

# Physikalisches Praktikum für Fortgeschrittene

Technische Universität Darmstadt

Abteilung A: Institut für Angewandte Physik

## Versuch 4.7: Flüssigkristalle und Nichtlineare Optik

(Version 1.3, E. Benkler 20. November 2003)

**Vorbereitung:** Flüssigkristalline Phasen  
Nematischer Direktor und skalarer Ordnungsparameter  
Maier–Saupe–Theorie der nematischen Phase  
Phasenübergänge und kritische Phänomene  
Transmission eines Fabry-Perots  
Optik anisotroper Medien (speziell Doppelbrechung und Dichroismus)  
Doppelbrechende Medien im Polarisationsmikroskop  
Optische Reorientierung, optische Nichtlinearitäten  
**Umgang mit Lasern / Laserschutz**  
**Bitte Disketten oder einen CD-Rohling mitbringen, um mit der Digitalkamera aufgenommene Bilder speichern zu können!**  
**Aufgaben zur Vorbereitung lösen!**

### Weiterführende Literatur

Siehe auch die Literaturliste in der Bibliothek und die Homepage zum Versuch unter <http://www.physik.tu-darmstadt.de/praktika/fp/a/lc/>

- [1] P.G. de Gennes: The Physics of Liquid Crystals, Kap. 2, Kap. 4
- [2] D. Demus, J. Goodby, G.W. Gray, H.-W. Spiess, V. Vill: Handbook of Liquid Crystals, Kap. 12
- [3] W. Maier, A. Saupe: Eine einfache molekulare Theorie des nematischen kristallinflüssigen Zustandes, *Z. Naturforsch.* **13a**, 564-566 (1958).
- [4] I. Jánossy, S.K. Prasad: Optical generation of inversion walls in nematic liquid crystals, *Phys. Rev. E* **63**, 041705 (2001)

### Einleitung und Versuchsziele

Flüssigkristalle (LCs) sind heute wegen ihres Einsatzes in Displays aus unserer direkten Umgebung nicht mehr wegzudenken. In Zukunft könnten sie auf Grund ihrer nichtlinear-optischen Eigenschaften auch in weiteren Anwendungsbereichen eine wichtige Rolle spielen. LC-Displays sind bereits Gegenstand eines Versuchs im Grundpraktikum, weshalb hierauf in diesem Versuch nur am Rande eingegangen wird. Der Versuch ist in zwei Teile geteilt. Im ersten Teil sollen grundlegende Eigenschaften und Methoden der Physik von LCs erlernt werden, wie z.B. Anisotropie, molekulare Ordnung und Phasenübergänge. Im Mittelpunkt des zweiten Teils stehen die nichtlinear-optischen Eigenschaften von LCs.

### Klassifizierung von Flüssigkristallen

Viele organische Substanzen gehen beim Erhitzen nicht direkt vom festen in den flüssigen Zustand über, sondern bilden zunächst eine oder mehrere Zwischenphasen aus, die sogenannten Mesophasen. Die besonderen makroskopischen physikalischen Eigenschaften der Mesophasen basieren auf der Anisotropie der Flüssigkristallmoleküle (Anziehungs- und Abstoßungspotentiale, Polarisierbarkeit, ...).

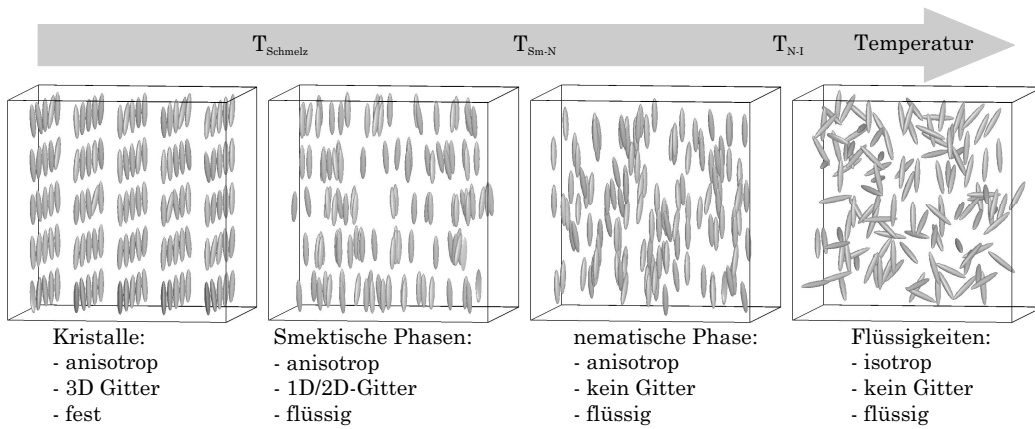


Abbildung 1: Die wichtigsten Mesophasen und ihre Hauptmerkmale. Der Phasenübergangspunkt  $T_{N-I}$  wird oft auch als Klärpunkt bezeichnet.

