

Herstellung und Untersuchung polymereingebetteter Flüssigkristallsysteme mit Hilfe der Holografie

Von der Fakultät für Naturwissenschaften
der Universität Paderborn
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
-Dr. rer. nat.-
genehmigte Dissertation

von
Master of Science in Physics
ANDREAS REDLER

Paderborn - Deutschland

1. Gutachter: Prof. Dr. Heinz-Siegfried Kitzerow
2. Gutachter: Prof. Dr. Siegmund Greulich-Weber

2011

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen	5
2.1 Holografie	5
2.1.1 Grundzüge der Interferenzmuster	6
2.1.2 Kristallstruktur bei Vier-Strahl-Interferenz	7
2.1.3 Translationssymmetrie	8
2.1.4 Punktsymmetrie	10
2.1.5 Gesamtsymmetrie	13
2.2 Flüssigkristalle	15
2.2.1 Nematische Phase	16
2.3 Polymere Flüssigkristalle	17
2.4 Polymer-eingebettete Flüssigkristalle	18
2.4.1 Durch Holografie erzeugte polymer-eingebettete Flüssigkristalle .	20
2.5 Reaktions-Diffusions-Modell	22
3 Experimente	25
3.1 Holografische Anordnung	25
3.1.1 Zweistrahlinterferenzaufbau	25
3.1.2 Dreidimensionale Anordnung	27

3.1.2.1	Aufstellung und Justierung der Apparatur	33
3.1.3	Strahlparameter des Umbrella-Aufbaus	36
3.2	Verwendete Substanzen	39
3.2.1	Isotrope Acrylatmonomere	39
3.2.2	Thiol-en-System	41
3.2.3	Flüssigkristall	41
3.2.4	Photoinitiatoren	42
3.3	Probenpräparation	46
3.3.1	Verwendete Mischungen	46
3.3.2	Mikroskopie	47
4	Ergebnisse und Diskussion	49
4.1	Prinzipielle Untersuchung eindimensionaler Gitter	49
4.1.1	Beugungsverhalten Polymer-eingebetteter Flüssigkristalle	50
4.1.2	Analyse der Beugungseffizienz	55
4.1.3	Kinetik der Gitterbildung am System mit Trimethylolpropantriacrylat	56
4.2	Zwei- und dreidimensionale Strukturen	64
4.2.1	Einfluss geometrischer Strahlparameter auf die Struktur	65
4.2.1.1	Auswirkungen der Phasen auf die Struktur	68
4.2.1.2	Variation der Intensitätsverhältnisse	69
4.2.1.3	Änderung der Polarisationszustände der vier Laserstrahlen	70
4.2.1.4	Einfluss des Einfallswinkels	73
4.2.2	Verschiedene Prismenaufsätze	74
4.2.2.1	Geschliffener Retroreflektor, $54,73^\circ$	75
4.2.2.2	Geschliffener Retroreflektor, 39°	79
4.2.2.3	Prisma A für eine einfache kubische (sc) Struktur ($70,5^\circ$)	81

4.2.2.4	Prisma B für eine kubisch flächenzentrierte (fcc) Struktur ($38,9^\circ$)	84
4.2.3	Beugungsuntersuchungen	89
4.2.3.1	Einfluss der Intensitätsvariation	94
4.2.3.2	Beugungseffizienz unter Verwendung einer Halbkugel . .	103
5	Zusammenfassung und Ausblick	105
0.1	Prisma A	116
0.2	Prisma B	117
0.3	Allseitig polierte Halbkugel	118

Kapitel 1

Einleitung

Klassische Materialien zur Aufnahme von Hologrammen oder zur holografischen Datenspeicherung basieren auf lichtempfindlichen anorganischen Verbindungen wie zum Beispiel Silberbromid [Lie88] oder Lithiumniobat [Fre07]. Allerdings wurden in den letzten Dekaden für den gleichen Zweck aussichtsreiche organische Materialien entwickelt, so haben Rhee et. al. [RCVS95] die dynamischen Hologrammaufnahmen in reaktiven DuPont Polymeren für fotografische Filmanwendungen untersucht. Polymere in Kombination mit photoleitenden und elektrooptischen Eigenschaften können auch für photorefraktive Anwendungen von Vorteil sein [Kip07]. Bezogen auf die Möglichkeiten der Molekül- und Strukturanordnung und der daraus resultierenden funktionellen Eigenschaften sind Polymermischungen oder organische Verbindungen besonders vielseitig. Die holografische Bildung von polymereingebetteten Flüssigkristallen PDLCs bietet die besondere Möglichkeit [Drz95], Hologramme und optische Elemente zu erstellen, deren Beugungseffizienzen mit angelegten elektrischen und magnetischen Feldern gesteuert werden können [TNS⁺95].

Polymereingebettete Flüssigkristallsysteme (PDLC) können Verwendung finden als Displays oder auch als Fenster, die mit Hilfe eines elektrischen Feldes zwischen transparentem und transluzentem Zustand geschaltet werden. Zusätzlich kommen sie als vielversprechende Anwendungen auf dem Gebiet der Photonik in Betracht, da der feldinduzierte Wechsel zwischen einem beugenden und nicht beugenden Zustand die Herstellung von elektrisch ansprechbaren optischen Bauelementen oder Hologrammen ermöglicht.

Holografisch erzeugte polymereingebettete Flüssigkristallsysteme [QLSC04] sind be-

züglich ihrer möglichen Anwendungen als optisch brechende Bauelemente wie z. B. schaltbare Linsen oder Strahldeflektoren umfangreich erforscht. Grundlegende Forschungen auf dem Gebiet der Erzeugung und Charakterisierung von eindimensionalen Gittern sind hinreichend bekannt [KSJ96, Kit98, Hoi05]. Diese Gitter können mit Hilfe von Polymerisation induzierter Phasenseparation [MLR⁺92, Lou93] hergestellt werden. Zu diesem Zweck wird ein mit zwei kohärenten Strahlen erzeugtes Interferenzmuster auf eine Mischung aus einem photoreaktiven Monomer, einem Photoinitiator und einem Flüssigkristall gelenkt. Die Bildung des PDLC kann mit entsprechenden Reaktions-Diffusions-Modellen [ZM94, BC00, MKN⁺05] beschrieben werden. Solche Modelle wurden zwar entwickelt und in Veröffentlichungen diskutiert, die Größen einiger entscheidender Materialeigenschaften und Parameter wurden dabei jedoch lediglich abgeschätzt. Umfassende Studien, die neben den optischen Eigenschaften auch experimentelle Messungen der photochemischen Reaktionsgeschwindigkeit und der Diffusionskoeffizienten desselben Systems einschließen, fehlten bislang. Daher wurde für ein schlichtes PDLC-System die Beugungseffizienzmessung mit den theoretischen Werten verglichen, dazu wurden Polymerisationsraten aus der Doktorarbeit von Herrn Hoischen [Hoi05] verwendet und Diffusionskonstantenbestimmungen von Mingxue Tang aus der Arbeitsgruppe von Frau Prof. Schmidt durchgeführt.

In polymereingebetteten Flüssigkristallsystemen können auch mehrdimensionale Strukturen ähnlich zu den photonischen Kristallen hergestellt werden [TNS⁺02, EQC03b, EQC03a, YCWL03]. Hierfür ist die Interferenz von mindestens drei Strahlen erforderlich, die aus einem komplexeren optischen Holografie-Aufbau resultiert. Eine Apparatur aus vier interferierenden Strahlen für die Herstellung von dreidimensionalen Strukturen basierend auf der Lithografie wurde von Herrn Meisel im Rahmen seiner Doktorarbeit [Mei06] implementiert und zum Einschreiben dreidimensionaler Gitter in Photolackschichten eingesetzt. Dort lag der Fokus auf der Untersuchung photonischer Bandlücken diverser in Photolackschichten eingeschriebener Gitter.

In dieser Arbeit wurden neben eindimensionalen Gittern auch mehrdimensionale Strukturen in PDLCs eingeschrieben und untersucht. Simultan beim Einschreiben des eindimensionalen Gitters wurde die Beugungseffizienz aufgenommen, um so die Gitterkinetik zu beobachten. Der sogenannte Umbrella-Aufbau, bei dem vier Laserstrahlen in einem Ort zur Interferenz gebracht werden, wurde realisiert. Der Zweck dieser experimentellen Anordnung ist, mehrdimensionale Strukturen in PDLCs zu erstellen, um

diese anschließend zu charakterisieren. Dabei stellte sich die Frage, wie ein spezielles Prisma geschaffen sein sollte, um die vier Laserstrahlen in der Testzelle zur Interferenz zu bringen. Zunächst wurden die vier Strahlen mit Hilfe eines geschliffenen Retroreflektors in der Probe zur Interferenz gebracht. Danach ersetzten speziell angefertigte Prismen mit den gewünschten Einfallswinkeln den Retroreflektor. Außerdem wurde der Einfluss der vier Parametersets (die Intensitätsverhältnisse, der Einfallswinkel zwischen den umgebenden Strahlen und dem zentralen Strahl, die Polarisationszustände und die relativen Phasen der Strahlen) auf die Interferenzstruktur mit Hilfe des Programms PovRay untersucht.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

2.1 Holografie

Das Prinzip der Holografie wurde erstmals 1947 als ein Verfahren zur Kompensation von Aberrationen im Elektronenmikroskop [Gab48, Gab49] vom Physiker Dennis Gabor entwickelt. Er erhielt 1971 für diese Verdienste den Nobelpreis für Physik. Gabor hatte mit einem Elektronenstrahl ein Hologramm einer Probe aufgenommen und im Anschluss mit kohärentem Licht optisch rekonstruiert. Bei der Holographie wird zusätzlich zur Intensität des einfallenden Lichtes die Phase mit Hilfe der Interferenz gespeichert. Dazu wird kohärentes Licht verwendet, um präzise Interferenzmuster zu erzeugen. Bei Beleuchtung eines Objektes mit diesem Licht entsteht durch Reflexion und Streuung ein Wellenfeld, das als Objektwelle bezeichnet wird. Ein zweiter Lichtstrahl, die Vergleichs- bzw. Referenzwelle, beleuchtet das lichtempfindliche Aufnahmemedium, so dass Interferenz zwischen diesen beiden Wellenfeldern entsteht. Es wird die relative Phase zwischen Objekt- und Referenzwelle aufgezeichnet. Verschiedene holographische Verfahren unterscheiden sich in der Führung von Objekt- und Referenzwelle. Durch Überlagerung von zwei oder mehreren ebenen Wellen entstehen ein- beziehungsweise mehrdimensionale Gitterstrukturen.

In dieser Arbeit wurden mehrere Laserstrahlen miteinander zur Interferenz gebracht. Dadurch können abhängig von der Anzahl und der Geometrieanordnung der Laserstrahlen verschiedene Interferenzmuster entstehen. Werden zum Beispiel zwei kohären-

te Laserstrahlen einander überlagert, so entsteht ein eindimensionales Interferenzmuster. Die Beschäftigung mit der Bestrahlungsstärke dieses Interferenzmusters ist nicht nur für eine experimentelle Realisierung, sondern auch für eine theoretische Berechnung und Betrachtung der entstehenden Gitter wichtig. Das Unterkapitel 2.1 enthält Symmetriebetrachtungen der Gitter. Sie sind aus der Arbeit von Herrn Meisel [Mei06] zusammenfassend entnommen und können dort in ausführlichen Einzelheiten nachgelesen werden.

2.1.1 Grundzüge der Interferenzmuster

Eine ebene Welle kann durch das elektrische Feld \vec{E} am Ort \vec{r} zum Zeitpunkt t ausgedrückt werden:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{A} e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (2.1)$$

Der komplexe Vektor \vec{A} beinhaltet die Amplitude und die Polarisationsrichtung der Welle, der Wellenvektor wird durch \vec{k} und die Kreisfrequenz durch ω ausgedrückt.

Durch Überlagerung kohärenter ebener Wellen entstehen bestimmte Interferenzmuster. Es wird nur die Interferenz ebener Wellen mit der gleichen Kreisfrequenz ω erörtert, so dass die Beträge der beteiligten Wellenvektoren gleich sind

$$|\vec{k}_u| = k, \quad (\text{für } u = 1 \dots n). \quad (2.2)$$

Durch Summation mehrerer elektrischer Feldvektoren kann die Interferenz beschrieben werden. Hierbei ist die Bestrahlungsstärke D dem zeitlichen Mittel des Poynting-Vektors [Hec05] und folglich dem Quadrat des resultierenden elektrischen Feldes proportional. Die periodische Bestrahlungsstärke ist reell, positiv und kann als eine Fourierreihe dargestellt werden [MMB⁺03, BGLC97, Tur01, MWB04, Mei06]:

$$D(\vec{r}) \propto \left| \sum_{u=1}^n \vec{A}_u e^{i(\vec{k}_u \cdot \vec{r} - \omega t)} \right|^2 = \sum_{u=1}^n \sum_{m=1}^n a_{u,m} e^{i\vec{G}_{u,m} \cdot \vec{r}} \quad (2.3)$$

$$\vec{G}_{u,m} := \vec{k}_u - \vec{k}_m, \quad a_{u,m} := \vec{A}_u \cdot \vec{A}_m^* \quad (2.4)$$

Aus den Differenzen der Wellenvektoren \vec{k}_u in den einzelnen Summanden, die im Grunde eine 2-Strahl-Interferenz darstellen, ergeben sich stehende Wellen mit den Wellenvektoren $\vec{G}_{u,m}$, die gleichzeitig die reziproken Gittervektoren [Kit99, MWB04] bilden. Die Summanden auf der rechten Seite der Gleichung (2.3) stellen die Fourierkomponenten dar. Die komplexen Gewichtsfaktoren $a_{u,m}$ der Stehwellen resultieren aus den relativen Amplituden und Polarisierungen der einfallenden ebenen Wellen.

Im Folgenden werden die Symmetrieeigenschaften der Bestrahlungsstärke (2.3) kristallografisch erläutert. Diese können aus den Grundgrößen der Fourierdarstellung $\vec{G}_{u,m}$ und $a_{u,m}$ herangezogen werden [Shm93, Bue49, Was55, BE62, Mer92]. Die Vektoren $\vec{G}_{u,m}$ spannen im Fourieraum das reziproke Gitter auf. Ihnen können Translationssymmetrien unabhängig von den $a_{u,m}$ zugeordnet werden. Die Bestrahlungsstärke ist periodisch, wenn alle Vektoren $\vec{G}_{u,m}$ auf einem Gitter im reziproken Raum liegen [GTVG97, GR01, WNT⁺03]. Im Zusammenhang mit den Gittervektoren können aus den Gewichtsfaktoren $a_{u,m}$ die Punktsymmetrien bestimmt werden. Die Gesamtheit der Symmetrieelemente, die sowohl die Translations- als auch die Punktsymmetrie beschreiben, ergibt die Kristallstruktur, die einer der 230 kristallografischen Raumgruppen [Shm93, Hah83] zugeordnet werden kann.

2.1.2 Kristallstruktur bei Vier-Strahl-Interferenz

Zur Darstellung einer dreidimensionalen Kristallstruktur sind drei linear unabhängige Basisvektoren erforderlich. Die gleiche Bedingung gilt für den Fourieraum mit den zugehörigen reziproken Basisvektoren [Kit99, PCG94]. Falls die Anzahl n in Gl. (2.3) gleich vier ist, erhält man sechs vom Nullvektor verschiedene Differenzvektoren für $\vec{G}_{u,m}$. Diese sechs Kombinationen liegen in einem dreidimensionalen Raum selbstverständlich drei linear unabhängige Gittervektoren, beispielsweise $\vec{G}_{1,2}$, $\vec{G}_{1,3}$ und $\vec{G}_{1,4}$ zu Grunde.

Vergleicht man die Funktion für die Bestrahlungsstärke (2.3) mit bekannten Funktionen, die die gewünschte Gesamtsymmetrie aufweisen, so lassen sich Bedingungen an D bestimmen [MWB04], die zu diesen Symmetrien führen. Dazu werden die beiden Fouriertransformierten $\vec{G}_{u,m}$ und $a_{u,m}$ der beiden Funktionen im reziproken Raum miteinander verglichen. Aus der Röntgenbeugungstheorie können geometrische Strukturfaktoren F_{hkl}^n [Kit99, Shm93, Hah83] mit bekannter kristallografischer Symmetrie für den Vergleich herangezogen werden. Die Übereinstimmung der reziproken Gittervek-

toren $\vec{G}_{u,m}$ und damit der Translationssymmetrien der beiden Fouriertransformierten sollte gegeben sein [Mei06]. Entsprechend sollten auch die Gewichtsfaktoren $a_{u,m}$ der beiden Transformierten sich decken.

2.1.3 Translationssymmetrie

Die Vorüberlegung zielt darauf ab, drei linear unabhängige Basisvektoren \vec{b}_u aufzustellen, die das reziproke Gitter mit einer bestimmten Translationssymmetrie aufspannen [Kit99, PCG94, Mei06]. Dazu liegen vier nicht-komplanare Wellenvektoren \vec{k}_u vor. Ihre Beträge sind gleich groß, d. h. dass nur ihre Richtungen die Translationssymmetrien der Interferenzmuster beeinflussen. Sie beschreiben die Menge aller Gittervektoren $\vec{G}_{u,m}$. Hieraus können die drei Basisvektoren konstruiert werden, deren ganzzahlige Linearkombinationen die anderen Gittervektoren ausdrücken. Das Hauptaugenmerk wird nun auf die Einstellung der Strahlrichtungen gelegt, um ein Interferenzmuster mit bestimmten Translationssymmetrien zu erreichen. Es werden zwei Spalten von Bedingungsgleichungen aufgestellt [Kit99, Mei06]. Dabei gilt für die Basisvektoren \vec{b}_1, \vec{b}_2 und \vec{b}_3 mit den oben genannten Bedingungen, dass sie in der Menge der Differenzvektoren $\vec{G}_{u,m} = \vec{k}_u - \vec{k}_m$ vorhanden sein müssen.

$$\begin{array}{l} \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = \vec{b}_1 \\ \vec{k}_2 - \vec{k}_3 = \vec{b}_2 \\ \vec{k}_3 - \vec{k}_4 = \vec{b}_3 \end{array} \quad \begin{array}{l} \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = \vec{b}_1 \\ \vec{k}_1 - \vec{k}_3 = \vec{b}_2 \\ \vec{k}_1 - \vec{k}_4 = \vec{b}_3 \end{array} \quad (2.5)$$

$$\left| \vec{k}_1 \right|^2 = \left| \vec{k}_2 \right|^2 = \left| \vec{k}_3 \right|^2 = \left| \vec{k}_4 \right|^2$$

Die beiden Strahlenkonfigurationen jeweils einer Translationssymmetrie in Gleichung (2.5) unterscheiden sich dadurch, dass rechts \vec{k}_1 in allen drei Gleichungen enthalten ist, während links die Vektoren \vec{k}_2 und \vec{k}_3 zweimal vorkommen. Die Gleichung (2.5) greift auf die reziproken Gittervektoren aus (Tab. 2.1) des jeweiligen Falls einer fcc-, bcc- oder sc- Translationssymmetrie im Realraum zurück [Kit99, Mei06]. Ein reziprokes Gitter kann mit unterschiedlichen Basisvektoren aufgespannt werden [Kit99]. Daher ist auch deren Aufstellung nicht eindeutig. Da bei der Umbrella-Geometrie ein zentraler Strahl vorkommt, ist es zweckmäßig die Aufstellung so zu wählen, dass der dazugehörige Wellenvektor \vec{k}_1 in jedem Ausdruck der drei Basisvektoren enthalten ist (siehe

Gleichung 2.5 rechts). Es werden die drei kürzesten primitiven Gittervektoren des reziproken Gitters herangezogen [STD03, CYL05].

Tabelle 2.1:

Primitive reziproke Gittervektoren für die drei kubischen Translationssymmetrien; a ist die jeweilige kubische Gitterkonstante.

<u>sc:</u>	<u>bcc:</u>	<u>fcc:</u>
$\vec{b}_1 = \frac{2\pi}{a} \cdot (1, 0, 0)$	$\vec{b}_1 = \frac{2\pi}{a} \cdot (0, 1, 1)$	$\vec{b}_1 = \frac{2\pi}{a} \cdot (-1, 1, 1)$
$\vec{b}_2 = \frac{2\pi}{a} \cdot (0, 1, 0)$	$\vec{b}_2 = \frac{2\pi}{a} \cdot (1, 0, 1)$	$\vec{b}_2 = \frac{2\pi}{a} \cdot (1, -1, 1)$
$\vec{b}_3 = \frac{2\pi}{a} \cdot (0, 0, 1)$	$\vec{b}_3 = \frac{2\pi}{a} \cdot (1, 1, 0)$	$\vec{b}_3 = \frac{2\pi}{a} \cdot (1, 1, -1)$

Durch Lösen der Gleichungssysteme (2.5) mithilfe der Basisvektoren (Tab. 2.1) für die drei kubischen Translationssymmetrien, erhält man jeweils vier Wellenvektoren \vec{k}_u (siehe Tab. 2.2). Aus dem Gleichungssystem (2.5) links ergeben sich Strahlenanordnungen, bei denen je zwei benachbarte Lichtstrahlen den Winkel γ_1 umgeben. Im rechten Gleichungssystem (2.5) beinhalten alle Strahlenanordnungen einen zentralen Lichtstrahl \vec{k}_1 . Dieser kann als Achse eines Kegels mit dem halben Öffnungswinkel γ_2 gesehen werden. Auf dessen Mantel befinden sich die drei übrigen Strahlen in regelmäßiger Anordnung. Dieses Vier-Strahlen-Gefüge wird als Regenschirm- bzw. Umbrella-Konfiguration angegeben [PCG94].

Tabelle 2.2:

Jeweils vier Wellenvektoren für die drei kubischen Translationssymmetrien, die sich durch Lösen der Gleichungssysteme (2.5) ergeben [Mei06].

Gleichungssystem (2.5) links			Gleichungssystem (2.5) rechts		
<u>sc:</u>	<u>bcc:</u>	<u>fcc:</u>	<u>sc:</u>	<u>bcc:</u>	<u>fcc:</u>
$\vec{k}_1 \cdot \frac{a}{\pi}$	(1,1,1)	(4,2,0)	(0,1,2)	(1,1,1)	(1,1,1)
$\vec{k}_2 \cdot \frac{a}{\pi}$	(-1,1,1)	(4,0,-2)	(2,-1,0)	(-1,1,1)	(1,-1,-1)
$\vec{k}_3 \cdot \frac{a}{\pi}$	(-1,-1,1)	(2,0,-4)	(0,1,-2)	(1,-1,1)	(-1,1,-1)
$\vec{k}_4 \cdot \frac{a}{\pi}$	(-1,-1,-1)	(0,-2,-4)	(-2,-1,0)	(1,1,-1)	(-1,-1,1)
$\gamma_{1,2}$	109,47°	36,87°	101,54°	70,53°	109,47°
					38,94°

2.1.4 Punktsymmetrie

Die Punktsymmetrien beinhalten die Dreh-, Spiegel- und Inversionssymmetrien des Interferenzmusters. Bei der Interferenz von vier Strahlen stellen sich sechs verschiedene Differenzvektoren $\vec{G}_{u,m} = \vec{k}_u - \vec{k}_m$ ein, die ungleich null und unter der Bedingung $\vec{G}_{u,m} = -\vec{G}_{m,u}$ zusammengefasst sind. Sie können durch eine Linearkombination der Basisvektoren \vec{b}_u ausgedrückt werden.

Die Gesamtsymmetrie der Struktur setzt sich zusammen aus dem Durchschnitt der Menge der Punktsymmetrien und der Menge der Symmetrien des Translationsgitters (Translationssymmetrie und Punktsymmetrie des Translationsgitters). Durch Zuordnung der Struktur zu einer der 230 kristallografischen Raumgruppen [Hah83] können die Gesamtsymmetrien kategorisiert werden. Dabei hat die Raumgruppe Nr. 1 Translationssymmetrie in drei Richtungen und die Identitätsoperation als Symmetrieelement, die Raumgruppe Nr. 2 hat zusätzlich noch die Möglichkeit der Inversion. Steigt die Zahl der Symmetrieelemente, so erhöht sich auch die Nummerierungszahl. Bei der Implementierung der Umbrella-Konfiguration können die entstehenden Interferenzstrukturen zugehörigen Gesamtsymmetrien zugeordnet werden. Dabei ist es wichtig zu überlegen, wie die Fourieramplituden $a_{u,m}$ aussehen müssten, damit die resultierende Struktur zu einer bestimmten kristallografischen Raumgruppe gehört. Hierzu wird ein Vergleich der Bestrahlungsstärke (2.3) mit Funktionen bekannter Symmetrie durchgeführt [MWB04, Mei06]. Solche Funktionen sind als tabellierte Liste zu jeder der 230 kristallografischen Raumgruppen mit der Nummer N bekannt und heißen geometrische Strukturfaktoren $F_{hkl}^N = A_{hkl}^N + iB_{hkl}^N$ [Shm93, Hah83].

Die drei Basisvektoren $\vec{b}_{1,2,3}$ haben den gleichen Längenbetrag und umschließen jeweils gleiche Winkel miteinander. Daher ist das reziproke Gitter für die Umbrella-Konfiguration rhomboedrisch. Bei einer Transformation aus dem Reziproken bleibt das Gitter im Realraum rhomboedrisch. Es besitzt die neuen Basisvektoren $\vec{a}_{1,2,3}$ mit $\vec{a}_i = 2\pi\vec{b}_j \times \vec{b}_k / |\vec{b}_1 \cdot (\vec{b}_2 \times \vec{b}_3)|$ und mit zyklisch permutierenden Indizes (i,j,k) [Kit99]. Für einen einfacheren Fall wird die Bestrahlungsstärke (2.3) im rhomboedrischen Kristall-

Koordinatensystem $(\vec{x}_r||\vec{a}_1, \vec{y}_r||\vec{a}_2, \vec{z}_r||\vec{a}_3)$ folgendermaßen angegeben [MWB04]:

$$\begin{aligned} \tilde{D}(\vec{r}_r) \propto & \frac{\tilde{D}(\vec{r}_r)}{2} \propto \frac{a_{11} + a_{22} + a_{33} + a_{44}}{2} \\ & + \operatorname{Re}\{a_{12}\} \cos(2\pi x_r) - \operatorname{Im}\{a_{12}\} \sin(2\pi x_r) \\ & + \operatorname{Re}\{a_{13}\} \cos(2\pi y_r) - \operatorname{Im}\{a_{13}\} \sin(2\pi y_r) \\ & + \operatorname{Re}\{a_{14}\} \cos(2\pi z_r) - \operatorname{Im}\{a_{14}\} \sin(2\pi z_r) \\ & + \operatorname{Re}\{a_{32}\} \cos(2\pi(x_r - y_r)) - \operatorname{Im}\{a_{32}\} \sin(2\pi(x_r - y_r)) \\ & + \operatorname{Re}\{a_{43}\} \cos(2\pi(y_r - z_r)) - \operatorname{Im}\{a_{43}\} \sin(2\pi(y_r - z_r)) \\ & + \operatorname{Re}\{a_{24}\} \cos(2\pi(z_r - x_r)) - \operatorname{Im}\{a_{24}\} \sin(2\pi(z_r - x_r)). \end{aligned} \quad (2.6)$$

Diese Angabe hat den Vorteil, dass der halbe Öffnungswinkel γ_2 des Kegels keine Rolle spielt und die Bestrahlungsstärke nicht beeinflusst. Daher kann man sich bei der Analyse der Gesamtsymmetrien auf eine einzige Umbrella-Konfiguration beschränken.

Die geometrischen Strukturfaktoren F_{hkl}^N für die rhomboedrischen Raumgruppen, die mit den Nummern N = 148, 150, 155, 160, 161, 166 und 167 bei [Shm93, Hah83] im rhomboedrischen Kristallsystem enthalten sind, beinhaltet die Tabelle 2.3 als Auflistung [MWB04].

Der geometrische Strukturfaktor der Raumgruppe Nr. 146 setzt sich zum Beispiel aus folgenden Teilen mit $hkl = 100$ zusammen:

$$\begin{aligned} F_{hkl}^{146} &= A_{hkl}^{146} + iB_{hkl}^{146} \\ &= \cos[2\pi(hx + ky + lz)] + \cos[2\pi(kx + ly + hz)] + \cos[2\pi(lx + hy + kz)] \\ &\quad + i\{\sin[2\pi(hx + ky + lz)] + \sin[2\pi(kx + ly + hz)] + \sin[2\pi(lx + hy + kz)]\} \\ F_{100}^{146} &= \cos[2\pi x] + \cos[2\pi z] + \cos[2\pi y] + i\{\sin[2\pi x] + \sin[2\pi z] + \sin[2\pi y]\} \end{aligned} \quad (2.7)$$

Vergleicht man die Bestrahlungsstärke aus (2.6) mit den geometrischen Strukturfaktoren der rhomboedrischen Raumgruppen (Tabelle 2.3), so folgt [Mei06]:

- Die räumlichen Koordinaten x_r, y_r und z_r sind in der Bestrahlungsstärke \tilde{D} sowohl (2.6) nur einzeln als auch zweifach als Differenzen $(z_r - x_r; y_r - z_r; x_r - y_r)$ vorhanden. Daher beschränkt sich die Betrachtung in Tab. 2.3 auf die Fälle $(h, k, l) = (i, 0, 0)$ und $(h, k, l) = (i, -i, 0)$. Die ersten Strukturfaktoren für $i = 1$, die ungleich null sind, weisen die Raumgruppen Nr. 146, 148, 155, 160 und 166 auf.

Tabelle 2.3:

Geometrische Strukturfaktoren F_{hkl}^N der sieben rhomboedrischen kristallografischen Raumgruppen [Shm93, Hah83] mit verkürzter Darstellung:

$$E(ccc) = c(hkl) + c(klh) + c(lhk); \quad O(ccc) = c(khl) + c(lkh) + c(hlk);$$

$$E(sss) = s(hkl) + s(klh) + s(lhk); \quad O(sss) = s(khl) + s(lkh) + s(hlk);$$

$c(hkl) = \cos(2\pi(hx_r + ky_r + lz_r))$ und $s(lkh) = \sin(2\pi(lx_r + ky_r + hz_r))$. Die Großbuchstaben E und O stehen für gerade (Even) und ungerade (Odd) Permutationen der ganzen Zahlen h, k und l. In den Argumenten der Sinus- und Kosinusfunktionen bleiben x_r , y_r und z_r an fester Position. Für $(h,k,l)=(1,0,0)$ gilt: $E(sss)=O(sss)$ und $E(ccc)=O(ccc)$; für $(h,k,l)=(1,-1,0)$ gilt: $E(sss)=-O(sss)$ und $E(ccc)=O(ccc)$ [MWB04, Mei06].

N	\tilde{A}_{hkl}^N	\tilde{B}_{hkl}^N	\tilde{A}_{100}^N	\tilde{A}_{1-10}^N	\tilde{B}_{100}^N	\tilde{B}_{1-10}^N
146	$E(ccc)$	$E(sss)$	\tilde{A}_{100}^{146}	\tilde{A}_{1-10}^{146}	\tilde{B}_{100}^{146}	\tilde{B}_{1-10}^{146}
148	$E(ccc)$	0	\tilde{A}_{100}^{146}	\tilde{A}_{1-10}^{146}	0	0
155	$E(ccc) + O(ccc)$	$E(sss) - O(sss)$	$2\tilde{A}_{100}^{146}$	$2\tilde{A}_{1-10}^{146}$	0	$2\tilde{B}_{1-10}^{146}$
160	$E(ccc) + O(ccc)$	$E(sss) + O(sss)$	$2\tilde{A}_{100}^{146}$	$2\tilde{A}_{1-10}^{146}$	$2\tilde{B}_{100}^{146}$	0
161	$h+k+l$ gerade $E(ccc) + O(ccc)$	$h+k+l$ gerade $E(sss) + O(sss)$	0	0	0	0
	$h+k+l$ ungerade $E(ccc) - O(ccc)$	$h+k+l$ ungerade $E(sss) - O(sss)$	0	0	0	0
166	$E(ccc) + O(ccc)$	0	$2\tilde{A}_{100}^{146}$	$2\tilde{A}_{1-10}^{146}$	0	0
167	$h+k+l$ gerade $E(ccc) + O(ccc)$	$h+k+l$ gerade 0	0	0	0	0
	$h+k+l$ ungerade $E(ccc) - O(ccc)$	$h+k+l$ ungerade 0	0	0	0	0

- Bei der Betrachtung der Koeffizienten $Re\{a_{lm}\}$ und $Im\{a_{lm}\}$ in (2.6) kommen die dazu gehörenden trigonometrischen Funktionen in Tabelle 2.3 mit gleichen Vorfaktoren vor, die jeweils gleich eins sind. Auf Grund der Forderung nach rhomboedrischer Gesamtsymmetrie lässt sich dadurch die Anzahl der a_{lm} auf vier Größen

u, v, p und q begrenzen.

$$\begin{aligned} u &:= \operatorname{Re} \{a_{12}\} = \operatorname{Re} \{a_{13}\} = \operatorname{Re} \{a_{14}\} \\ v &:= \operatorname{Re} \{a_{32}\} = \operatorname{Re} \{a_{43}\} = \operatorname{Re} \{a_{24}\} \\ p &:= \operatorname{Im} \{a_{12}\} = \operatorname{Im} \{a_{13}\} = \operatorname{Im} \{a_{14}\} \\ q &:= \operatorname{Im} \{a_{32}\} = \operatorname{Im} \{a_{43}\} = \operatorname{Im} \{a_{24}\} \end{aligned} \quad (2.8)$$

Mit Hilfe der Gleichungen in (2.8) folgt für \tilde{D} :

$$\begin{aligned} \tilde{D}(\vec{r}_r) \propto & \frac{a_{11} + a_{22} + a_{33} + a_{44}}{2} \\ & + u [\cos(2\pi x_r) + \cos(2\pi y_r) + \cos(2\pi z_r)] \\ & - p [\sin(2\pi x_r) + \sin(2\pi y_r) + \sin(2\pi z_r)] \\ & + v [\cos(2\pi(x_r - y_r)) + \cos(2\pi(y_r - z_r)) \cos(2\pi(z_r - x_r))] \\ & - q [\sin(2\pi(x_r - y_r)) + \sin(2\pi(y_r - z_r)) \sin(2\pi(z_r - x_r))]. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Durch den Real- und Imaginärteil des geometrischen Strukturfaktors F_{hkl}^{146} der niedrigsten rhomboedrischen Raumgruppe kann \tilde{D} (2.9) für verschiedene u, v, p, q - Werte angegeben werden [Mei06]:

$$\begin{aligned} \tilde{D}(\vec{r}_r) \propto & D_0 + u \cdot \tilde{A}_{100}^{146} - p \cdot \tilde{B}_{100}^{146} + v \cdot \tilde{A}_{1-10}^{146} - q \cdot \tilde{B}_{1-10}^{146}, \\ D_0 := & \frac{a_{11} + a_{22} + a_{33} + a_{44}}{2}. \end{aligned} \quad (2.10)$$

Durch Einschränkung der u, v, p, q - Werte folgen höhere Symmetrien. So zeigt z.B. der Vergleich von Gleichung (2.10) mit der Tabelle 2.3, dass die aus der Bedingung p gleich null erhaltene Struktur zur Raumgruppe Nr. 155 gehört.

2.1.5 Gesamtsymmetrie

Wählt man einen Winkel von $\gamma_{fcc} = 38,94^\circ$ (siehe Tabelle 2.2) für die Umbrella-Konfiguration, so ist es möglich eine fcc-Translationssymmetrie zu erzielen. Da in (2.6) eine trigonometrische Funktion mit der Summe $(\vec{x}_r + \vec{y}_r + \vec{z}_r)$ fehlt und somit eine für die fcc-Gesamtsymmetrie notwendige vierzählige Drehachse nicht vorhanden ist, können Strukturen mit fcc-Gesamtsymmetrie nicht realisiert werden [Mei06]. Stattdessen können diese Strukturen rhomboedrisch sein. So stellten Miklyaev et al. [MMB⁺03]

Systeme mit rhomboedrischer Gesamtsymmetrie bei fcc-Translationssymmetrie her.

Für das rhomboedrische Koordinatensystem lauten die reziproken Gittervektoren \vec{b}_{lr} :

$$\vec{b}_{1r} = \frac{2\pi}{|\vec{a}_{1r}|} (1, 0, 0), \quad \vec{b}_{2r} = \frac{2\pi}{|\vec{a}_{2r}|} (0, 1, 0), \quad \vec{b}_{3r} = \frac{2\pi}{|\vec{a}_{3r}|} (0, 0, 1). \quad (2.11)$$

Setzt man die Vorfaktoren v, p und q gleich null, so gewinnt man eine relativ einfache dreidimensionale Struktur mit Inversionssymmetrie. Diese Struktur wird zur rhomboedrischen Raumgruppe Nr. 166 gezählt. Dementsprechend gilt für die Belichtungsstärke im rhomboedrischen Koordinatensystem [Mei06]:

$$D(\vec{r}_r) \propto D_0 + u \left\{ \cos \left(\vec{b}_{1r} \cdot \vec{r}_r \right) + \cos \left(\vec{b}_{2r} \cdot \vec{r}_r \right) + \cos \left(\vec{b}_{3r} \cdot \vec{r}_r \right) \right\}. \quad (2.12)$$

Die Transformation der Darstellung vom rhomboedrischen System \vec{b}_{lr} ins kubische Koordinatensystem \vec{b}_{lk} kann mithilfe einer Matrix [Hah83, MMB⁺03] vollzogen werden:

$$\mathbf{P}^{-1} = \begin{pmatrix} -1 & 1 & 1 \\ 1 & -1 & 1 \\ 1 & 1 & -1 \end{pmatrix} \Rightarrow \vec{b}_{lk} = \vec{b}_{lr} \mathbf{P}^{-1}. \quad (2.13)$$

Somit werden die reziproken Gittervektoren im kubischen System wie folgt dargestellt:

$$\vec{b}_{1k} = \frac{2\pi}{a_{fcc}} (-1, 1, 1), \quad \vec{b}_{2k} = \frac{2\pi}{a_{fcc}} (1, -1, 1), \quad \vec{b}_{3k} = \frac{2\pi}{a_{fcc}} (1, 1, -1). \quad (2.14)$$

Im kubischen Kristallsystem $\vec{r}_k = (x_k, y_k, z_k)$ gilt für die Bestrahlungsstärke [Mei06]:

$$D(\vec{r}_k) \propto D_0 + u \left[\cos \left\{ \frac{2\pi}{a_{fcc}} (-x_k + y_k + z_k) \right\} + \cos \left\{ \frac{2\pi}{a_{fcc}} (x_k - y_k + z_k) \right\} + \cos \left\{ \frac{2\pi}{a_{fcc}} (x_k + y_k - z_k) \right\} \right]. \quad (2.15)$$

Im kartesischen Laborsystem $\vec{r} = (x, y, z)$ gilt entsprechend:

$$D(\vec{r}_k) \propto D_0 + u \left[\cos \left\{ \frac{2\pi}{a_{fcc}} \left(-\frac{x}{\sqrt{6}} + \frac{y}{\sqrt{2}} + \frac{z}{2\sqrt{2}} \right) \right\} + \cos \left\{ \frac{2\pi}{a_{fcc}} \left(-\frac{x}{\sqrt{6}} - \frac{y}{\sqrt{2}} + \frac{z}{2\sqrt{2}} \right) \right\} + \cos \left\{ \frac{2\pi}{a_{fcc}} \left(\frac{2x}{\sqrt{6}} + \frac{z}{2\sqrt{2}} \right) \right\} \right]. \quad (2.16)$$

2.2 Flüssigkristalle

Der Begriff „Flüssigkristall“ kennzeichnet Substanzen mit einem zusätzlichen Aggregatzustand zwischen dem isotrop flüssigen und dem anisotropen, kristallinen Zustand. Die erste Beschreibung eines Flüssigkristalls erfolgte 1888 durch Friedrich Reinitzer [Rei88], indem er auf das farbenvielfältige Erscheinungsbild von Cholesterylbenzoat beim Schmelzen und Erstarren einging. Diese Verbindung wurde zwar bei 145°C flüssig, verlor ihre doppelbrechenden Eigenschaften aber erst bei Temperaturen über 179°C. Anschließend untersuchte Otto Lehmann [Leh89] neben dieser noch weitere Substanzen und führte den Begriff „fließende Kristalle“ ein. George H. Heilmeier [HZ68] nutzte die Möglichkeit der Ausrichtung vom nematischen (siehe im folgenden Unterkapitel [2.2.1](#)) Flüssigkristall p-n-Butoxy Benzoesäure entlang eines elektrischen Feldes dazu, die Moleküle des hinzugegebenen dichroitischen Farbstoffes Methylrot zu orientieren. Die Entdeckung dieses Effektes von elektrooptischer Schaltbarkeit führte schließlich zum wachsenden Interesse auf Grund von technischen Anwendungsmöglichkeiten.

In einem Kristall sind die Atome bzw. Moleküle regelmäßig auf einem dreidimensionalen Kristallgitter angeordnet. Es existiert eine Fernordnung für die Position und auch für die Orientierung, wenn die Moleküle eine anisotrope Form aufweisen. Diese Ordnung verschwindet nach Schmelzen des Kristalls. Bei Flüssigkristallen gehen die Verbindungen jedoch nicht direkt in isotrope Flüssigkeiten über, sondern nehmen eine bis mehrere Phasen zwischen den beiden Zuständen „fest“ und „flüssig“ ein, die sogenannten Mesophasen. Sie zeigen eine Orientierungsfernordnung der Teilchen. Abhängig von der Molekülstruktur und der verbliebenen Positionsfernordnung können verschiedene Phasen vorliegen [Cha93, dGP95]. Der größte Anteil thermotroper Flüssigkristalle besteht aus stäbchenförmigen Molekülen. Entsprechend der historischen Nomenklatur von Friedel [Fri22] können diese in drei Typen eingeteilt werden: cholesterisch, smekatisch und nematisch. Da die cholesterische Phase die chirale Variante der nematischen Phase darstellt, wird heute systematisch zwischen nematischen und smekatischen, sowie chiralen und nicht-chiralen Flüssigkristallen unterschieden. Im Folgenden wird die nematische Phase näher betrachtet.

