

Statische und dynamische Eigenschaften dünner smektischer Filme

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

**doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)**

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

von Dipl.-Phys. Torsten Trittel
geb. am 02.02.1983 in Gardelegen

Gutachter:

Prof. Dr. rer. nat. Ralf Stannarius

Prof. Dr. rer. nat. Heinz-Siegfried Kitzerow

eingereicht am: 31.07.2019

verteidigt am: 29.01.2020

Vorwort und Publikationen

Diese Arbeit stellt einen Auszug meiner wissenschaftlichen Tätigkeit in der Arbeitsgruppe „Nichtlineare Phänomene“ von Prof. Dr. Ralf Stannarius an der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg dar. Im Wesentlichen werden experimentelle Untersuchungen zu statischen und dynamischen Eigenschaften von dünnen freistehenden Filmen aus Flüssigkristallen vorgestellt. Hierbei kann der Flüssigkristallfilm als Modellsystem eines zweidimensionalen Fluids betrachtet werden. Nach einer kurzen Einleitung zum Thema Flüssigkristalle und smektische Filme folgen in Kapitel 2 und 3 Untersuchungen zum Reißverhalten smektischer Blasen. Anschließend wird in Kapitel 4 der Einfluss von Temperaturgradienten in der Filmebene unter Mikrogravitationsbedingungen betrachtet. Abschließend werden in Kapitel 5 Experimente an einer Geometrie aus drei smektischen Filmen vorgestellt. Der Inhalt dieser Arbeit ist in den folgenden Publikationen in wissenschaftlichen Fachzeitschriften veröffentlicht.

- **T. Trittel**, T. John, K. Tsuji und R. Stannarius; *Rim instability of bursting thin smectic films*; *Physics of Fluids*; 25(5): 052106, 2013
- **T. Trittel**, K. Harth und R. Stannarius; *Smectic C to smectic A transition induced mechanically by the rupture of freely suspended liquid crystal films*; *Soft Matter*; 13(17): 3199-3204, 2017
- **T. Trittel**, K. Harth, C. Klopp und R. Stannarius; *Marangoni flow in freely suspended liquid films*; *Physical Review Letters*; 122: 234501, 2019
- **T. Trittel**, R. Aldred und R. Stannarius; *Plateau borders of smectic liquid crystalline films*; *Philosophical Magazine*; 91(18): 2343-2354, 2011

Neben dem in dieser Arbeit vorgestellten Forschungsgebiet führte ich weitere Experimente unter Mikrogravitationsbedingungen und zu diversen wissenschaftlichen Fragestellungen durch. Ich nahm an fünf suborbitalen Raketenflugkampagnen aktiv teil, organisierte und absolvierte sieben Parabelflugkampagnen und etliche Fallturmkampagnen. Im Ergebnis dieser Kampagnen entstanden zum Beispiel Veröffentlichungen zu den Themen „Dynamik dünner freischwebender Membranen“ und der „Dynamik granularer Gase“. Ein besonderer Höhepunkt war die Mitwirkung an einer ISS-Mission in Zusammenarbeit mit Kollegen der Universität von Colorado (Boulder, USA) und ein Treffen mit dem deutschen Astronauten Alexander Gerst während der 33. DLR-Parabelflugkampagne, siehe Abbildung 0.1. In der folgenden Publikationsliste sind alle weiteren wissenschaftlichen Veröffentlichungen, an denen ich bisher beteiligt war, chronologisch aufgelistet.



Abbildung 0.1: Gruppenbild mit Alexander Gerst (3. v. l.) und den Teilnehmern der Arbeitsgruppe „Nichtlineare Phänomene“ während der 33. DLR-Parabelflugkampagne.

Publikationsliste

- **T. Trittel**, T. John und R. Stannarius; *Smectic Foams*; *Langmuir*; 26(11): 7899-7904, 2010
- K. May, K. Harth, **T. Trittel** und R. Stannarius; *Dynamics of freely floating smectic bubbles*; *Europhysics Letters*; 100(1): 16003, 2012
- M. Morys, **T. Trittel**, A. Eremin, P. Murphy und R. Stannarius; *Tension of freely suspended fluid filaments*; *Physical Review E*; 86(4): 040501, 2012
- M. Morys, **T. Trittel** und R. Stannarius; *Measurement of the tension of freely suspended smectic liquid crystal filaments*; *Ferroelectrics*; 431(1): 129-140, 2012
- K. Harth, U. Kornek, **T. Trittel**, U. Strachauer, S. Höme, K. Will und R. Stannarius; *Granular gases of rod-shaped grains in microgravity*; *Physical Review Letters*; 110(14): 144102, 2013
- K. Harth, **T. Trittel**, U. Kornek, S. Höme, K. Will, U. Strachauer und R. Stannarius; *Microgravity experiments on a granular gas of elongated grains*; *AIP Conference Proceedings*; 1542: 807-810, 2013
- K. May, K. Harth, **T. Trittel** und R. Stannarius; *Freely floating smectic films*; *ChemPhysChem*; 15(7): 1508-1518, 2014

-
- K. Harth, **T. Trittel**, K. May, S. Wegner und R. Stannarius; *Three-dimensional (3D) experimental realization and observation of a granular gas in microgravity*; *Advances in Space Research*; 55(7): 1901-1912, 2015
 - A. Ashour, S. Wegner, **T. Trittel**, T. Börzsönyi und R. Stannarius; *Outflow and clogging of shape-anisotropic grains in hoppers with small apertures*; *Soft Matter*; 13(2): 402-414, 2017
 - **T. Trittel**, K. Harth und R. Stannarius; *Mechanical excitation of rodlike particles by a vibrating plate*; *Physical Review E*; 96(6): 062904, 2017
 - K. Harth, **T. Trittel**, S. Wegner und R. Stannarius; *Cooling of 3D granular gases in microgravity experiments*; *EPJ Web of Conferences*; 140: 04008, 2017
 - N.A. Clark, A. Eremin, M.A. Glaser, N. Hall, K. Harth, C. Klopp, J.E. Maclennan, C.S. Park, R. Stannarius, P. Tin, W.N. Thurmes und **T. Trittel**; *Realization of hydrodynamic experiments on quasi-2D liquid crystal films in microgravity*; *Advances in Space Research*; 60(3): 737-751, 2017
 - A. Ashour, **T. Trittel**, T. Börzsönyi und R. Stannarius; *Silo outflow of soft frictionless spheres*; *Physical Review Fluids*; 2(12): 123302, 2017
 - K. Harth, **T. Trittel**, S. Wegner und R. Stannarius; *Free Cooling of a Granular Gas of Rodlike Particles in Microgravity*; *Physical Review Letters*; 120(21): 214301, 2018
 - P. Dähmlow, **T. Trittel**, K. May, K. Harth und R. Stannarius; *Surface reduction of freely floating smectic bubbles*; *Liquid Crystals*; 45(7): 993-1003, 2018
 - R. Stannarius, **T. Trittel**, Ch. Klopp, A. Eremin, K. Harth, N. A. Clark, C. S. Park, und J. E. Maclennan; *Freely suspended smectic films with in-plane temperature gradients*; *New Journal of Physics*; 21: 063033, 2019
 - K. Harth, **T. Trittel**, K. May und R. Stannarius; *Dynamic wrinkling of freely floating smectic films*; *Soft Matter*; 2019

Inhaltsverzeichnis

1 Flüssigkristalle und dünne freistehende Filme	1
1.1 Motivation	1
1.2 Flüssigkristalle	2
1.3 Freistehende smektische Filme	3
2 Das Reißen dünner smektischer Filme	5
2.1 Einleitung	5
2.2 Grundlagen	9
2.2.1 Die Reißgeschwindigkeit dünner Filme	9
2.2.2 Filamentierung des Randes	11
2.3 Experimentelle Durchführung und verwendeter Flüssigkristall	16
2.3.1 Verwendeter Flüssigkristall	16
2.3.2 Experimenteller Aufbau	16
2.3.3 Filmdickenbestimmung	18
2.3.4 Bildbearbeitung und Analyse	21
2.4 Ergebnisse	23
2.4.1 Reißgeschwindigkeit dünner 8CB-Filme	23
2.4.2 Filamentierung dünner 8CB-Filme	25
2.5 Diskussion	33
2.6 Zusammenfassung	34
3 Mechanisch induzierter SmC-SmA-Übergang beim Reißen smektischer Filme	37
3.1 Einleitung	37
3.2 Bisherige Literatur	39
3.3 Experimenteller Aufbau und verwendeter Flüssigkristall	41
3.3.1 Verwendeter Flüssigkristall	41
3.3.2 Experimenteller Aufbau	41
3.4 Ergebnisse	43
3.5 Diskussion und Zusammenfassung	48
4 Thermisch getriebener Transport in flüssigkristallinen Filmen	51
4.1 Einleitung	51
4.2 Grundlagen	53
4.2.1 Das TEXUS-Programm	53
4.2.2 Smektische Filme unter dem Einfluss von Temperaturgradienten	54

4.3	Experimenteller Aufbau, Durchführung und verwendete Flüssigkristalle	57
4.3.1	Experimenteller Aufbau	57
4.3.2	Verwendete Flüssigkristalle	58
4.3.3	Durchführung und Experimentparameter	60
4.3.4	Bildbearbeitung und Geschwindigkeitsbestimmung	64
4.4	Ergebnisse	66
4.5	Diskussion	71
4.6	Zusammenfassung	79
5	Plateaugrenzen smektischer Filme	81
5.1	Einleitung	81
5.2	Grundlagen	84
5.2.1	Plateaus Regeln	84
5.2.2	Plateaus erste Regel in dekorierten Schäumen	85
5.3	Experimenteller Aufbau, Probenpräparation und Bildanalyse	90
5.3.1	Experimenteller Aufbau und verwendeter Flüssigkristall	90
5.3.2	Probenpräparation	91
5.3.3	Bildaufnahme und Bildanalyse	92
5.4	Ergebnisse	94
5.4.1	Relaxationszeit der Film-Geometrie	94
5.4.2	Hysterese-Effekte	95
5.4.3	Abhängigkeit des eingeschlossenen Winkels	98
5.5	Diskussion und Zusammenfassung	100
6	Zusammenfassung und Ausblick	105
	Literaturverzeichnis	107

1 Flüssigkristalle und dünne freistehende Filme

In diesem Kapitel wird zunächst die Motivation zur Erstellung dieser Arbeit dargelegt. Anschließend erfolgt eine Einleitung in den Aufbau der bekanntesten flüssigkristallinen Mesophasen, die von Mesogenen mit länglicher Struktur (Kalamiten) gebildet werden. Dabei wird besonders auf die smektischen Phasen, die smektische A-Phase (SmA) sowie die smektische C-Phase (SmC) eingegangen, da diese eine zentrale Rolle für die Herstellung freistehender flüssigkristalliner Filme darstellen. Abschließend erfolgt eine kurze Einführung in den Aufbau freistehender smektischer Filme.

1.1 Motivation

Hinreichend bekannt ist, dass Flüssigkristalle eine dominante Rolle in der heutigen Displaytechnologie spielen. Trotzdem ist ihr Potential in technischen Anwendungen nicht ausgereizt [1]. Ihre pyroelektrischen, ferroelektrischen und flexoelektrischen Eigenschaften machen sie interessant für Anwendungen in Sensoren und Aktuatoren. Zusätzlich bieten Flüssigkristalle einige einzigartige Eigenschaften zur Untersuchung fundamentaler physikalischer Probleme im Bereich komplexer Fluide. So können smektische Filme mit einem möglichen Aspektverhältnis von $>10^6:1$ (Länge:Filmdicke) als quasi zweidimensionale Fluide angesehen werden, in denen auftretender Fluss auf die Filmebene beschränkt ist.

Viele hydrodynamische Vorgänge sind zumindest für dreidimensionale Newton'sche Flüssigkeiten weitgehend verstanden. Es gibt wohlbekannte Kontinuumsgleichungen und Standardmessmethoden um dreidimensionale Fluide quantitativ zu charakterisieren. In vielen Bereichen, wie zum Beispiel biologischen Systemen oder in der Beschichtungstechnologie, spielen jedoch zweidimensionale Flüssigkeiten (z. B. dünne flüssige Filme oder biologische Membranen) eine entscheidende Rolle. In der Regel unterscheidet sich das Verhalten zweidimensionaler Flüssigkeiten vom Verhalten dreidimensionaler Flüssigkeiten qualitativ. Die Beschreibung zweidimensionaler Fluide ist oft komplizierter und heutzutage nicht vollständig verstanden. In dieser Arbeit wird die Dynamik und Statik dünner freistehender smektischer Filme experimentell untersucht und somit ein Beitrag zum Verständnis des Verhaltens zweidimensionaler Flüssigkeiten erbracht.

1.2 Flüssigkristalle

Flüssigkristalle (LC, „liquid crystals“) wurden bereits gegen Ende des 19. Jahrhunderts (1888) vom österreichischen Chemiker und Botaniker Friedrich Reinitzer entdeckt. Während seiner Arbeit mit Cholesterylbenzoat beobachtete er zwei „Schmelzpunkte“ des Materials. Unterhalb des ersten Schmelzpunktes von 154 °C ist das Material ein Festkörper. Zwischen dem ersten und dem zweiten Schmelzpunkt bei 179 °C ist das Material eine trübe milchige Flüssigkeit. Erst beim Überschreiten des zweiten Schmelzpunktes wandelt sich das Material zu einer transparenten „normalen“ Flüssigkeit. Otto Lehmann, ein deutscher Physiker und Kristallograph, stellte kurze Zeit später eine polarisationsmikroskopische Doppelbrechung des Materials in der „trüben“ Zwischenphase (Mesophase) fest und prägte den Begriff „fließende Kristalle“ bzw. „flüssige Kristalle“ [2, 3].

Die flüssigkristallinen Mesophasen werden von stark anisotropen Molekülen gebildet. Diese Moleküle können zum Beispiel länglich (Kalamiten) oder scheibenförmig (Diskoten) sein. Da der Aufbau dieser Phasen, auf die Symmetrie bezogen, zwischen Festkörpern und isotropen Flüssigkeiten liegt, hat sich der Begriff Mesophase etabliert. In dieser Arbeit werden ausschließlich thermotrope Flüssigkristalle behandelt, deren Phasensequenz temperaturabhängig ist. Lyotrope Flüssigkristalle, deren Phasensequenz primär konzentrationsabhängig ist, sollen hier zumindest erwähnt werden [2–4].

In Flüssigkristallen unterliegen die Moleküle einer Orientierungsfernordnung, jedoch keiner dreidimensionalen Positionsfernordnung. Hierbei wird die mittlere lokale Orientierung der Mesogene durch den Direktor \hat{n} beschrieben. Abbildung 1.1 zeigt drei der bekanntesten Flüssigkristallphasen: Die nematische Phase (N) sowie die smektischen A- und C-Phasen (SmA und SmC), die eine Schichtstruktur aufweisen. Die im Flüssigkristall vorhandenen Mesophasen sind je nach Material verschieden. Auch die Temperaturbereiche der einzelnen Phasen variieren von Material zu Material.

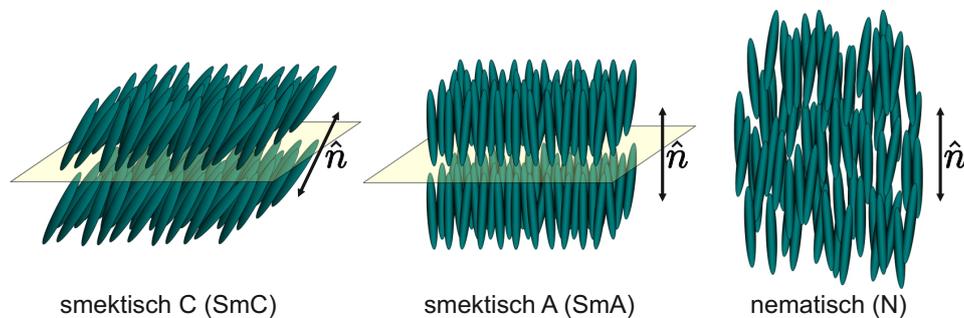


Abbildung 1.1: Drei der bekanntesten flüssigkristallinen Phasen aus kalamitischen Flüssigkristallen. In der smektischen C-Phase (links) sind die Moleküle in Schichten angeordnet und zur Schichtnormalen geneigt. In der smektischen A-Phase (mittig) gibt es ebenfalls eine Schichtstruktur, jedoch zeigen die Moleküle im Mittel in Richtung der Schichtnormalen. In der nematischen Phase (rechts) gibt es nur eine Orientierungsordnung, aber keine Positionsordnung. Die eingezeichneten Ebenen dienen der Veranschaulichung. Die Originaldarstellung stammt aus [5].

In der smektischen A-Phase zeigt der Direktor \hat{n} parallel zur Schichtnormale, in der

smektischen C-Phase ist er um einen Kippwinkel gegen die Schichtnormale geneigt. Die nematische Phase zeigt keine Positionsfernordnung, allerdings zeigen die Moleküle eine Orientierungsfernordnung. Die smektischen Phasen besitzen neben der Orientierungsfernordnung zusätzlich mindestens eine eindimensionale Quasi-Positionsfernordnung (in Richtung der Schichtnormalen), dies führt zu einer Schichtstruktur. Eine kurzreichweitige zweidimensionale Positionsordnung findet man zum Beispiel in der smektischen B-Phase (SmB) [4].

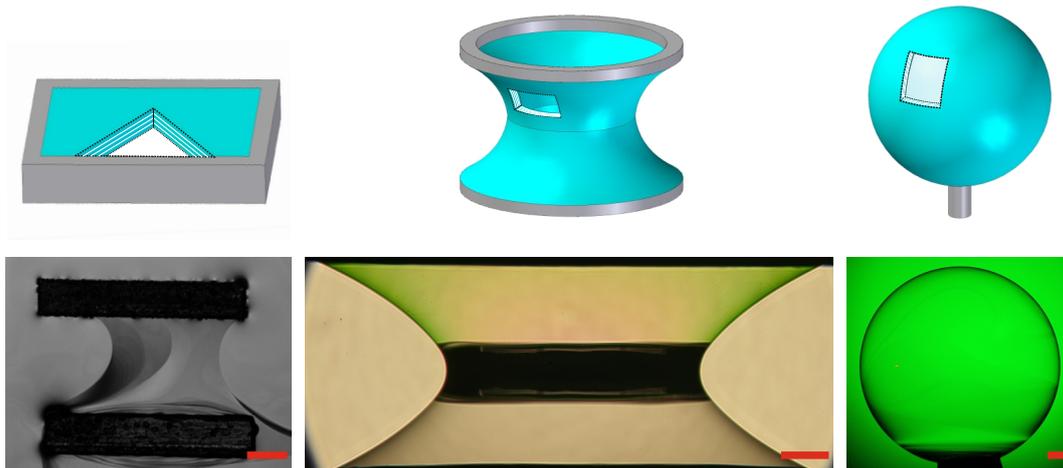


Abbildung 1.2: Dreidimensionale schematische Darstellung der experimentellen Situation (oben) und eine Bildaufnahme aus dem Experiment (unten). Die weißen Linien in den Ausschnitten deuten die smektischen Schichten an. In den schematischen Darstellungen sind die Filmdicken stark überproportional dargestellt. links: Draufsicht auf einen flachen smektischen Film unter monochromatischer Beleuchtung. Die unterschiedlichen Grauwerte entstehen aufgrund von Filmdickenunterschieden, siehe Kapitel 4. mittig: Seitenansicht einer 3-Film-Geometrie, zwei Katenoidabschnitte halten einen flachen Film, siehe Kapitel 5. rechts: Aufnahme einer smektischen Blase in Transmission, wie sie in Kapitel 2 untersucht wird. Die rote Linie in den unteren Bildern entspricht einem Millimeter (1 mm).

1.3 Freistehende smektische Filme

Smektische Phasen haben eine einzigartige Eigenschaft, welche die Präparation von freistehenden Filmen (ähnlich wie Seifenfilme) ermöglicht. Das Aspektverhältnis dieser Filme kann deutlich über 1 Million zu eins (räumliche Ausdehnung zu Filmdicke) hinausgehen. Hierbei kann die Filmdicke nur einige Moleküllängen (wenige Nanometer) betragen, wobei die Herstellung von Filmen mit mehreren 100 Quadratcentimetern Filmfläche möglich ist [6]. Die Form dieser Filme wird durch die Oberflächenspannung bestimmt, so dass sie im Gleichgewicht Minimalflächen bilden. Somit hängt ihre Form, ohne den Einfluss äußerer Kräfte, ausschließlich von der Geometrie des Filmrahmens

ab. Sie können zum Beispiel planare Filme [7], sphärische Blasen [8] oder Katenoide [9] bilden, siehe Abbildung 1.2.

2 Das Reißen dünner smektischer Filme

Das Reißen dünner Filme spielt in vielen Bereichen wie zum Beispiel der Schaumstabilität oder bei Beschichtungsprozessen eine wichtige Rolle. In diesem Kapitel wird das Reißen dünner smektischer Filme mit Hilfe von Hochgeschwindigkeitsvideoanalyse untersucht. Blasen mit einem Durchmesser von etwa einem Zentimeter und einer Filmdicke von wenigen Nanometern wurden angestochen und dadurch das Reißen initiiert. Es wird die auf dem sich öffnenden Rand auftretende Instabilität beschrieben. Skalengesetze beschreiben den Zusammenhang zwischen Filmdicke, Reißgeschwindigkeit und Eigenschaften des Filamentierungsprozesses. Eine Auf- und Abwärtsbewegung des Randes senkrecht zur Filmebene kristallisiert sich als Auslöser der Filamentierung heraus. Die erzielten experimentellen Ergebnisse werden mit Ergebnissen an Seifenfilmen der Wissenschaftler Lhuissier und Villermaux verglichen [10] und zur Erweiterung ihres Modells auf smektische Filme genutzt. Die Ergebnisse dieses Kapitels sind in [11] veröffentlicht.

2.1 Einleitung

Die Stabilität von dünnen flüssigen Filmen und Blasen spielt eine wichtige Rolle in vielen technologischen Prozessen. Sie ist zum Beispiel wichtig für Beschichtungsprozesse, die Stabilität von Schäumen und bei der Generierung von Nebeln [12–17]. Schon vor etwa 150 Jahren erweckte das Reißen von dünnen Seifenfilmen das Interesse der Wissenschaft [18, 19]. Aber erst mit der Entwicklung der Hochgeschwindigkeitsbildgebung konnte der Reißprozess detailliert untersucht werden [20–24].

Freistehende flüssige Filme sind die Basis für Blasen und Schäume [12]. Durch ihr großes Verhältnis von Oberfläche zu Volumen wird schlagartig eine große Menge an Oberflächenenergie frei, sobald sich die Filme zu einem Tropfen oder in einen Meniskus zusammenziehen. Der diesem Phänomen zugrunde liegende Effekt ist seit weit mehr als 100 Jahren bekannt. Wenn ein freistehender Film angestochen wird, wird das vorherrschende Kräftegleichgewicht in der Filmebene gestört. Nach dem Anstechen wird ein Seifenfilm in Bruchteilen einer Sekunde zerstört, indem sich von der Anstichstelle ein kreisförmiges Loch ausbreitet, das von einem Rand umgeben ist, der das flüssige Material einsammelt, siehe Abbildung 2.1. Die Bewegung des Randes stand bereits im 19. Jahrhundert im Fokus wissenschaftlicher Untersuchungen [18, 19].

Dupré entwickelte ein Modell für die Reißgeschwindigkeit, das auf dem Prinzip der Energieerhaltung basiert [18]. Lord Rayleigh gelangen erste Aufnahmen von reißenden

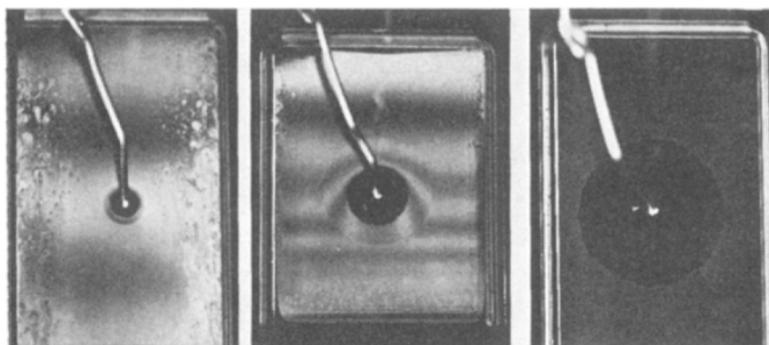


Abbildung 2.1: Das Anstechen eines Seifenfilms startet die Ausbreitung eines nahezu kreisrunden Loches im Film. Im Rand des Loches wird hierbei das Filmmaterial eingesammelt. Abweichungen von der Kreisform können durch Dickenunterschiede im Film entstehen. Die dargestellten Aufnahmen entstammen aus einer Publikation von McEntee et al. [21] aus dem Jahr 1969 und zeigen typische Bilder während des Reißens von Seifenfilmen verschiedener Filmdicke (280 nm; 430 nm; 10 nm; von links nach rechts).

Seifenfilmen [19]. In der Mitte des 20. Jahrhunderts wurde Duprés Modell unabhängig voneinander von Taylor [25] und Culick [26] korrigiert. Hierbei basiert das Modell von Taylor und Culick auf der Balance zwischen Kapillarkräften und Trägheitskräften während des Reißens. Das Prinzip der Erhaltung der mechanischen Energie tritt hierbei außer Kraft. Als Konsequenz dessen wird nicht die gesamte freiwerdende Oberflächenenergie in kinetische Energie des sich im Rand sammelnden Filmmaterials umgewandelt. Somit wird ein Teil der freiwerdenden Oberflächenenergie während des Reißens dissipiert. Eine zentrale Annahme des Modells ist außerdem, dass sich der Film mit Ausnahme des sich öffnenden Randes überall in Ruhe befindet. Der Rand sammelt das Filmmaterial während des Reißens ein. Experimente an Seifenfilmen haben das Modell mit kleinen Anpassungen bestätigt [21, 22, 27].

Ein Phänomen, das schon früh beim Reißen dünner Seifenfilme beobachtet wurde [20], aber dem wenig Beachtung geschenkt wurde, ist die Fragmentation des Randes. Sowohl Seifenfilme als auch flüssigkristalline Filme können während des Reißens filamentartige Strukturen bilden, die dann im weiteren Verlauf in einzelne Tropfen zerfallen. Obwohl dieses Verhalten schon länger bekannt war, wurde es erst in den 1960er Jahren von Frankel, McEntee und Mysels [21, 27] erstmals genauer untersucht. In diesen Arbeiten wurde die Filamentierung erstmals als Ursache für die Dekomposition des Films in kleine Tropfen festgestellt. De Gennes stellte die Hypothese auf, dass die Dekomposition zu einem Energieübertrag auf die entstehenden Tropfen führt [28]. In den letzten Jahren gab es mehrere Publikationen, die sich mit der Instabilität des sich öffnenden Randes und dessen Dekomposition zu einzelnen Tropfen befassten [29–32].

Lhuissier und Villermaux haben in ihren Arbeiten „Soap films burst like flapping flags“ [10] und „Destabilization of flapping sheets: The surprising analogue of soap films“ [33] mit Hochgeschwindigkeitsvideoaufnahmen gezeigt, dass der sich öffnende Rand beim Reißen nicht glatt bleibt. Während des Reißens bildet sich zunächst eine Scherinstabi-

lität zwischen dem Film und der umgebenden Atmosphäre aus, die zu einer Auf- und Abwärtsbewegung (Flattern) des Randes senkrecht zur Filmebene führt, siehe Abbildung 2.2. Diese Flatterbewegung führt dann zu einer Instabilität entlang des Randes. Aus dieser Instabilität bilden sich filamentartige Strukturen, die anschließend zerfallen und einen Nebel aus kleinsten Tropfen hinterlassen.

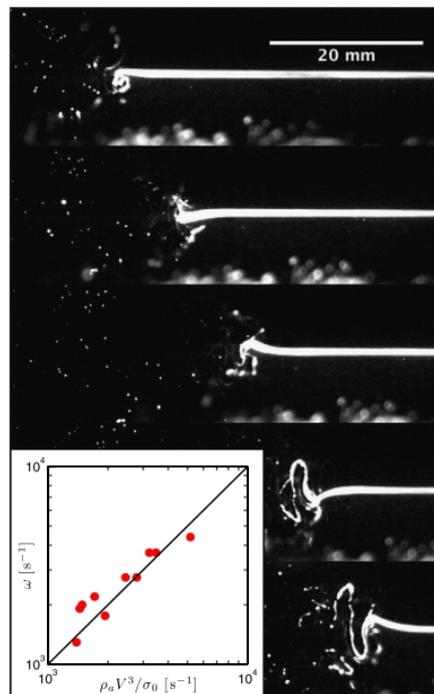


Abbildung 2.2: Schnitt durch einen Seifenfilm zu verschiedenen Zeitpunkten des Reißvorgangs. Der Zeitabstand zwischen den einzelnen Aufnahmen beträgt 2,3 ms. Die Bewegung des Films wurde mit Hilfe eines Linienlasers und fluoreszierendem Farbstoff sichtbar gemacht. Eine Auf- und Abbewegung des Films nahe der Filmkante (links) ist deutlich sichtbar. Im Diagramm ist zusätzlich die Frequenz der Bewegung senkrecht zur Filmebene in Abhängigkeit der Reißgeschwindigkeit und weiteren Größen dargestellt. Die Abbildung entstammt einer Publikation von Lhuissier und Villermaux aus dem Jahr 2009 [10]. Hierbei ist V die Reißgeschwindigkeit v , ρ_a die Dichte des umgebenden Mediums und σ_0 die Oberflächenspannung.

Außerdem wurde das Phänomen auch von den Wissenschaftlern Čopar und Kodre theoretisch untersucht [34]. Die beiden Autoren untersuchten die Dynamik des Randes einer sich zurückziehenden dünnen Flüssigkeitsschicht mit Hilfe von Computersimulationen. Die Simulationen ergaben ein periodisches Abreißen von kleinen Flüssigkeitstropfen. Der Großteil aller Untersuchungen wurde bisher an Seifenfilmen durchgeführt, obwohl dünne freistehende Filme auch von thermotropen Flüssigkristallen in der smektischen A-Phase (SmA) und smektischen C-Phase (SmC) präpariert werden können. Müller et al. haben bei ihren Untersuchungen des Reißens flüssigkristalliner Blasen [35–37] ebenfalls eine Dekomposition in einzelne Tropfen für Blasen mit einer Filmdicke um 100 nm

beobachtet, aber nicht quantitativ untersucht. In diesem Kapitel wird das Reißverhalten solcher smektischer Filme quantitativ charakterisiert und mit publizierten Ergebnissen für Seifenfilme verglichen.

2.2 Grundlagen

2.2.1 Die Reißgeschwindigkeit dünner Filme

Die ersten veröffentlichten Untersuchungen zum Reißen dünner Filme stammen aus dem Jahr 1867 und wurden von Dupré in der Arbeit „Sixième Mémoire sur la Théorie Mécanique de la Chaleur“ veröffentlicht. Dabei ist das qualitative Modell des Reißens dünner niedrigviskoser Filme bis heute unverändert und kann mit folgenden Stichpunkten beschrieben werden:

- Entsteht ein Loch in einem Film, vergrößert es seinen Radius, um die Filmoberfläche zu verkleinern (siehe Abbildung 2.3).
- Der Rand des Loches sammelt bei seiner Vergrößerung das umliegende Filmmaterial auf. Hierbei bleibt das Filmmaterial abseits des Randes in Ruhe.
- Bei homogener Filmdicke breitet sich der Rand des Loches mit konstanter Geschwindigkeit radial vom Lochzentrum aus und das Loch bleibt kreisrund.

Dupré nahm bei seinen Untersuchungen an, dass die gesamte Oberflächenenergie des Films $E_{OF} = 2\sigma A$ in kinetische Energie des Lochrandes $E_{kin} = \rho\delta Av^2/2$ umgewandelt wird. Hierbei ist A die Filmfläche, σ die Oberflächenspannung, δ die Filmdicke, ρ die Dichte des Filmmaterials und v die Reißgeschwindigkeit. Dupré ermittelte mit seiner Annahme eine konstante Reißgeschwindigkeit von

$$v = \sqrt{\frac{4\sigma}{\rho\delta}} \quad (2.1)$$

Diese Reißgeschwindigkeit wurde zunächst von Lord Rayleigh gegen Ende des 19. Jahrhunderts näherungsweise bestätigt [19]. Erst Mitte des 20. Jahrhunderts fand W. E. Ranz experimentelle Abweichungen von den vorhergesagten Geschwindigkeiten [20]. Die von Ranz gefundenen Geschwindigkeiten waren etwa 10 % kleiner als durch Gleichung 2.1 vorhergesagt.

Nach der Veröffentlichung der Ergebnisse von Ranz publizierten Taylor [25] und Culick [26] unabhängig voneinander eine neue Gleichung

$$v = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho\delta}} \quad (2.2)$$

für die Reißgeschwindigkeit dünner Filme. Die Herleitung dieser Gleichung beruht auf der Impulsbilanz, wobei sich die Impulsänderung aus den auftretenden Kräften ergibt. Außerdem wird die Wechselwirkung mit dem umgebenden Medium (z. B. Luft) vernachlässigt. Die Geschwindigkeit nach Culick und Taylor ist um den Faktor $\sqrt{2}$ kleiner als in Gleichung 2.1. Somit wird die Hälfte der Oberflächenenergie während des Reißprozesses dissipiert.

Das Modell von Culick und Taylor wurde mit Hilfe von Hochgeschwindigkeitsvideoanalyse im Jahr 1990 von Pandit und Davidson bestätigt [22]. McEntee und Mysels fanden

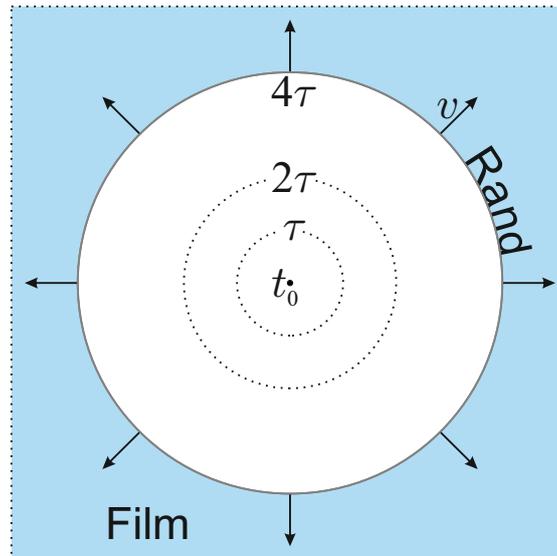


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung eines homogen dicken reißenden Films (hellblau). Der Reißprozess beginnt zum Zeitpunkt $t_0 = 0$ im Zentrum des Films. Der dargestellte Zustand entspricht dem Zeitpunkt $t = 4\tau$. Die gestrichelten Linien zeigen die Position des Randes zu den Zeitpunkten $t = \tau$ bzw. $t = 2\tau$. Der Radius des sich öffnenden Loches wächst mit konstanter Geschwindigkeit v . Während des Reißprozesses wird das Filmmaterial vom Rand eingesammelt.

Abweichungen von Culicks Modell beim Reißen sehr dünner Filme ($\delta < 100$ nm) und führten die phänomenologische Gleichung

$$v = \sqrt{\frac{\phi\sigma}{\rho\delta}} \quad (2.3)$$

ein. Hierbei hängt ϕ von verschiedenen Faktoren wie der Filmdicke δ und der Dichte des umgebenden Mediums ρ_a ab. Für Tensidfilme mit einer Dicke zwischen 10 und 100 nm fanden Mysels und McEntee Werte von $\phi \approx 1$. Die Ergebnisse von McEntee und Mysels wurden im Jahr 1997 von Evers et al. bei der Untersuchung des Reißens „Newton’scher Schwarzer Filme“ und viskoelastischer Filme bestätigt [38]. Während reißende Filme aus Newton’scher Flüssigkeit nahezu instantan (in wenigen Nanosekunden) ihre konstante Reißgeschwindigkeit erreichen, beobachtete Debrégeas ein exponentielles Anwachsen der Reißgeschwindigkeit bei der Untersuchung von reißenden hochviskosen Polydimethylsiloxan-Filmen [23]. Die Beschleunigung findet in einer charakteristischen Zeit $\eta\delta/2\sigma$ statt und erreicht dann eine konstante Reißgeschwindigkeit, die dem Modell nach Culick und Taylor entspricht. Hierbei ist η die Viskosität des Filmmaterials.

Zum Reißverhalten flüssigkristalliner Filme gibt es bisher nur wenige Veröffentlichungen. Diese Publikationen stammen hauptsächlich von Müller et al. Im Detail untersuchten Müller et al. die Reißgeschwindigkeit von sphärischen 8CB-Filmen [36] und die Ausbreitung von Undulationen entlang der Filmoberfläche während des Reißvorganges

von 8CB-Blasen [39]. In den Untersuchungen fanden Müller et al. entsprechend des oben beschriebenen Modells eine über den gesamten Reißvorgang konstante Geschwindigkeit des Randes. Die ermittelten Reißgeschwindigkeiten waren jedoch um etwa 10 % kleiner als vom Culick Taylor Modell vorhergesagt, siehe Abbildung 2.4.

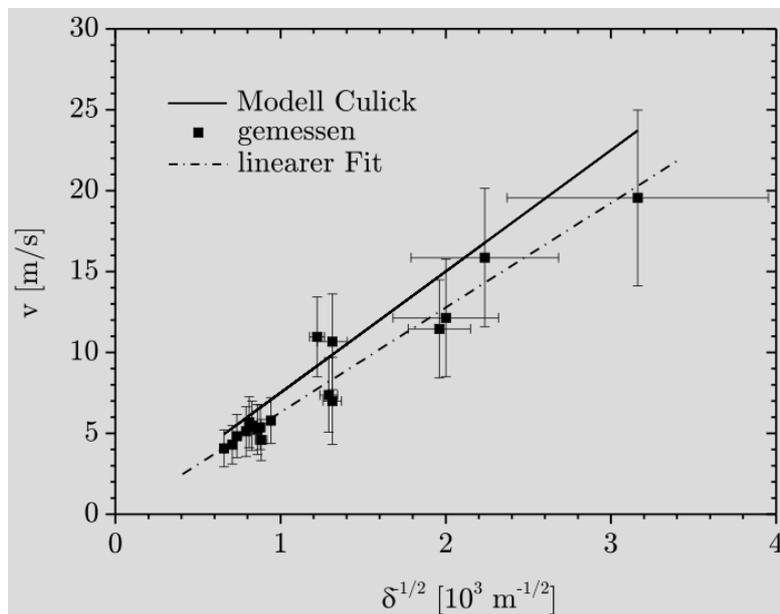


Abbildung 2.4: Reißgeschwindigkeit von 8CB-Filmen bei Raumtemperatur in Abhängigkeit von der Wurzel der Filmdicke $\delta^{-1/2}$. Die gemessenen Geschwindigkeiten sind kleiner als vom Culick-Taylor-Modell vorhergesagt. Die untersuchten Filmdicken liegen zwischen 100 nm (letzter Datenpunkt rechts) und 2000 nm (erster Datenpunkt links). Die Grafik ist entnommen aus [37].

2.2.2 Filamentierung des Randes

Im oben beschriebenen Modell für das Reißen dünner Filme besitzt der sich öffnende kreisrunde Rand, der das Filmmaterial einsammelt, einen kreisförmigen Querschnitt. Verschiedene experimentelle Untersuchungen zeigten jedoch eine Destabilisierung des Randes. So wurde von verschiedenen Wissenschaftlern eine Instabilität beobachtet, die zur Bildung von filamentartigen Strukturen am sich öffnenden Rand führt [21, 22, 38]. Die filamentartigen Strukturen zerfallen während des Reißens und hinterlassen einen Nebel aus feinen Tropfen, siehe Abbildung 2.5.

Auch von Theoretikern wurde die Bewegung des Randes und dessen zeitliche Entwicklung analysiert [40, 41]. Fullana et al. [42] publizierten eine theoretische Erklärung für die Filamentierung des Randes. Die Autoren simulierten die zeitliche Entwicklung eines glatten Randes mit einer kleinen sinusförmigen Störung. Die Lösung der Navier-Stokes-Gleichung lieferte ein zeitliches Anwachsen dieser Störung für große Wellenlängen. Allerdings konnte das Auftreten von kleinen und sehr großen Wellenlängen nicht erklärt

werden.

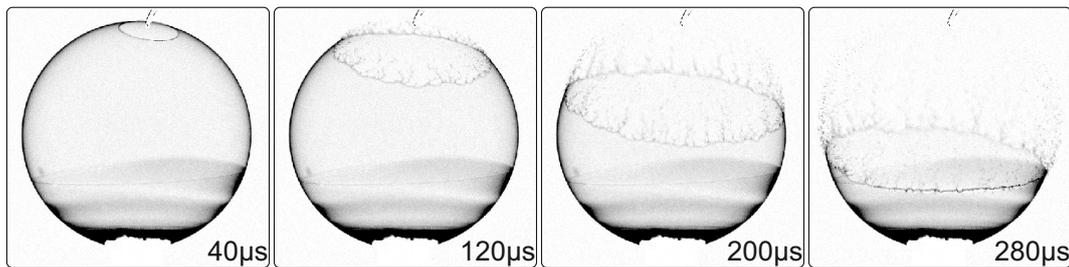


Abbildung 2.5: Während des Reißens von Blasen wird oft ein Zerfall der Blase in einen Nebel aus kleinsten Flüssigkeitstropfen beobachtet. Hier ist dies am Beispiel einer reißenden 8CB-Blase dargestellt. Der Blasendurchmesser beträgt 15 mm und die Bilder sind hintergrundkorrigiert und kontrastverstärkt.

Die Arbeiten von Lhuissier und Villermaux [10, 33] erklären die Destabilisierung des Randes beim Reißen eines flachen Seifenfilms im Kontext des Zerfalls von sich ausbreitenden flüssigen Schichten in einem umgebenden Medium (z. B. Luft). Pionierarbeiten zu Schichten mit radialer Ausbreitungsrichtung wurden schon im Jahr 1833 von Savart veröffentlicht [43]. Er erzeugte die Schichten durch Aufprall eines Flüssigkeitsstrahls auf eine flache Scheibe, siehe Abbildung 2.6. Der Zerfall dieser Schichten spielt eine große Rolle bei der Verteilung von Gülle in der Feldwirtschaft oder auch für die Performance von Einspritzdüsen für Brennräume.

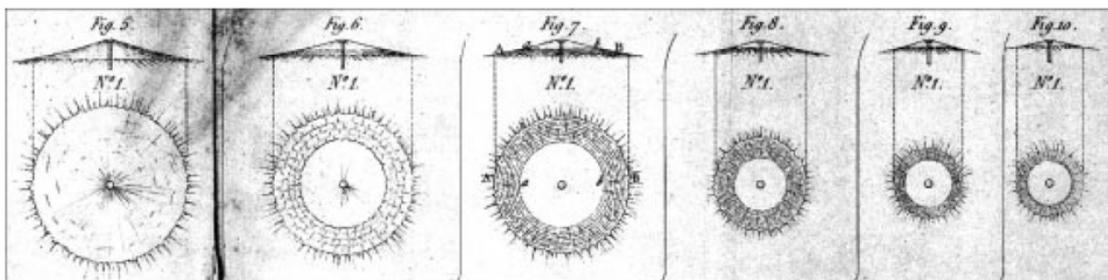


Abbildung 2.6: Bilder einer sich radial ausbreitenden flüssigen Schicht. Die Schicht wird durch Aufprall eines Strahls auf eine flache Scheibe erzeugt. Es ist sowohl die Draufsicht (unten) als auch die Seitenansicht (oben) gezeigt. Trotz konstanter Geschwindigkeit des Strahls verringert sich der Schichtdurchmesser im Laufe der Zeit (von links nach rechts). Es ist deutlich sichtbar, dass die Schicht in kleine Tropfen zerfällt. Die Grafik wurde entnommen aus [30] und stammt im Original aus [43].

Lhuissier und Villermaux gehen davon aus, dass der sich bewegende Rand beim Reißen eine Scherung mit dem umgebenden Medium vollzieht. Insbesondere haben experimentelle Untersuchungen gezeigt, dass sich entgegen des Culick-Taylor-Modells ein als

Aureole bezeichneter Bereich um das sich öffnende Loch mit einer höheren Geschwindigkeit bewegt. Die Geschwindigkeit der Filmelemente in diesem Bereich kann bis zum Zweieinhalbfachen der Reißgeschwindigkeit v betragen [33] und die räumliche Ausdehnung der Aureole ist proportional zu $v \cdot t$. Aus der Untersuchung des Zerfalls flüssiger Schichten ist bekannt, dass die Scherung zu einer Instabilität führen kann [30, 33, 44]. Diese Instabilität ist eine Art Kelvin-Helmholtz-Instabilität, die das Anwachsen kleiner Störungen in der Scherschicht zweier Fluide mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten beschreibt. Im Fall reißender Filme bewegt sich das Filmmaterial mit der Dichte ρ im umgebenden Medium mit der Dichte $\rho_a < \rho$. Im Gegensatz zur klassischen Kelvin-Helmholtz-Instabilität gibt es zwei Grenzflächen und das eingeschlossene Fluid (der Film) kann nicht als unendlich ausgedehnt (kleine endliche Filmdicke δ) angenommen werden. Die Instabilität erlaubt die Destabilisierung zweier Moden: einer symmetrischen peristaltischen Mode und einer antisymmetrischen sinusförmigen Mode (Fluttern), siehe Abbildung 2.7. Hierbei wird die letztere sinusförmige Mode stärker angeregt [30].

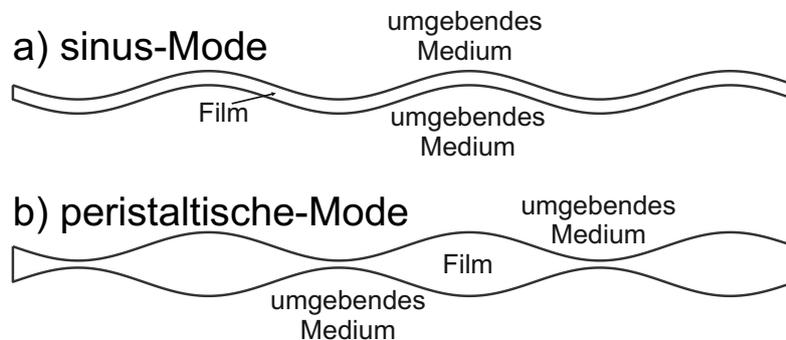


Abbildung 2.7: Skizze der zwei möglichen destabilisierenden Moden eines flüssigen Films, der sich in einem ruhenden umgebenden Medium bewegt. Die antisymmetrische sinusförmige Mode a) wird hierbei stärker angeregt als die peristaltische Mode b).

Nimmt man vereinfacht einen unendlich ausgedehnten und homogen dicken Film an, der sich mit der Geschwindigkeit v im umgebenden Medium bewegt, so ergeben sich für die am stärksten angeregte Mode folgenden Charakteristika:

$$\lambda_{KH} \sim \frac{\sigma}{\rho_a v^2} \sim \frac{\rho}{\rho_a} \delta \quad \text{und} \quad (2.4)$$

$$\omega_{KH} \sim \frac{v}{\lambda_{KH}} \sim \frac{\rho_a v^3}{\sigma} \quad . \quad (2.5)$$

Hierbei ist λ_{KH} die Wellenlänge der Mode, ω_{KH} die Pulsationsfrequenz der Mode und σ die Oberflächenspannung des Filmmaterials [10, 30]. Ein Vergleich zwischen gemessener und vorhergesagter Pulsationsfrequenz von in Luft reißenden Seifenfilmen ist im Einsatz in Abbildung 2.2 dargestellt.