Zur Vereinfachung werden Flüssigkristallmoleküle meist durch Ellipsoide idealisiert, wobei hauptsächlich zwischen langgestreckten (kalamitischen oder prolaten) und scheibenförmigen (diskontischen oder oblaten) Molekülen unterschieden wird. Der Einfachheit halber beschränken wir uns hier auf die stäbchenförmigen Kalamiten.

Verschiedene Mesophasen sind durch ihre molekulare Ordnung charakterisiert. Während die **flüssige Phase** vollständig isotrop und ungeordnet ist (kontinuierliche Translations- und Rotationsinvarianz), besitzt die kristalline Phase die höchste Ordnung und niedrigste Symmetrie (diskrete Translations- und Rotationsinvarianz). Entsprechend werden dazwischen die Mesophasen nach dem Grad ihrer Symmetrie eingeordnet. Abbildung 1 zeigt dabei nur die wichtigsten flüssigkristallinen Phasen. Bitte informieren Sie sich in der Fachliteratur oder unter den Links auf der Homepage zum Versuch über weitere Mesophasen und ihre wichtigsten Eigenschaften. Die **nematische Phase (N)** ist die flüssigkristalline Phase mit der höchsten Symmetrie. Es besteht wie in Flüssigkeiten keine Ordnung der Molekülschwerpunkte, jedoch sind die Orientierungen über viele Moleküllängen hinweg korreliert, d.h. die Moleküle sind im statistischen Mittel entlang einer Vorzugsrichtung orientiert. Die Abwesenheit einer Korrelation der Schwerpunkte erklärt das gute Fließverhalten, die Orientierungsfernordnung führt zu der Anisotropie makroskopischer physikalischer Größen dieser Substanzen. Bei der **smektischen Phase (Sm)** bestehen zusätzlich für mindestens einen Freiheitsgrad der Molekülschwerpunkte Korrelationen über viele Moleküllängen. Es gibt weit über 10 verschiedene smektische Phasen, wovon die als SmA und SmC bezeichneten Phasen die wichtigsten sind. Hierbei sind die Molekülschwerpunkte im statistischen Mittel in einer Dimension periodisch angeordnet (Schichtstruktur, wie in einem Bücherregal), weshalb man auch von ihrer ‚bookshelf‘-Struktur spricht. Im Folgenden werden wir uns hauptsächlich auf die im Versuch untersuchten Nematene (N) beschränken.

## Erster Teil: Direktor und Ordnungsparameter

Um flüssigkristalline Systeme zu beschreiben, werden verschiedene Größen benötigt, die auf Grund der Anisotropie meist Tensorcharakter besitzen. Zumindest in der nematischen Phase reichen aber meist zwei relativ einfache Größen aus, der *Direktor* und der skalare *Ordnungsparameter*. Der Direktor  $\vec{n}$  ist ein Einheitsvektor, dessen Richtung die Vorzugsrichtung der Molekülorientierungen beschreibt. Wegen der  $180^\circ$ -Symmetrie in der nematischen Phase hat das Vorzeichen des Vektors jedoch keine Bedeutung. Da nicht alle Moleküle perfekt entlang des Direktors orientiert sind, reicht er alleine zur Beschreibung nicht aus. Der skalare Ordnungsparameter beschreibt den Grad der Orientierungsordnung und ist definiert durch

$$S = \frac{1}{2} \langle 3 \cos^2 \theta - 1 \rangle_f \quad (1)$$

Hierbei ist  $\theta$  der Winkel, der die Abweichung eines einzelnen Moleküls vom Direktor beschreibt. Die spitzen Klammern  $\langle \rangle_f$  bedeuten die Mittelung über die Orientierungsverteilung  $f$  aller Moleküle. Der Ordnungsparameter besitzt eine typische Temperaturabhängigkeit, die universell ist für Ordnungspa-

parameter im Rahmen der Landau-Theorie von Phasenübergängen. Diese Temperaturabhängigkeit soll in dem ersten Teil des Versuchs gemessen werden. Im Folgenden wird der Ordnungsparameter mit anderen Größen in Zusammenhang gestellt und dann wird seine Temperaturabhängigkeit in einem statistischen Modell hergeleitet.

Der Mittelwert  $\langle y \rangle_f$  einer Größe, die von einer unabhängigen Variablen  $x$  abhängt und für die eine Wahrscheinlichkeitsverteilung  $f(x)$  gegeben ist, beträgt

$$\langle y \rangle_f = \frac{\int_D y(x) f(x) dx}{\int_D f(x) dx} \quad (2)$$

mit  $D$  als Definitionsbereich von  $x$ .