2.2.1 Nematische Phase

Die nematische Phase weist lediglich eine Orientierungsordnung der Moleküle auf. Die Längsachsen der meist stäbchenförmigen Moleküle ordnen sich nahezu parallel zueinander an und unterscheiden sich dadurch von der isotropen Flüssigkeit (Abb. 2.1). Die Vorzugsrichtung der Moleküle wird mit Hilfe des Direktors \vec{n} , einem Einheitsvektor, beschrieben.

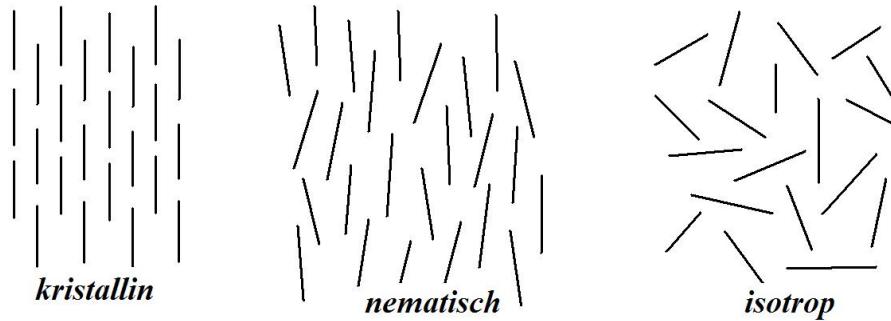


Abbildung 2.1:

Schematische Darstellung der Molekülordnung in der kristallinen, nematischen und isotropen Phase.

Als Folge der Orientierungsordnung zeigt die nematische Phase Doppelbrechung, wie ein optisch einachsiger Kristall. Die Orientierung entlang der Vorzugsrichtung ist nicht perfekt, weil der insgesamt flüssige Charakter des Systems eine relativ freie Beweglichkeit der einzelnen Moleküle bedingt. Der in Gleichung (2.17) definierte Ordnungsgrad S beschreibt die Güte der Anordnung.

$$S = \frac{1}{2} \langle 3 \cdot \cos^2 \vartheta - 1 \rangle \quad (2.17)$$

Der Winkel ϑ gibt die Neigung der Moleküllängsachse gegenüber dem Direktor an. Die spitzen Klammern bedeuten, dass der Mittelwert über das Molekülensemble gebildet wird. In einem System aus perfekt zum Direktor angeordneten Molekülketten wird der Wert für den Ordnungsgrad gleich eins. Der Wert von S liegt typischerweise zwischen 0,3 und 0,7 [Ste94] für nematische Phasen und nimmt mit steigender Temperatur ab (siehe Abb. 2.2).

Mit steigender Temperatur bewegen sich die Moleküle stärker bis die parallele Molekulanordnung schließlich ganz verloren geht. Die entsprechenden flüssigkristallinen

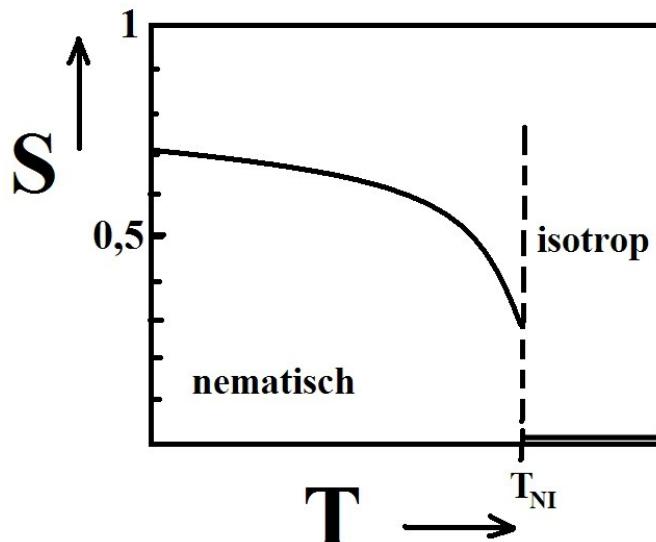


Abbildung 2.2:

Ordnungsparameter S der nematischen Phase in Abhängigkeit von der Temperatur [Ste94].

Eigenschaften verschwinden. Der Flüssigkristall wird isotrop und der Ordnungsgrad wird null.

2.3 Polymere Flüssigkristalle

In dieser Arbeit wurde zwar nicht mit polymeren Flüssigkristallen gearbeitet, zum Zwecke der Übersichtlichkeit und der klaren Abgrenzung soll hier aber kurz auf diese Substanzen eingegangen werden. LCP steht für „Liquid Crystal Polymer“ und beinhaltet Polymere, die im Temperaturbereich über dem Schmelzpunkt thermotrope oder in Lösungen lyotrope Mesphasen bilden [DGG⁺98]. Die Makromoleküle flüssigkristalliner Polymere enthalten flüssigkristall-ähnliche (mesogene) Monomereinheiten. Bilden die mesogenen Moleküleinheiten selbst die Polymerkette, spricht man von Hauptkettenpolymeren. In Seitenkettenpolymeren sind die flüssigkristallinen Baugruppen direkt oder über einen Spacer an eine nicht-flüssigkristalline Hauptkette gebunden. Es können Polymernetzwerke vorhanden sein, falls durch Einsatz multifunktioneller Monomere die einzelnen Polymerketten untereinander verbunden sind. Flüssigkristalline Polyme-

re kommen auch in der Natur vor. So entstehen z. B. lyotrope Phasen, wenn DNA in Wasser vorliegt.

2.4 Polymer-eingebettete Flüssigkristalle

Ein mehrphasiges System aus einem niedermolekularen Flüssigkristall und einem Polymer bezeichnet man als polymer-eingebetteten Flüssigkristall (engl.: „**Polymer-Dispersed Liquid Crystal**“, PDLC). Diese können z. B. aus einem reaktiven Monomer, einem niedermolekularen nicht-reaktiven Flüssigkristall und einem Initiator durch Photo-Polymerisation (PIPS - polymerisation-induced phase separation) hergestellt werden. Die Polymerisation hat zur Folge, dass das Polymer und der Flüssigkristall eine Phasenseparation erfahren [BKST96, SKBT96]. Idealerweise sollte der in der Polymermatrix eingebettete Flüssigkristall in der Gestalt von kleinen Kugelchen dispergiert sein. Bei den meisten PDLCs erfährt das Licht eine Streuung, die von der Größe, Form und Dichte der Flüssigkristalltröpfchen, von den Brechungsindizes des Flüssigkristalls und des Polymers sowie von der Wellenlänge bestimmt [Drz95] wird. Der wichtigste Parameter für die Transmission ist jedoch der effektive Brechungsindex, der von der Orientierung der Tröpfchen abhängt. Ohne ein angelegtes externes Feld ist diese zufällig. Wenn einfallendes Licht die Vielzahl der Tröpfchen und Polymerübergänge passiert, so variiert der Brechungsindex von Tröpfchen zu Tröpfchen, wobei das Licht stark gestreut wird. Bei einem angelegten elektrischen Feld richten sich einige Flüssigkristallmoleküle so aus, dass der Direktor parallel zum Feld steht. Die Doppelbrechung der Tröpfchen ist reduziert und die Streuung wird verringert. Bei Anlegen hoher Felder ist nahezu jedes Flüssigkristallmolekül so orientiert, dass der Direktor parallel zum Feld verläuft und der effektive Brechungsindex dem ordentlichen Brechungsindex entspricht. Sollte dieser mit dem Brechungsindex vom Polymer übereinstimmen, so findet keine Lichtbrechung an den Phasengrenzen zwischen Flüssigkristall und Polymer statt. Das System erscheint transparent (Abbildung 2.3).

Die Herstellung von Gitterstrukturen in PDLCs kann auch durch den thermischen Effekt eines Intensitätsgitters [KSJ96] durchgeführt werden.

Liegt eine homogene Mischung aus einem Flüssigkristall und einem erweichten Polymer vor, so kann sie mit einer gewissen Rate gekühlt werden, um eine Phasensepa-

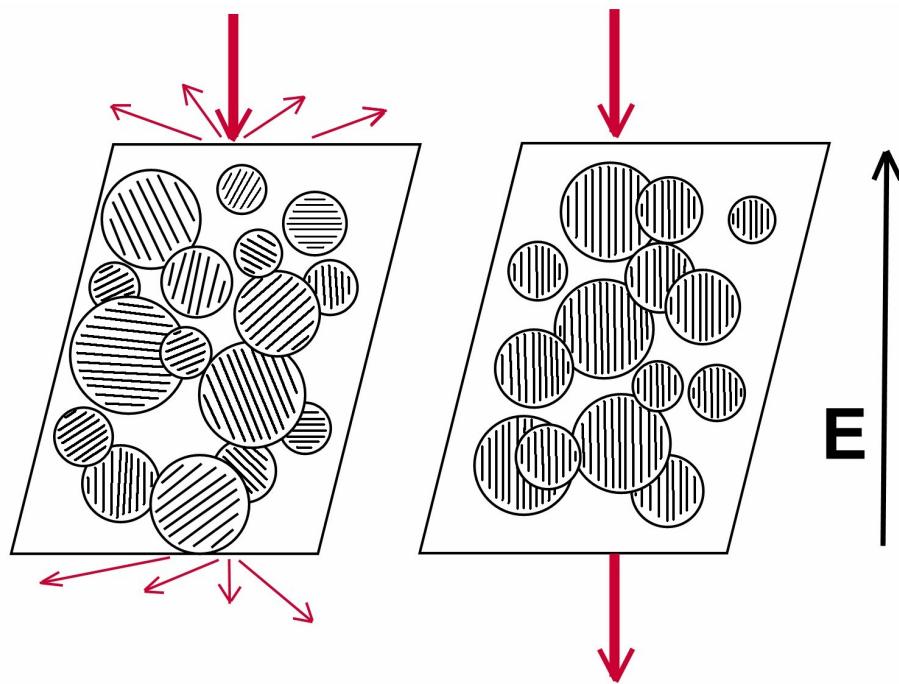


Abbildung 2.3:

Schematische Darstellung des einfallenden Lichtstrahls an einem üblichen PDLC-System, links: Streuer Zustand bei Weglassen eines elektrischen Feldes, rechts: Transparenter Zustand bei Anlegen eines hohen elektrischen Feldes.

ration zu induzieren. Dabei sollte die Schmelztemperatur des Polymerbindematerials niedriger sein als die Entmischungstemperatur. Sobald sich das Polymer verhärtet, bilden sich Flüssigkristalltröpfchen, die bis zum Erreichen der Glasübergangstemperatur des Polymers anwachsen. Dabei hängen Kühlrate und Tröpfchengröße antiproportional zusammen. Zur Herstellung von kleinen Tröpfchen sind schnellere Kühlraten geeignet, da nicht genügend Zeit zum Ausbilden von größeren Tropfen zur Verfügung steht. Im folgenden Unterabschnitt wird auf die durch Polymerisation induzierte Phasenseparation [MLR⁺92, Lou93] näher eingegangen.

2.4.1 Durch Holografie erzeugte polymer-eingebettete Flüssigkristalle

Mit Holografie lassen sich holografisch strukturierte polymer-eingebettete Flüssigkristalle (H-PDLC) erzeugen. Als Ausgangsmaterial dient ebenfalls eine homogene Mischung, die einen nicht-reaktiven Flüssigkristall, ein reaktives Monomer und einen lichtempfindlichen Photoinitiator enthält. Das Beleuchten der Probe mit einem holografischen Interferenzmuster (Abb.2.4 (a)) führt zur Polymerisation an Orten mit hoher Strahlungsintensität. Hier findet eine rasche Vernetzung des Monomers zu einem Polymer statt. Infolgedessen diffundiert das Monomer an diese Orte (Abb.2.4 (b)). Die entstehende Struktur besteht aus zwei Phasen, die jeweils eine hohe Konzentration an Polymer oder an Flüssigkristall aufweisen (Abb.2.4 (c)). Als Folge entsteht eine räumliche Brechungsindexmodulation, ein Phasenhologramm (Abb.2.4 (d)).

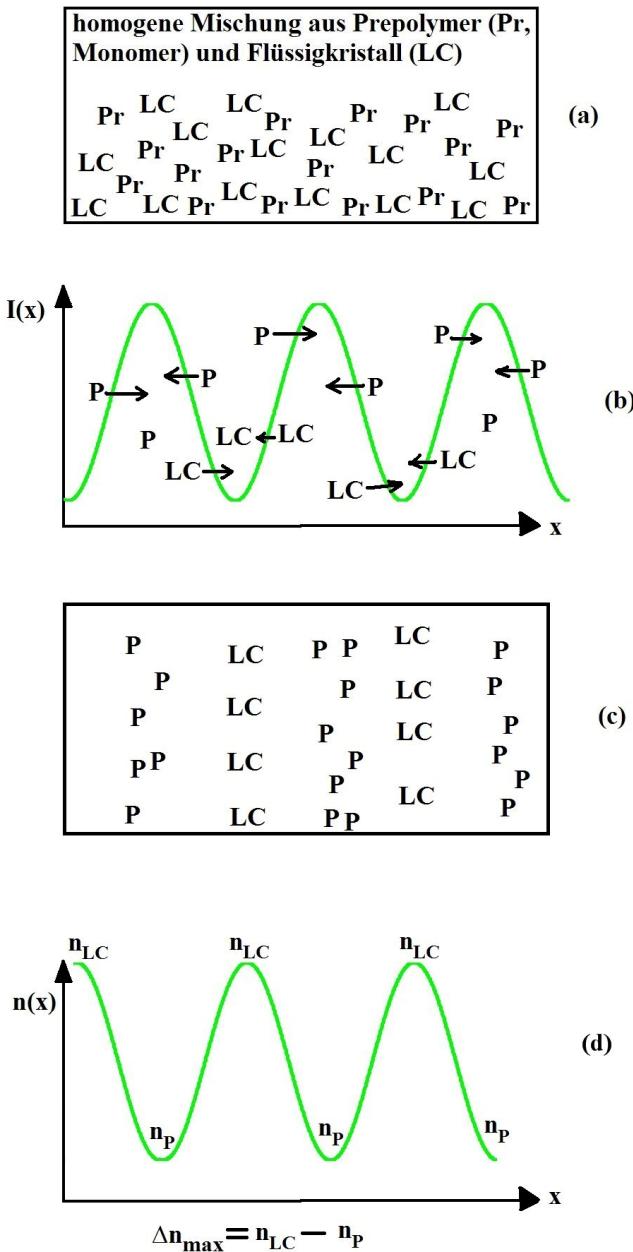


Abbildung 2.4:

Schematischer Entstehungsprozess von H-PDLCs am Beispiel einer eindimensionalen Struktur.
 (a) Homogene Mischung aus Monomer (Pr) und Flüssigkristall (LC) vor einer Bestrahlung. (b) Die Interferenzstruktur bzw. das Intensitätsgitter ist sinusförmig. An den helleren Stellen polymerisiert das Monomer und der Flüssigkristall diffundiert an die dunkleren Stellen. (c) Periodische Abfolge von Stellen mit hoher Konzentration an Polymer oder an Flüssigkristall. (d) Brechungsindexmodulation entlang der x-Richtung.

2.5 Reaktions-Diffusions-Modell

Die Interferenz zweier kohärenter Laserstrahlen führt zu einer ungleichförmigen Bestrahlungsverteilung. Die Polymerisationsrate steigt mit höherer Belichtungsintensität, so dass in den helleren Regionen mehr Monomere pro Sekunde sich auf Grund von chemischen Reaktionen verketten als in den dunkleren Regionen. Die ortsabhängige Polymerisationsrate bewirkt einen Konzentrationsgradienten des Monomers, der die Monomerdiffusion aus den dunklen an die hellen Stellen erzeugt. Die räumliche Variation der Monomer-, Polymer- und Flüssigkristallkonzentrationen korreliert mit der räumlichen Modulation des Brechungsindex und ergibt ein Phasengitter.

Unter der Annahme, dass die Monomere frei diffundieren, kann für die Monomerkonzentration $u(x, t)$ eine eindimensionale Diffusionsgleichung aufgestellt werden:

$$\frac{\partial u(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[D(x, t) \frac{\partial u(x, t)}{\partial x} \right] - F(x, t)u(x, t). \quad (2.18)$$

In Gleichung (2.18) ist $F(x, t)$ die Polymerisationsrate und $D(x, t)$ ist der Diffusionskoeffizient, der auf Grund von Änderungen der Polymerkonzentration und der Beweglichkeit der Monomere nicht konstant ist.

Die räumliche Intensitätsverteilung der Interferenz zweier planarer Wellen ist gegeben durch

$$I(x, t) = I_0 [1 + V(t) \cdot \cos(k \cdot x)]. \quad (2.19)$$

In Gleichung (2.19) ist I_0 die mittlere Strahlungsintensität, V ist der Interferenzkontrast und k ist gegeben durch $k = 2\pi/\Lambda$ mit Λ als Gitterkonstante. Unter der Annahme der Proportionalität zwischen der Polymerisationsrate und der Intensitätsverteilung kann man schreiben

$$F(x, t) = F_0 [1 + V(t) \cdot \cos(k \cdot x)]. \quad (2.20)$$

Für numerische Berechnungen wird eine Methode verwendet, die von Zhao und Mourioulis [ZM94] entwickelt und von anderen Gruppen [CLHS97, OLK⁺06] erweitert wurde. Auf Grund der Periodizität der Monomerkonzentration, können die Lösungen der Gleichung (2.18) in eine Fourierreihe entwickelt werden. Nach Ersetzen der Größe $D(x, t)$ in Gleichung (2.18) durch eine Fourierreihe und nach Trennung von verschiedenen

Harmonischen, erhält man ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem [ZM94]. Betrachtet man nur die Amplituden $u_i(\tau)$ der ersten vier Fourierterme ($i = 0, 1, 2, 3$) der Monomerkonzentration, so ergeben sich folgende vier gekoppelte Differentialgleichungen [ZM94]:

$$\frac{du_0(\tau)}{d\tau} = -u_0(\tau) - \frac{1}{2}Vu_1(\tau), \quad (2.21)$$

$$\begin{aligned} \frac{du_1(\tau)}{d\tau} &= -Vu_0(\tau) - [1 + R \exp(-\alpha\tau) \cosh(\alpha V \tau)] u_1(\tau) \\ &\quad - \left[\frac{1}{2}V - R \exp(-\alpha\tau) \sinh(\alpha V \tau) \right] u_2(\tau), \end{aligned} \quad (2.22)$$

$$\begin{aligned} \frac{du_2(\tau)}{d\tau} &= - \left[\frac{1}{2}V - R \exp(-\alpha\tau) \sinh(\alpha V \tau) \right] u_1(\tau) \\ &\quad - [1 + 4R \exp(-\alpha\tau) \cosh(\alpha V \tau)] u_2(\tau) \end{aligned} \quad (2.23)$$

$$- \left[\frac{1}{2}V - 3R \exp(-\alpha\tau) \sinh(\alpha V \tau) \right] u_3(\tau),$$

$$\begin{aligned} \frac{du_3(\tau)}{d\tau} &= - \left[\frac{1}{2}V - R \exp(-\alpha\tau) \sinh(\alpha V \tau) \right] u_2(\tau) \\ &\quad - [1 + 9R \exp(-\alpha\tau) \cosh(\alpha V \tau)] u_3(\tau). \end{aligned} \quad (2.24)$$

Der Parameter $R := D_a k^2 / F_0$ beschreibt das Verhältnis der Diffusionsrate $D_a k^2$ zur Polymerisationsrate F_0 mit dem Anfangsdiffusionskoeffizienten D_a und der reduzierten Zeit $\tau := F_0 t$.

Die Konzentration von polymerisierten Monomeren $N(x, t)$ ergibt nach einer Belichtungszeit t

$$N(x, t) = \int_0^t F(x, t') u(x, t') dt'. \quad (2.25)$$

Das Einsetzen des Ausdrucks in Gleichung (2.20) für die Größe $F(x, t)$ und der Fourierreihe für die Monomerkonzentration in die Gleichung (2.25) ermöglicht die Entwicklung der Polymerkonzentration in eine Reihe

$$N(x, t) = N_0(t) + N_1(t) \cos(k \cdot x) + N_2(t) \cos(2k \cdot x) + \dots, \quad (2.26)$$

wobei die Amplituden der Harmonischen niedriger Ordnung wie folgt als eine Funktion

von τ ausgedrückt werden können:

$$N_0(\tau) = \int_0^\tau \left[u_0(\tau') + \frac{1}{2} Vu_1(\tau') \right] d\tau', \quad (2.27)$$

$$N_1(\tau) = \int_0^\tau \left[Vu_0(\tau') + u_1(\tau') + \frac{1}{2} Vu_2(\tau') \right] d\tau', \quad (2.28)$$

$$N_2(\tau) = \int_0^\tau \left[\frac{1}{2} Vu_1(\tau') + u_2(\tau') + \frac{1}{2} Vu_3(\tau') \right] d\tau', \quad (2.29)$$

$$N_3(\tau) = \int_0^\tau \left[\frac{1}{2} Vu_2(\tau') + u_3(\tau') \right] d\tau', \quad (2.30)$$

Die Verteilung der Flüssigkristallkonzentration Φ_{LC} ist durch die lokale Massenerhaltung bestimmt und kann beschrieben werden mit

$$\Phi_{LC}(x, t) = 1 - u(x, t) - N(x, t). \quad (2.31)$$

Das Profil des Brechungsindex ist gegeben durch [BC00]

$$n(x, t) = \langle n_{LC} \rangle \Phi_{LC}(x, t) + n_p N(x, t) + n_m u(x, t), \quad (2.32)$$

mit n_p als dem Polymer- und n_m als dem Monomer-Brechungsindex. Der mittlere Brechungsindex des Flüssigkristalls ist bestimmt durch

$$\langle n_{LC} \rangle = \sqrt{\frac{2n_0^2 + n_e^2}{3}}. \quad (2.33)$$

Kapitel 3

Experimente

3.1 Holografische Anordnung

Durch den hier verwendeten Aufbau soll eine Gitterstruktur auf holografischem Wege erzeugt werden. Der diodengepumpte $Nd : YVO_4$ Festkörperlaser im Dauerstrichbetrieb (Verdi, Coherent) hat eine Emissionswellenlänge von 532 nm und wird zur Initialisierung der Polymerisation benutzt. Dieser Laser hat eine Ausgangsleistung von bis zu 5 W und zeichnet sich durch eine besonders gute Strahlqualität mit einer Beugungsmaßzahl M^2 kleiner als 1,1 aus. Die Strahlqualität bezieht sich auf die Fokussierbarkeit und die Divergenz eines Laserstrahls. Den Angaben des Herstellers zufolge hat der Verdi-Laser eine Frequenzlinienbreite von weniger als fünf Megahertz [Coh]. Daraus ergibt sich eine mögliche Kohärenzlänge von ca. vierzig Metern.

3.1.1 Zweistrahlinterferenzaufbau

Durch Interferenz zweier Strahlen entsteht eine Intensitätsmodulation des Laserlichts und die eindimensionale Gitterstruktur kann im PDLC gebildet werden. Zunächst passtiert der Laserstrahl einen Strahlteiler. Die beiden Teilstrahlen werden mit Hilfe von Spiegeln am Ort der Probe zur Überlagerung gebracht (Abb. 3.1). Die Gitterkonstante Λ kann mit Hilfe der Gleichung (3.1) berechnet werden.

$$\Lambda = \frac{\lambda_0}{n (\sin(\alpha_1) + \sin(\alpha_2))} \quad (3.1)$$

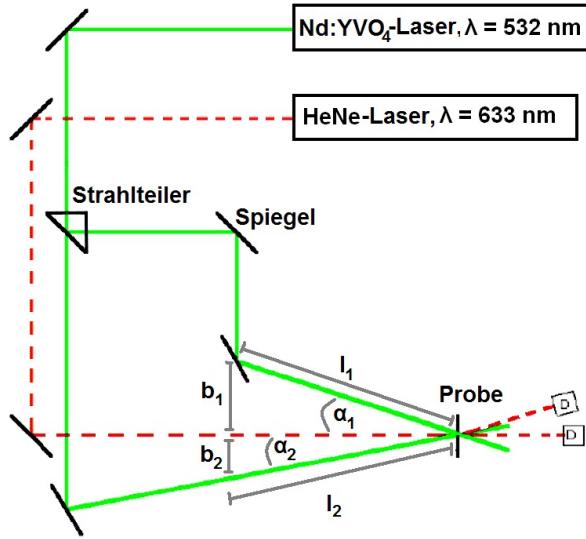


Abbildung 3.1:

Skizzierter Aufbau mit zwei grünen Strahlengängen (durchgezogene Linie) zur Erzeugung eindimensionaler HPDLCs und deren simultane Beugungseffizienzuntersuchung mit dem roten Strahlengang (gestrichelte Linie).

Die Winkel $\alpha_{1,2}$ liegen zwischen dem jeweiligen einfallenden Strahl und der Probennormalen, zu deren Berechnung Gleichung (3.2) verwendet werden kann.

$$\alpha_{1,2} = \arcsin \left(\frac{b_{1,2}}{l_{1,2}} \right) \quad (3.2)$$

Die Einstellung der Winkel $\alpha_{1,2}$ wurde so vorgenommen, dass eine Gitterkonstante von $4\mu m$ in der Probe entstehen sollte. Während der Beleuchtung mit grünem Laserlicht der beiden interferierenden Strahlen wird die Probe gleichzeitig mit einem He-Ne Laser (633 nm) bestrahlt, dessen rotes Laserlicht die Polymerisation nicht initiiert. Am Ort des 0. und 1. Beugungsmaximums hinter der Probe kann der zeitliche Intensitätsverlauf mit Photodioden (Thorlabs) detektiert werden. Vor diesen Photodioden sind Rotfilter fixiert, um den Strahlungseinfall des grünen Lasers und anderer nicht erwünschter Lichtquellen zu verhindern. Mit Hilfe des digitalen Speicheroszilloskops *DataSys 940* (Gould) werden zeitabhängig die Intensitätsdaten erfasst, als Binärcode gespeichert und in eine ASCII-Datei am Computer transformiert.

3.1.2 Dreidimensionale Anordnung

Die für die Herstellung von dreidimensionalen PDLC-Strukturen benutzte Holografie-Apparatur ist in Abbildung 3.2 gezeichnet. Hiermit kann ein Gitter in der Testzelle unterhalb eines Prismas unter Verwendung des oben genannten diodengepumpten $Nd : YVO_4$ Festkörperlasers geschrieben werden. Hierzu wird der Dauerstrichlaser in vier Teilstrahlen aufgeteilt. Auf Grund der großen Kohärenzlänge ist es nicht erforderlich, die optischen Wege der Teilstrahlen bezogen auf den Arbeitsbereich des optischen Tisches gleich lang zu machen.

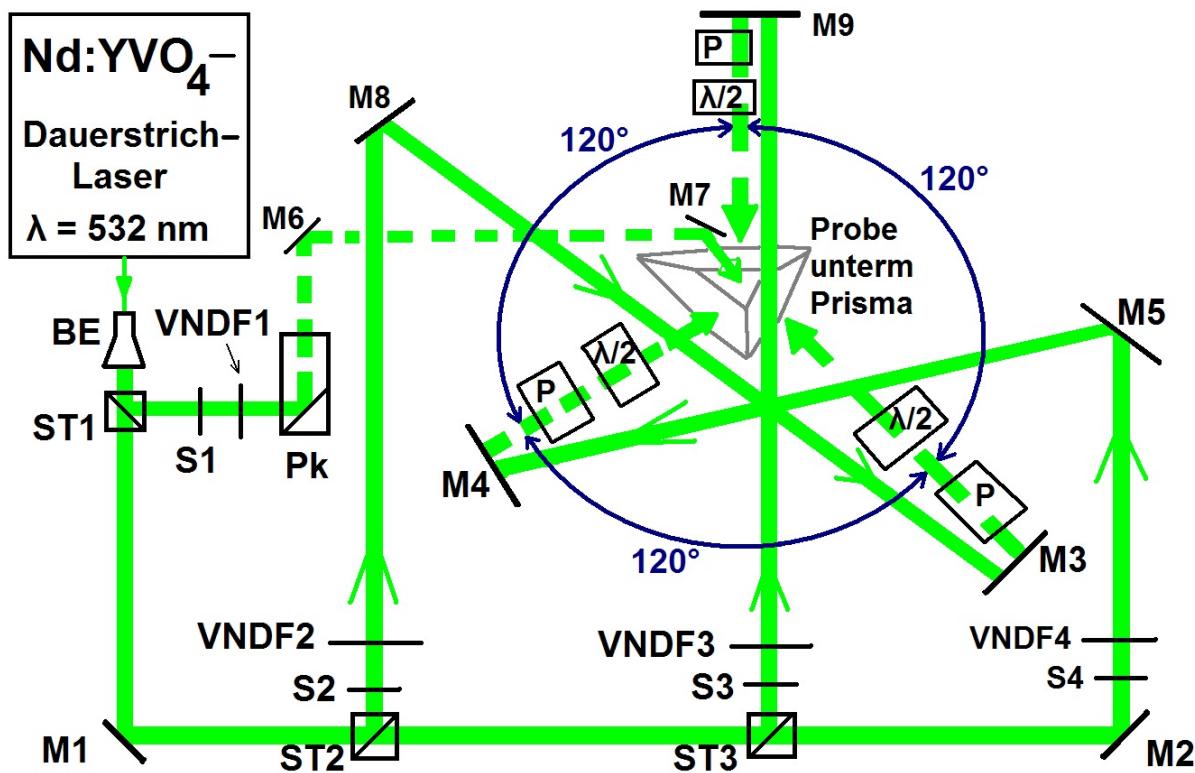


Abbildung 3.2:

Skizze vom experimentellen Aufbau der Umbrella-Konfiguration mit vier grünen Strahlengängen zur Erzeugung mehrdimensionaler HPDLCs.

Der vom Laser ausgehende Strahl wird durch das Passieren des Strahlaufweiters **BE** (siehe Tabelle 3.1) auf einen Strahldurchmesser von zehn Millimetern vergrößert. Nun wird er vom Strahlteilerwürfel **ST1** in zwei Teilstrahlen mit jeweils fünfzigprozentiger In-

tensität aufgeteilt.

Der um fünfundvierzig Grad umgelenkte Teilstrahl 1 durchwandert die Iris **S1** und den variablen Neutraldichtefilter **VNDF1** bevor er mit Hilfe des Periskopsystems **Pk** in seiner Strahlhöhe, d. h. in seinem Abstand zur optischen Tischoberfläche vergrößert wird. Der Spiegel **M6** lenkt ihn auf den Spiegel **M7**, der ihn wiederum zentral von oben auf die Oberfläche eines Prismas (Abbildung 3.4, 3.5 und 3.6) fallen lässt. Zwischen dem Spiegel **M7** und dem Prisma befinden sich noch Halterungen für den Polarisator **P**

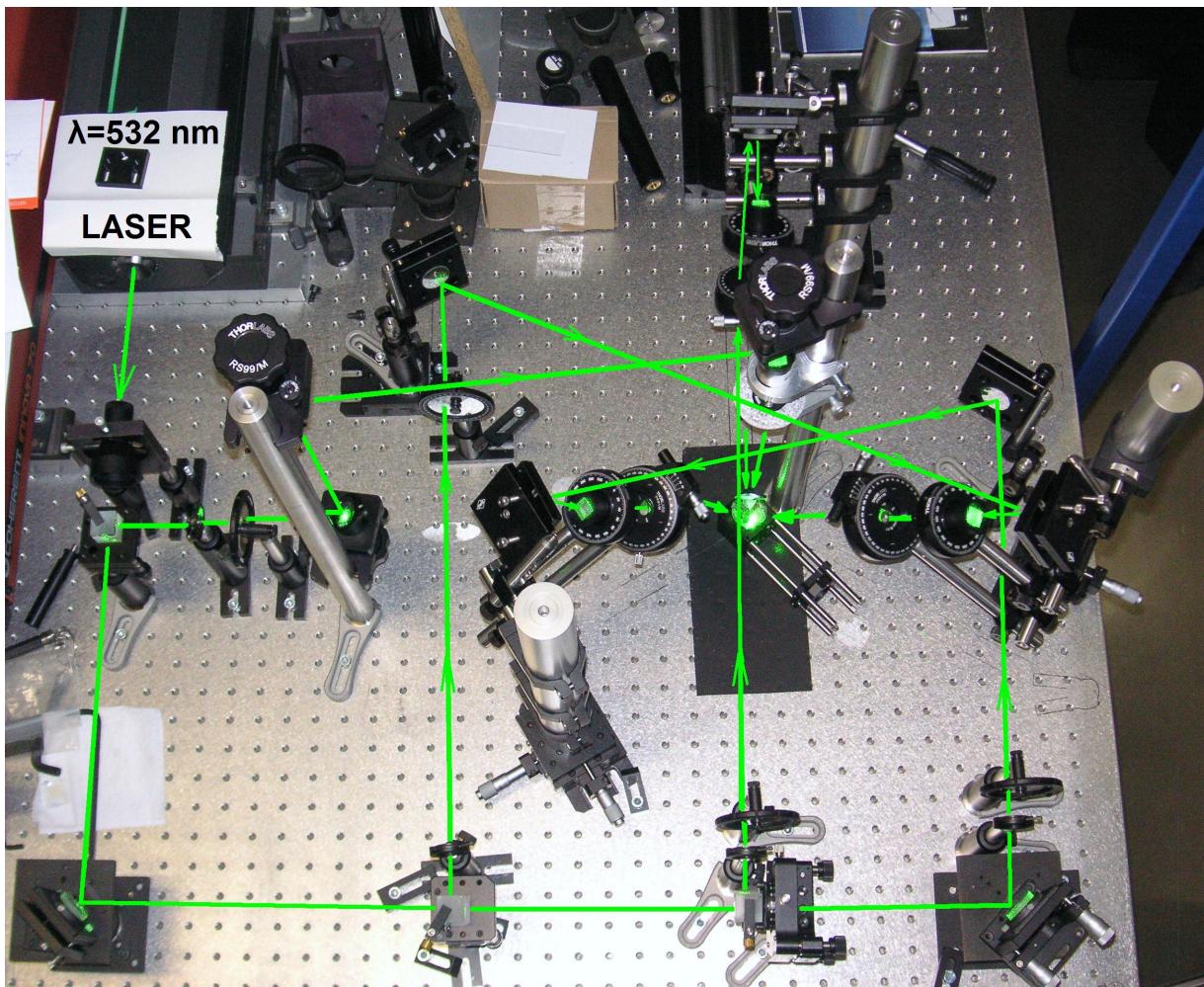


Abbildung 3.3:

Foto vom experimentellen Aufbau der Umbrella-Konfiguration mit vier eingezeichneten Strahlengängen des grünen Laserlichts zur Erzeugung mehrdimensionaler HPDLCs. Die Abkürzungen sind in Tabelle 3.1 näher erläutert.

und die Verzögerungsplatte $\lambda/2$. Der Polarisator (siehe Tabelle 3.1) besteht aus einem Glan-Taylor-Prisma, das unter Ausnutzung der Doppelbrechung und Totalreflexion nur p-polarisiertes Licht hindurchlässt. Die sich anschließende Verzögerungsplatte kann nun das linear polarisierte Licht um einen wählbaren Winkel drehen.

Der am Strahlteilerwürfel **ST1** direkt transmittierte Lichtstrahl bildet später die drei „Mantelstrahlen“ der Regenschirm-Anordnung. Er fällt zunächst auf den Spiegel **M1** und wird am Strahlteiler **ST2** in die zwei Strahlen „2“ und „B“ separiert.

Der Strahl 2 durchdringt die Iris **S2** und den variablen Neutraldichtefilter **VNDF2**. Er fällt auf den Spiegel **M8**, der ihn schräg nach oben auf den anderen Spiegel **M3** umlenkt. Hier durchquert er den Polarisator **P** und die Verzögerungsplatte $\lambda/2$, um unter einem bestimmten Winkel zum zentralen Strahl 1, jedoch senkrecht auf die Seitenfläche des Prismas einzufallen.

Der Strahl B wird am Strahlteilerwürfel **S3** in die Strahlen „3“ und „4“ zerlegt. Beide passieren jeweils eine Iris und einen variablen Neutraldichtefilter. Der Strahl 3 wird direkt vom Spiegel **M9** durch den Polarisator und die Verzögerungsplatte auf die Seitenfläche des Prismas gelenkt. Der Strahl 4 wird ebenfalls mit Hilfe der beiden Spiegel **M5** und **M4** durch den Polarisator und die Verzögerungsplatte auf die Seitenfläche gerichtet. Die beiden Strahlen 3 und 4 haben den gleichen Einfallswinkel wie der Strahl 2 zum zentralen Strahl 1.

Bei jedem direkt vor dem Prisma seitlich einfallenden Laserstrahl (die Strahlen 2 bis 4) hat der Strahlengang einen Winkel von 120° zum jeweils benachbarten Strahlengang. Zu Beginn wurde ein handelsüblicher Retroreflektor aus dem Material BK 7 als Prisma benutzt. Um den zentralen Laserstrahl 1 einfallen lassen zu können, wurde vorher die Spitze des Retroreflektors abgeschnitten, geschliffen und poliert (siehe Abbildung 3.4 links). Der Winkel zwischen der jeweiligen Seitenfläche und der Grundfläche beträgt $54,73^\circ$. Das bedeutet, dass nur dieser Winkel zwischen dem zentralen Strahl und jeweils einem Mantelstrahl, der senkrecht auf die Seitenfläche einfällt, eingestellt wird. Sobald man andere Winkel (siehe Tabelle 3.2 im nächsten Unterkapitel) erreichen möchte, müssten die Seitenstrahlen 2 bis 4 nicht senkrecht, sondern unter einem bestimmten Winkel zum Lot einfallen. Dafür wurden kleine Keile aus Aluminium mit entsprechendem Winkel angefertigt, mit einem Justierspiegel beklebt und gleichmäßig auf dem bearbeiteten Retroreflektor angebracht. Die Strahlen wurden nun so justiert, dass

sie senkrecht auf diese Spiegel einfielen.

Später wurde dazu übergegangen, zwei speziell angefertigte Prismen von Feinoptik-Tackmann zu nutzen. Diese bestehen ebenfalls aus dem Material BK 7, das einen Brechungsindex von 1,51872 aufweist und damit im Bereich der Brechungsindizes der

Tabelle 3.1:

Zum Aufbau der Holografie-Apparatur mit Umbrella-Anordnung verwendete Komponenten.

Symbol	Bauelement: Spezifikationen (Hersteller, Typ).
BE	Laserstrahlaufweiter mit einer breitbandigen Antireflexbeschichtung von 350 – 650nm (Thorlabs, BE03M-A).
$\lambda/2$	$\lambda/2$ -Plättchen: $\lambda = 532\text{nm}$ (Thorlabs, WPH05M-532), montiert in Rotationshalterungen mit hoher Präzision (Thorlabs, PRM1/M).
M1-9	Spiegel: dielektrischer Breitbandspiegel, 350 – 650nm (Thorlabs, BB2-E02), montiert auf Spiegelhalter, die um zwei Achsen kippbar sind.
P	Glan-Taylor-Polarisator: 0,35 – 2,3 μm (Thorlabs, DGL10), montiert in eine Rotationshalterung (Thorlabs, RSP1/M).
Pk	Periskopsystem (Thorlabs, RS99/M).
S1-4	Iriden zum Verkleinern des Laserdurchmessers und Verschließen der Laserstrahlung (Thorlabs,), montiert in eine Rotationshalterung (Thorlabs, RSP1/M).
ST1-3	Strahlteilerwürfel: $\lambda = 400 – 700\text{nm}$ (Thorlabs, BS016), montiert auf einer Prismenhalterung (Thorlabs, KM100B/M bzw. K6X).
VNDF1-4	variabler Neutraldichtefilter: optische Dichte 0-4, Durchmesser 50mm (Thorlabs, NDC-50C-4M).
Prisma	Drei verschiedene Prismen: Retroreflektor aus BK 7 mit abgeschliffener Spitze (Thorlabs, PS972, siehe Abb. 3.4). Prisma A aus BK 7 mit dem Seitenflächenwinkel von 73,07° (Feinoptik-Tackmann, siehe Abb. 3.5). Prisma B aus BK 7 mit dem Seitenflächenwinkel von 39,6° (Feinoptik-Tackmann, siehe Abb. 3.6).

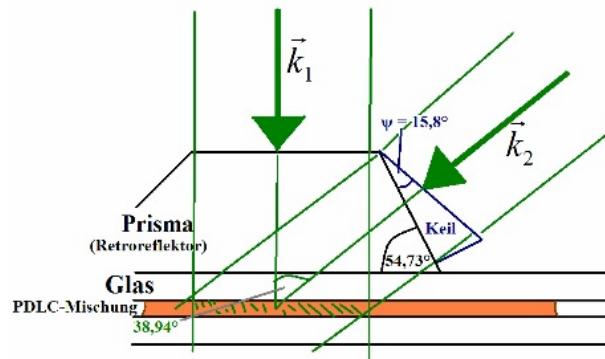
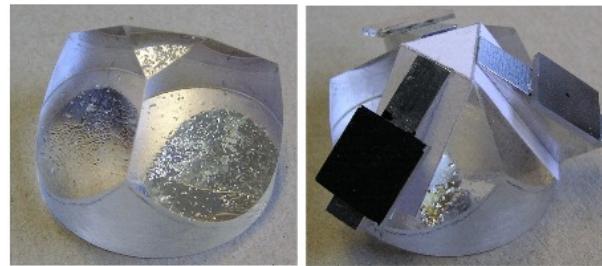


Abbildung 3.4:

Fotos von einem handelsüblichen Retroreflektor (Thorlabs) aus dem Material BK 7 zur Erzeugung mehrdimensionaler HPDLCs mit abgeschnittener und geschliffener Spitze für den zentralen Strahlengang. Rechts: Drei gleiche Keile mit Justierspiegeln zwecks Einstellung eines Einfallswinkels von $38,94^\circ$ im PDLC. Unten: Skizze vom Querschnitt des Retroreflektors.