Die oben genannte Instabilität ist nach Villermaux und Lhuissier die Ursache für die Filamentierung des sich öffnenden Randes. Ein Fluidelement in der Nähe des Randes erfährt

durch die Instabilität eine Beschleunigung senkrecht zur Filmebene. Die Intensität dieser Beschleunigung a_{KH} ist $a_{KH} = A\omega_{KH}^2$, mit der Amplitude A der sinusförmigen Mode. Die Beschleunigung senkrecht zur Filmebene initiiert eine Rayleigh-Taylor-Instabilität, welche zu Filmdickenunterschieden entlang des Randes mit der transversalen Wellenlänge λ_{fla} führt. Hierbei gilt $\lambda_{fla} \sim \lambda_{KH}$ und somit

$$\lambda_{fla} \sim \frac{\sigma}{\rho_a v^2} \quad . \quad (2.6)$$

Für den Einsatzzeitpunkt τ_{fla} der transversalen Instabilität ergibt sich

$$\tau_{fla} \sim \frac{\sigma}{\rho_a v^3} \quad . \quad (2.7)$$

Die Herleitung der Abhängigkeiten λ_{fla} und τ_{fla} ist detailliert in den Publikationen [10] und [33] beschrieben. In Abbildung 2.8 werden die Zusammenhänge aus Gleichung 2.6 und Gleichung 2.7 mit experimentell ermittelten Werten verglichen.

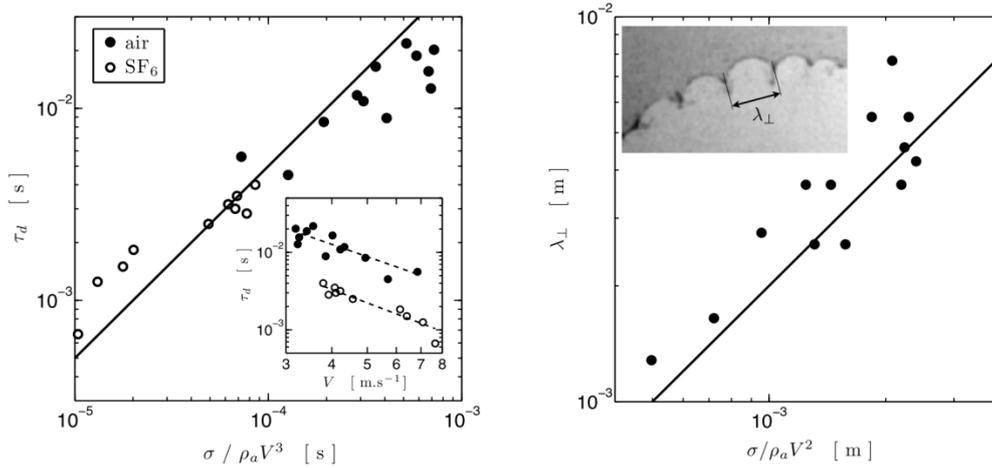


Abbildung 2.8: Vergleich zwischen experimentellen Daten reißender Seifenfilme und dem Modell von Lhuissier et al. (Gl. 2.6 und 2.7) in verschiedenen umgebenden Medien (Luft und Schwefelhexafluorid SF_6). Sowohl die Einsatzzeitpunkte $\tau_d = \tau_{fla}$ als auch die ermittelten Wellenlängen $\lambda_{\perp} = \lambda_{fla}$ bestätigen das Modell. Es gilt $V = v$. Die Grafiken sind entnommen aus [33].

Für die Filamentierung von dünnen sphärischen Filmen (z. B. Blasen) mit dem Radius R entwickelten Lhuissier und Villermaux ebenfalls ein Modell [15, 45]. Hierbei initiiert die Zentrifugalbeschleunigung $a_{ZF} = v^2/R$ ebenfalls eine Rayleigh-Taylor-Instabilität. Die Wellenlänge dieser transversalen Instabilität des Randes skaliert mit

$$\lambda_{gek} \sim \sqrt{\frac{\sigma}{\rho a_{ZF}}} \sim \sqrt{R\delta} \quad . \quad (2.8)$$

Die Einsatzzeit der Instabilität folgt nachstehendem Zusammenhang:

$$\tau_{gek} \sim \left(\frac{\sigma}{\rho a_{ZF}^3} \right)^{1/4} \sim \sqrt{\frac{\rho (R\delta)^{3/2}}{\sigma}} . \quad (2.9)$$

Diese Zusammenhänge wurden von Lhuissier et al. in der Publikation „Bursting bubble aerosols“ experimentell bestätigt [15,45].

2.3 Experimentelle Durchführung und verwendeter Flüssigkristall

2.3.1 Verwendeter Flüssigkristall

Zur Untersuchung der Reißdynamik flüssigkristalliner Blasen wurde das flüssigkristalline Material 4-cyano-4'-octylbiphenyl (8CB) verwendet, siehe Abbildung 2.9. Hierbei handelt es sich um den gleichen Flüssigkristall, der bereits in früheren Arbeiten zu dünnen flüssigkristallinen Filmen [9, 35, 36, 39, 46–48] und zur Untersuchung flüssigkristalliner Plateaugrenzen eingesetzt wurde. Das Material wurde kommerziell bei der SYNTHON Chemicals GmbH erworben. Der Flüssigkristall besitzt eine Reinheit von mindestens 99,5 %. Die Phasensequenz und die Strukturformel sind in Abbildung 2.9 dargestellt.

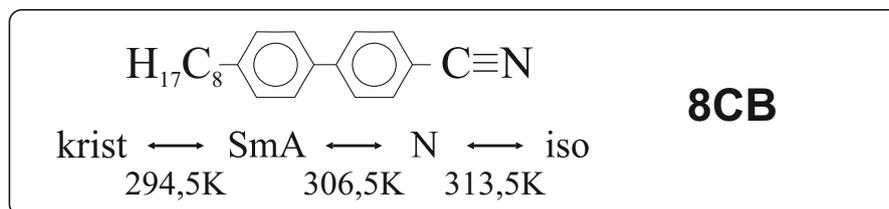


Abbildung 2.9: Strukturformel und Phasensequenz des Flüssigkristalls 4-cyano-4'-octylbiphenyl (8CB). Dieser Flüssigkristall ist ein Standardmaterial, das in zahlreichen wissenschaftlichen Publikationen verwendet wurde und von dem ein Großteil der Materialparameter gut bekannt ist.

2.3.2 Experimenteller Aufbau

Die Experimente mit dem Flüssigkristall 8CB wurden bei Raumtemperatur in der SmA-Phase durchgeführt. Um den Einfluss der Luftkonvektion zu verringern, wurden die smektischen Blasen in einer Plexiglas-Box präpariert. In der Box befand sich eine Kanüle mit 2 mm Außendurchmesser und 1 mm Innendurchmesser. Zur Präparation wurde die Kanüle mit einer kleinen Menge Flüssigkristall am oberen Ende verschlossen und anschließend wurde der sich bildende dünne Film vorsichtig mit Hilfe einer Spritze aufgeblasen. Diese Methode zur Erzeugung smektischer Blasen wurde erstmals von Stanarijus et al. [49, 50] beschrieben. Zur Realisierung dieses Vorgangs wurde die Spritze auf einem Lineartisch montiert und manuell bedient. Zum Auslösen des Reißvorgangs wurde der sphärische Film mit einer dünnen Kapillare in der oberen Blasenhälfte angestochen. Der Versuchsaufbau ist in Abbildung 2.10 schematisch dargestellt.

Die flüssigkristallinen Blasen wurden bis zu einem Radius R von etwa 7 mm aufgeblasen und anschließend angestochen. Die Beobachtung der Blasen erfolgte in Transmission mit einer Canon EOS-550D-Digitalkamera und einer Hochgeschwindigkeitskamera. In Richtung der EOS-Kamera wurde die Blase mit parallelem monochromatischem Licht

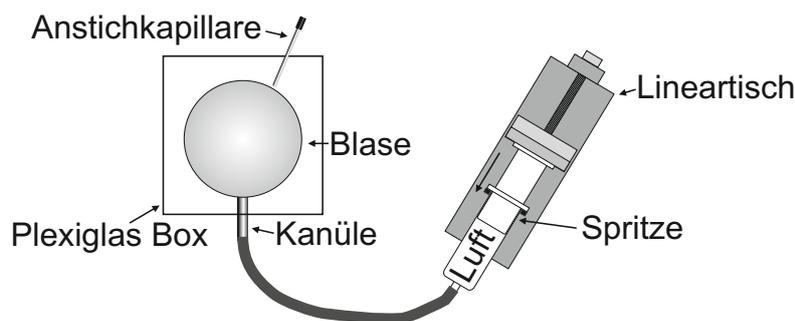


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Erzeugung flüssigkristalliner Blasen auf einer Kanüle. Der Reißvorgang wird durch Anstechen mit einer dünnen Kapillare ausgelöst.

(Wellenlänge: 535 nm) beleuchtet. Die Beleuchtung der Hochgeschwindigkeitsaufnahmen erfolgte mit einer weißen LED. Die Anordnung der Beleuchtung und der Kameras ist in Abbildung 2.11 dargestellt. Vor dem Anstechen wurde zunächst ein Bild der Blase im Rohdatenformat (RAW image) mit der EOS-Kamera aufgenommen. Aus diesem Rohdatenbild und einem vor der Blasenpräparation aufgenommenen Hintergrundbild (ohne Blase, ebenfalls Rohdatenformat) wurde die Filmdicke der smektischen Blase bestimmt. Das genaue Vorgehen zur Filmdickenbestimmung ist im später folgenden Abschnitt 2.3.3 erklärt. Die typische Filmdicke der Blasen lag im Bereich zwischen 10 und 100 nm. Diese Filmdicken liegen deutlich unter dem von Müller et al. [35–37] untersuchten Dickenbereich.

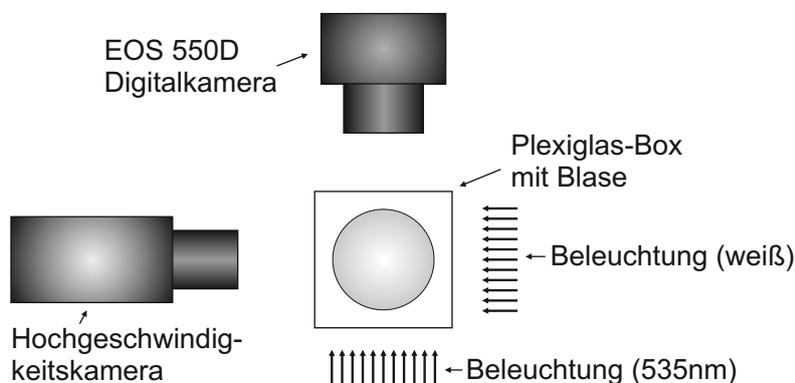


Abbildung 2.11: Anordnung der Beleuchtung, der Hochgeschwindigkeitskamera und der EOS-Digitalkamera. Zur Abbildung der Blasen wurden an den Kameras Makroobjektive verwendet.

Im Gegensatz zu Seifenblasen, zum Beispiel untersucht in [10, 15], verhindert der Schichtaufbau in Blasen aus smektischen Flüssigkristallen die Drainage und das spontane Reißen. Somit muss der Reißvorgang bei flüssigkristallinen Filmen und Blasen ausgelöst werden. In unseren Untersuchungen wurde der Reißvorgang durch das Anstechen mit einer dünnen Kapillare initiiert. Der anschließende Reißprozess wurde entweder mit

einer Shimadzu HPV-2 (Auflösung: 312x260 Pixel; Bildrate: bis 1 Million Bilder pro Sekunde (fps)) oder mit einer Phantom V710 Hochgeschwindigkeitskamera (Auflösung: maximal 1280x800 Pixel; Bildrate: bis 685 kfps bei reduzierter Auflösung) aufgenommen. Da die Auflösung beider Kameramodelle bei den benötigten Bildraten von ca. 100 kfps limitiert ist, wurde das Beobachtungsfeld eingegrenzt, so dass nur ein Ausschnitt der Blasenfläche beobachtet wird, siehe Abbildung 2.12. Die so erzielte Auflösung betrug $22 \mu\text{m}$ pro Pixel.

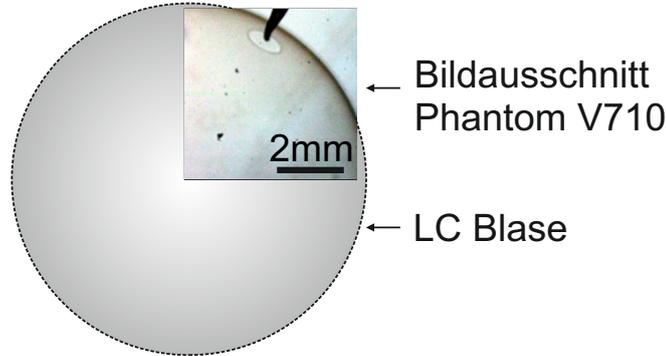


Abbildung 2.12: Um eine ausreichende räumliche und zeitliche Auflösung zu erhalten, wurde nur ein Ausschnitt der Blase während des Reißens beobachtet. Der sichtbare Bildausschnitt ist hier für die Phantom V710 Hochgeschwindigkeitskamera dargestellt.

2.3.3 Filmdickenbestimmung

Die Filmdicke der flüssigkristallinen Blasen vor dem Reißen wurde durch Analyse der Transmission von monochromatischem, parallelem Licht durch die Blase bestimmt. Da die Transmission vom Einfallswinkel θ_a zwischen dem eingestrahlt Licht und der Filmoberfläche abhängt, ergibt sich für jede Filmdicke δ ein charakteristisches Interferenzmuster.

Nach Stannarius et al. [50] berechnet sich die Transmission durch einen gekrümmten smektischen Film für den senkrecht zur Einfallsebene polarisierten Anteil des Lichtes nach

$$T_{\perp} = \frac{1}{1 + 4\rho_{\perp}^2 / (1 - \rho_{\perp}^2)^2 \sin^2(2\pi n_o \delta \cos \theta_i / \lambda_{Li})} \quad \text{mit} \quad \rho_{\perp} = \frac{\sin(\theta_a - \theta_i)}{\sin(\theta_a + \theta_i)} \quad (2.10)$$

und für den parallel zur Einfallsebene polarisierten Teil nach

$$T_{\parallel} = \frac{1}{1 + 4\rho_{\parallel}^2 / (1 - \rho_{\parallel}^2)^2 \sin^2(2\pi n_1 \delta \cos \theta_i / \lambda_{Li})} \quad \text{mit} \quad \rho_{\parallel} = \frac{\tan(\theta_a - \theta_i)}{\tan(\theta_a + \theta_i)}. \quad (2.11)$$

Hier ist λ_{Li} die Wellenlänge des eingestrahlt Lichtes, θ_i der Winkel des gebrochenen Strahls, n_o der ordentliche Brechungsindex und n_1 der effektive Brechungsindex. Für den effektiven Brechungsindex gilt

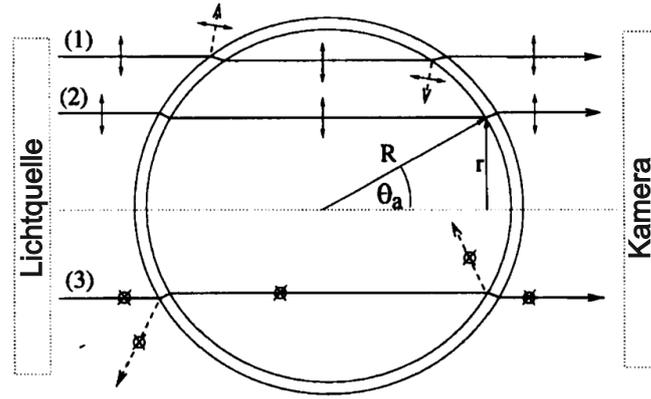


Abbildung 2.13: Lichttransmission durch eine Blase: Die Strahlen (1) und (2) sind in Richtung der Einfallsebene polarisiert, der Strahl (3) ist senkrecht zur Einfallsebene polarisiert. Die Filmdicke der Blase ist überproportional vergrößert dargestellt [50].

$$n_1 = \sqrt{n_o^2 + \left(1 - \frac{n_o^2}{n_e^2}\right) \frac{r^2}{R^2}} \quad (2.12)$$

mit dem außerordentlichem Brechungsindex n_e .

In einer sphärischen Blase hängt der Einfallswinkel θ_a vom Blasenradius R und dem Abstand r ab, siehe Abbildung 2.13. Für die Winkel θ_a und θ_i gilt

$$\theta_a(r) = \arcsin\left(\frac{r}{R}\right), \quad \theta_{i\perp}(r) = \sqrt{1 - \left(\frac{r}{n_o R}\right)^2}, \quad \theta_{i\parallel}(r) = \sqrt{1 - \left(\frac{r}{n_1 R}\right)^2}. \quad (2.13)$$

Da in einer Blase die Membran zweimal (vorn und hinten) vom Lichtstrahl durchquert wird, ergibt sich für die Transmission T durch eine Blase mit homogener Filmdicke

$$T(r) = \frac{T_{\perp}^2(r) + T_{\parallel}^2(r)}{2}. \quad (2.14)$$

Zunächst wurde die Intensitätsverteilung der Beleuchtung I_0 mit der EOS-Digitalkamera aufgenommen. Anschließend erfolgte eine Aufnahme der Intensitätsverteilung mit Blase I ebenfalls mit der EOS-Digitalkamera. Aus diesen Bildern wurde die ortsabhängige Transmission $T = I/I_0$ bestimmt. Anschließend wurde die so ermittelte Transmission mit berechneten Transmissionsprofilen T nach Gl. 2.14 mit verschiedenen Filmdicken δ verglichen und so die Filmdicke δ der Blase bestimmt. Zur Veranschaulichung dieser Methode ist in Abbildung 2.14 ein Vergleich zwischen gemessener und berechneter Transmission einer Blase mit 22 nm Filmdicke dargestellt. Die Genauigkeit der beschriebenen Filmdickenbestimmung liegt bei ± 5 nm [50].

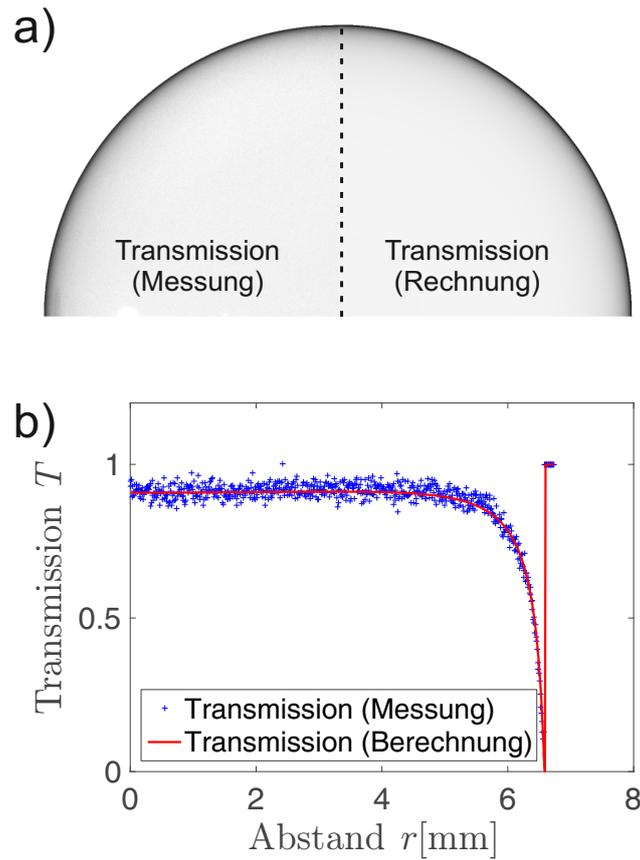


Abbildung 2.14: a) Vergleich zwischen gemessener Transmission (links) und berechneter Transmission (rechts) für eine Blase mit einer Filmdicke von 22 Nanometer. b) Vergleich zwischen der gemessenen Transmission im Abstand r vom Blasenmittelpunkt (blau) und dem berechneten Transmissionsprofil (rot) für die in a) dargestellte Blase. Die Berechnung gibt den Verlauf der Transmission sehr gut wieder.

2.3.4 Bildbearbeitung und Analyse

Nach dem Anstechen wird eine Bildsequenz des Reißvorganges mit der Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommen. Aus dieser Bildsequenz werden verschiedene Eigenschaften des Reißvorganges extrahiert. Zunächst erfolgt eine Kontrastanpassung der aufgenommenen Einzelbilder, um die Sichtbarkeit des sich öffnenden Loches zu verbessern. Anschließend wird aus der Bildfolge die Geschwindigkeit des Reißvorganges bestimmt. Hierzu wird eine orthographe Projektion der Einzelbilder mit Ursprung an der Einstichstelle aus den Originalbildern berechnet. In dieser Projektion wird durch Anpassen eines Kreises an die Grenze des sich öffnenden Randes der Öffnungsradius des Loches R_{Rand} bestimmt, siehe Abbildung 2.15 a). Die geometrischen Zusammenhänge zur Bestimmung des Öffnungswinkels sind in Abbildung 2.15 b) dargestellt. Der Öffnungswinkel φ errechnet sich aus

$$\varphi = \arccos \frac{R_{\text{Rand}}}{R}. \quad (2.15)$$

Hierbei wurde der Blasenradius R aus der vorhergehenden Aufnahme mit der EOS-Kamera ermittelt. Der vom sich öffnenden Rand zurückgelegte Weg $s(t)$ ergibt sich dann als $s(t) = R\varphi(t)$. Mit einer linearen Regression von $R\varphi(t)$ wird abschließend die Reißgeschwindigkeit v (Anstieg der Ausgleichsgeraden) und der exakte Startzeitpunkt des Reißens t_0 mit $\varphi(t_0) = 0$ (Schnittpunkt mit der Abszissenachse) bestimmt. Diese Methode ist angelehnt an die Vorgehensweise von Müller et al. [35–37]. Bildsequenzen des Reißverhaltens sphärischer flüssigkristalliner Filme (Flüssigkristall: 8CB) sind in Abbildung 2.16 dargestellt.

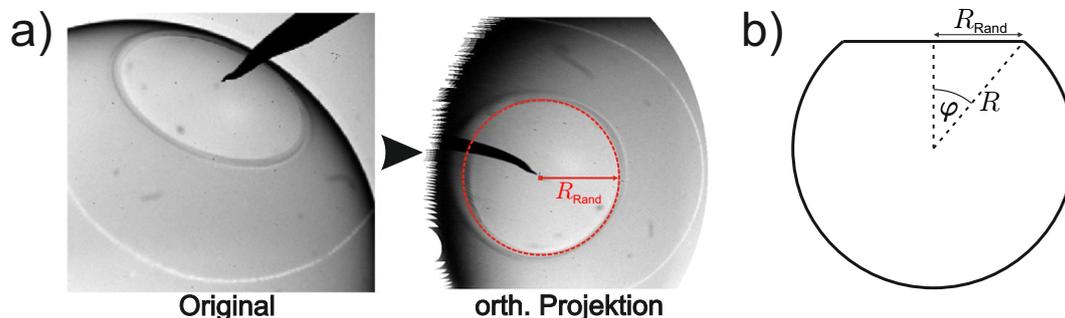


Abbildung 2.15: a) Veranschaulichung der durchgeführten orthografischen Projektion; Aus dem Originalbild (links) entsteht die dargestellte orthografische Projektion (rechts). In der Projektion ist gut die kreisrunde Öffnung des Films während des Reißens zu erkennen. b) Veranschaulichung des Blasenradius R , des Öffnungswinkels φ und des Öffnungsradius R_{Rand} , aus denen der zurückgelegte Weg φR des Randes bestimmt wird.

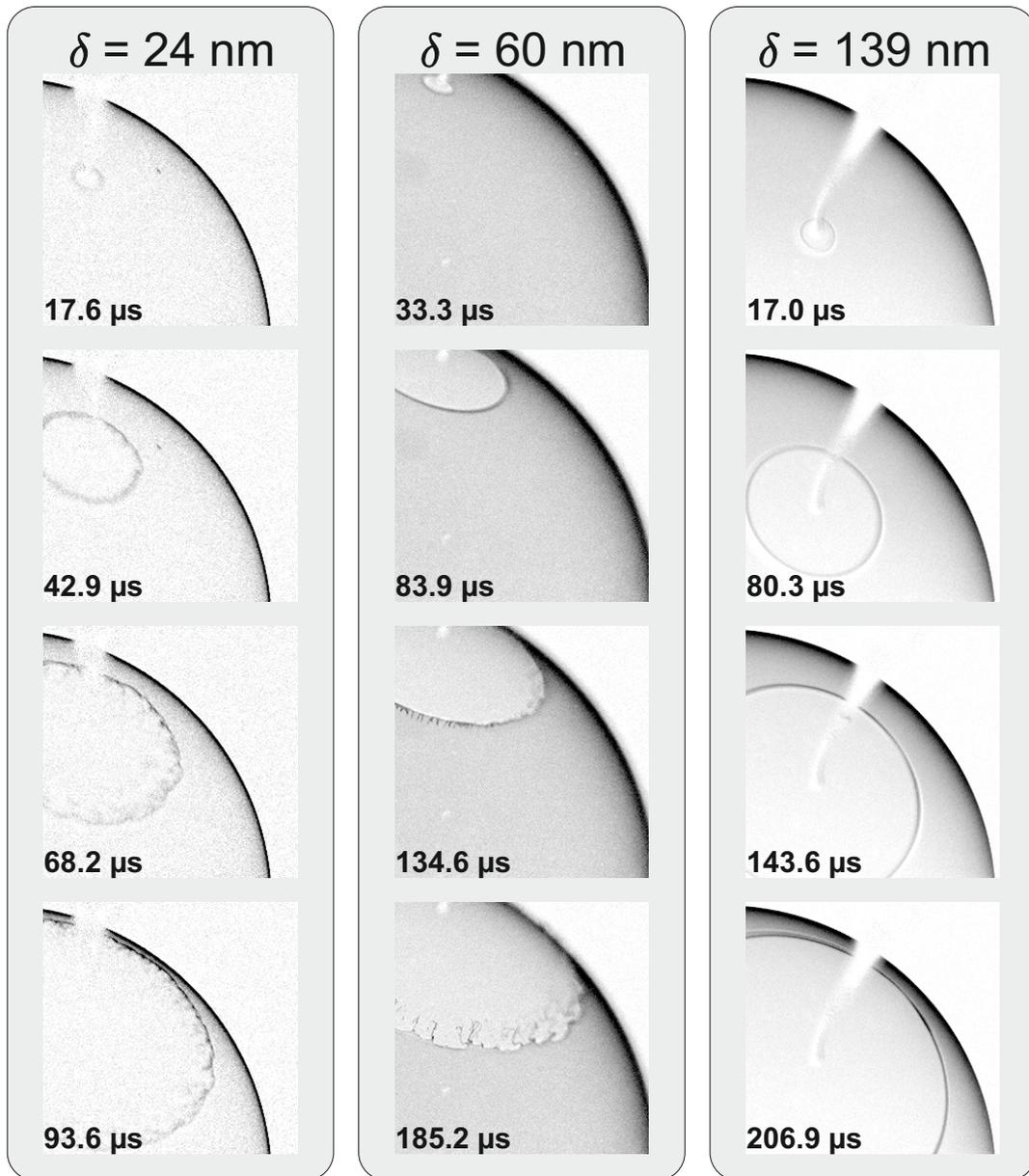


Abbildung 2.16: Kontrastverstärkte Reißsequenzen von flüssigkristallinen 8CB-Blasen verschiedener Filmdicke (24 nm, 60 nm, 139 nm von links nach rechts). Die dargestellten Ausschnitte haben eine Größe von 5,6 mm x 5,6 mm. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die Blasen mit größerer Filmdicke erwartungsgemäß langsamer öffnen. Bei den Blasen mit Filmdicken von 24 Nanometer und 60 Nanometer setzt im dargestellten Zeitraum die Instabilität des Randes ein. Der zurückgelegte Weg des Randes φR für die abgebildeten Reißprozesse ist in Abbildung 2.17 dargestellt. Durch die Hintergrundsubtraktion ist die zum Anstechen des Films benutzte Spitze auf den Bildern als Phantom sichtbar. Zeitlupenaufnahmen der dargestellten Reißprozesse befinden sich auf der beiliegenden DVD.

2.4 Ergebnisse

2.4.1 Reißgeschwindigkeit dünner 8CB-Filme

Die Reißgeschwindigkeit dünner 8CB-Filme wurde an über 30 Blasen bei Raumtemperatur untersucht. Die Blasen besaßen eine Filmdicke zwischen 10 und 300 Nanometer (3 bis 100 Molekülschichten). In Abbildung 2.16 sind Bildsequenzen des Reißverhaltens sphärischer smektischer Filme (8CB) verschiedener Filmdicke exemplarisch dargestellt. Die dargestellten Zeiten $t - t_0$ sind um den Anstichzeitpunkt t_0 , wie in Abschnitt 2.3.4 beschrieben, korrigiert. Direkt nach dem Anstechen bewegt sich der öffnende Filmrand mit konstanter Reißgeschwindigkeit v und sie bleibt über den gesamten beobachteten Reißvorgang gleich, siehe Abbildung 2.17. Mit der im Experiment erzielten räumlichen und zeitlichen Auflösung ist es nicht möglich, eine vorangehende Beschleunigungsphase zu detektieren. Dies war anhand der theoretischen Modelle und experimentellen Erfahrungen für niederviskose Flüssigkeiten zu erwarten, siehe 2.2.1. Nimmt man eine Beschleunigungsphase der Länge $t_{\text{Beschl}} \approx \delta/v$ an, ergibt sich eine Zeit von wenigen Nanosekunden, die mit dem verwendeten Aufbau nicht auflösbar ist.

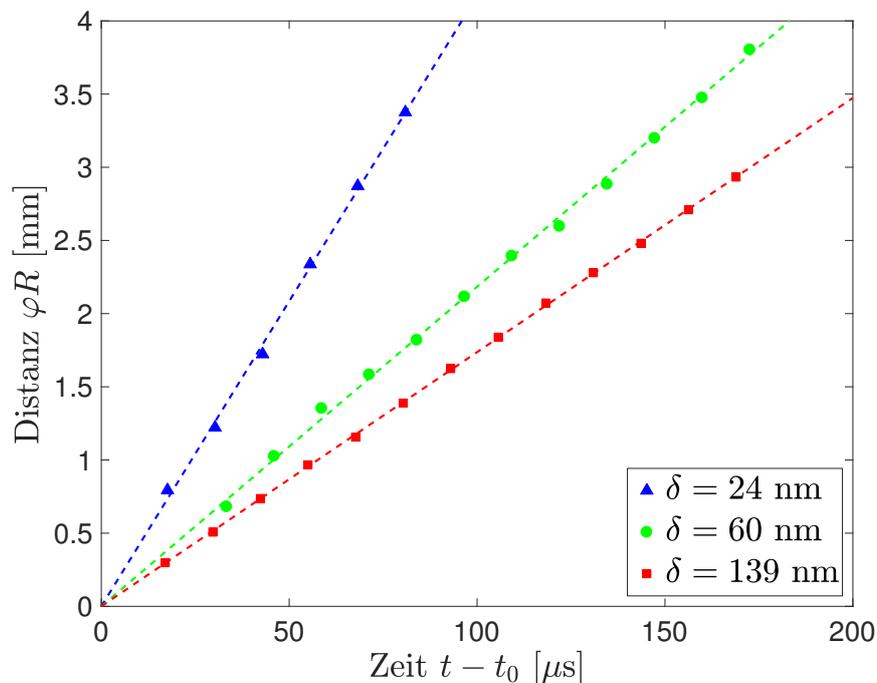


Abbildung 2.17: Zurückgelegte Distanz des Randes φR in Abhängigkeit von der um den Anstichzeitpunkt korrigierten Zeit $t - t_0$ für die in Abbildung 2.16 dargestellten Blasen verschiedener Filmdicke. Die Reißgeschwindigkeit wird durch eine lineare Regression (gestrichelte Linien) der Datenpunkte bestimmt. Mit steigender Filmdicke nimmt die Reißgeschwindigkeit von $v_{24\text{nm}} \approx 42$ m/s über $v_{60\text{nm}} \approx 24$ m/s bis zu $v_{139\text{nm}} \approx 18$ m/s ab. Es ist keine Änderung der Reißgeschwindigkeit beim Einsetzen der Randinstabilität sichtbar.

Die Abhängigkeit der Reißgeschwindigkeit $v(\delta)$ von der Filmdicke δ kann mit der

phänomenologischen Gleichung 2.3 beschrieben werden. Diese Gleichung wurde von McEntee und Mysels [21] eingeführt und entspricht den Geraden in Abbildung 2.18. Die ermittelten experimentellen Daten können am besten mit $\phi = 1$ approximiert werden. Die ermittelten Geschwindigkeiten $v(\delta)$ sind also deutlich kleiner als die theoretischen Vorhersagen $\phi = 2$ von Culick und Taylor, die in Abschnitt 2.2.1 beschrieben sind. Außerdem sind die Geschwindigkeiten auch kleiner als die früheren experimentellen Daten von Müller et al. [35–37] erwarten ließen. Müller et al. haben fast ausschließlich das Reißverhalten von flüssigkristallinen Blasen mit Filmdicken $\delta > 100$ nm analysiert und dort $\phi \approx 1,5$ erhalten. Unsere Daten zeigen eine systematische Abweichung von dem in [35, 37] veröffentlichten Zusammenhang $v(\delta)$ für 8CB-Blasen. Besonders deutlich wird die Abweichung für Blasen mit einer Filmdicke $\delta < 100$ nm ($\delta^{-1/2} > 3160$ m^{-1/2}), siehe Abbildung 2.18. Eine mögliche Ursache für den höheren Einfluss der Energiedissipation ist die zunehmende Bedeutung des umgebenden Mediums (Luft). Es ist anzumerken, dass die Abweichung qualitativ im Einklang mit Beobachtungen von McEntee und Mysels [21] an sehr dünnen Seifenfilmen („Newton’sche Schwarze Filme“) ist, die ebenfalls ein ϕ deutlich kleiner als 2 für vergleichbar dicke Seifenfilme ermittelten.

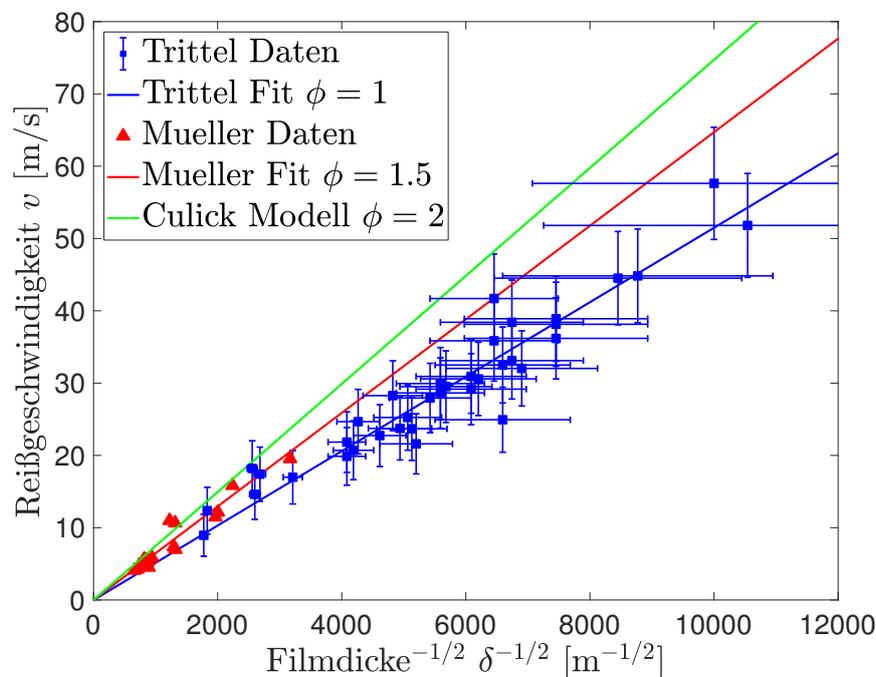


Abbildung 2.18: Vergleich der gemessenen experimentellen Daten (blau) mit den theoretischen Vorhersagen von Taylor [25] und Culick [26] (grüne durchgezogene Linie, Gl. 2.3 mit $\phi = 2$) und den Messergebnissen von Müller et al. [35–37] (rot). Die durchgezogene rote Linie stellt eine Interpolation der Messdaten von Müller et al. nach Gleichung 2.3 mit $\phi = 1,5$ dar. Die gemessenen Geschwindigkeiten liegen insbesondere für Filmdicken $\delta < 100$ nm deutlich unter der theoretischen Vorhersage und ebenfalls unter der Approximation von Müller et al. Die durchgezogene blaue Linie stellt eine Approximation der Messdaten nach Gleichung 2.3 mit $\phi = 1$ dar.

2.4.2 Filamentierung dünner 8CB-Filme

Während des Reißvorganges zeigen sehr dünne Filme ($\delta < 200$ nm) eine charakteristische Fragmentierung des sich öffnenden Randes, siehe Abbildung 2.16. Für dickere Filme wurde diese Instabilität des Randes nicht beobachtet. In diesen Fällen blieb der Rand im beobachteten Ausschnitt während des Reißvorganges glatt. Es kann nicht abschließend gesagt werden, ob Filme größerer Dicke zu einem späteren Zeitpunkt ebenfalls eine Fragmentierung zeigen. Hierzu wäre eine Untersuchung größerer Blasen oder zumindest der gesamten Blase während des Reißvorganges notwendig. In früheren Untersuchungen an Blasen aus 8CB beobachteten Müller et al. [35, 37] die Ausbildung von Fingerstrukturen bis zu einer Filmdicke von $\delta \approx 350$ nm. In der Dissertation von F. Müller [37] wurde die Fragmentierung des sich öffnenden Randes nicht abschließend quantifiziert und stellt den Ausgangspunkt für die im Rahmen dieser Arbeit gemachten Untersuchungen dar. Der Einsatzzeitpunkt der Modulation des Randes hängt von der Geschwindigkeit des sich öffnenden Randes und somit von der Filmdicke des smektischen Films ab. Es ist schwierig, den exakten Einsatzzeitpunkt anhand der räumlichen und zeitlichen Auflösung der aufgenommenen Videos zu bestimmen. Als Einsatzzeitpunkt τ wurde das Videobild mit den ersten detektierbaren (sichtbaren) Undulationen im Filmrand bestimmt. In Abbildung 2.19 ist der Einsatzzeitpunkt $\tau(\delta)$ in Abhängigkeit von der Filmdicke δ dargestellt. Es ist eindeutig, dass eine höhere Filmdicke das Einsetzen der Instabilität verzögert.

Vergleich mit dem Modell für die Filamentierung gekrümmter Filme

Die Filamentierung dünner Filme wurde von verschiedenen Wissenschaftlern [10, 15, 22, 33, 42, 45] untersucht, siehe Abschnitt 2.2.2. Für reißende stark gekrümmte Filme (z. B. Blasen) entwickelten Lhuissier und Villiermaux [15, 45] ein Modell, das die Destabilisierung quantifiziert beschreibt. In diesem Fall wirkt durch die Krümmung eine Zentrifugalbeschleunigung auf den sich öffnenden Rand, die eine Rayleigh-Taylor artige Destabilisierung des Randes erzeugt. Die Abhängigkeiten des Einsatzzeitpunktes $\tau_{gek}(\delta)$ und der Einsatzwellenlänge $\lambda_{gek}(\delta)$ werden mit Hilfe der Gleichung 2.9 und 2.8 beschrieben. Diese Zusammenhänge basieren auf groben Abschätzungen und somit ist „ \sim “ als „proportional zu“, oder als „von derselben Größenordnung“ zu interpretieren. Während die grün gestrichelte Linie in Abbildung 2.19 eine lineare Regression der Messwerte $\tau(\delta) = 2\mu\text{s}/\text{nm} \cdot \delta$ darstellt, ist die durchgezogene rote Linie eine Anpassung mit dem Exponent 3/4 entsprechend der Gleichung 2.9. Die Qualität der experimentellen Daten macht eine empirische Bestimmung des Exponenten leider unmöglich. Es ist jedoch offensichtlich, dass eine lineare Anpassung die Einsatzzeitpunkte insbesondere für kleine Filmdicken ($\delta < 30$ nm) unterrepräsentiert. Aus diesem Grund ist es angemessener, die Einsatzzeitpunkte mit dem Modell $\tau \propto \delta^{3/4}$ anzupassen, siehe Abbildung 2.19.

In Abbildung 2.20 ist die Abhängigkeit der Einsatzwellenlänge λ von der Filmdicke δ dargestellt. Auch in diesem Fall unterrepräsentiert eine lineare Anpassung die gemessenen Einsatzwellenlängen für kleine Filmdicken. Die nach dem Modell von Lhuissier und

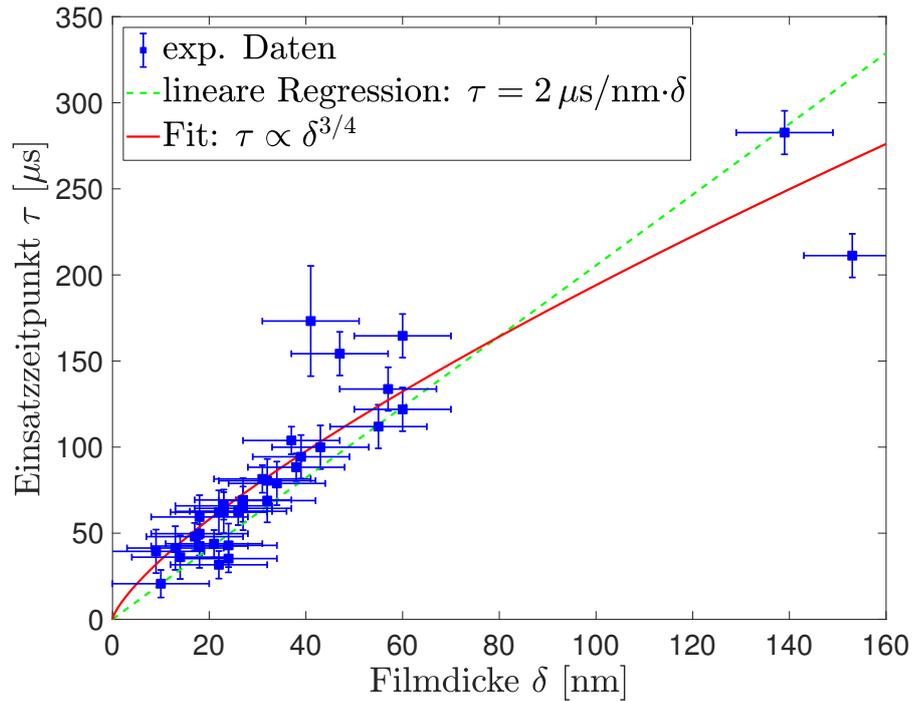


Abbildung 2.19: Einsatzzeitpunkt τ der lateralen Instabilität des Filmrandes in Abhängigkeit von der Filmdicke δ . Es ist deutlich sichtbar, dass sich die Einsatzzeit mit steigenden Filmdicken erhöht. Die grüne gestrichelte Linie repräsentiert einen linearen Zusammenhang $\tau = 2 \mu\text{s}/\text{nm} \cdot \delta$. Die durchgezogene rote Linie zeigt das Potenzgesetz $\tau \propto \delta^{3/4}$ nach Gleichung 2.9.

Villiermaux für reißen Blasen vorgeschlagene Wurzelabhängigkeit nach Gleichung 2.8 scheint geeigneter für die Approximation zu sein, liefert aber große quantitative Diskrepanzen. Nach diesem Modell sollte der Koeffizient λ^2/δ in der Größenordnung des Blasenradius $R \approx 7 \text{ mm}$ sein. Unsere Messdaten ergeben jedoch einen etwa zwei Größenordnungen größeren Koeffizienten von $\lambda^2/\delta \approx 70 \text{ cm}$. Die nach dem Modell vorhergesagte Einsatzwellenlänge sollte für die von uns untersuchten Filmdicken und Radien bei $\lambda_{gek} \approx 25 \mu\text{m}$ liegen. Die gemessenen Einsatzwellenlängen liegen jedoch deutlich darüber. Das gleiche Problem tritt für die in Abbildung 2.19 dargestellten Einsatzzeitpunkte der Instabilität auf. Der Koeffizient $\tau/\delta^{3/4}$ sollte in der Größenordnung von $R^{3/4} \rho^{1/2} / \sigma^{1/2} \approx 4,5 \text{ m}^{-3/4} \text{ s}$ liegen. Die Experimente am smektischen System zeigen jedoch einen Koeffizienten von $\tau/\delta^{3/4} \approx 35 \text{ m}^{-3/4} \text{ s}$, die im Experiment ermittelten Einsatzzeiten sind somit nahezu eine Größenordnung größer als vom Modell vorhergesagt.

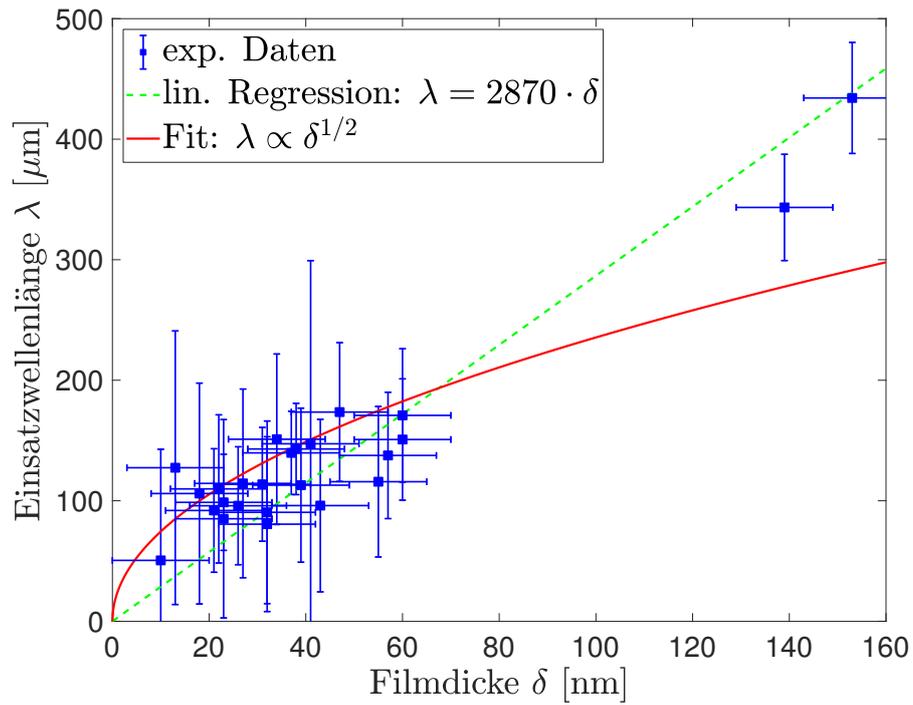


Abbildung 2.20: Die beobachtete Einsatzwellenlänge λ der lateralen Instabilität auf dem Rand steigt mit zunehmender Filmstärke an. Die gestrichelte grüne Linie ist eine lineare Anpassung, die insbesondere die Einsatzwellenlängen für dünne Filme unterrepräsentiert. Die durchgezogene rote Linie stellt eine quadratische Abhängigkeit nach Gleichung 2.8 dar.