Im Falle nematischer LCs entspricht  $x$  den Polarkoordinaten  $(\theta, \phi)$ , welche die Orientierung eines Moleküls im Raum beschreiben. Zu integrieren ist  $1/2(3 \cos^2 \theta - 1)$  über alle Richtungen  $(\theta, \phi)$ , gewichtet mit der Orientierungsverteilungsfunktion  $f(\theta, \phi)$ . Sie gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der ein Molekül innerhalb des Raumwinkelements  $\sin \theta d\theta d\phi$  um  $(\theta, \phi)$  orientiert ist.

$$S = \frac{1}{2} \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} (3 \cos^2 \theta - 1) f(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi}{\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} f(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi}. \quad (3)$$

Die Orientierungsverteilungsfunktion  $f(\theta, \phi)$  ist so normiert, dass  $N = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} f(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi$  der Teilchenzahldichte der betrachteten Moleküle entspricht. Für die Grenzfälle der isotropen Phase und der perfekt geordneten kristallinen Phase folgt:

Isotrope Verteilung:	$f(\theta, \phi) = const.$	$\Rightarrow S = 0$
Perfekte Ordnung in Richtung $\theta = 0$ :	$f(\theta, \phi) \sim \delta(\theta)$	$\Rightarrow S = 1$
Typische Werte für nematische LCs:		$S = 0,4$ bis $S = 0,8$

## Eine einfache molekulare Theorie der nematischen Phase (Maier–Saupe)

Das Bestreben der LC-Moleküle, sich parallel zueinander auszurichten, hat verschiedene zwischenmolekulare Ursachen:

1. Sterische Abstoßung und Volumenausschlußeffekte (Bsp.: Baumstämme auf einem Fluss): Langgestreckte Objekte ordnen sich allein auf Grund ihrer Form parallel zueinander an. Diese abstoßenden Wechselwirkungen (z.B. hard-core) sind kurzreichweitig. Zusätzlich werden die Molekülbewegungen bei Parallelausrichtung, also der dichtesten Packung eingeschränkt, was entropisch günstiger ist (Packungsentropie).
2. Langreichweitige intermolekulare Wechselwirkungen: Dispersive Wechselwirkungen, d.h. Van der Waals-Wechselwirkungen zwischen induzierten Dipolen oder höheren Multipolen. Diese Wechselwirkungen sind wegen der Anisotropie der molekularen Polarisierbarkeit ebenfalls anisotrop. Sie können sowohl attraktiv als auch abstoßend sein.

In einer molekularen Theorie der nematischen Phase machten Maier und Saupe folgenden Ansatz [3]:  
**(i)** Wie die Weissche Theorie von Ferromagneten ist die Maier–Saupe–Theorie eine sogenannte Mean-Field–Theorie. In Mean-Field–Theorien werden die Wechselwirkungen der Teilchen untereinander nicht einzeln berücksichtigt, sondern es wird ein Teilchen im mittleren Potential (Mean-Field) der anderen Teilchen betrachtet. **(ii)** Beim Maier–Saupe Ansatz ist das Potential proportional zum skalaren Ordnungsparameter der Moleküle, die das Potential erzeugen; Denn je größer deren Ordnung ist, desto stärker ist auch die Anisotropie der Wechselwirkung. **(iii)** In der Maier–Saupe–Theorie werden nur Dipol–Dipol–Wechselwirkungen berücksichtigt. Mit diesen Näherungen ergibt sich für die potentielle Energie eines mit  $(\theta, \phi)$  orientierten Moleküls

$$U(\theta) = -\frac{A}{2V^2} S_P(T) (3 \cos^2 \theta - 1). \quad (4)$$

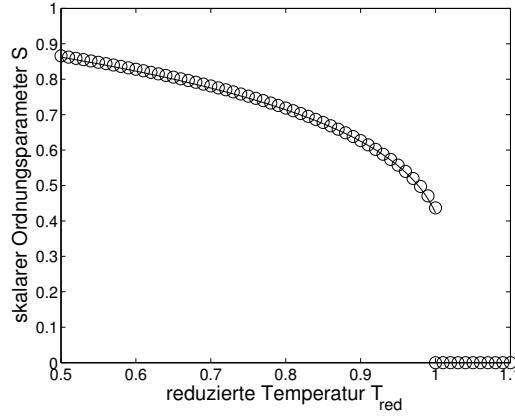


Abbildung 2: Skalarer Ordnungsparameter nach Maier und Saupe in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur. Die Kreise entsprechen der numerischen Lösung, die durchgezogene Linie der Näherungsfunktion.

Hierbei ist  $A$  eine temperatur- und volumenunabhängige Konstante,  $\bar{V}$  ist das Molvolumen, und  $S_P(T)$  ist der temperaturabhängige skalare Ordnungsparameter der Moleküle, die das Mean-Field erzeugen. Auf Grund der Zylindersymmetrie um den Direktor hängt  $U$  nicht von  $\phi$ , sondern nur von  $\theta$  ab<sup>1</sup>. Die Energie wird maximal, wenn das Molekül senkrecht zum Direktor steht ( $\theta = \pi/2$ ), und sie wird minimal bei paralleler Ausrichtung ( $\theta = 0$ ). Die Orientierungsverteilung  $f(\theta, \phi)$  im thermodynamischen Gleichgewicht resultiert aus der Konkurrenz zwischen thermischer (Rotations-) Bewegung und dem Bestreben der Moleküle, sich auf Grund der Wechselwirkungen parallel zueinander anzuordnen. Sie ergibt sich somit aus der Boltzmann-Verteilung