PDLC-Komponenten liegt. Beim Prisma A beträgt der Winkel zwischen der Seiten- und der Grundfläche $73,07^\circ$ und die untere Kante ist 33,71 mm lang (siehe Abbildung 3.5). Auf Grund des Snelliusschen Brechungsgesetzes wird im polymer-eingebetteten Flüssigkristall der für eine sc-Translationssymmetrie geforderte Winkel von $70,53^\circ$ (Tabelle 2.2) erzielt. Das Prisma B hat einen Winkel von $39,6^\circ$ zwischen der Seiten- und der Grundfläche (siehe Abbildung 3.6). Hier ist die untere Kante jedoch länger und hat einen Wert von 71,44 mm. Auch hier wird durch das Snelliussche Brechungsgesetz im PDLC ein Winkel von $38,94^\circ$ erreicht, der für die fcc-Translationssymmetrie notwendig ist.

Bei diesen beiden Prismen wurden kleine Spiegel direkt auf die Seitenflächen gebracht und die Strahlen dazu senkrecht einfallend justiert. Unter Berücksichtigung des Brechungsindex der Prismen genügen jene somit den Anforderungen für den Einfallswinkel, die sich aus bestimmten Strukturprofilen ergeben (siehe Tabelle 3.2).

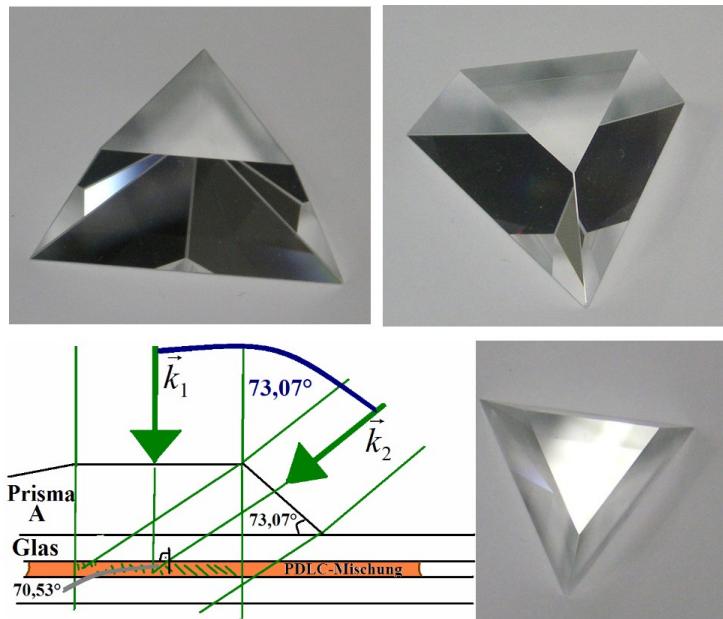


Abbildung 3.5:

Fotos von einem durch Feinoptik-Tackmann aus dem Material BK 7 speziell angefertigten Prisma für die Vier-Strahleninterferenz. Die untere Kante hat eine Länge von 33,71 mm und der Winkel zwischen der Seiten- und der Grundfläche beträgt 73,07°.

In Abbildung 3.7 ist eine Präzisionshalbkugel, die ebenfalls aus dem Material BK7 besteht, zu sehen. Sie wurde von J. Hauser GmbH & Co. KG hergestellt und diente dem Zwecke der Beugungsuntersuchungen, die nach dem Beleuchten der mit PDLC-Systemen gefüllten Testzellen durchgeführt wurden.

Zwischen der Testzelle und dem jeweiligen Prisma sowie der Halbkugel bei anschließenden Beugungsuntersuchungen wurde Immersionsöl getropft. Es ist nach DIN 58884 normiert und hat einen Brechungsindex von 1,518.

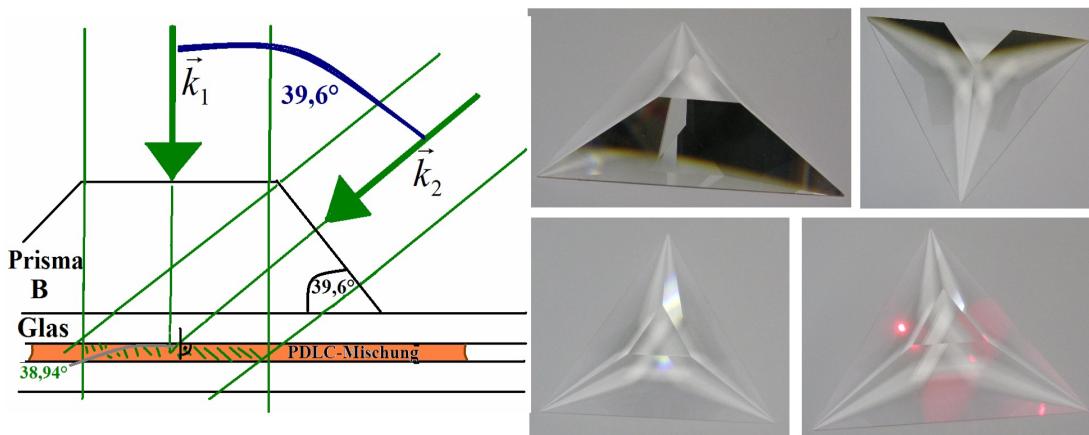


Abbildung 3.6:

Fotos von einem durch Feinoptik-Tackmann aus dem Material BK 7 speziell angefertigten Prisma für die Vier-Strahleninterferenz. Die untere Kante hat eine Länge von 71,44 mm und der Winkel zwischen der Seiten- und der Grundfläche beträgt $39,6^\circ$.

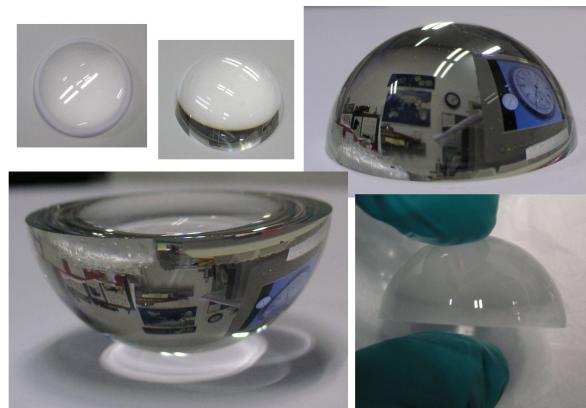


Abbildung 3.7:

Fotos von einer durch J. Hauser GmbH & Co. KG aus dem Material BK 7 speziell angefertigten Präzisionshalbkugel für Beugungsuntersuchungen. Der Radius beträgt 15 mm.

3.1.2.1 Aufstellung und Justierung der Apparatur

Das Experiment zur Umbrella-Anordnung wurde mehrmals neu aufgebaut und dabei sukzessive optimiert. So wurden zum Beispiel die anfangs verwendeten Halterungen TR250/M (Thorlabs) von Spiegeln, Polarisatoren und Verzögerungsplatten der Seitenstrahlen durch massivere Halterungen P350/m mit einem Durchmesser von 1,5 inch

ersetzt, um eine bessere Stabilität zu erzielen. Die prinzipielle Vorgehensweise der Erstellung der Vier-Strahl-Geometrie soll im Folgenden beschrieben werden.

Auf dem optischen Tisch RS 4000 TM von Newport wird der Strahlengang des Verdilasers betrachtet und teilweise markiert. Dabei wird der Abstand zwischen Tisch und Strahlengang jeweils direkt vor dem Laser und am Tischrand überprüft. In unmittelbarer Nähe des Laserstrahlaustritts wird der Strahlaufweiter **BE** (siehe Abbildung 3.2 und Tabelle 3.1) so montiert, dass der Strahlmittelpunkt seine Höhe über dem Tisch beibehält. Hinter den Strahlaufweiter wird ein Strahleiterwürfel derart gesetzt, dass sich die Höhe des transmittierten Strahles A zwar nicht ändert, dieser aber seitlich ein wenig abgelenkt wird. Diese leichte Ablenkung zur Seite dient dem Zweck, eventuelle Rückreflexanteile vom Laserausgang fernzuhalten.

Durch den Strahleiterwürfel liegen nun zwei Strahlen vor, der transmittierte Strahl A und der spätere zentrale Strahl 1. Unterhalb des Weitergangs vom Strahl 1 wird ein möglichst zentraler Punkt markiert, über dem sich das Prisma mit der Testzelle befinden soll. Es wird eine Gerade durch diesen Punkt gezogen, die parallel zum Verlauf des Strahles A sein sollte. In einem Winkel von 120° wird eine neue Linie durch den markierten Punkt gezeichnet. Zu dieser neuen Linie wird wiederum eine Gerade im 120° -Winkel durchgezogen. Auf den drei Geraden wird der Abstand s_1 von einundzwanzig Zentimetern abgemessen und an deren Positionen wird nochmal der Abstand s_2 von fünf Zentimetern diesmal in senkrechter Richtung eingezeichnet. Die dabei entstandene Grundseite des Umbrella-Aufbaus ist in Abbildung 3.8 skizziert.

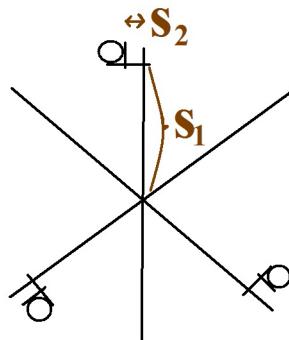


Abbildung 3.8:

Skizzierte Grundseite des Umbrella-Aufbaus. Die Linien stellen die Projektionen der drei seitlichen Strahlengänge auf dem optischen Tisch dar.

Die Kreise geben die Positionen der Halterungen für die Spiegel an. Diese Halterungen sind fünfunddreißig Zentimeter lange Zylinder, die auf zwei senkrecht zueinander befestigten Lineartischen MT1/M (Thorlabs) stehen.

Beim Strahl A werden die Strahlteiler und die Spiegel so eingebaut, dass die Strahlen 2, 3 und 4 am jenen Ende der Geraden in Abbildung 3.8 ankommen, das jeweils gegenüber den Kreisen liegt. Das Periskopsystem wird montiert und der zentrale Strahl 1 auf den Schnittpunkt der Linien gelenkt (Abbildung 3.8). Der Schnittpunkt wird mit einem größeren Spiegel abgedeckt und auf dem Spiegel wird die Einfallstelle des Strahls 1 dünn markiert. Ein Stück von einem weißen Blatt Papier (oder auch ein anderes fluoreszierendes Material) wird mit einer Nadel durchgestochen, um dieses Loch direkt in den Strahlengang möglichst nahe am oberen Spiegel zu halten. Bei einem senkrechten Lichteinfall auf den unteren Spiegel, sollte der reflektierte Strahl in sich selbst übergehen und es dürfte kein Lichtpunkt auf dem Papier zu sehen sein. Falls jedoch ein Lichtpunkt neben dem Loch vorhanden ist, werden die Schrauben der Feinjustierung des oberen Spiegels solange gedreht, bis der Lichtpunkt im „Loch“ verschwindet. Dabei verschiebt sich aber auch der Lichtstrahl von seiner markierten Position. Nun wird über die Schrauben des Spiegels am Periskopsystem gedreht, um die markierte Position wieder einzustellen. Dieser Prozess wird solange wiederholt, bis der Lichtpunkt auf die markierte Stelle fällt und in sich selbst übergeht. Danach wird der untere Spiegel entfernt und das gewünschte Prisma zusammen mit der Testzelle, das sich auf einem Würfel CM1-P01 (Thorlabs) mit einem um 45° geneigten Spiegel befindet, zentral auf den oben genannten Schnittpunkt angebracht. Auf allen drei Seitenflächen wird jeweils ein kleiner Spiegel befestigt. Er dient dazu, nach dem vorhin beschriebenen Verfahren die Spiegel auf den Halterungen so zu justieren, dass die Strahlen 2, 3 un 4 senkrecht auf die Flächen des Prismas einfallen.

Erst wenn die vier Strahlen für die Umbrella-Geometrie justiert sind, erfolgt der Einbau der Polarisatoren und der Verzögerungsplatten. Daraufhin wird eine Schnittebene in einer frei gewählten Höhe über dem Prisma und parallel zur Tischoberfläche betrachtet. Ein Blatt Papier wird fixiert. Die Lichtstrahlpunkte werden darauf eingezeichnet und mit dem zentralen Punkt verbunden. Durch diese Verbindungslien entsteht ein Abbild der Einfallsebenen. Zu den Geraden werden Linien unter einem Winkel eingezeichnet, der für den Polarisationswinkel des jeweiligen Strahls steht. Senkrecht zu diesen neu gezeichneten Linien werden Polarisationsfolien gelegt. Dreht man nun die Verzöge-

rungsplatten, so wird es dunkel, wenn der gezeichnete Polarisationswinkel und damit die gewünschte Polarisation selbst am Strahl eingestellt ist.

3.1.3 Strahlparameter des Umbrella-Aufbaus

Im Unterkapitel 2.1.3 auf Seite 8 wurde der Zusammenhang zwischen der Translationssymmetrie und den Strahlrichtungen \vec{b}_i charakterisiert. Im Abschnitt 2.1.4 wurden aus vorgegebenen Gesamtsymmetrien Bedingungen für die Fourieramplituden $a_{l,m}$ entwickelt. Durch Holografie können nur bestimmte Symmetrien und somit nicht jede beliebige verwirklicht werden. Es liegen jedoch Parameter vor, die einen Freiheitsgrad in ihrer Wahl besitzen. Diese Parameter u, v, p, q haben für die experimentelle Realisierung des holografischen Aufbaus eine wichtige Bedeutung. Deren Wahlfreiheit ist zum Beispiel für die Maximierung des Interferenzmusterkontrastes von Vorteil. Die Untersuchung dieser Parameter und deren Resultat werden hier in abgekürzter Form dargestellt, eine ausführliche Betrachtung findet sich in [Mei06].

Mit Hilfe strahlspezifischer Zylinderkoordinaten können die elektrischen Feldvektoren von linear polarisierten Lichtwellen wiedergegeben werden (siehe Abbildung 3.9). Die Koordinaten ρ_i und α_i haben \vec{k}_i als Zylinderachse mit $i = 1, 2, 3, 4$:

$$\vec{A}_i = \rho_i \cdot [\vec{s}_i \sin(\alpha_i) + \vec{p}_i \cos(\alpha_i)] \quad (3.3)$$

Der Winkel α_i kann Werte zwischen 0 und π annehmen. Der Wertebereich für ρ_i liegt zwischen $-\infty$ und ∞ . Die Einheitsvektoren \vec{s}_i und \vec{p}_i entsprechen der Richtung der senkrechten und der parallelen Komponente von \vec{A}_i bezogen auf die Einfallsebene. Die dazugehörige Einfallsebene wird durch den jeweiligen Seitenwellenvektor \vec{k}_i und den zentralen Wellenvektor \vec{k}_1 aufgespannt [Mei06]:

$$\vec{s}_i := \frac{\vec{k}_i \times \vec{k}_1}{|\vec{k}_i \times \vec{k}_1|} \quad \text{mit } i \neq 1 \quad (3.4)$$

$$\vec{p}_i := \frac{\vec{k}_i \times \vec{s}_i}{|\vec{k}_i \times \vec{s}_i|} \quad \text{mit } i = 1, 2, 3, 4. \quad (3.5)$$

Für den Einheitsvektor des zentralen Strahles mit $i = 1$, der parallel zur Probennormalen verläuft, wird die Definition $\vec{s}_1 := \vec{s}_2$ festgelegt. Die beiden oberen Gleichungen aus

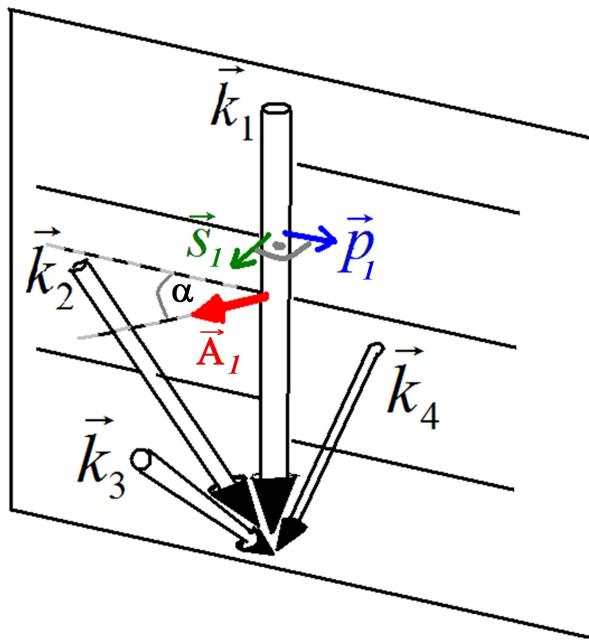


Abbildung 3.9:

Darstellung der Einfallsebene, die hier durch die Vektoren k_1 und k_2 geht. Der Vektor p_1 liegt in der Ebene, der Vektor s_1 steht senkrecht auf ihr und der Vektor \vec{A}_1 steht im Winkel α zur Ebene. Er kann als Linearkombination der Vektoren p_1 und s_1 abgebildet werden, siehe Gleichung (3.3).

(2.8) ergeben dann:

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}\{a_{12}\} &= \vec{A}_1 \cdot \vec{A}_2 = u \\ \operatorname{Re}\{a_{13}\} &= \vec{A}_1 \cdot \vec{A}_3 = u \\ \operatorname{Re}\{a_{14}\} &= \vec{A}_1 \cdot \vec{A}_4 = u \end{aligned} \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}\{a_{32}\} &= \vec{A}_3 \cdot \vec{A}_2 = 0 \\ \operatorname{Re}\{a_{43}\} &= \vec{A}_4 \cdot \vec{A}_3 = 0 \\ \operatorname{Re}\{a_{24}\} &= \vec{A}_2 \cdot \vec{A}_4 = 0 \end{aligned} \quad (3.7)$$

Die Bedingungen in Gleichung (3.7) besagen, dass die Polarisationsrichtungen der Nebenstrahlen ($i = 2, 3, 4$) paarweise senkrecht aufeinander stehen. Daher ist deren Interferenz miteinander ausgeschlossen. Setzt man nun in diese Bedingungen den Ausdruck aus Gleichung (3.3) ein, so erhält man:

$$\alpha_{2,3,4} = \arccos \left(\frac{1}{\sqrt{3} \sin(\gamma)} \right). \quad (3.8)$$

Alle drei Nebenstrahlen haben den gleichen Polarisationswinkel, der zwischen dem elektromagnetischen Feldvektor und der jeweiligen Einfallsebene einzustellen ist. Setzt man nun den Ausdruck für den Winkel aus Gleichung (3.8) in die Gleichungen unter (3.6) ein, so ergeben sich ρ_2 , ρ_3 und ρ_4 in Abhängigkeit von ρ_1 ,

$$\rho_2 = \frac{u}{\rho_1} \cdot \frac{\sqrt{3}\sin(\gamma)}{\sin(\alpha_1)\sqrt{3\sin^2(\gamma)-1} + \cos(\alpha_1)\cos(\gamma)}. \quad (3.9)$$

Tauscht man in Gleichung (3.9) α_1 durch $(\alpha_1 + 120^\circ)$ oder $(\alpha_1 - 120^\circ)$ aus, so erhält man den entsprechenden Ausdruck für ρ_3 oder ρ_4 . Der Einfallswinkel γ der drei Strahlen zu dem zentralen Strahl ist durch die Translationssymmetrie (Tab. 2.2) gegeben. Dagegen führt die Wahlfreiheit der Parameter ρ_1 und α_1 dazu, dass durch unendlich viele Weisen das Interferenzmuster aus Gleichung (2.9) erstellt werden kann. Für dessen Bestrahlungsstärke mit $v = p = q = 0$ gilt:

$$\begin{aligned} \tilde{D}(\vec{r}_r) \propto & a_{11} + a_{22} + a_{33} + a_{44} \\ & + 2u [\cos(2\pi x_r) + \cos(2\pi y_r) + \cos(2\pi z_r)]. \end{aligned} \quad (3.10)$$

Diese Interferenzmuster haben einen unterschiedlichen mittleren Bestrahlungsanteil ($a_{11} + a_{22} + a_{33} + a_{44}$), um die die Funktion um $\pm 6u$ variiert. Mit Hilfe der Gleichung (3.3) kann der Kontrast des Interferenzmusters wie folgt ausgedrückt werden [MWB04, Mei06]:

$$C = \frac{\tilde{D}_{max}}{\tilde{D}_{min}} = \frac{\rho_1^2 + \rho_2^2 + \rho_3^2 + \rho_4^2 + 6u}{\rho_1^2 + \rho_2^2 + \rho_3^2 + \rho_4^2 - 6u}. \quad (3.11)$$

Zur Maximierung des Kontrastes können optimale Werte für ρ_1 und α_1 bestimmt werden:

$$\alpha_1^{opt} = \operatorname{arccot} \left(\frac{\cos(\gamma)}{\sqrt{3\sin^2(\gamma)-1}} \right) \quad (3.12)$$

$$\rho_1^{opt} = \sqrt{u} \cdot \sqrt{13,5}. \quad (3.13)$$

Für die Intensitäten der Nebenstrahlen erhält man:

$$\rho_2^{opt} = \sqrt{u} \cdot \frac{1}{3} \quad \rho_{3,4}^{opt} = -\sqrt{u} \cdot \frac{2}{3} \quad (3.14)$$

Die optimalen Strahlparameter sind für γ_{fcc} und γ_{sc} in Tabelle 3.2 aufgelistet.

Tabelle 3.2:

Strahlparameter des Umbrella-Aufbaus bei maximalem Kontrast C für $(u, v, p, q) = (u, 0, 0, 0)$ und fcc- sowie sc-Translationssymmetrie [MWB04].

	γ	α_1^{opt}	$\alpha_{2,3,4}^{opt}$	$I_1^{opt} : I_2^{opt} : I_3^{opt} : I_4^{opt}$
fcc	$\arccos\left(\frac{7}{9}\right) = 38,94^\circ$	$28,96^\circ$	$23,28^\circ$	$1 : 0,11 : 0,44 : 0,44$
sc	$\arccos\left(\frac{1}{3}\right) = 70,53^\circ$	$75,52^\circ$	$52,24^\circ$	$1 : 0,11 : 0,44 : 0,44$

3.2 Verwendete Substanzen

Auf alle hier gebrauchten Verbindungen wird in den folgenden Unterabschnitten eingegangen. Die Abkürzungen für die Substanzbezeichnungen werden in diesen Unterabschnitten erklärt. Es wurden verschiedene PDLC-Proben mit jeweils unterschiedlichen Zusammensetzungen eingewogen. Im Wesentlichen können die Probeneinwaagen in drei PDLC-Systeme eingeteilt werden. Die ersten beiden Systeme beinhalten entweder TMPTA oder Ebecryl 1290 als Polymer-Vorläufersubstanz. Das Polymerisationsverhalten dieser Mischungen ist auf Grund früherer Messungen, die von Herrn Hoischen [Hoi05] durchgeführt wurden, bereits bekannt. Dieser hatte das Reaktionsverhalten durch Photo-DSC Messungen [Hik91] charakterisiert. Das dritte System enthält DPHPA. Es wurde von Sutherland et al. [SNT93] in etwas anderen Konzentrationsanteilen holografisch anhand eines Ein-Strahl-Aufbaus untersucht.

3.2.1 Isotrope Acrylatmonomere

Trimethylolpropantriacrylat (TMPTA) ist ein viskoses trifunktionales Monomer und diente als Prepolymer für die Einwaage von PDLC-Systemen. Das zähflüssige Ebecryl 1290 wurde ebenfalls als reaktive Komponente in PDLCs verwendet. Beim dem dritten hier verwendeten Monomer Dipentaerythritol penta-/hexaacrylat (DPHPA) handelt sich um ein hoch effizient vernetzendes Prepolymer. Dieses wird sehr häufig zum Aushärten unter Bestrahlung mit ultraviolettem Licht benutzt.

Bei Ebecryl 1290 handelt es sich nicht um ein Monomer, sondern um ein Oligomer auf Urethanbasis, dessen Monomereinheiten photoreaktive Acrylatgruppen enthalten, so

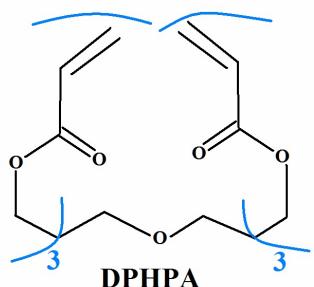
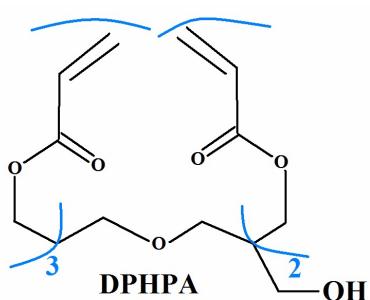
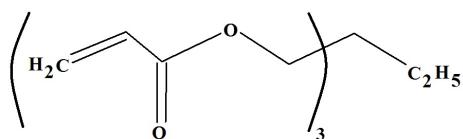


Abbildung 3.10:
Strukturformeln von TMPTA und DPHPA.

dass es photochemisch in ein vernetztes Polymer überführt werden kann. Ein Oligomer besteht aus Molekülen, die mehrere gleiche oder ähnliche Grundeinheiten enthalten. Die Zahl dieser Einheiten ist jedoch gering (im Gegensatz zu einem Polymer).

Tabelle 3.3:
Daten der Monomere.

Monomer	Molmasse	Funktionalität	Brechungsindex	Hersteller
TMPTA	$296 \frac{g}{mol}$	3	1,474	UCB
Ebecryl 1290	$1000 \frac{g}{mol}$	6	1,494	UCB
DPHPA	$524,5 \frac{g}{mol}$	5-6	1,49	Sigma-Aldrich

3.2.2 Thiol-en-System

Bei der Herstellung von PDLCs wurden nicht nur Acrylatmonomere, sondern auch ein Thiol-en-System verwendet. Dessen Produktnname lautet NOA 65 (Norland Optical Adhesive, Norland Optics). Diese Substanz ist klar und farblos. Als flüssiges Photopolymer härtet NOA 65 im ultravioletten Licht aus und ist eine Art Kleber. Es ist selbst eine Mischung aus Trimethylpropan-diallylether, Trimethylpropan-tristhiol, Isophorondiisocyanat und aus dem Photoinitiator Benzophenon für den ultravioletten Lichtbereich. Die Polymerisation beruht auf einer radikalischen Vernetzung und einer stufenweisen Polymerisation [Hoi05].

3.2.3 Flüssigkristall

Bei allen PDLC-Einwaagen wurde der gleiche Flüssigkristall E7 verwendet. Dieser setzt sich aus Cyanobiphenyl- und Cyanoterphenyl-Derivaten zusammen (siehe Tabelle 3.4). Er besitzt keine reaktiven Verbindungen und geht somit keine chemischen Reaktionen mit den oben genannten Polymeren bei Photobelichtung ein.

Tabelle 3.4:

Zusammensetzung des nematischen Flüssigkristalls E7 vom Hersteller Merck.

Anteil	Inhalt	Substanzbezeichnung
51 %	5CB	4-pentyl-4'-cyanobiphenyl
25 %	7CB	4-n-heptyl-4'-cyanobiphenyl
16 %	8OCB	4-n-octyloxy-4'-cyanobiphenyl
8 %	5CT	4-cyano-4"-n-pentyl-p-terphenyl

Sein Klärpunkt liegt laut Angabe des Herstellers Merck bei 58°C. In Tabelle 3.5 sind der außerordentliche und der ordentliche Brechungsindex (n_e und n_o) enthalten. Diese Indizes sind gültig für eine Wellenlänge von 633nm bei Raumtemperatur. Zum Vergleich sind die Brechungsindizes aus drei weiteren Literaturquellen für dieselbe Wellenlänge

bei annähernd gleicher Temperatur angegeben. Die Indizes aus [ATM⁺⁰⁷, LWB⁺⁰⁵] sind unter Zuhilfenahme der Cauchy-Formel durch die Verwendung dreier dort experimentell bestimmter Parameter berechnet worden.

Tabelle 3.5:

Ordentlicher und außerordentlicher Brechungsindex des nematischen Flüssigkristalls E7 bei einer Wellenlänge von 633nm.

E7	Temperatur	n _e	n _o
	20°C	1,73372	1,52068
[LWG ⁺⁰⁵]	20°C	1,7378	1,5188
[ATM ⁺⁰⁷]	26°C	1,728	1,518
[LWB ⁺⁰⁵]	20°C	1,737	1,519

3.2.4 Photoinitiatoren

Der Photoinitiator Bengalrosa (RB), 4,5,6,7-Tetrachlor-2',4',5',7'Tetraiodfluoreszein, wurde ursprünglich von Gnehm [Sch85] als Farbstoff synthetisiert, der die roten Farben in dem sogenannten Bengalis-Muster für Baumwollmaterialien imitierte [Nec89]. Es ist gut geeignet für eine holografische Bestrahlung mit einem diodengepumpten Festkörperlaser *Nd : YVO₄*, da er ein breites Absorptionsspektrum mit einem Maximum bei 550nm aufweist. In Abbildung 3.12 sind Transmissions- und Extinktionsverhalten von Bengalrosa, das zu 1% in Methanol gelöst wurde, für ein Wellenlängenintervall von 320nm bis 850nm dargestellt. Die Extinktion *E* ist das logarithmische Verhältnis aus einfallender Strahlung *I*₀ und austretender Strahlung *I*:

$$E = -\lg \frac{I}{I_0}. \quad (3.15)$$

Die Spektren wurden mit dem Spektrometer „Lambda 19“ von PerkinElmer aufgenommen.

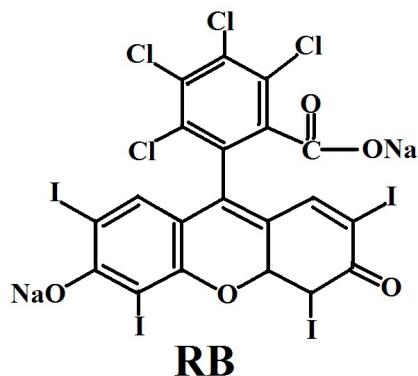


Abbildung 3.11:
Strukturformel von Bengalrosa.

Da Beugung und Streuung unbedeutend sind und die Reflexionsverluste durch Referenzmessungen berücksichtigt werden, ähneln sich Extinktion und Absorption. Bei Weißlicht betrachtet, zeigt sich Bengalrosa dem Namen entsprechend mit rosanen bis roten Farbanteilen. Das Spektrum in Abbildung 3.12 zeigt, dass Bengalrosa bei Bestrahlung mit rotem Licht im Bereich von 633nm sehr schwach sowohl transmittiert als auch absorbiert.

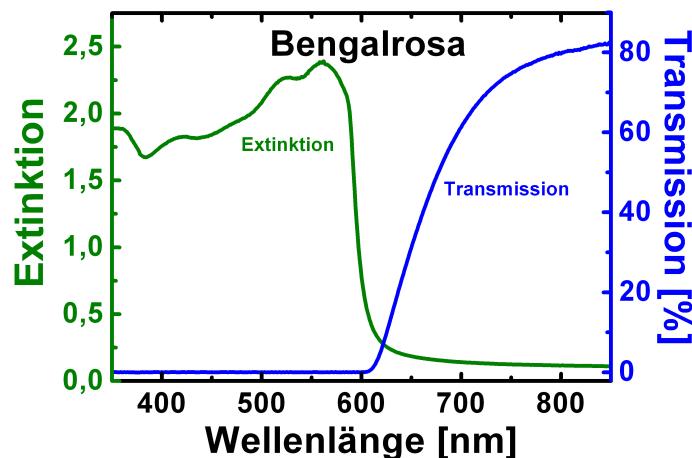


Abbildung 3.12:
Extinktions- und Transmissionsverhalten vom Photoinitiator Bengalrosa gelöst zu 1% in Methanol.

Der Photoinitiator Irgacure 784, Bis (eta 5-2,4-cyclopentadien-1-yl) Bis [2,6-difluoro-3-(1H-pyrrol-1-yl) phenyl]titanium, ist ein orangenes Pulver mit einem Schmelzpunkt von über 160°C. Irgacure 784 hat Absorptionsmaxima bei 398nm und bei 470nm. Licht ab einer Wellenlänge von etwa 550nm wird zu über sechzig Prozent transmittiert (siehe

Abbildung 3.14).

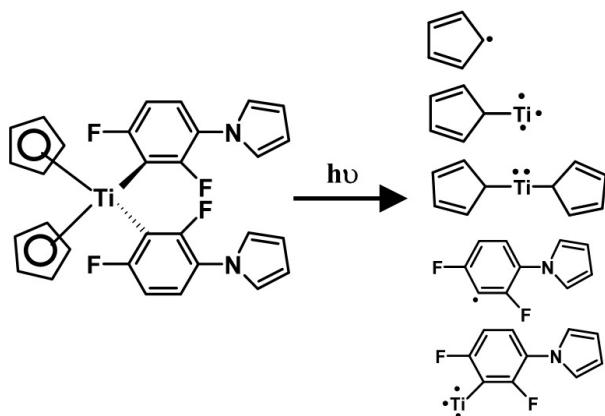


Abbildung 3.13:
Strukturformel von Irgacure 784 und Aufspaltung
durch Photonенabsorption [LHH09].

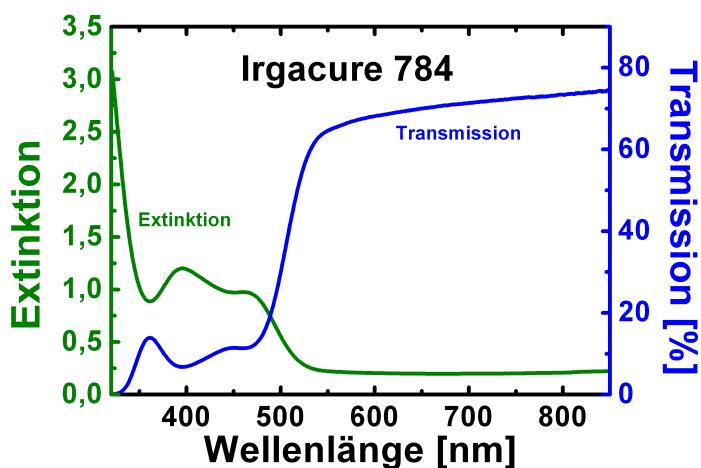


Abbildung 3.14:
Extinktions- und Transmissionsverhalten vom Photoinitiator Irgacure 784 gelöst zu 1% in Methanol.

Bei der Substanz N-Vinyl-2-Pyrrolidon (NVP) handelt es sich um ein Monomer, das üblicherweise als Photoinitiator für andere Polymere genutzt wird. In dieser Arbeit hat es die Funktion eines „Kettenverlängerers“.

N-Phenylglycin (NPG) ist ein farbloser Feststoff, der als kristallines Pulver vorliegt und bei 305°C schmilzt. NPG hat die Funktion eines Koinitiatoren. In Tabelle 3.6 sind die

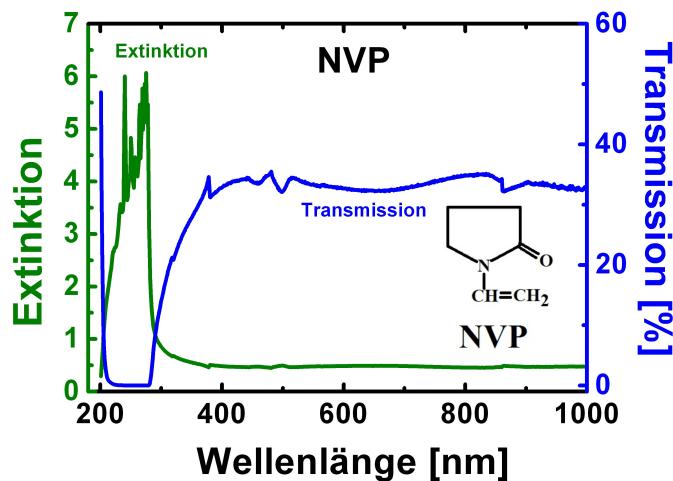


Abbildung 3.15:
Extinktions- und Transmissionsverhalten vom NVP gelöst zu 1% in Ethanol. Die Strukturformel vom NVP ist rechts unten eingefügt.

Photoinitiatoren aufgelistet.

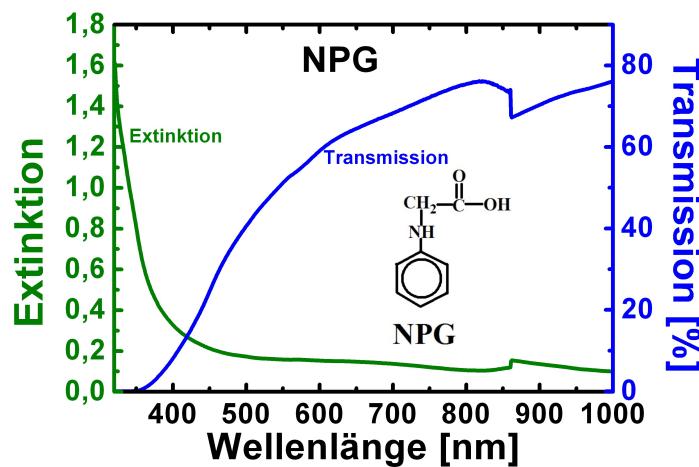


Abbildung 3.16:
Extinktions- und Transmissionsverhalten vom NPG gelöst zu 1% in Methanol. Die Strukturformel vom NPG ist rechts unten eingefügt.

Tabelle 3.6:

Daten der verwendeten Photoinitiatoren.

Initiator	Molmasse	$\lambda_{abs.}$ [nm]	Hersteller
Bengalrosa	$1017, 64 \frac{g}{mol}$	550	Sigma-Aldrich
Irgacure 784	$534, 4 \frac{g}{mol}$	398, 470	Ciba
NVP	$111, 14 \frac{g}{mol}$	275	Sigma-Aldrich
NPG	$151, 16 \frac{g}{mol}$	270	Sigma-Aldrich

3.3 Probenpräparation

In diesem Abschnitt wird auf die Vorgehensweise bei der Herstellung der PDLC-Proben eingegangen. Es wird nur das generelle Verfahren beschrieben. Die genauen Zusammensetzungen und Einwaagen sind an entsprechender Textstelle vermerkt. Beim Einwiegen und Befüllen der Testzellen wurde unter Rotlicht gearbeitet.

3.3.1 Verwendete Mischungen

Alle PDLC-Mischungen wurden holografisch durch polymerisationsinduzierte Phasen-separation erstellt. Die Ausgangsmischungen enthielten immer den niedermolekularen Flüssigkristall E7. Dieser ist im jeweiligen vernetzbaren Monomer dispergiert. Er wurde zuerst eingewogen. Als zweite Komponente kam das jeweilige Monomer, entweder TMPTA, Ebecryl 1290, DPHPA oder NOA 65, hinzu. Handelte es sich beim Monomer um TMPTA oder Ebecryl 1290 in der Mischung, so wurde Irgacure 784 als Photoinitiator verwendet. Bei Systemen mit DPHPA als Prepolymer wurden zusätzlich der Vernetzer NVP und der Koinitiator NPG eingesetzt. Erst dann erfolgte die Einwaage des Photoinitiators Bengalrosa. Bei Substanzen mit NOA 65 wurden einerseits Irgacure 784 und andererseits NPG und Bengalrosa dazugegeben. Diese beiden Photoinitiatoren Irgacure 784 und Bengalrosa wurden jeweils zu einem Massenteil von ca. 1% zu der entsprechenden Probe hinzugefügt. Die Proben mit TMPTA oder Ebecryl 1290 wurden zur Homogenisierung in Dichlormethan CH_2Cl_2 gelöst. Die PDLC-Mischungen mit

DPHPA lösten sich sehr schwer oder überhaupt nicht in Dichlormethan, daher wurden sie in Ethanol gelöst. Auch die Einwaagen mit NOA 65 wurden in Ethanol gelöst. Alle Proben wurden nach Einwaage und Zugabe des jeweiligen Lösungsmittels in ein Ultraschallbad gestellt, um die Homogenisierung zu optimieren. Um eine spätere Gasbläschenbildung zu vermeiden, ist es wichtig, dass das Lösungsmittel möglichst vollständig verdampft. Dazu wurden die Mischungen für etwa zwölf Stunden in einem Trockenschrank bei etwa 50°C getrocknet.

Unter Ausnutzung der Kapillarkräfte wurden die Testzellen mit den Mischungen nach dem Trocknen gefüllt, indem jeweils ein kleiner Tropfen auf die Seite mit den geschnittenen Glasplättchen gegeben wurde (siehe Abbildung 3.17). Die in dieser Arbeit verwendeten Probezellen hatten einen Glasplättchenabstand von 10 μm , 25 μm und 50 μm . Sie wurden von der Firma E.H.C. in Japan bezogen.

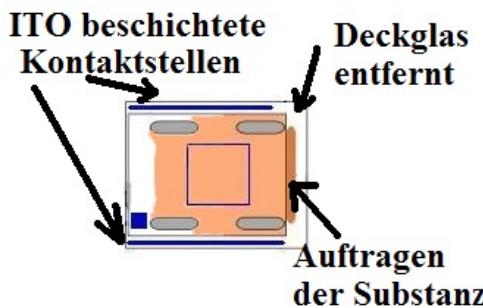


Abbildung 3.17:
Schematische Darstellung einer Testzelle.

