.gif** zeigt die Schwingung einer Seifenblase (Ref. S. [96](#))
- **KFF v3.0.pro** im Ordner KFF: Programm zur Extraktion der Amplituden der Schwingungsmoden oszillierender Blasen, notwendige Module befinden sich im gleichen Ordner (Ref. S. [95](#))

Literaturverzeichnis

- [1] GOMPPER, G. und D. M. KROLL: *Membranes with Fluctuating Topology: Monte Carlo Simulations*. Phys. Rev. Lett., 81:2284, 1998.
- [2] EGGERS, J.: *Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows*. Reviews of Modern Physics, 69:865, 1997.
- [3] ANANTHAKRISHNAN, R., GUCK J. und J. KÄS: *Cell Mechanics: Recent advances with a theoretical perspective*. Recent Res. Devel. Biophys., 5:39, 2006.
- [4] FIGUEROA, C. A., I. E. VIGNON-CLEMENTEL, K. E. JANSEN, T. J. R. HUGHES und C. A. TAYLOR: *A coupled momentum method for modeling blood flow in three-dimensional deformable arteries*. Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, 195:5685, 2006.
- [5] PROSPERETTI, A.: *Free oscillations of drops and bubbles: the initial-value problem*. J. Fluid Mech., 100:333, 1980.
- [6] LINKE, G. T., R. LIPOWSKY und T. GRUHN: *Free fluid vesicles are not exactly spherical*. Phys. Rev. E, 71:051602, 2005.
- [7] SACKMANN, E., H.-P. DUWE und H. ENGELHARDT: *Membrane bending Elasticity and its Role for Shape Fluctuations and Shape Transformations of Cells and Vesicles*. Faraday Discuss. Chem. Soc., 81:281, 1986.
- [8] DUPRÉ, M. A.: *Sixième Mémoire sur la Théorie Mécanique de la Chaleur*. Ann. Chim. Phys., 11:194, 1867.
- [9] GREINER, W. und H. STOCK: *Hydrodynamik*. Verlag Harri Deutsch, 1991.
- [10] PICANO, F., R. HOLYST und P. OSWALD: *Coupling between meniscus and smectic-A films: Circular and catenoid profiles, induced stress, and dislocation dynamics*. Phys. Rev. E, 62:3747, 2000.
- [11] DEMUS, D., J. W. GOODBY, G. W. GRAY, H. W. SPIESS und V. VILL: *Handbook of Liquid Crystals*. Wiley-VCH, Weinheim, 1998.
- [12] FRIEDEL, G.: *The mesomorphic states of matter*. Ann. Phys. (Paris), 18:273, 1922.
- [13] JEU, W. H. DE, B. I. OSTROVSKII und A. N. SHALAGINOV: *Structure and fluctuations of smectic membranes*. Reviews of Modern Physics, 75:181, 2003.
- [14] PIERANSKI, P., L. BELIARD, J.-PH. TOURNELLE, X. LEONCINI, C. FURTLERHNER, H. DUMOULIN, E. RIOU, B. JOUVIN, J.-P. FÉNEROL, PH. PALARIC, J. HEUVING, B. CARTIER und I. KRAUS: *Physics of smectic membranes*. Physica A, 194:364, 1993.
- [15] LEJCEK, L. OSWALD, P.: *Influence of surface tension on the stability of edge dislocations in smectic A liquid crystals*. J. Phys. II France, 1:931, 1991.
- [16] GÉMINARD, J.-C. HOLYST, R. OSWALD P.: *Meniscus and Dislocations in Free-Standing Films of Smectic-A Liquid Crystals*. Phys. Rev. Lett., 78:1924, 1997.