$$f(\theta) \sim \exp\left(\frac{-U(\theta)}{kT}\right) \quad (5)$$

und hängt wie die Wechselwirkungsenergie ebenfalls nur vom Winkel  $\theta$  ab. Mit Gl. (3) ergibt sich für den skalaren Ordnungsparameter

$$S(T) = \frac{1}{2} \frac{\int_0^{\pi/2} (3 \cos^2 \theta - 1) \exp\left(\frac{A}{2\bar{V}^2} S_P(T) (3 \cos^2 \theta - 1) / kT\right) \sin \theta d\theta}{\int_0^{\pi/2} \exp\left(\frac{A}{2\bar{V}^2} S_P(T) (3 \cos^2 \theta - 1) / kT\right) \sin \theta d\theta}. \quad (6)$$

Im thermodynamischen Gleichgewicht ist der Ordnungsparameter  $S(T)$  auf der linken Seite gleich dem Ordnungsparameter  $S_P(T)$  auf der rechten Seite (Selbstkonsistenz). Die resultierende Gleichung läßt sich nur numerisch lösen. In Abhängigkeit von dem Parameter  $\beta = \frac{A}{2\bar{V}^2 kT}$  treten verschiedene Fälle auf:

- Für  $\beta \leq \beta_N \approx 4,55$  existiert nur eine Lösung mit  $S = 0$ . Diese entspricht der flüssigen Phase.
- Für  $\beta > \beta_N \approx 4,55$  existieren neben dem isotropen Fall  $S = 0$  weitere Lösungen mit  $S > 0$ , von denen nur eine stabil ist<sup>2</sup>. Diese Lösung ist der nematischen Phase zuzuordnen.

Es ist nützlich, eine reduzierte Temperatur  $T_{red} = T\bar{V}^2 / T_N \bar{V}_N^2$  einzuführen, wobei  $T_N$ ,  $\bar{V}_N$  die Temperatur und das Molvolumen am Phasenübergang sind. Am Phasenübergang gilt  $T_{red} = 1$ . Die Darstellung von  $S$  in Abhängigkeit von  $T_{red}$  ist für alle nematischen LCs universell und läßt sich, wie in Abb. 2 gezeigt, durch die Funktion

$$S \approx (1 - 0,98T_{red})^{0,22} \quad (7)$$

annähern. Der Ordnungsparameter direkt unterhalb von  $T_N$  beträgt  $S \approx 0,44$ . Der Ordnungsparameter springt also am Phasenübergang unstetig von einem Wert  $S > 0$  zu  $S = 0$ . Folglich handelt es sich

<sup>1</sup>Die Existenz des gleichen Terms wie in der Definition des skalaren Ordnungsparameters ist nicht zufällig. Der Term  $(3 \cos^2 \theta - 1)$  entspricht dem aus der Dipol-Dipol-Wechselwirkung resultierenden Quadrupolterm bei der Multipolentwicklung des Problems. Die Multipolentwicklung ist eine Entwicklung nach Kugelflächenfunktionen, die der Symmetrie des Problems angepasst ist und die deshalb auch für die Definition des Ordnungsparameters herangezogen wird.

<sup>2</sup>Stabilitätsbedingung ist die Minimierung der freien Energie, auf die hier nicht näher eingegangen werden soll.

um einen Phasenübergang 1. Ordnung. In einem kleinen Bereich um  $T_N$  sind die nematische bzw. flüssige Phase metastabil, d.h. es existiert ein Hystereseverhalten. Am Phasenübergang treten kritische Phänomene wie starke Direktorfluktuationen und daraus resultierende Lichtstreuung (Opaleszenz) auf.

## Experimentelle Methoden zur Bestimmung des Ordnungsparameters

Die Anisotropie makroskopischer physikalischer Eigenschaften nematischer LCs ergibt sich aus der anisotropen Orientierungsverteilung der Moleküle. Diese Anisotropie bedingt, dass die entsprechenden Materialgrößen wie in Kristallen einen tensoriellen Charakter besitzen (z.B. magnetischer Suszeptibilitätstensor, Dielektrizitätstensor, ...). Hierbei liegt aus Symmetriegründen eine der Hauptachsen des Tensors parallel zum Direktor. Die anderen beiden Hauptachsen senkrecht zum Direktor sind bei uniaxialen LCs gleich groß. Da der Tensor Informationen über die Orientierungsverteilung der Moleküle enthält und durch seine 3 Hauptachsenwerte vollständig definiert ist, lässt sich aus den Hauptachsenwerten der skalare Ordnungsparameter bestimmen. Die wichtigsten experimentellen Größen bzw. Methoden zur Bestimmung des Ordnungsparameters sind: **(i)** Diamagnetische Suszeptibilitäten; **(ii)** Doppelbrechung (=Dielektrizitätstensor bei optischen Frequenzen) **(iii)** Dichroismus (Absorptionstensor) im UV, IR, oder für einen Dotierfarbstoff im sichtbaren Spektralbereich; **(iv)** Kernspinresonanz (NMR); **(v)** Raman-Streuung; **(vi)** Röntgen- oder Neutronenstreuung. Die Bestimmung des Ordnungsgrades wird in diesem Versuch über den Dichroismus eines Dotierfarbstoffes durchgeführt. Der Zusammenhang zwischen der entsprechenden makroskopischen tensoriellen Größe, der Absorption des Dotierfarbstoffes, und den molekularen Größen soll nun für diesen Fall explizit aufgezeigt werden.