3.3.2 Mikroskopie

Mikroskopische Aufnahmen wurden mit Hilfe des Polarisationsmikroskops von der Firma „Leitz Wetzlar“ und verschiedener Objektive durchgeführt. Im oberen Bereich des Okularstrahlenganges war die Digitalkamera Nikon D90 angebracht. Unter Variation der Belichtungszeit wurden die betrachteten Bilder mit der Software „Camera Control Pro“ (Version 2.4.0, © Nikon Corporation) aufgenommen und gespeichert. Vor der mikroskopischen Betrachtung ist es jedoch wichtig, Proben-, Öl- und Fettreste mit Hilfe von Ethanol oberhalb von der Testzelle zu entfernen.

Kapitel 4

Ergebnisse und Diskussion

4.1 Prinzipielle Untersuchung eindimensionaler Gitter

Es wurden eindimensionale Gitter mit Hilfe des Holografieaufbaus aus Abschnitt 3.1.1 in verschiedene Proben eingeschrieben, die im Wesentlichen aus unterschiedlichen Polymer-Vorläufersubstanzen bestanden. Alle Proben beinhalteten jeweils den gleichen Flüssigkristall E7. Es wurden als photoreaktive Komponenten ein Urethan-Acrylat-Oligomer (Ebecryl 1290), ein trifunktionales Acrylatmonomer (TMPTA), ein pentafunctionales Acrylatmonomer (DPHPA) oder ein Thiol-en-System (NOA 65) hinzugefügt. Bei den beiden erstgenannten wurde Irgacure 784 als Photoinitiator verwendet. Beim DPHPA kamen zum Photoinitiator Bengalrosa, der Koinitiator NPG und der Kettenverlängerer sowie Vernetzer NVP hinzu. Nur bei NOA 65 wurden jeweils beide Photoinitiatoren ausprobiert. Mit diesen Mischungen wurden Testzellen mit einer Dicke von $50\mu m$ gefüllt und anschließend mit der Interferenzstrahlung der zwei sich überlagernden grünen Laserstrahlen beleuchtet. Gleichzeitig wurde diese Stelle mit rotem Laserlicht bestrahlt. So konnte das Beugungsverhalten simultan zum Einschreiben des eindimensionalen Gitters untersucht werden. Zunächst soll im Folgenden auf die Beugung näher eingegangen werden.

Die Beugungseigenschaften induzierter Gitter können durch die Beugungseffizienz beschrieben werden. Diese ist definiert als das Verhältnis aus der Lichtintensität I_1 der ersten Beugungsordnung und der Intensität I_0 des einfallenden Lichtstrahls, $\eta = I_1/I_0$.

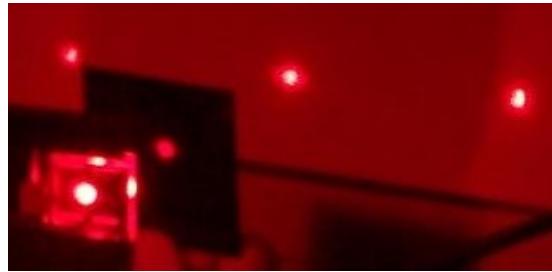


Abbildung 4.1:

Beugungsmuster an einer eindimensionalen PDLC-Struktur mit der 0. Beugungsordnung in der Mitte und den beiden 1. Beugungsordnungen jeweils links und rechts von dem Mittleren.

Die Einzelheiten des Beugungsmusters sind abhängig von dem Parameter

$$Q = \frac{2\pi\lambda d}{n\Lambda^2}. \quad (4.1)$$

Er wurde ursprünglich von Raman und Nath [RN35] eingeführt, um die durch Schallwellen induzierte optische Beugung zu beschreiben. Dieser Parameter verändert sich mit der Dicke d . So kann ein Gitter als Volumen-Gitter bezeichnet werden, wenn die Bedingung $Q \gg 1$ erfüllt ist. Kogelnik's gekoppelte Wellentheorie [Kog69] erbringt gute Resultate für Q -Werte größer oder gleich zehn ($Q \geq 10$). Kleine Werte ($Q \ll 10$) hingegen entsprechen dünnen Gittern, die mit Hilfe der von Raman und Nath [RN35] entwickelten Beugungstheorie beschrieben werden können. Die hier verwendete Wellenlänge betrug $\lambda = 0.633\mu m$ und die Gitterkonstante $\Lambda = 4\mu m$ (siehe Abschnitt 3.1.1). Daraus resultiert ein Wert für $Q \approx 8$, der genau im Grenzgebiet zwischen den beiden vorhin beschriebenen Bereichen in [RN35] und [Kog69] liegt.

Im anschließenden Unterabschnitt sollen die experimentell erfassten Beugungseffizienzen dargestellt werden.

4.1.1 Beugungsverhalten Polymer-eingebetteter Flüssigkristalle

Das eindimensionale Gitter wurde mit einer Bestrahlungsintensität von $8,5 \text{ mW/cm}^2$ bei Raumtemperatur eingeschrieben. Neben der Suche nach einem geeigneten PDLC-System stellt sich auch die Frage in welchen Verhältnissen die einzelnen Komponenten innerhalb einer Probe enthalten sein müssten, um ein relativ schnelles Einschreiben des eindimensionalen Gitters zu bieten und möglichst hohe und stabile Beugungseffizienzen zu erhalten.

zienzen zu erzielen.

Es wurde zunächst eine Reihe von Proben mit unterschiedlichen Anteilen des NOA 65

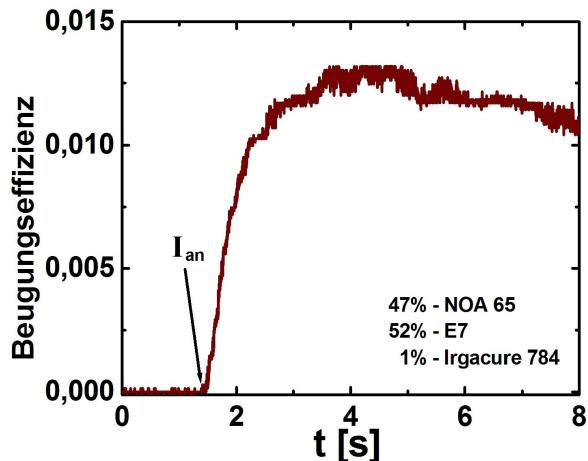


Abbildung 4.2:

Beugungseffizienz in Abhangigkeit von der Zeit fur die Probe bestehend aus 47% NOA 65, 52% E7 und 1% Irgacure 784.

erstellt. Eine gleichzeitige Betrachtung der Beugung beim Einschreiben des Gitters ergab, dass der grote Teil der Proben mit NOA 65 sehr schwache Beugungseffizienzen von eins bis zwei Prozent aufwies. Als Beispiel ist in Abbildung 4.2 das Beugungsverhalten der Probe mit 47% NOA 65, 52% E7 und 1% Irgacure 784 zu sehen. Die Probe

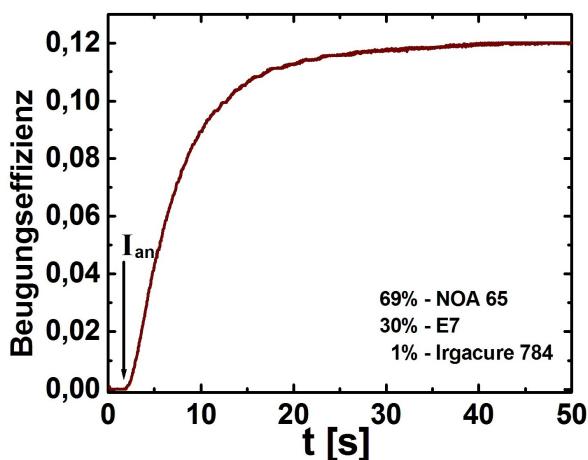


Abbildung 4.3:

Beugungseffizienz in Abhangigkeit von der Zeit fur die Probe bestehend aus 69% NOA 65, 30% E7 und 1% Irgacure 784.

mit 69% NOA 65, 30% E7 und 1% Irgacure 784 zeigte eine Beugungseffizienz von zwölf Prozent und war damit höher als bei den anderen Proben aus der gleichen Reihe. Bis zum Erreichen eines konstanten Wertes dauert der Anstieg jedoch etwa fünfunddreißig Sekunden (Abbildung 4.3). Die Probe mit Bengalrosa als Photoinitiator und NOA 65 als Polymer wies keine Beugungen auf.

Eine andere Reihe von Proben enthielt unterschiedliche Anteile des reaktiven Mono-

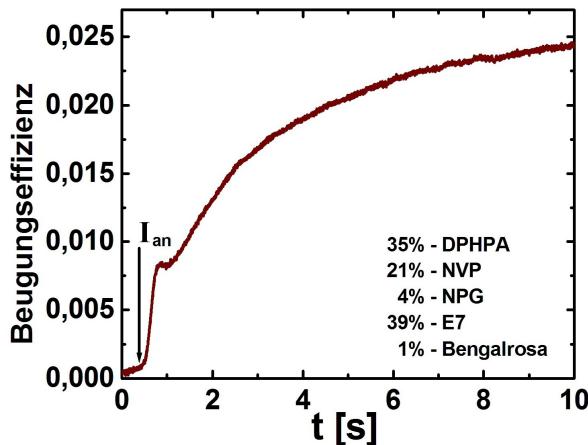


Abbildung 4.4:

Beugungseffizienz in Abhängigkeit von der Zeit für die Probe bestehend aus 35% DPHPA, 21% NVP, 4% NPG, 39% E7 und 1% Bengalrosa.

mers DPHPA. Diese Proben konnten in Dichlormethan nicht gelöst werden und konnten daher nicht homogen durchmischt werden. Das Ausprobieren weiterer Lösungsmittel zeigte, dass Ethanol einige der Proben besser löste. Stellenweise blieben auch hier ungelöste Anteile zurück. Die Beugungsmessungen zeigten, dass die Effizienz wie in Abbildung 4.4 bei zwei bis drei Prozent lag.

Eine weitere Probenreihe enthielt sowohl Ebecryl 1290 als auch TMPTA in unterschiedlichen Verhältnissen. In den Abbildungen 4.5 bis 4.7 sind die Beugungseffizienzen von drei verschiedenen Zusammensetzungen aus Ebecryl 1290 und TMPTA aufgetragen. Alle Beugungseffizienzen betragen fast drei Prozent. In Abbildung 4.5 ist der zunächst steile Anstieg zu Beginn ein Indiz für diffuse Streuung.

Bei allen vorhin genannten Probenreihen war eine sehr starke Entstehung der Streuung während des Einschreibens des Gitters zu beobachten, die sich störend auf die Messung auswirkte. Der steile Anstieg der Intensität des gebeugten Lichts ist vermutlich auf diffuse Streuung zurückzuführen, zu der auch Probenbereiche außerhalb des

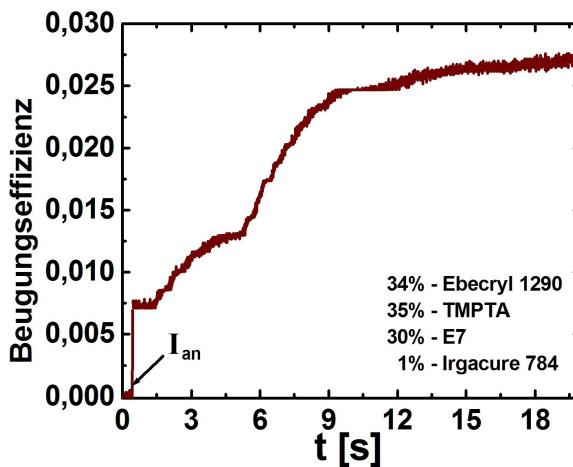


Abbildung 4.5:

Beugungseffizienz in Abhängigkeit von der Zeit für die Probe bestehend aus 34% Ebecryl 1290, 35% TMPTA, 30% E7 und 1% Irgacure 784.

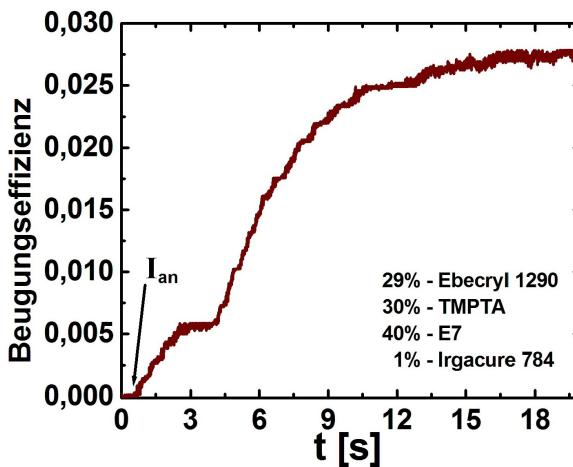


Abbildung 4.6:

Beugungseffizienz in Abhängigkeit von der Zeit für die Probe bestehend aus 29% Ebecryl 1290, 30% TMPTA, 40% E7 und 1% Irgacure 784.

Interferenzmusters beitragen. Um diese Fehlerquelle auszuschließen, wurde der Strahl-durchmesser verkleinert. So ist bei der Aufnahme der Beugungseffizienz in Abbildung 4.7 der Strahldurchmesser auf etwa einen Millimeter reduziert worden.

In Abbildung 4.8 ist die Beugungseffizienz der PDLC-Mischung aus 51% Ebecryl 1290, 48% E7 und 1% Irgacure 784 dargestellt. Nach einer mehr als zwölf Sekunden langen Anstiegsphase liegt sie bei etwas mehr als drei Prozent.

Abbildung 4.9 zeigt die Entwicklung der Beugungseffizienz bei der PDLC-Mischung

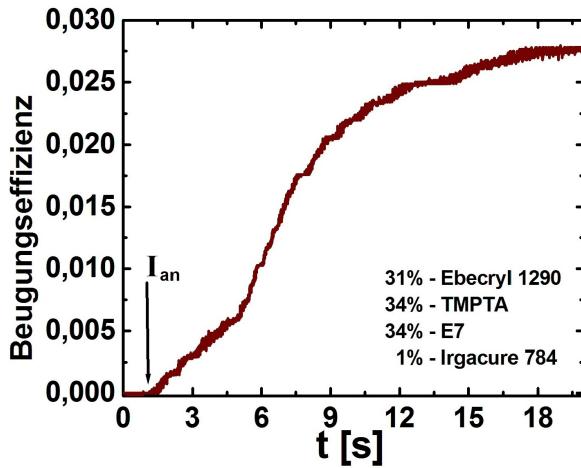


Abbildung 4.7:

Beugungseffizienz in Abhangigkeit von der Zeit fur die Probe bestehend aus 31% Ebecryl 1290, 34% TMPTA, 34% E7 und 1% Irgacure 784.

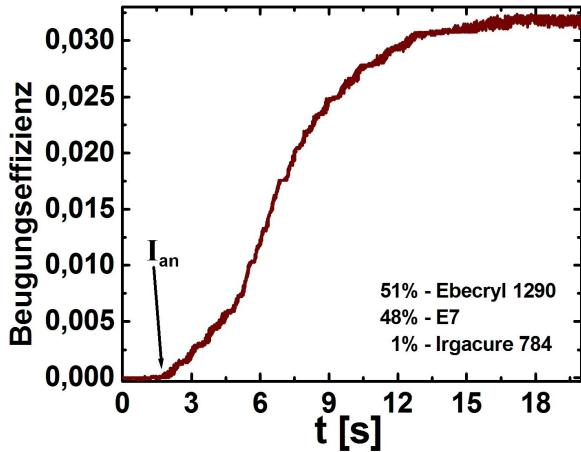


Abbildung 4.8:

Beugungseffizienz in Abhangigkeit von der Zeit fur die Probe bestehend aus 51% Ebecryl 1290, 48% E7 und 1% Irgacure 784.

mit 49% TMPTA, 50% E7 und 1% Irgacure 784. In (a) ist ein Maximum der Beugungseffizienz zu sehen, dem sich ein leichter Abfall auf einen konstanten Wert anschliet. Auch andere Forschergruppen haben diesen unerwunschten Ruckgang beobachtet [SCYK09]. Durch Variation der Bestrahlungsparameter stellte sich heraus, dass der Abfall der Beugungseffizienz nicht eintritt, wenn die Intensitat kleinere Werte aufweist. Dazu wurde der Strahldurchmesser des einschreibenden Laserlichts auf zehn Millimeter erweitert, so dass das Gitter mit einer Intensitat von 3 mW/cm^2 erstellt wur-

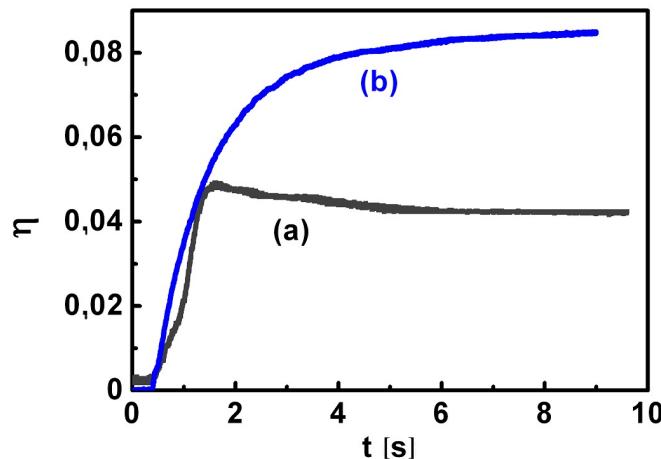


Abbildung 4.9:

Beugungseffizienz in Abhängigkeit von der Zeit für die Probe bestehend aus 49% TMPTA, 50% E7 und 1% Irgacure 784 bei unterschiedlichen Beleuchtungsintensitäten I_0 . a) $I_0 = 8,5 \text{ mW/cm}^2$, b) $I_0 = 3 \text{ mW/cm}^2$.

de. Die Aufweitung des Strahldurchmessers führte dazu, dass höhere Sättigungswerte der Beugungseffizienz sich einstellten (siehe Abbildung 4.9 (b)). Die höheren Bestrahlungswerte in Abbildung 4.9 (a) sind ein Indiz dafür, dass größere Reaktionsraten zu einem Zusammenwachsen der Flüssigkristallmoleküle führen, die einen Umfang erreichen, bei dem Zufallsstreuung auftritt [BNTS00, SGWC03].

4.1.2 Analyse der Beugungseffizienz

Für das Volumen-Gitter kann die Beugungseffizienz η_1 mit Hilfe des Ausdrucks aus der gekoppelten Wellentheorie für ein sinusförmiges Gitter [Kog69, Yeh93] berechnet werden:

$$\eta_1 = \sin^2 \left(\frac{\pi \delta n d}{\lambda \cos \theta} \right), \quad (4.2)$$

mit der Dicke d des Gitters, der Amplitude δn der Brechungsindexmodulation, der Wellenlänge λ und dem Einfallswinkel des einfallenden Strahls.

Im Raman-Nath-Bereich [RN35] kann die Beugungseffizienz berechnet werden durch

$$\eta_2 = J_1^2 \left(\frac{2\pi \delta n d}{\lambda} \right) = \left\{ \sum_{r=0}^{\infty} \frac{(-1)^r}{r! \Gamma(r+2)} \cdot \left(\frac{\pi \delta n d}{\lambda} \right)^{2r+1} \right\}^2, \quad (4.3)$$

mit der Besselfunktion J_1 erster Ordnung und der Gammafunktion Γ . Die Beugungseffizienzen aus den Gleichungen (4.2) und (4.3) können als Funktionen von $\xi = \pi \delta n d / \lambda$ beschrieben werden. Sie sind in der Abbildung 4.10 jeweils in Abhängigkeit von ξ und δn aufgetragen. In Abbildung 4.10 a ist der prinzipielle Verlauf der Funktionen $\eta_1(\xi)$ und $\eta_2(\xi)$ durch die Gleichungen (4.2) und (4.3) gegeben, obwohl diese Ausdrücke nur Gültigkeit für einen Bereich mit kleinen Werten von ξ besitzen. Die vertikale Linie bei $\xi \approx 0,3$ markiert den maximalen Wert, der sich bei experimentellen Messungen ergeben hatte. In Abbildung 4.10 b sieht man einen merklichen Unterschied zwischen η_1 und η_2 in dem entsprechenden Intervall der δn -Werte. Für die experimentell untersuchten Parameter gilt deutlich die Näherung $\xi < 0,4$.

4.1.3 Kinetik der Gitterbildung am System mit Trimethylolpropan-triacrylat

Im Unterabschnitt 2.5 wurde das Reaktions-Diffusions-Modell für eindimensionale Gitter vorgestellt. Die Lösung der Diffusionsgleichung (2.18) gibt die Monomerkonzentration in Abhängigkeit von zwei Variablen, der Zeit und des Ortes, an. Die Abhängigkeit vom Ort ist periodisch und wird in eine Fourierreihe entwickelt. Eine Fourierreihe hat im Grunde unendlich viele Summanden. Es wurden oben jedoch die Summanden nach dem vierten Glied beim Aufstellen der gekoppelten Differentialgleichungen weggelassen. Im Folgenden soll gezeigt werden, welchen möglichen Einfluss das Modell durch das Weglassen höherer Glieder erfährt. In Abbildung 4.11 sieht man jeweils in einem Diagramm die Amplituden der nullten, ersten, zweiten und dritten Harmonischen der Monomerkonzentration. Sie sind aufgetragen gegen die reduzierte Zeit τ . Wenn das Verhältnis R aus Diffusionsrate und Polymerisationsrate ein Hundertstel beträgt, so zeigt die nullte Amplitude einen exponentiellen Abfall, der langsam und stetig gegen die Null strebt. Die drei weiteren Amplituden bewegen sich zunächst einem Maximum bzw. Minimum zu, um dann ebenfalls in einem relativ großen Intervallbereich von τ gegen die Null zu streben. Die geradzahlig nummerierten Amplituden befinden sich im

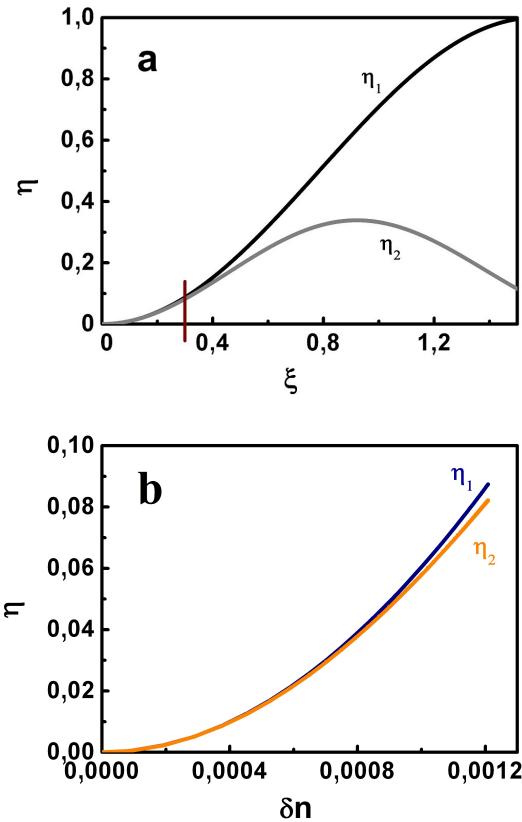


Abbildung 4.10:

Beugungseffizienzen η_1 eines dicken Gitters nach Gl. (4.2) und η_2 eines dünnen Gitters nach Gl. (4.3). In a) sind η_1 und η_2 als Funktionen des Parameter $\xi := (\pi d \delta n) / \lambda$ und in b) sind sie als Funktionen der Brechungsindexmodulation δn dargestellt. Die vertikale Linie markiert den Sättigungswert der Beugungseffizienz, die mit Hilfe der experimentellen Parameter berechnet wurde.

positiven Quadranten und die Ungeraden im Negativen. Dies bedeutet, dass die ungeradzahlig nummerierten Amplituden in der Summe aller Amplituden und damit die Gesamtmonomerkonzentration herabsenken.

Ist die Diffusionsrate halb so groß wie die Polymerisationsrate oder sogar noch größer, so erreicht die nullte Amplitude den Wert null schon viel früher als bei relativ kleinen Diffusionsraten. Die dritte Amplitude ist gleich zu Beginn beim Wert Null. Sogar die zweite Amplitude zeigt keine Auslenkung, wenn die Diffusionsrate fünfmal so groß ist wie die Polymerisationsrate. Die nullte Amplitude fällt dann viel steiler ab.

Über die Formeln in (2.27 - 2.30) können die Amplituden der Fourierreihe von der Polymerkonzentration (2.26) errechnet werden. Auch hier wurden die Summanden nach

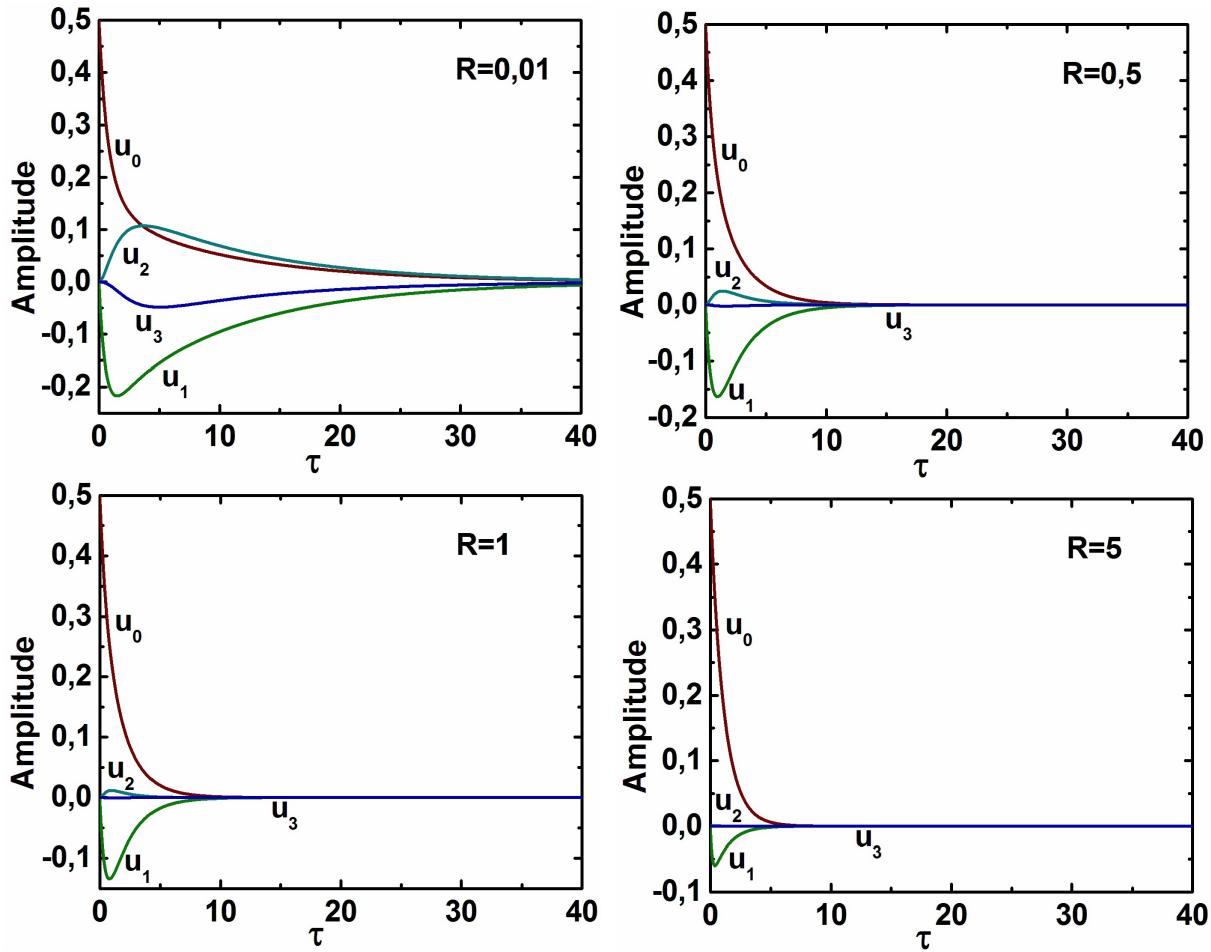


Abbildung 4.11:

Die Amplituden der nullten, ersten, zweiten und dritten Harmonischen der Monomerkonzentration sind gegen die reduzierte Zeit τ aufgetragen und für vier verschiedene Verhältnisse von R aus Diffusion und Polymerisation dargestellt.

dem vierten Glied weggelassen. In Abbildung 4.12 sind die Amplituden der nullten, ersten, zweiten und dritten Harmonischen der Polymerkonzentration in Abhängigkeit von der reduzierten Zeit τ aufgetragen. In jeweils einem Diagramm ist der Verlauf von nur einer Amplitude bei vier verschiedenen Werten von R ($0,01; 0,5; 1$ und 5) enthalten, um den Einfluss des Verhältnisses auf die jeweilige Amplitude besser zu verdeutlichen. Mit steigendem Wert von R , erreicht die Amplitude N_0 sehr viel schneller ihren Sättigungswert von $0,5$. Die Amplitude N_1 steigt bei allen vier Verhältnissen zunächst an. Beträgt die Diffusionsrate ein Hundertstel der Polymerisationsrate, so fällt die zweite Amplitude langsam auf einen konstanten Wert ab. Mit größerem R nimmt sie auch höhere kon-

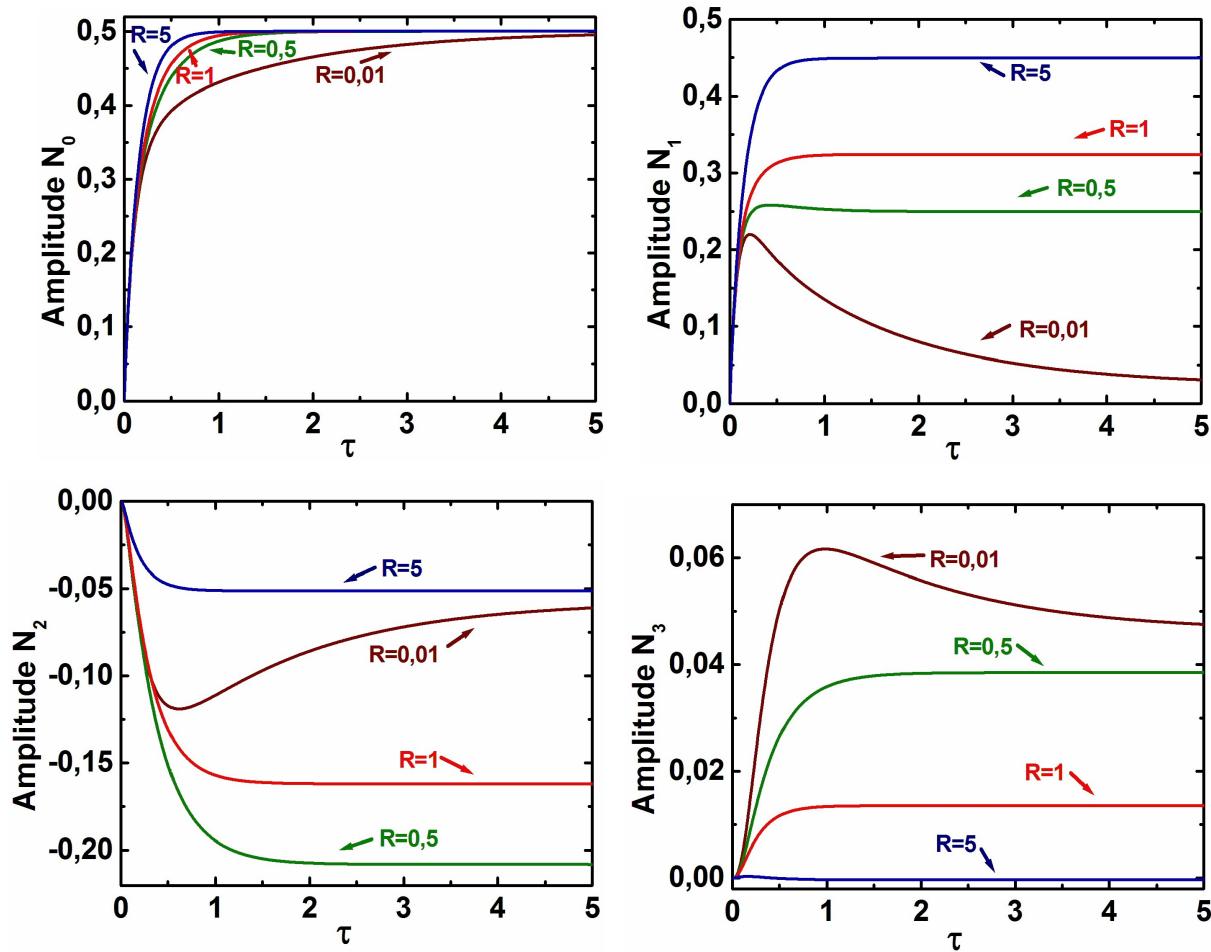


Abbildung 4.12:

Die Amplituden der nullten, ersten, zweiten und dritten Harmonischen der Polymerkonzentration. Aufgetragen gegen die reduzierte Zeit τ . Ein Diagramm stellt jeweils eine Amplitude dar für vier verschiedene Verhältnisse von R aus Diffusion und Polymerisation.

stante Werte an. Die Amplitude N_2 befindet sich im negativen Bereich. Ihr Auftreten beschreibt die Abweichung eines mehr rechteckigen Gitters von einem sinusförmigen Gitter. Die Amplitude N_3 hat relativ kleine Werte und geht sogar gegen null, sobald R größer eins wird. Das bedeutet, dass höhere Amplituden bei großen Werten von R keine Rolle spielen und nur bei kleineren Werten berücksichtigt werden müssten.

In den Abbildungen 4.11 und 4.12 sind die jeweiligen Amplituden der Monomer- und Polymerkonzentration in Abhängigkeit von τ gezeigt. Führt man nun eine Fourierentwicklung sowohl von der Monomerkonzentration $u(x, t)$ als auch von der Polymerkonzentration $N(x, t)$ mit Hilfe der entsprechenden Amplituden durch, so kann die gesamte

Konzentration ortsabhängig dargestellt werden.

In Abbildung 4.13 ist die Gesamtkonzentration gegen den Ort x , der auf die Einheit der

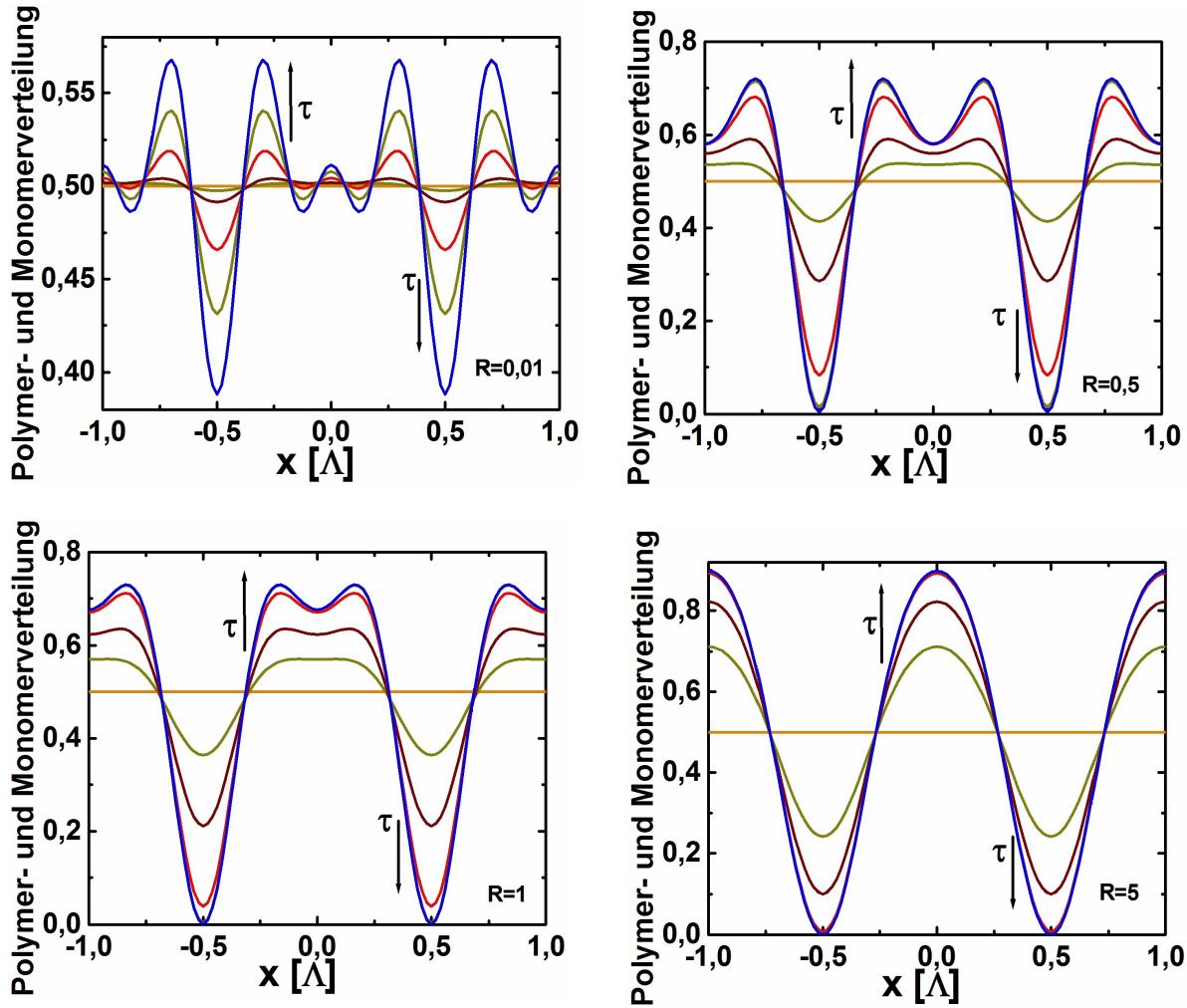


Abbildung 4.13:

Die Gesamtkonzentration in der Summe aus Polymer- und Monomerverteilung in Abhängigkeit vom Ort x in Einheiten der Gitterkonstanten Λ . Dargestellt in vier Diagrammen für vier verschiedene R -Werte des Verhältnisses aus Diffusions- und Polymerisationsrate. In den Teilbildern ist zusätzlich die Entwicklung der Konzentration über die reduzierte Zeit τ aufgetragen.

Gitterkonstanten skaliert ist, aufgetragen. Das Intensitätsmuster der beiden interferierenden Strahlen hat ein Maximum bei $x = 0$ und $x = 1$ und ein Minimum bei $x = 0,5$. Für alle Werte von R liegt in jedem Teilbild bei $0,5$ (bzw. $-0,5$) ein Minimum vor, das heißt, dass an dieser Stelle der Monomergehalt zurückgeht und der Flüssigkristallan-

teil wächst. Hat R den Wert 5, so erreicht die Gesamtkonzentration bei 0 ein Maximum. Durch Diffusion des Monomers und Polymerisation steigt hier der Polymergehalt. Der Verlauf der Konzentration ist sinusförmig. Bei kleineren Werten von R verhält sich die Monomer- und die Polymerverteilung in dem Bereich um $x = 0$ (hohe Lichtintensität) nicht sinusförmig. Es gibt scheinbar seitliche Überschwinger bei $|x| \approx 0,25$, die sich verstärkt zeigen, wenn die Entwicklung mit steigendem τ betrachtet wird. Dies ist je-

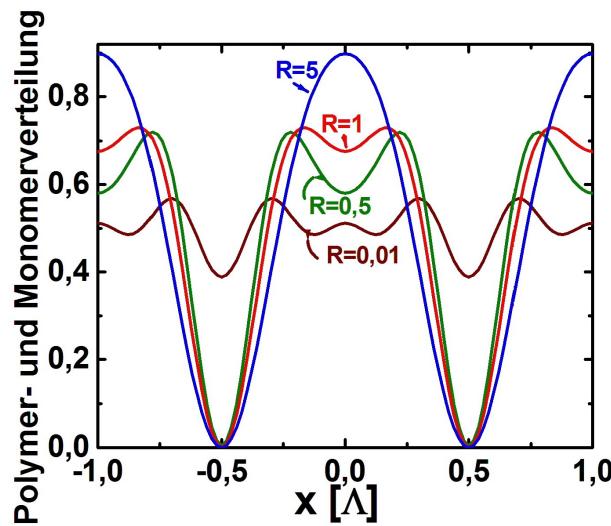


Abbildung 4.14:

Gegen den Ort x in Einheiten der Gitterkonstanten Δ aufgetragene Konzentrationen bei gleichem Wert für τ , jedoch mit verschiedenen Werten für R .

doch vermutlich lediglich darauf zurückzuführen, dass höhere Glieder der Fourierreihe vernachlässigt wurden, die bei kleineren Werten von R nicht unbedingt verschwinden. An dieser Stelle ist daher die physikalische Interpretation mit Vorbehalt zu betrachten. In Abbildung 4.14 sind zur Verdeutlichung der Position der Überschwinger vier Polymer- und Monomerverteilungen bei gleichem Wert für τ dargestellt. Der sinusförmige Verlauf ist deutlich zu erkennen bei R mit dem Wert 5.