- [17] OSWALD, P., P. PIERAŃSKI, F. PICANO und R. HOLYST: *When Boundaries Dominate: Dislocation Dynamics in Smectic Films*. Phys. Rev. Lett., 88:015503, 2002.
- [18] SCHNEIDER, F.: *A novel method for measuring the surface tension for free standing smectic films*. Review of Scientific Instruments, 73:114, 2002.
- [19] PICANO, F., P. OSWALD und E. KATS: *Disjoining pressure and thinning transitions in smectic-A liquid crystal films*. Phys. Rev. E, 63:021705, 2001.
- [20] CAILLIER, F. und P. OSWALD: *Collapse dynamics of smectic A bubbles*. The European Physical Journal E, Soft matter, 20:159, 2006.
- [21] OSWALD, P. und M. KLÉMAN: *Experimental evidence for helical instability of screw lines in a smectic A phase*. J. Phys. (Paris), Lett., 45:L319, 1984.
- [22] CULICK, F. E. C.: *Comment on a ruptured soap film*. Journal of Applied Physics, 31:1128, 1960.
- [23] DUPRÉ, M. A.: *Théorie Mécanique de la Chaleur*. Gauthiers-Villars, Paris, 1869.
- [24] STRUTT, J. W.: *On the stability, or instability, of certain fluid motions*. Scientific Papers, 1:474, 1899.
- [25] STRUTT, J. W.: *Some applications of photography*. Scientific Papers, 3:441, 1902.
- [26] RANZ, W. E.: *Some Experiments on the Dynamics of Liquid Films*. Journal of Applied Physics, 30:1950, 1959.
- [27] TAYLOR, G. I.: *The dynamics of thin sheets of fluid III. Disintegration of fluid sheets*. Proc. R. Soc. Lond. A, 253:313, 1959.
- [28] GENNES, P. G. DE: *Mechanics of soft interfaces*. Faraday Discussions, 104:1, 1996.
- [29] PANDIT, A. B. und J. F. DAVIDSON: *Hydrodynamics of the rupture of thin liquid films*. J. Fluid Mech., 212:11, 1990.
- [30] MCENTEE, W. R. und K. J. MYSELS: *The bursting of soap films I: An experimental study*. J. Phys. Chem., 73:3018, 1969.
- [31] EVERS, L. J., S. YU. SHULEPOV und G. FRENS: *Rupture of thin liquid films from Newtonian and viscoelastic liquids*. Faraday Discuss., 104:335, 1996.
- [32] EVERS, L. J., S. YU. SHULEPOV und G. FRENS: *Bursting Dynamics of Thin Free Liquid Films from Newtonian and Viscoelastic Solutions*. Phys. Rev. Lett., 79:4850, 1997.
- [33] DEBRÉGEAS, G., P. G. DE GENNES und F. BROCHARD-WYART: *The life and death of "bare" viscous bubbles*. Science, 279:1704, 1998.
- [34] DEBRÉGEAS, G., P. MARTIN und F. BROCHARD-WYART: *Viscous Bursting of Suspended Films*. Phys. Rev. Lett., 75:3885, 1995.
- [35] FRANKEL, S. und K. J. MYSELS: *The bursting of soap Films II: Theoretical considerations*. J. Phys. Chem., 73:3028, 1969.
- [36] FLORENCE, A. T. und G. FRENS: *Aureole Profile in Bursting Soap Films. Surface Tension and Surface Relaxation in Rapidly Compressed Monolayers*. J. Phys. Chem., 76:3024, 1972.
- [37] LIANG, N. Y., C. K. CHAN und H. J. CHOI: *Dynamics of the formation of an aureole in the bursting of soap films*. Phys. Rev. E, 54:R3117, 1996.
- [38] WEN, C.-Y., CHEN Y.-M. und S.-K. CHANG-JIAN: *A soap film shock tube to study two dimensional compressible flows*. Experiments in Fluids, 31:19, 2001.