Die Grundlage für diese Methode ist, dass geeignete Farbstoffmoleküle ebenfalls eine starke Anisotropie aufweisen und ähnlich wie die LC-Moleküle mit den übrigen Molekülen wechselwirken. Das bedeutet, dass sich ein Farbstoffmolekül ähnlich wie ein Flüssigkristallmolekül im Mean-Field orientiert. Bei einer geringen Farbstoffkonzentration bleibt der Beitrag der Farbstoffmoleküle zum Mean-Field sehr klein, was bedeutet, dass der skalare Ordnungsparameter durch die Dotierung nur wenig verändert wird. So lässt sich indirekt der skalare Ordnungsparameter über die Anisotropie der durch den Farbstoff bedingten Absorption im sichtbaren Bereich bestimmen, wo der LC selbst transparent ist. Wird parallel zum Direktor polarisiertes Licht der Intensität  $I$  in den LC eingestrahlt, so beträgt die Wahrscheinlichkeit pro Zeit- und Volumeneinheit, dass ein Farbstoffmolekül mit der Orientierung  $(\theta, \phi)$  ein Photon absorbiert<sup>3</sup>:

$$p_{\parallel}(\theta) = BI \cos^2 \theta. \quad (8)$$

mit einer Konstanten  $B$ . Die mittlere Anzahl der insgesamt pro Zeit- und Volumeneinheit absorbierten Photonen berechnet sich dann mit der Orientierungsverteilungsfunktion  $f(\theta)$  der Moleküle aus

$$N_{\text{abs}} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} p(\theta) f(\theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi. \quad (9)$$

Nach der Definition  $dI/dz = -\alpha I$  des Absorptionskoeffizienten  $\alpha$  ist andererseits die mittlere Anzahl der insgesamt pro Zeit- und Volumeneinheit absorbierten Photonen  $N_{\text{abs}} = \alpha I / h\nu$ . Damit folgt für den Absorptionskoeffizienten für das parallel zum Direktor polarisierte Licht:

$$\begin{aligned} \alpha_{\parallel} &= B h\nu \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} \cos^2 \theta f(\theta) \sin(\theta) \, d\theta \\ &= \frac{1}{3} B h\nu N (1 + 2S), \end{aligned} \quad (10)$$

wobei  $N$  die Gesamteilchenzahldichte der Farbstoffmoleküle ist. Analog folgt ausgehend von  $p_{\perp}(\theta, \phi) = BI \sin^2(\theta) \cos^2(\phi)$  für senkrecht zum Direktor polarisiertes Licht

$$\alpha_{\perp} = \frac{1}{3} B h\nu N (1 - S). \quad (11)$$

---

<sup>3</sup>Es wird hier der Einfachheit halber angenommen, dass das Übergangsdipolmoment des Farbstoffs entlang der Moleküllängsachse liegt. Das Prinzip dieser Herleitung bleibt das gleiche, falls diese Bedingung nicht erfüllt ist

Damit sind die direkt experimentell zugänglichen Hauptachsenwerte des Absorptionstensors mit dem Ordnungsparameter in Zusammenhang gestellt:

$$S = \frac{\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}}{\alpha_{\parallel} + 2\alpha_{\perp}} \quad (12)$$

Durch Absorptionsmessungen kann somit in diesem Versuch der Ordnungsparameter bestimmt werden.

## Zweiter Teil: Optische Reorientierung

Befindet sich der LC in einem elektrischen Feld  $\vec{E}$ , ergibt sich eine elektrische Verschiebungsdichte  $\vec{D} = \bar{\epsilon}\vec{E}$ , die wegen der Anisotropie des Dielektrizitätstensors  $\bar{\epsilon}$  i.a. nicht parallel zum elektrischen Feld ist.  $\vec{D}$  läßt sich durch die Hauptachsenwerte  $\epsilon_{\perp}$ ,  $\epsilon_{\parallel}$  und den Direktor  $\vec{n}$  ausdrücken:

$$\vec{D} = \epsilon_{\perp}\vec{E} + (\epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}) (\vec{n}\vec{E})\vec{n}. \quad (13)$$