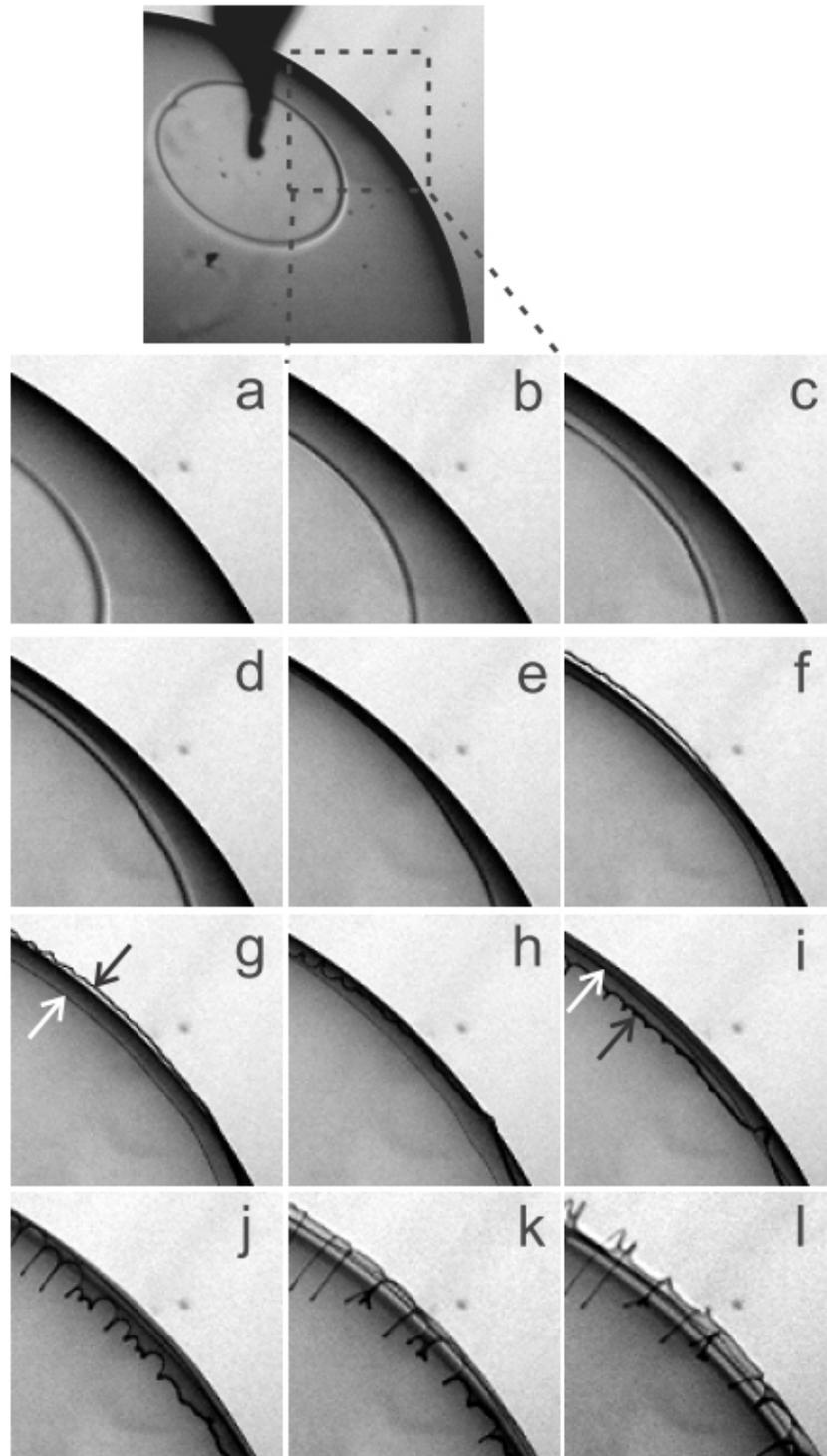


Abbildung 2.21: Verdeutlichung der Auf- und Abbewegung des sich öffnenden Randes einer reißenden Blase mit einer Filmdicke $\delta = 140$ nm; Die Bilder (a) bis (l) zeigen einen vergrößerten Ausschnitt des Randes bei einer Bildrate von 39500 Bildern pro Sekunde. Während der weiße Pfeil das Ende der sphärischen Filmfläche kennzeichnet, zeigt der schwarze Pfeil die flatternde Kante. Die Frequenz der Auf- und Abbewegung liegt bei etwa 7000 Hz. Ab Bild (f) tritt eine sichtbare Instabilität auf, die im Folgenden zur Fingerbildung führt. Die Bilder (a) bis (l) zeigen einen Ausschnitt von 2,8 mm x 2,8 mm. Die Grafik ist entnommen aus [11].

Vergleich mit dem Modell für die Filamentierung flacher Filme

Für Blasen mit Filmdicken $\delta > 50$ nm ist eindeutig eine Auf- und Abwärtsbewegung (wie das Flattern einer Fahne im Wind) des sich öffnenden Randes sichtbar, siehe Abbildung 2.21. Der sich öffnende Rand wird während des Reißens also auf und ab in radialer Richtung beschleunigt (senkrecht zur Filmoberfläche). Dieses Detail ist in Abbildung 2.21 in den Einzelbildern g (Filmrand oberhalb der Filmoberfläche) und i (Filmrand unterhalb der Filmoberfläche) mit weißen und schwarzen Pfeilen gekennzeichnet. Ein ähnlicher Effekt wurde bereits beim Reißen flacher Seifenfilme (siehe Abschnitt 2.2.2) von Lhuissier und Villermaux [10, 33] beobachtet. Lhuissier et al. ermittelten die beobachtete schnelle Auf- und Abbewegung des Filmrandes als die fundamentale physikalische Ursache für die Dekomposition des sich öffnenden Filmrandes. Die im Zuge dieser Arbeit untersuchten smektischen Filme sind deutlich dünner als die von Lhuissier et al. untersuchten gekrümmten Seifenfilme [15, 45]. Somit ist das Verhältnis zwischen Blasenradius und Filmdicke $R/\delta \approx 10^5$. Aus diesem Grund ist es sehr wahrscheinlich, dass für die Dekomposition des Randes ein ähnlicher Effekt wie bei flachen Seifenfilmen [10, 33] verantwortlich ist. Folgend werden die experimentellen Ergebnisse mit dem Modell von Lhuissier (siehe Abschnitt 2.2.2) für flache Seifenfilme verglichen.

Das Modell von Lhuissier et al. basiert auf Modellen zur Fragmentation von flüssigen Schichten, die sich im umgebenden Medium (meist Luft) ausbreiten und dabei in einzelne Tropfen zerfallen [30, 51]. Es kombiniert zwei verschiedene Effekte. Zunächst führt eine Scherinstabilität zum Flattern des sich öffnenden Randes (Auf- und Abwärtsbewegung des Randes senkrecht zur Filmebene). Während der Auf- und Abwärtsbewegung wird das Filmmaterial gegen das umgebende Medium beschleunigt und es entsteht eine Rayleigh-Taylor-Instabilität mit der transversalen Wellenlänge λ_{fla} entlang des sich öffnenden Randes. Der Einsatzzeitpunkt τ_{fla} ergibt sich nach Gleichung 2.7 und die Einsatzwellenlänge λ_{fla} nach Gleichung 2.6.

Gleichung 2.6 ergibt in Kombination mit Gleichung 2.3 eine lineare Abhängigkeit für $\lambda_{fla}(\delta)$ mit einem Anstieg von $\approx 2,87 \cdot 10^3$. Dies ist als gestrichelte grüne Linie in Abbildung 2.20 dargestellt. Für den Einsatzzeitpunkt würde sich demnach der Zusammenhang $\tau_{fla} \propto \delta^{3/2}$ ergeben. Die experimentellen Ergebnisse bestätigen diesen Zusammenhang jedoch nicht, siehe Abbildung 2.19.

Da insbesondere die Reißgeschwindigkeiten von Blasen mit einer Filmdicke $\delta > 100$ nm tendenziell oberhalb der Anpassung von Gleichung 2.3 mit $\phi = 1$ liegen, sind in den Abbildungen 2.22 und 2.23 die Abhängigkeiten $\tau(v)$ und $\lambda(v)$ dargestellt. Zusätzlich ist der Verlauf der angepassten Kurven $\tau \propto v^{-3}$ beziehungsweise $\lambda \propto v^{-2}$ in den Abbildungen durch rote durchgezogene Linien dargestellt. Die experimentellen Ergebnisse spiegeln den vom Modell nach Lhuissier et al. vorhergesagten Verlauf im Bereich der Fehlergrenzen nahezu wider.

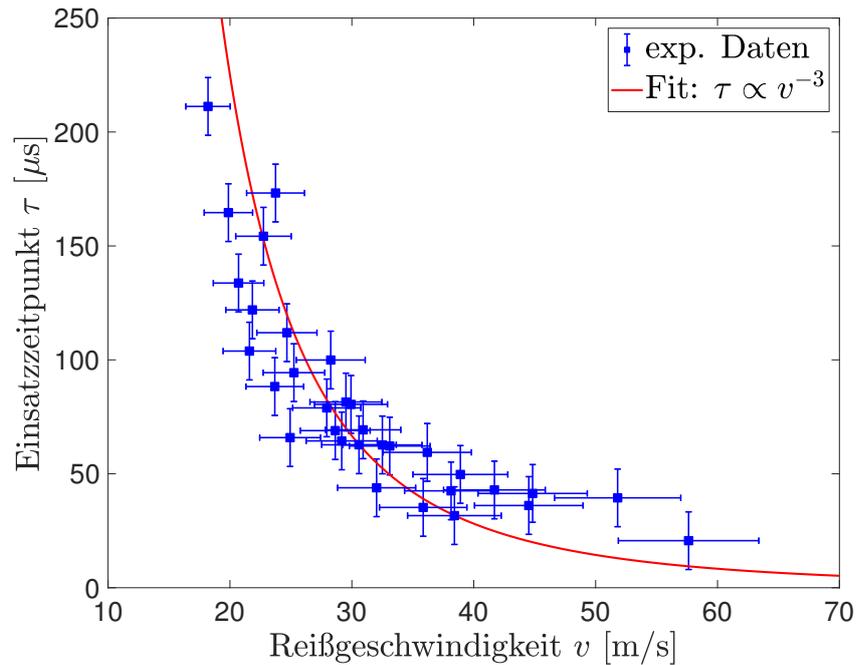


Abbildung 2.22: Abhängigkeit der Einsatzzeitpunkte τ von der Reißgeschwindigkeit v des flüssigkristallinen Films. Die durchgezogene Linie stellt eine Anpassung nach Gleichung 2.7 dar und gibt den Verlauf $\tau(v)$ recht gut wieder.

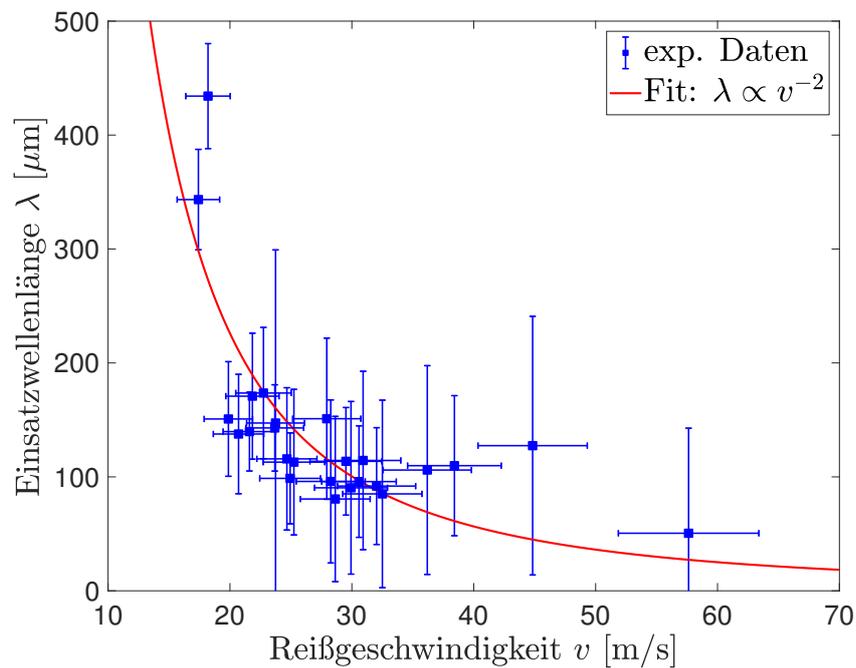


Abbildung 2.23: Abhängigkeit der Einsatzzeitwellenlänge λ von der Reißgeschwindigkeit v des flüssigkristallinen Films. Die durchgezogene Linie stellt eine Anpassung nach Gleichung 2.6 dar und gibt den Verlauf $\tau(v)$ gut wieder.

Nun werden die experimentellen Daten mit den Ergebnissen von Lhuissier et al. (Seifenfilme) verglichen. Die Abbildungen 2.24 und 2.25 stellen die Ergebnisse für Seifenfilme und für smektische Filme in gemeinsamen Diagrammen dar. Hierbei sind die smektischen Filme deutlich dünner als die Seifenfilme und der sich öffnende Rand besitzt somit eine deutlich höhere Geschwindigkeit. Trotzdem geben sowohl die gemessenen Einsatzzeitpunkte als auch die Einsatzwellenlängen den globalen Trend (Gleichungen 2.7 und 2.6) gut wieder. Abweichungen vom Skalenverhalten zeigen sich insbesondere für sehr dünne Filme (links in den Diagrammen). In diesem Bereich folgen weder die ermittelten Einsatzzeiten noch die Einsatzwellenlängen dem Trend. Diese Abweichungen in Abbildung 2.25 können durch ein Artefakt in der Auswertung teilweise erklärt werden. Für sehr dünne (schnelle) Filme setzt die Instabilität sehr schnell bei einem kleinen Öffnungsradius ein. In diesem Fall wird das entstehende Muster innerhalb kürzester Zeit stark gestreckt. Aus diesem Grund ist es wahrscheinlich, dass die für dünne Filme detektierten Wellenlängen größer als die eigentlichen Einsatzwellenlängen der Instabilität sind. Ähnliches gilt auch für die Einsatzzeitpunkte τ . Da der Kontrast bei dünnen Filmen sehr niedrig ist und die Einsatzwellenlänge der Instabilität in der Größenordnung der Ortsauflösung des Versuchsaufbaus liegt, ist der genaue Zeitpunkt schwer zu identifizieren. Dies kann zu einem tendenziell zu groß detektierten Wert für den Einsatzzeitpunkt τ der Instabilität bei sehr dünnen smektischen Filmen führen.

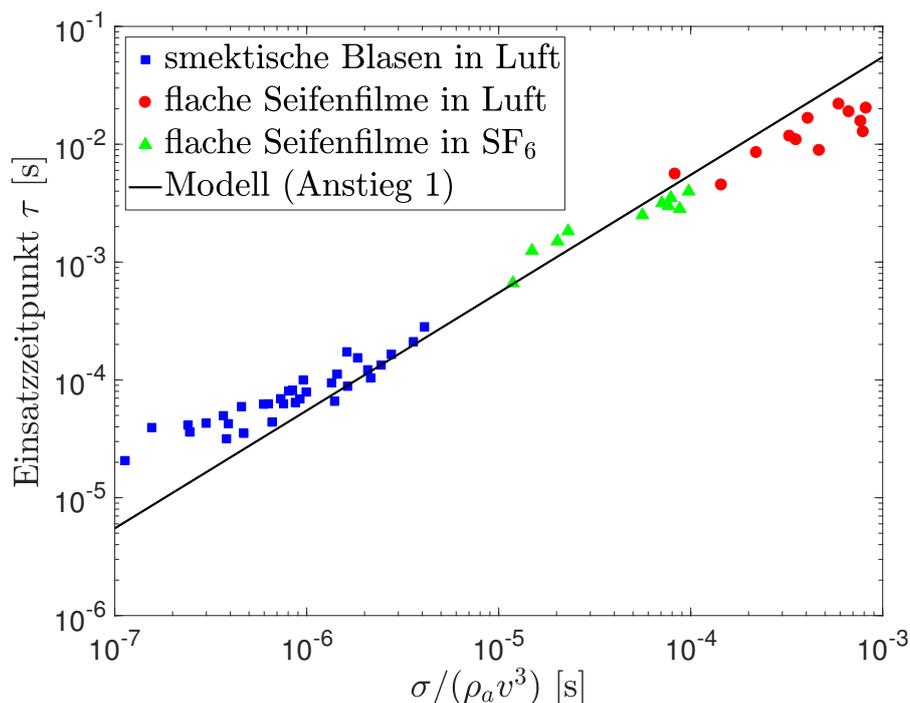


Abbildung 2.24: Vergleich der Einsatzzeitpunkte τ der lateralen Instabilität des sich öffnenden Randes von smektischen Filmen und Seifenfilmen. Die Daten für Seifenfilme wurden von H. Lhuissier und E. Villermaux zur Verfügung gestellt und sind in [10] veröffentlicht.

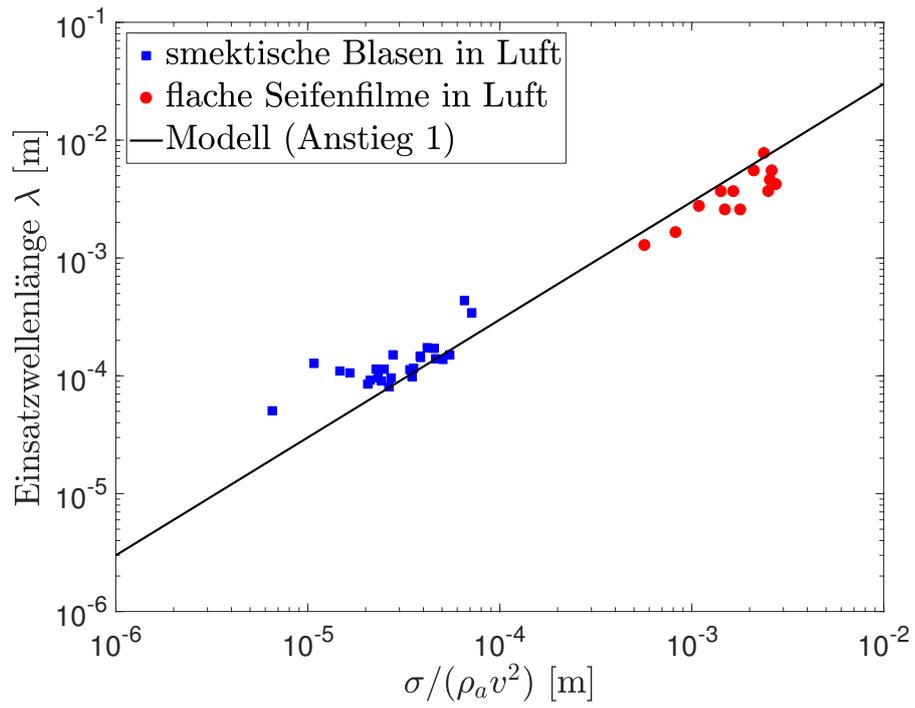


Abbildung 2.25: Vergleich der Einsatzwellenlängen λ der lateralen Instabilität des sich öffnenden Randes von smektischen Filmen und Seifenfilmen. Die Daten für Seifenfilme wurden von H. Lhuissier und E. Villermaux zur Verfügung gestellt und sind in [10] veröffentlicht.

2.5 Diskussion

Die Untersuchungen haben gezeigt, dass sich die Filamentierung der untersuchten smektischen Blasen besser mit einem Modell für flache Filme beschreiben lässt. Es gibt Argumente, die dieses Verhalten begründen. Der Hauptgrund liegt in der deutlich schnelleren Dynamik der von uns untersuchten smektischen Blasen und der daraus resultierenden hohen Frequenz der Auf- und Abwärtsbewegung des Filmrandes senkrecht zu Filmebene. Lhuissier und Villermaux beobachteten Frequenzen $\omega \approx \rho_a v^3 / \sigma$ zwischen $1 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ und $5 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ für die von ihnen untersuchten flachen Seifenfilme. Bei den smektischen Blasen mit einer Filmdicke $\delta > 100 \text{ nm}$ ergibt sich anhand der Auswertung der Videodaten eine deutlich höhere Frequenz der Auf- und Abwärtsbewegung von etwa $f = 7 \text{ kHz}$ ($\omega \approx 4,4 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$). Mit einer anhand der Videodaten (siehe Abbildung 2.21) abgeschätzten Amplitude a_{\perp} von etwa $100 \mu\text{m}$ kann eine maximale Beschleunigung $4\pi^2 f^2 a_{\perp}$ von $\approx 20000 g$ für die Bewegung des Randes senkrecht zur Filmebene abgeschätzt werden. Die maximale Geschwindigkeit senkrecht zur Filmebene $v_{\perp} = 2\pi f a_{\perp}$ beträgt in diesem Fall ($\delta = 140 \text{ nm}$) etwa 5 m/s und ist somit etwas kleiner als die Geschwindigkeit des Randes in der Filmebene $v \approx 14 \text{ m/s}$. Die Zentrifugalbeschleunigung, die sich aus dem Blasenradius R und der Geschwindigkeit v in der Filmebene ergibt, liegt hierbei nur in der Größenordnung von $3000 g$ und ist somit deutlich kleiner. Dies könnte eine Erklärung dafür sein, warum für die untersuchten smektischen Blasen das Flattern relevant für die Fragmentierung ist. Die höheren Beschleunigungen und damit auftretenden Kräfte beim Flattern des Randes dominieren hierbei über mögliche Zentrifugalkräfte. Vergleicht man die Gleichungen 2.9 (Einsatzzeitpunkt τ_{gek}) und 2.7 (Einsatzzeitpunkt τ_{fla}) miteinander, so sollte die Instabilität, die durch das Flattern verursacht wird, deutlich schneller einsetzen, als die durch Zentrifugalkräfte hervorgerufene Instabilität sofern Folgendes gilt:

$$\frac{\tau_{fla}}{\tau_{gek}} = \frac{\rho \delta^{3/4}}{\rho_a R^{3/4}} \ll 1. \quad (2.16)$$

Für smektische Blasen mit Submikrometer-Filmdicke ist diese Bedingung erfüllt. Trotzdem ist dieser Vergleich mit Vorsicht zu genießen, da die Relationen, wie vorher bereits erwähnt lediglich die Größenordnung der Einsatzzeitpunkte bestimmen. Sowohl die Messdaten an smektischen Blasen als auch an Seifenfilmen [10] folgen dem vorhergesagten Potenzgesetz, siehe Abbildung 2.24. Allerdings sind die gemessenen Einsatzzeitpunkte τ 50-mal größer als die vorhergesagten Einsatzzeitpunkte τ_{fla} .

2.6 Zusammenfassung

Es wurden Reißexperimente an smektischen Blasen mit geringer Filmdicke $\delta < 300$ nm durchgeführt. Wie bereits in früheren Arbeiten von Müller et al. [35–37] kann die Abhängigkeit der Reißgeschwindigkeit v von der Filmdicke δ mit der Relation $v \propto \delta^{-1/2}$ beschrieben werden. Da die Energie des sich zusammenziehenden Filmmaterials mit $v^2\delta$ skaliert, bedeutet dies, dass ein konstanter Anteil der freiwerdenden Oberflächenenergie in kinetische Energie des Randes transferiert wird. Allerdings ist der ermittelte Faktor $\phi_{\text{Exp}} = 1$ in Gleichung 2.3 nur halb so groß wie von der Theorie ($\phi_{\text{Theo}} = 2$) vorhergesagt [25, 26]. Somit wird nur etwa ein Viertel der freiwerdenden Oberflächenenergie in kinetische Energie des Randes umgewandelt und der Rest dissipiert. In früheren Arbeiten von Müller et al. [35–37] an smektischen Blasen mit größerer Filmdicke wurde ein etwas größerer Faktor von $\phi_{\text{Mueller}} \approx 1,5$ gefunden, was einer anteilig geringeren Energiedissipation entspricht. Eine mögliche Erklärung für den kleineren Faktor für dünnere smektische Filme ist, dass der kompakte Rand beim Reißen dickerer Filme mehr Energie konserviert als ein Rand, der während des Reißens durch Flattern in kleine Tropfen fragmentiert. Mit der vorliegenden räumlichen und zeitlichen Auflösung wurde jedoch keine Änderung der Reißgeschwindigkeit beim Einsetzen der Filamentierung beobachtet. Eine signifikante Verringerung des Faktors ϕ wurde bereits für das Reißen von sehr dünnen Seifenfilmen $\delta < 100$ nm von McEntee und Mysels [21] beobachtet. Allerdings begründeten die Autoren die Verringerung von ϕ mit dynamischen Veränderungen in der Tensidschicht und damit verbundenen Änderungen der Oberflächenspannung. Dieser Effekt kann für die hier untersuchten smektischen Blasen ausgeschlossen werden.

Ein Teil an Energie geht sicher durch die Filamentierung des sich öffnenden Randes und beim Zerfallen der Filamente in kleine Tropfen verloren. Ein weitaus größerer Teil an Energie kann durch die Auf- und Abwärtsbewegung des Randes beim Reißen verloren gehen, die einen nicht zu vernachlässigenden Luftwiderstand an der Filmkante erzeugt. Um diese Hypothese zu verifizieren, sind allerdings Experimente mit besserer zeitlicher und räumlicher Auflösung erforderlich. Einen weiteren Hinweis zur Richtigkeit dieser Hypothese könnten Experimente unter niedrigerem Druck oder in einem dichteren Medium (z. B. in Schwefelhexafluorid SF_6) geben. Smektische Blasen mit einer Filmdicke $\delta > 200$ nm zeigen im beobachteten Bereich kein Flattern und keine Filamentierung, was eine geringe Energiedissipation zur Folge hat.

Der Prozess der Filamentierung und somit der Dekomposition in einzelne kleine Tropfen kann dem Flattern des sich bewegenden Filmrandes zugewiesen werden. Lhuissier und Villermaux sagten bereits in ihrer Publikation „*Soap Films Burst Like Flapping Flags*“ [10], dass jeder dünne Tensidfilm, der in einer Nichtvakuum-Atmosphäre reißt, Flatterbewegungen ausführen wird, in deren Folge er in kleine Tropfen zerfällt. Es ist dabei entscheidend, dass die Ausdehnung des Films größer ist als die typische Distanz, in der sich das Flattern entwickelt. Die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit zeigen, dass die obige Aussage auch auf das Reißen von smektischen Filmen erweitert werden kann, in denen keine Tenside vorhanden sind. Die Auf- und Abwärtsbewegung des Randes senkrecht zur Filmebene ist in den Hochgeschwindigkeitsvideodaten, insbesondere bei Filmdicken um $\delta \approx 100$ nm, sehr gut sichtbar. Hierbei liegt die Frequenz der Bewe-

gung in der Region von einigen Kilohertz. Die Größenordnungen der ermittelten Einsatzzeitpunkte τ und Einsatzwellenlängen λ geben im Zusammenhang mit den Ergebnissen für Seifenfilme von Lhuissier und Villermaux den globalen Trend größtenteils gut wieder. Allerdings sollte insbesondere die Dekomposition von sehr dünnen smektischen Filmen (wenige Molekülschichten) mit höherer räumlicher und zeitlicher Auflösung untersucht werden, um den Ursprung der Abweichungen vom Trend (links in den Abbildungen 2.24 und 2.25) zu ergründen.

3 Mechanisch induzierter SmC-SmA-Übergang beim Reißen smektischer Filme

Das folgende Kapitel schließt unmittelbar an die Thematik des Vorhergehenden an und befasst sich mit einem induzierten smektisch C- zu smektisch A-Übergang beim Reißen freistehender flüssigkristalliner Blasen. Der Kippwinkel einer smektischen C-Phase kann durch verschiedenste äußere Kräfte beeinflusst werden. In der Nähe des SmA- zu SmC-Phasenübergangs reagiert er zum Beispiel sensibel auf Temperaturänderungen. Außerdem kann der Kippwinkel durch elektrische Felder oder in Elastomeren durch zwischen den Schichten auftretende Kräfte beeinflusst werden. Es wird gezeigt, dass Kapillarkräfte, die während des Reißens eines smektischen Filmes auftreten, einen Phasenübergang von smektisch C zu smektisch A auslösen können. Hierbei führt der induzierte Phasenübergang zu einer raschen Reduktion der Filmfläche bei gleichzeitiger Vergrößerung der Filmdicke. Der untersuchte Effekt findet in einigen Mikrosekunden statt und ist im untersuchten Filmdickenbereich unabhängig von der Umgebungstemperatur und der Filmdicke. Die in diesem Kapitel dargestellten wissenschaftlichen Ergebnisse sind in [52] publiziert. Alle notwendigen Variablen werden in diesem Kapitel neu definiert.

3.1 Einleitung

In der smektischen C-Phase ist der Kippwinkel Θ zwischen der Schichtnormalen und dem Direktor \hat{n} ein charakteristisches Merkmal. Während der Kippwinkel in Flüssigkristallen mit direktem Übergang von der smektischen C-Phase (SmC) in die nematische Phase (N) oder isotrope Phase (I) weitestgehend temperaturunabhängig ist, fällt er beim Übergang von einer smektischen C-Phase in die smektische A-Phase kontinuierlich auf Null. Ein Modell, das den SmA-SmC-Übergang charakterisiert, wurde von de Gennes vorgeschlagen [53, 54]. Der Phasenübergang kann mit Hilfe des komplexen Ordnungsparameters

$$\Psi = \Theta e^{(i\phi)} \quad (3.1)$$

beschrieben werden. Hierbei ist Θ die Größe und ϕ die azimutale Ausrichtung des Kippwinkels.

Für die smektische C-Phase sind Kippwinkel zwischen 10° und 30° typisch, können aber auch deutlich größer als 30° sein. Eine Änderung des Kippwinkels geht gewöhnlich mit einer Änderung der smektischen Schichtdicke δ_1 einher. Eine Ausnahme zu

diesem Verhalten liefern so genannte de Vries Materialien [55, 56]. Somit ist die smektische Schichtdicke in den meisten Fällen proportional zum Kosinus des Kippwinkels $\delta_1 \propto \cos \Theta$. Hierbei entspricht der Proportionalitätsfaktor in etwa einer Moleküllänge. In der Literatur finden sich verschiedene Methoden, den Kippwinkel zu beeinflussen. Die Bekannteste ist sicherlich die Manipulation durch elektrische Felder [57]. Hierbei ist die spontane Polarisation \vec{P} einer gekippten ferroelektrischen Phase an die Größe des Kippwinkels gekoppelt. Durch Anlegen eines Gleichspannungsfeldes in der Schichtebene an eine „bookshelf“ angeordnete chirale smektische A*-Phase kann ein von der Polung des elektrischen Feldes abhängiger Kippwinkel induziert werden. Bei Umpolung des elektrischen Feldes ändert der erzeugte Kippwinkel ebenfalls sein Vorzeichen. In einigen ferroelektrischen Flüssigkristallen kann ein Kippwinkel in der SmA*-Phase bis zu 20 K oberhalb des Phasenüberganges SmC*-SmA* induziert werden [58]. Außerdem ist es in der SmC*-Phase möglich, die Größe des Kippwinkels durch elektrische Felder zu beeinflussen.

Kramer und Finkelmann haben experimentell gezeigt, dass es mechanisch möglich ist, einen Kippwinkel in flüssigkristallinen Elastomeren zu erzeugen [59]. Die Induzierung eines Kippwinkels in einem homogenen SmA-Elastomer unter Scherung wurde durch Kleinwinkel-Röntgenstreuung nachgewiesen. Ein elektrisch induzierten Kippwinkel kann eine makroskopische Verformung von dünnen smektischen A-Elastomeren im Gleichspannungsfeld erzeugen [60]. Solange keine Reorganisation der smektischen Schichten durch Fluss möglich ist, muss eine Änderung des Kippwinkels die makroskopische Geometrie einer geordneten smektischen Probe beeinflussen. Dies gilt nicht nur für smektische Elastomere, sondern bei hinreichend schnellen Änderungen des Kippwinkels auch für smektische Flüssigkristalle. Im Prinzip ist es somit denkbar, dass eine Änderung der Geometrie einer smektischen Probe ebenfalls den Kippwinkel beeinflusst. Voraussetzung hierfür ist, dass die Geometrieänderung schneller vonstatten geht als eine Umordnung der Schichtstruktur.

Ribotta et al. untersuchten smektisches Material in einer Sandwichzelle unter Kompression und beobachteten ein optisches Signal, das sie einer induzierten SmC-Phase zuordneten [61]. Ein weiterer Hinweis für das Auftreten eines mechanisch induzierten SmC-SmA-Phasenübergangs findet man in der Doktorarbeit von C. Muzny [62].

Im nun folgenden Teil dieses Kapitels wird gezeigt, dass die Kopplung zwischen Kippwinkel und Probengeometrie genutzt werden kann, um einen SmC-SmA-Phasenübergang beim Reißen einer smektischen Blase zu erzeugen.

3.2 Bisherige Literatur

Es gibt wenige wissenschaftliche Quellen, die sich mit mechanisch induzierten Phasenübergängen in Flüssigkristallen befassen. Eine Publikation von Ribotta et al. [61] behandelt einen durch Kompression erzeugten SmA-SmC-Übergang. Außerdem ist in der Dissertation von Chris D. Muzny [62] ein Hinweis zu finden, dass ein SmC-SmA-Phasenübergang mechanisch initiiert werden kann. Die Erkenntnisse der zuvor genannten Publikationen werden im Folgenden kurz zusammengefasst.

Ribotta et al.

Ribotta et al. [61] nutzten für ihre Untersuchungen den Flüssigkristall p-n-heptyloxybenzyliden-p-n-heptylanilin (HOBHA), der einen Phasenübergang (SmC→SmA) bei 72 °C aufweist. Dieses Material wurde in einer Sandwichzelle durch Piezoaktoren dilatiert und komprimiert. Die Reaktion des Flüssigkristalls auf die mechanische Krafteinwirkung wurde mit Hilfe optischer Signale beobachtet. Eine schematische Darstellung der verwendeten Versuchsanordnung ist in Abbildung 3.1 a) dargestellt. Die Autoren fanden ein optisches Signal bei der Dilatation der Zelle, das sie auf eine Undulation der SmA-Schichten zurückführten. Ein weiteres Signal entstand beim Beginn der Kompression der Zelle. Dieses Signal wurde nur in der Nähe des Phasenübergangs ($T_c < T < (T_c + 1 \text{ K})$) bei hinreichend großen Spannungen V an den Aktoren beobachtet. Die Relaxationszeit τ des Signals und die Schwellspannung, ab der das Signal auftritt, ist temperaturabhängig, siehe Abbildung 3.1 b). Das Signal wird einem kurzzeitigen Übergang der Probe in die SmC-Phase zugeordnet. Eine Texturanalyse des Materials während der Dilatation und Kompression wurde nicht durchgeführt.

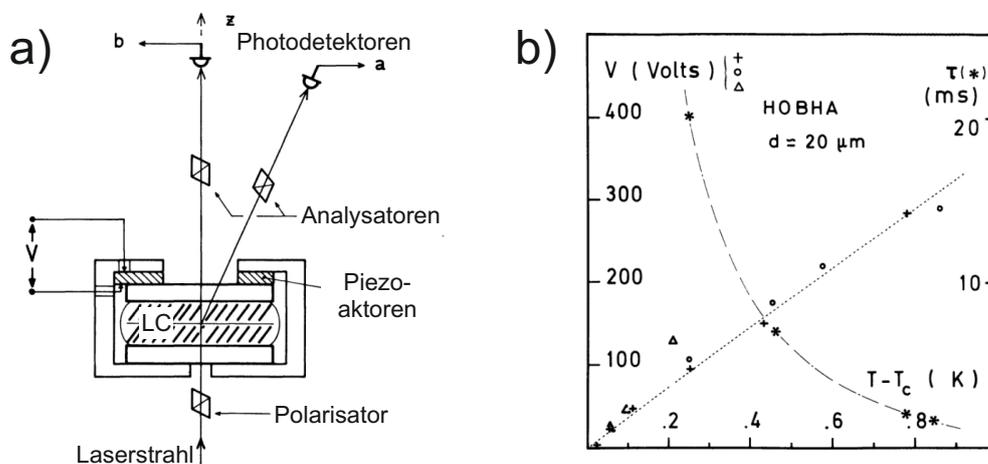


Abbildung 3.1: a) Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus von Ribotta et al.; Die Flüssigkristallprobe befindet sich in der SmA-Phase und wird mit Hilfe von Piezoaktoren dilatiert und komprimiert. Die Reaktion des Materials wird mit optischen Signalen (Laserstrahl und Photodetektoren) beobachtet. Das Originalbild entstammt aus [61]. b) Schwellspannung V und Relaxationszeit τ in Abhängigkeit der Temperatur $T - T_c$ [61].

Muzny

Zur Defekterzeugung in freistehenden SmC-Filmen präparierte Muzny zunächst einen halb-sphärischen Film über einem Loch, indem er einen Druckunterschied zwischen den beiden Filmoberflächen erzeugte. Durch das Öffnen eines Ventils wurde dieser Druckunterschied anschließend schnell ausgeglichen und der Film kehrte in seine ursprüngliche planare Form zurück. Dieser Vorgang erzeugt eine Vielzahl an Defekten in der c-Direktor Struktur, die unter gekreuzten Polarisatoren in Reflexion beobachtet wurden. Aus der Defektentstehung schloss der Autor indirekt, dass während des Filmkollapses ein kurzzeitiger Übergang ($t < 1/30$ s, Bildrate der verwendeten Kamera) in die SmA-Phase und anschließend ein erneuter Übergang zurück in die SmC-Phase stattfindet. Dieses Verhalten konnte auch weit unterhalb der Übergangstemperatur (SmC→SmA) beobachtet werden. Da Muzny nur an der anschließenden Defektdynamik interessiert war, wurde der beschriebene Vorgang durch ihn nicht im Detail untersucht.

3.3 Experimenteller Aufbau und verwendeter Flüssigkristall

3.3.1 Verwendeter Flüssigkristall

Für die im Folgenden vorgestellte Untersuchung eines mechanisch induzierten SmC-SmA-Übergangs wurde der bei der Syntho GmbH kommerziell produzierte Flüssigkristall 2-(4-n-Hexyloxyphenyl)-5-n-octyl-Pyrimidin (6PP8) genutzt. Phasensequenz und Strukturformel des Materials sind in Abbildung 3.2 dargestellt. Der Kippwinkel Θ des Materials in der smektischen C-Phase wurde nicht gemessen, liegt aber in vergleichbaren Materialien zwischen 20° und 30° [63].

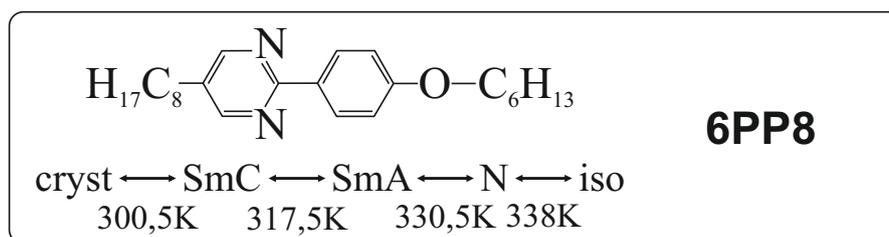


Abbildung 3.2: Strukturformel und Phasensequenz des Flüssigkristalls 2-(4-n-Hexyloxyphenyl)-5-n-octyl-Pyrimidin (6PP8).

3.3.2 Experimenteller Aufbau

Der in diesem Kapitel verwendete Aufbau ähnelt dem Aufbau aus Abschnitt 2.3.2. Jedoch wurden die smektischen Blasen in einer temperierten Kammer erzeugt. Die Temperatur dieser Kammer konnte mit einer Genauigkeit von $\pm 0,1$ K geregelt werden. Die Methode zur Blasenzeugung und zur Initialisierung des Reißvorganges entspricht der Beschreibung in Abschnitt 2.3.2. Die Filmdicke wurde ebenfalls mit der in Abschnitt 2.3.2 beschriebenen Methode bestimmt. Eine Skizze des Aufbaus ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Die Beobachtung der Blase während des Reißens erfolgte mit einer Phantom-V611-Hochgeschwindigkeitskamera bei bis zu 26000 Bildern pro Sekunde und einer Auflösung von $22,5 \mu\text{m}/\text{px}$ (Mikrometer pro Pixel). Zur Identifizierung der vorliegenden smektischen Phase wurden die Blasen mit blauem linear polarisiertem Licht (460 nm) beleuchtet. Hinter dem Beobachtungsfenster der Experimentkammer befand sich ein Analysator, um Texturen, die typisch für eine smektische C-Phase sind, auf der Blase sichtbar zu machen.

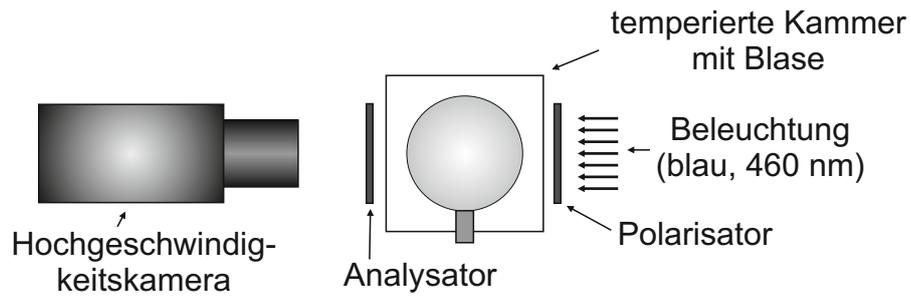


Abbildung 3.3: Schematische Seitenansicht des experimentellen Aufbaus, der zur Untersuchung des induzierten SmC-SmA-Übergangs beim Reißen einer smektischen Blase verwendet wurde. Die Initialisierung des Reißvorganges erfolgte mit einer dünnen Kapillare, die hier nicht dargestellt ist.

3.4 Ergebnisse

Nach der Präparation sind die smektischen Blasen homogen dick. Nur in der Nähe der Kapillare, auf der die Blase erzeugt wird, kann ein dickerer Filmbereich (Meniskus) vorhanden sein. Mit der verwendeten Methode zur Blasenherzeugung hat man leider keinen Einfluss auf die finale Filmdicke δ der Blase. In den hier vorgestellten Ergebnissen lag die Filmdicke der Blasen in der Größenordnung von $\delta \approx 100$ nm.

In der Experimentkammer tritt nach und während der Blasenpräparation eine zunächst ungewollte schwache thermische Konvektion der umgebenden Luft auf. Die Ursache dieser Luftströmung ist eine unvollständige Abdichtung der Experimentkammer am Durchgang für die Kapillare zur Blasenherzeugung. Einen Einfluss auf die Filmdicke hat diese Strömung nicht, und die Schichtstufen am unteren Teil der Blase bleiben horizontal. Dennoch bildet sich ein langsamer wirbelförmiger Fluss im oberen Teil der Blase aus, der den c-Direktor im Film umorientiert. Dies wird durch spiralförmige Muster auf der Blasenoberfläche deutlich, die bei der Beobachtung unter gekreuzten Polarisatoren sichtbar werden.

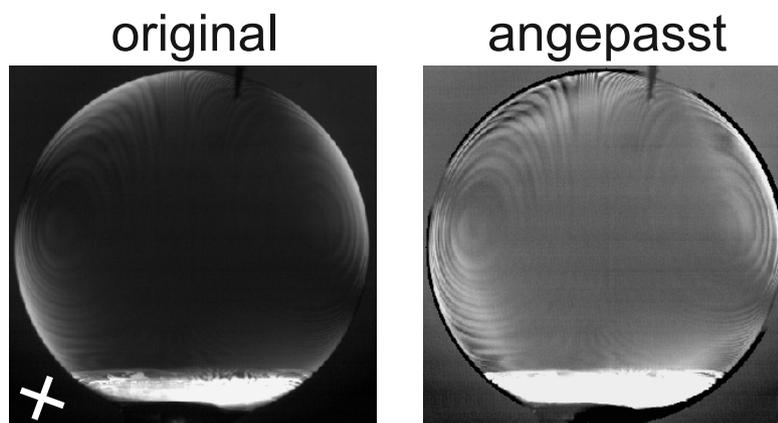


Abbildung 3.4: Durch die im Text beschriebene Anpassungsroutine werden die im Originalbild (links) kaum erkennbaren Muster im intensitätskorrigierten Bild (rechts) gut sichtbar. Das weiße Kreuz zeigt die Stellung der Polarisatoren. Der Blasendurchmesser beträgt 8,4 mm und die Filmdicke $\delta = 100$ nm. Am Fuß der Blase befindet sich ein dickerer Filmbereich (Meniskus).

Die optische Beobachtung des sphärischen Films und der auf ihm vorhandenen Texturmuster ist komplizierter als bei planaren Filmen. Schon in der smektischen A-Phase ändert die Krümmung des Films die Polarisation des transmittierten Lichtes. Dies führt zu 4 hellen Zonen am Rand der Blase. Hier wird das Licht aufgrund der Krümmung des Films besonders stark entpolarisiert, siehe Abbildung 3.4. Um die für die smektische C-Phase charakteristischen Muster besser sichtbar zu machen, wurde eine Intensitätskorrektur durchgeführt. Hierzu wurde die Intensität des Originalbildes um die berechnete Transmissionsintensität

$$I(r, \varphi) = I_0 \sin^2 \left[\frac{4\pi\delta n_o}{\lambda} \left(\sqrt{1 - \frac{r^2}{n_{ao}^2 R^2}} - \sqrt{1 - \frac{r^2}{n_o^2 R^2}} \right) \right] \sin^2 2\varphi \quad (3.2)$$

einer smektischen A-Blase mit Filmdicke δ und Blasenradius R korrigiert [52]. In einem polaren Koordinatensystem mit Ursprung im Blasenzentrum ist r der Abstand zum Zentrum und φ der Winkel bezüglich eines Polarisators. Es werden außerdem der Brechungsindex für ordentliche Strahlen ($n_o = 1,5$) und außerordentliche Strahlen ($n_{ao} = 1,63$) des Materials genutzt [64]. Zusätzlich wurde die Intensität des aufgenommenen Bildes noch um einen konstanten Wert korrigiert und das erhaltene Bild kontrastverstärkt. Durch die Anpassungen werden die durch die SmC-Phase hervorgerufenen Spiralmuster gut sichtbar, siehe Abbildung 3.4. Die Korrektur liefert Artefakte, die durch räumlich inhomogenes Streulicht entstehen. Diese Artefakte beeinflussen die Auswertung jedoch nicht.

Die c-Direktor-Textur ist in Abbildung 3.4 (rechts) eindeutig sichtbar. In den dunklen Bereichen ist der c-Direktor entlang und in den hellen Bereichen diagonal zu den Polarisatoren ausgerichtet. Die spiralförmigen Muster entstehen durch langsamen konvektiven Fluss im Film und dienen als Indikator für die SmC-Phase.

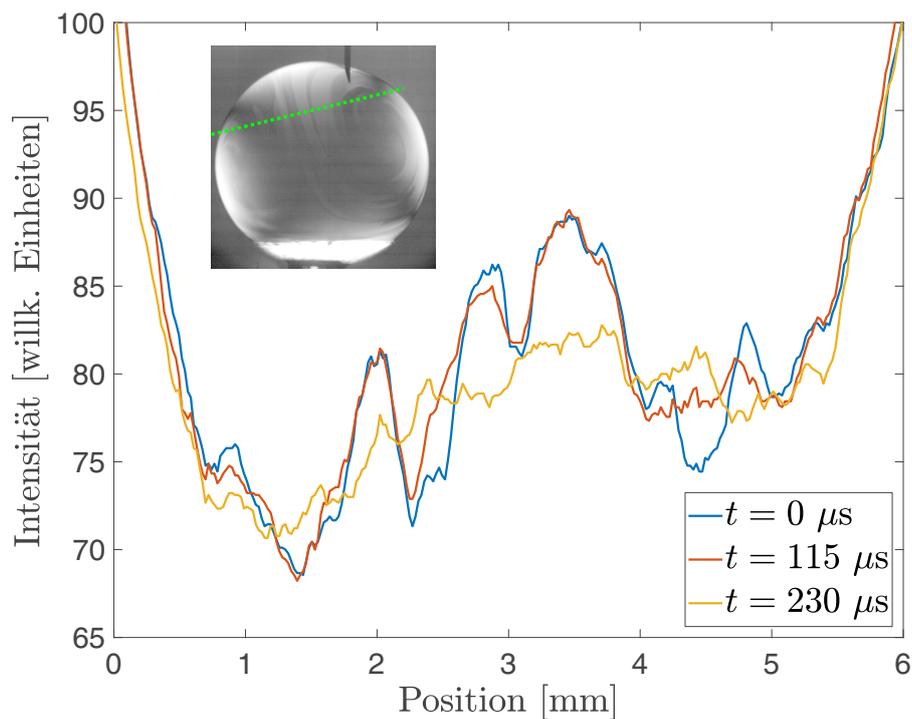


Abbildung 3.5: Intensitätsprofile entlang der grünen gestrichelten Linie (siehe Einsatz) für verschiedene Zeitpunkte während des Reißens. Die Minima und Maxima werden während des Reißens geglättet, da die Muster verschwinden. Mehrere Bilder des hier ausgewählten Reißvorganges sind in Abbildung 3.6 (links) dargestellt. Die Temperatur betrug 30°C und die Filmdicke $\delta = 70 \text{ nm}$.