- [39] VIJAYENDRAN, B. R.: *Bursting of Soap Film. VI. Effect of Electrolytes and Desorption on the Shape of Aureoles*. J. Phys. Chem., 79:2501, 1975.
- [40] BRENNER, M. und D. GUEYFFIER: *On the bursting of viscous films*. Phys. Fluids, 11:737, 1999.
- [41] SÜNDERHAUF, G., H. RASZILLIER und F. DURST: *The retraction of the edge of a planar liquid sheet*. Physics of Fluids, 14:198, 2002.
- [42] FULLANA, J. M. und S. ZALESKI: *Stability of a growing end rim in a liquid sheet of uniform thickness*. Phys. Fluids, 11:952, 1999.
- [43] EVERS, L. J., E. J. NIJMAN und G. FRENS: *The role of structure in rupturing Newton-black soap films: dynamics of a molecular bilayer*. Colloids and Surfaces A, 149:521, 1999.
- [44] LIEBMAN, I., J. CORRY und H. E. PERLEE: *Rupture Mechanism of a Liquid Film*. Science, 161:373, 1968.
- [45] MYSELS, K. J. VIJAYENDRAN, B. R.: *Bursting. V. The Effect on Various Atmospheres and the Anomaly of Newton Black Film*. J. Phys. Chem., 77:1692, 1973.
- [46] FRENS, G.: *Aerodynamic Drag on Bursting Bubbles*. J. Phys. Chem., 78:1949, 1974.
- [47] REYSSAT, É. und D. QUÉRÉ: *Bursting of a fluid film in a viscous environment*. Europhysics Letters, 76:236, 2006.
- [48] TAYLOR, G. I. und D. H. MICHAEL: *On making holes in a sheet of fluid*. J. Fluid. Mech., 58:625, 1973.
- [49] STANNARIUS, R., C. CRAMER und H. SCHÜRING: *Self-supporting smectic bubbles*. Molecular Crystals and Liquid Crystals, 350:297, 2000.
- [50] BOHLEY, C.: *Polarization optics of periodic media*. Doktorarbeit, Université de Neuchâtel, 2004.
- [51] BOHLEY, C. und R. STANNARIUS: *Inclusions in free standing smectic liquid crystal films*. Soft Matter, 4:683, 2007.
- [52] ROCKLAGE-MARLIANI, G.: *Dreidimensionale Laser-Doppler Velozimetrie in turbulenter, drallbehafteter Rohrströmung*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 1999.
- [53] GORTON-HÜLGERTH, A.: *Messung und Berechnung der Geschwindigkeitsfelder und Partikelbahn im Gaszyklon*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 1999.
- [54] ALBRECHT, H.-E., M. BORYS, N. DAMASCHKE und C. TROPEA: *Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques*. Springer, Heidelberg, Berlin, New York, 2003.
- [55] RIETMÜLLER, M. L.: *Particle Image Velocimetry/ Lecture Series 1996 - 2003*. Karman Institute for Fluid Dynamics, Rhode Saint Genèse, Belgium, 2003.
- [56] BRANDT, A. W.: *Die Anwendung der Particle-Image-Velocimetry zur Bestimmung von Geschwindigkeits- und Tröpfchengröße-Verteilungen beim Zerstäuben von Flüssigkeiten*. Doktorarbeit, Düsseldorf, 1992.
- [57] PARK, K.-I.: *Experimentelle Untersuchung technischer und biomedizinischer Strömungsverzweigungen mit der Particle-Image-Velocimetry (PIV)*. Doktorarbeit, Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen, 1999.
- [58] RAFFEL, M., C. WILLERT und J. KOMPENHANS: *Particle Image Velocimetry*. Springer, Heidelberg, Berlin, New York, 1998.
- [59] STEWART, IAIN W.: *The static and dynamic continuum theory of liquid crystals*. Taylor & Francis, 2004.