Damit ergibt sich für das induzierte Drehmoment

$$\vec{\Gamma} = \vec{D} \times \vec{E} = \Delta\epsilon (\vec{n}\vec{E}) (\vec{n} \times \vec{E}) = \Delta\epsilon \sin \Psi \cos \Psi |\vec{E}|^2, \quad (14)$$

wobei  $\Delta\epsilon = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}$  und  $\Psi$  der Winkel zwischen  $\vec{E}$  und  $\vec{n}$  ist. Das feldinduzierte Drehmoment bildet die Grundlage aller elektrooptischen LC-Displays. Es treten zwei Spezialfälle auf, in denen das Drehmoment verschwindet:

1.  $\vec{n} \parallel \vec{E}$ : Dieser Zustand ist stabil gegen kleine Fluktuationen des Direktors.
2.  $\vec{n} \perp \vec{E}$ : Bei ausreichend starkem  $\vec{E}$ -Feld ist dieser Zustand instabil gegen kleine Fluktuationen des Direktors. Solche Fluktuationen sind immer vorhanden, daher existiert eine Schwellintensität, oberhalb derer eine Reorientierung trotzdem möglich ist (Freédericksz-Übergang).

Das Drehmoment bewirkt eine Ausrichtung des Direktors, bis das Drehmoment durch die elastische Kopplung zwischen den Flüssigkristallmolekülen und die Randanbindung kompensiert wird. Genau wie ein DC- oder niederfrequentes AC-Feld kann auch linear polarisiertes Licht ein solches Drehmoment induzieren. Man spricht dann von *optischer Reorientierung* (s. z.B. Kap. 12 in [2]). Da bei optischen Frequenzen des  $\vec{E}$ -Feldes immer  $\epsilon_{\parallel} > \epsilon_{\perp}$  gilt, ist das optisch induzierte Drehmoment  $\vec{\Gamma}$  stets so gerichtet, dass der Direktor dazu tendiert, sich parallel zum  $\vec{E}$ -Feld, d.h. zur Richtung der linearen Polarisation des Lichts auszurichten. Das  $\vec{E}$ -Feld erscheint in Gl. (14) quadratisch. Deshalb ist das optisch induzierte Drehmoment proportional zur Lichtintensität  $I$ . Bei der optischen Reorientierung werden typischerweise Reorientierungswinkel von einigen Grad erreicht. Dadurch ergibt sich für einen Strahl, der im LC propagiert, eine Änderung des effektiven Brechungsindex, die bei solch kleinen Winkeln proportional zur Lichtintensität ist. Somit gilt für den Brechungsindex

$$n_{eff}(I) = n_0 + n_2 I, \quad (15)$$

was oft als Kerr-artiger nichtlinear optischer Effekt bezeichnet wird.  $n_0$  ist dabei der effektive Brechungsindex ohne Beleuchtung, der Koeffizient  $n_2$  ist der sogenannte *nichtlinear-optische Koeffizient* des Materials. Er charakterisiert die Sensitivität der Brechungsindexänderung gegenüber der Intensität. Der Lichtstrahl, der die Reorientierung induziert, erfährt eine Phasenverschiebung durch die von ihm selbst induzierte Brechungsindexvariation, die wiederum proportional zum Intensitätsprofil des Strahls ist. Insbesondere wird dem Strahl durch ein gaussförmiges Intensitätsprofil ein näherungsweise ebenfalls gaussförmiges Phasenprofil aufgeprägt. Da dieses induzierte Phasenprofil in 1. Näherung dem einer Linse entspricht, spricht man je nach Vorzeichen von  $n_2$  über selbstfokussierende ( $n_2 > 0$ ,  $\hat{=}$  Konvexlinse) und selbstdefokussierende ( $n_2 < 0$ ,  $\hat{=}$  Konkavlinse) optische Nichtlinearitäten. Die Größenordnung von  $n_2$  liegt in LCs bei  $10^{-5} - 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{W}$ , was im Vergleich mit Flüssigkeiten ( $10^{-11} - 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) oder den meisten anorganischen Materialien bereits sehr groß ist. Durch Dotieren nematischer LCs mit geringen Konzentrationen dichroitischer Farbstoffe lässt sich diese hohe Sensitivität nochmals um bis