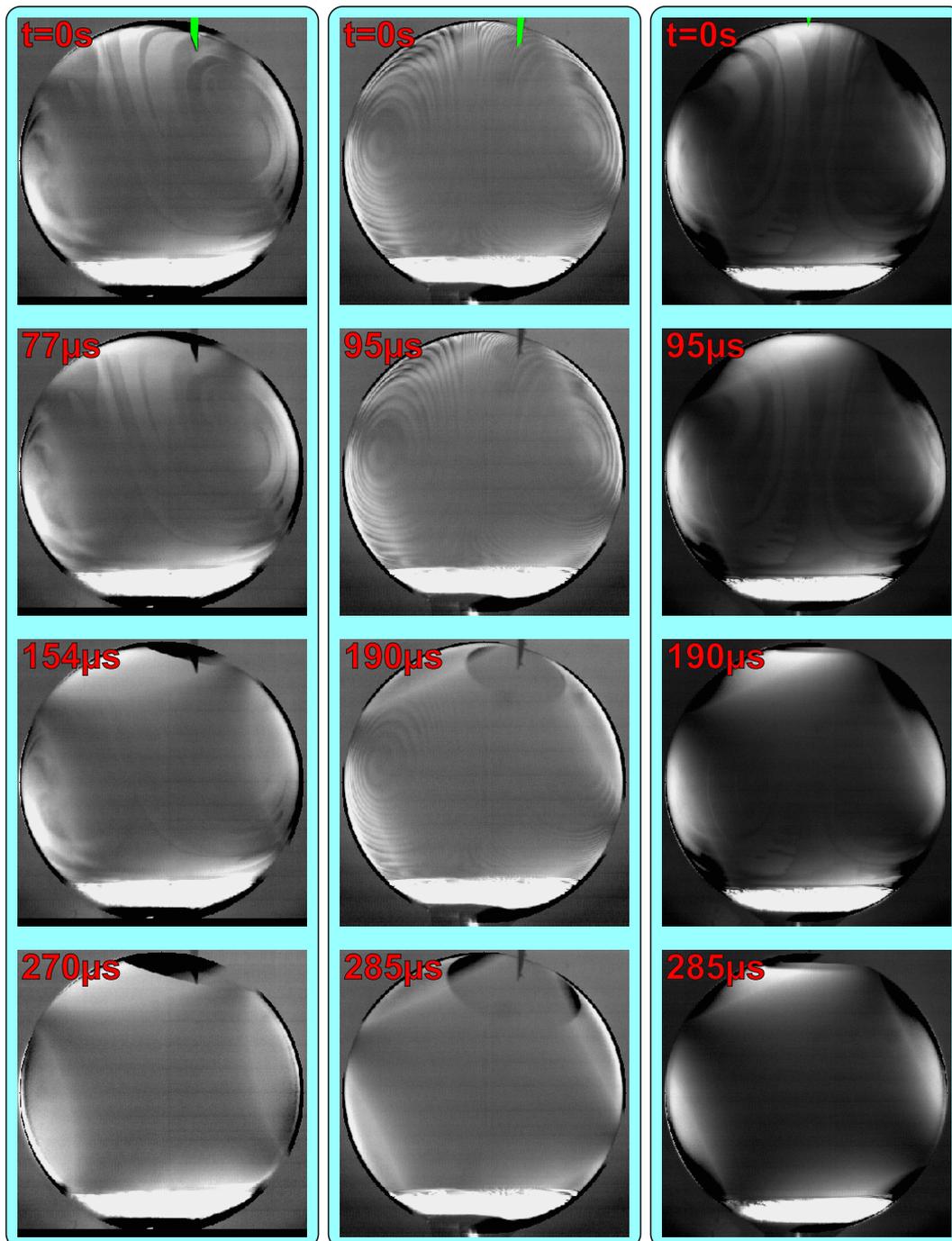


Abbildung 3.6: Transmissionsbilder von drei smektischen Blasen während des Reißens unter gekreuzten Polarisatoren. Die einzelnen Bilder wurden entsprechend der im Text angegebenen Methode angepasst. Das Reißen dieser Blasen fand bei 30 °C ($\delta = 70$ nm), 35 °C ($\delta = 100$ nm) und 40 °C ($\delta = 130$ nm) (von links nach rechts) statt. Bei jeder Temperatur verschwindet die Textur auf der Blase innerhalb von ca. 300 μs . Hierbei ist weder eine Temperaturabhängigkeit noch eine Filmdickenabhängigkeit erkennbar. Die dargestellten Blasen haben einen Durchmesser von 8,6 mm, 8,4 mm und 9,2 mm (von links nach rechts). Zeitlupenaufnahmen der dargestellten Reißprozesse befinden sich auf der beiliegenden DVD.

Nach der Initialisierung des Reißvorganges verschwindet die Textur in weniger als $300\ \mu\text{s}$, siehe Abbildung 3.5 und 3.6. In Abbildung 3.5 werden Transmissionsprofile (Originalbilder, nicht korrigiert) entlang einer exemplarischen Linie (gestrichelt, grün im Einsatz der Abbildung) zu verschiedenen Zeitpunkten verglichen. Die Minima und Maxima (bei $t = 0$) entstehen durch die c-Direktor-Textur. Nach $230\ \mu\text{s}$ ist die Modulation komplett verschwunden und die Transmissionskurve ist geglättet. Hierbei bleibt die Transmissionsintensität im Mittel konstant. Der finale Intensitätsverlauf liegt zwischen den Maxima und Minima der ursprünglichen Intensitätskurve ($t = 0$). Damit kann eine Überlagerung der Struktur durch erhöhte Lichtstreuung beim Reißen ausgeschlossen werden.

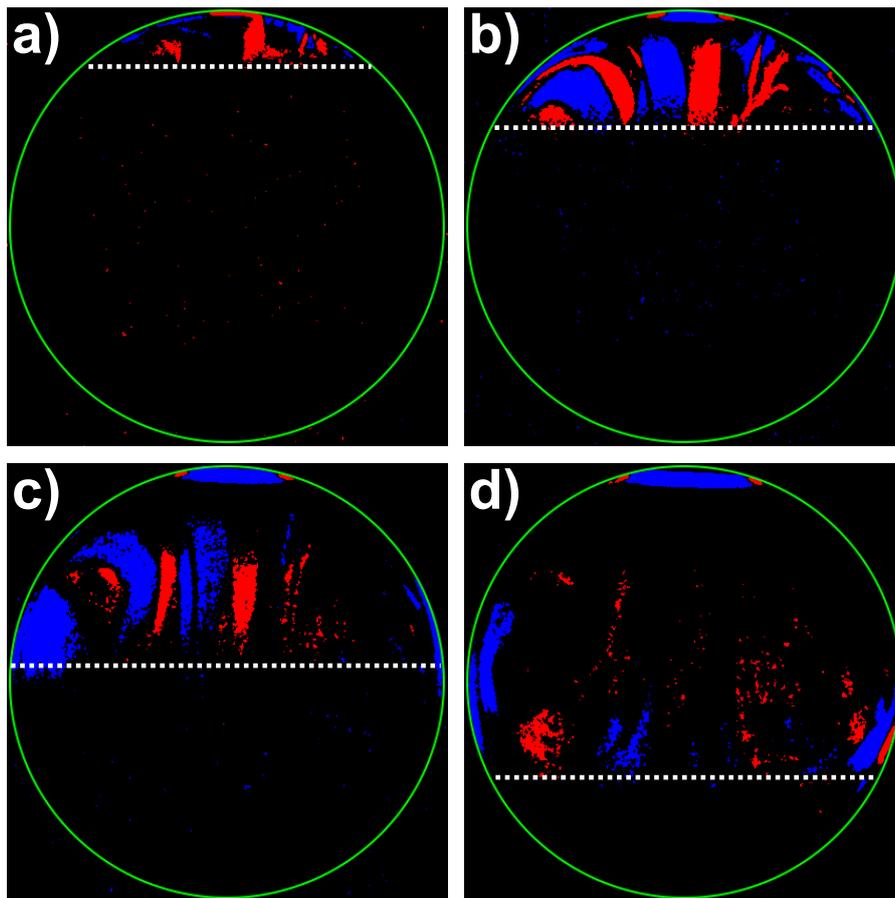


Abbildung 3.7: Differenzbilder der reißenden Blase aus Abbildung 3.6 (rechts, $T = 40^\circ\text{C}$, $R \approx 4,6\ \text{mm}$); a) zeigt die Differenz zwischen der Aufnahme bei $t = 0$ und der Aufnahme zum Zeitpunkt $t = \tau = 47,5\ \mu\text{s}$. b) zeigt die Differenz der Aufnahmen zu den Zeitpunkten $t = \tau$ und $t = 2\tau$; c) zeigt die Differenz der Aufnahmen zu den Zeitpunkten $t = 2\tau$ und $t = 3\tau$; d) zeigt die Differenz der Aufnahmen zu den Zeitpunkten $t = 3\tau$ und $t = 4\tau$. Die Front des induzierten SmC-SmA-Übergangs bewegt sich mit etwa $30\ \text{m/s}$. Die weiße gestrichelte Linie zeigt die Position der Front und der grüne Kreis die Kontur der Blase. In den blauen Bereichen ist der Intensitätsunterschied $\Delta I \equiv I(t + \tau) - I(t) < -4\ \text{wE}$ und in den roten Bereichen ist $\Delta I > 4\ \text{wE}$ (wE =willkürliche Einheiten).

In Abbildung 3.7 ist die zeitliche Auslöschung der c-Direktor-Struktur durch Differenzbilder verdeutlicht. Die Strukturen in den Differenzbildern von aufeinanderfolgenden Aufnahmen der reienden Blase zeigen, in welcher Zone der bergang zur SmA-Struktur (Kippwinkel $\Theta = 0$) im Laufe der Zeit stattfindet. Diese Zone bewegt sich mit einer Geschwindigkeit von etwa 30 m/s, siehe Abbildung 3.8. Dies ist deutlich schneller als die Reigeschwindigkeit und auch schneller als die Ausbreitung von Kapillarwellen auf dem Film whrend des Reivorganges [39]. Im Vergleich zur Ausbreitungsgeschwindigkeit von Schall (Grenordnung von km/s) im smektischen Material ist die Geschwindigkeit der Front jedoch langsam.

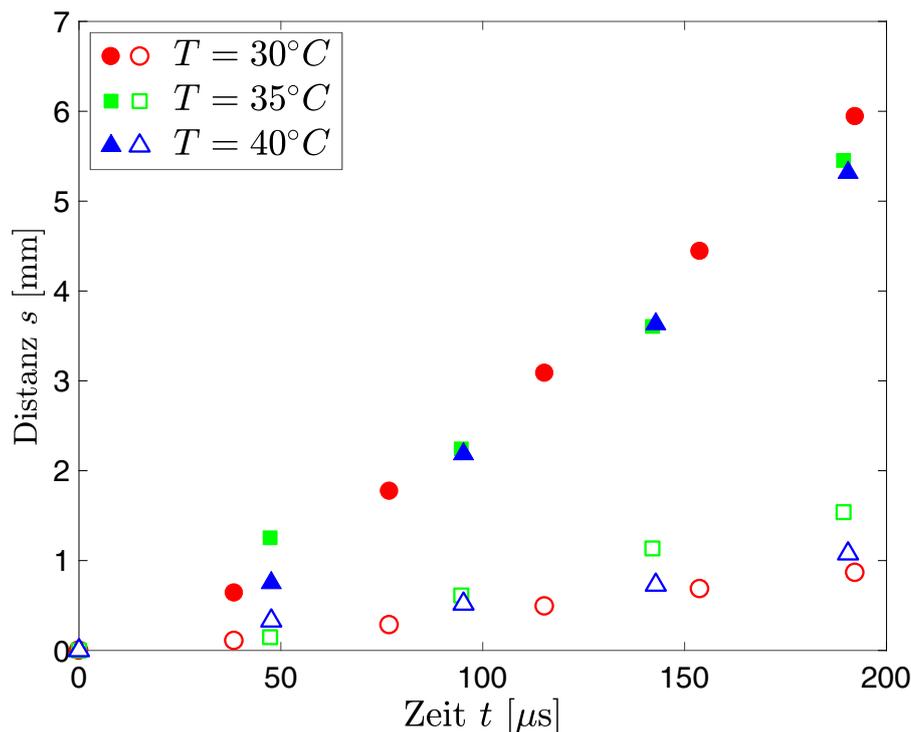


Abbildung 3.8: Zurückgelegte Distanz s der SmC-SmA-bergangsfrent (geschlossene Symbole) und der Filmkante (offene Symbole) der in Abbildung 3.6 dargestellten Reivorgnge. Die bergangsfrent bewegt sich mit etwa 30 m/s und die Reigeschwindigkeit liegt im dargestellten Zeitintervall in der Grenordnung von 5 m/s. Im untersuchten Dickenbereich ist fr die Bewegung der bergangsfrent weder eine Temperatur- noch eine Filmdickenabhngigkeit erkennbar.

Das Reien von SmC-Blasen wurde fr verschiedener Filmdicken (im Submikrometerbereich) und bei unterschiedlichen Temperaturen untersucht. Whrend dnnere Filme (bei gleicher Temperatur) und wrmere Filme (bei vergleichbarer Filmdicke) mit einer hheren Geschwindigkeit reien, zeigt die Geschwindigkeit der SmC-SmA-bergangsfrent fr alle untersuchten Blasen im Bereich der Messgenauigkeit keine Abhngigkeit von der Filmdicke oder der Temperatur.

3.5 Diskussion und Zusammenfassung

In Experimenten wurde ein induzierter SmC-SmA-Übergang beim Reißen smektischer Filme nachgewiesen. Es ist im Folgenden zu klären, ob die im Prozess involvierten Energien und Kräfte groß genug sind, um den beobachteten Effekt zu ermöglichen. Hierzu wird der Energiegewinn pro Volumen beim SmC-SmA-Übergang des Films abgeschätzt. Die Änderung des Kippwinkels $\Theta \rightarrow 0$ führt zu einer Vergrößerung der smektischen Schichtdicke. Es wird zunächst eine SmC-Filmregion mit der Fläche

$$A_C = \frac{V_0}{\delta_C} \quad (3.3)$$

angenommen. Hierbei ist V_0 das Volumen des smektischen Materials und

$$\delta = \delta_C = N\delta_1 \cos \Theta_0 \quad (3.4)$$

die anfängliche Filmdicke in der SmC-Phase mit der Schichtanzahl N , dem SmC-Gleichgewichtskippwinkel Θ_0 und der Dicke δ_1 einer smektischen Schicht bei $\Theta = 0$. Beim Übergang der betrachteten Region in die SmA-Phase gilt für die Fläche

$$A_A = \frac{V_0}{\delta_A} \quad (3.5)$$

mit der SmA-Filmdicke $\delta_A = N\delta_1$. Die Filmfläche ändert sich beim SmC-SmA-Übergang um $\Delta A = A_C - A_A$. Somit ergibt sich für die Änderung der Oberflächenenergie

$$\Delta W_{OF} = 2\sigma \Delta A \quad (3.6)$$

mit der Oberflächenspannung σ des smektischen Materials und dem Faktor 2, der beide Filmoberflächen (außen und innen) berücksichtigt. Der Energiegewinn pro Volumen beim Übergang ergibt

$$\Delta w_{OF} = \frac{\Delta W_{OF}}{V_0} = \frac{2\sigma}{N\delta_1 \cos \Theta_0} (\cos \Theta_0 - 1) = \frac{2\sigma}{\delta} (\cos \Theta_0 - 1) \quad (3.7)$$

Für kleine Kippwinkel $\Theta_0 < 30^\circ$ kann dies durch

$$\Delta w_{OF} \approx -\frac{\sigma \Theta_0^2}{\delta} \quad (3.8)$$

approximiert werden. Mit typischen Parametern ($\Theta_0 = 23^\circ$, $\sigma = 0,0025 \text{ N/m}$ und $\delta = 100 \text{ nm}$) ergibt sich ein Energiegewinn pro Volumen von $\Delta w_{OF} \approx -40 \text{ kJ/m}^3$, wenn das Material einen SmC-SmA-Übergang vollzieht. Allerdings ist der Energiegewinn pro Volumen indirekt proportional zur Filmdicke und nimmt somit mit steigender Filmdicke ab.

Es ist schwierig, verlässliche Quellen zu finden, die beschreiben, welche Energie notwendig ist um den Kippwinkel in der SmC-Phase auf Null zu reduzieren. In den Publikationen [65–70] wurden jedoch die notwendigen Koeffizienten bestimmt.

Die Grundlage dieser Publikationen ist die Landau-Entwicklung der freien Enthalpiedichte

$$g = g_0 + \frac{1}{2}\alpha(T - T_c)\Theta^2 + \frac{1}{4}b\Theta^4 + \frac{1}{6}c\Theta^6 \quad . \quad (3.9)$$

In der SmC-Phase ($T < T_c$) liefert Gleichung 3.9 den Gleichgewichtskippwinkel

$$\Theta_0 \approx \sqrt{\frac{\alpha}{b}(T_c - T)} \quad (3.10)$$

Die Parameter α , b und c unterscheiden sich in den individuellen Publikationen zum Teil auch für das gleiche Material, siehe Tabelle 3.5. Trotzdem ist die freie Enthalpiedichte

Quelle	Material	α [kJ/(m ³ K)]	b [kJ/m ³]	c [kJ/m ³]
Carlsson [65]	DOBAMBC	50	85	14000
Huang [66]	DOBAMBC	22,6	260	4500
Bahr [67]	L-7	89	-85	8800
Giebelmann [68]	FLC 6430	26,5	66,9	8010
Archer [69]	FELIX M4851/050	50	1000	18000

Tabelle 3.1: Übersicht der ermittelten Koeffizienten α, b, c in verschiedenen Publikationen

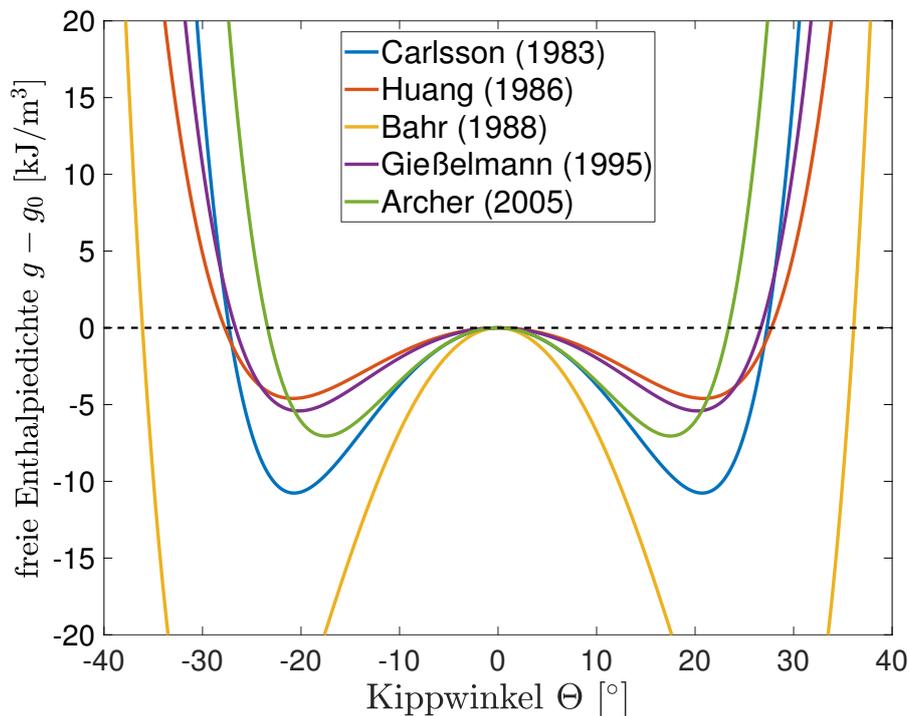


Abbildung 3.9: Typische freie Enthalpiedichten entsprechend der in den Publikationen [65–70] ermittelten Koeffizienten α, b, c bei $T = T_c - 5$ K [52].

$g(\Theta)$ zwischen den Veröffentlichungen relativ konsistent, siehe Abbildung 3.9. Mit Ausnahme der Publikation von Bahr et al. [67] ergeben sich Enthalpiedichtenunterschiede

$$\Delta g = g(\Theta_0) - g(\Theta = 0) \quad (3.11)$$

zwischen -15 kJ/m^3 und -5 kJ/m^3 . Somit kompensiert die gewonnene Oberflächenenergie Δw_{OF} die Enthalpiedifferenz Δg deutlich. Für Filmdicken im Bereich von $\delta = 400 \text{ nm}$ liegen Δw_{OF} und Δg in derselben Größenordnung. Somit ist ein induzierter SmC-SmA-Übergang aus energetischer Sicht nur für hinreichend dünne reiende freistehende smektische Filme denkbar.

Ein Übergang zurück in die SmC-Phase konnte aufgrund der kurzen Dauer des Reiprozesses nicht beobachtet werden. Es ist jedoch wahrscheinlich, dass der SmA-SmC-Übergang stattfindet, sobald sich das smektische Material komplett am Meniskus zusammengezogen hat. Rückschlüsse aus einer Texturanalyse des ungeordneten Materials an der Kanüle sind mit dem verwendeten Aufbau nicht möglich.

Auch wenn der hier beschriebene SmC-SmA-Übergang beim Reien eine Umkehrung der Beobachtungen von Ribotta et al. [61] zu sein scheint, gibt es doch grundlegende Unterschiede. Während Ribotta et al. die SmC-Phase nur in einem kleinen Temperaturbereich (etwa 1 K) oberhalb Phasenübergangstemperatur (T_c) induzieren konnten, ergab sich in unserer Untersuchung kein ausgeprägter temperaturabhängiger Trend. Der von uns untersuchte SmC-SmA-Übergang konnte auch $\approx 15 \text{ K}$ unterhalb des Phasenüberganges erzeugt werden.

Die hier dargestellten Ergebnisse untermauern die Erkenntnisse von Muzny [62], der die Entstehung einer Vielzahl von topologischen Effekten beim Kollaps einer halbsphärischen SmC-Blase beobachtete. Hieraus schloss er auf einen kurzzeitigen ($t < 1/30 \text{ s}$) Übergang in die SmA-Phase während des Kollaps. Dieses Verhalten wurde von Muzny auch weit unterhalb der SmC-SmA-Phasenübergangstemperatur beobachtet. Jedoch konnte Muzny mangels genügend schneller Videotechnik keinen direkten optischen Beweis des Überganges liefern.

4 Thermisch getriebener Transport in flüssigkristallinen Filmen

In diesem Kapitel wird der thermisch getriebene Materialtransport in freistehenden smektischen Filmen untersucht. Die untersuchten Filme besitzen Filmdicken δ im Submikrometerbereich und eine räumliche Ausdehnung von einigen Millimetern. Die Untersuchungen wurden größtenteils während der Schwerelosigkeitsphase von Suborbitalflügen an Bord der Forschungsraketen TEXUS 52 und TEXUS 55 durchgeführt. Zusätzlich werden Experimente an Bord der Internationalen Raumstation (ISS) und unter Normalgravitation vorgestellt und analysiert. In den durchgeführten Experimenten führen Temperaturgradienten im Film zu zwei verschiedenen Effekten. Zum einen wird ein gerichteter Fluss und zum anderen die Ausbildung von Konvektionsrollen im Film beobachtet. Die untersuchten Effekte sind oberflächenspannungsgetrieben. Schon bei kleinen Temperaturdifferenzen ΔT setzt ein Materialfluss von der warmen zur kalten Filmkante ein, sofern der Temperaturkoeffizient $d\sigma/dT$ der Oberflächenspannung σ negativ ist. Dieser Fluss setzt nahezu schwellenlos ein, und das transportierte Material sammelt sich an der kalten Grenze des Films, wenn eine solche vorhanden ist. In Materialien mit positivem Temperaturkoeffizienten $d\sigma/dT > 0$ wird ein entgegengesetzter Transport von der kalten zur warmen Filmgrenze beobachtet. Alle benötigten Variablen werden in diesem Kapitel neu definiert. Die Ergebnisse dieses Kapitels sind in [71] publiziert.

4.1 Einleitung

Seit der ersten Beschreibung [72, 73] freistehender flüssigkristalliner Filme gibt und gab es eine enorme Anzahl an Publikationen, die sich mit verschiedensten Eigenschaften dieser Filme auseinandersetzen. Themen dieser Veröffentlichungen sind zum Beispiel: Hydrodynamische Prozesse in der Filmebene und Direktorfeldstrukturen (z. B. [7, 74–77]), Reißprozesse dünner smektischer Filme (siehe Kapitel 2 und 3 sowie [11, 36, 52]) oder die Dynamik geschlossener flüssigkristalliner Filme ([78–80]). Nahezu alle Publikationen über flüssigkristalline Filme beschreiben diese unter räumlich isothermen Bedingungen. Hingegen werden in den Publikationen [81–83] smektische Filme unter dem Einfluss von Temperaturgradienten beschrieben. Trotz der genannten Publikationen bleibt thermisch getriebener Transport in dünnen freistehenden Filmen ein interessantes und unzureichend verstandenes Problem.

Gewöhnlich hat die Gravitation nur einen untergeordneten Einfluss auf die Geometrie freistehender smektischer Filme. Insbesondere ist die Bond-Zahl (B_o ; Verhältnis zwischen Gravitationskraft und Oberflächenkraft) für freistehende smektische Filme klein

($B_o \ll 1$). Mit den entsprechenden Randbedingungen (Filmhaltergeometrie) können nahezu krümmungsfreie Filme präpariert werden. Im Hinblick auf Fluss-Phänomene in flachen horizontalen Filmen können Gravitationseffekte zunächst vernachlässigt werden. Das Flussfeld kann mit Hilfe einer zweidimensionalen Stokes-Gleichung für inkompressible Flüssigkeiten beschrieben werden. In den meisten Fällen können Trägheitseffekte vernachlässigt werden. Streng genommen ist die Vernachlässigung der Gravitation allerdings nur gerechtfertigt, so lange sich die gesamte Filmumgebung unter isothermen Bedingungen befindet oder der Film im Vakuum präpariert ist. Bei Untersuchungen mit thermischen Gradienten ist eine Konvektion des umgebenden Mediums (z. B. Luft) kaum zu vermeiden. Diese durch Auftrieb getriebene Konvektion kann den Film beeinflussen und in ihm ebenfalls Fluss erzeugen, der den eigentlichen Effekt überlagert [82, 84, 85]. In einer früheren Publikation untersuchten Godfrey und Van Winkle die thermische Konvektion in horizontalen freistehenden smektischen Filmen im Vakuum (Druck $p < 1$ Torr) [81]. Godfrey und Van Winkle fanden bereits bei kleinen Temperaturgradienten $\Theta \approx 0,25$ K/cm konvektiven Fluss in ihren freistehenden Filmen. Allerdings führt der Strahlungsverlust im Vakuum zu einer schnellen Anpassung der Filmtemperatur an die Umgebungstemperatur. Dies führt wiederum dazu, dass die Ausbildung von Temperaturgradienten nur auf sehr kleine Bereiche nahe der beheizten bzw. gekühlten Filmkante beschränkt ist. Godfrey und Van Winkle merkten an, dass diese starken Temperaturgradienten im Meniskus des smektischen Films zur Konvektion im Film führen.

Um Temperaturgradienten über die gesamte Filmfläche zu erzeugen, ist es nötig, den Film in einem umgebenden Medium (z. B. Luft) zu untersuchen und gleichzeitig die durch Dichteunterschiede getriebene Konvektion in diesem Medium zu unterdrücken. Dies ist zuverlässig unter Schwerelosigkeitsbedingungen möglich. Aus diesem Grund wurden die von uns durchgeführten Experimente während der Mikrogravitationsphasen von zwei Suborbitalflügen und auf der Internationalen Raumstation (ISS) ausgeführt. In diesem Fall kann thermisch getriebene Bewegung im Film sicher der Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung des Materials $\sigma(T)$ zugeschrieben und dichtegetriebene thermische Konvektion ausgeschlossen werden. Im weiteren Verlauf werden diese Abhängigkeiten als Marangoni-Effekte bezeichnet.

4.2 Grundlagen

4.2.1 Das TEXUS-Programm

Das TEXUS (Technologische EXperimente Unter Schwerelosigkeit) Raketenprogramm des DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt) und der ESA (Europäische Welt- raumagentur) bietet Wissenschaftlern von Universitäten, anderen Forschungseinrichtungen und der Industrie die Möglichkeit, Phänomene aus der Biologie, Physik und Materialwissenschaft unter Schwerelosigkeitsbedingungen zu untersuchen. Seit dem Start der ersten TEXUS-Suborbitalflugrakete am 13. Dezember 1977 fanden bisher 55 Suborbitalflugkampagnen in regelmäßigen Abständen statt (Stand Dezember 2018). In diesem Zeitraum ist TEXUS eine unverzichtbare Fluggelegenheit für die Forschung unter Mikrogravitationsbedingungen und zur Vorbereitung längerer Weltraumexperimente, zum Beispiel auf der Internationalen Raumstation (ISS), geworden. Hierbei werden die Raketen vom europäischen Raketenstartplatz ESRANGE (European Space RANGE) bei Kiruna in Nordschweden gestartet, siehe Abbildung 4.1. Auf ihrem ballistischen Flug erreicht die Rakete eine Flughöhe von etwa 250 km und liefert eine Mikrogravitationszeit von zirka 6 Minuten. Während der Schwerelosigkeitsphase ist das Beschleunigungs-niveau auf ein Zehntausendstel ($10^{-4}g$) der normalen Erdbeschleunigung reduziert. Während des Fluges können die Wissenschaftler ihre Experimente durch Telekommandos und Videoübertragung direkt steuern und überwachen [86].



Abbildung 4.1: Start der Forschungsrakete TEXUS 54 vom europäischen Raketenstartplatz ESRANGE in Nordschweden am 13. Mai 2018. Foto: Hergen Oltmann (Airbus Defence and Space)

4.2.2 Smektische Filme unter dem Einfluss von Temperaturgradienten

In der Literatur finden sich nur wenige Publikationen, die sich mit dem Verhalten dünner flüssigkristalliner Filme unter Einfluss von Temperaturgradienten befassen. Im Folgenden sollen zwei dieser Publikationen kurz vorgestellt werden. Zum einen handelt es sich um die Arbeit von Godfrey und Van Winkle [81] und zum anderen um eine Arbeit von Birnstock und Stannarius [82].

Godfrey und Van Winkle

Godfrey und Van Winkle untersuchten horizontale LC-Filme im Vakuum ($<1,3$ mBar) unter Normalgravitation. Sie erzeugten horizontale Filme mit Aspektverhältnissen (Breite (B) : Länge (L)) zwischen 1 und 10 in einer eigens entwickelten Apparatur. Zwei Seiten des Filmrahmens wurden temperiert, siehe Abbildung 4.2 a). Die Apparatur ermöglichte Temperaturgradienten Θ zwischen $0,025$ K/mm und $0,5$ K/mm (Temperaturdifferenz (ΔT) / Abstand (L)). Jedoch zeigten Godfrey und Van Winkle mit einer Computerberechnung, dass starke Temperaturgradienten nur an den Kanten des Filmhalters auftreten, wohingegen sich im Zentrum des Films eine große Filmfläche mit der Umgebungstemperatur T_0 bildet.

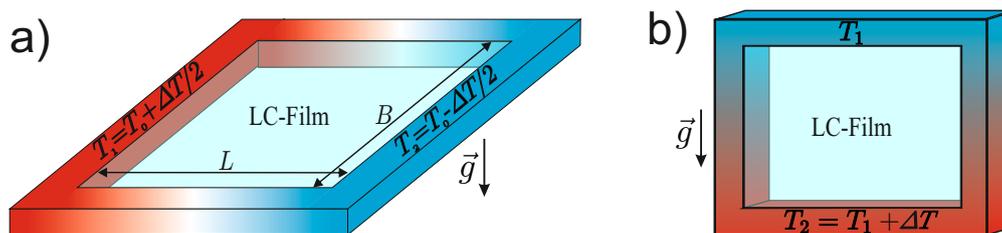


Abbildung 4.2: Die verwendeten Geometrien von a) Godfrey und Van Winkle sowie b) Birnstock und Stannarius. Godfrey und Van Winkle untersuchten horizontale Filme (Gravitation senkrecht zur Filmebene) im Vakuum. Hierbei wurden zwei gegenüberliegende Seiten auf verschiedene Temperaturen T_1/T_2 geheizt. Birnstock und Stannarius untersuchten vertikale Filme unter Normaldruck. Hierbei wurde der Filmhalter am unteren Rand auf die Temperatur $T_2 = T_1 + \Delta T$ geheizt und der obere Rand blieb untemperiert in der Nähe der Umgebungstemperatur der Luft T_1 .

Godfrey und Van Winkle beobachteten für alle untersuchten Gradienten Θ das Auftreten von zwei entgegengesetzt drehenden Konvektionsrollen am Rand des Filmhalters, siehe Einsatz in Abbildung 4.3. Hierbei steigt die Flussgeschwindigkeit vom Rand der Konvektionsrolle bis kurz vor ihr Zentrum linear an und sinkt dann bis zum Zentrum auf Null ab, siehe Abbildung 4.3. Die gemessenen Flussgeschwindigkeiten betragen für

$$\Theta = \frac{\Delta T}{L} = \frac{1 \text{ K}}{3,1 \text{ mm}} \approx 0,32 \text{ K/mm} \quad (4.1)$$

bis zu 30 $\mu\text{m/s}$. Für die Entstehung der Konvektionsrollen spielt der den Film umgebende Meniskus eine entscheidende Rolle. Große Temperaturgradienten treten vornehmlich im Bereich des Meniskus auf. Laut Godfrey und Van Winkle wird der Fluss am rechten und linken Rand des Films (siehe Einsatz Abbildung 4.3) vom kalten zum warmen Bereich durch einen für die meisten Flüssigkeiten eher ungewöhnlichen positiven Temperaturkoeffizienten der Oberflächenspannung $d\sigma/dT = \Sigma > 0$ erklärt. Tatsächlich haben Messungen von Schüring et al. [8] einen Temperaturkoeffizienten von $\Sigma_{\text{DOBAMBC}} \approx -2,4 \cdot 10^{-5} \text{ N}/(\text{m}\cdot\text{K})$ für das verwendete Material „DOBAMBC“ ergeben. Dies stellt die von den Autoren behauptete Ursache für den beobachteten konvektiven Fluss in Frage.

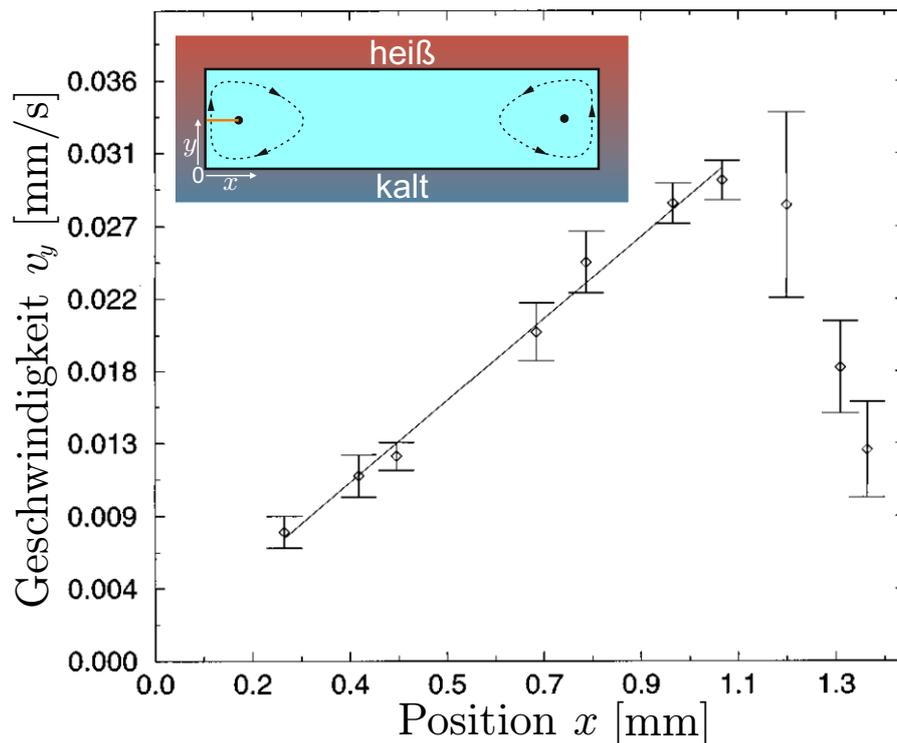


Abbildung 4.3: Bei jedem untersuchten Gradienten beobachteten Godfrey und Van Winkle zwei entgegengesetzt drehende Konvektionsrollen (siehe Einsatz). Entlang der orangenen Linie im Einsatz nimmt die Geschwindigkeit v_y zunächst linear zu und sinkt dann zum Zentrum der Konvektionsrolle auf Null ab. Die dargestellten Daten wurden für einen Film mit den Maßen $B=9,3 \text{ mm}$ und $L=3,1 \text{ mm}$ aufgenommen. Der Temperaturunterschied ΔT betrug 1 K. Das Zentrum der linken Konvektionsrolle lag bei $x=1,39 \text{ mm}$ und $y=1,5 \text{ mm}$. Das originale Diagramm stammt aus [81].

Birstock und Stannarius

Birstock und Stannarius untersuchten vertikale smektische Filme unter dem Einfluss von Temperaturgradienten in der Filmebene [82]. Eine schematische Darstellung des

verwendeten Aufbaus ist in Abbildung 4.2 b) dargestellt. Im Fokus ihrer Untersuchung standen durch Dichteunterschiede getriebene Effekte im freistehenden Film (Rayleigh-Bénard-Konvektion). Die Autoren beobachteten neben Konvektionsrollen im Film, die durch die umgebende Luft verursacht wurden, auch das Klettern smektischer Schichten gegen die Schwerkraft \vec{g} , siehe Abbildung 4.4. Durch den beschriebenen Effekt akkumulierte sich smektisches Material an der oberen kalten Filmkante und tropfte von dort aus im Film wieder nach unten. Die Ursache der steigenden Schichten wird von Birnstock und Stannarius nicht detailliert beschrieben.

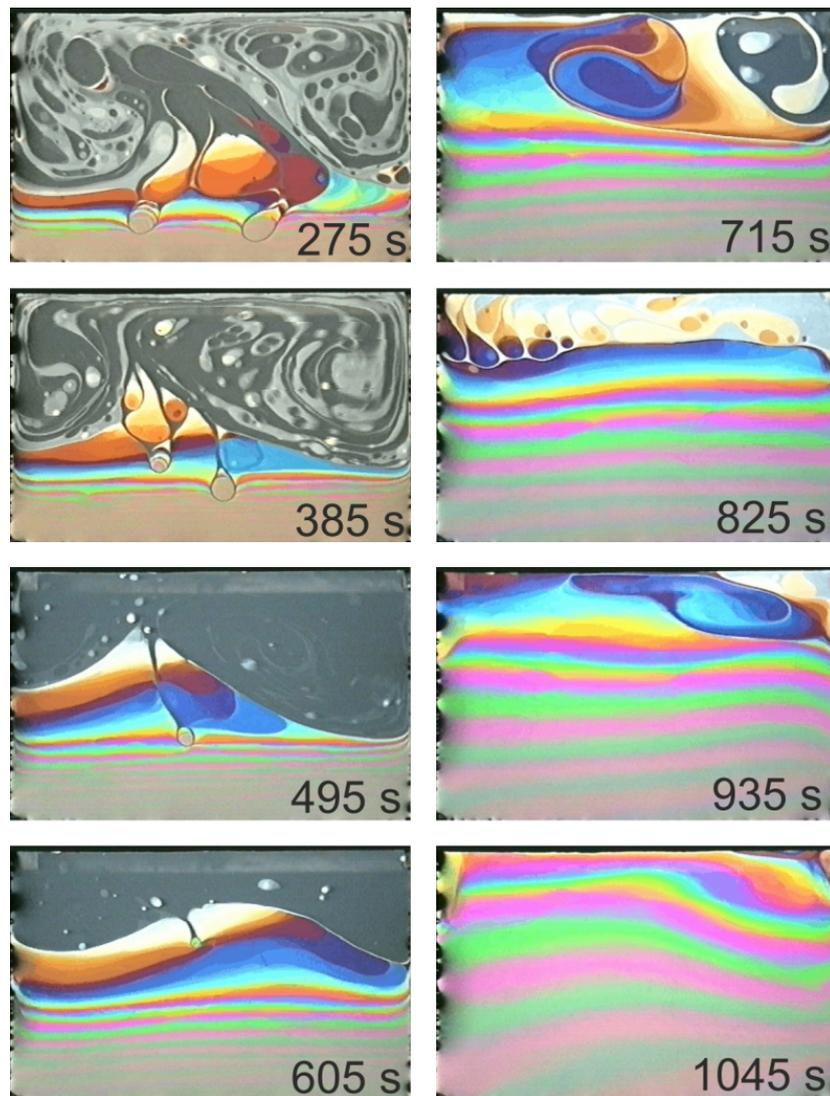


Abbildung 4.4: Gegen die Schwerkraft ansteigende smektische Schichten in einem vertikalen Film. Die untere Filmkante befindet sich auf der Temperatur $T_2 = 70^\circ\text{C}$ und die obere Kante bei $T_1 \approx 25^\circ\text{C}$. Die Filmmaße betragen $33 \times 20 \text{ mm}^2$ (BxH). Das verwendete Material ist die kommerzielle smektische Mischung FELIX16-100 von Hoechst. Die Aufnahmen wurden aus [87] entnommen.

4.3 Experimenteller Aufbau, Durchführung und verwendete Flüssigkristalle

4.3.1 Experimenteller Aufbau

Zur Untersuchung der Marangoni-Effekte wird ein flüssigkristalliner Film der Maße 10 mm x 13 mm auf einem Filmhalter (Metallrahmen) erzeugt. Im Gegensatz zum verwendeten Aufbau von Godfrey und Van Winkle (siehe Abschnitt 4.2.2) sind zwei temperierbare quaderförmige Metallstempel in der Filmfläche platziert, siehe Abbildung 4.5. Je eine der Außenflächen (1 mm x 5 mm) dieser Quader liegt in der Filmebene und hat direkten Kontakt zum Film nach dessen Präparation (Ziehen). Der Abstand der beiden temperierten Elemente beträgt $d = 2,5$ mm. Durch die gewählte Anordnung wird verhindert, dass ein Meniskus (dickerer Filmbereich an den Halterkanten beziehungsweise um die temperierten Elemente) die beiden temperierten Metallstempel verbindet. Die Temperierung der quaderförmigen Metallstempel erfolgt mit Hilfe von Peltierelementen. Hierbei kann die Temperatur der Heizelemente $T_0 \pm \Delta T/2$ und die Temperatur des umgebenden Filmhalters T_0 mit einer Genauigkeit von $\pm 0,2$ K geregelt werden. In den aufgenommenen Bildern besitzt das obere temperierte Element die Temperatur T_1 und das untere die Temperatur T_2 . Der Temperaturunterschied ΔT ergibt sich aus $\Delta T = T_1 - T_2$. Der Temperaturgradient Θ ergibt sich aus $\Delta T/d$. Ein positiver Temperaturgradient bedeutet, dass das oben im Bild dargestellte temperierte Element wärmer ist als das Untere. Für einen negativen Temperaturgradienten gilt dementsprechend das Gegenteil.

Die Beobachtung des Films erfolgt mit einer Schwarzweiß-Basler-GigE-Kamera in Reflexion über einen halbdurchlässigen Spiegel, siehe Abbildung 4.5. Zur Beleuchtung werden 4 verschiedenfarbige Leuchtdioden (LEDs, Cree MC-E Color) eingesetzt, die den Film mit polarisiertem Licht beleuchten. Die LEDs haben die Lichtfarben rot (620 nm, r), grün (520 nm, g), blau (450 nm, b) und weiß (Lichtspektrum, w). Der Film wird immer nur von einer der LEDs beleuchtet. Hierbei ist die Wahl einer Lichtsequenz (rgbw) oder die Beleuchtung nur mit der weißen LED möglich. Die Kamera stellt einen Ausschnitt des Films in der Größe von 7 mm x 5,4 mm mit einer Auflösung von $5 \mu\text{m}$ pro Pixel bei einer Bildrate von 30 Bildern pro Sekunde (fps) dar. Die Mitte des beobachteten Ausschnitts stimmt mit der Filmmitte überein.

Um den Fluss im Film zu verfolgen, wurde eine Vorrichtung zur Platzierung von Tracer-Partikeln auf der Filmoberfläche in den Aufbau integriert. In der TEXUS-52-Mission sollten kleine flüssige Tropfen mit einer Mikroliter-Spritze auf der Filmoberfläche platziert werden. Für die TEXUS-55-Kampagne wurde die Spritze durch ein System zur Ablagerung von feinen Aluminium-Partikeln (Durchmesser zirka $30 \mu\text{m}$) ersetzt. Leider schlugen beide Varianten während der Suborbitalflüge fehl. Das Flussfeld konnte jedoch anhand der Bewegung von Schlierentexturen bestimmt werden. Der gesamte experimentelle Aufbau wurde von der Firma Airbus Defence and Space gefertigt und während der Suborbitalflugkampagnen technisch betreut.

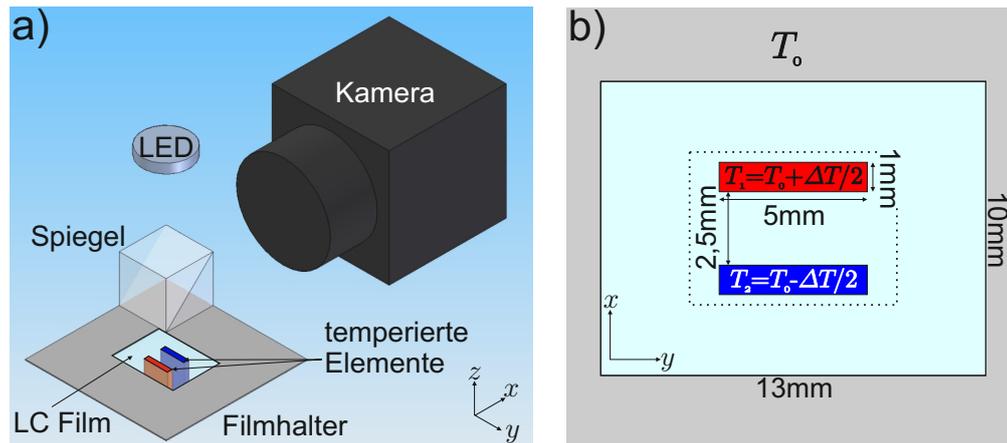


Abbildung 4.5: a) Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur Untersuchung des thermisch getriebenen Transports in dünnen flüssigkristallinen Filmen. Die zur Beleuchtung genutzten Linsen und Polarisatoren sind in dieser Abbildung nicht dargestellt. b) Die Gesamtfilmfläche beträgt 13 mm x 10 mm. Zur Erzeugung eines linearen Temperaturgradienten haben zwei temperierte Elemente mit rechteckiger Querschnittsfläche (5 mm x 1 mm) Kontakt zum Film. Der Abstand der temperierten Elemente beträgt $d = 2,5$ mm. Während der umgebende Filmhalter auf die Temperatur T_0 eingestellt ist, werden die temperierten Elemente auf $T_1 = T_0 + \Delta T/2$ bzw. auf $T_2 = T_0 - \Delta T/2$ geregelt. Das Sichtfeld der Kamera ist durch das gestrichelte Rechteck gekennzeichnet.