- [60] AARTS, DIRK: *The interface in demixed colloid-polymer systems Wetting, waves and droplets*. Doktorarbeit, Universiteit Utrecht, 2005.
- [61] GUYON, E., J.-P. HULIN und L. PETIT: *Hydrodynamik*. Vieweg, Braunschweig/ Wiesbaden, 1997.
- [62] BIRD, R. B., R. C. ARMSTRONG und O. HASSAGER: *Dynamics of polymeric liquids*. Wiley, New York, 1987.
- [63] WOICKE, N.: *Viskoelastizität von Polypropylen im Glasübergang*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 2006.
- [64] GENNES, P. G. PROST, J. DE: *The Physics of Liquid Crystals*. Oxford University Press, 1993.
- [65] CHEN, H.-Y. und D. JASNOW: *Surface dynamics of a freely standing smectic-A film*. Phys. Rev. E, 57:5639, 1998.
- [66] CHEN, H. Y. und D. JASNOW: *Layer dynamics of freely standing smectic-A films*. Phys. Rev. E, 61:493, 2000.
- [67] PONIEWIERSKI, A., R. HOLYST, A. C. PRICE, L. B. SORENSEN, S. D. KEVAN und J. TONER: *Dynamic correlation functions for finite and infinite smectic-A systems: Theory and experiment*. Phys. Rev. E, 58:2027, 1998.
- [68] ROMANOV, V. P. und A. N. SHALAGINOV: *Dynamics of free-standing smectic-A films*. Phys. Rev. E, 63:031706, 2002.
- [69] MÜLLER, F., C. BOHLEY und R. STANNARIUS: *Second sound in bursting freely suspended smectic A films*. Phys. Rev. E, 79:046315, 2009.
- [70] OSWALD, P. und P. PIERANSKI: *Smectic and columnar liquid crystals*. Taylor & Francis, 2006.
- [71] CHEN, Y. J. und P. H. STEEN: *Dynamics of inviscid capillary breakup: Collapse and pinchoff of a film bridge*. Journal of Fluid Mechanics, 341:245, 1997.
- [72] GELLERT, W., H. KÜSTNER, M. HELLWICH und H. KÄSTNER: *Kleine Enzykloädie - Mathematik*. Pfalz Verlag, Basel, 1969.
- [73] CRYER, S. A. und P. H. STEEN: *Collapse of the Soap-Film Bridge: Quasistatic Description*. Journal of Colloid and Interface Science, 154:276, 1992.
- [74] SETHIAN, J. A. und D. L. CHOPP: *Physics and Geometry of Flow under Curvature: Singularity Formation, Minimal Surfaces, Geodesics, and Surface Tension*. 1991.
- [75] CAILLIER, F.: *Propriétés des films de cristal liquide smectique en différentes géométries: plan, caténoïde, caténoïdes + plan*. Diplomarbeit, Laboratoire de Physique de l'Ecole Normale Supérieure de Lyon, 2002.
- [76] LEIGHTON, T. G.: *The acoustic bubble*. Harcourt Brace & Company, 1994.
- [77] SIR LAMB, H.: *Hydrodynamics*. Univ. Press, Cambridge, 1932.
- [78] LANDAU, L. D. und E. M. LIFSHITZ: *Lehrbuch der theoretischen Physik IV: Hydrodynamik*. Akademie Verlag, 1991.

Lebenslauf

Ich wurde am 6. Juni 1979 in Zeitz geboren. Von 1985 bis 1991 besuchte ich die Grundschule in Obhausen. Im Anschluss ging ich in Querfurt auf das Gymnasium, wo ich 1998 mein Abitur erlangte. Danach leistete ich für 13 Monate meinen Zivildienst im „Carl-von-Basedow-Klinikum“ in Querfurt ab.

1999 begann ich mein Physikstudium an der Universität Leipzig. Im Rahmen des Studiums verbrachte ich ein Jahr (2002-2003) in Oulu, Finnland als Austauschstudent. Meine Diplomarbeit zum Thema „Untersuchungen zur Anwendbarkeit von Quantendots in der pflanzlichen Zellbiologie“ fertigte ich im Institut für Pflanzengenetik und Kulturpflanzenforschung (IPK) in Gatersleben an. Währenddessen wurden Messungen bei einem zweiwöchigen Aufenthalt im National Institute of Standards and Technology in Gaithersburg, USA durchgeführt. Das Studium beendete ich 2005 mit der Note „gut“.