Die Abbildung 4.15 zeigt sowohl das räumliche als auch das zeitliche Verhalten der Brechungsindexmodulation, das man durch Lösen der Gleichungen (2.21 - 2.24) und anschließendem Einsetzen der numerischen Lösungen in den Ausdruck (2.32) erhält. Die entsprechenden Brechungsindizes des Flüssigkristalls und des Monomers wurden der Tabelle 3.5 und der Tabelle 3.3 entnommen. Der Brechungsindex von TMPTA als Polymer beträgt 1,51389. Die Brechungsindexmodulation ist erforderlich, um nach Glei-

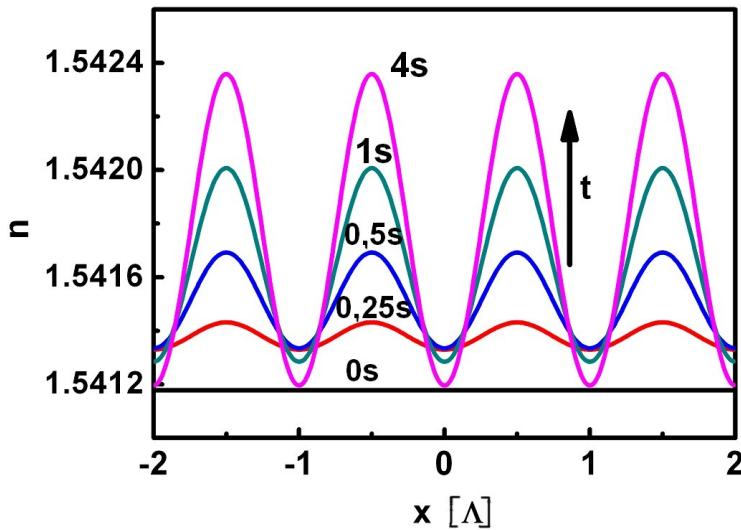


Abbildung 4.15:

Die Entwicklung der räumlichen Verteilung des Brechungsindexes während des zeitlichen Verlaufs der Polymerisation.

chung (4.2) bzw. (4.3) die Beugungseffizienz theoretisch zu berechnen. In Abbildung 4.16 sind simulierte Beugungseffizienzen eines Volumen-Gitters in Abhängigkeit von der Zeit für verschiedene Werte von R nach Gleichung (4.2) dargestellt. Ab einem Wert von 50 für R tritt eine Art Sättigungseffekt ein. Das bedeutet, dass die berechnete Beugungseffizienz für noch höhere Werte keine Veränderung zeigt. Zum Vergleich sind die experimentellen Werte aus Abbildung 4.9(b) auch in dieser Abbildung enthalten. Der Anfangsdiffusionskoeffizient D_a von TMPTA in einer fünfzig prozentigen Mischung mit E7 beträgt $2,6 \cdot 10^{-11} m^2/s$ nach [Tan11]. Daraus und aus dem in der Doktorarbeit von Herrn Hoischen [Hoi05] untersuchten Polymerisationsverhalten erhält man einen sehr großen Wert für R , der weit über 200 liegt. Abbildung 4.17 zeigt nach Gleichung (4.3) berechnete Beugungseffizienzen eines dünnen Gitters (Raman-Nath-Bereich), die daraus resultieren, dass für R ebenfalls unterschiedliche Werte eingesetzt wurden. Auch hier tritt mit einem größeren R ein zunehmend gleich bleibender Verlauf der Beugungseffizienz auf. Die gleichen experimentellen Werte wie in Abbildung 4.16 sind auch hier als Vergleich eingefügt.

Das Gitter mit dem oben errechneten Wert von $Q \approx 8$ liegt im Bereich zwischen dem dünnen und dem Volumen-Gitter. Wie erwartet, befinden sich die experimentell

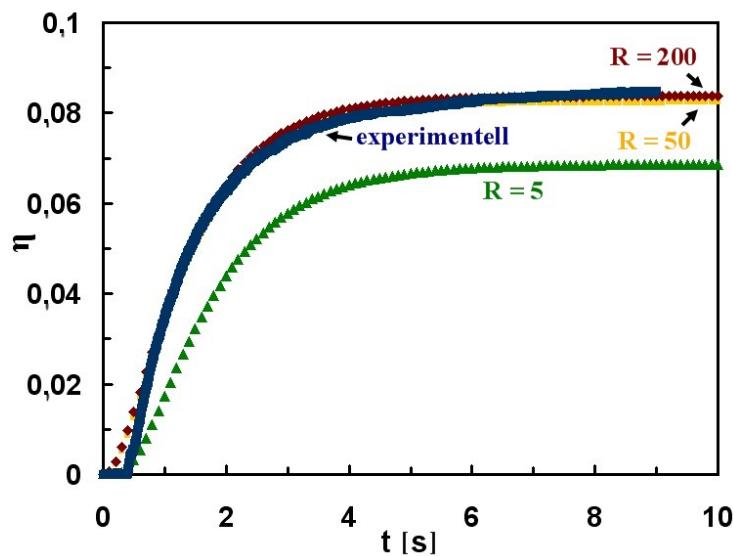


Abbildung 4.16:

Verhalten der Beugungseffizienz η : Vergleich der Simulationen für ein dikes Gitter mit den experimentell erfaßten Daten der Probe mit 49% TMPTA, 50% E7 und 1% Irgacure 784.

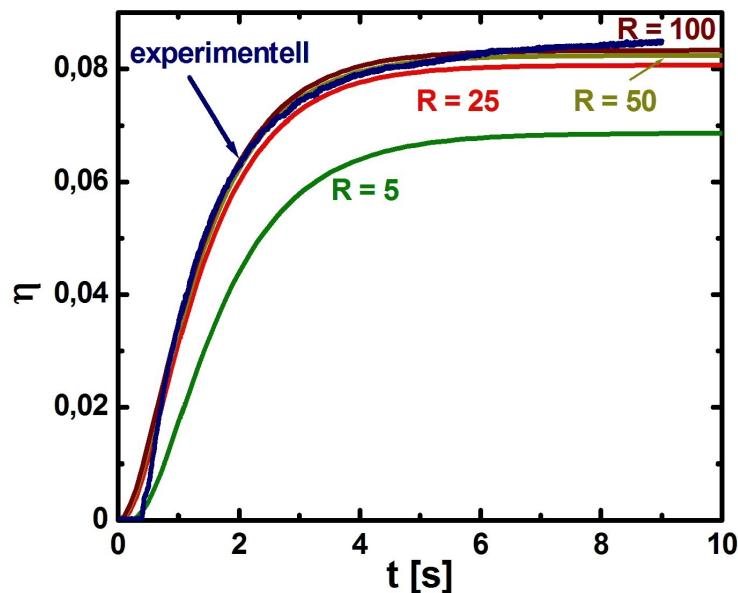


Abbildung 4.17:

Verhalten der Beugungseffizienz η : Vergleich der Simulationen für ein dünnes Gitter mit den experimentell erfaßten Daten der Probe mit 49% TMPTA, 50% E7 und 1% Irgacure 784.

erfassten Sättigungswerte der Beugungseffizienz in dem schmalen Intervall zwischen den beiden theoretischen Werte, die man für ein dünnes [RN35] und ein Volumengitter [Kog69] erhält.

4.2 Zwei- und dreidimensionale Strukturen

Nachdem die im wesentlichen vier verschiedene PDLC-Systeme mit Hilfe des Zweistrahlinterferenzaufbaus untersucht wurden, rückte die holografische Herstellung durch den Umbrella-Aufbau in den Vordergrund. Dabei wurden solche PDLC-Systeme und Mischungsverhältnisse von vornherein außer Acht gelassen, bei denen das Einschreiben des eindimensionalen Gitters weniger erfolgreich verlief. Die beiden hier hauptsächlich verwendeten Systeme enthielten außer dem Flüssigkristall und dem Photoinitiator entweder (a) DPHPA, NVP und NPG oder (b) nur TMPTA. Hier wurde das Augenmerk nicht auf die Zusammensetzung gerichtet, sondern auf andere geometrische Parameter, die das Einschreiben von zwei- bis dreidimensionalen Strukturen in PDLCs beeinflussen. So wurden die vier Strahlen direkt auf die Testzelle unter verschiedenen Winkeln gelenkt. Durch diese direkte Einstrahlung aus der Luft können jedoch keine Winkel α im Inneren des PDLC-Systems erreicht werden, die den Grenzwinkel der Totalreflexion $\alpha_{GR} = \arcsin(1/n_{Probe})$ überschreiten. Bei der Mischung aus TMPTA und E7 liegt dieser Grenzwinkel bei 40° . Die Geometrien aus Tabelle 3.2 können somit ohne Prismenaufsatzen nicht realisiert werden. Es wurden trotzdem kleinere Winkel eingestellt und die TMPTA-E7-Mischungen wurden bei gleichen Intensitäten der drei Seitenstrahlen beleuchtet. In Abbildung 4.18 ist eine mikroskopische Aufnahme zu sehen von solch einer Probe bei einem Winkel von 24° zwischen dem jeweiligen Seitenstrahl und dem zentralen Strahl.

Die gleichen Mischungen wurden auch unter den drei verschiedenen und oben beschriebenen Prismenaufsätzen bestrahlt. Die Beobachtungen und Untersuchungen darüber sind weiter unten im Unterkapitel 4.2.2 enthalten.

Zunächst soll auf die sich stellende Vorüberlegung eingegangen werden, welchen Einfluss die vier Parametersets Phasen, Intensitäten, Polarisationen und Einfallswinkel auf die PDLC-Struktur ausüben (siehe Unterkapitel 4.2.1). Zudem wird die Interferenz-

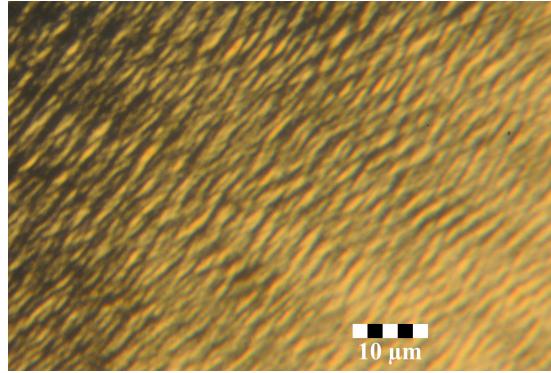


Abbildung 4.18:

Mikroskopische Aufnahme einer TMPTA-E7-Mischung bei einem Winkel von 24° zwischen einem Seitenstrahl und dem zentralen Strahl.

struktur berechnet und dargestellt. Im Unterkapitel 4.2.3 wird das Beugungsverhalten der mit vier Strahlen (Umbrella) erzeugten Proben diskutiert.

4.2.1 Einfluss geometrischer Strahlparameter auf die Struktur

Für die Erzeugung von dreidimensionalen Strukturen in PDLCs ist ein Aufbau mit vier miteinander interferierenden Strahlen erforderlich. Dazu und um die gewünschten geometrischen und optischen Parameter zu bestimmen, wurden die jeweiligen Intensitätsverteilungen I des Interferenzfeldes berechnet. So lautet die Gleichung (2.3) in etwas anderer Darstellung:

$$I = \left[\sum_{l=1}^N \vec{A}_l \cdot e^{i(\vec{k}_l \cdot \vec{r} + \varphi_l)} \right] \cdot \left[\sum_{m=1}^N \vec{A}_m \cdot e^{-i(\vec{k}_m \cdot \vec{r} + \varphi_m)} \right] \quad (4.4)$$

mit der gleichen Bedeutung von \vec{A}_l wie in Gleichung (3.3). Diese Intensitätsgleichung kann ausmultipliziert werden

$$I = \sum_{l=1}^N \vec{A}_l^2 + 2 \sum_{l=2}^N \sum_{m=1}^{l-1} \vec{A}_l \cdot \vec{A}_m e^{i[(\vec{k}_l - \vec{k}_m) \cdot \vec{r} + \varphi_l - \varphi_m]}. \quad (4.5)$$

Die Orientierungen der Wellenvektoren der vier Laserstrahlen können wie folgt definiert

werden [LS08]:

$$\vec{k}_1 = k \vec{e}_z, \quad (4.6)$$

$$\vec{k}_2 = k (\sin\gamma \cos\beta_1 \vec{e}_x + \sin\gamma \sin\beta_1 \vec{e}_y + \cos\gamma \vec{e}_z), \quad (4.7)$$

$$\vec{k}_3 = k (\sin\gamma \cos\beta_2 \vec{e}_x + \sin\gamma \sin\beta_2 \vec{e}_y + \cos\gamma \vec{e}_z), \quad (4.8)$$

$$\vec{k}_4 = k (\sin\gamma \cos\beta_3 \vec{e}_x + \sin\gamma \sin\beta_3 \vec{e}_y + \cos\gamma \vec{e}_z). \quad (4.9)$$

Der Einheitsvektor \vec{e}_i verläuft in Richtung der jeweiligen Koordinatenachse, der Winkel γ liegt zwischen dem Laserstrahl und der z-Achse und der Winkel β_i befindet sich zwischen der Projektion des Laserstrahls auf der x-y-Ebene und der x-Achse (siehe Abbildung 4.19).

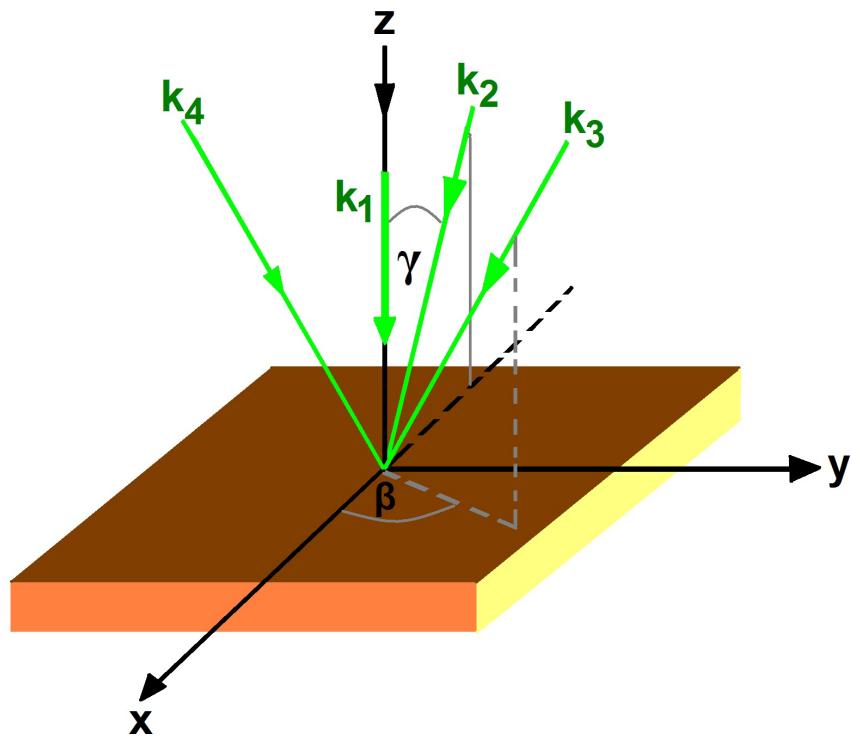


Abbildung 4.19:

Anordnung der Wellenvektoren der vier Laserstrahlen im rechtwinkligen Koordinatensystem

Setzt man die Ausdrücke aus (4.9) in (4.5) mit $N = 4$, $\beta_1 = 180^\circ$, $\beta_2 = -60^\circ$ und

$\beta_3 = 60^\circ$ ein, so erhält man [LS08]:

$$\begin{aligned}
 I = & \left| \vec{A}_1 \right|^2 + \left| \vec{A}_2 \right|^2 + \left| \vec{A}_3 \right|^2 + \left| \vec{A}_4 \right|^2 \\
 & + 2\vec{A}_1 \cdot \vec{A}_2 \cos(kx \sin\gamma + kz - kz \cos\gamma + \varphi_1 - \varphi_2) \\
 & + 2\vec{A}_1 \cdot \vec{A}_3 \cos\left(-\frac{1}{2}kx \sin\gamma + \frac{\sqrt{3}}{2}ky \sin\gamma + kz - kz \cos\gamma + \varphi_1 - \varphi_3\right) \\
 & + 2\vec{A}_1 \cdot \vec{A}_4 \cos\left(-\frac{1}{2}kx \sin\gamma - \frac{\sqrt{3}}{2}ky \sin\gamma + kz - kz \cos\gamma + \varphi_1 - \varphi_4\right) \quad (4.10) \\
 & + 2\vec{A}_2 \cdot \vec{A}_3 \cos\left(-\frac{3}{2}kx \sin\gamma + \frac{\sqrt{3}}{2}ky \sin\gamma + \varphi_2 - \varphi_3\right) \\
 & + 2\vec{A}_2 \cdot \vec{A}_4 \cos\left(-\frac{3}{2}kx \sin\gamma - \frac{\sqrt{3}}{2}ky \sin\gamma + \varphi_2 - \varphi_4\right) \\
 & + 2\vec{A}_3 \cdot \vec{A}_4 \cos\left(\sqrt{3}ky \sin\gamma + \varphi_3 - \varphi_4\right).
 \end{aligned}$$

Die Amplitude und der Polarisationswinkel α_l sind in \vec{A}_l enthalten (Gl. (3.3)). Die Gleichung (4.10) erhält man auch durch Weglassen des Imaginärteils in Gleichung (2.6) und durch Transformation des rhomboedrischen Kristallsystems in ein kartesisches Koordinatensystem. Aus den Gleichungen (4.10) und (3.3) geht hervor, dass insgesamt vier Parametersets die Intensitätsverteilung und damit die Interferenzstruktur beeinflussen. Zu den vier Sets gehören: Das Verhältnis der Intensitäten $I_1 : I_2 : I_3 : I_4$, der Winkel γ zwischen dem zentralen Strahl und jeweils einem der umgebenden Seitenstrahlen, der Polarisationszustand α eines jeden Strahls und die relativen Phasen φ der Strahlen zueinander. Der Einfluss dieser Parametergruppen auf die resultierende Intensitätsstruktur wurde mithilfe des Programms POV-Ray untersucht. Der Algorithmus dieses Programms gestattet es, die Ausbreitung von Lichtstrahlen zu berechnen (engl. „ray tracing“) und komplizierte Strukturen im dreidimensionalen Raum graphisch darzustellen. Die Gleichung (4.10) kann direkt in POV-Ray eingegeben werden. Bei Vorgabe bestimmter Werte für die Parametersets kann die Intensitätsstruktur visualisiert werden. Verwendet man hierfür die Parameterwerte für ein fcc-Translationsgitter aus Tabelle 3.2 in Abschnitt 3.1.3, so sieht das Intensitätsmuster wie in Abbildung 4.20 aus.

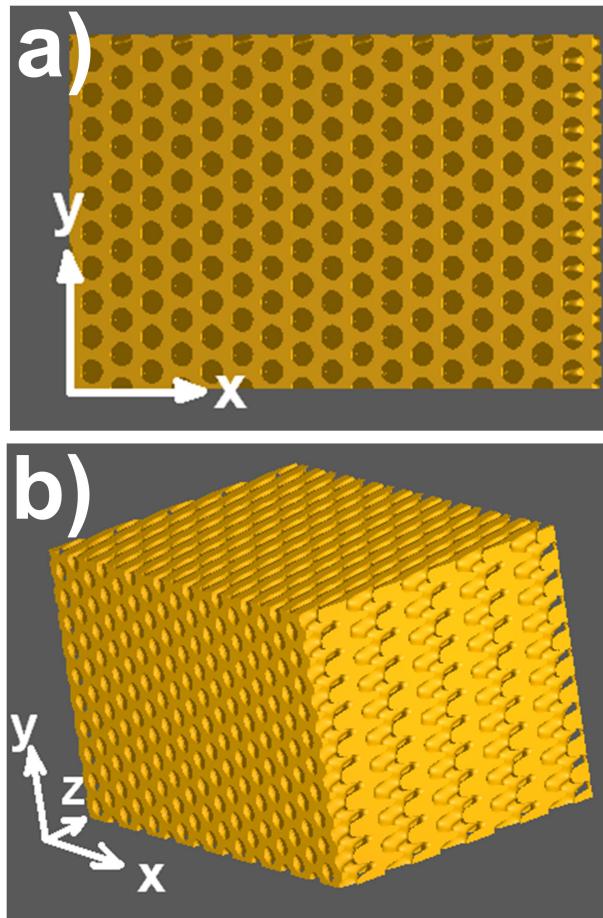


Abbildung 4.20:

Mit POV-Ray simuliertes dreidimensionales Gitter aus der Intensitätsgleichung (4.10) mit den Parameterwerten des fcc-Translationsgitters aus Tabelle 3.2. In a) ist die Querschnittsfläche der x-y-Ebene und in b) sind alle drei Raumrichtungen dargestellt.

4.2.1.1 Auswirkungen der Phasen auf die Struktur

Bei einer Interferenz zweier Strahlen bildet die Differenz der beiden Wellenvektoren den Gittervektor des entstandenen eindimensionalen Gitters. Ändert man nun die relative Phase zwischen den beiden Strahlen, so verschieben sich die Orte mit maximaler und minimaler Interferenz in die gleiche Richtung. Die eindimensionale Struktur bleibt jedoch erhalten. Bei der Interferenz von vier Strahlen enthält die Menge aller Gittervektoren $\vec{G}_{l,m}$ drei linear unabhängige Gittervektoren (siehe Abschnitt 2.1.3), die jeweils einzeln betrachtet eine eindimensionale Struktur ergeben. Das Aufspannen dieser line-

ar unabhängigen Gittervektoren ergibt eine Überlagerung der drei dazugehörigen eindimensionalen Strukturen. Aus dieser Überlagerung folgt ein dreidimensionales Gitter. Verändert man die Phase zweier Strahlen und damit die entsprechende eindimensionale Struktur, so verschieben sich die Orte mit maximaler und minimaler Intensität. Das dreidimensionale Interferenzmuster sollte jedoch gleich bleiben. Um diese Annahme zu prüfen, werden im Folgenden die Einflüsse der Phasen der vier Strahlen auf das Interferenzgitter anhand der Berechnungen mit POV-Ray untersucht. Lässt man das Intensitätsverhältnis bei $1 : 0,1 : 0,4 : 0,4$, den Einfallswinkel γ bei $38,94^\circ$ und die Polarisationswinkel α_1 und $\alpha_{2,3,4}$ bei $28,96^\circ$ bzw. $23,28^\circ$ konstant und variiert lediglich die Phasenbeziehungen $\varphi_i - \varphi_j$ zwischen den Strahlen, so ergeben sich im Wesentlichen zwei Ergebnisse. Die Änderung der Phasen zwischen dem zentralen Strahl und dem jeweiligen benachbarten Strahl 2, 3 oder 4 führt zu einer Verschiebung des Gitters bei unverändertem Interferenzmuster (siehe Abbildung 4.21 a-c). Werden die Phasen zwischen den Strahlen 2, 3 und 4 geändert, so bleibt das Intensitätsmuster unverändert und wird nicht verschoben (Abbildung 4.21 d).

4.2.1.2 Variation der Intensitätsverhältnisse

Im Folgenden wird der Einfluss verschiedener Intensitäten auf das Interferenzmuster betrachtet. Die Polarisationswinkel und der Einfallswinkel bleiben wie vorhin konstant. Da die vielen möglichen Werte für die Phasenbeziehungen keinerlei Veränderung des Intensitätsmusters zeigen, werden sie für alle weiteren Berechnungen mit null gesetzt. In Abbildung 4.22 sind simulierte dreidimensionale Interferenzgitter bei vier verschiedenen Intensitätsverhältnissen dargestellt: a) $1:1:1:1$, b) $1:0,33:0,33:0,33$, c) $2:0,11:0,44:0,44$ und d) $1:1,5:1,5:1,5$. Sind die Intensitäten aller vier Strahlen gleich, so entsteht zwar ein rhomboedrisches Gitter (Abb. 4.22 a), aber der Kontrast des Interferenzmusters ist nicht maximal (siehe Abschnitt 3.1.3). In Abbildung 4.22 b wurde die Interferenz für den Fall berechnet, dass die drei umgebenden Strahlen jeweils dreißig Prozent der Intensität des zentralen Strahls aufweisen. In Abbildung 4.22 c wurde die Intensität des zentralen Strahls verdoppelt. In beiden Fällen entsteht zwar ein rhomboedrisches Gitter, die Drehsymmetrie ist jedoch vermindert und der Kontrast ist noch immer nicht optimal. In Abbildung 4.22 d ist eine rhomboedrische Struktur kaum oder

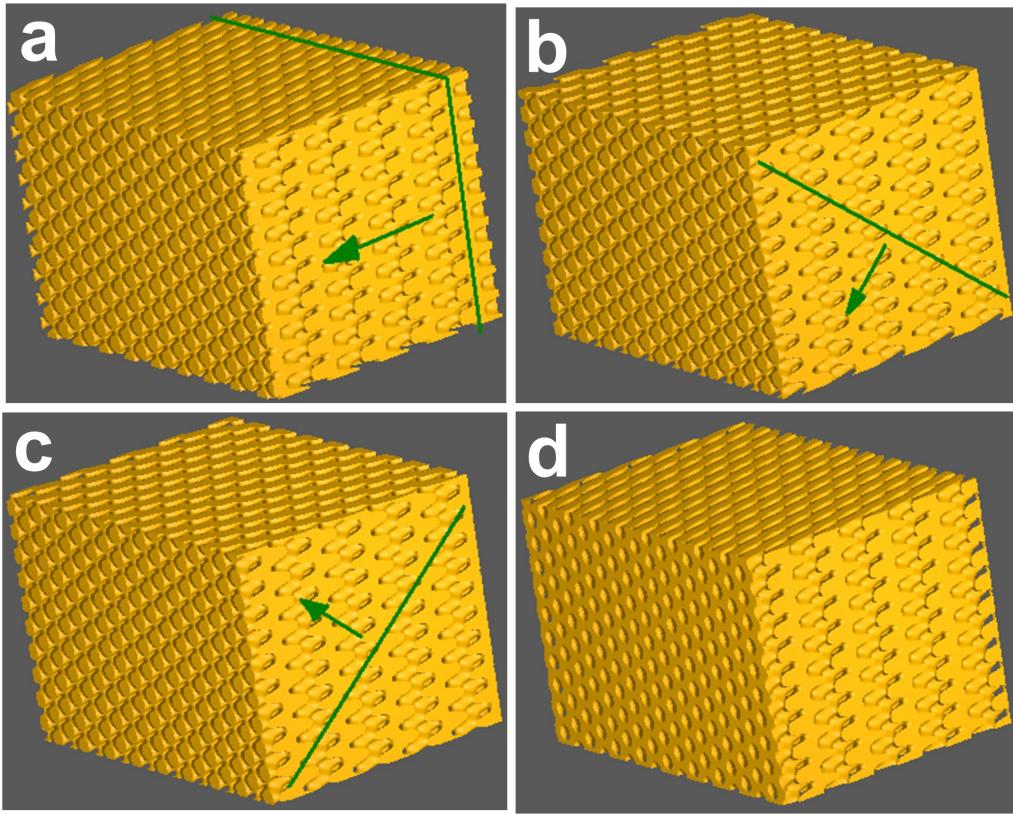


Abbildung 4.21:

Simulierte dreidimensionale Interferenzgitter: Phasenänderungen zwischen Strahl 1 und a) 2, b) 3 und c) 4. Die Gerade charakterisiert eine Ebene, die sich mit steigender Phase entlang der Pfeilrichtung bewegt. In d) wurden die Phasen zwischen den Strahlen 2, 3 und 4 variiert, das Intensitätsmuster blieb unverändert.

erst nach genauerem Hinsehen erkennbar. Hier sind die Intensitäten der umgebenden Strahlen jeweils um fünfzig Prozent größer als die Intensität des zentralen Strahls.

4.2.1.3 Änderung der Polarisationszustände der vier Laserstrahlen

Bei einem konstanten Intensitätsverhältnis von 1 : 0,11 : 0,44 : 0,44 und einem gleich bleibenden Einfallswinkel γ von $38,94^\circ$ können die Polarisationswinkel $\alpha_{1,2,3,4}$ wie folgt variiert werden. Zunächst werden die Feldvektoren der Strahlen parallel zu deren jeweiligen Einfallsebene gelegt, das heißt alle Polarisationswinkel sind gleich null. Das daraus berechnete Intensitätsmuster ist in Abbildung 4.23 a zu sehen. Die eingezeich-

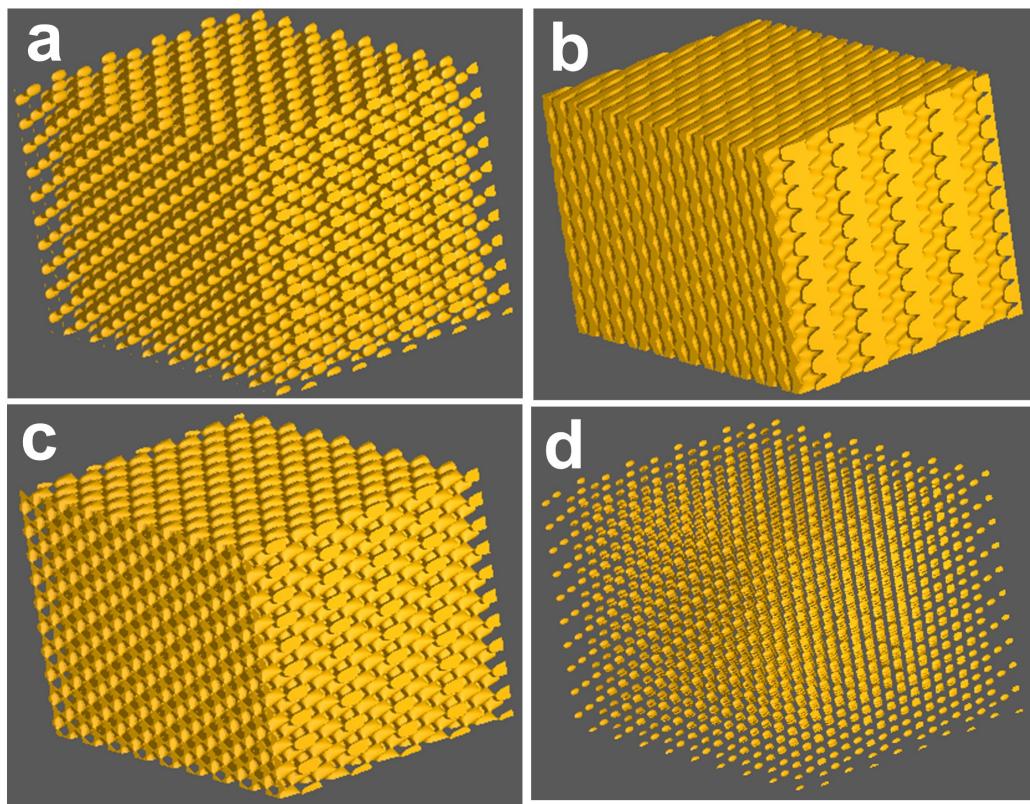


Abbildung 4.22:

Simulierte dreidimensionale Interferenzgitter mit geänderten Intensitäten:

a) 1:1:1:1 , b) 1:0,33:0,33:0,33 , c) 2:0,11:0,44:0,44 und d) 1:1,5:1,5:1,5 . Die rhomboedrische Struktur ist in allen vier Bildern zu sehen, der Kontrast ist jedoch nicht optimal.

neten Linien sollen die gebrochene Radialsymmetrie verdeutlichen. Diese Brechung wird noch deutlicher, wenn man die Polarisationswinkel alle gleich 90° setzt (Abb. 4.23 b). Damit stehen die Feldvektoren jeweils senkrecht zur Einfallsebene. Ein ähnliches Ergebnis erhält man, wenn man nur den Polarisationswinkel α_2 des Strahles 2 erst null (Abb. 4.23 c) und dann neunzig Grad (Abb. 4.23 d) setzt und für die restlichen Polarisationswinkel die Werte aus der Tabelle 3.2 übernimmt. Auch wenn der Feldvektor des zweiten Strahls um 180° gedreht wird, geht die Symmetrie verloren (Abb. 4.23 e). Das ist nicht überraschend, da die Drehung des Feldvektors wie eine Phasenverschiebung um $\lambda/2$ wirkt, so dass z. B. anstelle einer konstruktiven Interferenz für $\alpha = 0^\circ$ eine destruktive Interferenz für $\alpha = 180^\circ$ auftritt. Liegen die Feldvektoren der Strahlen drei und vier jeweils in der Einfallsebene und sind die Polarisationswinkel α_1 und α_2 der beiden anderen Strahlen gleich $28, 96^\circ$ bzw. $23, 28^\circ$, so ist auch hier die Radialsymmetrie ein-

geschränkt (Abb. 4.23 f).

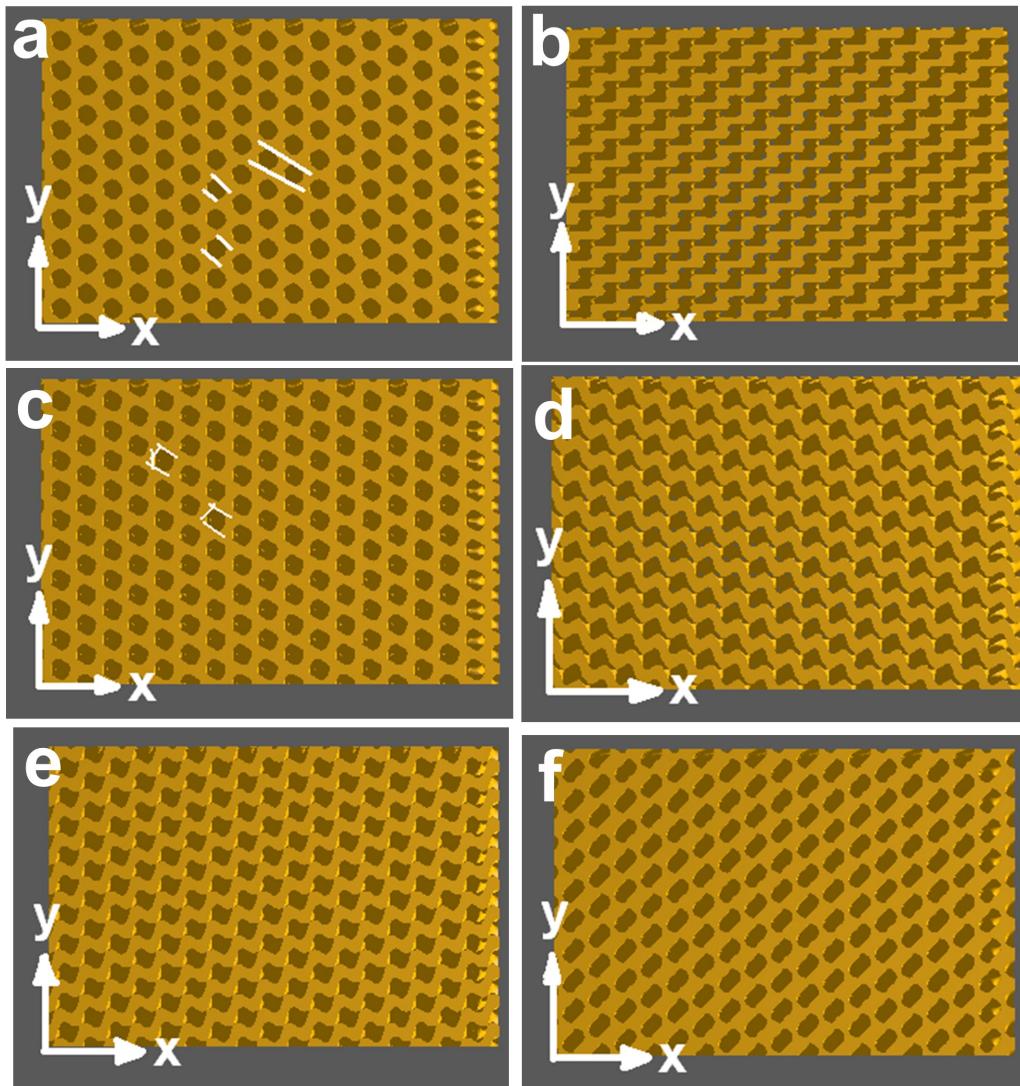


Abbildung 4.23:

Simulierte dreidimensionale Interferenzgitter mit geänderten Polarisationswinkeln: a) $\alpha_{1,2,3,4} = 0^\circ$, b) $\alpha_{1,2,3,4} = 90^\circ$, c) $\alpha_1 = 28, 96^\circ$, $\alpha_2 = 0^\circ$, $\alpha_{3,4} = 23, 28^\circ$, d) $\alpha_1 = 28, 96^\circ$, $\alpha_2 = 90^\circ$, $\alpha_{3,4} = 23, 28^\circ$, e) $\alpha_1 = 28, 96^\circ$, $\alpha_2 = -23, 28^\circ$, $\alpha_{3,4} = 23, 28^\circ$, und f) $\alpha_1 = 28, 96^\circ$, $\alpha_2 = 23, 28^\circ$, $\alpha_{3,4} = 0^\circ$. Die Markierungslinien in a) und c) sollen die Rotationssymmetrie verdeutlichen, die in b), d), e) und f) nicht mehr vorhanden ist.

4.2.1.4 Einfluss des Einfallswinkels

Der letzte zu untersuchende Strahlparameter ist der Einfallswinkel γ . Mit den Werten aus der Tabelle 3.2 für die anderen Parameter und der Steigerung des Einfallwinkels von 30° bis 60° in 10° -Schritten, erhält man Intensitätsgitter wie in Abbildung 4.24 gezeigt. Die Reihenfolge a bis d entspricht steigendem Winkel. Zwei parallele Geraden markieren jeweils die Gitterebenen. Mit höherem Einfallwinkel nimmt der Abstand zwischen diesen Ebenen ab. Der Einfallswinkel bestimmt im Wesentlichen die Intensitätsstruktur der vier interferierenden Strahlen in der Umbrella-Anordnung.

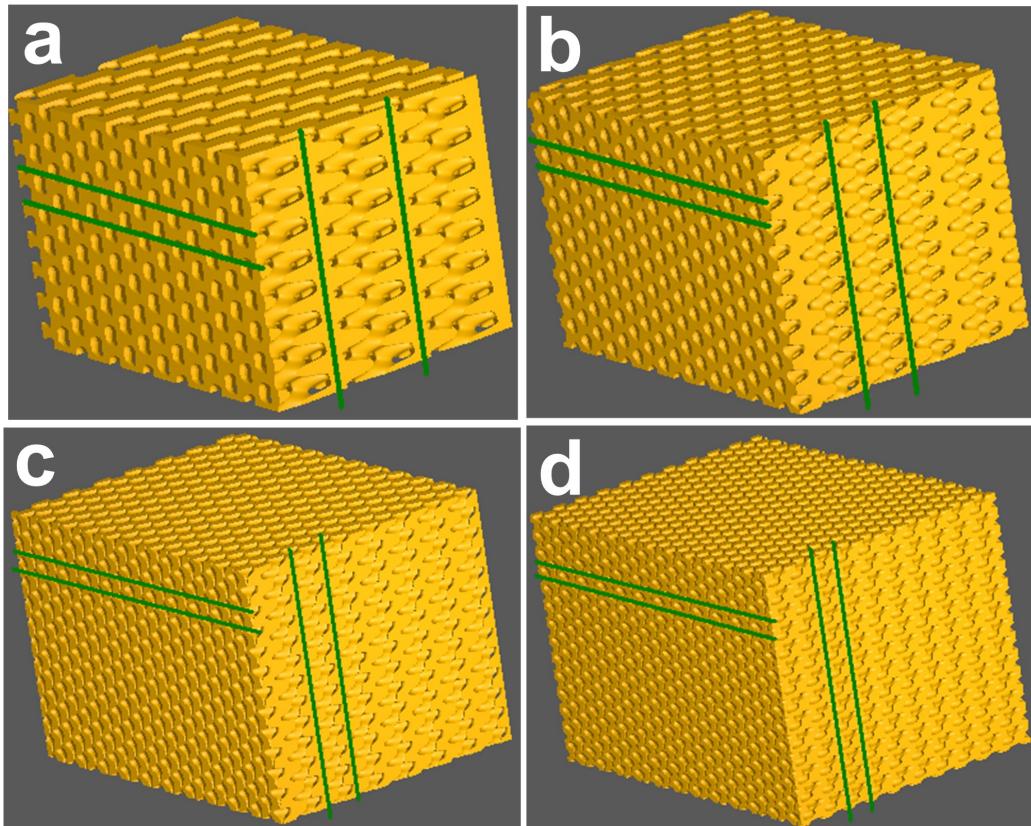


Abbildung 4.24:
Simulierte dreidimensionale Interferenzgitter mit ansteigendem Einfallswinkel γ : a) 30° , b) 40° , c) 50° und d) 60° . Mit höherem Einfallwinkel verringert sich der Abstand zweier Gitterebenen zueinander und damit die Gitterkonstante.

4.2.2 Verschiedene Prismenaufsätze

In den folgenden Unterabschnitten sind die Ergebnisse mehrerer durchgeföhrter Versuchsreihen zusammengefasst. Hierbei wurden nach Abdunkelung des Laborraumes $50\mu\text{m}$ dicke Glästestzellen mit verschiedenen PDLC-Mischungen gefüllt und im Anschluss durch die vier grünen Laserstrahlen mit unterschiedlichen Parametern jeweils für dreißig Sekunden beleuchtet. Einige der erstellten Pentaacrylat-Mischungen sind in Tabelle 4.1 mit den jeweiligen Massenprozentangaben aufgelistet. So wurden die Pro-

Tabelle 4.1:

Auszug einiger Mischungen hergestellt aus E7, DPHPA, NVP, RB und NPG mit unterschiedlichen Gewichtsanteilen.