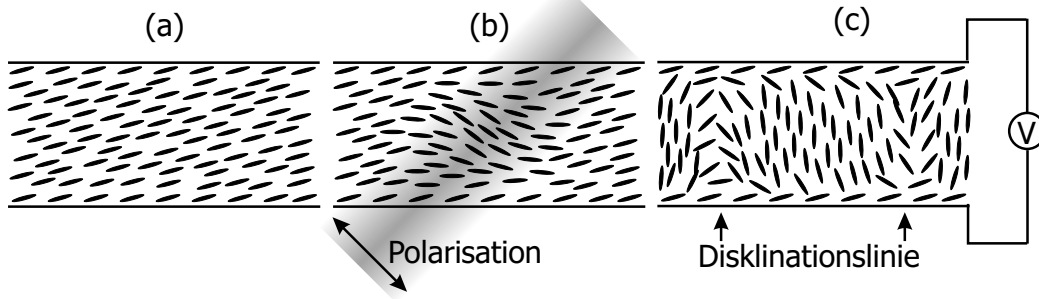


Abbildung 3: Disklinationslinienmethode: (a) Querschnitt einer homogenen planaren LC-Zelle mit pretilt; (b) Optische Reorientierung zur Überkompensation des pretilts; (c) Anlegen eines elektrischen Feldes zur Weiterorientierung in die vorgegebene Richtung. An der Grenze zwischen den beiden Gebieten entgegengesetzter Vorgaberichtung bildet sich ein Defekt aus, der von oben auf die Zelle gesehen eine geschlossene Linie ist. Diese Disklinationslinie entsteht nur, falls in (b) dem pretilt entgegen reorientiert wird. Reale Größenordnungen: Zeldicke  $50 \mu\text{m}$ , Strahldurchmesser  $500 \mu\text{m}$ , pretilt  $1 - 2^\circ$

zu fast 3 Größenordnungen steigern (Jánossy-Effekt). Der zu Grunde liegende Mechanismus ist dabei eine Änderung der zwischenmolekularen Wechselwirkungseigenschaften der Farbstoffmoleküle bei ihrer Anregung. In einfachen farbstoffdotierten Flüssigkristallzellen lassen sich so durch relativ schwache Laserstrahlung im mW-Bereich Phasenhübe von mehreren  $\pi$  induzieren.

Im diesem zweiten Teil des Versuchs sollen grundlegende Besonderheiten bei der optischen Reorientierung untersucht und typische Größenordnungen abgeschätzt werden. Dazu wird die Abhängigkeit des Effekts von der Experimentgeometrie untersucht und eine Methode zum Nachweis der Reorientierung angewandt.

Ein experimenteller Nachweis optischer Reorientierung gelingt indirekt durch eine z.B. interferometrische Bestimmung des einer Lichtwelle aufgeprägten Phasenprofils. Nachteilhaft ist dabei, dass das induzierte Indexprofil auch andere, z.B. thermische Ursachen haben kann [2]. Eine Methode, die unabhängig von solchen Seiteneffekten einen eindeutigen Nachweis liefert, ist die sogenannte *Disklinationslinienmethode* [4]. Planare Flüssigkristallzellen besitzen durch die Präparation bedingt einen kleinen Winkel (*pretilt*) zwischen Direktor und Substratebene (s. Abb. 3(a)). In einem ersten Schritt zum Nachweis der Reorientierung wird nun der Direktor im beleuchteten Gebiet in die dem pretilt entgegengesetzte Richtung gedreht (Abb. 3(b)). Im zweiten Schritt wird über die transparenten ITO-Elektroden der Zelle eine ausreichend hohe niederfrequente AC-Spannung (ca.  $10V_{pp}$  bei 1kHz) angelegt, so dass der Direktor stark in die bereits vorgegebene Richtung weiter gedreht wird. Diese Richtung ist entgegengesetzt innerhalb und ausserhalb des Gebietes, in dem der Laserstrahl den Direktor zur Überkompensation des pretilts ausreichend reorientiert hat (Abb. 3(c)). An der Grenze zwischen beiden Gebieten bildet sich eine Disklinationslinie (z.B. Kap. 4 in [1]). Ein Nachweis der Disklinationslinie ist im Polarisationsmikroskop oder durch Beugung an der Disklinationslinienstruktur möglich. Da der optisch induzierte Reorientierungswinkel intensitätsabhängig ist und ein gaussförmiges Intensitätsprofil eingestrahlt wird, hängt die Größe des von der Disklinationslinie eingeschlossenen Gebiets von der Intensität ab.

## Versuchsdurchführung

- *Es dürfen keine spiegelnden oder gerichtet reflektierenden Gegenstände in den Laserstrahl gebracht werden (Laserstrahl beim Austausch von Komponenten abblocken, Ringe, Uhr, etc. ausziehen)!*
1. Es soll die Temperaturabhängigkeit des Ordnungsparameters des LCs E63 über die Messung des Dichroismus eines Dotierfarbstoffs bestimmt werden. Hierzu stehen zur Verfügung: HeNe-Laser, Photodiode, drehbare Zellenheizung, dotierte und undotierte LC-Zellen mit planarer Randanbindung. Die Zellen sind  $50\mu\text{m}$  dick und enthalten die Cyanobiphenyl-Flüssigkristallmischung E63 der Firma Merck, die mit 0,1 Gew.-% eines Anthrachinonfarbstoffs dotiert ist. Der Farbstoff absorbiert die rote Laserstrahlung.