Im Anschluss (2005-2009) arbeitete ich an der Otto-von-Guericke Universität in Magdeburg an einer Promotion (Betreuer: Prof. Stannarius).

Publikationen

F. Müller, A. Houben, P. E. Barker, Y. Xiao, J. A. Käs und M. Melzer *Quantum dots - a versatile tool in plant science?* (2006) *J. Nanobiotechnology* **4** 5

F. Müller und R. Stannarius *Collapse of catenoid-shaped smectic films* (2006) *Europhys. Lett.* **76** 1102

F. Müller, U. Kornek und R. Stannarius *Experimental study of the busting of inviscid bubbles* (2007) *Phys. Rev. E (R)* **75** 065302

F. Müller und R. Stannarius *Comparison of the rupture dynamics of smectic bubbles and soap bubbles* (2009) *Liq. Cryst.*, **36** 133

F. Müller, Ch. Bohley und R. Stannarius *Second sound in bursting freely suspended smectic A films* (2009) *Phys. Rev. E*, **79** 046315

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Dissertationsschrift zum Thema

Untersuchungen zur Struktur und Dynamik freitragender flüssiger Filme

selbständig verfasst und nicht schon als Dissertation verwendet habe und die benutzten Hilfsmittel und Quellen vollständig angegeben wurden.

Weiterhin erkläre ich, dass ich weder diese noch eine andere Arbeit zur Erlangung des akademischen Grades doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.) an anderen Einrichtungen eingereicht habe.

Quedlinburg, den 27. April 2009

Frank Müller

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde in der Zeit von September 2005 bis März 2009 in der Abteilung Nichtlineare Phänomene in der Otto-von-Guericke Universität Magdeburg angefertigt.

Dem Leiter dieser Arbeitsgruppe, Prof. Dr. Ralf Stannarius, danke ich für eine ausgesprochen gute Betreuung und seine angenehme Art, dafür, dass seine Tür immer offen stand und für gute Ratschläge, die in brenzligen Situationen stets weiterhalfen.

Dr. Christian Bohley möchte ich für seine Hilfe bei schwierigen mathematischen Problemen danken, für die Joggingrunden und dafür, dass er so ist, wie er ist.

Jana Heuer danke ich für ihre angenehme Gesellschaft und für den regen Gedankenaustausch während unserer gemeinsamen Zeit in Wohnung 124.

Alexandru Nemeş bin ich dankbar, da mit seiner Hilfe jedes Computerproblem nach relativ kurzer Zeit gelöst war und da seine Gesellschaft immer angenehmer Art war.

Des weiteren danke ich Birgit Leßner dafür, dass sie alle organisatorischen Probleme im Handumdrehen löste und für hektoliterweise Kaffee.

Ines-Ute Grodrian, Olaf Born und den Mitarbeitern der Werkstatt möchte ich danken, da sie alle sehr viel zu einem gelungenen Versuchsaufbau beitrugen.

Ulrike Kornek, Dima Berschadskyy, Daniel Rose und Caroline Bauer möchte ich danken, da ich durch die Zusammenarbeit mit ihnen selbst sehr viel lernen konnte.

Marcus Hauser und Katja Guttmann danke ich für die Hilfe bei den Messungen der Oberflächenspannung der verwendeten Seifenlösung.

Esther Scheler von der Uni Bayreuth stellte mir Fluoreszenzfarbstoffe und Vytas Reipa, NIST, Gaithersburg, USA stellte mir Quantendots zu Verfügung. Trotz negativer Ergebnisse in diesen Versuchen möchte ich mich bei der Mithilfe bedanken.

Prof. Pawel Pieranski möchte ich danken, da er mehrfach mit konstruktiver Kritik zu Verbesserungen meiner Arbeit beitrug.

Abschließen möchte ich die Danksagung mit meinem Lebensgefährten Hans-Jürgen Furcht, der mich immer ermutigte und mich unterstützte.