4.3.2 Verwendete Flüssigkristalle

Die Untersuchungen unter Mikrogravitation wurden mit dem kommerziellen Flüssigkristall 2-(4-n-Decyloxyphenyl)-5-n-octyl-Pyrimidin (10PP8) durchgeführt. Der Flüssigkristall wurde von der Firma SYNTHON Chemicals produziert. Die Strukturformel und Phasensequenz von 10PP8 sind in Abbildung 4.6 dargestellt.

Wie die meisten Flüssigkeiten besitzt 10PP8 einen negativen Temperaturkoeffizienten der Oberflächenspannung $d\sigma/dT \equiv \Sigma = -5 \cdot 10^{-5} \text{ N}/(\text{m}\cdot\text{K})$ im untersuchten Temperaturbereich zwischen 40 °C und 62 °C, siehe Abbildung 4.7. Die Oberflächenspannung $\sigma(T)$ wurde durch die Auswertung des Laplace-Drucks in smektischen Blasen bestimmt. Diese Methode ist in Referenz [49] beschrieben.

Unter Normalgravitation wurden zusätzlich Experimente mit der Schiff'schen Base N-(4-n-Pentyloxybenzylidene)-4'-Hexylanilin (5.O6) durchgeführt. Strukturformel und Phasensequenz dieses Flüssigkristalls sind in Abbildung 4.6 dargestellt. Im Gegensatz zu den meisten Flüssigkeiten besitzt 5.O6 einen positiven Temperaturkoeffizienten der Oberflächenspannung [8]. Der Temperaturkoeffizient Σ wurde für die verwendete Charge ebenfalls durch Auswertung des Laplace-Drucks in smektischen Blasen bestimmt, siehe Abbildung 4.7. Es wurde ein positiver Temperaturkoeffizient $\Sigma = 7 \cdot 10^{-5} \text{ N}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ermittelt. Dieser Wert stimmt im Bereich unseres Messfehlers mit den Ergebnissen von Schüring et al. $\Sigma_{\text{Schüring}} = 7,9 \cdot 10^{-5} \text{ N}/(\text{m}\cdot\text{K})$ überein, jedoch lagen die von uns ermittelten Oberflächenspannungen $\sigma(T)$ etwa 10 % über den Absolutwerten von Schüring et al.

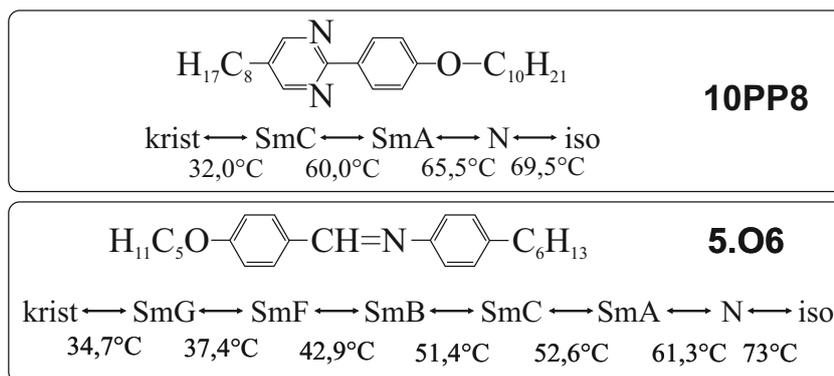


Abbildung 4.6: Strukturformel und Phasensequenz der zur Untersuchung von Marangoni-Effekten in smektischen Filmen verwendeten Flüssigkristalle. Alle Experimente unter Mikrogravitation wurden mit 2-(4-n-Decyloxyphenyl)-5-n-octyl-Pyrimidin (10PP8) durchgeführt. Unter Normalgravitation wurde zusätzlich ein Test mit der Schiff'schen Base N-(4-n-Pentyloxybenzylidene)-4'-Hexylanilin (5.O6) durchgeführt. Der Flüssigkristall 5.O6 besitzt unterhalb des untersuchten Temperaturbereichs mehrere höhergeordnete smektische Mesophasen.

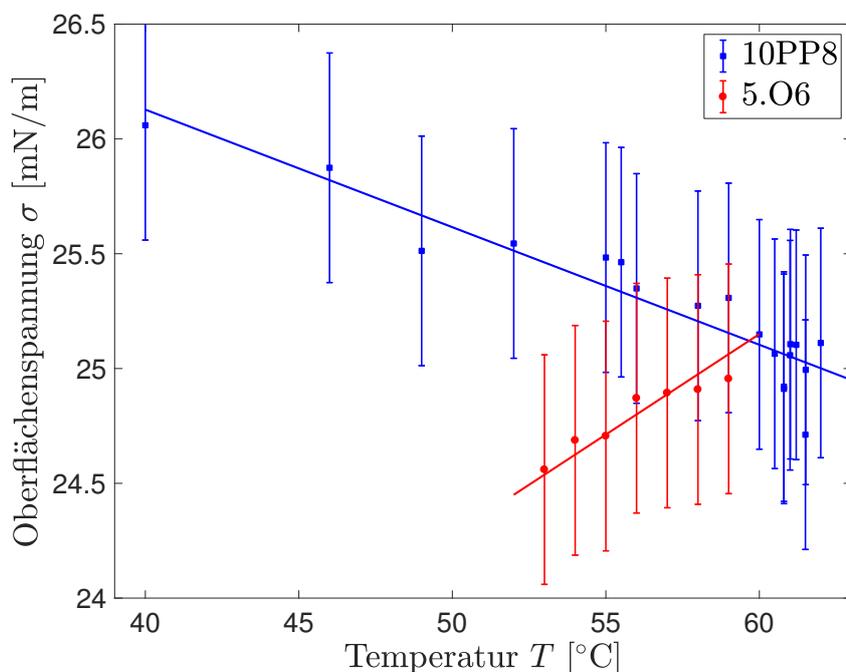


Abbildung 4.7: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung der verwendeten Flüssigkristalle 2-(4-n-Decyloxyphenyl)-5-n-octyl-Pyrimidin (10PP8) und N-(4-n-Pentyloxybenzylidene)-4'-Hexylanilin (5.O6). Die vertikalen Linien zeigen den relativen Fehler der Einzelmessungen. Die Absolutwerte können einen zusätzlichen nicht temperaturabhängigen systematischen Fehler von etwa 10% besitzen. Die durchgezogenen Linien kennzeichnen einen linearen Fit der Messdaten zur Bestimmung des Temperaturkoeffizienten der Oberflächenspannung. Es wurden $\Sigma_{10PP8} \approx -5 \cdot 10^{-5} \text{ N/(m}\cdot\text{K)}$ und $\Sigma_{5.O6} \approx 7 \cdot 10^{-5} \text{ N/(m}\cdot\text{K)}$ als Temperaturkoeffizienten bestimmt.

4.3.3 Durchführung und Experimentparameter

Die von uns durchgeführten Mikrogravitationsexperimente fanden auf den Suborbitalflugmissionen TEXUS 52 (Start am 27. April 2015) und TEXUS 55 (Start am 18. Mai 2018) statt. Da es keine Publikationen über ähnliche Experimente unter Mikrogravitation gab, wurden geeignete Experimentparameter aus den Ergebnissen von Godfrey und Van Winkle [81] unter Normalgravitation abgeschätzt. Das Experiment wurde für die TEXUS-52-Mission zunächst so ausgelegt, dass Temperaturgradienten Θ von bis zu 10 K/mm zwischen den 2,5 mm voneinander entfernten temperierten Elementen erzeugt werden konnten.

TEXUS-52

Während der TEXUS-52-Mission wurde die Umgebungstemperatur T_0 auf 50 °C eingestellt. Die Präparation des flüssigkristallinen Films erfolgte in den ersten 40 Sekunden nach Einsatz der Schwerelosigkeitsphase. Zu Beginn der Schwerelosigkeitsphase und während der Filmpräparation war bereits ein Temperaturgradient von $\Theta = 6$ K/mm voreingestellt. Anschließend wurde der Temperaturgradient anhand der Erkenntnisse aus der Direktvideoübertragung angepasst. Der Temperaturgradient variierte während der Mikrogravitationsphase zwischen 0 K/mm und 10 K/mm. Das zeitliche Temperaturgradientenprofil $\Theta(t)$ ist in Abbildung 4.8 zusammen mit den Temperaturen $T_1(t)$ und $T_2(t)$ dargestellt.

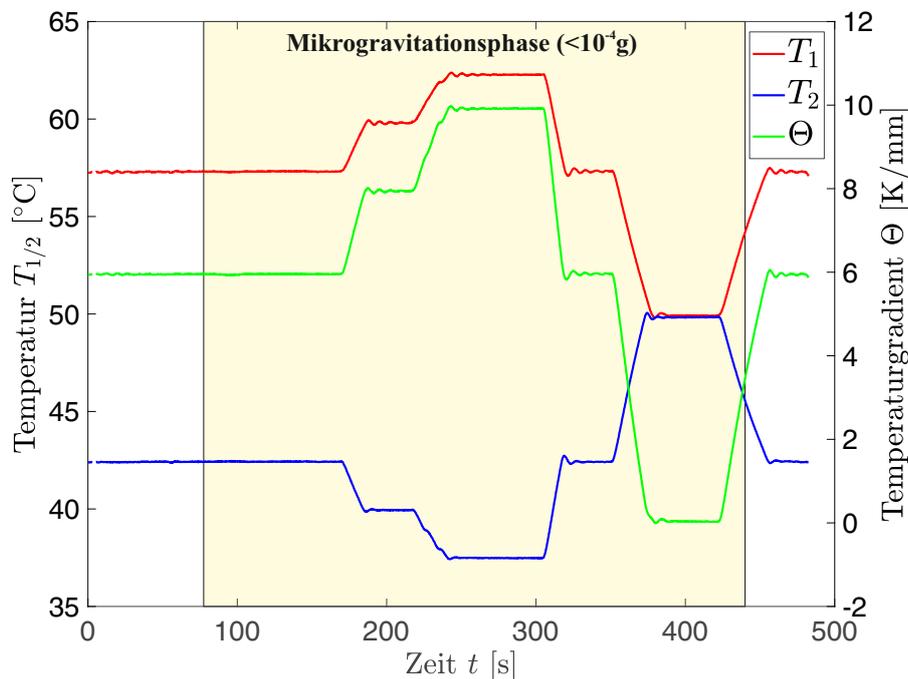


Abbildung 4.8: Verlauf der Temperaturen $T_1(t)$, $T_2(t)$ und des Gradienten $\Theta(t)$ während der TEXUS-52-Mission. Die Rahmentemperatur T_0 lag bei 50 °C. Der Zeitpunkt $t = 0$ entspricht dem Abheben der Rakete („Liftoff“).

Während der Filmpräparation entstand zunächst ein inhomogen dicker Film zwischen den beiden temperierten Elementen, der sich jedoch im Verlauf des Experimentes homogenisierte. Der inhomogene Bereich bewegte sich zum kalten Filmrand. Schließlich setzte sich ein homogener Film mit der Dicke $\delta = 535 \text{ nm}$ über etwa 95 % des Elementabstandes durch, siehe Abbildung 4.9. In den anderen 5 % stieg die Filmdicke in Richtung zur kalten Kante an.

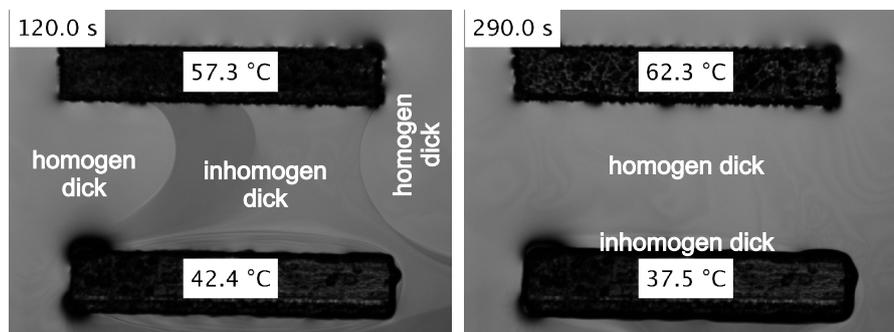


Abbildung 4.9: Experimentelle Situation kurz nach der Filmpräparation (links) und nach Ausbildung der homogenen Filmdicke (rechts) bei Beleuchtung mit der weißen LED. Nach der Filmpräparation waren die beiden temperierten Elemente zunächst durch einen inhomogen dicken Filmbereich verbunden. Zu Beginn des Experimentes zog sich dieser Bereich um das kältere Element zusammen.

Die Filmdicke des homogenen Bereichs wurde interferometrisch bestimmt. Hierzu wurde die Reflektivität $R = I_{\text{ref}}/I_0$ des Films bei Beleuchtung mit verschiedenen Lichtfarben (rgb) bestimmt. Die Reflektivität R hängt von der Filmdicke δ , dem Brechungsindex n des Filmmaterials, der Wellenlänge λ_{Li} des eingestrahlt Lichts und dem Einfallswinkel (in unserem Fall 0) ab:

$$R = \frac{(n^2 - 1)^2 \sin^2(2\pi\delta n/\lambda_{\text{Li}})}{4n^2 + (n^2 - 1)^2 \sin^2(2\pi\delta n/\lambda_{\text{Li}})} \quad (4.2)$$

Die berechnete Reflektivität für verschiedene Filmdicken wurde mit der experimentell bestimmten Reflektivität verglichen. Die Auswertung ergab eine Filmdicke des homogenen Bereichs von $535 \pm 10 \text{ nm}$. Zur Bestimmung wurde jeweils das Spektrum der roten, grünen und blauen LED berücksichtigt. Um einen optischen Eindruck vom Filmdickenprofil des Films nach der Präparation zu vermitteln, ist in Abbildung 4.10 eine Überlagerung der drei Farben (rot, grün, blau) als RGB-Bild zusammen mit einer berechneten Farbskala $\text{RGB}(\delta)$ dargestellt. Auch wenn das rekonstruierte Bild einer Farbaufnahme unter weißer Beleuchtung ähnelt, ist es nicht äquivalent zu einer Aufnahme bei Beleuchtung mit einem kontinuierlichen Spektrum.

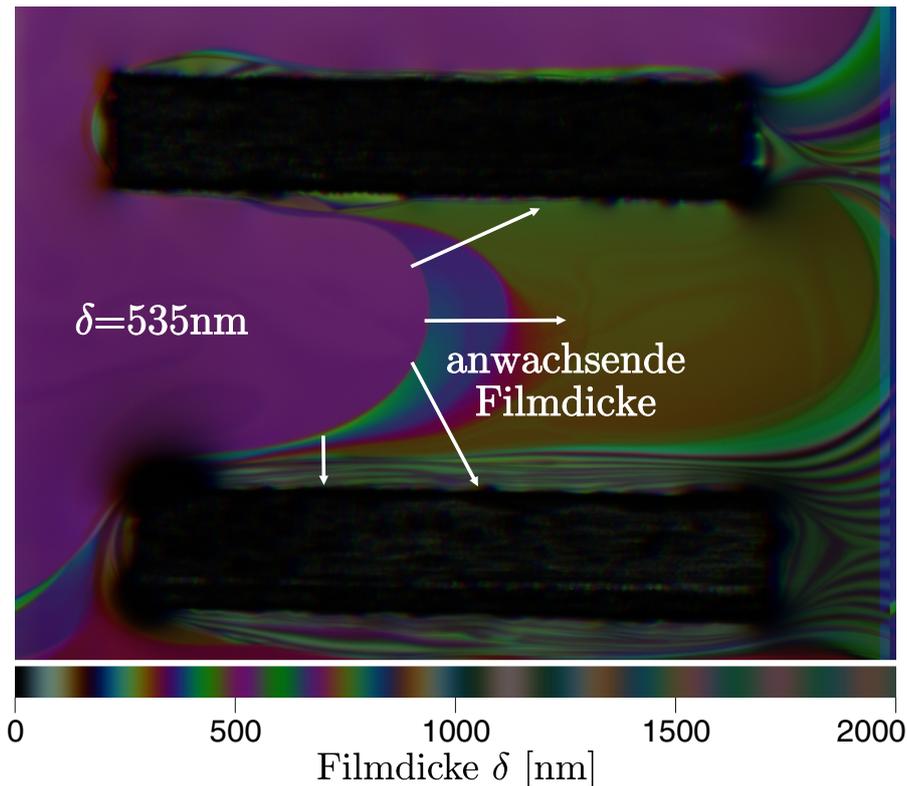


Abbildung 4.10: Aus den Einzelbildern bei roter, grüner und blauer Beleuchtung rekonstruiertes RGB-Bild kurz vor dem Ende der Filmpräparation. Im linken Bildteil (lila) besitzt der Film eine Filmdicke von 535 nm. Entlang der dargestellten Pfeile steigt die Filmdicke monoton an. Im Laufe des Experimentes löste sich der dickere (bunte) Bereich zwischen den temperierten Elementen auf. Der Film besaß dann eine homogene Filmdicke von $\delta = 535 \pm 10$ nm. Lediglich an der kalten Filmkante blieb ein schmaler Meniskus, siehe Abbildung 4.9.

TEXUS-55

Die Erkenntnisse der TEXUS-52-Mission führten zu einigen Änderungen der Experimentparameter und zu kleineren Anpassungen des experimentellen Aufbaus:

- Bei Bodentests nach der TEXUS-52-Kampagne wurde festgestellt, dass zwischen den temperierten Elementen während der Heizphasen eine Potentialdifferenz von bis zu 1 V auftreten kann. Auch wenn dies nur 0,4 V/mm entspricht und somit die Potentialdifferenz zu klein ist, um elektrisch getriebenen Fluss in freistehenden smektischen Filmen zu erzeugen, wurden beide Elemente beim Wiederholungsflug mit einem dünnen Draht verbunden, um die Ausbildung elektrischer Felder zwischen den Elementen sicher zu verhindern.
- Da kleine Temperaturgradienten $\Theta < 10$ K/mm ausreichend sind, um Fluss zu erzeugen, wurde der Fokus in der TEXUS-55-Kampagne auf kleinere Temperaturgradienten gelegt und die Temperatur T_0 auf 55 °C angehoben.

- Um systematische Fehler auszuschließen, konnte in der TEXUS-55-Mission der Temperaturgradient invertiert werden.
- Zur Erzeugung eines homogenen Films erfolgte die Filmpräparation bei abgeschaltetem Temperaturgradienten $\Theta = 0$ K/mm.
- Um die Filmdickenentwicklung zu beobachten, wurde während des gesamten Experimentverlaufs mit einer periodischen Lichtsequenz (0,25 s rot, 0,25 s grün, 0,25 s blau, 0,15 s weiß) beleuchtet.
- Die Mikroliter-Spritze wurde durch ein System zur Ausschüttung von Aluminium-Mikropartikeln ersetzt.

Nahezu alle zuvor beschriebenen Maßnahmen konnten während der TEXUS-55-Mission erfolgreich umgesetzt werden. Lediglich das Platzieren der Aluminiumpartikel schlug aus bisher ungeklärter Ursache fehl. Der Fluss konnte jedoch anhand der Bewegung der Schlierentexturen bestimmt werden. Das in der TEXUS-55-Kampagne verwendete Temperaturgradientenprofil $\Theta(t)$ ist zusammen mit den Temperaturen T_1 und T_2 in Abbildung 4.11 dargestellt.

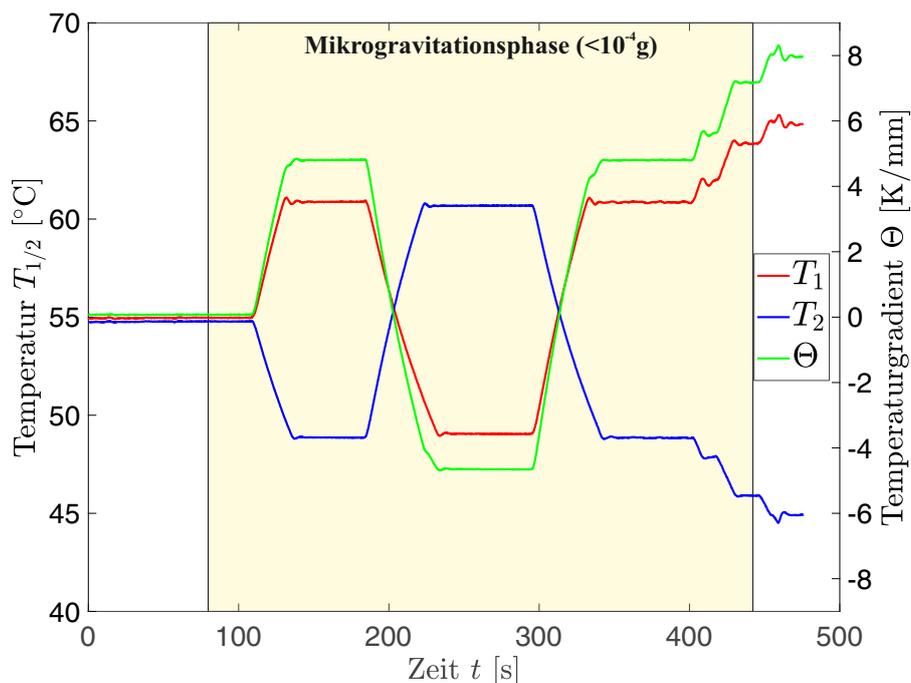


Abbildung 4.11: Verlauf der Temperaturen $T_1(t)$, $T_2(t)$ und des Gradienten $\Theta(t)$ während der TEXUS-55-Mission. Die Rahmentemperatur T_0 lag bei 55°C . Der Zeitpunkt $t = 0$ entspricht dem Abheben der Rakete („Liftoff“).

Die Filmpräparation bei abgeschaltetem Gradienten führte zur Herstellung eines homogenen Films (Filmdicke: $\delta = 170 \pm 20$ nm) zwischen den beiden temperierten Elementen, siehe Abbildung 4.12.

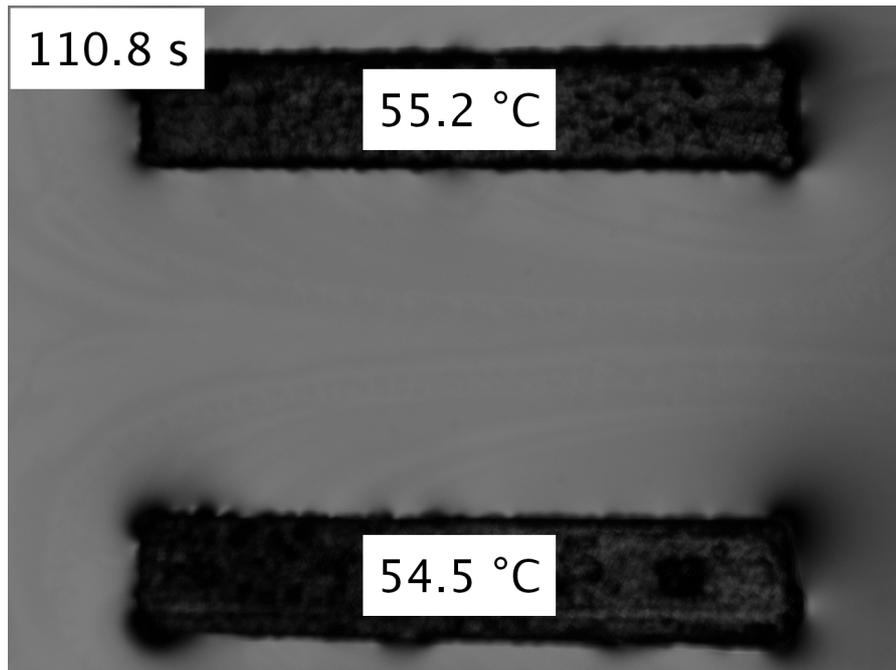


Abbildung 4.12: Experimentelle Situation kurz nach Abschluss der Filmpräparation. Der Film ist zwischen den temperierten Elementen homogen dick. Dies erkennt man daran, dass er über den gesamten Bereich nahezu den gleichen Grauwert (Reflexionsgrad) aufweist. Die Aufnahme entstand unter Beleuchtung mit der weißen LED. Erfahrungswerte zeigen, dass es an den Heizelementen einen schmalen Meniskus gibt, der aber mit dem verwendeten experimentellen Aufbau nicht aufgelöst werden kann. Es ist sicher, dass es keinen Meniskus gibt, der die beiden Elemente miteinander verbindet. Die interferometrisch bestimmte Filmdicke liegt bei $\delta = 170 \pm 20$ nm.

4.3.4 Bildbearbeitung und Geschwindigkeitsbestimmung

In den Originalaufnahmen ist die Bewegung im Film kaum sichtbar, siehe Abbildung 4.13 a). Aus diesem Grund wurden die Aufnahmen zur Auswertung nach dem Flugkontrastverstärkt. Die neue Skalierung der zwischen den Thermoelementen auftretenden Grauwerte führte zu einer deutlichen Sichtbarkeit der im Film vorhandenen Direktorfeldmuster („Schlierentexturen“), siehe Abbildung 4.13 b). Diese Texturen sind sehr gut geeignet, um Geschwindigkeitsfelder im Film zu bestimmen, da die Reorientierung des \vec{c} -Direktors relativ zum Film ein sehr langsamer Vorgang ist. Der Ursprung der Texturen ist in Abbildung 4.13 c) dargestellt. Zur Bestimmung der Geschwindigkeitsfelder im Film wurden zwei verschiedene Methoden angewandt. Zum einen wurde die Bewegung von eindeutig identifizierbaren Texturen in den Einzelbildern verfolgt und zum anderen wurden Raum-Zeit-Darstellungen von verschiedenen Bereichen des Films erstellt, siehe Abbildung 4.14. In dieser Darstellung wird die Bewegung von Texturen durch schräge Linien repräsentiert. Der Anstieg dieser Linien in der Raum-Zeit-Darstellung entspricht der lokalen Geschwindigkeit der Texturen.

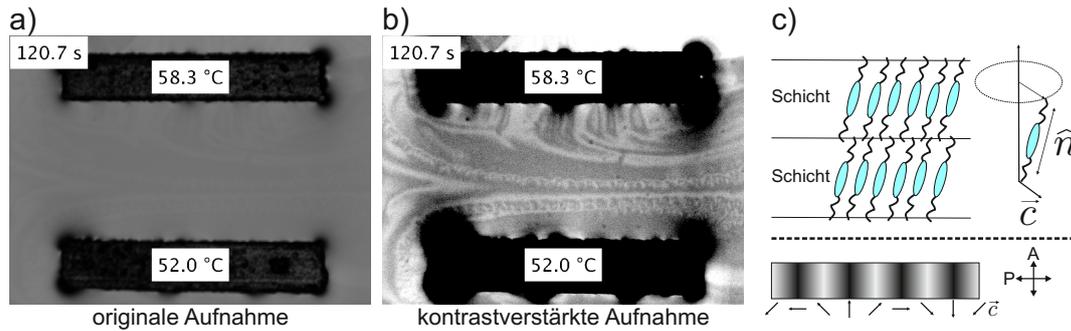


Abbildung 4.13: Darstellung der Kontrastverstärkung für ein Einzelbild der TEXUS-55-Kampagne: a) originale Aufnahme, b) kontrastverstärkte Aufnahme. Nach der Kontrastanpassung sind die Direktorfeldmuster im Film sehr gut sichtbar. Anhand der Bewegung der nun sichtbaren Texturen konnten die Geschwindigkeitsfelder im Film bestimmt werden. Die Texturen auf dem Film entstehen durch die Wechselwirkung der Flüssigkristallmoleküle im Film mit dem eingestrahlichten polarisierten Licht. Im oberen Teil von c) ist die molekulare Struktur eines smektischen Films in der C-Phase (SmC) und die Definition des \vec{c} -Direktors dargestellt. Der \vec{c} -Direktor ist die Projektion des Direktors \hat{n} auf die Filmebene. Im unteren Teil von Bild c) ist die Reflektivität eines SmC-Films in Abhängigkeit von der Ausrichtung des \vec{c} -Direktors unter gekreuzten Polarisatoren dargestellt. In unserem Fall erfolgte die Beobachtung unter leicht gekreuzten Polarisatoren, so dass nur geringe Helligkeitsunterschiede auftraten, siehe a).

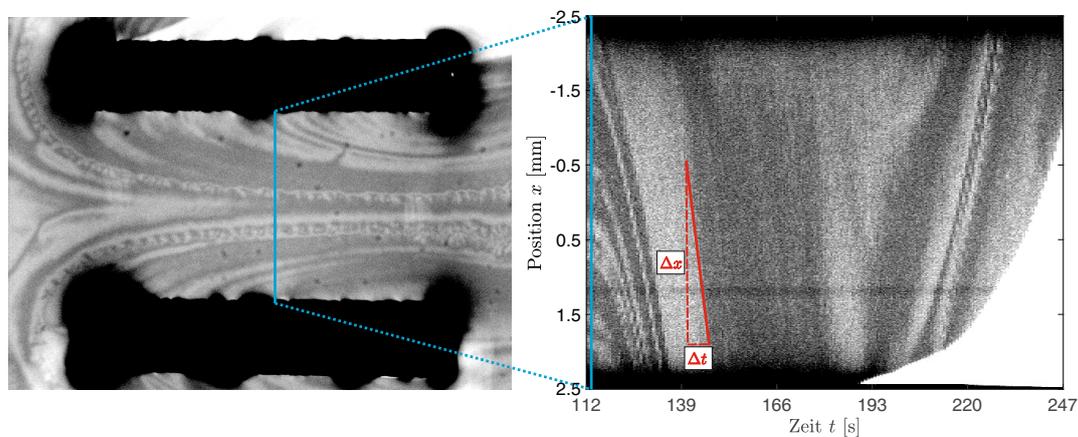


Abbildung 4.14: Veranschaulichung der Konstruktion einer Raum-Zeit-Darstellung für den im linken Bild blau gekennzeichneten Bereich. Jede vertikale Linie im rechten Bild stellt ein Grauwertprofil entlang der blauen Linie zu verschiedenen Zeitpunkten dar. Aus den Anstiegen $\Delta x / \Delta t$ der schräg verlaufenden Linien (als Beispiel durch die rote durchgezogene Linie markiert) kann die lokale Geschwindigkeit bestimmt werden. Das zur Veranschaulichung dargestellte Profil stammt aus der TEXUS-55-Kampagne und wurde aus stark kontrastverstärkten Bildern bei Beleuchtung mit weißem Licht erzeugt.

4.4 Ergebnisse

TEXUS-52-Ergebnisse

Im TEXUS-52-Experiment wurde der flüssigkristalline Film bei einem eingeschalteten Gradienten von $\Theta = 6$ K/mm gezogen. Es entstand zunächst ein inhomogener Film. Direkt nach der Filmpräparation konnte eine Drift des Filmmaterials vom warmen Element zum kalten Element beobachtet werden. Dies führte zur Etablierung der homogenen Filmdicke von 535 nm zwischen den Thermoelementen. Die Analyse der Texturbewegung bei einem Temperaturgradienten von zirka 8 K/mm lieferte eine Flussgeschwindigkeit von $v_x \approx 25 \pm 5$ $\mu\text{m/s}$. In Abbildung 4.15 a) ist die beobachtete Drift anhand der Bewegung einer typischen Textur dargestellt. Das beobachtete Muster ist durch eine rote Linie gekennzeichnet, die sich mit nahezu konstanter Geschwindigkeit vom warmen zum kalten Element bewegt. Während der Erhöhung des Temperaturgradienten auf 10 K/mm steigerte sich die Geschwindigkeit v_x auf zirka 70 $\mu\text{m/s}$, bis schließlich bei Erreichen eines Gradienten von 10 K/mm konvektive Bewegung einsetzte, siehe Abbildung 4.15 b). Die Konvektionsrollen entstanden in der Nähe des warmen Thermokontakts, dessen Temperatur mit zirka 62,5 °C leicht oberhalb des Phasenübergangs (SmC \rightarrow SmA) lag. Leider waren die Konvektionsrollen in der Direktübertragung aufgrund des geringen Kontrastes und der sehr kleinen Geschwindigkeit kaum sichtbar, so dass bei der Steuerung des Experimentes vom Boden aus nicht erkennbar war, ob überhaupt Fluss oder Konvektion vorhanden waren. Deshalb wurde der Temperaturgradient zu schnell wieder abgesenkt womit eine verlässliche Analyse der Konvektion bei der späteren Auswertung der Daten nicht möglich war. Die charakteristischen Texturen, die in Abbildung 4.15 b) markiert sind, bewegten sich mit Geschwindigkeiten zwischen 30 $\mu\text{m/s}$ (rot und magenta) und 80 $\mu\text{m/s}$ (türkis).

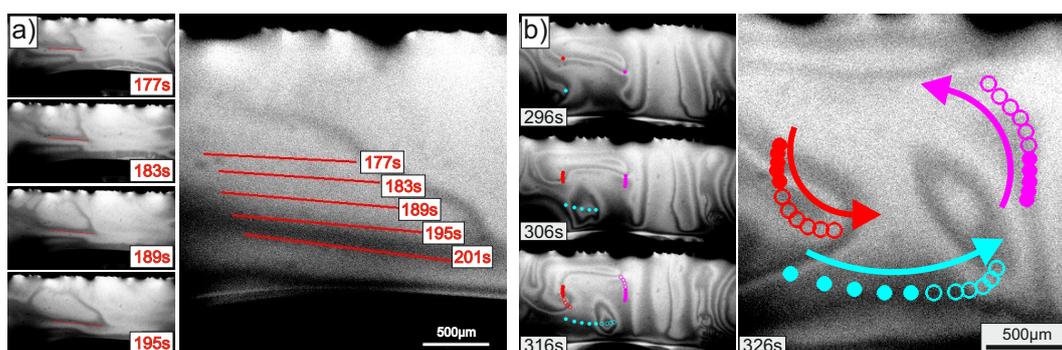


Abbildung 4.15: a) Bewegung einer charakteristischen Textur bei einem Temperaturgradienten von 8 K/mm. Das Muster bewegt sich mit einer nahezu konstanten Geschwindigkeit ($v_x = 25$ $\mu\text{m/s}$) vom warmen zum kalten Filmkontakt. b) Konvektive Bewegung von Direktorfeldmustern bei einem Gradienten von $\Theta = 10$ K/mm (geschlossene Symbole). Beim Absenken des Temperaturgradienten bleibt die Konvektion zunächst erhalten (offene Symbole), verlangsamt sich aber mit fallendem Temperaturgradienten.

Abbildung 4.16 zeigt eine Raum-Zeit-Darstellung (siehe Abschnitt 4.3.4) der kompletten Videoaufnahme des TEXUS-52-Experimentes. Die Temperaturdifferenz ΔT zum jeweiligen Zeitpunkt ist im oberen Bereich der Darstellung vermerkt. Da der Temperaturgradient in der TEXUS-52-Mission nicht negiert werden konnte, ist der wärmere Kontakt stets im oberen und der kältere Kontakt stets im unteren Teil des Bildes. Zu Beginn wurde der Film mit der bereits beschriebenen Lichtsequenz beleuchtet. Dies führt zur alternierenden Helligkeit im linken Teil der Darstellung. Nach Abschalten der LED-Sequenz sieht man, dass sich um das kalte Element ein Filmbereich mit höherer Dicke gebildet hat. Dieser Bereich beinhaltet Filmmaterial, das durch den erzeugten Fluss zum kalten Kontakt transportiert wurde. Diese Region wird zunächst bei einem positiven Gradienten $\Theta < 10 \text{ K/mm}$ ($\Delta T < 25 \text{ K}$) weiter zum kalten Kontakt geschoben. Die beschriebene Region ist wenige Mikrometer dick, dies lässt sich anhand der Interferenzstreifen im rechten unteren Teil der Raum-Zeit-Darstellung abschätzen. Mit jedem dunklen Streifen (von oben nach unten gesehen) erhöht sich die Filmdicke um etwa 170 nm . Die obere Kante des unteren temperierten Elementes ist durch eine weiße Linie markiert. Man sieht deutlich, dass sich an der kalten Kante ein dicker Meniskus (schwarze Filmregion) formt und smektisches Material akkumuliert. Dieser Meniskus ragt während des Experiments bis zu $\approx 250 \mu\text{m}$ vom kalten Kontakt aus in den Bereich zwischen den Thermoelementen hinein.

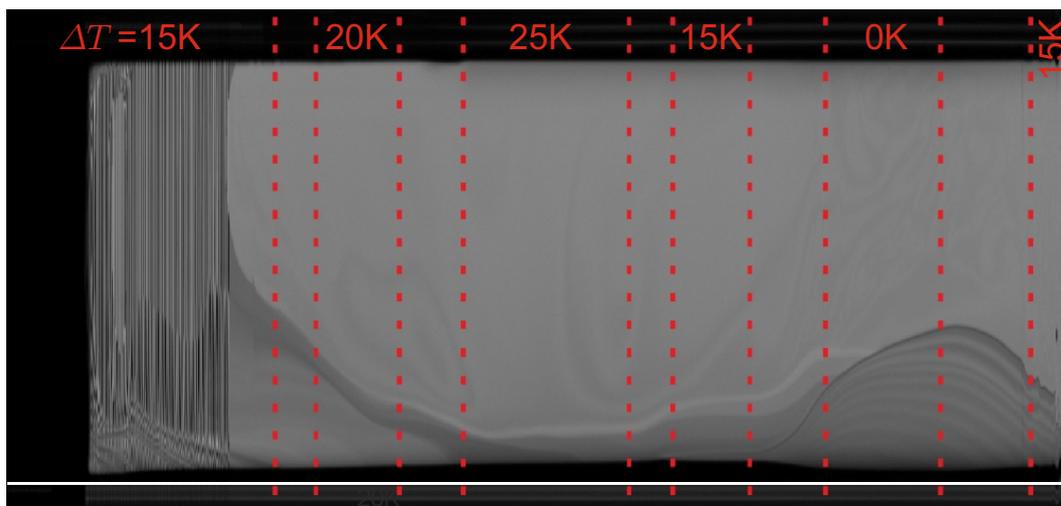


Abbildung 4.16: Raum-Zeit-Darstellung des TEXUS-52-Experimentes. Jede vertikale Linie repräsentiert ein Reflexionsprofil im Zentrum des Films zwischen den Thermokontakten, siehe Abbildung 4.14 (links). Die Zeitachse verläuft von links nach rechts. Die Bereiche mit konstanter Temperaturdifferenz ΔT sind mit der entsprechenden Temperaturdifferenz gekennzeichnet. In den Bereichen zwischen den gestrichelten Linien ohne Temperaturvermerk fand die Temperaturanpassung statt. Am kalten (unteren) Kontakt wird zunächst flüssigkristallines Material akkumuliert, dass bei Abschalten des Gradienten vom vormals kalten Kontakt aus zurück in den Film gedrückt wird. Die Kante des unteren temperierten Elementes ist durch eine weiße Linie gekennzeichnet.

Nach dem Erreichen des Gradienten von 10 K/mm ($\Delta T = 25$ K) wird der laminare Fluss durch entstehende Konvektionsrollen verdrängt. In diesem Zeitraum wächst der dunkle Meniskus am kalten Kontakt nicht weiter, da die Konvektionsrollen Material in beide Richtungen transportieren.

Nachdem die Temperaturdifferenz auf 0 K zurückgesetzt wurde, breitete sich das zuvor an der kalten Kante akkumulierte Material in Richtung des vormals warmen Kontakts aus und der dickere Bereich nahm wieder einen größeren Teil des Films ein, da sich die im Meniskus vorhandenen Dislokationen gegenseitig abstoßen. Durch das Wiedereinschalten des Temperaturgradienten auf 6 K/mm ($\Delta T = 15$ K) kurz vor Ende der Mikrogravitationsphase wurde der Fluss vom warmen zum kalten Kontakt reinitialisiert. Eine kontrastverstärkte Zeitrafferaufnahme der TEXUS-52-Mission befindet sich auf der beiliegenden DVD.

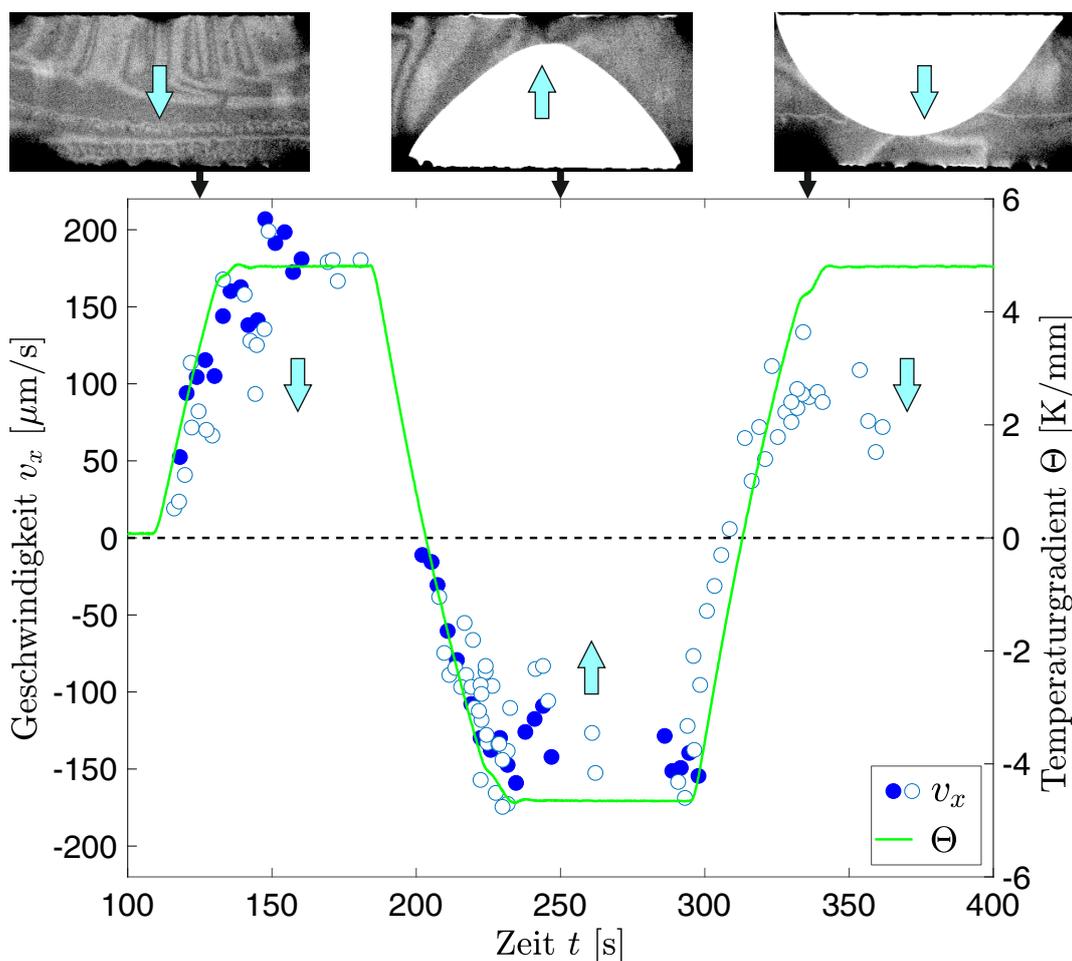


Abbildung 4.17: Protokoll des Temperaturgradienten $\Theta(t)$ für einen Teil der TEXUS-55-Mission mit den entsprechenden Geschwindigkeiten $v_x(t)$. Die Geschwindigkeiten wurden mit Hilfe der Raum-Zeit-Darstellung (offene Symbole) oder durch die Verfolgung von Texturen in den Einzelbildern (ausgefüllte Symbole) bestimmt. Die türkisen Pfeile kennzeichnen die Flussrichtung im Videobild.

TEXUS-55-Ergebnisse

Die Beobachtungen der TEXUS-55-Kampagne bestätigten die Erkenntnisse aus der vorhergehenden TEXUS-52-Mission und können wie folgt zusammengefasst werden: Das Anlegen eines Temperaturgradienten von bis zu $\pm 4,8$ K/mm erzeugt Fluss vom warmen zum kalten Kontakt. Die Bewegung der Texturen zeigt, dass dieser Fluss zwischen den Kontakten homogen ist. Durch den Fluss ändert sich die Filmdicke nicht. Das transportierte Material sammelt sich am kalten Kontakt und vergrößert dort den Meniskus. Die ermittelten Geschwindigkeiten $v_x(t)$ sind in Abbildung 4.17 dargestellt.

In Abbildung 4.18 sind Ausschnitte des Films zwischen den temperierten Elementen bei verschiedenen Temperaturdifferenzen ΔT zusammen mit der vorherrschenden Flussrichtung (Pfeile) gezeigt. In den ersten ≈ 60 s nach dem Einregeln des Gradienten auf 4,8 K/mm ($\Delta T = 12$ K) wird etwa das 6-fache Filmvolumen vom warmen zum kalten Kontakt transportiert. Die Umkehr des Gradienten von +4,8 K/mm auf -4,8 K/mm kehrt die Flussrichtung ebenfalls um, siehe Abbildung 4.18 b). Nach Umkehr des Gradienten bewegt sich ein dickerer aber nahezu homogener Filmbereich (Insel) mit dem Fluss vom jetzt warmen zum jetzt kalten Filmkontakt. Hierbei ist die Flussgeschwindigkeit v_x etwas kleiner als zuvor, da eine größere Anzahl an Dislokationen abgebaut und gebildet werden muss. Zusätzlich beeinflusst eine an der Inselgrenze auftretende Linienspannung das Flussprofil. Etwa 20 s nach der Regelung des Gradienten auf -4,8 K/mm erreicht die Grenze der dickeren Filmregion den oberen kühlen Kontakt. Auch nachdem die dickere Filmregion beide Kontakte verbindet, bleibt der Fluss vom warmen zum kalten Kontakt erhalten. Eine Umkehr des Temperaturgradienten dreht wiederum die Flussrichtung. Der dickere Filmbereich wird erneut vom warmen zum kalten Kontakt transportiert, siehe Abbildung 4.18 c). In jedem Fall folgt die Flussgeschwindigkeit v_x dem aktuell anliegenden Temperaturgradienten ohne messbare Verzögerung, siehe Abbildung 4.17. Im untersuchten Bereich des Temperaturgradienten ($|\Theta| < 5$ K/mm) trat während des TEXUS-55-Fluges keine Konvektion auf.