- (a) Überlegen Sie sich *schon in der Versuchsvorbereitung*, wie sie vorgehen und die Komponenten anordnen können, um die Absorptionskoeffizienten  $\alpha_{\parallel}$  und  $\alpha_{\perp}$  zu bestimmen.
  - (b) Erstellen Sie den Aufbau aus den Komponenten.
  - (c) Bestimmen Sie den Ordnungsparameter in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen Raumtemperatur und einer Temperatur oberhalb des Phasenübergangs N–I. Messen Sie hierzu zunächst  $\alpha_{\parallel}(T)$ , dann  $\alpha_{\perp}(T)$ . Beobachten Sie das Strahlprofil vor und während des Phasenübergangs. Die Transmission der undotierten Zellen brauchen Sie nur einmal und bei einer Temperatur zu bestimmen. Insbesondere bei der Messung von  $\alpha_{\perp}(T)$  können als Nebeneffekt Schwankungen auftreten (Zelle als Fabry-Perot). Notieren Sie daher Maxima und Minima der Schwankungen und benutzen Sie zur Auswertung die Mittelwerte.
2. Durch optische Reorientierung induzierte Disklinationslinie unter dem Polarisationsmikroskop
- (a) Bauen Sie den Aufbau so um, dass Sie unter dem Polarisationsmikroskop eine Disklinationslinie erzeugen und beobachten können.
  - (b) Untersuchen Sie qualitativ die Abhängigkeit von der Polarisation des reorientierenden Strahls und von der Geometrie des Aufbaus (Vorzeichen des Pretilts).
  - (c) Fotografieren Sie das Pumpstrahlprofil (Mikroskopbeleuchtung dazu abschalten und keine Spannung an Zelle anlegen) und zugehörige Disklinationslinien bei verschiedenen Amplituden der angelegten Spannung.
3. Beugung an der Disklinationslinie
- (a) Bauen Sie den Aufbau um, so dass Sie die Beugung an der Disklinationslinie auf einem Schirm hinter der Zelle beobachten können. Dazu muss der Strahl mit einer Linse leicht fokussiert werden und die richtige Polarisation aufweisen. Die Geometrie des Aufbaus muss die Erzeugung der Disklinationslinie ermöglichen.
  - (b) Untersuchen Sie, was mit dem Beugungsbild passiert, wenn nach dem Entstehen der Disklinationslinie die angelegte Spannung variiert wird.
  - (c) Fotografieren Sie mindestens drei typische Beugungsmuster.
4. Selbstbeugungsringe
- (a) Variieren Sie *ohne angelegte Spannung* den Abstand der Zelle vom Brennpunkt der Linse und beobachten Sie die entstehenden Beugungsringe auf dem Schirm.
  - (b) Untersuchen Sie qualitativ die unterschiedlichen Dynamiken bei der Entstehung der Ringe. Verschieben Sie hierzu die Zelle in transversaler Richtung zum Strahl und vergleichen Sie mit den Ringen, die Sie im stationären Fall beobachten.
  - (c) Fotografieren Sie die entstandenen Beugungsringe (im stationären Fall und bei transversaler Bewegung der Zelle).

## Zur Auswertung

1. Zur Temperaturabhängigkeit des Ordnungsparameters:
  - (a) Beschreiben Sie kurz Aufbau und Durchführung der Messung des Ordnungsparameters.
  - (b) Stellen Sie die Temperaturabhängigkeit von  $\alpha_{\parallel}(T)$  und  $\alpha_{\perp}(T)$  in einem gemeinsamen Plot dar. Schätzen Sie hieraus die Phasenübergangstemperatur  $T_N$  ab.
  - (c) Stellen Sie die gemessene Abhängigkeit des skalaren Ordnungsparameters von der reduzierten Temperatur dar. Verwenden Sie hierbei die Näherung eines temperaturunabhängigen Molvolumens<sup>4</sup>. Zeichnen Sie in den gleichen Graphen auch die theoretische Näherungskurve nach Gl. (7) ein.

---

<sup>4</sup>Die Variation des Molvolumens über den gemessenen Temperaturbereich in der nematischen Phase beträgt ca. 1–2%



- (d) Diskutieren Sie Abweichungen der ermittelten Kurve vom Maier–Saupe–Verhalten.
2. Zur Disklinationslinie unter dem Polarisationsmikroskop:
- (a) Beschreiben Sie kurz den Aufbau und seine Funktionsweise.
  - (b) Diskutieren Sie Ihre Beobachtungen und stellen Sie sie in Bezug zu den wichtigsten Eigenschaften der optischen Reorientierung.
  - (c) Erklären Sie die Ursache der Farben, die beim Anlegen der Spannung entstehen.
3. Zum Beugungsbild der Disklinationslinie:
- (a) Stellen Sie Ihre Beobachtungen im Beugungsbild der Disklinationslinie bei Variation der angelegten Spannung mit ihren Eigenschaften (Durchmesser der Schleife, Breite der Disklinationslinie) in Bezug.
4. Zu den Selbstbeugungsringen:
- (a) Erklären Sie die Selbstbeugungsringe, die ohne angelegte Spannung auftreten.
  - (b) Ordnen Sie die Selbstbeugungsringe mit den unterschiedlichen Dynamiken den verschiedenen laserstrahlinduzierten Ursachen für die Modulation des effektiven Brechungsindex zu.
  - (c) Schätzen Sie aus den Selbstbeugungsringen die Größenordnung der induzierten Phasenverschiebung ab.