Mischung	E7 (%)	DPHPA (%)	NVP (%)	RB (%)	NPG (%)
35	42,8	34,9	15,2	1,6	5,5
43	45	40,1	10,6	1,7	2,6
47	11,2	75,7	11	1	1,1
48	21	66,3	10,3	1,2	1,2
49	31,1	56,6	9,7	1,4	1,2
50	29,4	47,3	20,8	1,3	1,2
52	44,7	39,4	10	2,6	3,3
61	41,2	34	19,6	1,2	4

ben (1) direkt, (2) durch ein Prisma mit abgeschnittener und polierter Spitze, durch ein Prisma mit einem Seitenflächenwinkel von (3) $\gamma = 73,07^\circ$ und durch ein Prisma mit einem Winkel von (4) $\gamma = 39,6^\circ$ bestrahlt. Der (1) direkte Lichteinfall auf die Grenzfläche zwischen Luft und Testzelle innerhalb des Mediums Luft ($n_2 \approx 1$) ist theoretisch unter dem Einfallswinkel $\gamma_2 = 90^\circ$ möglich. Das bedeutet, dass nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz ($n_1 \sin(\gamma_1) = n_2 \sin(\gamma_2)$) der Winkel (γ_1) zwischen dem zentralen Strahl und jedem Seitenstrahl in der Probe (n_1) maximal $40,5^\circ$ unter perfekten Bedingungen betragen kann. Der Winkel von $70,53^\circ$ für die sc-Struktur innerhalb der Probe ist daher

durch (1) direkte Einstrahlung nicht realisierbar und kann nur mit Hilfe eines Prismas wie im Fall (3) ermöglicht werden. Der Winkel von $38,94^\circ$ für die fcc-Struktur liegt im Grenzbereich der Totalreflexion bezogen auf das Medium Luft. Um diesen Winkel unter Ausnutzung des Snelliusschen Brechungsgesetzes innerhalb der Probe zu erreichen, wurden die Spiegel so justiert, dass der Winkel zwischen dem zentralen Strahl und jedem Seitenstrahl 75° außerhalb der Testzelle betrug. Durch die (1) direkte Einstrahlung unter dem Einfallswinkel von 75° wurden Proben der Mischung aus TMPTA (50%), E7 (49%) und Irgacure 784 (1%) dreißig Sekunden lang bestrahlt. Diese Proben zeigten anschließend nur diffuse Streuung aber keine Beugung, sobald man mit dem roten Laserstrahl die Testzelle an entsprechender Position beleuchtete. Unter dem Mikroskop waren keine eindeutigen Strukturen zu erkennen. Daher ist auch für den Winkel von $38,94^\circ$ mit der damit verbundenen fcc-Struktur ein Prisma wie im Fall (4) erforderlich. Dieser Winkel ist jedoch zunächst mit Hilfe des Prismas mit abgeschnittener und polierter Spitze durch die Verwendung spezieller Justierkeile eingestellt worden. Zum Vergleich wurde eine unbeleuchtete Testzelle mit der Mischung aus TMPTA (50%), E7 (49%) und Irgacure 784 (1%) bei Raumtemperatur und normalem Tageslicht für etwa drei Tage aufbewahrt und anschließend unter einem Mikroskop betrachtet. In Abbildung 4.25 ist eine Aufnahme von dieser Probe zu sehen. Es bilden sich unterschiedlich große Flüssigkristalltröpfchen.

Bei der ersten Verwendung von jeweils einem der Prismen war es erforderlich, von Neuem die Justage des Verlaufs der vier Strahlen, wie im Unterabschnitt 3.1.2.1 auf Seite 35 beschrieben, durchzuführen.

4.2.2.1 Geschliffener Retroreflektor, $54,73^\circ$

Ziel war es zu prüfen, ob bei einem Winkel zwischen zentralem Strahl und jedem Seitenstrahl, der nicht den beiden Winkeln $70,53^\circ$ und $38,94^\circ$ mit bestimmter Symmetrie entspricht, eine Struktur entstehen kann. Mit dem an der Spitze geschliffenen Retroreflektor aus Abbildung 3.4 kann auf einem direkten Einstrahlweg durch das Prisma ein Einfallwinkel der Seitenstrahlen von $54,73^\circ$ erzielt werden. Bei diesem Winkel ergibt sich eine rhomboedrische Gesamtstruktur (trigonale) ohne sc- oder fcc-Translationssymmetrie. Bei dieser trigonalen Gitterstruktur erhält man mit Hilfe geeigneter Wellenvektoren aus der Bedingung $2\pi n/\lambda_0 = \pi/a |\vec{k}|$ für einen Einfallwinkel von $54,73^\circ$ die

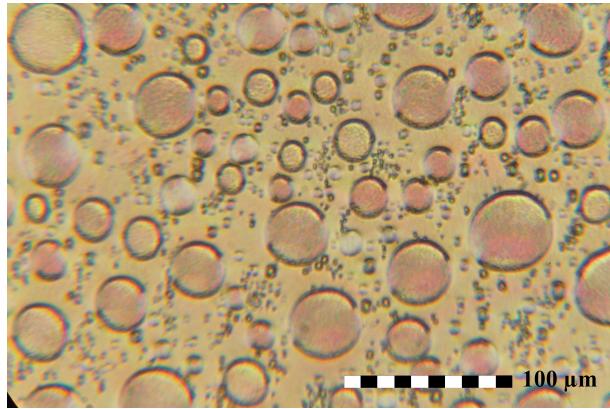


Abbildung 4.25:

Mikroskopische Aufnahme der PDLC-Mischung aus TMPTA (50%) und E7 (49%) mit verschiedenen großen Flüssigkristalltröpfchen.

Gitterkonstante $a = \sqrt{3}\lambda_0/n$. In diesem Fall beträgt die Gitterkonstante $0,6\mu\text{m}$. Zur Justage wurden kleine Spiegel an den Seitenflächen des Retroreflektors angebracht, um die Strahlen so zu justieren, dass sie senkrecht auf die jeweilige Fläche treffen. Die Intensitäten betrugen 10 mW/cm^2 , $1,16\text{ mW/cm}^2$, $4,39\text{ mW/cm}^2$ und $4,4\text{ mW/cm}^2$ und entsprachen dem Verhältnis $1 : 0,11 : 0,44 : 0,44$. Die beleuchteten PDLC-Mischungen bestanden entweder zu 50% aus TMPTA, 1% aus Irgacure 784 und 49% aus E7 oder im Wesentlichen zu 47% aus DPHPA, 21% aus NVP, 1,2% aus NPG, 1,3% aus Bengalrosa und 29,5% aus E7 mit einigen Variationen der Gewichtsanteile. Die Belichtungszeit betrug jeweils dreißig Sekunden.

In Abbildung 4.26 ist eine mikroskopische Aufnahme in Transmission von der Mischung 50 (siehe Tabelle 4.1) mit der Zusammensetzung 29,4% E7, 47,3% DPHPA, 20,8% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB zu sehen. Das untere Bild stellt eine Nachbearbeitung der oberen Originalaufnahme dar. Es wurde mit dem Programm „Picture It“ bezüglich seiner Licht- und Schattenwerte optimiert und nachgebessert, um die Strukturen im kleineren Detail sichtbar zu machen. Bestrahlt wurde diese Probe durch den geschliffenen Retroreflektor mit dem Winkel von $54,73^\circ$.

Erkennbar sind zwei diagonal verlaufende Strukturrichtungen, die auf die Existenz eines dreidimensionalen Gitters hindeuten. Die Richtung des dritten Gittervektors geht aus der Bildebene heraus beziehungsweise in sie hinein. Das lässt sich daraus schließen, dass im Bild recht kurze vertikale Linien die Tiefe kennzeichnen. Die Abstände der Gitterebenen sind recht klein und liegen unter $0,5\mu\text{m}$. Mit der Software „Scion Image“

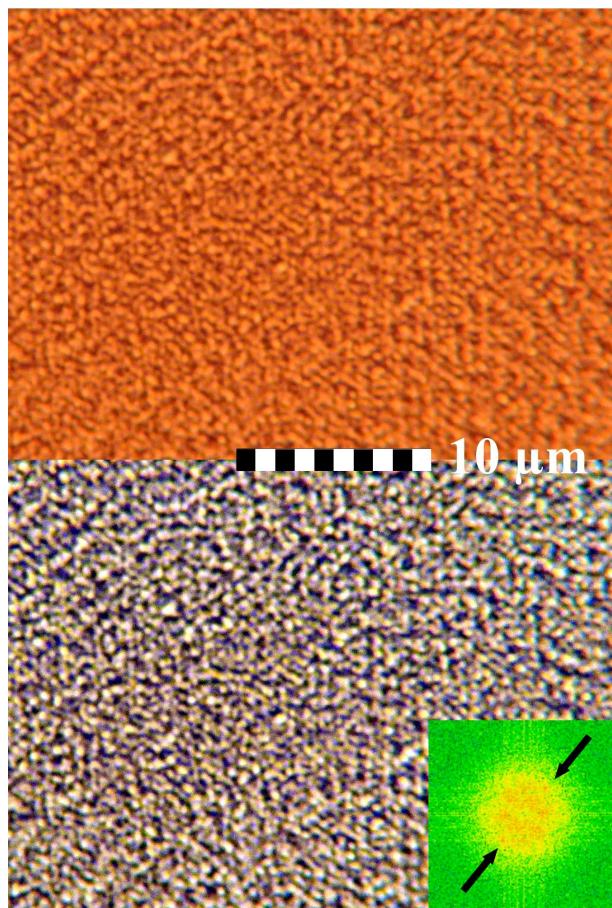


Abbildung 4.26:

Ober: Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der PDLC-Mischung aus 29,4% E7, 47,3% DPHPA, 20,8% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB (Mischung 50 Tabelle 4.1) nachdem sie unter einem Einfallswinkel von $54,73^\circ$ bestrahlt worden ist. Unten: Mit der Software „Picture It“ nachbearbeitete Aufnahme von oben zwecks besserer Detailansicht mit einem eingefügten und durch die Fouriertransformation erstellten Bild.

wurde das Bild mit Hilfe der schnellen Fouriertransformation (FFT) umgerechnet (siehe Abbildung 4.26). Die darin enthaltenen Pfeile markieren zwei schwach zu sehende Beugungsspots, deren Verbindungsline für die Richtung der Normalen einer Gitternetz-ebene steht.

Nach der Bestrahlung durch den gleichen geschliffenen Retroreflektor wurde die Mischung 48 (Tabelle 4.1) mit den PDLC-Komponenten aus 21% E7, 66,3% DPHPA, 10,3% NVP, 1,2% NPG und 1,2% RB mikroskopisch betrachtet (Abbildung 4.27). Der Anteil von DPHPA wurde sehr stark auf Kosten vom NVP und des Flüssigkristalls erhöht. Auch hier wurde das obere Bild mit „Picture It“ nachbearbeitet und die Fou-

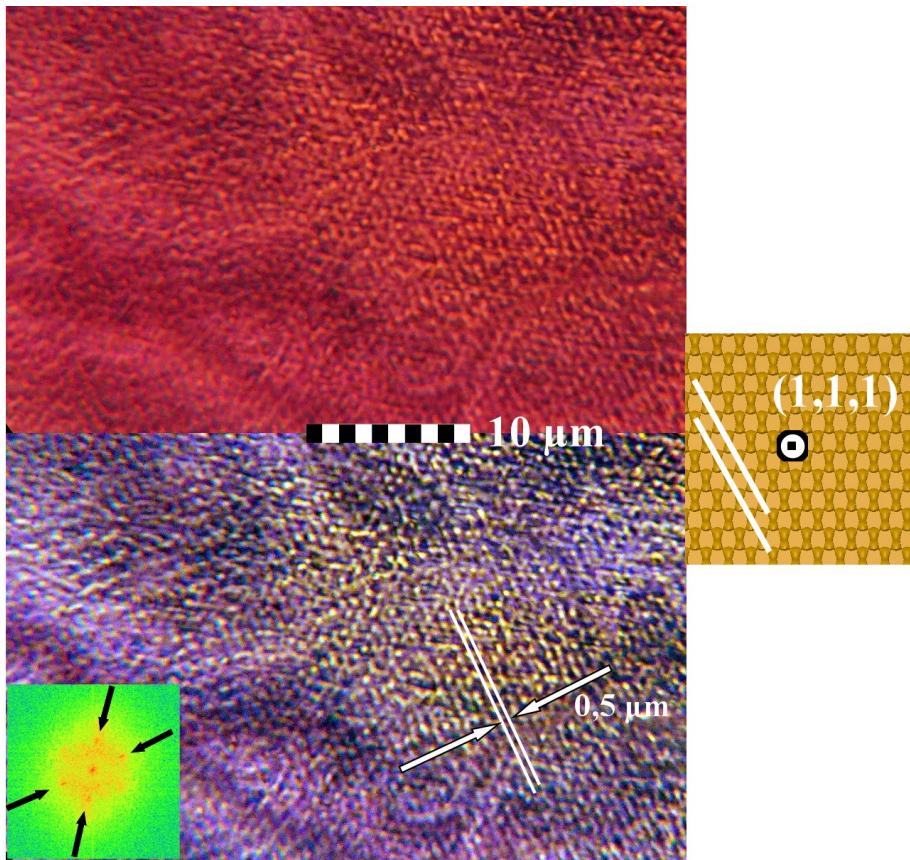


Abbildung 4.27:

Oben: Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der PDLC-Mischung aus 21% E7, 66,3% DPHPA, 10,3% NVP, 1,2% NPG und 1,2% RB(Mischung 48 Tabelle 4.1) nachdem sie unter einem Einfallswinkel von $54,73^\circ$ bestrahlt worden ist. Unten: Mit der Software „Picture It“ nachbearbeitete Aufnahme von oben zwecks besserer Detailansicht. Die Pfeile in dem kleinen fouriertransformierten Bild unten links markieren zwei gegenüberliegende Beugungsspots. Rechts: Mit PovRay entsprechend berechnete Gitterstruktur aus der Blickrichtung der (111) Ebenennormale.

riertransformation angewendet, um die Strukturlinien besser erkennen zu können und den Netzebenenabstand zu bestimmen. Man sieht vor allem im rechten Teilbereich der Abbildung Streifen, die parallel verlaufen und sich durch das ganze Bild ziehen. Der Abstand liegt auch hier unter $0,5\mu\text{m}$. Der zu erwartende Abstand für die Netzebenen ($\bar{1}10$) beträgt $d_{\bar{1}10} = a \cos(\alpha) = 0,6\mu\text{m} \cos(31,3^\circ) = 0,51\mu\text{m}$. Im rechten Bild ist die mit PovRay berechnete Gitterstruktur für den Einfallswinkel $54,73^\circ$ aus der Blickrichtung der (111) Ebenennormale dargestellt.

Mit demselben Prisma bei gleichem Winkel von $54,73^\circ$ wurde ein PDLC-System aus 49% E7, 50% TMPTA und 1% Irgacure 784 bestrahlt. Die Abbildung 4.28 zeigt das mi-

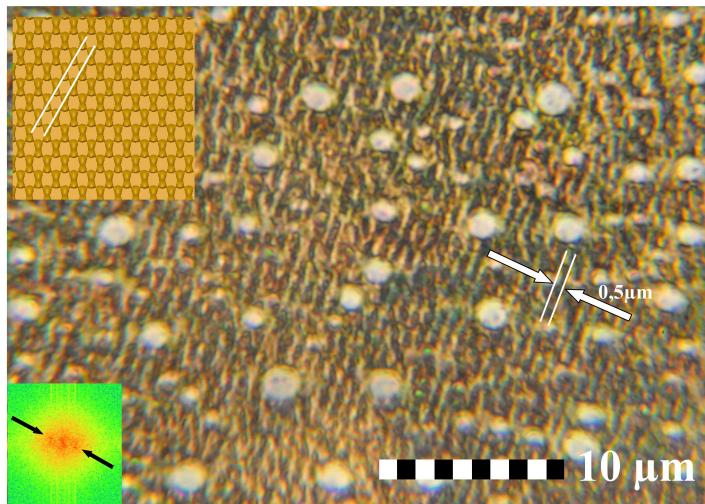


Abbildung 4.28:

Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der PDLC-Mischung aus 49% E7, 50% TMPTA und 1% Irgacure 784 nachdem sie unter einem Einfallswinkel von 54,73° bestrahlt worden ist.

kroskopische Bild einer solchen Probe. Zu erkennen im Hintergrund sind gerade und parallel verlaufende Linien, die einen Abstand unter $0,5\mu\text{m}$ aufweisen. Dies entspricht ebenfalls dem Abstand von $0,42\mu\text{m}$ der Netzebenen der berechneten Gitterstruktur (oben links in der Abbildung 4.28). Ganz deutlich zu sehen sind aber auch bis zu einige Mikrometer große Flüssigkristalltropfen.

4.2.2.2 Geschliffener Retroreflektor, 39°

Bei dem selbst geschliffenen Retroreflektor wurden zusätzlich drei speziell angefertigte Keile aus Aluminium (siehe Abbildung 3.4 rechts) auf die Seitenflächen angebracht. Auf den Keilen sind kleine Spiegel befestigt, um die Strahlen so zu justieren, dass sie senkrecht auf die jeweilige Spiegelfläche treffen. Lässt man nach dem Justieren die Keile weg und bestrahlt die Probe durch dieses Prisma, so bildet sich nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz ein Einfallswinkel von $38,94^\circ$ in der PDLC-Substanz. Die dabei entstandene Struktur mit fcc-Translationssymmetrie hat eine Gitterkonstante von $a = 3\sqrt{3} \cdot \lambda_0 / (2n) = 0,9\mu\text{m}$. Auf diese Weise wurde das System aus 49% E7, 50% TMPTA und 1% Irgacure 784 beleuchtet. Die Abbildung 4.29 zeigt strukturierte Linienverläufe des TMPTA-Systems mit einem Abstand von $0,25\mu\text{m}$. Dies entspricht dem Abstand von

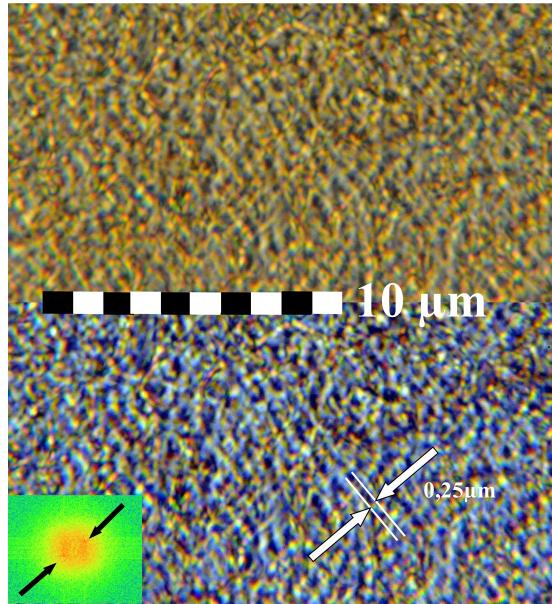


Abbildung 4.29:

Oben: Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der PDLC-Mischung aus 49% E7, 50% TMPTA und 1% Irgacure 784 nachdem sie unter einem Einfallswinkel von $38,94^\circ$ bestrahlt worden ist. Unten: Mit der Software „Picture It“ nachbearbeitete Aufnahme von oben zwecks besserer Detailansicht.

$0,2\mu\text{m}$ der Netzebenen ($\bar{4}22$).

Auch DPHPA-Systeme wurden unter dem Winkel von $38,94^\circ$ nach Justierung der Strahlen mit Hilfe der Keile bestrahlt. In Abbildung 4.30 sind mikroskopische Aufnahmen von zwei PDLC-Proben zu sehen: a) 21% E7, 66,3% DPHPA, 10,3% NVP, 1,2% NPG und 1,2% RB (Mischung 48 Tabelle 4.1) und b,c) 31,1% E7, 56,6% DPHPA, 9,7% NVP, 1,2% NPG und 1,4% RB (Mischung 49 Tabelle 4.1). In Abb. 4.30 a) sieht man parallele Gitterstriche. Die Netzebenen ($\bar{4}22$) haben einen Abstand von $0,3\mu\text{m}$. Im Mikroskop war es möglich auf unterschiedliche Ebenen zu fokussieren, daher sind in Abb. b) nicht nur parallele Linien, sondern auch tiefer liegende Schichten zu erkennen, die ein periodisches Verhalten in der Richtung senkrecht zur Bildebene zeigen. Im rechten oberen Teilbild von Abb. c) ist eine zweidimensionale Gitterstruktur bemerkbar. Links unten in diesem Bild deutet sich die Gitterrichtung der dritten Dimension an. Man bekommt den Eindruck, dass eine tiefer liegende Gitterschicht zwar leicht versetzt ist, jedoch insgesamt genau wie die obere verläuft. Die in Abb. b) und c) zugrundeliegende PDLC-Mischung hat etwa 10% mehr E7 auf Kosten des DPHPA, wenn man sie

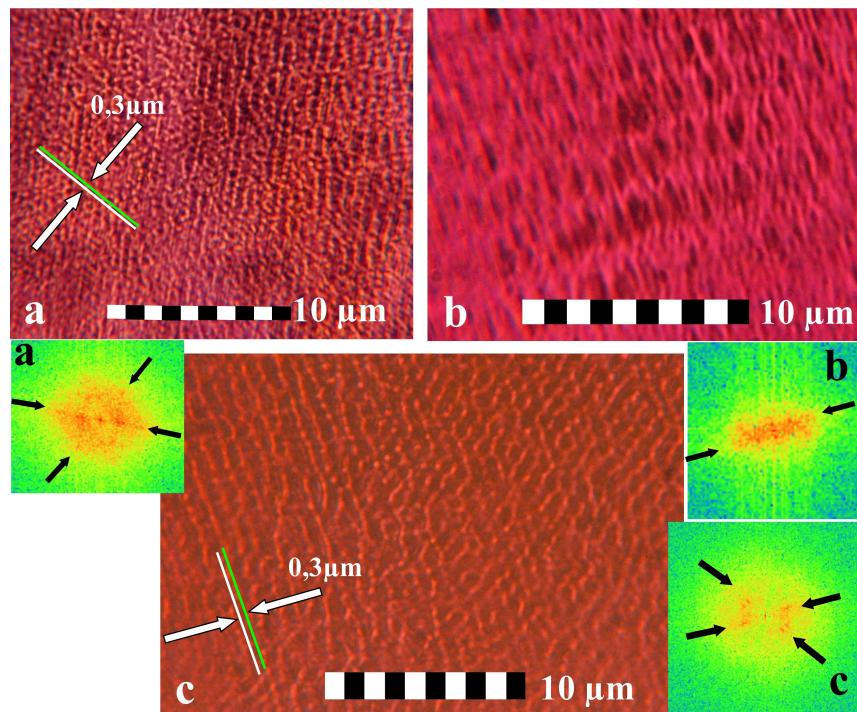


Abbildung 4.30:

Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der PDLC-Mischung a) aus 21% E7, 66,3% DPH-PA, 10,3% NVP, 1,2% NPG und 1,2% RB (Mischung 48 Tabelle 4.1), b) und c) aus 31,1% E7, 56,6% DPHPA, 9,7% NVP, 1,2% NPG und 1,4% RB (Mischung 49 Tabelle 4.1). Für beide Mischungen wurde derselbe Einfallswinkel von $38,94^\circ$ verwendet. Die kleineren Bilder stellen die entsprechenden Fouriertransformationen dar.

mit der Probe von Abb. a) vergleicht. In Abb. b) und c) wurde die gleiche Mischung verwendet, allerdings erfolgte die Bestrahlung in Abb. b) nur zehn Sekunden. Die Fouriertransformation in Abb. a) und c) zeigt jeweils vier Beugungspunkte und damit zwei Gitterrichtungen. In Abb. b) ist durch die Fouriertransformation nur eine Gitterrichtung erkennbar. Vermutlich war hier die Belichtungsdauer für eine eindeutige Ausbildung der zweiten Gitterrichtung zu kurz.

4.2.2.3 Prisma A für eine einfache kubische (sc) Struktur ($70,5^\circ$)

Durch das speziell angefertigte Prisma A aus Abbildung 3.5 kann ein Einfallswinkel von $70,5^\circ$ für die Seitenstrahlen erreicht werden. In diesem Fall wird eine einfache kubische Struktur (engl. simple cubic, sc) mit einer Gitterkonstante von $a = \sqrt{3}\lambda/(2n) =$

$0,3\mu\text{m}$ erwartet (Tab.2.2). Auch hier wird die Justage, wie oben beschrieben, mit Hilfe von kleinen Spiegeln durchgeführt. Die Intensitäten betragen $I_1 = 10 \text{ mW/cm}^2$, $I_2 = 1,13 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 4,45 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 4,41 \text{ mW/cm}^2$ und entsprachen dem Verhältnis 1 : 0,11 : 0,44 : 0,44. Für dreißig Sekunden wurde die PDLC-Mischung aus 29,5% E7, 47% DPHPA, 21% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB (Mischung 50 Tabelle 4.1) mit Hilfe der Umbrella-Anordnung bestrahlt. Die mikroskopischen Bilder in Transmission dieser Proben sind in den Abbildungen 4.31 und 4.32 zu sehen. Die rechten Bilder darin sind wieder nachbearbeitet.

Bei der Bestrahlung der Probe aus Abbildung 4.31 wurde der jeweilige Polarisations-

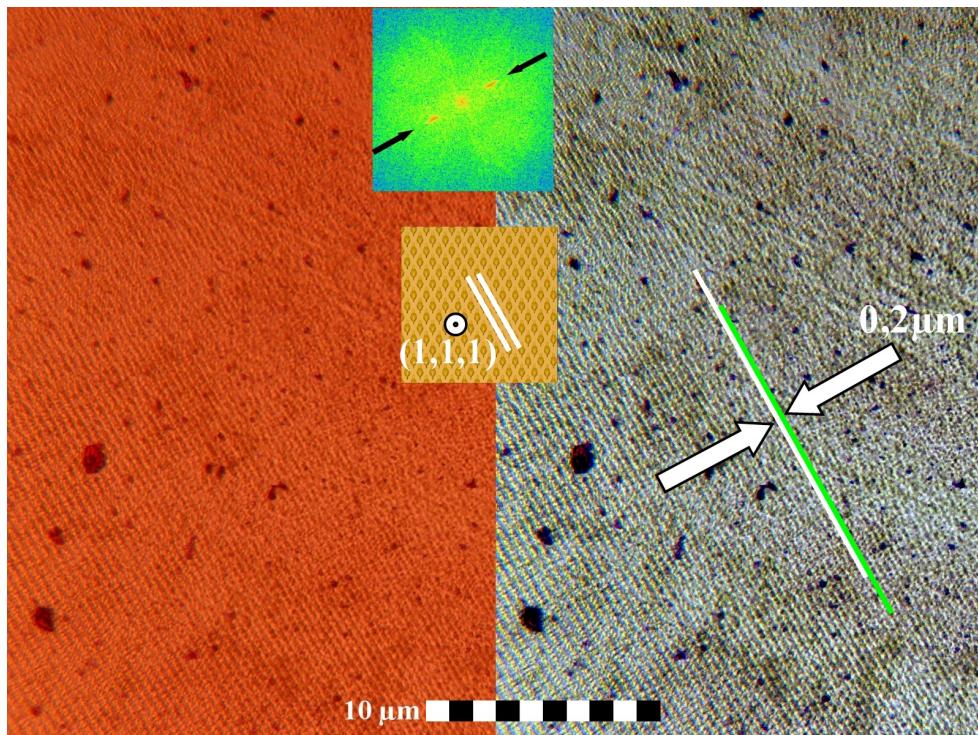


Abbildung 4.31:

Links: Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der PDLC-Mischung aus 29,5% E7, 47% DPHPA, 21% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB (Mischung 50 Tabelle 4.1) nachdem sie unter einem Einfallsinkel von $70,5^\circ$ und den Polarisationswinkeln $\alpha_i=0^\circ$ bestrahlt worden ist. Rechts: Mit der Software „Picture It“ nachbearbeitete Aufnahme von links zwecks besserer Detailansicht.

winkel α aller vier Strahlen (siehe Unterkapitel 3.1.3) so eingestellt, dass der elektrische Feldvektor in der jeweiligen Einfallsebene lag ($\alpha = 0$, siehe Abbildung 3.9). Es sind lineare Strukturen mit einer kleinen Gitterkonstanten von $0,2\mu\text{m}$ zu sehen. Dies entspricht dem Abstand der $(\bar{1}10)$ -Netzebenen. Außerdem sind schwarze Stellen er-

kennbar, die die Struktur in relativ kleinen Bereichen unterbrechen.

Die gleiche Substanzmischung wurde unter den gleichen Einfallswinkeln der Wellen-

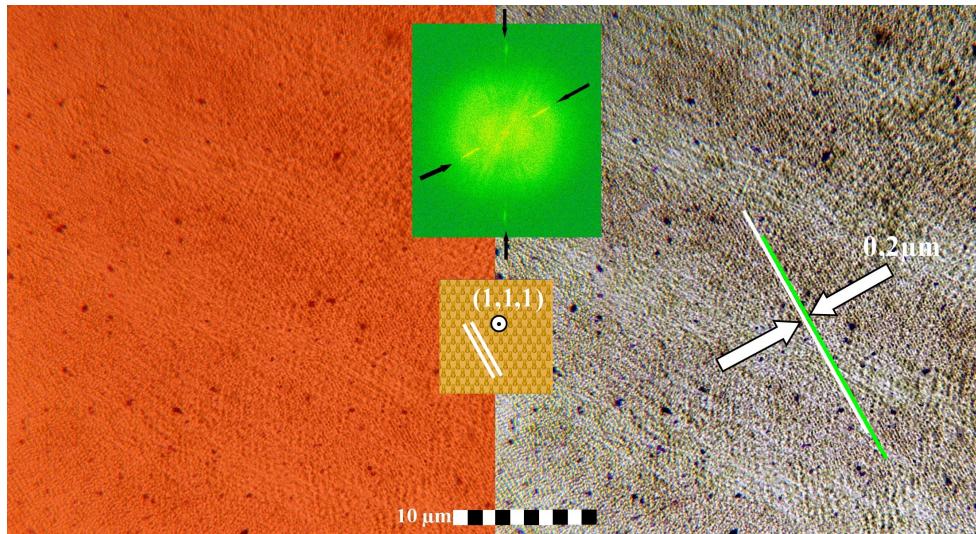


Abbildung 4.32:

Mikroskopaufnahme von der gleichen Mischung wie in Abb. 4.31 jedoch mit den Polarisationswinkeln $\alpha_i=76^\circ$ und $\alpha_{2,3,4}=52^\circ$.

vektoren \vec{k}_i so bestrahlt, dass der jeweilige Polarisationswinkel der drei Seitenstrahlen 52° (siehe Tabelle 3.2) betrug. Der Winkel des zentralen Strahls hatte einen Wert von 76° , er wurde somit so justiert, dass die Schwingungsrichtung des E-Feldes entsprechend der Vorgaben aus Tabelle 3.2 für eine sc-Symmetrie eingestellt wurden. In Abbildung 4.32 ist die so erstellte Probe zu sehen. Lineare Strukturen sind erkennbar. Aber auch hier treten vereinzelt schwarze Stellen auf. Die Einstellung der sc-Symmetrie entsprechenden Polarisationswinkel führte dazu, dass experimentell eine zweite Gitterperiodizität durch die Fouriertransformation erkennbar ist (Abb. 4.32). Etwa in der Mitte der Abbildung ist das berechnete Bild der Schnittebene der theoretisch zu erwartenden Gitterstruktur dargestellt.

4.2.2.4 Prisma B für eine kubisch flächenzentrierte (fcc) Struktur ($38,9^\circ$)

Um bei der Interferenz von vier Laserstrahlen die oben beschriebene Geometrie für die fcc-Translationssymmetrie (siehe Tabelle 3.2) und damit einen Einfallswinkel von $38,9^\circ$ zwischen den Seitenstrahlen und dem zentralen Strahl zu erreichen, wurde das oben genannte Prisma B (Abbildung 3.6) speziell angefertigt. Verglichen mit dem geschliffenen Retroreflektor hat dieses Prisma den Vorteil, dass man die Justierkeile nicht mehr benötigt und die Laserstrahlen senkrecht auf die Seitenflächen einfallen können. Dadurch wird nicht nur der Justageprozess vereinfacht, es sollen vor allem beim Übergang von Luft in das Prisma störende Brechungs-, Streu- und Reflexionsverluste verminder werden. Die Intensitäten betrugen $I_1 = 10,36 \text{ mW/cm}^2$, $I_2 = 1,17 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 4,38 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 4,4 \text{ mW/cm}^2$ und entsprachen wie oben dem Verhältnis $1 : 0,11 : 0,44 : 0,44$, das Voraussetzung für ein kubisch flächenzentriertes (engl. face-centered cubic, fcc) Gitter ist (Tab. 2.2). Die Gitterkonstante a hat den Wert $0,9\mu\text{m}$. Der Polarisationswinkel der drei Seitenstrahlen betrug 23° und die Schwingungsebene des elektrischen Feldvektors des zentralen Strahles schloss einen Winkel von 29° mit der Einfallsebene ein (siehe Abbildung 3.9).

Es wurde eine Mischung aus 49% E7, 50% TMPTA und 1% Irgacure 784 für dreißig Sekunden bestrahlt. In Abbildung 4.33 ist oben eine mikroskopische Aufnahme und unten deren Nachbearbeitung zu sehen. Man kann die diagonal verlaufenden Gitterlinien erkennen, die stellenweise parallel im Abstand von $0,7\mu\text{m}$ zueinander verlaufen. Ein Blick auf Abbildung 4.29 zeigt eine ähnliche Struktur, die unter vergleichsweisen Bedingungen jedoch mit dem geschliffenen Retroreflektor erstellt worden ist.

Mit den gleichen Intensitäten $I_1 = 10,36 \text{ mW/cm}^2$, $I_2 = 1,17 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 4,38 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 4,4 \text{ mW/cm}^2$ und den Polarisationszuständen $\alpha_1 = 29^\circ$ und $\alpha_{2,3,4} = 23^\circ$ wurde die Mischung aus 29,5% E7, 47% DPHPA, 21% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB (Mischung 50 Tabelle 4.1) für dreißig Sekunden bestrahlt. Die Abbildung 4.34 zeigt solch eine Probe. Es hat sich eine wabenförmige Struktur gebildet, die sich über das ganze Bild zieht. Das Gitter, das sich in zwei Raumrichtungen periodisch fortsetzt, ist eindeutig zu erkennen und wird mit Hilfe der Fouriertransformation bestätigt. Diese beiden Richtungen liegen in der Bildebene. So wurde der Fokus des Lichtmikroskops in der Bildtiefe verschoben. Es entstand die Aufnahme in Abbildung 4.35, in der die tiefere Gitterschicht hervortritt und mit der oberen Strukturschicht zusammen sichtbar wird.

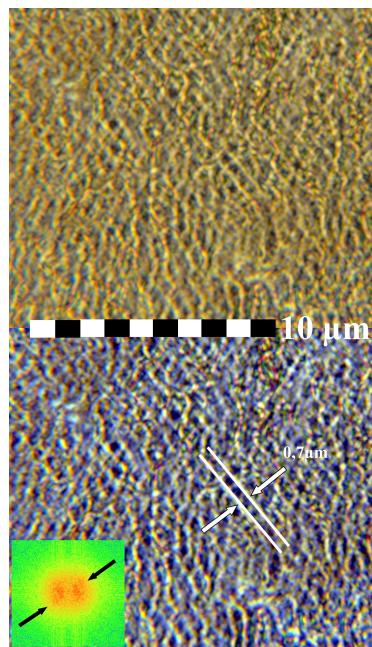


Abbildung 4.33:

Oben: Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der Probe aus 49% E7, 50% TMPTA und 1% Irgacure 784, nachdem sie unter einem Einfallswinkel von 38,94° bestrahlt wurde. Unten: Mit der Software „Picture It“ nachbearbeitete Aufnahme zwecks besserer Detailansicht.

Durch diese Nebeneinanderdarstellung erscheinen auch die Gitterabstände kleiner als in Abbildung 4.34.

Die gleiche PDLC-Mischung aus DPHPA wurde unter denselben Polarisationszuständen, aber mit den doppelt so großen Intensitäten $I_1 = 20,9 \text{ mW/cm}^2$, $I_2 = 2,3 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 9,2 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 9,2 \text{ mW/cm}^2$ der vier Strahlen dreißig Sekunden lang beleuchtet. Es entstand ebenfalls eine wabenförmige Struktur (siehe Abbildung 4.36) mit paralleler Abfolge der Gitterlinien, die das ganze Bild einnehmen und auch aus der Bildebene hinausgehen. Diese PDLC-Mischung wurde erneut mit den Intensitäten $I_1 = 20,9 \text{ mW/cm}^2$, $I_2 = 2,3 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 9,2 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 9,2 \text{ mW/cm}^2$ der vier Strahlen beleuchtet mit dem einzigen Unterschied, dass der Polarisationszustand des zentralen Strahles geändert wurde, $\alpha_1 = -29^\circ$. Es entstand wiederum eine wabenförmige Gitterstruktur (siehe Abbildung 4.37). In den Abbildungen 4.34-4.37 ist jeweils ein Netzebenenabstand von etwa $0,3 \mu\text{m}$ bestimmt worden. Dies entspricht dem Abstand der Netzebenen ($\bar{4}22$), der nach der theoretischen Berechnung $0,2 \mu\text{m}$ beträgt. In Abbildung 4.37 unten rechts ist ein Querschnitt der berechneten Interferenzstruktur für den

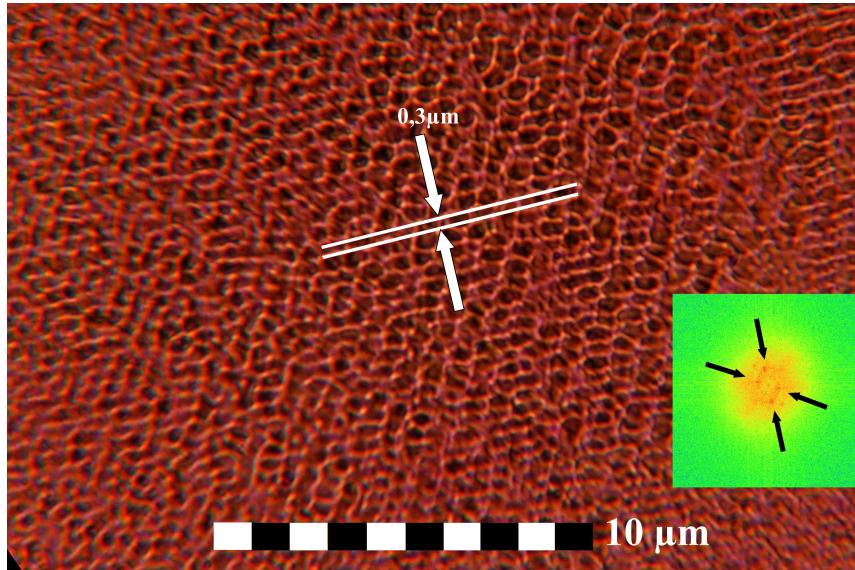


Abbildung 4.34:

Mikroskopische Aufnahme in Transmission von der Mischung aus 29,5% E7, 47% DPHPA, 21% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB (Mischung 50 Tabelle 4.1) nachdem sie unter einem Einfallwinkel von $38,94^\circ$ und den Polarisationswinkeln $\alpha_1=29^\circ$ und $\alpha_{2,3,4}=23^\circ$ bestrahlt worden ist.

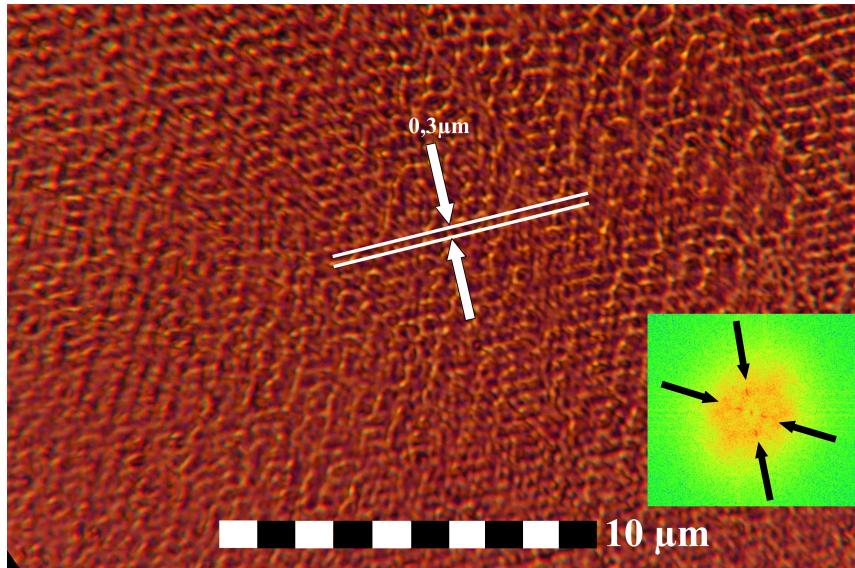


Abbildung 4.35:

Mikroskopaufnahme von der selben Probe (Mischung 50 Tabelle 4.1) und an der gleichen Position wie in Abb. 4.34 jedoch mit einem in der Bildtiefe verschobenen Fokus.

Einfallwinkel $38,94^\circ$ und die Polarisationswinkel $\alpha_1=29^\circ$ und $\alpha_{2,3,4}=23^\circ$ eingefügt. Verglichen mit den Abbildungen 4.34-4.37 fehlt in den experimentellen Aufnahmen eine

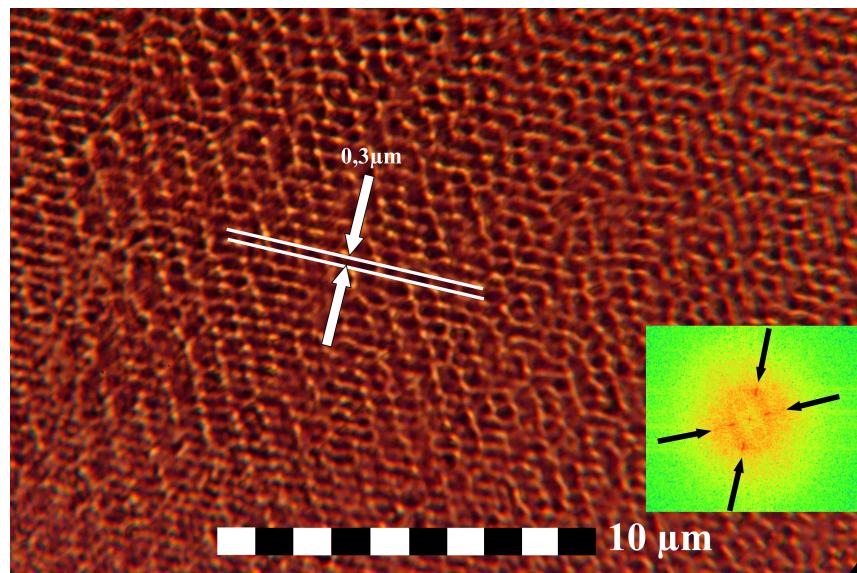


Abbildung 4.36:

Mikroskopische Aufnahme von der gleichen Mischung wie in Abb. 4.35 aber mit jeweils doppelt so großer Intensität bestrahlt.