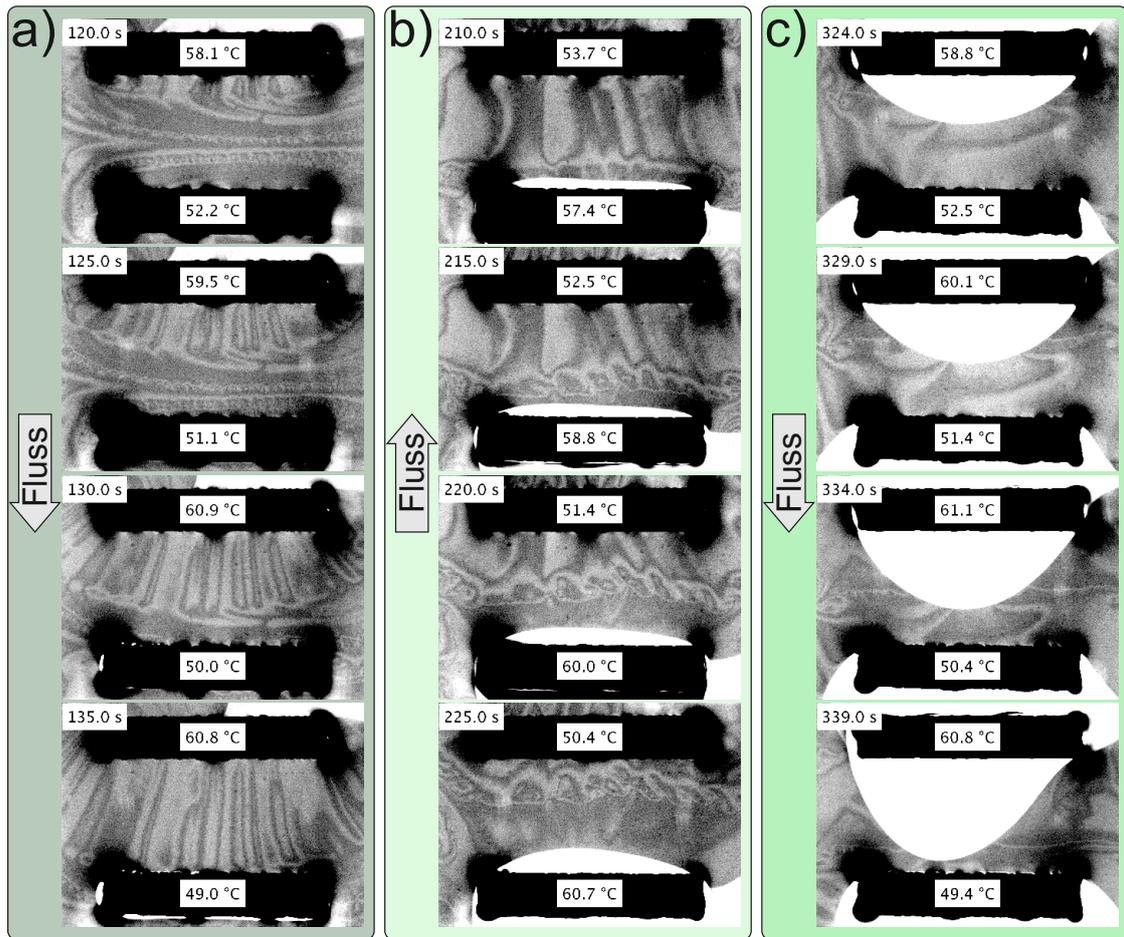


Abbildung 4.18: Texturen im 10PP8-Film während der Mikrogravitationsphase der TEXUS-55-Mission zwischen den beiden Thermokontakten zu verschiedenen Zeitpunkten (a-c). In allen Phasen zeigt die Flussrichtung vom warmen zum kälteren Kontakt. Die Umkehrung des Temperaturgradienten führt nahezu instantan zur Umkehr der Flussrichtung. Eine kontrastverstärkte Zeitrafferaufnahme der TEXUS-55-Mission befindet sich auf der beiliegenden DVD.

4.5 Diskussion

Zur Untersuchung der Auswirkung von Temperaturgradienten in dünnen Filmen ist es nötig, diese in einem umgebenden Medium (z. B. Luft) zu untersuchen. Die Temperaturleitfähigkeit von Luft ($\alpha_{\text{Luft}} \approx 22 \text{ mm}^2/\text{s}$) ist deutlich größer als die von typischen SmA-Flüssigkristallen ($\alpha_{\text{LC}} \approx 0,06 \text{ mm}^2/\text{s}$) [88]. Dies führt dazu, dass sich in kürzester Zeit ein gleichmäßiger Temperaturgradient zwischen den temperierten Kontakten ausbildet. Für den hier genutzten Abstand von 2,5 mm ergibt sich eine Zeitspanne von lediglich 300 ms. Da unter Schwerelosigkeitsbedingungen die auftriebsgetriebene Konvektion des umgebenden Mediums unterdrückt wird, kann die beobachtete Bewegung eindeutig der Temperaturabhängigkeit der Oberflächenspannung $\sigma(T)$ des smektischen Films zugeordnet werden.

Der beobachtete laminare Fluss bei kleinen Temperaturgradienten ($\Theta < 10 \text{ K/mm}$) kann wie folgt erklärt werden. Ein konstanter Fluss ersetzt lokal kaltes Filmmaterial durch wärmeres Filmmaterial, wobei der Temperaturgradient nahezu linear bleibt, aber in Richtung des kälteren Kontakts verschoben wird. Diese Verschiebung führt zu einer Reduktion der Oberflächenenergie. Die Flussgeschwindigkeit v_x wird durch die Energie bestimmt, die nötig ist, um Dislokationen am kalten Kontakt zu produzieren (Materialanlagerung) und am warmen Kontakt zu entfernen (Materialabtransport). Hierbei besteht in jedem Filmsegment ein Gleichgewicht zwischen dem Wärmetransport im Film (Materialfluss und Wärmeleitung) und dem Wärmetransport in der umgebenden Luft unter Berücksichtigung eines kleinen Temperaturgradienten senkrecht zur Filmoberfläche. Eine quantitative Abschätzung der einzelnen Beiträge unter Berücksichtigung typischer Materialparameter zeigt, dass das zuvor beschriebene Modell geeignet ist, um das Experiment zu beschreiben. Hierbei wird der Fokus auf die Daten der ersten Phase des TEXUS-55-Fluges gelegt, da dort im gesamten sichtbaren Filmbereich eine homogene konstante Filmdicke δ vorlag. Es wird eine Temperaturdifferenz von $\Delta T = 12 \text{ K}$, eine Filmdicke von $\delta = 170 \text{ nm}$ und einen Abstand von $d = 2,5 \text{ mm}$ verwendet. Mit diesen Parametern ergibt sich folgendes Temperaturprofil:

$$T(x) = T_0 + \Theta \cdot x \quad (4.3)$$

mit $\Theta = dT/dx = -4800 \text{ K/m}$ in Abwesenheit von Materialfluss. Die Breite $b = 5 \text{ mm}$ der temperierten Kontakte definiert annähernd die Breite der Region, in der Fluss auftritt. Die Flussgeschwindigkeit $v_x \approx 150 \text{ }\mu\text{m/s}$ kann aus Abbildung 4.17 entnommen werden. Die durch Wärmeleitung im Film transportierte Leistung P ergibt bei einer typischen Wärmeleitfähigkeit für Flüssigkristalle von $\lambda \approx 0,13 \text{ W/(m} \cdot \text{K)}$ [88] den Wert

$$P \approx \lambda b \delta \Theta \approx 0,5 \text{ }\mu\text{W} \quad (4.4)$$

und kann vernachlässigt werden. Zusätzlich wird in den beiden Luftschichten ($\lambda' \approx 0,027 \text{ W/(m} \cdot \text{K)}$) oberhalb und unterhalb des Films eine Leistung P' von

$$P' \approx 2\lambda' b \delta' \Theta \approx 1,2 \text{ mW} \quad (4.5)$$

entlang der x -Richtung durch Wärmeleitung transportiert. Hierbei wird die Dicke der Luftschichten mit $\delta' \approx 1$ mm angenommen. Die Wärmemenge P_D , die durch den Fluss des Filmmaterials ($v_x \approx 150$ $\mu\text{m/s}$) transportiert wird, ist bei einer typischen Wärmekapazität des flüssigkristallinen Filmmaterials von $c \approx 2 \cdot 10^6$ $\text{J}/(\text{m}^3\text{K})$

$$P_D \approx cb\delta v_x T \approx 80 \mu\text{W} \quad . \quad (4.6)$$

In den umgebenden Luftschichten ($c' \approx 1105$ $\text{J}/(\text{m}^3\text{K})$) wird durch Fluss folgende Leistung transportiert:

$$P'_D \approx 2c'b\delta'(v_x/2)T \approx 270 \mu\text{W} \quad . \quad (4.7)$$

Hierbei wird der Einfachheit halber ein lineares Flussprofil $v_x(z)$ entlang der Dicke δ' angenommen.

Für einen linearen Gradienten ohne zusätzlichen Fluss ist der Wärmeeintrag und der Wärmeabtransport in den vertikalen Schichten entlang x ausgeglichen. Allerdings injiziert der vorhandene Fluss eine Leistung

$$d(P_D + P'_D) = (\delta c + \delta' c') b v_x \Theta \cdot dx \quad (4.8)$$

in jeden Teil dx . Im stationären Fall wird diese Wärme in die umgebende Luft dissipiert. Dies erfolgt durch die Ausbildung eines Temperaturgradienten

$$\Theta_{\perp} = \Delta T_{\perp} / \delta' = (T^*(x) - T(x)) / \delta' \quad (4.9)$$

vertikal zur Filmebene. Hierbei ist $T^*(x)$ die durch den Fluss erhöhte Filmtemperatur. Mit

$$d(P_D + P'_D) = 2\lambda' b \Theta_{\perp} \cdot dx \quad (4.10)$$

ergibt sich für den notwendigen Temperaturgradienten folgende Gleichung:

$$\Theta_{\perp} = \frac{(\delta c + \delta' c') v_x \Theta}{2\lambda'} \approx 16 \text{ K/mm} \quad . \quad (4.11)$$

Somit ist eine globale Anhebung der Filmtemperatur um $\Delta T_{\perp} \approx 16$ mK relativ zur Temperatur des Films ohne Fluss ausreichend, um ein stationäres Profil zu erzeugen. Diese minimale Temperaturerhöhung reduziert die spezifische Oberflächenenergie um

$$\Delta E_{OF} = 2\Sigma \Delta T_{\perp} \quad . \quad (4.12)$$

Für den verwendeten Flüssigkristall (10PP8) mit $d\sigma/dT \equiv \Sigma \approx -5 \cdot 10^{-5}$ $\text{N}/(\text{m} \cdot \text{K})$, siehe Abschnitt 4.3.2, ergibt sich eine Änderung von $\Delta E_{OF} \approx -1,6$ $\mu\text{N/m}$.

Die kinetische Energie des fließenden Films und der umgebenden Luft pro Fläche ergibt sich aus

$$\Delta E_{kin} = \left(\frac{\rho\delta}{2} + \frac{\rho'\delta'}{3} \right) v_x^2 \approx 10 \text{ pN/m} \quad . \quad (4.13)$$

Hierbei ist ρ die Dichte des Filmmaterials und ρ' die Luftdichte. Somit ist der Gewinn an Oberflächenenergie ΔE_{OF} um einige Größenordnungen höher als die Energie zur Erzeugung des Flusses. Die Herabsetzung der Oberflächenenergie $\Delta E_{OF}(v_x)$ ergibt sich aus

$$\Delta E_{OF}(v_x) = -2\Sigma\Delta T_{\perp} = -\Sigma\delta'\frac{(\delta c + \delta'c')\Theta}{\lambda}v_x \quad (4.14)$$

Somit ist der Einsatz des Flusses schwellenlos. Außerdem setzt jede weitere Beschleunigung des Flusses die Oberflächenenergie weiter herab. Deshalb würde sich der Fluss ohne einen entgegenwirkenden dissipativen Mechanismus kontinuierlich beschleunigen. Zwischen den Thermokontakten existiert bis auf die äußeren Randbereiche kein Scherfluss. Dies sieht man deutlich in Abbildung 4.18 a), in der eine nahezu gerade Texturkante den Film passiert. Im Gegensatz zu Konvektionsrollen dissipiert der beobachtete gleichmäßige Fluss keine Energie. Jedoch wird in den umgebenden Luftschichten Energie dissipiert. Für die dissipierte Energie pro Fläche ergibt sich

$$P_{diss} \approx \frac{2\eta'v_x^2}{\delta'} \quad (4.15)$$

und liegt für unser Experiment bei lediglich 10^{-10} W/m². Dieser marginale Anteil ist vernachlässigbar. Somit ergibt sich für unser Experiment ein Energiegewinn von

$$2|\Sigma|\Delta T_{\perp}bd \approx 20 \text{ pJ} \quad (4.16)$$

für die Fläche zwischen den Thermokontakten.

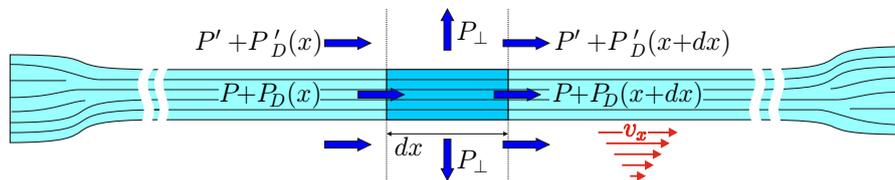


Abbildung 4.19: Schematische Darstellung des Flussprofils und des Wärmetransport im freistehenden Film und im umgebenden Medium (Luft). An der linken und rechten Filmseite sind Dislokationen im Meniskus skizziert, die aufgrund von Dickengradienten im Meniskus entstehen.

Die Energiedissipation, welche die Flussgeschwindigkeit v_x begrenzt, tritt maßgeblich an der kalten und warmen Filmkante auf. Sie entsteht durch die Anlagerung von smektischem Material an der kalten Kante und dem Abtransport von smektischem Material vom Meniskus am warmen Kontakt. Hierbei werden Schichtdislokationen am kalten Kontakt gebildet und auf der gegenüberliegenden Filmseite entfernt, siehe Abbildung 4.19. Es bildet sich ein dynamisches Gleichgewicht aus, in dem der Energiegewinn durch Oberflächenspannungsreduktion durch die Dissipation in den Menisken ausgeglichen ist. Dies kann quantitativ abgeschätzt werden.

Hierzu bestimmen man zunächst die an beiden Filmkanten (warm und kalt) wirkenden Kräfte. Die Kontakte besitzen die Temperaturen $T_1 = T_0 + \Delta T/2$ bzw. $T_2 = T_0 - \Delta T/2$. Somit ergibt sich ein Unterschied der Oberflächenspannung von

$$\Delta\sigma = \Sigma\Delta T \approx -6 \cdot 10^{-4} \text{ N/m} \quad (4.17)$$

zwischen den gegenüberliegenden Filmkanten. Hierdurch entsteht eine Kraft pro Meniskuslänge von $2\Delta\sigma$ (zwei Grenzflächen; oben und unten), die auf den Film wirkt. Dies ist äquivalent zu einer Druckdifferenz von

$$\Delta p = \frac{2\Delta\sigma}{\delta} \approx 7 \text{ kPa} \quad (4.18)$$

an den Kontaktflächen. Dieser Wert wird mit der Reibungskraft verglichen, die durch die Filmbewegung im umgebenden Medium (Luft) entsteht. Zwischen den temperierten Elementen existiert praktisch kein Scherfluss, somit nehmen wir eine räumlich, konstante Geschwindigkeit v_x zwischen den Elementen an. Mit einem linearen Geschwindigkeitsgradient in den Luftschichten von v_x/δ' ergibt sich eine Reibungskraft pro Filmbreite von

$$\frac{2d\eta'v_x}{\delta'} \approx 1,5 \cdot 10^{-9} \text{ N/m} \quad (4.19)$$

Für die Viskosität der Luft wird $\eta' \approx 2 \cdot 10^{-5}$ Pas angenommen. Hieraus ergibt sich ein zu vernachlässigender Beitrag zum Druck an den Filmkanten von etwa 0,1 Pa.

Somit muss der flussdämpfende Mechanismus in den Menisken liegen, und zwar in Kräften, die dem Anlagern (kalte Kante) bzw. Abtransport (warme Kante) von smektischem Material entgegenwirken. Solche Kräfte entstehen zum Beispiel beim Erzeugen, Entfernen oder Verschieben von Dislokationen. Der notwendige Druck, um einen stationären Fluss zu erhalten, liegt in der Größenordnung von wenigen kPa. Oswald und Pieranski [89] geben folgende Gleichung für die Dissipation (Energieverlust pro Zeit und Meniskuslänge) an:

$$\Phi_m = \frac{v_x^2 \cdot \delta}{m} \quad (4.20)$$

Hierbei ist m eine Größe, welche die Mobilität von Dislokationen charakterisiert und deren Einheit das Inverse einer Viskosität pro Länge ist. Picano et al. ermittelten für den Flüssigkristall 4-cyano-4'-octylbiphenyl (8CB) den Wert

$$m = 4,4 \cdot 10^{-8} \text{ m/(Pa} \cdot \text{s)} \quad (4.21)$$

in der smektischen A-Phase (28 °C) [90]. Der Druck p_m , welcher der Anlagerung bzw. Abtragung von smektischem Material im Meniskus entgegenwirkt, bestimmt sich nach [89] mit der folgenden Gleichung

$$p_m = v_x/m \quad (4.22)$$

Für das hier betrachtete Experiment gilt $p\delta = 2p_m$. Der Faktor 2 entsteht, da sowohl der Abtransport am warmen Kontakt als auch die Anlagerung am kalten Kontakt berücksichtigt werden muss. Bei einer Flussgeschwindigkeit von $v_x = 150 \mu\text{m/s}$ ergibt sich somit

$$m = \frac{v_x \delta}{\Delta\sigma} = 4,2 \cdot 10^{-8} \text{ m}/(\text{Pa} \cdot \text{s}) \quad . \quad (4.23)$$

Da es sich hier nur um eine Abschätzung handelt, wird ein relativer Fehler von $\pm 30\%$ angenommen. Der ermittelte Wert stimmt nahezu mit den Ergebnissen von Picano et al. [90] für 8CB überein. Dies ist erstaunlich und eher zufällig, da es sich um verschiedene Materialien handelt, die hier verwendete Temperatur etwa 25 K höher liegt und die Parameter c und λ nur von den Werten ähnlicher Mesogene abgeleitet wurden.

Die während der TEXUS-52-Mission gewonnenen Daten sind qualitativ vergleichbar, variieren aber quantitativ. Der dort erzeugte flüssigkristalline Film war mit 535 nm erheblich dicker und die beobachteten Geschwindigkeiten deutlich kleiner ($v_x \approx 25 \mu\text{m/s}$ bei $\Theta = 6 \text{ K/mm}$). Eine kleinere Flussgeschwindigkeit v_x bei größerer Filmdicke δ ist mit dem beschriebenen Modell vereinbar. Mit den angegebenen Daten der TEXUS-52-Mission ergibt sich für die Mobilität $m = 1,8 \cdot 10^{-8} \text{ m}/(\text{Pa} \cdot \text{s})$. Die Abweichung kann hauptsächlich der inhomogenen Filmdicke zugeschrieben werden, die das Flussprofil beeinflusst. Bei sehr hohen Gradienten $\Theta \approx 10 \text{ K/mm}$ trat während der TEXUS-52-Mission das Einsetzen von konvektionsartigen Strukturen auf. Die Ursache hierfür ist noch unklar und bedarf weiterer Untersuchungen.

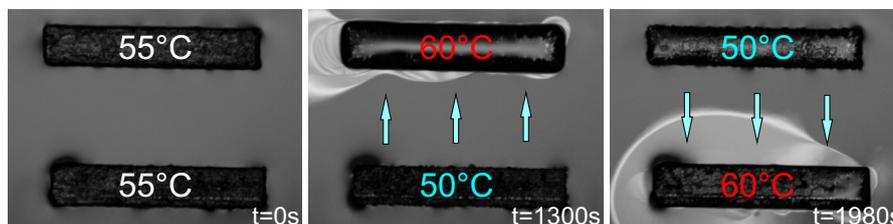


Abbildung 4.20: Untersuchungen an einem freistehenden 5.O6-Film unter Normalgravitation; a) zeigt als Ausgangssituation einen homogenen Film zwischen den Thermokontakten bei abgeschaltetem Temperaturgradienten. b) und c) zeigen die Anlagerung von flüssigkristallinem Material an den warmen Kontakten bei entgegengesetzten Temperaturgradienten. Die Pfeile stellen die vorliegende Flussrichtung dar. In den Bildern sind keine Texturen zu erkennen, da sich das Material in der smektischen A-Phase befindet ($T_0 = 55^\circ\text{C}$).

Zur Bestätigung des oben genannten Modells wurden unter Normalgravitation Experimente mit der Schiff'schen Base 5.O6 durchgeführt, siehe Abschnitt 4.3.2. Dieses Material besitzt einen positiven Temperaturkoeffizienten der Oberflächenspannung

$$\frac{d\sigma}{dT} = \Sigma \approx 7 \cdot 10^{-5} \text{ N}/(\text{m} \cdot \text{K}) \quad . \quad (4.24)$$

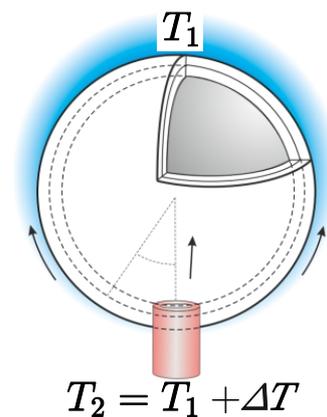
Somit ist die Oberflächenspannung am kalten Kontakt kleiner und der Temperaturgradient wird durch Fluss zum warmen Kontakt verschoben. Dieses Verhalten kann qualitativ

problemlos unter Normalgravitation untersucht werden, da der Einfluss von Luftkonvektion nur den Transport vom warmen zum kalten Kontakt begünstigen kann. In diesem Fall würde die Luft am warmen Kontakt aufsteigen, dann unter dem Film zum kalten Kontakt strömen und an diesem absinken. In den Untersuchungen unter Normalgravitation mit 5.06 beobachteten wir jedoch lediglich Fluss vom kalten zum warmen Kontakt und die Anlagerung von flüssigkristallinem Material am warmen Kontakt, siehe Abbildung 4.20. In Gleichung 4.23 führt eine Umkehr des Vorzeichens von $\Delta\sigma$ zur Umkehr des Vorzeichens von v_x . Somit ist der durch Marangoni-Fluss erzeugte Materialtransport stärker als der durch Luftkonvektion verursachte. Das Material 10PP8 verhielt sich unter Normalgravitation qualitativ wie im Mikrogravitationsexperiment.

Thermomigration von Inseln auf smektischen Blasen

Während der ISS-Mission (August 2015 bis März 2016) im Projekt OASIS wurden Experimente an smektischen Blasen unter dem Einfluss von Temperaturgradienten durchgeführt [83, 87]. Hierzu wurde entweder die Kanüle, auf der die Blase präpariert wurde, erhitzt oder es wurden Nadeln, die sich oberhalb der Blase befanden, geheizt. Die experimentelle Situation beim Heizen der Präparationskanüle ist in Abbildung 4.21 skizziert.

Abbildung 4.21: Schematische Darstellung der experimentellen Situation beim Heizen der Präparationskanüle ($T_2 > T_1$). Die Darstellung ist nicht maßstabsgetreu. Die Darstellung beruht auf einer Abbildung aus [87].



Eine exakte Bestimmung des Temperaturverlaufs in der Experimentkammer war nicht möglich, so dass die Beobachtungen hier qualitativ diskutiert werden. Bei den Experimenten wurde eine Flüssigkristallmischung aus 8CB und Displaytech MX 12160 verwendet [83]. Die Experimente fanden in der SmA-Phase statt. Zunächst wurde die smektische Blase (Filmdicke etwa 20 nm) mit Hilfe von Luftstrahlen mit kleinen smektischen Inseln (etwa 80 nm dicke Filmbereiche) dekoriert [83]. Anschließend wurde die Präparationskanüle auf $T_2 = 40^\circ\text{C}$ geheizt und die Kammerwandtemperatur bei $T_1 = 28^\circ\text{C}$ belassen. Nach ein paar Sekunden, in denen sich der Temperaturgradient in der umgebenden Luft ausbildete, entfernten sich die Inseln von der warmen Kanüle, siehe Abbildung 4.22.

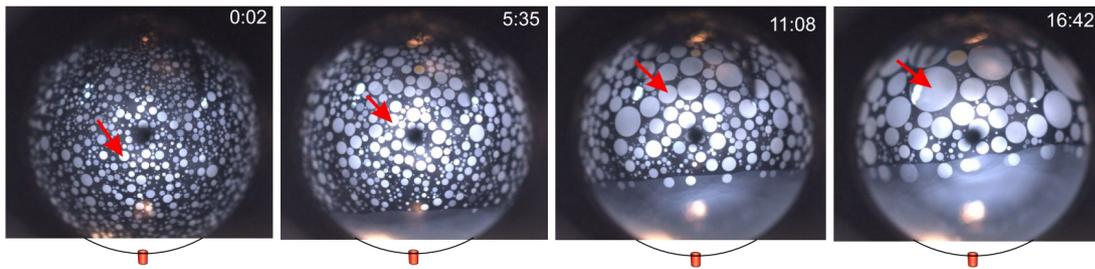


Abbildung 4.22: Inseln auf einer SmA-Blase entfernen sich unter dem Einfluss eines Temperaturgradienten von der geheizten Präparationskanüle ($T_2 = 40^\circ\text{C}$). Die Experimentkammerwände sind auf $T_1 = 28^\circ\text{C}$ temperiert. Die roten Pfeile markieren eine ausgewählte Insel und verdeutlichen die Bewegung. Im Zentrum der Blase ist ein dunkler Fleck sichtbar, der als Artefakt der verwendeten Beleuchtungstechnik entsteht. In der rechten oberen Ecke jedes Bildes ist die Experimentzeit in der Formatierung min:s angegeben. Die Präparationskanüle ist auf den Aufnahmen nicht sichtbar, deshalb wurde ihre Position skizziert. Der Blasendurchmesser beträgt etwa 18 mm. Die Einzelbilder stammen aus [87].

Auch, wenn das Temperaturprofil entlang der Blase nicht exakt bekannt ist, kann ein ungefährender Temperaturverlauf durch Simulationen oder analytisch für eine angenommene geheizte sphärische Kugel, die sich an der Spitze der Kanüle befindet, bestimmt werden [87]. Im Mittel beträgt der Temperaturgradient entlang der Blase etwa 1 K/mm. Allerdings ist er sehr inhomogen und liegt in der Nähe der Kanüle bei etwa 10 K/mm. Der Temperaturgradient liegt somit im Bereich des während der TEXUS-Missionen untersuchten Gradienten.

Der Temperaturgradient führt zu einem Materialfluss vom Meniskus an der Präparationskanüle in die Blasenoberfläche. Der dünne Film wird hierbei durch einen dickeren Film ($\delta \approx 65 \pm 15 \text{ nm}$) ersetzt. Die Inseln in der Nähe des Blasenäquators bewegen sich ebenfalls mit etwas geringerer Geschwindigkeit in Richtung „Norden“. Wie in den zuvor vorgestellten TEXUS-Experimenten hebt die Drift die Filmtemperatur um wenige mK an und reduziert somit die Oberflächenenergie der Blase. Der Temperaturkoeffizient der Oberflächenspannung der verwendeten Mischung wurde nicht bestimmt. Es wird angenommen, dass er, wie bei ähnlichen Molekülen, in der Größenordnung von $\Sigma_{10\text{PP8}} \approx -5 \cdot 10^{-5} \text{ N}/(\text{m}\cdot\text{K})$ liegt. Wie in den planaren Filmen der TEXUS-Kampagnen wird die Flussgeschwindigkeit durch den Abtransport von smektischem Material aus dem Meniskus bzw. dem Anlagern von smektischem Material an die Inseln begrenzt. Eine genaue quantitative Analyse ist auf Grund der Experimentgeometrie schwierig. Trotzdem liegen die bestimmten Flussgeschwindigkeiten mit $\approx 130 \mu\text{m}/\text{s}$ (bei $\Theta \approx 1 \text{ K}/\text{mm}$; in der Nähe der Präparationskanüle) in der gleichen Größenordnung wie bei den TEXUS-Untersuchungen an flachen Filmen [87]. Dies ist ein Hinweis darauf, dass in beiden Experimenten der gleiche Mechanismus für die Erzeugung des Flusses verantwortlich ist. Die Inseln bewegen sich mit dem Film (wie Tracer-Partikel), eine direkte Wechselwirkung der Inseln mit dem Temperaturgradienten ist nicht erkennbar. Dies zeigt sich daran, dass sich Löcher im Film (dünnere Bereiche) in dieselbe Richtung wie Inseln

bewegen [87]. Ein detaillierterer Vergleich mit weiteren Experimenten an smektischen Filmen unter dem Einfluss von Temperaturgradienten, z. B. beim Heizen oberhalb einer smektischen Blase, ist ebenfalls in [87] zu finden.

4.6 Zusammenfassung

Es konnte gezeigt werden, dass Temperaturunterschiede in dünnen flüssigkristallinen Filmen zu einem gerichteten Materialfluss führen. Hierbei erfolgt der Fluss für Materialien mit einem „normalen“ negativen Temperaturkoeffizienten der Oberflächenspannung ($\Sigma < 0$) von warm nach kalt, und im Fall eines „ungewöhnlichen“ positiven Temperaturkoeffizienten ($\Sigma > 0$) von kalt nach warm. Der Prozess kann mit folgenden Punkten qualitativ beschrieben werden:

- Der Fluss verschiebt das Temperaturprofil leicht zum kalten Kontakt (für ($\Sigma < 0$)). Dies führt zu einer Erwärmung des Films von wenigen mK im Vergleich zur Situation ohne Fluss. Die Temperaturänderung ist proportional zur Flussgeschwindigkeit v_x .
- Durch die Temperaturänderung wird die Oberflächenenergie um einen Betrag verringert, der deutlich größer als die notwendige kinetische Energie ist, um den Film und die umgebende Luft zu bewegen.
- Die Flussgeschwindigkeit ist in etwa proportional zum Temperaturunterschied zwischen dem warmen und kalten Kontakt. Der Einsatz des Flusses ist schwellenlos.
- Eine Umkehr des Temperaturgradienten führt instantan zur Umkehr des Flusses.
- Der Prozess, der die Flussgeschwindigkeit begrenzt, tritt in den Menisken auf. Es existiert ein Druck, der der Anlagerung bzw. dem Abtransport von smektischem Material entgegenwirkt. Dieser Druck ist abhängig von der Flussgeschwindigkeit und der Materialkonstante m (Mobilität von Dislokationen).
- Der gesamte Prozess ist invers proportional zur Filmdicke.

Somit kann bei geeigneter Wahl des Materials der Fluss in dünnen freistehenden Filmen durch Temperaturfelder kontrolliert werden. Außerdem konnten die Beobachtungen der ISS-Mission [83] mit Hilfe der Erkenntnisse der TEXUS-Kampagnen interpretiert werden [87].

Abschließend unterstreichen die gewonnenen Ergebnisse die Notwendigkeit, Marangoni-Fluss in allen Situationen zu berücksichtigen, in denen freistehende smektische Filme unter nicht isothermen Bedingungen untersucht werden. Überraschenderweise ist die Temperaturdifferenz θ der entscheidende Kontrollparameter. Dies steht im Kontrast zur Bénard-Marangoni- und zur Rayleigh-Bénard-Konvektion, bei denen der Temperaturgradient Θ entscheidend ist. Das entwickelte quantitative Modell dient als Basis für potentielle mikrofluidische Anwendungen.

5 Plateaugrenzen smektischer Filme

Die erste Plateau'sche Regel besagt, dass die Kontaktwinkel zwischen Filmen eines idealen Schaumes 120° betragen. Sie stellt ein zentrales Prinzip für die Struktur von Schäumen dar. Es wurde gezeigt, dass diese Regel in realen Schäumen, die einen nicht vernachlässigbaren Flüssigkeitsanteil besitzen, aufgrund von Linienspannungen nicht mehr streng gilt. Dies wird hier an smektischen Schäumen quantitativ überprüft. In der untersuchten Geometrie ist ein zentraler planarer Film von einer Plateaugrenze umgeben, die den zentralen Film mit zwei weiteren smektischen Filmen (Katenoidabschnitten) verbindet. Es wird gezeigt, dass die Geometrie, wie bei Seifenfilmen, mit Hilfe einer negativen Linienspannung der zirkularen Kontaktregion beschrieben werden kann. Der Gleichgewichtswinkel ist hierbei vom Flüssigkeitsanteil in der Plateaugrenze abhängig. Mit steigendem Flüssigkeitsanteil wird eine immer stärkere Abweichung von Plateaus erster Regel beobachtet. Die experimentellen Ergebnisse an smektischen Filmen bestätigen die Ergebnisse an Seifenfilmen qualitativ. Eine mögliche Ursache für die quantitativen Abweichungen wird diskutiert. Die Ergebnisse dieses Kapitels sind in [48] veröffentlicht. Alle notwendigen physikalischen Größen werden in diesem Kapitel neu definiert.

5.1 Einleitung

Schäume in den verschiedensten Zusammensetzungen spielen eine wichtige Rolle im alltäglichen Leben. Man findet sie in der Lebensmittelindustrie, bei der Produktion von Isolierstoffen, in der Reinigungsindustrie, bei der Feuerbekämpfung und in vielen weiteren Bereichen. Ein Überblick über die verschiedensten Anwendungen von Schäumen ist in Bikermans „Foams“ [91] oder in Prud'homme's „Foams: Theory, Measurements and Applications“ [92] zu finden. In Abbildung 5.1 sind Beispiele für feste und flüssige Schäume exemplarisch dargestellt.

Ein trockener Schaum besteht aus einem Ensemble von Zellen, das aus dünnen flüssigen Filmen gebildet wird. Hierbei befindet sich zwischen den Filmen ein eingeschlossenes Gas (z. B. Luft). Bereits in der Mitte des 19. Jahrhunderts stellte Joseph Antoine Ferdinand Plateau grundlegende wissenschaftliche Konzepte für die geometrische Struktur trockener Schäume vor [93] und auch die Alterung von Schäumen und deren Dynamik weckt seit Dekaden das Interesse von Wissenschaftlern auf der ganzen Welt [46, 47, 94–100]. So konnten quantitative Relationen für eine Vielzahl der Eigenschaften von Schäumen gefunden werden. Diese Erkenntnisse beruhen sowohl auf empirischen als auch auf analytischen Untersuchungen. Ein Großteil der Untersuchungen



Abbildung 5.1: Schäume spielen in vielen Bereichen eine wichtige Rolle. Sie werden zum Beispiel bei der Feuerbekämpfung, bei der Mineraliengewinnung und auch in der Nahrungsmittelindustrie genutzt. Brot ist ein Beispiel für einen festen Schaum.¹

beschäftigte sich mit der Struktur von Schäumen und deren Auswirkung auf die mechanischen Eigenschaften eines Schaumes [101–103]. Trotzdem sind Schäume immer noch extrem faszinierend und einige ihrer grundlegenden Eigenschaften bisher nicht vollständig verstanden. So gibt es noch viele offene Fragen zur Drainage in Schäumen und der Vergrößerung von Schaumstrukturen [104–107]. Zusätzlich liefert die Untersuchung von Schäumen auch Erkenntnisse, die auf andere wissenschaftliche Bereiche, wie zum Beispiel granulare Materialien [108] oder Kristallwachstum [109, 110], angewandt werden können.

Die Plateaugrenzen in Schäumen (der Bereich in dem sich einzelne Filme treffen) spielen eine entscheidende Rolle für die Schaumdynamik. Sie beinhalten den größten Teil der in Schäumen vorhandenen Flüssigkeit. Unter Scherung und Druckbelastung entsteht ein viskoser Fluss in den Plateaugrenzen und Energie wird in der Schaumstruktur dissipiert [111–113]. Aber auch ohne von außen wirkende Kräfte führt Gasdiffusion durch die dünnen Filme zu einer Reorganisation der einzelnen Blasen und somit zur Bewegung der Plateaugrenzen.

In mathematischen Modellen werden trockene Schäume oft auf polyedrische Zellen, die durch dünne Filme separiert sind, reduziert. Hierbei treffen sich die dünnen Filme auf Kontaktlinien, die das so genannte Skelett des Schaums bilden [12]. Dies spiegelt sich im abstrakten Modell des „trockenen Schaumes“ wider. In diesem Modell wird der Aufbau eines Schaumes durch einfache geometrische Regeln bestimmt. Eine dieser Regeln besagt, dass der Gleichgewichtswinkel zwischen 3 Filmen, die sich in einer Kontaktlinie treffen, 120° betragen muss. In diesem Fall kompensieren sich die auftretenden Kräfte (resultierend aus der Oberflächenspannung). Wenn der Flüssigkeitsanteil in einem Schaum, wie in realen Schäumen, nicht vernachlässigbar klein ist, sammelt sich die meiste Flüssigkeit entlang der Kontaktlinien und bildet die so genannten Plateaugren-

¹URL: <https://www.pexels.com/de-de/foto/alkohol-alkoholisches-getrank-bier-blasen-1571701/>

URL: <https://www.pexels.com/de-de/foto/backerei-backwaren-brot-brotkruste-162846/>

URL: https://pl.wikipedia.org/wiki/Piana_ga%C5%9Bnicza#/media/File:Kyrgyz_Republic_firefighters_extinguish_a_controlled_fire.JPG

Alle Dateien sind vom Urheber zur Verwendung freigegeben.

zen. Hierbei ändert die „Dekoration“ des Schaumskeletts die Struktur des Schaumes bei kleinen Flüssigkeitsmengen kaum. Betrachtet man den Sachverhalt jedoch genauer, so wird klar, dass Plateaus Regeln für dekorierte Schäume angepasst werden müssen. Konsequenzen der Dekorierung wurden zum Beispiel von Kern und Weaire diskutiert [114]. Schäume können nicht nur aus Tensidlösungen hergestellt werden. Während Seifenschäume seit Jahrzehnten extensiv untersucht wurden, sind Schäume aus komplexen Fluiden erst in der jüngeren Vergangenheit in den Fokus von Wissenschaftlern geraten. Schäume können auch aus lamellaren ionischen Flüssigkristallen oder smektischen Flüssigkristallen hergestellt werden [47, 115, 116]. Obwohl sich die innere Struktur von freistehenden Filmen aus Flüssigkristall (smektische Filme) grundlegend von der von Seifenfilmen unterscheidet, verhalten sich smektische Filme in verschiedenen Szenarien wie Seifenfilme. So zeigen smektische Schäume im Wesentlichen das gleiche Alterungsverhalten und besitzen die gleichen strukturellen Eigenschaften wie Seifenschäume [46, 47].

In den Untersuchungen von Müller et al. und May et al. wurden Katenoiden mit homogener Dicke aus smektischem Material erzeugt, um anschließend deren Kollaps beziehungsweise die Oszillation von smektischen Blasen zu untersuchen [9, 78–80]. Im Folgenden werden Geometrien aus smektischen Filmen im Gleichgewicht untersucht. Schäume aus smektischen Flüssigkristallen bieten im Vergleich zu „normalen“ Schäumen einige Vorteile. Zum einen tritt in ihnen kaum Drainage auf und zum anderen bestehen sie oft aus homogen dicken Filmen. Außerdem werden smektische Schäume nicht durch Verdunstung beeinflusst. Die zuvor genannten Eigenschaften machen smektische Schäume zu einem einzigartigen System, das bisher nur wenig untersucht wurde [46, 47].

5.2 Grundlagen

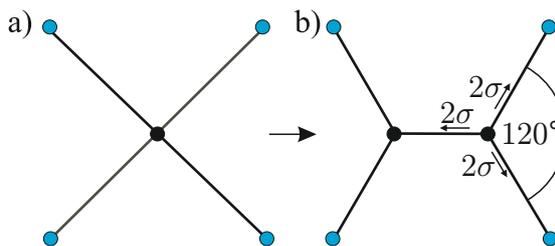
5.2.1 Plateaus Regeln

Joseph Antoine Ferdinand Plateau veröffentlichte im Jahr 1873 eine der ersten wissenschaftlichen Arbeiten auf dem Gebiet der Schäume. Die Publikation mit dem Titel „Statique Expérimentale et Théorique des Liquides soumis aux seules Forces Moléculaires“² [93] fasst die vorhergehende Geschichte der Untersuchungen an Schäumen zusammen und bildet den Grundstein für viele weitere wissenschaftliche Publikationen. In der Veröffentlichung postuliert Plateau anhand von Beobachtungen Gesetze zum strukturellen Aufbau trockener Schäume, die heute unter dem Begriff Plateaus Regeln bekannt und theoretisch bewiesen sind. Die Regeln lauten nach [46] wie folgt:

Regel I: *In einer Kante eines trockenen Schaumes treffen immer drei Filmflächen unter einem Winkel von 120° aufeinander und bilden so eine Plateaugrenze*

Diese Regel kann durch energetische Betrachtungen veranschaulicht werden, dies ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Der eingeschlossene Winkel von 120° folgt aus dem Gleichgewicht der Oberflächenkräfte.

Abbildung 5.2: Ein Schnitt aus vier Filmen kann immer in zwei Schnitte aus drei Filmen aufgeteilt werden. Hierbei wird die Oberflächenenergie des Gesamtsystems reduziert. Für das dargestellte Beispiel verkürzt sich die Linienlänge von a) $2 \cdot \sqrt{2} = 2,824$ Längeneinheiten auf b) 2,732 Längeneinheiten.



Regel II: *In trockenen Schäumen treffen sich immer vier Schnittlinien (Plateaugrenzen) in einem Eckpunkt. Diese tetraedrischen Abzweige sind symmetrisch und die Schnittlinien schließen einen Winkel von $\varphi = \arccos(-1/3) \approx 109,5^\circ$ ein [46].*

Diese Regel wurde erst im Jahr 1976 durch Jean E. Taylor in der Publikation „The Structure of Singularities in Soap-bubble-like and Soap-film-like Minimal Surfaces“ [117] bewiesen und ist in Abbildung 5.3 veranschaulicht.

Plateaus Regeln gelten nur für ideal trockene Schäume. Für dekorierte Schäume³ gilt eine dritte Regel, die das Gleichgewicht der Oberflächenkräfte ausdrückt und besagt, dass Plateaugrenzen in scharfen Kanten auslaufen, siehe Abbildung 5.4.

²„Experimentelle und theoretische Statik von Flüssigkeiten, die nur molekularen Kräften unterliegen“

³Als dekorierte Schäume werden Schäume bezeichnet, die weder ideal als trocken noch ideal als feucht angesehen werden können. Hierbei sind die Blasen durch dünne Filme getrennt und der Großteil der im Schaum enthaltenen Flüssigkeit befindet sich in den Plateaugrenzen [12].

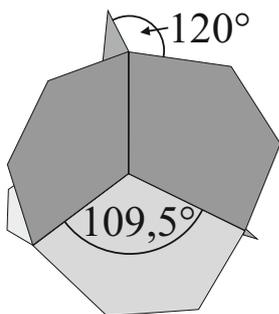


Abbildung 5.3: In einem trockenen Schaum ist der Winkel zwischen zwei Filmen 120° . Außerdem bilden die Plateaugrenzen einen Winkel von $109,5^\circ$.

Regel III: Am Übergangspunkt zwischen Film und Plateaugrenze ist die Oberflächennormale auf beiden Seiten der Fläche gleichgerichtet [46].

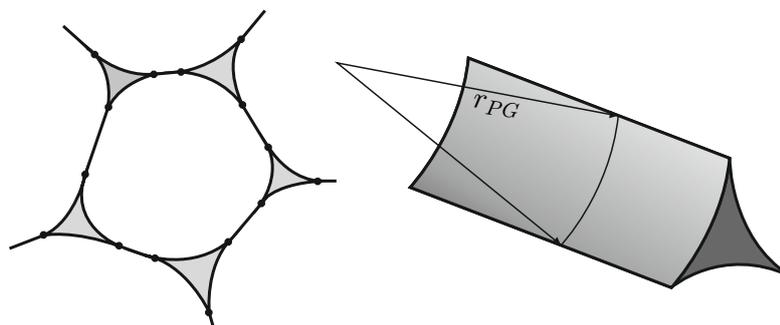


Abbildung 5.4: Plateaus Regel III besagt, dass Plateaugrenzen nahtlos in Linien (2D links) bzw. Filme (3D rechts) übergehen. Dies bedeutet, dass die Oberflächennormalen beider Seiten am Übergangspunkt oder der Übergangslinie parallel sind [46].

Für feuchte Schäume gibt es keine generell gültigen Stabilitätsregeln. Für Schäume mit geringem Flüssigkeitsanteil φ_{FL} ergeben sich Abweichungen von Plateaus Regeln. So kann zum Beispiel der eingeschlossene Winkel zwischen zwei Filmen im dekorierten Schaum größer oder auch kleiner als 120° sein. Dies wird im folgenden Abschnitt näher betrachtet.

5.2.2 Plateaus erste Regel in dekorierten Schäumen

Bei ihren Untersuchungen zur Alterung von zweidimensionalen Schäumen stellten J.A. Glazier und J. Stavans Abweichungen von Plateaus erster Regel fest [95–97]. In zweidimensionalen dekorierten Schäumen fand man eine Abhängigkeit des mittleren Innenwinkels von der Seitenzahl der Blasen. Blasen mit Seitenzahlen größer als 6 hatten hierbei einen mittleren Innenwinkel größer 120° und Blasen mit einer Seitenzahl kleiner als 6 einen mittleren Innenwinkel kleiner als 120° , siehe Abbildung 5.5.

Es stellte sich heraus, dass die Abweichungen aufgrund der Art der Winkelbestimmung entstanden. Glazier und Stavans bestimmten die Innenwinkel am Übergang zur Plateaugrenze. Eine Winkelbestimmung im Schnittpunkt der für die Filme repräsentativen Kreisbögen liefert einen von der Blasenseitenzahl unabhängigen Innenwinkel von

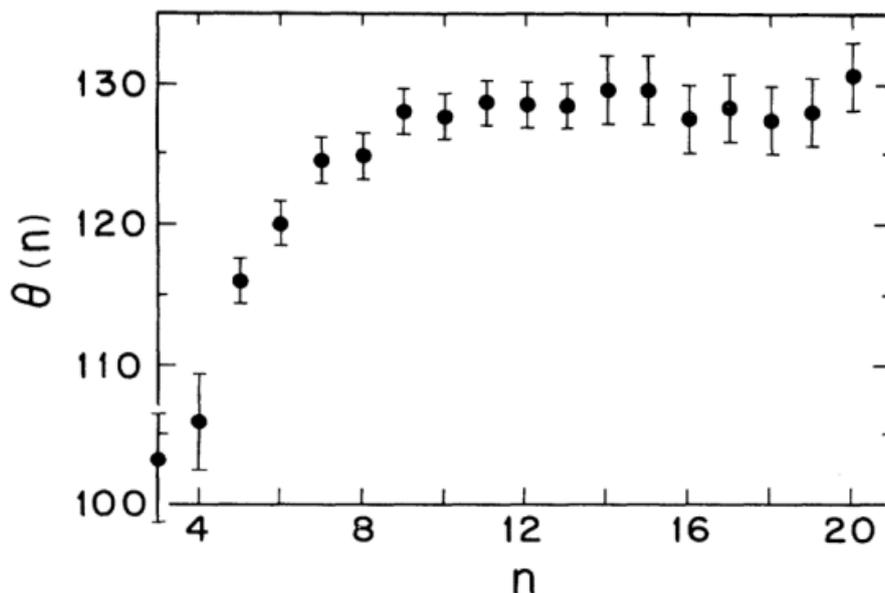


Abbildung 5.5: Abhängigkeit des mittleren Innenwinkels (hier Θ) in n seitigen Blasen in einem zweidimensionalen dekorierten Seifenschaum. Plateaus erste Regel ist nur für 6-seitige Blasen erfüllt [97].

120°. Dass der Winkel zwischen zwei Filmen in einem zweidimensionalen dekorierten Schaum 120° beträgt, wurde von F. Bolton und D. Weaire bewiesen [118, 119]. Somit können die Schnittpunkte in einem trockenen zweidimensionalen Schaum ($\varphi_{Fl} \rightarrow 0$) durch Plateaugrenzen ersetzt werden, ohne die Struktur des Schaumes zu ändern. Dies wird als Dekorationstheorem bezeichnet, siehe Abbildung 5.6.