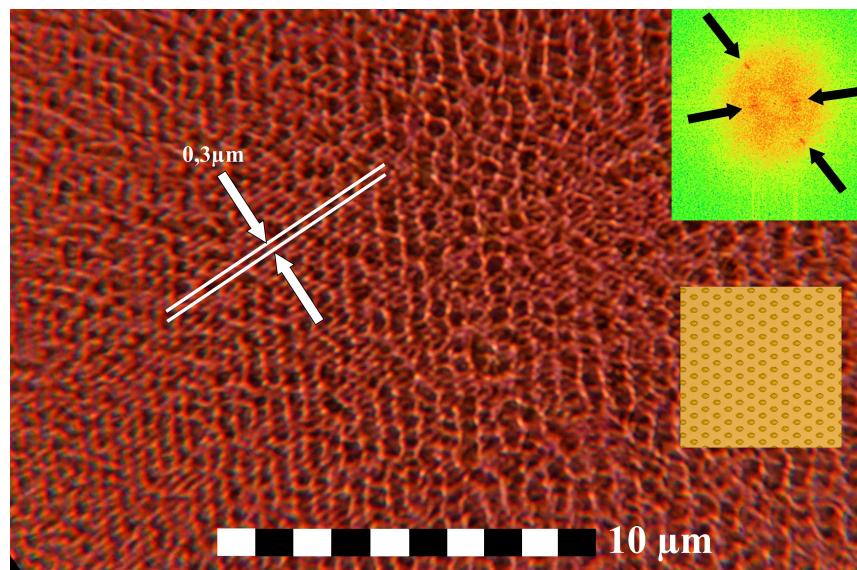


Abbildung 4.37:

Mikroskopische Aufnahme von der Mischung 50, die bis auf den Polarisationswinkel $\alpha_1 = -29^\circ$ unter gleichen Bedingungen wie in Abb. 4.36 erstellt wurde.

dritte Gitterrichtung der durchgeföhrten Fouriertransformation zufolge. Die berechnete Interferenzstruktur spiegelt nur die Gitterstruktur der vier Laserstrahlen wieder. Bei dieser Simulation wird das Reaktions- und Diffusionsverhalten der einzelnen Mischung

nicht berücksichtigt. Hier besteht also die Annahme, dass das Inferenzmuster sich 1:1 im PDLC nach Bestrahlung wiederfindet. Da die Proben der Mischung 50 keine exakte Kongruenz mit der berechneten Interferenzstruktur aufwiesen, wurden Proben anderer Mischungen bestrahlt.

Die PDLC-Mischung aus 21% E7, 66,3% DPHPA, 10,3% NVP, 1,2% NPG und 1,2%

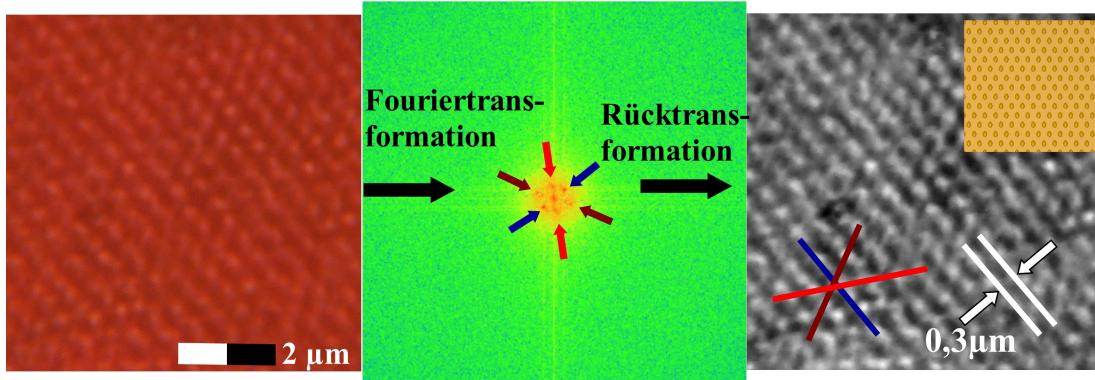


Abbildung 4.38:

Links: Transmissionsmikroskopische Aufnahme einer Probe, die aus der Mischung 21% E7, 66,3% DPHPA, 10,3% NVP, 1,2% NPG und 1,2% RB (Mischung 48 Tabelle 4.1) hergestellt wurde durch Bestrahlung unter einem Einfallswinkel von 38,94° und den Polarisationswinkeln $\alpha_1 = 29^\circ$ und $\alpha_{2,3,4} = 23^\circ$. Mitte: Nach der Fouriertransformation sind sechs regelmäßig um einen zentralen Punkt angeordnete Spots zu sehen. Rechts: Bild, das sich nach Rücktransformation ergibt. Oben rechts: Querschnitt der zu erwartenden, theoretisch berechneten Gitterstruktur.

RB (Mischung 48 Tabelle 4.1) wurde mit den Intensitäten $I_1 = 10,36 \text{ mW/cm}^2$, $I_2 = 1,17 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 4,38 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 4,4 \text{ mW/cm}^2$ der vier Strahlen beleuchtet. Der Polarisationswinkel der drei Seitenstrahlen betrug 23° und der Polarisationswinkel des zentralen Strahles hatte einen Wert von 29° . Anschließend wurde die Probe mit Hilfe eines Mikroskops in Transmission betrachtet. Links in Abbildung 4.38 ist ein vergrößerter Ausschnitt zu sehen. In der Mitte ist das fouriertransformierte Bild zu sehen. Im Zentrum befindet sich ein Punkt, der von sechs weiteren Spots in regelmäßiger Anordnung umgeben wird. Es können drei Verbindungslienien durch jeweils zwei gegenüber liegende Punkte gezogen werden (siehe Pfeile). Jede einzelne dieser Verbindungslienien steht für die Richtung der Normalen einer Gitternetzebene (siehe rücktransformiertes Bild, rechts). Oben rechts ist der Querschnitt der zu erwartenden Gitterstruktur dargestellt. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit der experimentell beobachteten Aufnahme.

4.2.3 Beugungsuntersuchungen

Die Umbrella-Geometrie wurde bezüglich der Intensitäten der Strahlen dadurch verbessert, dass das oben genannte Intensitätsverhältnis 100% : 11% : 44% : 44% (Tab. 3.2) zum Teil schon durch die Strahlteilerwürfel annähernd vorhanden war. So war es nicht zwingend erforderlich, alle vier Neutraldichtefilter dementsprechend jeweils einzeln nachjustieren zu müssen. In diesen Versuchsreihen wurde das Prisma B für einen Einfallswinkel von $38,9^\circ$ verwendet. Die Polarisatoren und $\lambda/2$ -Plättchen wurden gemäß den Polarisationszuständen in Tabelle 3.2 justiert. Die Winkel zwischen den elektrischen Feldvektoren \vec{A}_l und der jeweiligen Einfallsebene betrugen $\alpha_1 = 29^\circ$ und $\alpha_{2,3,4} = 23^\circ$.

Die gefüllten Glastestzellen wurden durch die vier grünen Laserstrahlen mit den oben genannten Parametern jeweils für dreißig Sekunden beleuchtet. Direkt darauf erfolgte eine Überprüfung des eingeschriebenen Gitters, indem die bestrahlte Probenstelle in den Strahlengang des roten Laserstrahls gehalten wurde, um die Beugungsordnungen zu beobachten (Abbildung 4.39). Nach dem Einschreiben zeigten die PDLC-Strukturen zum Teil eine diffuse Streuung, die bei anschließenden Beugungsuntersuchungen störte. Der transmittierte zentrale Strahl war stets heller und ausgeprägter. Er hatte einen größeren Spotdurchmesser als die seitlichen Beugungsordnungen. In Abbildung 4.39 ist das Beugungsmuster an der im linken Bild dargestellten dreidimensionalen Struktur der gleichen Probe der Mischung 48 wie in Abb. 4.38 zu sehen. Im mittleren Bild ist die mit rotem Laserstrahl beleuchtete Testzelle, die an einer kreisförmigen Halterung fixiert ist, erkennbar. Im rechten Bild sieht man auf dem Schirm einen relativ großen Lichtfleck in der Mitte. Dessen kreisförmige Umhüllende wird durch die diffuse Streuung verursacht. Wäre der Schirm das Ziffernblatt einer Uhr, so befänden sich die drei kleineren, äußeren und gebeugten Lichtpunkte zum Beispiel auf der zwölf, auf der vier und auf der acht. Sie haben alle die gleiche Distanz von neun Zentimetern zum Mittelpunkt bei einem Schirmabstand von 3,5 cm. Dies entspricht einem Beugungswinkel von 68° , der wie folgt erklärt werden kann. Besteht man das dreidimensionale, innerhalb der Testzelle eingeschriebene Gitter mit einem senkrecht einfallenden Laserstrahl, so sind drei gebeugte Lichtstrahlen zu erwarten, die genau in die Richtung gehen, die

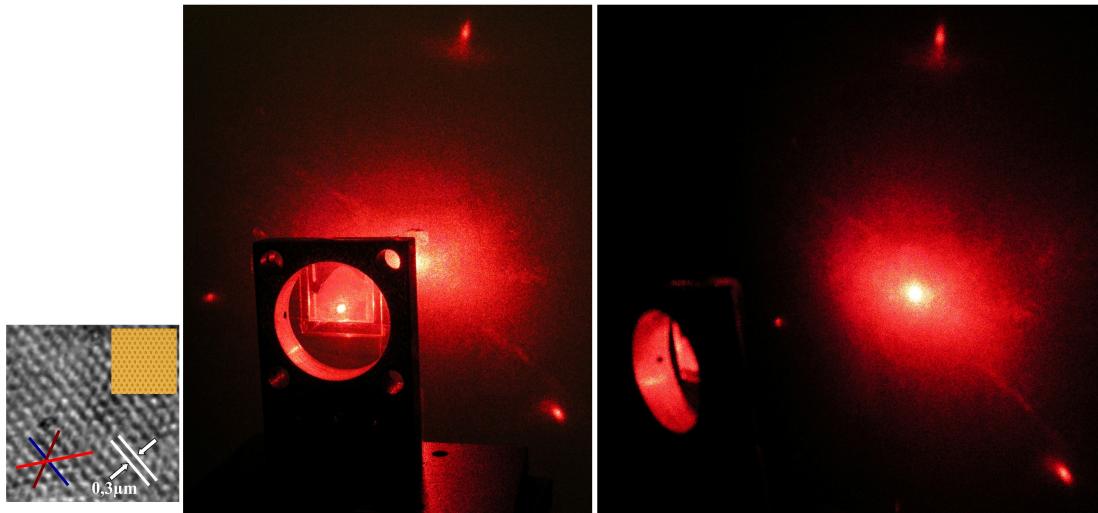


Abbildung 4.39:

Beugungsmuster an der links dargestellten dreidimensionalen Struktur der gleichen Probe wie in Abb. 4.38 aus zwei verschiedenen Perspektiven aufgenommen. Im mittleren Bild ist die mit rotem Laserstrahl beleuchtete Testzelle innerhalb der kreisförmigen Halterung zu sehen. Im rechten Bild kann man auf dem Schirm einen sehr hellen Lichtfleck mit größerem Umfang und drei kleinere Lichtpunkte erkennen.

die Schreibstrahlen zur Erzeugung der Interferenzstruktur einnahmen. So würde der Beugungswinkel beim Gitter mit der fcc-Translationssymmetrie innerhalb der Testzelle dem Einfallswinkel von $38,9^\circ$ entsprechen. Nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz erhält man dann einen Beugungswinkel von $71,5^\circ$ in der Luft.

Bei einigen Proben war einer der drei Spots schwächer oder erst gar nicht vorhanden bzw. kaum sichtbar. Zwei der Spots erschienen beim bloßen Betrachten relativ gleich hell. Beim großen Teil der Proben zeigten Messungen mit Hilfe des optischen Leistungsmessgerätes bei diesen zwei gebeugten Lichtpunkten nahezu gleiche Werte der Intensitäten. Das häufige Fehlen des dritten erwarteten Beugungsmaximums weist darauf hin, dass beim Übergang eines gebeugten Strahls von der Testzelle in Luft der Winkel der Totalreflexion erreicht wird und dadurch ein Beugungsspot auf dem Schirm ausbleibt. Tabelle 4.2 enthält zusätzlich zu den in Tab. 4.1 aufgelisteten Pentaacrylat-Mischungen eine Spalte mit dem jeweiligen Messwertebereich der Beugungseffizienz bezogen auf die Summe der seitlichen Beugungsordnungen für verschiedene Proben aus einer Mischung. Diese Proben wurden unter dem Einfallswinkel von $38,9^\circ$, mit dem Intensitätsverhältnis $1 : 0,11 : 0,44 : 0,44$ und mit den Polarisationswinkeln $\alpha_1 = 29^\circ$ und

Tabelle 4.2:

Verschiedene Mischungen (siehe Tabelle 4.1). Die rechte Spalte zeigt den Bereich der Beugungseffizienzen bezogen auf die Summe der Seitenordnungen dieser Proben an, nachdem sie durch die Umbrella-Geometrie nahezu unter gleichen Bedingungen bestrahlt wurden sind.

Mischung	E7 (%)	DPHPA (%)	NVP (%)	RB (%)	NPG (%)	Beugungs- effizienz (%)
35	42,8	34,9	15,2	1,6	5,5	schwach
43	45	40,1	10,6	1,7	2,6	14-19
47	11,2	75,7	11	1	1,1	keine
48	21	66,3	10,3	1,2	1,2	25-32
49	31,1	56,6	9,7	1,4	1,2	17-31
50	29,4	47,3	20,8	1,3	1,2	12-23
52	44,7	39,4	10	2,6	3,3	keine
61	41,2	34	19,6	1,2	4	keine

$\alpha_{2,3,4} = 23^\circ$ erstellt.

Ausgehend von diesem Intensitätsverhältnis für eine fcc-Struktur aus Tabelle 3.2 wurde der zentrale Lichtstrahl so eingestellt, dass seine Intensität einen Wert von $I_1 = 20,9 \text{ mW/cm}^2$ annahm. Die anderen hatten die Werte $I_2 = 2,3 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 9,2 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 9,2 \text{ mW/cm}^2$. Die Winkel zwischen den elektrischen Feldvektoren \vec{A}_l und der jeweiligen Einfallsebene betrugen $\alpha_1 = 29^\circ$ und $\alpha_{2,3,4} = 23^\circ$. Mit diesen Justiereinstellungen wurde die Probe in Abbildung 4.37 beleuchtet und anschließend das Beugungsverhalten untersucht. Mit steigender Feldstärke steigt die Transmission $I_T(E)/I_0$ kontinuierlich auf etwa 76% (Abbildung 4.40). Die Beugungseffizienz nimmt dagegen kontinuierlich um acht Prozent ab. Das bedeutet, dass die Abnahme der Beugung und die Zunahme der Transmission sich wie erwartet verhalten. Der Einschaltvorgang dauert weniger als 0,5s (siehe Abbildung 4.41). Der Ausschaltvorgang liegt bei einer Sekunde.

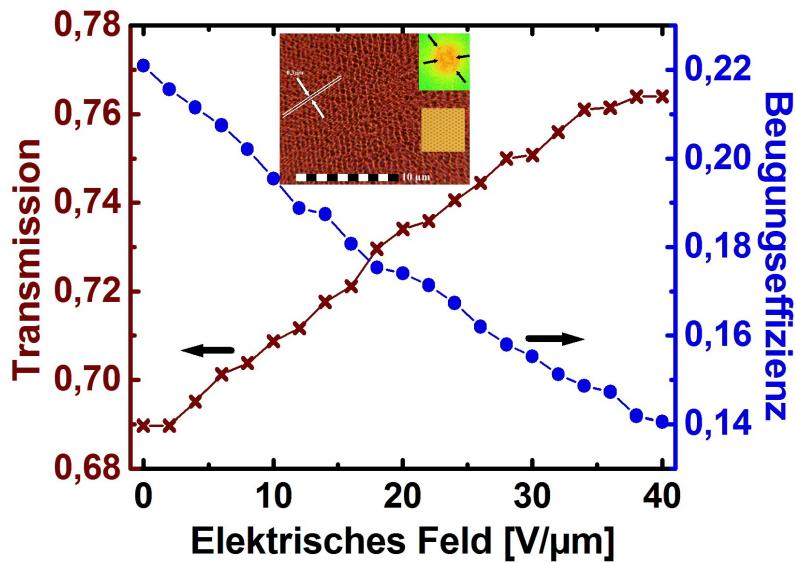


Abbildung 4.40:

Transmissionsanstieg bei gleichzeitiger Abnahme der Beugungseffizienz an derselben Probe wie in Abb. 4.37 (Mischung 50) nach Umbrella-Bestrahlung mit den Einstellungen für eine fcc-Struktur aus Tabelle 3.2.

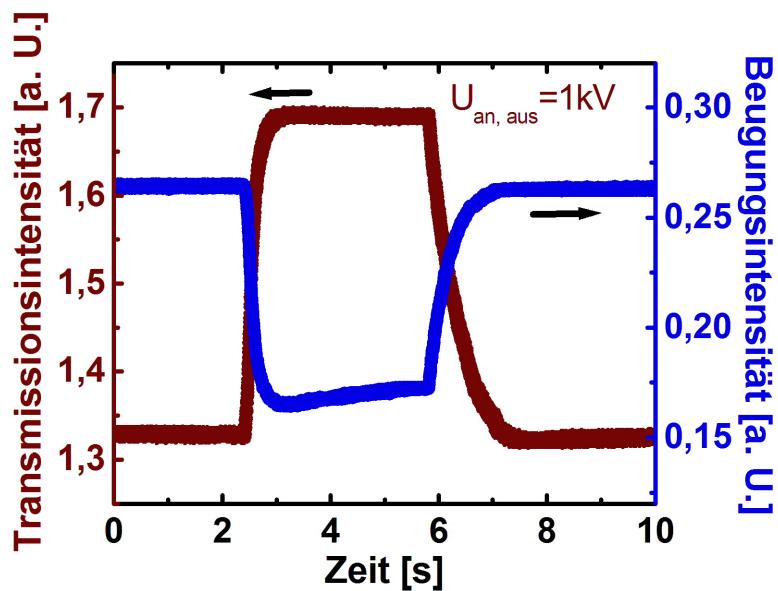


Abbildung 4.41:

Zunahme der Transmission und Abnahme der Beugungsintensität durch Einschalten einer Spannung von 1kV an der Probe aus Abb. 4.37.

Die Probe aus Abb. 4.38 wurde mit den Intensitäten $I_1 = 10,36 \text{ mW/cm}^2$, $I_2 = 1,17 \text{ mW/cm}^2$, $I_3 = 4,38 \text{ mW/cm}^2$ und $I_4 = 4,4 \text{ mW/cm}^2$ der vier Strahlen beleuchtet (S. 88). Die Intensitäten wurden, verglichen mit den Bestrahlungsintensitäten für die Probe aus Abb. 4.37 damit jeweils halbiert. Das Intensitätsverhältnis blieb jedoch nahezu gleich. Das anschließend untersuchte feldabhängige Beugungsverhalten dieser Probe zeigt ebenfalls wie die Probe in Abb. 4.40 einen Transmissionsanstieg sowie eine Abnahme der Beugungseffizienz (4.42). Bei Anlegen einer Spannung von 1kV dauert auch hier der Einschaltvorgang weniger als 0,5s und der Ausschaltvorgang liegt bei etwa 1s (Abb. 4.43).

Folglich gilt für diese beiden Proben, dass die jeweils unterschiedlichen Intensitätswerte

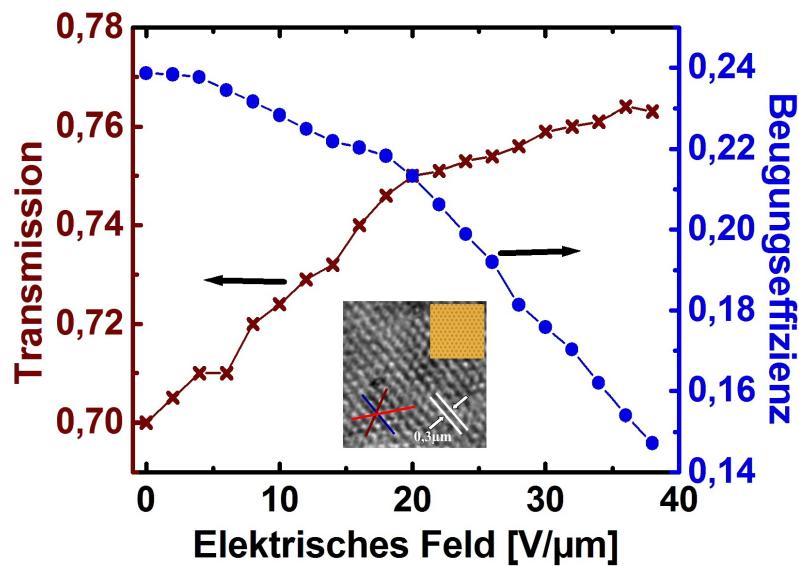


Abbildung 4.42:

Gleiches Beugungsverhalten wie in Abb. 4.40 jedoch an der Probe aus Abb. 4.38 (Mischung 48), die mit den halben Intensitätswerten hergestellt wurde.

te bei gleichem Intensitätsverhältnis 1 : 0,11 : 0,44 : 0,44 keinen wesentlichen Einfluss auf das Beugungsverhalten ausüben. Um experimentell zu untersuchen, ob auch andere Intensitätsverhältnisse zum gleichen Beugungsverhalten führen können, wurden im anschließenden Unterabschnitt 4.2.3.1 die Verhältnisse variiert.

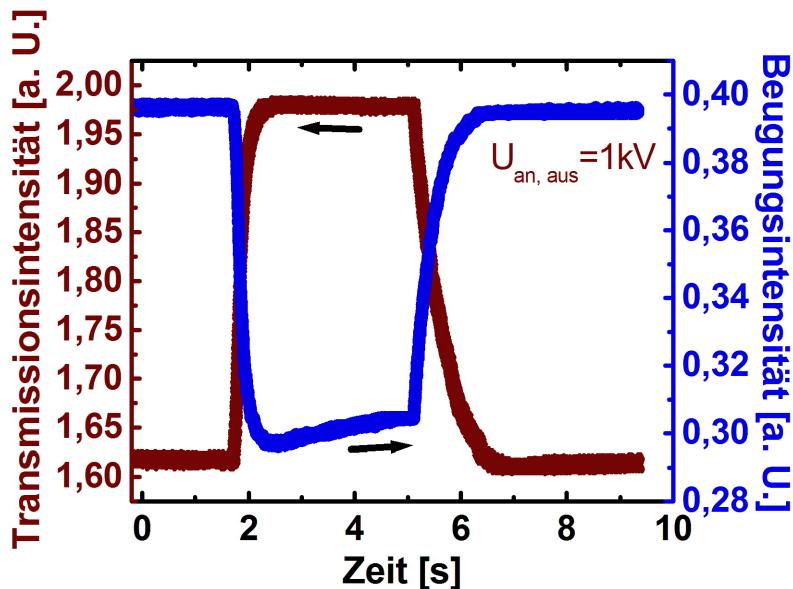


Abbildung 4.43:

Unter den gleichen eingestellten optischen Herstellungsparametern für eine fcc-Struktur aus Tabelle 3.2 zeigt die Probe aus Abb. 4.38 durch Anlegen einer Spannung von 1kV das gleiche Verhalten wie die Probe in Abb. 4.41.

4.2.3.1 Einfluss der Intensitätsvariation

Es wurden Versuchsreihen zu vier verschiedenen Intensitätsverhältnissen durchgeführt. Die anderen Parameter wie der Einfallsinkel und die Polarisationszustände wurden wie oben genannt beibehalten. Die hier zugrundeliegende Fragestellung war, ob trotz Variation der Intensitäten eine dreidimensionale Struktur beibehalten werden kann und ob ein ähnliches Beugungsverhalten wie in den Abbildungen 4.40 - 4.43 auftritt. In Tabelle 3.2 liegt ein festes Verhältnis für die vier Intensitäten einer fcc-Struktur vor. Verdoppelt man (A) nur die Intensität des zentralen Strahls, so bleiben die Fourieramplituden a_{1j} (Gl. (2.8) S. 13) trotzdem gleich und es ist die gleiche Struktur zu erwarten. Sind die Intensitäten der Seitenstrahlen untereinander zwar gleich, aber kleiner (B), gleich (C) oder größer (D) als die Intensität des zentralen Strahles, so sind die Fourieramplituden a_{12} und a_{13} ungleich und die Voraussetzung für eine rhomboedrische Gesamtstruktur in Gl. (2.8) ist nicht mehr gültig. Beim ersten eingestellten Intensitätsverhältnis A (siehe Tabelle 4.3) wurde die Intensität des zentralen Strahls erhöht, die Intensität eines Seitenstrahles auf elf Prozent und die Intensität der beiden anderen Strahlen auf je-

weils vierundvierzig Prozent eingestellt. Die Intensitäten der Seitenstrahlen hatten die gleichen, für eine fcc-Symmetrie erforderlichen Verhältnisse wie in Tabelle 3.2 und nur die zentrale Strahlintensität nahm den doppelten Wert an. Beim zweiten Verhältnis B wurde die Intensität des zentralen Strahles auf über das Dreifache seines vorherigen Wertes erhöht, so dass die Intensitäten der drei Mantelstrahlen jeweils ein Drittel des zentralen Strahls betragen. Im dritten Fall C haben alle vier Strahlen nahezu die gleiche Intensität. Zum Schluss wurden ausgehend vom Verhältnis in A die Intensitäten der Seitenstrahlen auf das anderthalbfache angehoben (siehe Verhältnis D in Tabelle 4.3).

Die Proben der Mischungen bestehend aus 29,5% E7, 47% DPHPA, 21% NVP, 1,2%

Tabelle 4.3:

Auflistung von den vier eingestellten Intensitätsverhältnissen A bis D mit den jeweiligen Werten für die justierten Strahlintensitäten der Umbrella-Geometrie.

	Intensitätsverhältnis	$I_1 \left(\frac{mW}{cm^2} \right)$	$I_2 \left(\frac{mW}{cm^2} \right)$	$I_3 \left(\frac{mW}{cm^2} \right)$	$I_4 \left(\frac{mW}{cm^2} \right)$
A	2 : 0,11 : 0,44 : 0,44	41,4	2,3	8,1	8,7
B	1 : $\frac{1}{3}$: $\frac{1}{3}$: $\frac{1}{3}$	27,5	8,9	9,1	9,2
C	1 : 1 : 1 : 1	8,7	8,9	9,1	9,2
D	1 : 1,5 : 1,5 : 1,5	5,6	8,9	9,1	9,2

NPG, 1,3% RB (Mischung 50 Tabelle 4.1) oder aus 31,1% E7, 56,6% DPHPA, 9,7% NVP, 1,2% NPG, 1,4% RB (Mischung 49) wurden für dreißig Sekunden mit Hilfe der Umbrella-Anordnung bestrahlt. Dazu wurde das Prisma B mit dem Einfallswinkel von $38,9^\circ$ verwendet. Die Polarisationszustände wurden gemäß der fcc-Struktur in Tabelle 3.2 eingestellt. Die Intensitäten wurden gemäß den vier Fällen A-D (Tab. 4.3) eingestellt. Nach erfolgter Belichtung mit dem grünen Laserlicht, wurde das Beugungsverhalten mit Hilfe des roten Lasers betrachtet (siehe Abbildung 4.39). Ein seitlicher Beugungsspot wurde gewählt und an dessen Position ein Detektor (PDA36A-EC, Thorlabs) angebracht, um die Beugungseffizienz in Abhängigkeit von der Amplitude eines angelegten elektrischen Feldes zu messen. Die Beugungseffizienz ist in diesem Fall definiert als das Verhältnis aus der Summe der Lichtintensitäten I_i der seitlichen Beugungsspots und der Intensität I_0 des einfallenden Lichtstrahls vor der Probe, $\eta = I_1/I_0$. Teilt man

die Transmissionsintensität bei angelegtem Feld $I_T(E)$ durch die Lichtintensität vor der Probe I_0 , so erhält man den Transmissionsgrad $I_T(E)/I_0$.

Beim Fall A zeigte die Mischung 50 nach Einschreiben einer Struktur mit dem Intensitätsverhältnis $I_1 : I_2 : I_3 : I_4 = 2 : 0,11 : 0,44 : 0,44$ eine Zunahme der Transmission bis zwölf Prozent bei Erhöhung des angelegten elektrischen Feldes auf $40 \text{ V}/\mu\text{m}$. Ein reines Beugungsphänomen wurde nicht beobachtet, es zeigte sich nur, dass die diffuse Streuung sich auch mit dem Feld schwach änderte.

Nach Verwendung des Intensitätsverhältnisses B ($I_1 : I_2 : I_3 : I_4 = 1 : \frac{1}{3} : \frac{1}{3} : \frac{1}{3}$) zum

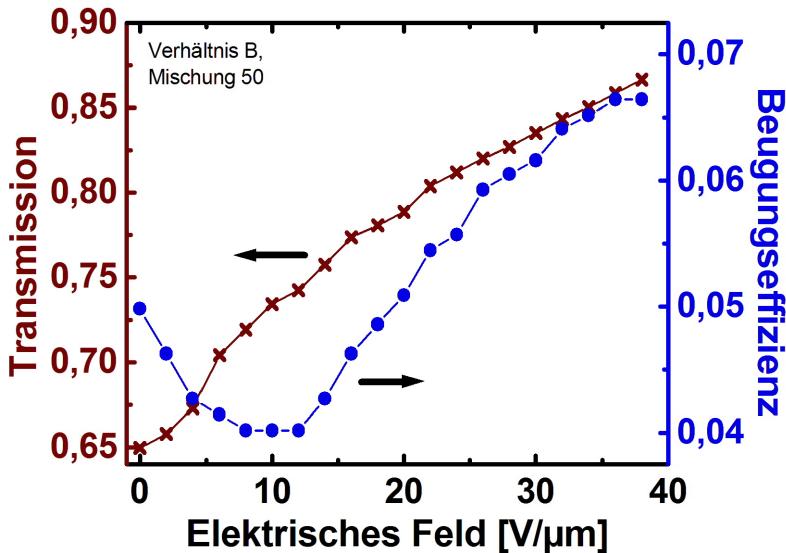


Abbildung 4.44:

Transmission und Beugungseffizienz an einer Probe der Mischung 50 nach Beleuchten mit Hilfe der Regenschirm-Anordnung, bei der die drei seitlichen Strahlintensitäten jeweils ein Drittel der zentralen Strahlintensität betragen (B, Tabelle 4.3).

Einschreiben einer Struktur in eine Probe aus der gleichen Mischung wurde das angelegte Feld schrittweise um $2 \text{ V}/\mu\text{m}$ bis $40 \text{ V}/\mu\text{m}$ erhöht und die Beugungseffizienz sowie die Transmission wurden untersucht. In diesem Fall nimmt die Transmission kontinuierlich zu (Abbildung 4.44). Die Beugungseffizienz ist zunächst bei fünf Prozent und sinkt auf etwa vier Prozent, sobald das angelegte Feld auf $10 \text{ V}/\mu\text{m}$ erhöht wird. Steigert man weiter die Feldstärke, so nimmt die Beugungseffizienz auf über sechs Prozent zu. Die Abnahme der Beugungseffizienz könnte daher kommen, dass die diffuse Streuung zunächst abnimmt. Bei höheren Feldern werden vermutlich statt der ersten Beugungs-

ordnung transmittierte Lichtanteile gemessen, die mit der Transmission ansteigen. Da-her könnte es sich hier um eine scheinbare Beugungseffizienz handeln.

Abbildung 4.45 zeigt die Transmission des durchgehenden Strahles und die gleichzeiti-

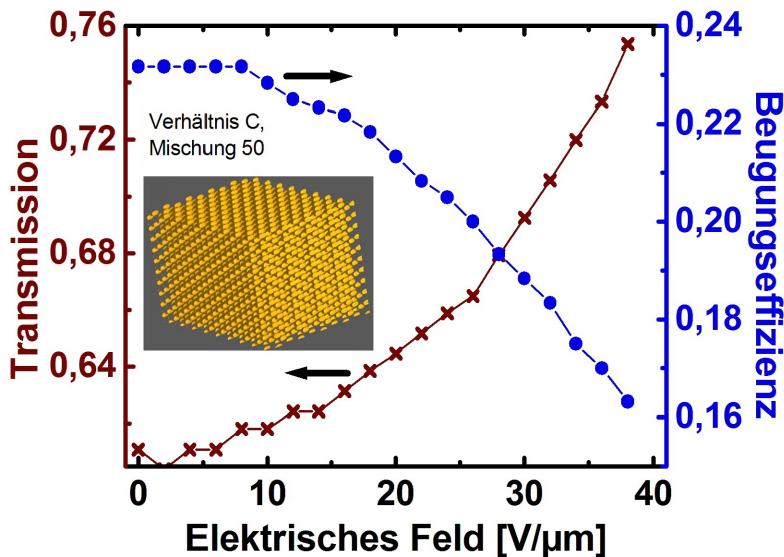


Abbildung 4.45:

Transmissionszunahme bei gleichzeitiger Abnahme der Beugungseffizienz an einer Probe der Mischung 50 nach Umbrella-Bestrahlung mit vier gleichen Strahlintensitäten (C, Tabelle 4.3). Eingefügtes Bild: Berechnetes rhomboedrisches Gitter bei gleichem Verhältnis aus Abb. 4.22 a.

ge Abnahme der Beugungseffizienz eines seitlichen Lichtspots, nachdem eine Struktur in der Mischung 50 mit dem Intensitätsverhältnis $I_1 : I_2 : I_3 : I_4 = 1 : 1 : 1 : 1$ (C, Tabelle 4.3) hergestellt wurde. Das eingefügte Bild zeigt die im Unterabschnitt 4.2.1.2 (Abb. 4.22 a) theoretisch berechnete rhomboedrische Struktur für das Verhältnis C. Das angelegte elektrische Feld wurde jeweils schrittweise um $2 \text{ V}/\mu\text{m}$ bis zur Grenze von $40 \text{ V}/\mu\text{m}$ erhöht. Legt man kein elektrisches Feld an, so beträgt die Beugungseffizienz 23% und bleibt konstant bis $8 \text{ V}/\mu\text{m}$. Bei Erhöhung des Feldes auf $38 \text{ V}/\mu\text{m}$ geht jene auf nahezu 16% runter. Gleichzeitig steigt die Transmissionsintensität auf über 72%. Die Beugungsabnahme bei gleichzeitiger Transmissionszunahme mit steigendem elektrischen Feld entspricht dem erwarteten Beugungsverhalten des in Abb. 4.22 a dargestellten rhomboedrischen Gitters.

Es wurde ein vierter Intensitätsverhältnis eingestellt, bei dem die Intensitäten der Sei-

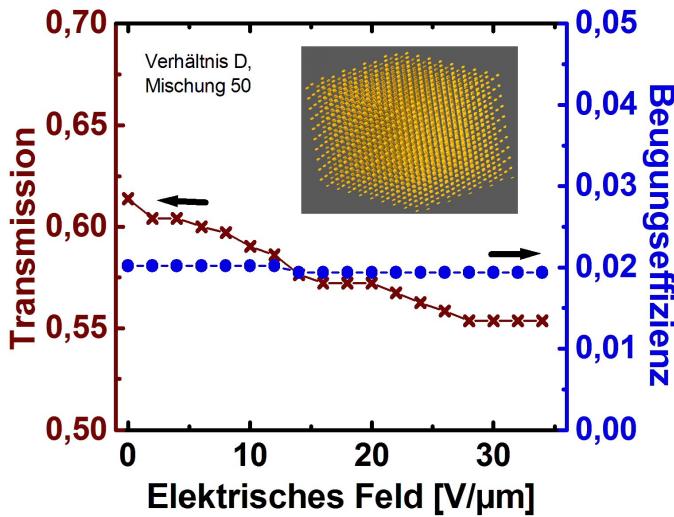


Abbildung 4.46:

Transmissionsabnahme und keine wesentliche Veränderung der Beugungseffizienz an einer Probe der Mischung 50 nach Umbrella-Bestrahlung mit dem anderthalbfachen Wert der Intensitäten der Seitenstrahlen im Vergleich zur zentralen Strahlintensität (D , Tabelle 4.3). Eingefügtes Bild: Interferenzmuster für das Verhältnis D aus Abb. 4.22 d.

tenstrahlen annähernd den anderthalbfachen Wert der zentralen Strahlintensität erreichten (D, Tabelle 4.3). Auch hier wurde beim Einschreiben der Vier-Strahl-Interferenzstruktur die gleiche Mischung 50 verwendet und unter analogen Bedingungen, z. B. bei gleichen Polarisationszuständen hergestellt. Die anschließende feldabhängige Intensitätsuntersuchung ergab eine Abnahme der Transmission auf etwa 55% (Abbildung 4.46). Die Beugungseffizienz liegt bei zwei Prozent. Nicht nur ist die Beugungseffizienz sehr schwach, sondern auch ihre Änderung ist nicht vorhanden bei einer Feldsteigerung. Die scheinbare Beugungseffizienz beruht im Grunde auf einer diffusen Streuung. Die Abnahme der Transmission könnte zusammenfallen mit der Herabsetzung diffuser Streuanteile bei höheren Feldern. Eingefügt in Abb. 4.46 ist das im Unterabschnitt 4.2.1.2 (Abb. 4.22 d) theoretisch berechnete Interferenzmuster für das Verhältnis D . Dieses Interferenzmuster zeigt nicht zusammenhängende Punkte, die eher als Streuzentren gesehen werden können.

Auch andere Mischungen aus Tabelle 4.1 wurden durch die Umbrella-Geometrie mit den vier Laserstrahlen beleuchtet. Es wurden mehrere Versuchsreihen durchgeführt,

bei denen die Intensitätsverhältnisse, wie in Tabelle 4.3 angegeben, zum Einschreiben einer Struktur Verwendung fanden. So zeigten die Mischungen 35, 47, 52 und 61 keine oder kaum wahrnehmbare Beugungsordnungen. Die Mischung 49 mit 31,1% E7, 56,6% DPHPA, 9,7% NVP, 1,2% NPG und 1,4% RB wies allerdings ein interessantes Beugungsintensitätsverhalten auf, das im Folgenden gezeigt werden soll.

Nach Einschreiben einer Struktur mit dem Intensitätsverhältnis $I_1 : I_2 : I_3 : I_4 = 2 : 0,11 : 0,44 : 0,44$ lässt die Probe der Mischung 49 eine starke Transmissionszunahme erkennen. Bei einer am Anfang schwachen Beugungseffizienz steigt diese zunächst auf fast neun Prozent und sinkt wieder ab einer elektrischen Feldstärke von 18 V/ μ m (Abbildung 4.47). Dass die Beugungseffizienz zunächst ansteigt, könnte daran liegen, dass mit steigenden Feldern die diffuse Streuung abnimmt. Erst ab der Feldstärke von 18 V/ μ m sinkt die Intensität der Beugungsordnung.

Hier wurde der zeitliche Verlauf sowohl von der transmittierten als auch von der gebeugten Strahlintensität aufgenommen, während eine Spannung an der Probe von 1,5 kV ein- und ausgeschaltet wurde. Diese Spannung entspricht einem elektrischen Feld von 30 V/ μ m. Diese Intensitäten sind in Abbildung 4.48 gegen die Zeit aufgetragen. Sobald die Spannung anliegt, steigt die transmittierte Intensität innerhalb von einer halben Sekunde auf einen konstanten Wert an. Die gebeugte Intensität macht dagegen zunächst einen kleinen Sprung, um dann in weniger als einer halben Sekunde auf einen konstanten Wert zu fallen. Nach Ausstellen der Spannung braucht der transmittierte Lichtstrahl etwa zwei Sekunden, um auf den ursprünglichen Intensitätswert abzuklingen. An dieser Stelle weist der gebeugte Lichtstrahl einen Sprung auf, bevor er den Intensitätswert vor dem Einschalten der Spannung erreicht. Offenbar sind Zu- und Abnahme der Beugungsintensität auf verschiedene Prozesse mit unterschiedlichen Zeitkonstanten zurückzuführen, die eine diffuse Streuung enthalten.