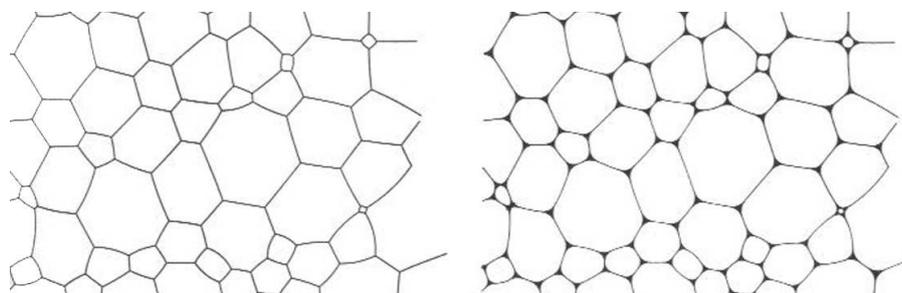


Abbildung 5.6: Indem die Abzweige in einem trockenen 2D-Schaum (links) durch aufgeweitete Abzweige ersetzt werden, wird das Aussehen eines Schaums mit höherem Flüssigkeitsanteil (rechts) simuliert. Dieses Vorgehen wird als Dekorationstheorem bezeichnet. Solange die Blasen noch deutlich durch dünne Filme getrennt sind, gelten Plateaus Regeln [12, 46].

Für Filme in dreidimensionalen dekorierten Schäumen gibt es keinen Beweis, dass sie sich immer unter einem Winkel von 120° treffen. Vielmehr wurde in verschiedenen Publikationen [120–123] gezeigt, dass sich der eingeschlossene Winkel mit steigendem Flüssigkeitsanteil in der Plateaugrenze ändert. Zunächst zeigten Krotov und Rusanov,

dass eine Erhöhung des Flüssigkeitsanteils in der Plateaugrenze zu einer Reduzierung der Gesamtoberflächenenergie und somit zu einer korrespondierenden negativen Linienspannung der Plateaugrenze führt [124, 125]. Dies kann an einem einfachen Beispiel demonstriert werden, siehe Abbildung 5.7.

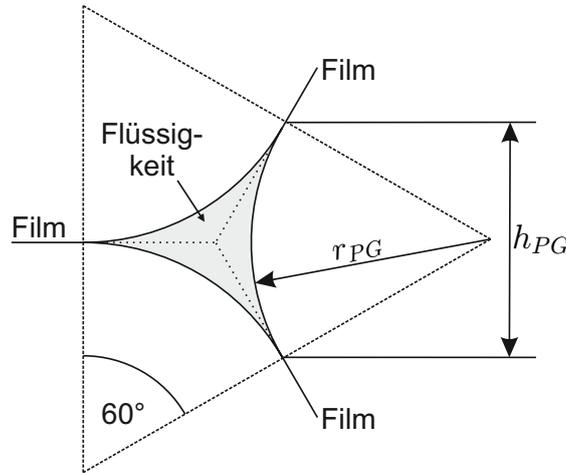


Abbildung 5.7: Schnitt durch eine Plateaugrenze. Die Gesamtlinienslänge des Schnitts (trockener Schaum, gestrichelte Linien) wird durch die Dekoration mit Flüssigkeit (durchgezogene Linien) reduziert.

In diesem Beispiel treffen sich drei planare Filme unter einem Winkel von 120° . Der Oberflächenenergieunterschied pro Länge $\Delta\varepsilon_{OF}$ zwischen einem trockenen Schaum ($r_{PG} \rightarrow 0, \varphi_{Fl} \rightarrow 0$) und einem dekorierten Schaum ($r_{PG} > 0, \varphi_{Fl} > 0$) beträgt

$$\Delta\varepsilon_{OF} = \sigma(\pi - 2\sqrt{3})r_{PG} \approx -0,32\sigma r_{PG}, \quad (5.1)$$

mit der Oberflächenspannung σ und dem Radius r_{PG} . Die Dekorationsenergie $\Delta\varepsilon_{OF}$ ist negativ und proportional zum Radius r_{PG} . Für die zugehörige Linienspannung T bei konstantem Flüssigkeitsanteil φ_{Fl} in der Plateaugrenze ergibt sich

$$T = \left. \frac{\partial l(\Delta\varepsilon_{OF})}{\partial l} \right|_{\varphi_{Fl}} = \frac{\Delta\varepsilon_{OF}}{2}, \quad (5.2)$$

hierbei ist l die Länge der Plateaugrenze [121]. Im folgenden Teil wird gezeigt, dass diese Linienspannung zu Abweichungen des zwischen den Filmen eingeschlossenen 120° -Winkels führen kann.

Nimmt man einen zirkularen Film, der von zwei weiteren Filmen gehalten wird, siehe Beispiel in Abbildung 5.8, so folgt aus dem Kräftegleichgewicht in der Ebene des zentralen Films

$$\cos \alpha + \cos \beta = 1 + \frac{T}{2\sigma R} = 1 - \frac{(\sqrt{3} - \pi/2) r_{PG}}{2R}, \quad (5.3)$$

mit dem Radius des zentralen zirkularen Films, bzw. der umgebenden Plateaugrenze R . Wenn die Winkel α und β einen Wert um 60° besitzen, kann man die Winkel in

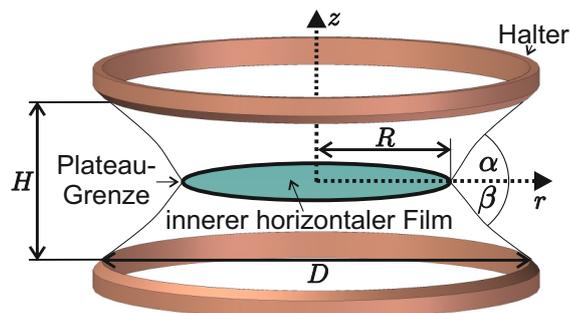


Abbildung 5.8: Schematische Darstellung einer 3-Film-Geometrie, aufgespannt zwischen zwei kreisrunden Haltern mit gleichem Durchmesser D .

kleine Abweichungen von 60° entwickeln. Es gilt $\alpha' = \alpha - 60^\circ$ und $\beta' = \beta - 60^\circ$; $\cos \alpha \approx 1/2 - \sqrt{3}\alpha'/2$ und $\cos \beta \approx 1/2 - \sqrt{3}\beta'/2$ und somit

$$\alpha' + \beta' = \theta - 120^\circ \approx \left(1 - \frac{\pi}{\sqrt{12}}\right) \frac{r_{PG}}{R}, \quad (5.4)$$

mit dem eingeschlossenen Winkel $\theta = \alpha + \beta$. Es ergibt sich der folgende lineare Zusammenhang zwischen dem eingeschlossenen Winkel θ und dem Verhältnis r_{PG}/R :

$$\theta = 5,33^\circ \cdot \frac{r_{PG}}{R} + 120^\circ. \quad (5.5)$$

Für Seifenfilme wurde dieses Modell experimentell untersucht und bestätigt. Die Ergebnisse von Géminard et al. [121] (an einem zirkularen Film aufgespannt von zwei Katenoidabschnitten) sind in der Abbildung 5.9 dargestellt.

Fortes und Teixeira [122] sagen folgenden Zusammenhang für den zwischen den Filmen eingeschlossenen Winkel voraus:

$$\theta = 120^\circ + \frac{180^\circ}{\pi} \frac{1}{4\pi r_{PG}^2 \sqrt{3}} (2S_{trocken} - S_{PG}). \quad (5.6)$$

Hierbei ist $(2S_{trocken} - S_{PG})$ die Oberflächenreduktion der Gesamtoberfläche durch Dekoration. Diese Ergebnisse wurden von Besson et al. [123] durch Untersuchungen an einer Doppelblase experimentell bestätigt, siehe Abbildung 5.10.

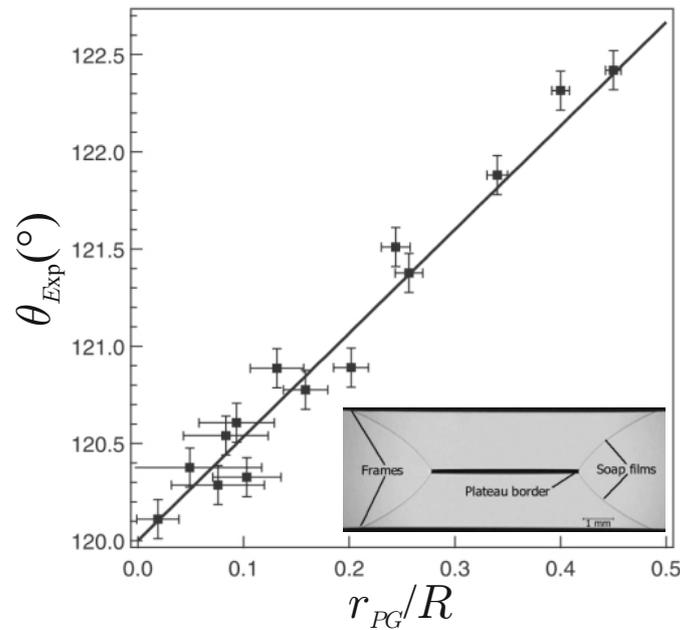


Abbildung 5.9: Abhängigkeit des eingeschlossenen Winkels θ_{Exp} vom Verhältnis r_{PG}/R aus der Publikation von Geminard et al. [121]. Die Messung erfolgte an einer 3-Film-Geometrie zwischen zwei kreisrunden offenen Haltern (siehe Einsatz).

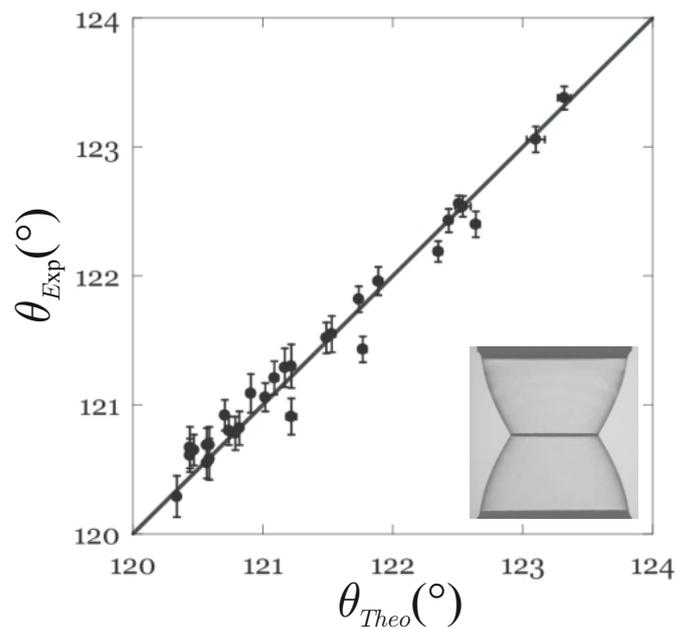


Abbildung 5.10: Experimentell bestimmter statischer Kontaktwinkel θ_{Exp} als Funktion des von Fortes und Teixeira [122] vorhergesagten Kontaktwinkels θ_{Theo} . Jeder Punkt stellt einen Mittelwert aus mehreren Messungen für verschiedene Verhältnisse r_{PG}/R dar [123]. Die Messungen wurden an einer Doppelblasengeometrie durchgeführt (siehe Einsatz).

5.3 Experimenteller Aufbau, Probenpräparation und Bildanalyse

5.3.1 Experimenteller Aufbau und verwendeter Flüssigkristall

Der experimentelle Aufbau zur Untersuchung von Plateaugrenzen flüssigkristalliner Filme ist angelehnt an die von Géminard et al. verwendete Geometrie [121]. Er besteht aus zwei coaxial angeordneten zylindrischen Haltern, einer Digitalkamera zur Bildaufnahme und einer Beleuchtung, siehe Abbildung 5.11. Die zylindrischen Halter haben einen Innendurchmesser von 10 mm und sind an den Kontaktflächen gefast, um eine definierte Position der Katenoide zu gewährleisten, siehe Abbildung 5.8. Einer der beiden Halter ist auf einem manuellen Lineartisch montiert, um den Abstand H zwischen den Haltern variieren zu können.

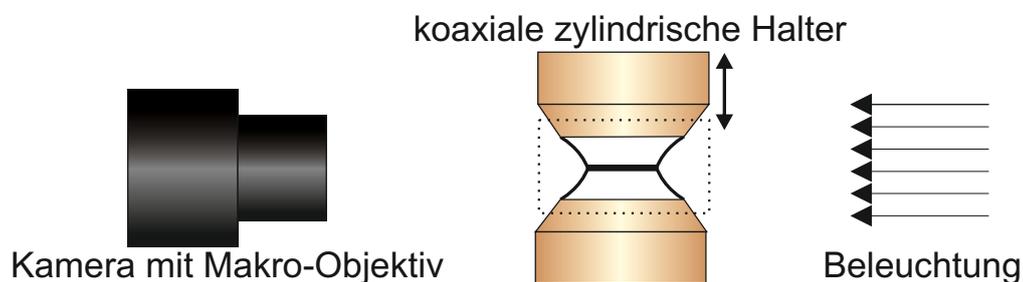


Abbildung 5.11: Schematische Darstellung der Versuchsanordnung zur Untersuchung des Einflusses flüssigkristalliner Plateaugrenzen auf den Kontaktwinkel. Die 3-Film-Geometrie wird zwischen zwei zylindrischen Haltern mit Durchmesser D erzeugt. Hierbei kann der Abstand zwischen den Haltern H mit einem Lineartisch variiert werden. Die 3-Film-Geometrie wird beleuchtet, indem eine LED im Brennpunkt einer Linse platziert wird. Dies ermöglicht eine Ausleuchtung mit annähernd parallelem Licht. Die Film-Geometrie wird mit einer Digitalkamera mit Makroobjektiv aufgenommen.

Die Beleuchtung der flüssigkristallinen Filme erfolgt wahlweise mit monochromatischem oder weißem Licht. In Abbildung 5.12 sind typische Seitenansichten der Konfiguration dargestellt. Die Katenoid-Filme mit Dicken zwischen 100 nm und wenigen Mikrometern erscheinen transparent und zeigen charakteristische Interferenzfarben (bei weißem Licht) oder Interferenzmuster (bei monochromatischem Licht). Anhand des Transmissions-Profiles bei monochromatischer Beleuchtung kann die Filmdicke wie in [9, 50] bestimmt werden. Die Plateaugrenzen erscheinen als schwarzes Band in den Transmissionsbildern, da die einfallenden Lichtstrahlen gebrochen werden.

Die Filme werden aus dem Standardflüssigkristall 8CB (4-cyano-4'-octylbiphenyl) in der smektischen A-Phase hergestellt. Das benutzte Material besitzt eine Reinheit von 99,6 % (GC) und wurde von der SYNTHON Chemicals GmbH kommerziell produziert. Die Strukturformel und die Phasensequenz von 8CB sind in Abbildung 5.13 dargestellt.

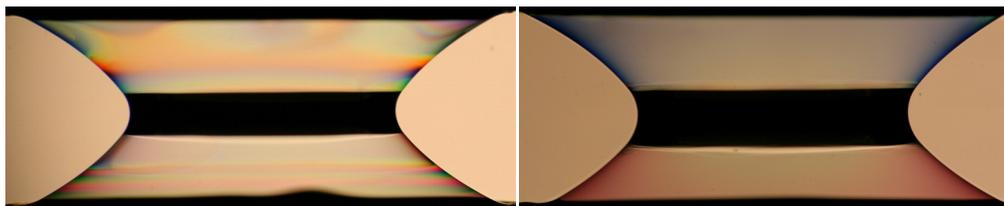


Abbildung 5.12: Aufnahmen von Katenoid-Film-Geometrien mit ungleichmäßiger (links, kurz nach der Präparation) und gleichmäßiger Filmdicke (rechts, im Äquilibrium). Die Filmdicke kann anhand der Interferenzfarben abgeschätzt werden. Im inhomogenen Fall (links) beträgt die Filmdicke mehrere 100 Schichten und im homogenen Fall (rechts) weniger als 50 Schichten. Die Plateaugrenze erscheint schwarz zwischen den freistehenden Filmen, da das einfallende Licht gebrochen wird.

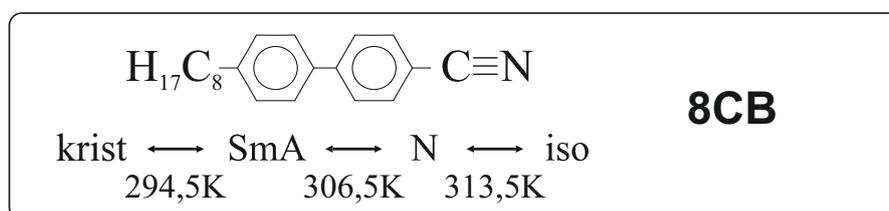


Abbildung 5.13: Strukturformel und Phasensequenz des Flüssigkristalls 4-cyano-4'-octylbiphenyl (8CB).

5.3.2 Probenpräparation

Die Plateaugrenze zwischen drei freistehenden smektischen Filmen wird in mehreren Schritten bei Zimmertemperatur ($\approx 25^\circ\text{C}$) präpariert. Zunächst wird der untere Halter mit Flüssigkristall benetzt. Anschließend werden beide Halter mit Hilfe des Lineartisches in Kontakt gebracht, so dass der Flüssigkristall beide Halter komplett verbindet. Nun vergrößert man den Abstand H zwischen den beiden Haltern langsam und es bildet sich ein Katenoid. Beim Überschreiten des kritischen Abstandes $H_c \approx 0,66274D$ [9] kollabiert der Katenoid und hinterlässt zwei kreisförmige, smektische Filme an den Enden der Halter. Nun wird der obere Film durch Zerstechen zerstört, die Halter werden wieder in Kontakt gebracht und ein neues Katenoid gezogen. Die entstehende Struktur besteht aus zwei Katenoidabschnitten und einem zwischen ihnen aufgespannten horizontalen Film, siehe Abbildung 5.8. Die so erzeugte drei Film-Geometrie ist theoretisch bis zu einem Abstand $H_{krit} \approx 0,405D$ stabil. Aus diesem Grund werden die Experimente nur mit Abständen $H < 0,4D$ durchgeführt. Die Menge an Flüssigkristall in der Plateaugrenze wird durch die Menge von Flüssigkristall auf den Haltern beeinflusst, kann aber nicht exakt eingestellt werden. Mehr Flüssigkristall auf den Haltern führt gewöhnlich zu einer dickeren zentralen Plateaugrenze.

5.3.3 Bildaufnahme und Bildanalyse

Zur Aufnahme der Film-Geometrie wird eine Canon EOS 400D Digitalkamera mit Canon EF-S 60 Makroobjektiv verwendet. Die Auflösung beträgt etwa 2,8 Mikrometer pro Pixel ($\mu\text{m}/\text{px}$). Anschließend werden die Aufnahmen mit einem eigens entwickelten MATLAB-Programm bearbeitet und analysiert. Die wichtigsten Schritte vom Originalbild bis zur Ermittlung des eingeschlossenen Winkels $\theta = \alpha + \beta$ sind in Abbildung 5.14 dargestellt. Die Bildanalyse besteht aus folgenden Schritten: Zunächst wird das Originalbild in ein Graustufenbild umgewandelt. Anschließend erfolgt eine Subtraktion des vorher aufgenommenen Hintergrundes und ein Zuschnitt des so erhaltenen Bildes. Im zugeschnittenen Bild werden anschließend die Katenoidprofile mit einer Kantendetektion ermittelt, siehe Abbildung 5.14 b). Nun bestimmt man die Rotationsachse z und dreht das Bild, bis die Rotationsachse parallel zur y -Achse des Bildkoordinatensystems verläuft. Die Abweichung zwischen Rotationsachse und y -Achse liegen im Bereich von $\pm 1^\circ$. Es folgt die Bestimmung der Koordinaten $r(z)$ der Katenoid-Geometrie. Zusätzlich wird die Position der Plateaugrenze und deren Höhe h_{PG} mit einer Genauigkeit von $\Delta h_{PG} \approx 20 \mu\text{m}$ manuell bestimmt. Das folgende Analyseverfahren ist angelehnt an Methoden aus den Veröffentlichungen von Geminard et al. [121] und Besson et al. [123]. Zunächst werden die Koordinaten der Filme oberhalb und unterhalb der zentralen Plateaugrenze durch eine hyperbolische Kosinusfunktion

$$r(z) = a \cosh \frac{(z - z_0)}{a} \quad (5.7)$$

approximiert. Im Detail wird eine Koordinatentransformation $z \rightarrow z'$ und $z' = 0$ an den Haltern durchgeführt. Somit ergibt sich

$$r(z') = a \cosh \left(\operatorname{arccosh} \left(\frac{R_0}{a} \right) - \frac{z'}{a} \right) \quad (5.8)$$

mit dem Katenoidradius $R_0 = r(z' = 0) = D/2$ am Halter und dem einzigen freien Parameter a . Im Idealfall bildet der innere aufgespannte Film eine Spiegelebene der Struktur. Allerdings führen kleine Abweichungen der Filmposition an den Haltern und Gravitationseffekte zu kleinen Unterschieden zwischen dem oberen Film (türkise Linien in Abbildung 5.14 c) und unteren Film (grüne Linien in Abbildung 5.14 c). Somit erfolgt für jeden Film eine separate Anpassung mit der Cosinus Hyperbolicus Funktion. Nun wird der Schnittpunkt der approximierten Funktionen (türkise und grüne Linien in Abbildung 5.14 c) bestimmt. Der Abstand zwischen Rotationsachse z und dem Schnittpunkt ergibt den Radius R der Plateaugrenze. Abschließend werden die Winkel α und β anhand des Anstiegs der approximierten Funktionen im Schnittpunkt bestimmt und der eingeschlossene Winkel $\theta = \alpha + \beta$ berechnet. Für den linken und rechten eingeschlossenen Winkel gilt in allen Fällen $|\theta_{\text{links}} - \theta_{\text{rechts}}| < 0,05^\circ$. Der in den folgenden Abschnitten angegebene Winkel θ ist das arithmetische Mittel aus θ_{links} und θ_{rechts} .

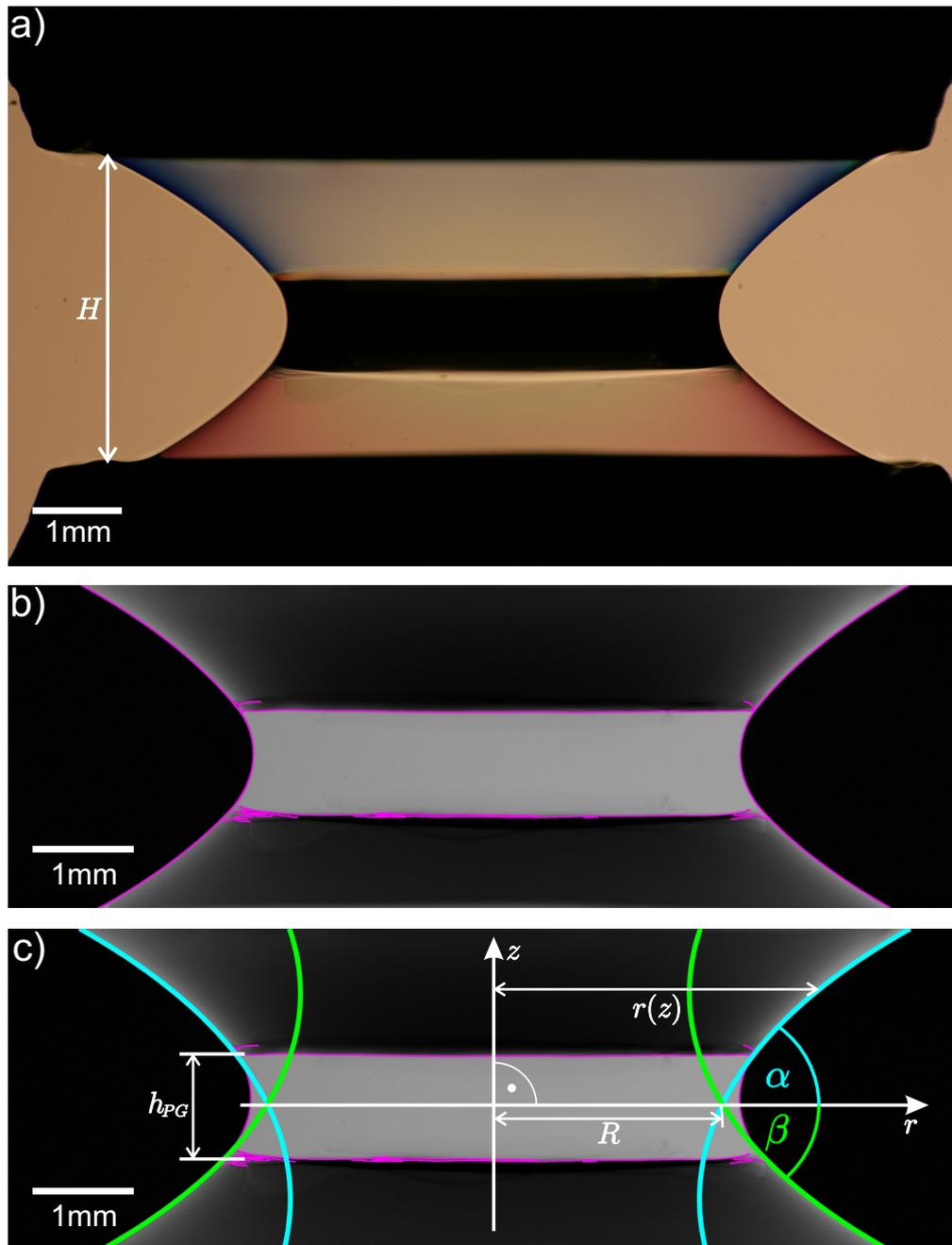


Abbildung 5.14: Veranschaulichung der Bildanalyse anhand einer repräsentativen Aufnahme der Katenoid-Film-Geometrie. Bild a) zeigt das Originalbild bei Beleuchtung mit weißem Licht, zusätzlich ist der Abstand H der Katenoidhalter gekennzeichnet. Der innere kreisrunde Film ist durch die Plateaugrenze verdeckt. Bild b) zeigt das Bild nach der Bildbearbeitung (Zuschnitt, Grauwertumwandlung, Hintergrundsubtraktion) und die detektierten Kanten (magenta). In Bild c) sind die angepassten Funktionen $r(z) = a \cosh((z - z_0)/a)$ für den oberen Katenoid-Film (türkis) und den unteren Katenoid-Film (grün) dargestellt. Außerdem ist der Filmradius R des inneren Films, der sich aus dem Schnittpunkt der angepassten Funktionen und der Symmetrieachse ergibt, sowie die Höhe h_{PG} der Plateaugrenze dargestellt.

5.4 Ergebnisse

5.4.1 Relaxationszeit der Film-Geometrie

Um sicherzustellen, dass sich die Filme während der Messungen im Gleichgewicht befinden, wurde zunächst die Equilibrierungszeit der Filmgeometrien untersucht. Hierzu wurden von verschiedenen Filmanordnungen im Intervall von einer Minute Bildaufnahmen erzeugt und mit der oben beschriebenen Methode ausgewertet. Eine exemplarische Bildreihe ist in Abbildung 5.15 a) dargestellt. In dieser Bildreihe sind Unterschiede zwischen den Aufnahmen kaum auszumachen. Allerdings werden Veränderungen deutlich, wenn man aufeinander folgende Aufnahmen voneinander subtrahiert, siehe Abbildung 5.15 b). Man erkennt deutlich, dass sich die Film-Geometrie in den ersten Minuten noch verändert. Nach zirka 8 Minuten sind kaum noch Änderungen zu erkennen und die Film-Geometrie (vor allem der Verlauf der Katenoidabschnitte und die Dicke der Plateaugrenze) bleibt konstant.

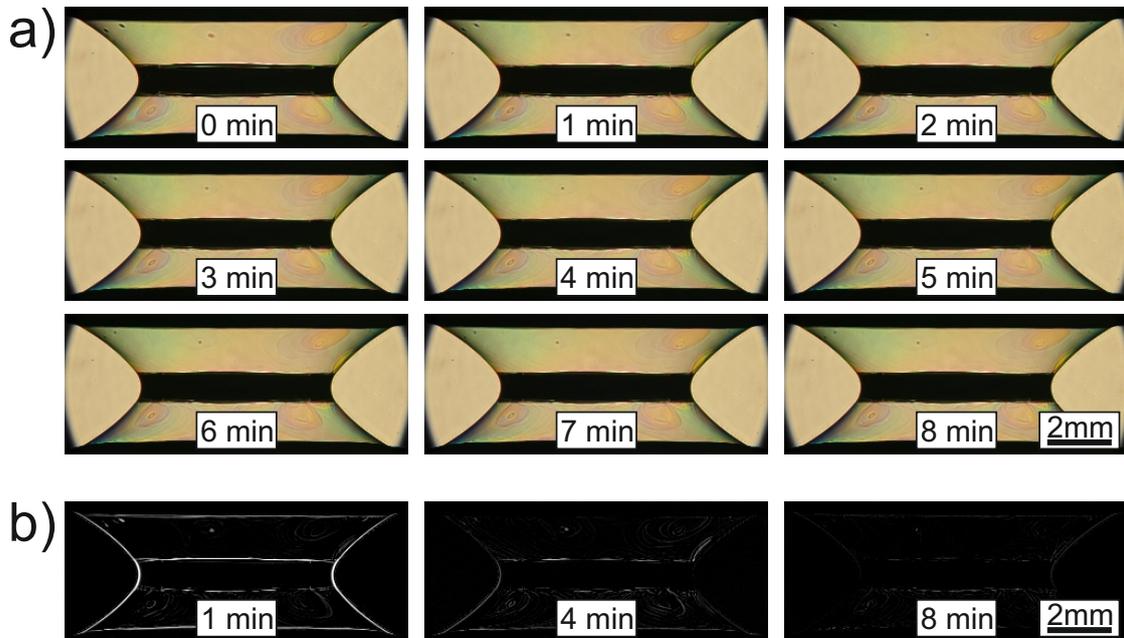


Abbildung 5.15: a) Darstellung der zeitlichen Entwicklung einer 3-Film-Geometrie. Auf den ersten Blick sind kaum Veränderungen an der Film-Geometrie zu erkennen. Nach zirka 8 Minuten kann man davon ausgehen, dass sich die Filme im Gleichgewicht befinden. Dies wird im unteren Teil b) verdeutlicht. b) Um festzustellen, nach welcher Zeit sich die Film-Geometrie nicht mehr verändert, wurden von 3 Bildern die vorhergehenden Bilder (zeitlicher Abstand 1 Minute) subtrahiert. Während in der ersten Minute noch deutliche Veränderungen sichtbar sind (helle Bereiche im linken Bild), werden diese im Laufe der Zeit (von links nach rechts) geringer. Nach 8 Minuten sind die Bilder bis auf minimale Unterschiede identisch (keine hellen Bereiche im rechten Bild) und die Geometrie verändert sich nicht mehr.

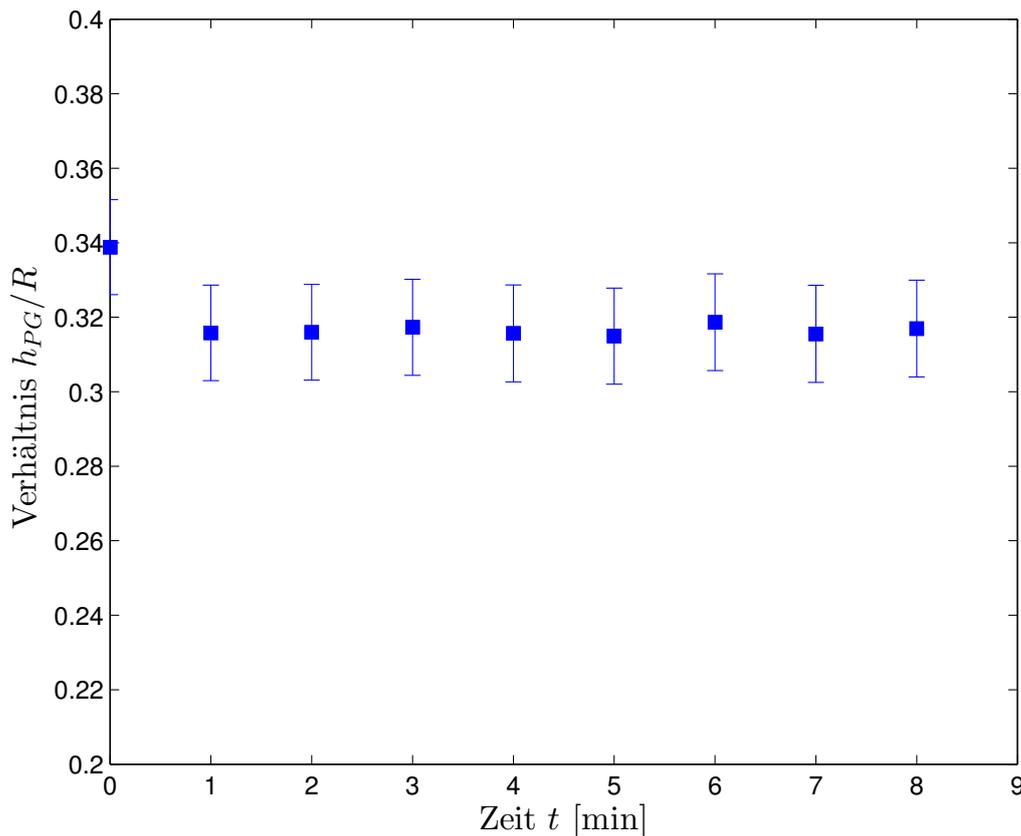


Abbildung 5.16: Zeitliche Entwicklung des Verhältnisses h_{PG}/R für die Katenoid-Geometrie aus Abbildung 5.15 nach Einstellung des Abstandes H . Das Verhältnis ändert sich nur innerhalb der ersten Minute und ist dann im Bereich des Messfehlers konstant. Dies ist ein weiteres Zeichen, dass sich die Filme zum Messzeitpunkt (10 Minuten nach Abstandseinstellung) im Gleichgewicht befinden.

Die in den Bildern sichtbare Relaxation spiegelt sich auch in den Messwerten wider. In den Abbildungen 5.16 und 5.17 ist zu erkennen, dass vor allem bei hohem Flüssigkeitsanteil in der Plateaugrenze ($h_{PG}/R > 0,2$) sowohl das Verhältnis h_{PG}/R als auch der eingeschlossene Winkel θ eine Zeitabhängigkeit zeigt. Die Messwerte erreichen einen innerhalb des Messfehlers konstanten Wert nach zirka fünf Minuten. Alle folgenden Messungen wurden an Geometrien durchgeführt, die vorher mindestens 10 Minuten relaxiert sind. Dies stellt sicher, dass alle Messdaten im Gleichgewichtszustand ermittelt werden.

5.4.2 Hysterese-Effekte

Im zweiten Schritt wurde die Struktur auf Hysterese-Effekte untersucht. Hierzu wurde mit der in Abschnitt 5.3.2 beschriebenen Methode die Film-Geometrie mit der zentralen Plateaugrenze erzeugt und anschließend der Abstand der Halter H variiert. Um einen Kollaps der Filme zu verhindern, begannen die Untersuchungen bei $H = 3,5$ mm und

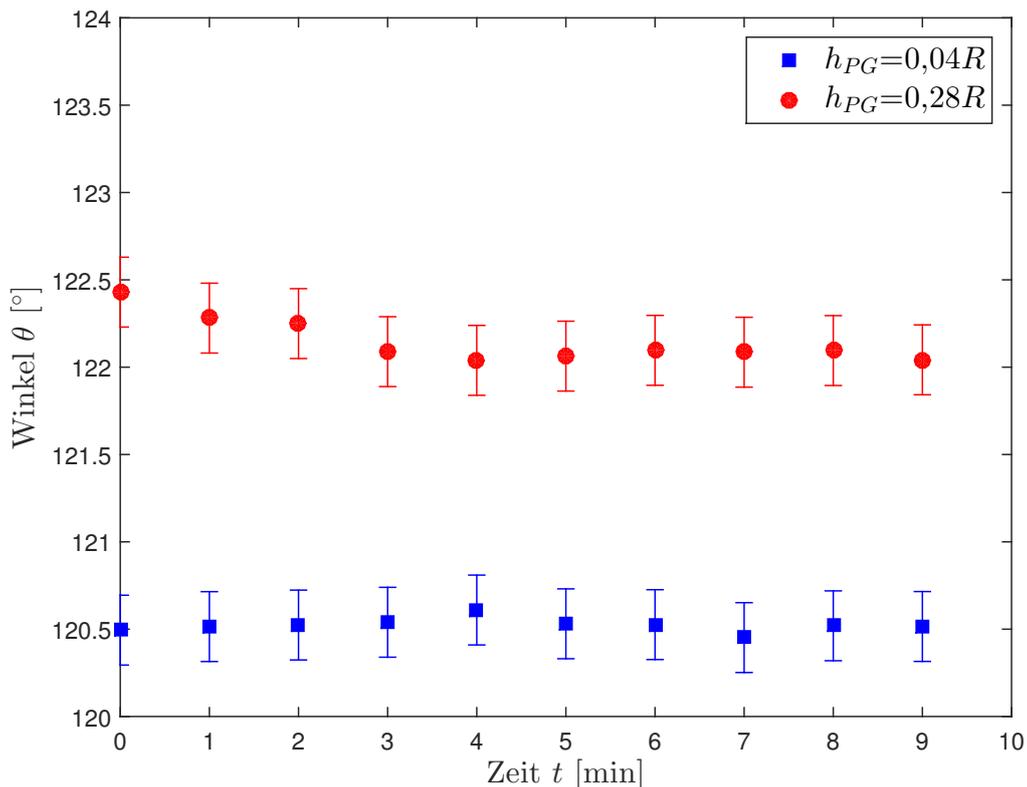


Abbildung 5.17: Zeitliche Entwicklung des zwischen den Katenoidabschnitten eingeschlossenen Winkels $\theta = \alpha + \beta$ für zwei verschiedene Verhältnisse h_{PG}/R . Bei einem kleinen Verhältnis $h_{PG}/R = 0,04$ stellt sich ein im Bereich des Messfehlers konstanter Winkel θ instantan ein. Während für große Verhältnisse (hier $h_{PG}/R = 0,28$) eine Equilibationszeit zu erkennen ist.

der Abstand wurde anschließend in Schritten von $\Delta H = 0,2$ mm bis auf $H = 2,5$ mm reduziert. Dann wurde der Abstand H bis zum Kollaps der Geometrie, mit der gleichen Schrittweite erhöht. Der Kollaps erfolgte meist vor dem Erreichen des kritischen Abstandes $H_{krit} = 0,405D$ beim Schritt von $H = 3,7$ mm \rightarrow 3,9 mm bzw. in der Relaxationszeit bei $H = 3,9$ mm. Dies liegt daran, dass die Filmkonstellation in der Nähe von H_{krit} instabil ist und somit kleinste Störungen (z. B. ein Luftzug) die Geometrie zerstören können. Eine Messreihe ist in Abbildung 5.18 dargestellt. In Abbildung 5.19 ist der Verlauf $\theta(H)$ dargestellt. Im Bereich des experimentellen Fehlers ist keine Hysterese zu erkennen. Es ist ersichtlich, dass ein größerer Abstand H zu einem größeren eingeschlossenen Winkel θ führt. Dies ist auf die Änderung des Verhältnisses h_{PG}/R zurückzuführen. Im Bereich der vorgenommenen Abstandsvariation führt ein größeres H zu einem größeren Verhältnis h_{PG}/R , siehe Abbildung 5.20. Dies liegt vor allem an der Verkleinerung von R mit steigendem H , da die Höhe der Plateaugrenze h_{PG} bei konstantem Flüssigkeitsanteil weniger stark wächst, siehe 5.18.

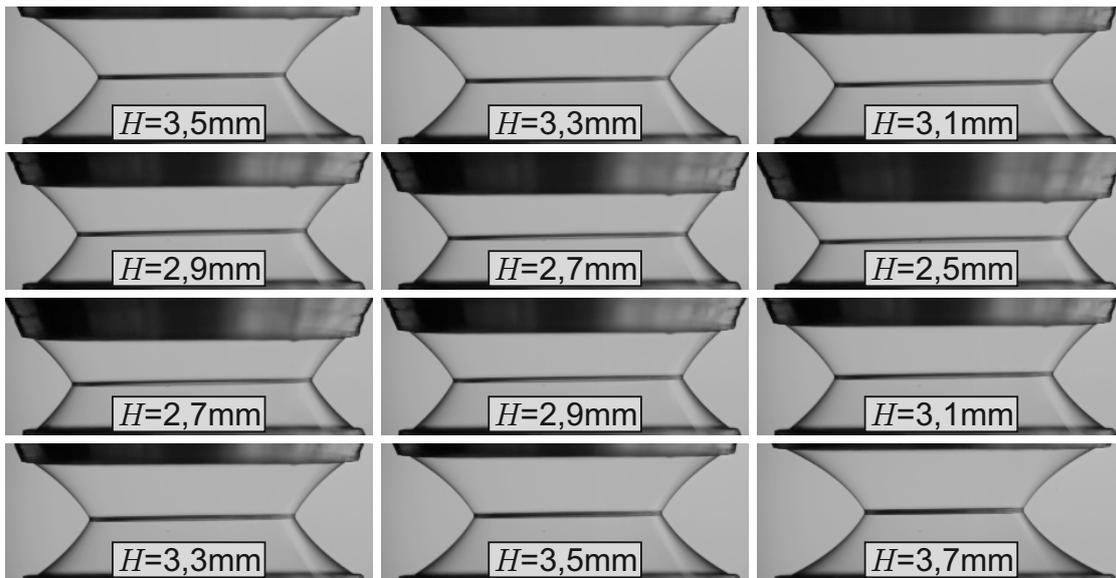


Abbildung 5.18: Gleichgewichtsformationen einer Katenoid-Geometrie bei schrittweiser Variation des Abstandes H . Durch die Variation ändert sich sowohl das Verhältnis h_{PG}/R als auch der eingeschlossene Winkel θ , siehe Abbildung 5.19 und Abbildung 5.20.

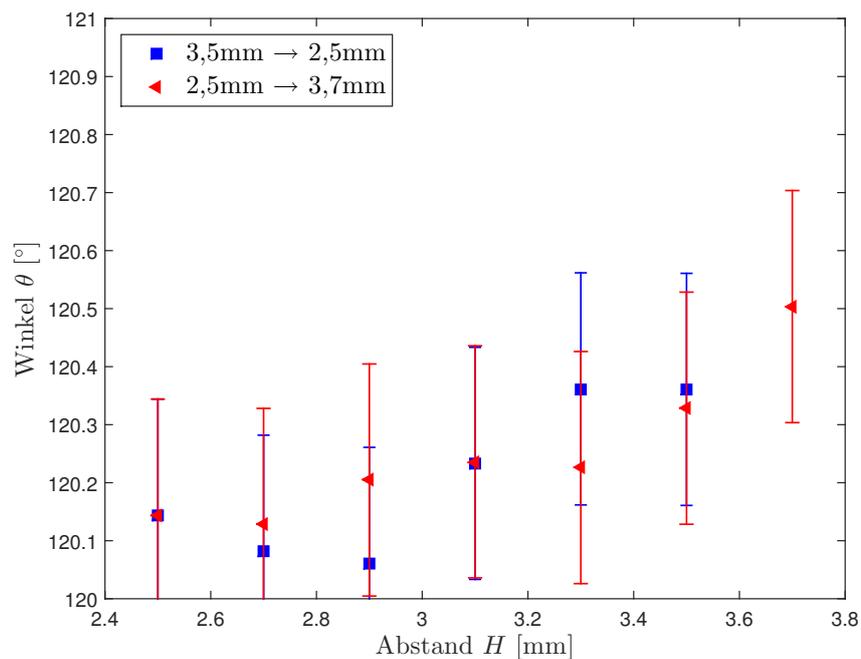


Abbildung 5.19: Veränderung des eingeschlossenen Winkels θ bei schrittweiser Variation des Halterabstandes H . Tendenziell führt ein größerer Abstand H zu einem größeren Winkel, insbesondere für $H > 3$. Im Bereich der Messgenauigkeit sind keine Hysterese-Effekte erkennbar.

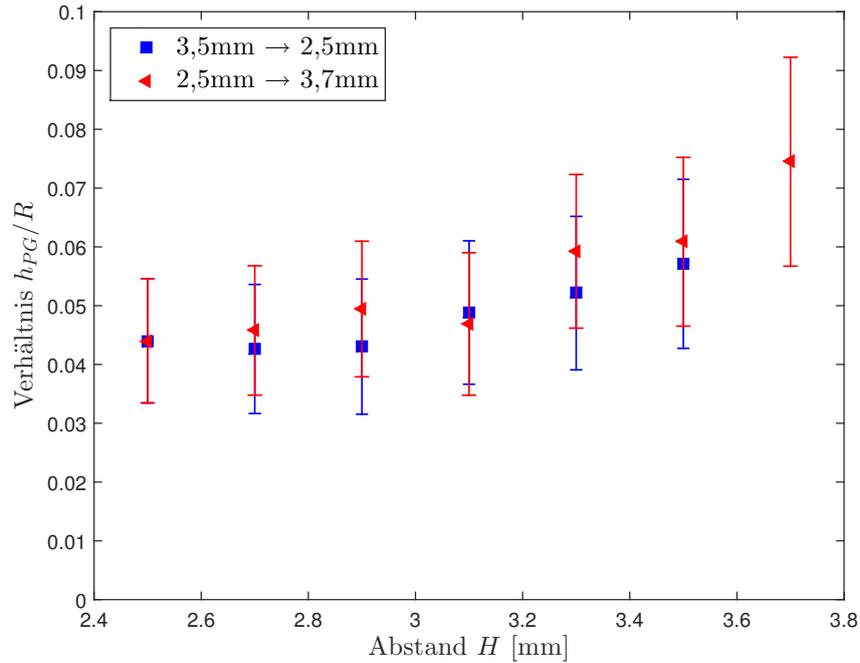


Abbildung 5.20: Änderung des Verhältnisses h_{PG}/R bei schrittweiser Variation des Halterabstandes H . Im Bereich $H > 3$ mm zeigt sich ein Anstieg des Verhältnisses h_{PG}/R mit wachsendem Abstand H .

5.4.3 Abhängigkeit des eingeschlossenen Winkels

Abschließend wurde die Abhängigkeit des eingeschlossenen Winkels $\theta = \alpha + \beta$ vom Verhältnis h_{PG}/R gemessen. Die Daten wurden aus einer großen Anzahl von 3-Film-Geometrien bestimmt und sind in Abbildung 5.21 dargestellt. Es gibt eine klare Tendenz, dass der eingeschlossene Winkel θ mit steigendem Flüssigkeitsanteil in der Plateaugrenze ebenfalls steigt. Der Verlauf der Messpunkte legt eine lineare Approximation der Daten nahe. Der Verlauf kann mit folgender Relation beschrieben werden:

$$\theta \left(\frac{h_{PG}}{R} \right) = 6,84^\circ \cdot \frac{h_{PG}}{R} + 120^\circ \quad . \quad (5.9)$$

Für $h_{PG}/R \rightarrow 0$ (trockener Schaum; $\varphi_{Fl} \rightarrow 0$) erhalten wir den von Plateau postulierten Winkel $\theta = 120^\circ$. Zusätzlich skizziert die gestrichelte rote Linie in Abbildung 5.21 den Verlauf nach Gleichung 5.5 für Seifenfilme nach den Ergebnissen von Gémard et al. [121], wenn man $r_{PG} = h_{PG}$ setzt.