Nach Einstellung des Intensitätsverhältnisses B ($I_1 : I_2 : I_3 : I_4 = 1 : \frac{1}{3} : \frac{1}{3} : \frac{1}{3}$) zum Einschreiben einer Struktur in die gleiche Mischung wurde auch die Beugungseffizienz dieser Probe untersucht. Legt man ein elektrisches Feld an, so erhöht sich die Transmission auf fast siebzig Prozent und die Beugungseffizienz sinkt um zwei Prozent von elf auf neun Prozent (Abbildung 4.49). Der Vergleich mit Abbildung 4.44 zeigt eine stärkere Transmissionszunahme bei der Mischung 50, die bei dem gleichen Intensitätsverhältnis hergestellt wurde. Hier geht jedoch die Beugungseffizienz zunächst zurück,

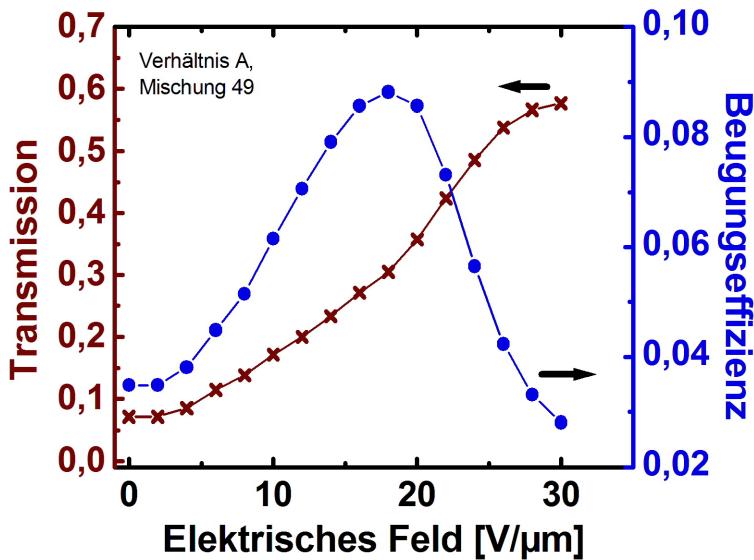


Abbildung 4.47:

Starke Transmissionszunahme bei zunächst gleichzeitiger Zunahme der Beugungseffizienz an einer Probe der Mischung 49 nach Umbrella-Bestrahlung mit dem Intensitätsverhältnis der Seitenstrahlen aus Tabelle 3.2 und einer zweifachen zentralen Strahlintensität (A, Tabelle 4.3). Bei einer Feldstärke von etwa 18 V/ μ m sinkt die Beugungseffizienz.

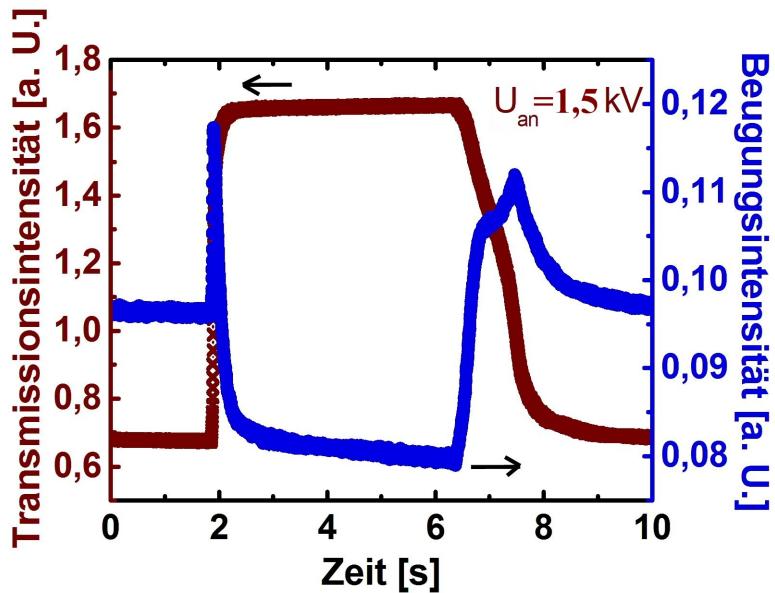


Abbildung 4.48:

Zunahme der Transmission und Abnahme der Beugungsintensität durch Einschalten einer Spannung von 1,5kV an einer Probe der Mischung 49 nach Umbrella-Bestrahlung mit dem Intensitätsverhältnis der Seitenstrahlen aus Tabelle 3.2 und einer zweifachen zentralen Strahlintensität (A, Tabelle 4.3).

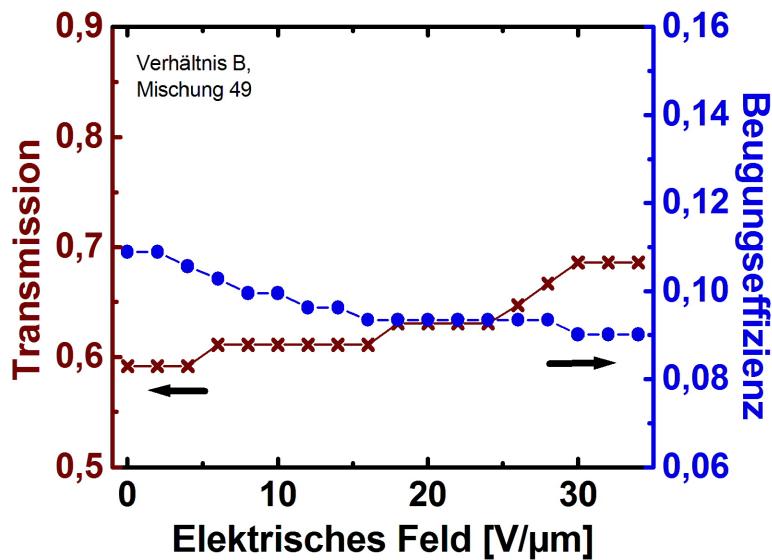


Abbildung 4.49:

Transmissionszunahme bei gleichzeitiger Abnahme der Beugungseffizienz an einer Probe aus Mischung 49 nach Umbrella-Bestrahlung mit dem Intensitätsverhältnis $I_1 : I_2 : I_3 : I_4 = 1 : \frac{1}{3} : \frac{1}{3} : \frac{1}{3}$ (B, Tabelle 4.3).

um dann um zwei Prozent anzusteigen.

Bestrahlt man diese Probe mit dem Intensitätsverhältnis C, bei dem alle Strahlintensitäten nahezu den gleichen Wert aufweisen, so nimmt die Transmission auf bis zu 55% sehr stark zu und die Beugungseffizienz sinkt um etwa 6%, wenn man das angelegte elektrische Feld von 0 auf 40 V/μm (siehe Abbildung 4.50). Dieses Verhalten ist auch bei der Probe aus Mischung 50 in Abbildung 4.45 zu beobachten.

Nach einer Umbrella-Bestrahlung einer Probe der Mischung 49 mit dem anderthalbfachen Wert der Intensitäten der Seitenstrahlen im Vergleich zur zentralen Strahlintensität (D, Tabelle 4.3) lässt sich eine starke Transmissionssteigerung beobachten (Abbildung 4.51), sobald ein elektrisches Feld angelegt wird. Die Beugungseffizienz ist jedoch recht schwach und liegt bei etwa 2,8%. Sie erhöht sich zunächst um 0,7%. Ab einer Feldstärke von 18 V/μm sinkt die Beugungseffizienz bis auf etwa 2,3%. Der gleichzeitige Anstieg der Beugung und der Transmission bedeutet, dass bei der Beugung die diffuse Streuung hinzukommt. So ist deren Abnahme mit einer Überlagerung der Zunahme der Beugungseffizienz verbunden. Erst ab einer Feldstärke von 18 V/μm tritt die diffuse Streuung in den Hintergrund.

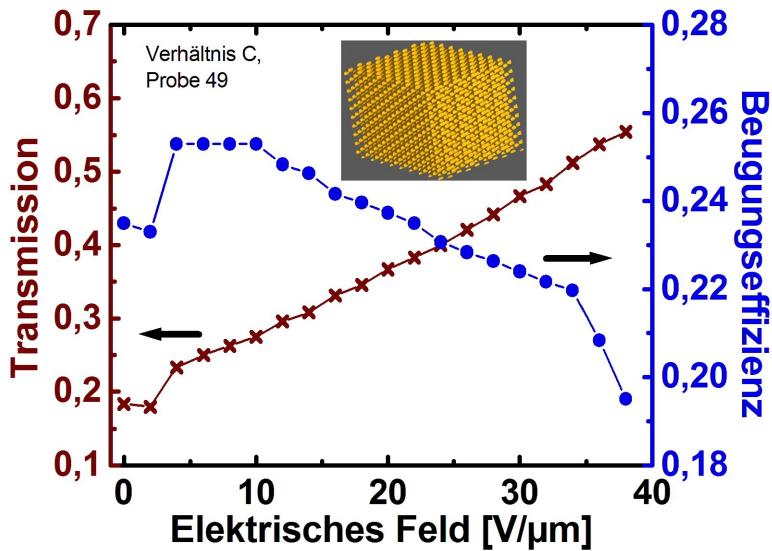


Abbildung 4.50:

Gleiche feldabhängige Untersuchung mit demselben Intensitätsverhältnis C wie in Abb. 4.45 jedoch für eine Probe aus Mischung 49.

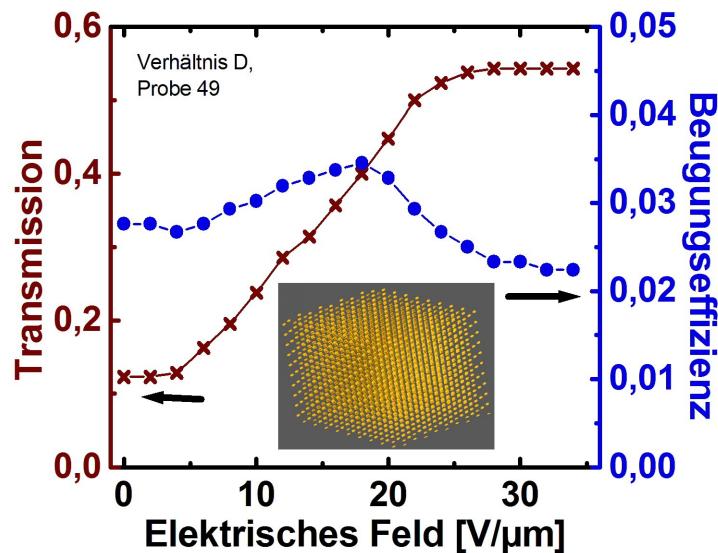


Abbildung 4.51:

Feldabhängige Beugungsuntersuchung mit demselben Intensitätsverhältnis D wie in Abb. 4.46 jedoch für eine Probe aus Mischung 49. Eingefügtes Bild: Interferenzmuster für das Verhältnis D aus Abb. 4.22 d.

Die Proben, die mit Hilfe der Intensitätsverhältnisse A, B und D erstellt wurden, zeigten größtenteils zwei gebeugte Strahlen mit jeweils unterschiedlichem Abstand zum direkt transmittierten Strahl auf dem Schirm. Folglich liegen verschiedene Beugungswinkel vor, die auf unterschiedliche Periodizitäten schließen lassen. Ein Beugungsverhalten mit drei gebeugten Strahlen wie in Abbildung 4.39 und mit gleichen Abständen zur Richtung des transmittierten Strahles wurde nicht beobachtet. Durch das Anbringen der Halbkugel (Unterabschnitt 4.2.3.2) an die Proben konnte ebenfalls kein dritter Beugungspunkt festgestellt werden. Vermutlich liegt eine Struktur mit keiner oder nur einer einzähnigen Drehsymmetrie vor. Außerdem tritt die diffuse Streuung sehr stark in den Vordergrund. Dagegen zeigte die mit Hilfe des Intensitätsverhältnisses C erstellte Probe aus der Mischung 49 ein Beugungsverhalten wie in 4.39 mit gleichen Abständen zum Mittelpunkt. Die feldabhängigen Messungen beim Verhältnis C zeigten, dass das Beugungsverhalten dem einer rhomboedrischen Struktur wie in den Abbildungen 4.40 - 4.42 ähnlich ist.

4.2.3.2 Beugungseffizienz unter Verwendung einer Halbkugel

Die PDLC-Mischung aus 29,4% E7, 47,3% DPHPA, 20,8% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB (Mischung 50 aus Tab. 4.2) wurde mit den gleichen Parametereinstellungen des Umbrella-Aufbaus für eine sc-Struktur beleuchtet, die in Tabelle 3.2 aufgelistet sind. Ein seitlich gebeugter Strahl wurde zur Beugungseffizienzmessung ausgewählt. Doch wurde diesmal an der Austrittsstelle des transmittierten Laserstrahls und damit direkt hinter der Testzelle eine Halbkugel platziert. Um einen Sprung des Brechungsindex zwischen der Testzelle und der Halbkugel zu vermeiden, wurde dort Immersionsöl (Unterkap. 3.1.2 S. 32) hineingetropft. Die Verwendung des Öls schließt eine Zwischenschicht aus Luft aus. Durch die Halbkugel erreicht man, dass das innerhalb der Testzelle propagierende Licht ungehindert austritt. Eine mögliche Totalreflexion an der Grenzfläche zwischen Glas und Luft wird vermieden, denn die gebeugten Lichtstrahlen fallen auch bei großen Beugungswinkeln immer senkrecht auf die Kugeloberfläche ein. Das Beugungsbild auf einem Schirm sah dem in Abbildung 4.39 sehr ähnlich. Das dritte Beugungsmaximum trat auf und war deutlicher zu sehen. Der Beugungswinkel lag bei $70,5^\circ$ und entsprach direkt dem erwarteten Winkel innerhalb der Probe für die sc-Struktur.

Nach dem Anlegen und schrittweisem Erhöhen der elektrischen Spannung wurde die Beugungseffizienz bezogen auf einen gebeugten Seitenstrahl simultan aufgenommen. Die Abbildung 4.52 zeigt mit steigendem elektrischen Feld eine kontinuierliche Zunahme der Transmission $I_T(E)/I_0$ um etwa acht Prozent bei gleichzeitiger Abnahme der Beugungseffizienz. Das Verhalten ist dem in Abbildung 4.40 fast gleich, die Beugungseffizienz erreicht jedoch insgesamt höhere Werte.

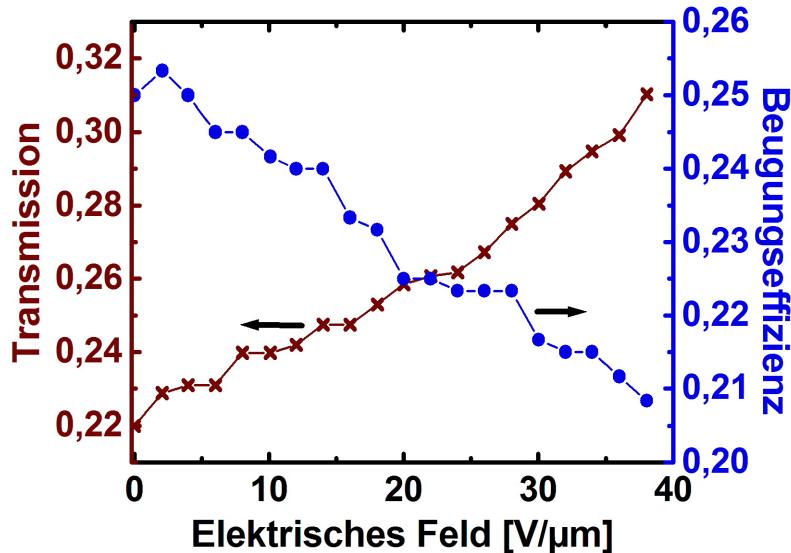


Abbildung 4.52:

Durch die Verwendung der in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen Halbkugel ist ein Transmissionsanstieg bei gleichzeitiger Abnahme der Beugungseffizienz an einer Probe der Mischung 50 nach Bestrahlung mit den Parametern für eine sc-Struktur aus Tabelle 3.2 zu sehen.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Polymer-eingebettete Flüssigkristalle mit einer eindimensionalen Gitterstruktur wurden anhand eines Zwei-Strahlaufbaus holografisch erzeugt. Um die Kinetik der Gitterbildung zu untersuchen, wurde gleichzeitig mit einem roten Laserstrahl die Beugungseffizienz gemessen. Sowohl die chemischen Komponenten als auch die Mischungsverhältnisse wurden variiert. Der Vergleich unterschiedlicher photoreaktiver Ausgangsverbindungen ergab folgende Ergebnisse: Bei der Verwendung einer kommerziellen Thiol-en-Mischung (NOA65, Norland Optical Adhesive) als reaktive Komponente zeigte sich, dass die Beugungseffizienz anstieg, sobald der Anteil an NOA65 erhöht wurde. Dabei wurde jedoch mehr Zeit bis zum Erreichen eines Sättigungswertes benötigt. Die PDLC-Systeme mit dem Triacrylat (TMPTA, Trimethylolpropantriacrylat) hatten Beugungseffizienzen, bei denen sich sogar ein leichter Abfall nach Erreichen eines Maximums anschloss. Die Erweiterung des Strahldurchmessers führte zu einem Anstieg der Beugungseffizienz mit konstantem Sättigungswert. Die Proben mit dem Pentaacrylat (DPHPA, Dipentaerythritol penta-/hexaacrylat) waren nicht löslich in Dichlormethan und nicht so leicht mischbar mit dem nematischen Flüssigkristall (E7, Merck). Daher wurden die Proben in Ethanol gelöst.

Ein eindimensionales Gitter wurde in die Mischung aus 50% des Flüssigkristalls E7, 49% des Monomers TMPTA und 1% des Photoinitiators Irgacure 784 eingeschrieben. Zum Vergleich wurde mit Hilfe der eindimensionalen Diffusionsgleichung des Reaktions-Diffusionsmodells die entsprechende Beugungseffizienz für das Volumen- und für das Raman-Nath-Gitter simuliert. Es wurden die Brechungsindizes von TMPTA sowohl als Monomer als auch als Polymer bestimmt. Es wurden der ordentliche und der außeror-

dentliche Brechungsindex des Flüssigkristalls E7 für eine Wellenlänge von 633nm verwendet. In Zusammenarbeit mit anderen Mitarbeitern der Universität Paderborn wurden zum ersten Mal die Messung der chemischen Reaktionsgeschwindigkeit der Polymerisation von TMPTA und die Bestimmung der Diffusionskoeffizienten an demselben System durchgeführt. Es zeigte sich eine Übereinstimmung der experimentellen mit der simulierten Beugungseffizienz.

Bei einer Interferenz von vier kohärenten Strahlen haben die theoretischen Vorüberlegungen bezüglich der vier Parametersets bestehend aus Phasen, Intensitätsverhältnissen, linearen Polarisationszuständen und Einfallswinkeln gezeigt, dass verschiedene Phasen der Teilstrahlen eine Verschiebung des Interferenzmusters, aber keine Änderung desselben zur Folge haben. Die Intensitätsverhältnisse bestimmen zusammen mit den Zuständen des linear polarisierten Lichts den Kontrast des Interferenzmusters. Variierende lineare Polarisationszustände verändern die Rotationssymmetrie (siehe Abbildung 4.23). Die Größe der Gitterkonstanten wird durch den Einfallswinkel zwischen dem jeweiligen Seitenstrahl und dem zentralen Strahl bestimmt.

Zur experimentellen Realisierung wurde eine Apparatur zur Interferenz von vier Strahlen (Umbrella-Setup) aufgebaut. Zu Beginn der Arbeit wurde ein aus einem Retroreflektor selbst gefertiges Prisma zum Einschreiben der Interferenzstrukturen verwendet. Über entsprechende Keilvorrichtungen und Justierungen ist es möglich, innerhalb eines Toleranzbereichs den Einfallswinkel zu variieren. Zwei bestimmte speziell entworfene und gefertigte Prismen ermöglichen es, zwei bestimmte Einfallswinkel einzustellen, bei denen eine kubisch primitive bzw. eine flächenzentrierte Struktur erwartet wird. Bei der Umbrella-Geometrie wurden folgende Materialsysteme für die Herstellung von Proben benutzt: Pentaacrylat (DPHPA), Urethan-Acrylat-Oligomer (Ebecryl 1290) und Triacrylat (TMPTA). Da die Proben mit dem Thiol-en-System (NOA 65) im eindimensionalen Fall eine relativ lange Zeit bis zum Erreichen eines Sättigungswerts der Beugungseffizienz erforderten, wurde auf deren Verwendung verzichtet. Die Mischungen mit dem Urethan-Acrylat-Oligomer oder mit dem Triacrylat wiesen zwar Beugungsverhalten auf, verglichen mit den Proben aus dem Pentaacrylat waren deren Beugungseffizienzen jedoch geringer. Die Pentaacrylat-Proben wurden in größeren Mengen Ethanol gelöst und mehrere Stunden mit dem Ultraschallbad behandelt, um eine bessere Löslichkeit zu erreichen. Es stellte sich heraus, dass die Einwaage aus 29,5% E7, 47% DPHPA, 21% NVP, 1,2% NPG und 1,3% RB nicht nur relativ hohe Beugungseffizienzen

innerhalb der Pentaacrylat-Mischungen erreichte, sondern auch eindeutig erkennbare und regelmäßige Strukturen unter dem Mikroskop zeigte. Experimentelle Belichtungsreihen mit vier unterschiedlichen Intensitätsverhältnissen zeigten unterschiedliche Beugungsbilder und unterschiedliches Verhalten beim Anlegen eines elektrischen Feldes. Beim Intensitätsverhältnis von $1 : 0,11 : 0,44 : 0,44$ nahm die Transmission bei höheren Feldern zu, gleichzeitig sank die Beugungseffizienz. Dieses Verhalten entsprach dem Beugungsverhalten an einem PDLC-Gitter mit fcc-Struktur. Auch das Intensitätsverhältnis von $1 : 1 : 1 : 1$ zeigte wie erwartet eine Zunahme der Transmission und eine Abnahme der Beugungseffizienz. Die anderen Verhältnisse zeigten diffuse Streuung, die bei unstrukturierten PDLC's vorzufinden ist. Durch die speziell gefertigte Halbkugel konnte eine höhere Beugungseffizienz für eine sc-Struktur beobachtet werden.

Eine interessante Fragestellung, die in anschließenden Arbeiten untersucht werden könnte, wäre die Verwendung von zirkular polarisierten anstatt von linear polarisierten Strahlen. Dazu könnte das Intensitätsverhältnis von $1 : 1 : 1 : 1$ gewählt werden. Die zeitintensiven Justierungen könnten beim Umbrella-Aufbau durch folgende mechanische Erweiterungen und Verbesserungen verkürzt werden. Nützlich wäre eine Fixierung des Prismas und ein automatisiertes Einbringen der Testzellen direkt unter das Prisma. Dies hätte den Vorteil, dass es ausreichen würde, nur einmal die optische Justierung durchzuführen. Mit den eingestellten Strahlparametern würden dann die weiteren Proben bestrahlt. Eine wesentlich komplexere Erweiterung wäre der Einbau von Detektoren unterhalb des Prismas und der Probe. Dazu müßte man die Interferenzebene anheben und zum zentralen grünen Laserstrahl gleichzeitig einen kohärenten roten Laserstrahl auf die PDLC-Mischung einfallen lassen, um anschließend die jeweiligen zeitlichen Entwicklungen der Beugungseffizienzen simultan zum Bestrahlen zu beobachten.

Literaturverzeichnis

- [ATM⁺07] G. Abbate, V. Tkachenko, A. Marino, F. Vita, M. Giocondo, A. Mazzulla, and L. De Stefano. Optical characterization of liquid crystals by combined ellipsometry and half-leaky-guided-mode spectroscopy in the visible-near infrared range. *Journal of Applied Physics*, 101(7):073105, 1–9, 2007.
- [BC00] C. C. Bowley and G. P. Crawford. Diffusion kinetics of formation of holographic polymer-dispersed liquid crystal display materials. *Applied Physics Letters*, 76(16):2235–2237, 2000.
- [BE62] A. Bienenstock and P. P. Ewald. Symmetry of fourier space. *Acta. Cryst.*, 15:1253–1261, 1962.
- [BGLC97] V. Berger, O. Gauthier-Lafaye, and E. Costard. Photonic band gaps and holography. *Journal of Applied Physics*, 82(1):60–64, 1997.
- [BKST96] H. M. J. Boots, J. G. Kloosterboer, C. Serbutoviez, and F. J. Touwslager. Polymerization-induced phase separation. 1. conversion-phase diagrams. *Macromolecules*, 29(24):7683–7689, 1996.
- [BNTS00] T. J. Bunning, N. V. Natarajan, V. P. Tondiglia, and R. L. Sutherland. Holographic polymer-dispersed liquid crystals (h-pdls). *Annual Review of Material Science*, 30:83–115, 2000.
- [Bue49] M. J. Buerger. Crystallographic symmetry in reciprocal space. *Proc. N. A. S.*, 35:198–201, 1949.
- [Cha93] Subrahmanyam Chandrasekhar. *Liquid Crystals*. Cambridge University Press, London, 2 edition, 1993.

- [CLHS97] V. L. Colvin, R. G. Larson, A. L. Harris, and M. L. Schilling. Quantitative model of volume hologram formation in photopolymers. *Journal of Applied Physics*, 81(9):5913–5923, 1997.
- [Coh] Incorporated Laser Group Coherent. *Operator's Manual VerdiTM V-2/V-5 Diode-Pumped Lasers*.
- [CYL05] C. Chang, T. M. Yan, and H. K. Liu. Creation of line defects in holographic photonic crystals by a double-exposure thresholding method. *Applied Optics*, 44(13):2580–2591, 2005.
- [DGG⁺98] D. Demus, J. W. Goodby, G. W. Gray, H. W. Spiess, and V. Vill. *Handbook of Liquid Crystals*, volume 3. Wiley-Vch, Weinheim, 1998.
- [dGP95] P. G. de Gennes and J. Prost. *The Physics of Liquid Crystals*. Oxford University Press, New York, 2nd edition, 1995.
- [Drz95] Paul S. Drzaic. *Liquid Crystal Dispersions*. World Scientific, Singapore, 1995.
- [EQC03a] M. J. Escuti, J. Qi, and G. P. Crawfordand. Tunable face-centered-cubic photonic crystal formed in holographic polymer dispersed liquid crystals. *Optics Letters*, 28(7):522–524, 2003.
- [EQC03b] M. J. Escuti, J. Qi, and G. P. Crawfordand. Two-dimensional tunable photonic crystal formed in a liquid-crystal/polymer composite: Threshold behavior and morphology. *Applied Physics Letters*, 83(7):1331–1333, 2003.
- [Fre07] J. Frejlich, editor. *Photorefractive Materials: Fundamental Concepts, Holographic Recording and Materials Characterization*. John Wiley & Sons: Hoboken, NJ, USA, 2007.
- [Fri22] G. Friedel. Les états mésomorphes de la matière. *Annales de Physique*, 18:273–474, 1922.
- [Gab48] Dennis Gabor. A new microscopic principle. *Nature*, 161(4098):777–778, 1948.

- [Gab49] Dennis Gabor. Microscopy by reconstructed wave-fronts. *Proceedings of the Royal Society of London*, 197(1051):454–487, 1949.
- [GR01] G. Grynberg and C. Robilliard. Cold atoms in dissipative optical lattices. *Physical Reports*, 335:335–451, 2001.
- [GTVG97] G. Guidoni, C. Triché, P. Verkerk, and G. Grynberg. Quasiperiodic optical lattices. *Physical Review Letters*, 79(18):3363–3366, 1997.
- [Hah83] Theo Hahn, editor. *International Tables for Crystallography*, volume A. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 1983.
- [Hec05] Eugen Hecht. *Optik*. Oldenbourg, München, 2005.
- [Hik91] R. A. M. Hikmet. Symmetry of fourier space. *Liquid Crystals*, 9(3):405–4016, 1991.
- [Hoi05] Andreas Hoischen. *Untersuchungen an photo-reaktiven Flüssigkristallsystemen*. PhD thesis, Universität Paderborn, 2005.
- [HZ68] G. H. Heilmeier and L. A. Zanoni. Guest-host interactions in nematic liquid crystals. a new electro-optic effect. *Applied Physics Letters*, 13(3):91–92, 1968.
- [Kip07] B. Kippelen. *Photorefractive Materials and Their Applications 2*, volume 114, chapter 14 Organic Photorefractive Materials and Their Applications, pages 487–534. Springer Series in Optical Sciences, Springer: New York, 2007.
- [Kit98] H.-S. Kitzerow. Dual-frequency addressable gratings based on polymer-dispersed liquid crystals. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, (321):457–472, 1998.
- [Kit99] Charles Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, München, 1999.
- [Kog69] H. Kogelnik. Coupled wave theory for thick hologram gratings. *Bell System Tech. Journal*, 48(9):2909–, 1969.

- [KSJ96] H.-S. Kitzerow, J. Strauß, and S. C. Jain. Polymer-dispersed liquid crystals: Holographic formation of switchable grating. *Proc. SPIE*, (2651):80–91, 1996.
- [Leh89] Otto Lehmann. Über fliessende Krystalle. *Zeitschrift f. Physikalische Chemie*, 4:462–472, 1889.
- [LHH09] S. H. Lin, Y.-N. Hsiao, and K. Y. Hsu. Preparation and characterization of irgacure 784 doped photopolymers for holographic data storage at 532 nm. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, 11(024012):1–9, 2009.
- [Lie88] E. Lietze. *Modern Heliographic Processes: A Manual of Instruction in the Art of Reproducing Drawings, Engravings Manuscripts, etc., by the Action of Light; for the Use of Engineers, Architects, Draughtsmen, Artists, and Scientists*. New York: D. Van Nostrand Publication, reprinted by Cambridge Scholars Publishing (2010), 1888.
- [Lou93] D. J. Lougnot. *Handbook of Liquid Crystals Radiation curing in Polymer science and technology*, volume 3. Elsevier applied science, London, 1993.
- [LS08] Y. J. Liu and X. W. Sun. Holographic polymer-dispersed liquid crystals: Materials, formation, and applications. *Advances in OptoElectronics*, 2008:1–52, 2008.
- [LWB⁺05] J. Li, S.-T. Wu, S. Brugioni, R. Meucci, and S. Faetti. Infrared refractive indices of liquid crystals. *Journal of Applied Physics*, 97(7):073501, 1–5, 2005.
- [LWG⁺05] J. Li, C.-H. Wen, S. Gauza, R. Lu, and S.-T. Wu. Refractive indices of liquid crystals for display applications. *IEEE/OSA Journal of Display Technology*, 1(1):51–61, 2005.
- [Mei06] Daniel C. Meisel. *Herstellung dreidimensionaler Photonischer Kristalle mittels holografischer Lithografie und deren Charakterisierung*. PhD thesis, Universität Karlsruhe (TH), 2006.

- [Mer92] N. D. Mermin. The space groups of icosahedral quasicrystals and cubic, orthorhombic, monoclinic, and triclinic crystals. *Reviews of Modern Physics*, 64(1):1–47, 1992.
- [MKN⁺05] S. Meng, T. Kyu, L. V. Natarajan, V. P. Tondiglia, R. L. Sutherland, and T. J. Bunning. Holographic photopolymerization-induced phase separation in reference to the phase diagram of a mixture of photocurable monomer and nematic liquid crystal. *Macromolecules*, 38(11):4844–4854, 2005.
- [MLR⁺92] J. D. Margerum, A. M. Lackner, E. Ramos, G. W. Smith, N. A. Vaz, J. L. Kohler, and C. R. Allison. Polymer dispersed liquid crystal film devices. *U.S. patent 5,096,282*, 1992.
- [MMB⁺03] Yu. V. Miklyaev, D. C. Meisel, A. Blanco, G. von Freymann, K. Busch, W. Koch, C. Enkrich, M. Deubel, and M. Wegener. Three-dimensional face-centered-cubic photonic crystals templates by laser holography:fabrication, optical characterization and band-structure calculations. *Applied Physics Letters*, 82(8):1284, 2003.
- [MWB04] D. C. Meisel, M. Wegener, and K. Busch. Three-dimensional photonic crystals by holographic lithography using the umbrella configuration: Symmetries and complete photonic band gaps. *Phys. Rev., B*(70):165104, 2004.
- [Nec89] D. C. Neckers. Review rose bengal. *Journal of Photochemistry and Photobiology, A: Chemistry*, 47:1–29, 1989.
- [OLK⁺06] H. Oh, H. Lee, E. Kim, D. D. Do, and N. Kim. Organic holographic materials and applications iv. *Proceedings of SPIE*, 6335, 2006. San Diego, CA, USA.
- [PCG94] K. I. Petsas, A. B. Coates, and G. Grynberg. Crystallography of optical lattices. *Physical Review A*, 50(6):5173–5189, 1994.
- [QLSC04] J. Qi, L. Li, M. De Sacar, and G. P. Crawford. Nonlocal photopolymerization effect in the formation of reflective holographic polymer-dispersed liquid crystals. *Journal of Applied Physics*, 96(5):2443–2450, 2004.

- [RCVS95] U.-S. Rhee, H. J. Caulfield, C. S. Vikram, and J. Shamir. Dynamics of hologram recording in dupont photopolymer. *Applied Optics*, 34(5):846–853, 1995.
- [Rei88] F. Reinitzer. Beiträge zur Kenntniss des Cholesterins. *Monatshefte für Chemie*, 9:421–441, 1888.
- [RN35] C. V. Raman and N. S. N. Nath. The diffraction of light by high frequency sound waves: part i. *Proc. Indian Acad. Sci.*, 2:406–412, 1935.
- [Sch85] G. Schultz. *Farbstofftafeln*. Akademisch Verlagsgesellschaft m. b. H., Leipzig, 1885.
- [SCYK09] S. S. Shim, Y. H. Cho, J. H. Yoon, and B. K. Kim. Effects of silicone monomer on the grating formation of holographic pdlc. *European Polymer Journal*, 45(8):2184–2191, 2009.
- [SGWC03] M. D. Sarkar, N. L. Gill, B. Whitehead, and G. P. Crawford. Effect of monomer functionality on the morphology and performance of the holographic transmission gratings recorded on polymer dispersed liquid crystals. *Annual Review of Material Science*, 36(3):630–638, 2003.
- [Shm93] U. Shmueli, editor. *International Tables for Crystallography*, volume B, chapter Symmetry in reciprocal space. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 1993.
- [SKBT96] C. Serbutoviez, J. G. Kloosterboer, H. M. J. Boots, and F. J. Touwslager. Polymerization-induces phase separation. 2. morphology of polymer-dispersed liquid crystal thin films. *Macromolecules*, 24(10):7690–7698, 1996.
- [SNT93] R. L. Sutherland, L. V. Natarajan, and V. P. Tondiglia. Bragg gratings in an acrylate polymer consisting of periodic polymer-dispersed liquid-crystal planes. *Chemistry of Materials*, 5(10), 1993.
- [STD03] D. N. Sharp, A. J. Turberfield, and R. G. Denning. Holographic photonic crystals with diamond symmetry. *Physical Review B*, 68(205102), 2003.

- [Ste94] H. Stegemeyer. *Liquid Crystals*. Steinkopff, Springer, Darmstadt, 1994.
- [Tan11] Mingxue Tang, 2011. Mitarbeiter der Arbeitsgruppe von Frau Prof. Schmidt, Universität Paderborn.
- [TNS⁺95] V. P. Tondiglia, L. V. Natarajan, R. L. Sutherland, T. J. Bunning, and W. W. Adams. Volume holographic image storage and electro-optical readout in a polymer-dispersed liquid crystal film. *Optics Letters*, 20(11):1325–1327, 1995.
- [TNS⁺02] V. P. Tondiglia, L. V. Natarajan, R. L. Sutherland, A. Tomlin, and T. J. Bunning. Holographic formation of electro-optical polymer-liquid crystal photonic crystals. *Advanced Materials*, 14(3):187–191, 2002.
- [Tur01] A. J. Turberfield. Photonic crystals made by holographic lithography. *MRS Bulletin*, pages 632–636, 2001.
- [Was55] J. Waser. Symmetry relations between structure factors. *Acta. Cryst.*, 8:595, 1955.
- [WNT⁺03] X. Wang, C. Y. Ng, W. Y. Tam, C. T. Chan, and P. Sheng. Large-area two-dimensional mesoscale quasi-crystals. *Advanced Materials*, 15(18):1526–1528, 2003.
- [YCWL03] X. L. Yang, L. Z. Cai, Y. R. Wang, and Q. Liu. Interference of four umbrel-like beams by a diffractive beam splitter for fabrication of two-dimensional square and trigonal lattices. *Optics Letters*, 28(6):453–455, 2003.
- [Yeh93] P. Yeh. *Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics*. Wiley, New York, 1st edition, 1993.
- [ZM94] G. Zhao and P. Mouroulis. Diffusion model of hologram formation in dry photopolymer materials. *Journal of Modern Optics*, 41(10):1929–1939, 1994.

0.1 Prisma A

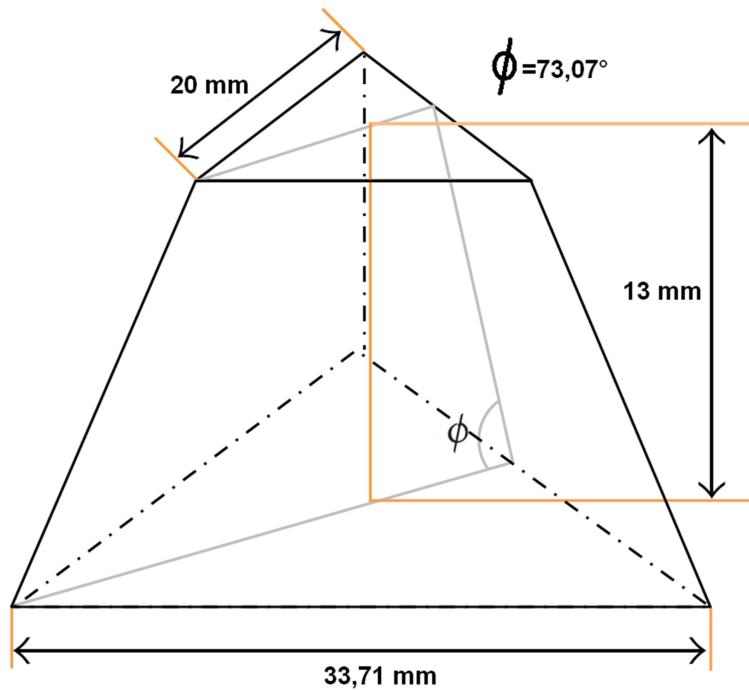


Abbildung 0.1:

Schematische Darstellung des Prismas A von der Seite mit entsprechenden Längenangaben.

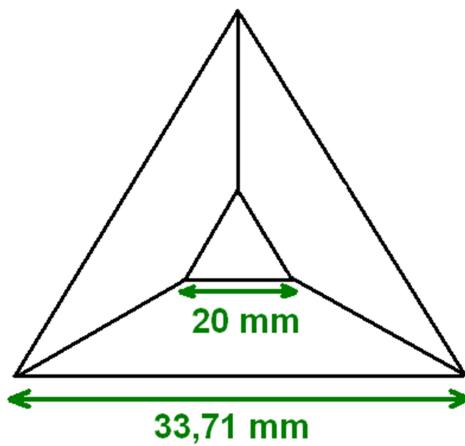


Abbildung 0.2:

Schematische Darstellung des Prismas A von oben mit entsprechenden Längenangaben.

0.2 Prisma B

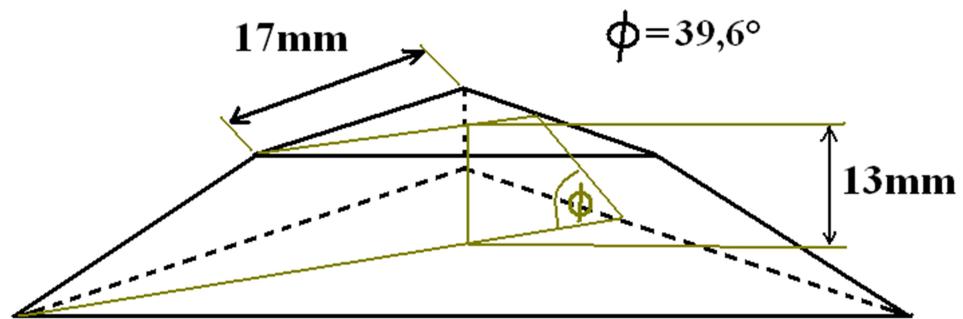


Abbildung 0.3:

Schematische Darstellung des Prismas B von der Seite mit entsprechenden Längenangaben.

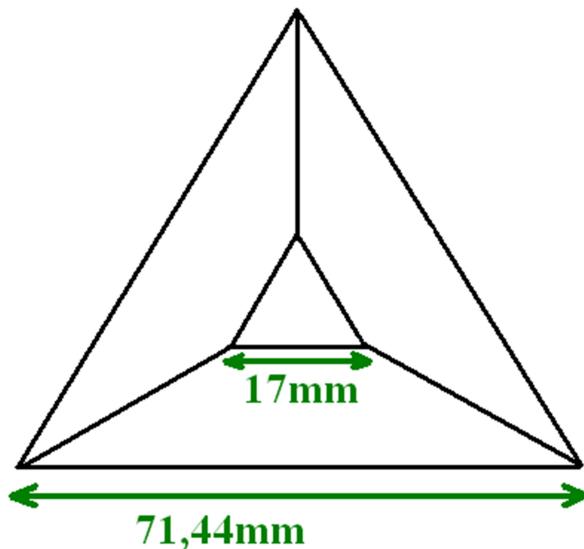


Abbildung 0.4:

Schematische Darstellung des Prismas B von oben mit entsprechenden Längenangaben.

Material: N-BK7, Grade A

0.3 Allseitig polierte Halbkugel

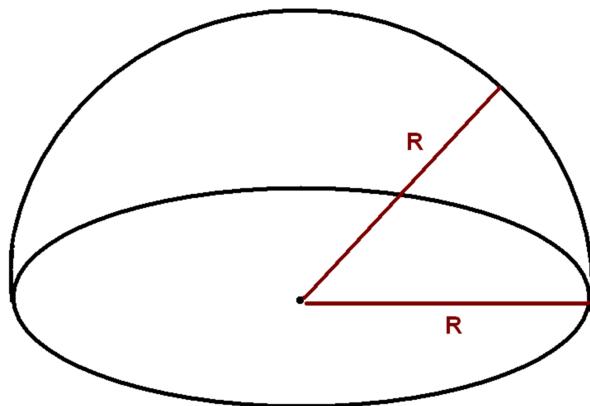


Abbildung 0.5:
Skizze der Halbkugel.

Durchmesser: 30 mm

Durchmessertoleranz: $\pm 0,1$ mm

Mittendicke: 14 mm

Mittendickentoleranz: $\pm 0,1$ mm

Passe: $\lambda / 10$ mit $\lambda = 633$ nm

Material: N-BK7, Grade A