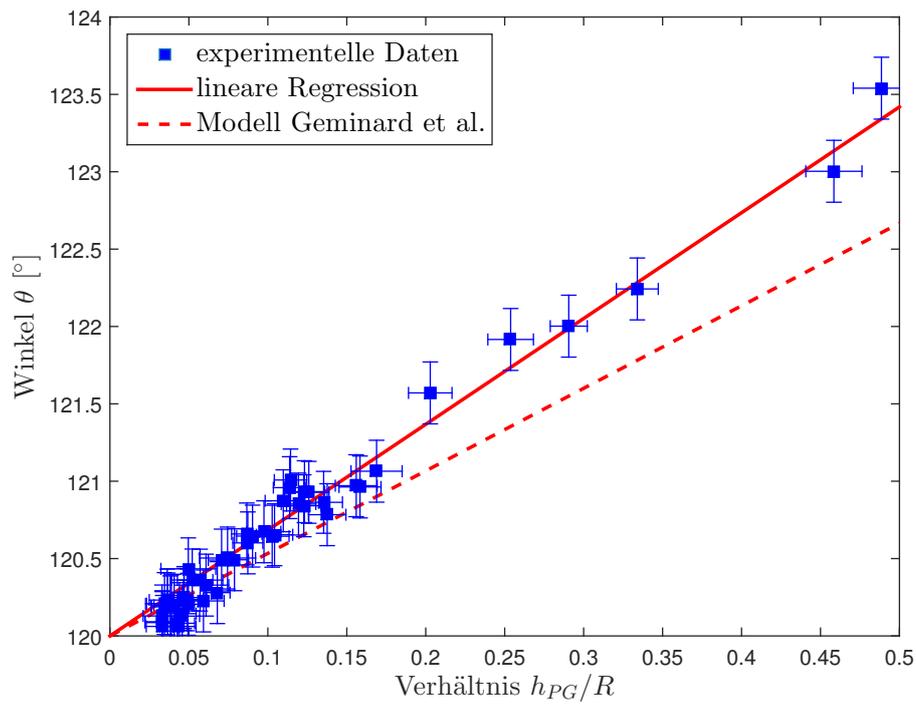


Abbildung 5.21: Der Winkel θ wächst mit steigendem Verhältnis h_{PG}/R . Die Abhängigkeit $\theta(h_{PG}/R)$ kann mit einem linearen Zusammenhang (durchgezogene rote Linie) beschrieben werden. Die Vorhersage des Modells (Gl. 5.5) ist als gestrichelte rote Linie dargestellt.

5.5 Diskussion und Zusammenfassung

Die Messungen an 3-Film-Geometrien aus flüssigkristallinen smektisch A-Filmen bestätigen die Ergebnisse für Seifenfilme [121] qualitativ. Die gemessenen Winkel zwischen den beiden äußeren Katenoidabschnitten sind größer als 120° . Außerdem lässt sich der eingeschlossene Winkel θ mit einer linearen Abhängigkeit vom Verhältnis h_{PG}/R approximieren. Ein höherer Flüssigkeitsanteil φ_{Fl} in der Plateaugrenze führt zu einem größeren Winkel θ . Die „Dekorationsenergie“ liegt in derselben Größenordnung wie bei Seifenfilmen. Während die Messwerte für schmale Plateaugrenzen ($h_{PG}/R < 0,18$) innerhalb der Messgenauigkeit den Ergebnissen für Seifenfilme entsprechen, gibt es jedoch erhebliche Abweichungen für Verhältnisse $h_{PG}/R > 0,18$. Im Bereich großer Verhältnisse h_{PG}/R liegen die Messwerte deutlich oberhalb des Modells (Gleichung 5.5) für Seifenfilme. Abbildungsfehler oder andere systematische Einflüsse können nicht für die ermittelte Abweichung verantwortlich sein, da der Winkel für trockene Schäume (120°) durch die Messdaten für Filme mit kleinem Flüssigkeitsanteil in der Plateaugrenze ($h_{PG} \rightarrow 0$) akkurat reproduziert wird. Quantitativ ist der Anstieg in Gleichung 5.9 mit $6,84^\circ$ etwa 25 % größer als bei Seifenfilmen (Gleichung 5.5; Anstieg $5,33^\circ$).

Es ist nicht offensichtlich, warum im smektischen System eine höhere negative Linien- spannung vorliegt. Um eine mögliche Erklärung zu finden, werden im Folgenden Unterschiede zwischen smektischen freistehenden Filmen und Seifenfilmen diskutiert. Während die äußere Erscheinung von trockenen Seifenfilmen und smektischen Filmen sehr ähnlich ist, unterscheiden sich beide Arten jedoch stark in ihrer inneren Struktur. Insbesondere ist die Schichtanordnung der Moleküle im smektischen System hervorzuheben, die vor allem in den Plateaugrenzen zu Dislokationen führt, siehe Abbildung 5.22.

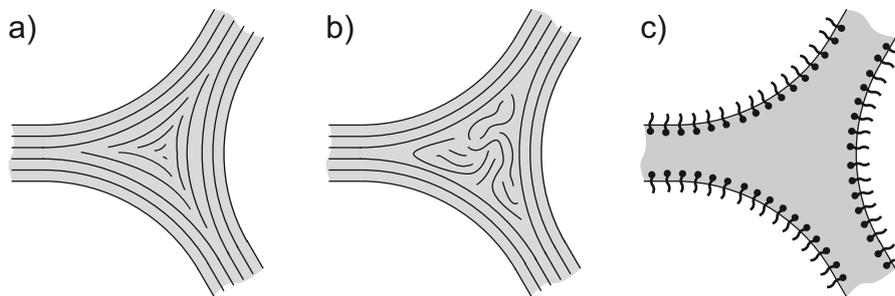


Abbildung 5.22: Schematische Darstellung der inneren Struktur von Plateaugrenzen aus smektischen Filmen (a, b) und Seifenfilmen (c). Im smektischen Film entstehen Dislokationslinien a), so wie im Meniskus von freistehenden smektischen Filmen [89]. In dicken Plateaugrenzen können ungeordnete Multidomänen entstehen (b).

Diese Störungen im Schichtaufbau erzeugen einen positiven Beitrag zur freien Energiedichte. Komplexe Schichtverwerfungen, wie „focal conics“ (d. h. kegelförmige Defekte), können im Meniskus auftreten. Mit der verwendeten experimentellen Anordnung ist es leider nicht möglich, die inneren Strukturen in der Plateaugrenze optisch aufzulösen. Trotzdem ist verlässlich anzunehmen, dass die Unordnung in smektischen Schichten einen positiven Beitrag zur „Dekorationsenergie“ liefert. Dies würde die erwartete

te Abweichung des Winkels θ von der 120° -Marke verringern. Auf der anderen Seite sind diese elastischen Beiträge vernachlässigbar klein im Vergleich zu den vorliegenden Oberflächenspannungseffekten. Dies kann mit der folgenden Größenabschätzung gezeigt werden. Die freie Energiedichte f elastischer Verzeichnungen des Direktors liegt in der Größenordnung

$$f \approx Kq^2 \quad . \quad (5.10)$$

Hierbei ist K eine effektive elastische Konstante (Größenordnung $K \approx 10$ pN) und q die Wellenzahl der Deformation mit der abgeschätzten Größenordnung $q \approx 1 \mu\text{m}^{-1}$. Die Querschnittsfläche A_{PG} der Plateaugrenze beträgt etwa

$$A_{PG} \approx 0,1 \cdot r_{PG}^2 \quad . \quad (5.11)$$

Somit ergibt sich eine Energie pro Längeneinheit von $1 \text{ Nm}^{-2} \cdot r_{PG}^2$. Dem gegenüber steht die Oberflächenenergie pro Längeneinheit der Plateaugrenze in der Größenordnung von

$$\pi\sigma r_{PG} \approx 0,1 \text{ Nm}^{-1} \cdot r_{PG} \quad . \quad (5.12)$$

Nimmt man für den Radius $r_{PG} = 100 \mu\text{m}$ an, so ergibt sich ein Verhältnis zwischen den beiden Größen von $10^{-8} \text{ N} : 10^{-5} \text{ N}$. Selbst wenn zusätzlich Defektstrukturen im smektischen Meniskus vorliegen, deren Energiedichte in der gleichen Größenordnung wie die der elastischen Verwerfungen liegt, sind die Beiträge der Oberflächenenergie mehr als zwei Größenordnungen größer als die Beiträge dieser Volumenterme.

Eine andere Erklärung für die Deviation der gemessenen Winkel im Vergleich zum lyotropen System kann ein Kontaktwinkel $\vartheta \neq 0$ zwischen der Plateaugrenze und dem angrenzenden Film sein, siehe Abbildung 5.23. Für Seifenfilme ist dieser Winkel stets Null, siehe Abschnitt 5.2.1.

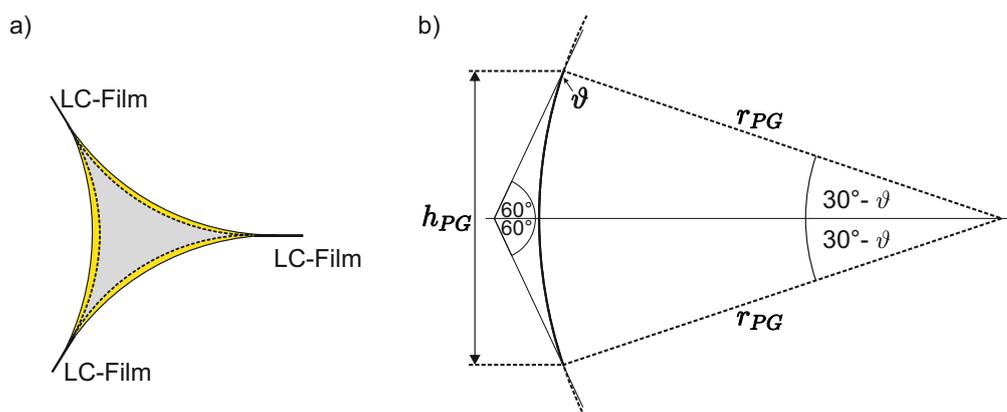


Abbildung 5.23: a) Schematische Darstellung von Schnitten durch Plateaugrenzen nach dem Seifenfilmmodell (Übergang Plateaugrenze zum Film ist tangential, grau schattiert, gestrichelte Linien) und dem smektischen Filmmodell (Kontaktwinkel $\vartheta \neq 0$, gelb schattiert, durchgezogene Linien). b) Geometrische Zusammenhänge im smektischen Filmmodell mit einem Kontaktwinkel $\vartheta \neq 0$ zwischen Film und Meniskus.

Endliche Kontaktwinkel ϑ zwischen dem Meniskus und dem flüssigkristallinen Film wurden zum Beispiel von Picano et al. [126] und Poniewierski et al. [127] quantitativ bestimmt. Dieser endliche Kontaktwinkel zwischen Meniskus der Plateaugrenze und angrenzendem Film würde zu einer effektiveren Oberflächenreduktion führen. Dies wiederum hat eine niedrigere effektive Linienspannung zur Folge. In Abbildung 5.23 b) ist skizziert, dass bei einem endlichen Kontaktwinkel die Beziehung $h_{PG} = r_{PG}$ nicht mehr gültig ist und für den Oberflächenenergieunterschied pro Länge folgendes gilt:

$$\begin{aligned}\Delta\varepsilon_{OF} &= - \left(\frac{6}{2 \sin(60^\circ)} h_{PG} - 6 (\pi/6 - \vartheta) r_{PG} \right) \sigma \\ &= -(2\sqrt{3}h_{PG} - (\pi - 6\vartheta)r_{PG})\sigma\end{aligned}\quad (5.13)$$

Mit

$$h_{PG} = 2r_{PG} \sin(30^\circ - \vartheta) \quad (5.14)$$

ergibt sich

$$\Delta\varepsilon_{OF} = -2 \left(\sqrt{3} - \frac{\pi - 6\vartheta}{4 \sin(30^\circ - \vartheta)} \right) \sigma h_{PG} \quad (5.15)$$

und die Linienspannung ist somit

$$T = \left. \frac{\partial l(\Delta\varepsilon_{OF})}{\partial l} \right|_{\varphi_{FI}} = \frac{\Delta\varepsilon_{OF}}{2} = - \left(\sqrt{3} - \frac{\pi - 6\vartheta}{4 \sin(30^\circ - \vartheta)} \right) \sigma h_{PG} \quad (5.16)$$

Für $\vartheta = 0$ ergibt sich der für Seifenfilme bekannte Zusammenhang. Linearisiert folgt für kleine Winkel ϑ :

$$T \approx - \left(\sqrt{3} - \frac{\pi - 6\vartheta + \sqrt{3}\pi\vartheta}{2} \right) \sigma h_{PG} \quad (5.17)$$

und somit für den Winkel zwischen den Katenoidabschnitten:

$$\theta = 120^\circ + 5,33^\circ \cdot \frac{r_{PG}}{R} + 0,161\vartheta \cdot \frac{r_{PG}}{R} \quad (5.18)$$

Qualitativ entspricht dieser Beitrag den gemessenen Ergebnissen, liefert jedoch quantitativ eine falsche Größenordnung. Eine Überschlagsrechnung zeigt, dass Kontaktwinkel von $\vartheta \approx 10^\circ$ notwendig sind, um den Anstieg der theoretischen Kurve (gestrichelte Linie in Abbildung 5.21) um $\approx 25\%$ zu erhöhen. Für den verwendeten Flüssigkristall (8CB) existieren leider keine Kontaktwinkelmessungen, jedoch ist der Kontaktwinkel anderer smektisch A-Substanzen etwa eine Größenordnung kleiner [126, 127]. Außerdem wäre ein Kontaktwinkel $\vartheta \approx 10^\circ$ an den Katenoidprofilen detektierbar. An smektisch C-Filmen wurden Kontaktwinkel von $\vartheta \approx 5^\circ$ gemessen [128]. Der Einfluss eines solchen Kontaktwinkels sollte prinzipiell messbar sein, indem man Messungen an smektisch A- und smektisch C-Filmen vergleicht.

In diesem Kapitel wurde durch Messungen an smektischen Filmen die Existenz einer

negativen Linienspannung in Plateaugrenzen bestätigt. Diese Linienspannung steigt linear mit wachsender Höhe h_{PG} der Plateaugrenze. Die gemessenen Winkel θ liegen in einer ähnlichen Größenordnung wie für Seifenfilme und wie für das vorhergesagte Modell [121]. Allerdings bleibt die Herkunft der quantitativen Abweichungen unklar. Die reduzierte Oberfläche einer feuchten Plateaugrenze im Vergleich zu einer trockenen Plateaugrenze kann die Ergebnisse an smektisch A-Filmen nicht vollständig erklären. Die Beiträge von Defektenergien in smektischen Plateaugrenzen zur Linienspannung sind zu klein und würden dem beobachteten Effekt entgegenwirken.

6 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurden statische und dynamische Eigenschaften dünner smektischer Filme experimentell untersucht. Aus der Vielzahl der von mir untersuchten und wissenschaftlich publizierten Phänomene wurden in dieser Dissertation folgende vier repräsentative Teilaspekte vorgestellt:

- Reißgeschwindigkeit und Filamentierung dünner smektischer Filme;
- Induzierter SmC-SmA-Übergang beim Reißen dünner SmC-Filme;
- Thermisch getriebener Fluss in freistehenden smektischen Filmen;
- Plateaugrenzen freistehender smektischer Filme.

Bei den Experimenten zum Reißvorgang dünner 8CB-Filme wurde insbesondere die auf dem Rand auftretende Instabilität untersucht. Die Flatterbewegung des Randes während des Reißens stellte sich als Auslöser der Instabilität heraus. Hierbei konnte das für Seifenfilme vorliegende Modell von Lhuissier und Villermaux [10] auf smektische Filme erweitert werden.

Die Untersuchungen zum Reißvorgang dünner SmC-Filme zeigten, dass während des Reißprozesses hinreichend dünner Filme ein SmC-SmA-Übergang induziert wird. Hierbei wird der beobachtete Phasenübergang durch Kapillarkräfte ausgelöst, die während des Reißens auftreten. Der beobachtete Effekt tritt innerhalb einiger Mikrosekunden auf und ist im untersuchten Parameterbereich unabhängig von der Temperatur und der Filmdicke.

Erstmals konnten Marangoni-Effekte in freistehenden smektischen Filmen quantitativ beschrieben und so ein früheres Modell [81] korrigiert werden. Dabei wurde gezeigt, dass Temperaturdifferenzen in der Filmebene smektischer Filme zu einem gerichteten Fluss führen. Hierbei erfolgt Materialtransport von der warmen zur kalten Filmkante, wenn der Temperaturkoeffizient der Oberflächenspannung ($d\sigma/dT$) negativ ist, oder vom kalten zum warmen Kontakt, wenn der Temperaturkoeffizient positiv ist. Der beobachtete Effekt tritt schwellenlos auf und das transportierte Material sammelt sich an der entsprechenden Filmkante, sofern eine solche vorhanden ist.

Die zuvor zusammengefassten Untersuchungen fanden lediglich an einzelnen freistehenden Filmen statt, die entsprechend der Rahmengeometrie Minimalflächen (sphärische Blasen oder flache Filme) bilden. In Kapitel 5 wurde analysiert, wie mehrere freistehende smektische Filme zusammentreffen (wie z. B. in Schäumen). Dabei wurde eine 3-Film-Geometrie aus smektischen Filmen untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass die Gleichgewichtskontaktwinkel zwischen den Filmen vom Flüssigkeitsanteil in der

Plateaugrenze abhängen. Hierbei bestätigen die experimentellen Ergebnisse am smektischen System die Erkenntnisse für Seifenfilme qualitativ [121, 123], es treten aber bisher nicht vollständig verstandene quantitative Unterschiede auf.

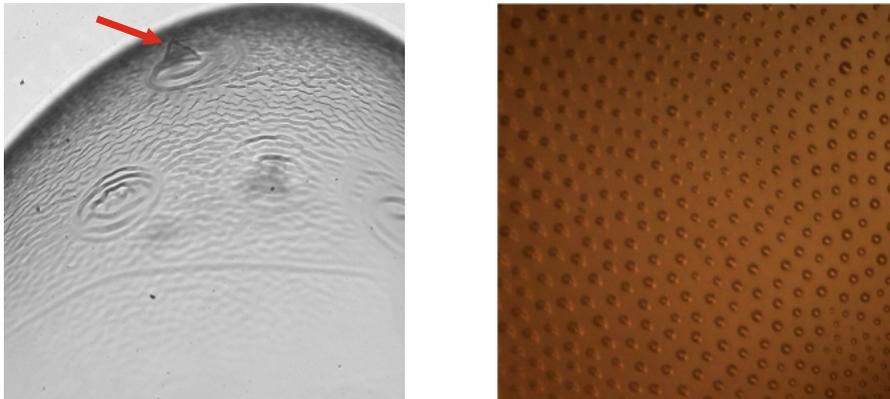


Abbildung 6.1: Links: Smektische Filme können unter schneller Kompression „Knitter“ und Ausstülpungen (roter Pfeil) bilden (Bildausschnitt 1 mm x 1 mm). Rechts: In einem freistehenden SmA-Film können isotrope Mikrotropfen annähernd regelmäßige zweidimensionale Gitter bilden (Bildausschnitt 500 μm x 500 μm) [83].

Die untersuchten Phänomene tragen zum besseren Verständnis der Dynamik und Statik dünner freistehender smektischer Filme bei. Es sind jedoch noch viele Eigenschaften unverstanden oder unzureichend charakterisiert. So weicht das Verhalten freistehender smektischer Filme in vielen weiteren Situationen von dem von Seifenfilmen ab. Sie neigen zum Beispiel unter dem Einfluss schneller Kompression zur Ausbildung von „Knittern“ und Ausstülpungen, siehe Abbildung 6.1 [129, 130]. Die detaillierte Untersuchung dieser Phänomene ist aktueller Bestandteil der Forschungsarbeit in der Abteilung „Nicht-lineare Phänomene“ der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg.

Außerdem stellen smektische Filme ein geeignetes Modellsystem zur Untersuchung zweidimensionaler kolloidaler Strukturen dar. So können zum Beispiel Mikrotropfen in freistehenden SmA-Filmen mehr oder weniger regelmäßige Gitter bilden, siehe Abbildung 6.1 [83].

Die zuvor genannten und viele weitere Beispiele zeigen, dass smektische Filme auch in Zukunft einen wichtigen Anteil zur Beantwortung fundamentaler physikalischer Fragen beitragen werden.

Literaturverzeichnis

- [1] R. STANNARIUS: *Liquid crystals: More than display fillings*. Nature Materials, 8(8):617–618, 2009.
- [2] D. DEMUS, G. PELZL, R. ZENTEL, K. HILTROP, L. POHL und M. SCHADT: *Topics in Physical Chemistry, vol 3: Liquid Crystals*. Steinkopff Verlag Darmstadt, 1993.
- [3] P. G. DE GENNES und J. PROST: *The Physics of Liquid Crystals*. Oxford University Press, 1993.
- [4] P. J. COLLINGS und M. HIRD: *Introduction to Liquid Crystals: Chemistry and Physics*. Taylor & Francis, 1997.
- [5] ST. STERN: *Polare Ordnung in smektischen Phasen gewinkelter Mesogene: Elektro-optische und nichtlinear-optische Untersuchungen*. Diplomarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2009.
- [6] R. STANNARIUS und K. HARTH: *Inclusions in freely suspended smectic films*. In: J.P.F. LAGERWALL und G. SCALIA (Herausgeber): *Liquid Crystals with Nano and Microparticles*, Band 1-2, Seiten 361–413. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Sigapur, 2016.
- [7] A. EREMIN, S. BAUMGARTEN, K. HARTH, R. STANNARIUS, Z. H. NGUYEN, A. GOLDFAIN, C. S. PARK, J. E. MACLENNAN, M. A. GLASER und N. A. CLARK: *Two-dimensional microrheology of freely suspended liquid crystal films*. Physical Review Letters, 107(26):268301, 2011.
- [8] H. SCHÜRING, C. THIEME und R. STANNARIUS: *Surface tensions of smectic liquid crystals*. Liquid Crystals, 28(2):241–252, 2001.
- [9] F. MÜLLER und R. STANNARIUS: *Collapse of catenoid-shaped smectic films*. Europhysics Letters, 76(6):1102–1108, 2006.
- [10] H. LHUISSIER und E. VILLERMAUX: *Soap films burst like flapping flags*. Physical Review Letters, 103(5):054501, 2009.
- [11] T. TRITTEL, T. JOHN, K. TSUJI und R. STANNARIUS: *Rim instability of bursting thin smectic films*. Physics of Fluids, 25(5):052106, 2013.
- [12] D. WEAIRE und ST. HUTZLER: *The Physics of Foams*. Clarendon Press, Oxford, 1999.

- [13] E. L. ANDREAS, J. B. EDSON, E. C. MONAHAN, M. P. ROUAULT und ST. D. SMITH: *The spray contribution to net evaporation from the sea: A review of recent progress*. *Boundary-Layer Meteorology*, 72(1):3–52, 1995.
- [14] G. B. DEANE und D. STOKES: *Scale dependence of bubble creation mechanisms in breaking waves*. *Nature*, 418(6900):839–844, 2002.
- [15] H. LHUISSIER und E. VILLERMAUX: *Bursting bubble aerosols*. *Journal of Fluid Mechanics*, 696:5–44, 2012.
- [16] Y. COUDER: *The fragmentation of the ocean: spray formation*. *Journal of Fluid Mechanics*, 696:1–4, 2012.
- [17] F. S. EHRENHAUSER, P. AVIJ, X. SHU, V. DUGAS, I. WOODSON, T. LIYANA-ARACHCHI, Z. ZHANG, F. R. HUNG und K. T. VALSARAJ: *Bubble bursting as an aerosol generation mechanism during an oil spill in the deep-sea environment: laboratory experimental demonstration of the transport pathway*. *Environ. Sci.: Processes Impacts*, 16:65–73, 2014.
- [18] M. A. DUPRÉ: *Sixième memoire sur la theorie mécanique de la chaleur*. *Ann. Chim. Phys*, 4(11), 1867.
- [19] J. W. STRUTT (LORD RAYLEIGH): *Some applications of photography*. *Nature*, 44(1133):249–254, 1891.
- [20] E. W. RANZ: *Some Experiments on the Dynamics of Liquid Films*. *Journal of Applied Physics*, 30:1950–1955, 01 1960.
- [21] W. R. MCENTEE und K. J. MYSELS: *The bursting of soap films. I. An experimental study*. *Journal of Physical Chemistry*, 73(9):3018–3028, 1969.
- [22] A. B. PANDIT und J. F. DAVIDSON: *Hydrodynamics of the rupture of thin liquid films*. *Journal of Fluid Mechanics*, 212:11–24, 1990.
- [23] G. DEBRÉGEAS, P. MARTIN und F. BROCHARD-WYART: *Viscous Bursting of Suspended Films*. *Phys. Rev. Lett.*, 75:3886–3889, 1995.
- [24] P. C. PETIT, M. LE MERRER und A.-L. BIANCE: *Holes and cracks in rigid foam films*. *Journal of Fluid Mechanics*, 774:R3, 2015.
- [25] G. I. TAYLOR: *The dynamics of thin sheets of fluid. III. Disintegration of fluid sheets*. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 253(1274), 1959.
- [26] F. CULICK: *Comments on a Ruptured Soap Film*. *Journal of Applied Physics*, 31:1128–1129, 1960.
- [27] ST. FRANKEL und K. J. MYSELS: *Bursting of soap films. II. Theoretical considerations*. *The Journal of Physical Chemistry*, 73(9):3028–3038, 1969.

- [28] P. G. DE GENNES: *Introductory lecture. Mechanics of soft interfaces*. Faraday Discuss, 104:1–8, 1996.
- [29] C. CLANET und E. VILLERMAUX: *Life of a smooth liquid sheet*. Journal of Fluid Mechanics, 462:307–340, 2002.
- [30] E. VILLERMAUX und C. CLANET: *Life of a flapping liquid sheet*. Journal of Fluid Mechanics, 462:341–363, 2002.
- [31] N. BREMOND und E. VILLERMAUX: *Bursting thin liquid films*. Journal of Fluid Mechanics, 524:121–130, 2005.
- [32] N. BREMOND, C. CLANET und E. VILLERMAUX: *Atomization of undulating liquid sheets*. Journal of Fluid Mechanics, 585:421–456, 2007.
- [33] H. LHUISSIER und E. VILLERMAUX: *Destabilization of flapping sheets: The surprising analogue of soap films*. Comptes Rendus - Mecanique, 337(6-7):469–480, 2009.
- [34] S. ČOPAR und A. KODRE: *One-dimensional simulation of thin liquid-film-edge retraction*. Phys. Rev. E, 82:056307, 2010.
- [35] F. MÜLLER, U. KORNEK und R. STANNARIUS: *Experimental study of the bursting of inviscid bubbles*. Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, 75(6):065302, 2007.
- [36] F. MÜLLER und R. STANNARIUS: *Comparison of the rupture dynamics of smectic bubbles and soap bubbles*. Liquid Crystals, 36(2):133–145, 2009.
- [37] F. MÜLLER: *Dynamik dünner Filme im Nichtgleichgewicht*. Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2009.
- [38] L. J. EVERS, S. Y. SHULEPOV und G. FRENS: *Bursting dynamics of thin free liquid films from newtonian and viscoelastic solutions*. Physical Review Letters, 79(24):4850–4853, 1997.
- [39] F. MÜLLER, C. BOHLEY und R. STANNARIUS: *Second sound in bursting freely suspended smectic-A films*. Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, 79(4):046315, 2009.
- [40] G. SÜNDERHAUF, H. RASZILLIER und F. DURST: *The retraction of the edge of a planar liquid sheet*. Physics of Fluids, 14(1):198–208, 2002.
- [41] M. P. BRENNER und D. GUEYFFIER: *On the bursting of viscous films*. Physics of Fluids, 11(2-3):737–739, 1999.
- [42] J. M. FULLANA und S. ZALESKI: *Stability of a growing end rim in a liquid sheet of uniform thickness*. Physics of Fluids, 11(5):952–954, 1999.

- [43] F. SAVART: *Mémoire sur le choc d'une veine liquide lanée contre un plan circulaire*, Band 54. Annales de Chimie, 1833.
- [44] H. B. SQUIRE: *Investigation of the instability of a moving liquid film*. British Journal of Applied Physics, 4(6):167–169, 1953.
- [45] H. LHUISSIER und E. VILLERMAUX: *Bursting bubbles*. Physics of Fluids, 21(9):091111, 2009.
- [46] T. TRITTEL: *Alterungsprozesse in zweidimensionalen Schäumen aus thermotropen Flüssigkristallen*. Diplomarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2009.
- [47] T. TRITTEL, T. JOHN und R. STANNARIUS: *Smectic foams*. Langmuir, 26(11):7899–7904, 2010.
- [48] T. TRITTEL, R. ALDRED und R. STANNARIUS: *Plateau borders of smectic liquid crystalline films*. Philosophical Magazine, 91(18):2343–2354, 2011.
- [49] R. STANNARIUS und C. CRAMER: *Self-supporting bubbles of thermotropic smectic liquid crystals*. Europhysics Letters, 42(1):43–48, 1998.
- [50] R. STANNARIUS, C. CRAMER und H. SCHÜRING: *Self-supporting smectic bubbles*. Molecular Crystals and Liquid Crystals Science and Technology Section A: Molecular Crystals and Liquid Crystals, 329:1035–1043, 1999.
- [51] G. D. CRAPPER, N. DOMBROWSKI, W. P. JEPSON und G. A. D. PYOTT: *A note on the growth of Kelvin-Helmholtz waves on thin liquid sheets*. Journal of Fluid Mechanics, 57(4):671–672, 1973.
- [52] T. TRITTEL, K. HARTH und R. STANNARIUS: *Smectic C to smectic A transition induced mechanically by the rupture of freely suspended liquid crystal films*. Soft Matter, 13(17):3199–3204, 2017.
- [53] P. G. DE GENNES: *An analogy between superconductors and smectics A*. Solid State Communications, 10(9):753–756, 1972.
- [54] P. G. DE GENNES: *SOME REMARKS ON THE POLYMORPHISM OF SMECTICS*. Mol Cryst Liq Cryst, 21(1-2):49–76, 1973.
- [55] A. DE VRIES: *Experimental Evidence Concerning Two Different Kinds of Smectic C to Smectic A Transitions*. Molecular Crystals and Liquid Crystals, 41(2):27–31, 1977.
- [56] J. P. F. LAGERWALL, F. GIESSELMANN und M. D. RADCLIFFE: *Optical and x-ray evidence of the “de Vries” Sm-A*-Sm-C* transition in a non-layer-shrinkage ferroelectric liquid crystal with very weak interlayer tilt correlation*. Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics, 66(3):031703, 2002.

- [57] S. GAROFF und R. B. MEYER: *Electroclinic effect at the A-C phase change in a chiral smectic liquid crystal*. Physical Review A, 19(1):338–347, 1979.
- [58] S.-I. NISHIYAMA, Y. OUCHI, H. TAKEZOE und A. FUKUDA: *Giant electroclinic effect in chiral smectic a phase of Ferroelectric liquid crystals*. Japanese Journal of Applied Physics, 26(11 A):L1787–L1789, 1987.
- [59] D. KRAMER und H. FINKELMANN: *Mechanically induced tilt in smectic-A elastomers*. Soft Matter, 7(5):1861–1867, 2011.
- [60] K. HIRAOKA, T. KISHIMOTO, M. KATO und T. TASHIRO: *Electroclinic and electromechanical effects of a side-chain chiral smectic A elastomer*. Liquid Crystals, 38(4):489–493, 2011.
- [61] R. RIBOTTA, R. B. MEYER und G. DURAND: *Compression induced smectic-A to smectic-C phase change in a liquid crystal*. J. Physique Lett., 35:161–164, 01 1974.
- [62] D. MUZNY: *PROPERTIES OF DEFECTS IN FREELY SUSPENDED SMECTIC C THIN FILMS*. PhD Thesis, University of Colorado, 1994.
- [63] N. KAPERNAUM, C. S. HARTLEY, J. C. ROBERTS, F. SCHOERG, D. KRUEERKE, R. P. LEMIEUX und F. GIESSELMANN: *Systematic variation of length ratio and the formation of smectic A and smectic C phases*. ChemPhysChem, 11(10):2099–2107, 2010.
- [64] K. HARTH, B. SCHULZ, C. BAHR und R. STANNARIUS: *Atomic force microscopy of menisci of free-standing smectic films*. Soft Matter, 7(15):7103–7111, 2011.
- [65] T. CARLSSON und T. DAHL: *DEPENDENCE OF THE TILT ANGLE ON EXTERNAL FORCES FOR SMECTIC-C AND CHIRAL SMECTIC-C LIQUID CRYSTALS - MEASUREMENT OF THE HEAT CAPACITY OF DOBAMBC*. Molecular crystals and liquid crystals, 95(3-4):373–400, 1983.
- [66] C. C. HUANG und S. DUMRONGRATTANA: *Generalized mean-field model for the smectic-Achiral-smectic-C phase transition*. Physical Review A, 34(6):5020–5026, 1986.
- [67] C. BAHR, G. HEPPKE und B. SABASCHUS: *Chiral-racemic phase diagram of a ferroelectric liquid crystal with high spontaneous polarization**. Ferroelectrics, 84(1):103–118, 1988.
- [68] F. GIESSELMANN und P. ZUGENMAIER: *Mean-field coefficients and the electroclinic effect of a ferroelectric liquid crystal*. Physical Review E, 52(2):1762–1772, 1995.

- [69] P. ARCHER und I. DIERKING: *Experimental determination of the full Landau potential of bent-core doped ferroelectric liquid crystals*. Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, 72(4):041713, 2005.
- [70] S. DUMRONGRATTANA und C. C. HUANG: *Polarization and tilt-angle measurements near the smectic-A chiral smectic-C transition of p-(n-decyloxybenzylidene)-p-amino-(2-methyl-butyl) cinnamate (DOBAMBC)*. Physical Review Letters, 56(5):464–467, 1986.
- [71] T. TRITTEL, K. HARTH, C. KLOPP und R. STANNARIUS: *Marangoni flow in freely suspended liquid films*. Physical Review Letters, 122:234501, 2019.
- [72] C. Y. YOUNG, R. PINDAK, N. A. CLARK und R. B. MEYER: *Light-scattering study of two-dimensional molecular-orientation fluctuations in a freely suspended ferroelectric liquid-crystal film*. Physical Review Letters, 40(12):773–776, 1978.
- [73] C. ROSENBLATT, R. PINDAK, N. A. CLARK und R. B. MEYER: *Freely suspended ferroelectric liquid-crystal films: Absolute measurements of polarization, elastic constants, and viscosities*. Physical Review Letters, 42(18):1220–1223, 1979.
- [74] C. KLOPP, R. STANNARIUS und A. EREMIN: *Brownian dynamics of elongated particles in a quasi-two-dimensional isotropic liquid*. Physical Review Fluids, 2(12):124202, 2017.
- [75] T. KURIABOVA, T. R. POWERS, Z. QI, A. GOLDFAIN, C. S. PARK, M. A. GLASER, J. E. MACLENNAN und N. A. CLARK: *Hydrodynamic interactions in freely suspended liquid crystal films*. Physical Review E, 94(5):05270, 2016.
- [76] R. STANNARIUS, C. BOHLEY und A. EREMIN: *Vortex flow in freestanding smectic films driven by elastic relaxation of the c director*. Physical Review Letters, 97(9):097802, 2006.
- [77] K. HARTH, A. EREMIN und R. STANNARIUS: *Vortex flow in free-standing smectic C films driven by elastic distortions*. Soft Matter, 7(6):2858–2868, 2011.
- [78] K. MAY, K. HARTH, T. TRITTEL und R. STANNARIUS: *Dynamics of freely floating smectic bubbles*. Europhysics Letters, 100(1):16003, 2012.
- [79] K. MAY, K. HARTH, T. TRITTEL und R. STANNARIUS: *Freely floating smectic films*. ChemPhysChem, 15(7):1508–1518, 2014.
- [80] P. DÄHMLOW, T. TRITTEL, K. MAY, K. HARTH und R. STANNARIUS: *Surface reduction of freely floating smectic bubbles*. Liquid Crystals, 45(7):993–1003, 2018.

- [81] M. I. GODFREY und D. H. VAN WINKLE: *Surface-tension-gradient-induced flow in freely suspended liquid crystalline films*. Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics, 54(4):3752–3764, 1996.
- [82] J. BIRNSTOCK und R. STANNARIUS: *Vertically suspended smectic films with in-plane temperature gradients*. Molecular Crystals and Liquid Crystals Science and Technology Section A: Molecular Crystals and Liquid Crystals, 366:815–824, 2001.
- [83] N. A. CLARK, A. EREMIN, M. A. GLASER, N. HALL, K. HARTH, C. KLOPP, J. E. MACLENNAN, C. S. PARK, R. STANNARIUS, P. TIN, W. N. THURMES und T. TRITTEL: *Realization of hydrodynamic experiments on quasi-2D liquid crystal films in microgravity*. Advances in Space Research, 60(3):737–751, 2017.
- [84] B. MARTIN und X. L. WU: *Double-Diffusive Convection in Freely Suspended Soap Films*. Phys. Rev. Lett., 80:1892–1895, 1998.
- [85] R. STANNARIUS und J. BIRNSTOCK: *Comment on “Double Diffusive Convection in Freely Suspended Soap Films”*. Phys. Rev. Lett., 86:4187, 2001.
- [86] P. BREU, O. JOOP, G. RUYTERS, R. KUHL, M. BRAUN und R. FORKE: *TEXUS - Mit Forschungsraketen in die Schwerelosigkeit*, 2014.
- [87] R. STANNARIUS, T. TRITTEL, C. KLOPP, A. EREMIN, K. HARTH, N. A. CLARK, C. S. PARK und J. E. MACLENNAN: *Freely suspended smectic films with in-plane temperature gradients*. New Journal of Physics, 21:063033, 2019.
- [88] M. MARINELLI, F. MERCURI, U. ZAMMIT und F. SCUDIERI: *Dynamic critical behavior of thermal parameters at the smectic-A–nematic phase transition of octyloxythiolbenzoate*. Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics, 53(1):701–705, 1996.
- [89] P. OSWALD und P. PIERANSKI: *Smectic and Columnar Liquid Crystals: Concepts and Physical Properties Illustrated by Experiments*. Taylor & Francis, Boca Raton, 2005.
- [90] F. PICANO, R. HOLYST und P. OSWALD: *Coupling between meniscus and smectic-A films: Circular and catenoid profiles, induced stress, and dislocation dynamics*. Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics, 62(3 B):3747–3757, 2000.
- [91] J. J. BIKERMAN: *Foams*. Springer Verlag, New York, 1973.
- [92] R. K. PRUD’HOMME und S. A. KHAN: *Foams: theory, measurements, and applications*. Dekker, New York, 1996.

- [93] J. A. F. PLATEAU: *Statique experimentale et theorique des liquides soumis aux seules forces moleculaires*. Gauthiers-Villars, Paris, 1873.
- [94] J. A. GLAZIER, S. P. GROSS und J. STAVANS: *Dynamics of two-dimensional soap froths*. *Physical Review A*, 36(1):306–312, 1987.
- [95] J. A. GLAZIER: *Dynamics of cellular patterns*. Doktorarbeit, University of Chicago, 1989.
- [96] J. A. GLAZIER und J. STAVANS: *Nonideal effects in the two-dimensional soap froth*. *Physical Review A*, 40(12):7398–7401, 1989.
- [97] J. STAVANS und J. A. GLAZIER: *Soap froth revisited: Dynamic scaling in the two-dimensional froth*. *Physical Review Letters*, 62(11):1318–1321, 1989.
- [98] J. A. GLAZIER, M. P. ANDERSON und G. S. GREST: *Coarsening in the two-dimensional soap froth on the large- Q Potts model: a detailed comparison*. *Philosophical Magazin B*, 62(6):615–645, 1990.
- [99] D. WEAIRE und M. A. FORTES: *Stress and strain in liquid and solid foams*. *Advances in Physics*, 43(6):685–738, 1994.
- [100] A. SAINT-JALMES: *Physical chemistry in foam drainage and coarsening*. *Soft Matter*, 2(10):836–849, 2006.
- [101] D. WEAIRE und R. PHELAN: *The physics of foam*. *Journal of Physics Condensed Matter*, 8(47):9519–9524, 1996.
- [102] S. HILGENFELDT: *Foam structure: The importance of bubble geometry*. *Nieuw Archief voor Wiskunde*, 5:224–230, 2002.
- [103] D. WEAIRE: *The rheology of foam*. *Current Opinion in Colloid and Interface Science*, 13(3):171–176, 2008.
- [104] A. SAINT-JALMES, S. MARZE, M. SAFOUANE und D. LANGEVIN: *Foam experiments in parabolic flights: Development of an iss facility and capillary drainage experiments*. *Microgravity Science and Technology*, 18(1):22–30, 2006.
- [105] A. SAINT-JALMES, S. MARZE, H. RITACCO, D. LANGEVIN, S. BAIL, J. DUBAIL, L. GUINGOT, G. ROUX, P. SUNG und L. TOSINI: *Diffusive liquid propagation in porous and elastic materials: The case of foams under microgravity conditions*. *Physical Review Letters*, 98(5):058303, 2007.
- [106] J. MARCHALOT, J. LAMBERT, I. CANTAT, P. TABELING und M.-C. JULLIEN: *2D foam coarsening in a microfluidic system*. *Europhysics Letters*, 83(6):64006, 2008.
- [107] D. LANGEVIN und M. VIGNES-ADLER: *Microgravity studies of aqueous wet foams*. *European Physical Journal E*, 37(3):16, 2014.

- [108] P. ROGNON, F. MOLINO und C. GAY: *Prediction of positive and negative elastic dilatancy in 2D and 3D liquid foams*. Europhysics Letters, 90(3):38001, 2010.
- [109] W. W. MULLINS: *The statistical self-similarity hypothesis in grain growth and particle coarsening*. Journal of Applied Physics, 59(4):1341–1349, 1986.
- [110] D. ZÖLLNER: *Monte Carlo Potts Model Simulation and Statistical Mean-Field Theory of Normal Grain Growth*. Doktorarbeit, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2006.
- [111] M. DURAND und H. A. STONE: *Relaxation time of the topological T1 process in a two-dimensional foam*. Physical Review Letters, 97(22):226101, 2006.
- [112] A.-L. BIANCE, S. COHEN-ADDAD und R. HÖHLER: *Topological transition dynamics in a strained bubble cluster*. Soft Matter, 5(23):4672–4679, 2009.
- [113] A.-L. BIANCE, A. CALBRY-MUZYKA, R. HÖHLER und S. COHEN-ADDAD: *Strain-induced yielding in bubble clusters*. Langmuir, 28(1):111–117, 2012.
- [114] N. KERN und D. WEAIRE: *Approaching the dry limit in foam*. Philosophical Magazine, 83(26):2973–2987, 2003.
- [115] M. H. GODINHO, C. CRUZ, P. I. C. TEIXEIRA, A. J. FERREIRA, C. COSTA, P. S. KULKARNI und C. A. M. AFONSO: *Shear-induced lamellar phase of an ionic liquid crystal at room temperature*. Liquid Crystals, 35(2):103–107, 2008.
- [116] A. J. FERREIRA, C. CRUZ, M. H. GODINHO, P. S. KULKARNI, C. A. M. AFONSO und P. I. C. TEIXEIRA: *Shear-induced lamellar ionic liquid-crystal foam*. Liquid Crystals, 37(4):377–382, 2010.
- [117] J. E. TAYLOR: *The Structure of Singularities in Soap-Bubble-Like and Soap-Film-Like Minimal Surfaces*. Annals of Mathematics, 103(3):489–539, 1976.
- [118] F. BOLTON und D. WEAIRE: *The effects of plateau borders in the two-dimensional soap (Froth I. Decoration lemma and diffusion theorem*. Philosophical Magazine B: Physics of Condensed Matter; Statistical Mechanics, Electronic, Optical and Magnetic Properties, 63(4):795–809, 1991.
- [119] D. WEAIRE: *Equilibrium structure of soap froths: Inversion and decoration*. Philosophical Magazine Letters, 79(7):491–495, 1999.
- [120] M. A. FORTES und M. E. ROSA: *The surface energy and contact angles of a liquid foam*. Journal of Colloid and Interface Science, 241(1):205–214, 2001.
- [121] J.-C. GÉMINARD, A. ZYWOCIŃSKI, F. CAILLIER und P. OSWALD: *Observation of negative line tensions from Plateau border regions in dry foam films*. Philosophical Magazine Letters, 84(3):199–204, 2004.

- [122] M. A. FORTES und P. I. C. TEIXEIRA: *Triple-line decoration and line tension in simple three-dimensional foam clusters*. Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, 71(5):051404, 2005.
- [123] S. BESSON und G. DEBRÉGEAS: *Statics and dynamics of adhesion between two soap bubbles*. European Physical Journal E, 24(2):109–117, 2007.
- [124] V. V. KROTOV und A. I. RUSANOV: *Line tension and capillary pressure in foams*. Mendeleev Communications, 8(5):177–178, 1998.
- [125] P. I. C. TEIXEIRA und M. A. FORTES: *Decoration Plateau borders in two-dimensional liquid foams: Geometry and excess energy*. Philosophical Magazine, 85(12):1303–1322, 2005.
- [126] F. PICANO, P. OSWALD und E. KATS: *Disjoining pressure and thinning transitions in smectic-A liquid crystal films*. Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics, 63(2 II):021705, 2001.
- [127] A. PONIEWIERSKI, P. OSWALD und R. HOŁYST: *Contact angle between smectic film and its meniscus*. Langmuir, 18(5):1511–1517, 2002.
- [128] K. HARTH und R. STANNARIUS: *Corona patterns around inclusions in freely suspended smectic films*. European Physical Journal E, 28(3):265–272, 2009.
- [129] K. HARTH: *Episodes of the Life and Death of Thin Fluid Membranes - Patterns and Dynamics at the Cross-Over from Two to Three Dimensions*. Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2016.
- [130] K. HARTH, T. TRITTEL, K. MAY und R. STANNARIUS: *Dynamic wrinkling of freely floating smectic films*. Soft Matter, 2019.

Inhalt der beiliegenden CD

Auf der beiliegenden CD befinden sich folgende Inhalte:

- Dissertationsschrift im PDF-Format (CD\Dissertation_Torsten_Trittel.pdf) und Power-Point-Präsentation der Verteidigung (CD\Verteidigung_Torsten_Trittel.pptx),
- alle Abbildungen dieser Arbeit im PNG-Format sortiert nach den entsprechenden Kapiteln (CD\Abbildungen),
- ausgewählte Videoaufnahmen des experimentellen Vorgangs im AVI-Format sortiert nach den entsprechenden Kapiteln (CD\Videos)
- der verwendete Videocodec (CD\Videos\x264vfw.exe).

Ehrenerklärung

Ich versichere hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; verwendete fremde und eigene Quellen sind als solche kenntlich gemacht.

Ich habe insbesondere nicht wissentlich:

- Ergebnisse erfunden oder widersprüchliche Ergebnisse verschwiegen,
- statistische Verfahren absichtlich missbraucht, um Daten in ungerechtfertigter Weise zu interpretieren,
- fremde Ergebnisse oder Veröffentlichungen plagiiert,
- fremde Forschungsergebnisse verzerrt wiedergegeben.

Mir ist bekannt, dass Verstöße gegen das Urheberrecht Unterlassungs- und Schadensersatzansprüche des Urhebers sowie eine strafrechtliche Ahndung durch die Strafverfolgungsbehörden begründen kann.

Ich erkläre mich damit einverstanden, dass die Arbeit ggf. mit Mitteln der elektronischen Datenverarbeitung auf Plagiate überprüft werden kann.

Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form als Dissertation eingereicht und ist als Ganzes auch noch nicht veröffentlicht.

Torsten Trittel

Magdeburg, den 3. Februar 2020