

Eberhard Kurz

**Herstellungsschritte
großflächiger Flüssigkristallzellen
für intelligente Gebäudeverglasungen**



Cuvillier Verlag Göttingen
Internationaler wissenschaftlicher Fachverlag



Herstellungsschritte großflächiger Flüssigkristallzellen für intelligente Gebäudeverglasungen





Herstellungsschritte großflächiger Flüssigkristallzellen für intelligente Gebäudeverglasungen

Von der Fakultät Informatik, Elektrotechnik und Informations-
technik der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde eines
Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von
Eberhard Kurz
aus Tübingen

Hauptberichter : Prof. Dr.-Ing. Norbert Frühauf
Mitberichter : Prof. Dr.-Ing. Joachim Burghartz

Tag der mündlichen Prüfung : 26. Februar 2018

Institut für Großflächige Mikroelektronik der Universität Stuttgart

2018



Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliographische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen: Cuvillier, 2018
Zugl.: Stuttgart, Univ., Diss., 2018

D 93

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2018
Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen
Telefon: 0551-54724-0
Telefax: 0551-54724-21
www.cuvillier.de

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

1. Auflage, 2018

Gedruckt auf umweltfreundlichem, säurefreiem Papier aus nachhaltiger Forstwirtschaft.

ISBN 978-3-7369-9778-3
eISBN 978-3-7369-8778-4



Inhaltsverzeichnis

Abkürzungen und Formelzeichen	7
Kurzfassung	11
Abstract	12
1. Einleitung	13
2. Grundlagen	15
2.1. Polarisation von Licht	15
2.1.1. Polarisationszustände	16
2.1.2. Polarisiertes Licht und optisch anisotropes Medium	17
2.1.3. Polarisationsfilter	18
2.2. Flüssigkristall	18
2.2.1. Thermotroper Flüssigkristall	19
2.2.2. Lyotroper Flüssigkristall	20
2.2.3. Orientierungsmechanismen des nematischen, thermotropen Flüssigkristalls	21
2.3. Verdrillt-nematische Flüssigkristallzellen	22
2.3.1. Aufbau	22
2.3.2. Funktionsprinzip	23
2.3.3. Optische Eigenschaften	24
2.3.4. Betriebsarten	26
2.3.5. Elektrooptische Eigenschaften	26
2.4. Dünnschichtpolarisator	27
2.4.1. Chemischer Aufbau	27
2.4.2. Stabilisierung	28
2.4.3. Optisches Funktionsprinzip	29
2.5. Kathodenzerstäubungsverfahren	30
2.6. Transparente leitfähige Oxide	31
2.7. Grundlagen der Strömungsmechanik	32
2.7.1. Grundgrößen	32
2.7.2. Grundgleichungen	34
2.7.3. Die Poiseuille-Strömung	36
2.7.4. Die Couette-Strömung	37



2.7.5.	Randbedingungen und Kennzahlen	38
2.7.5.1.	Die kinematischen Randbedingungen	38
2.7.5.2.	Die dynamischen Randbedingungen	39
2.7.5.3.	Kennzahlen	40
2.8.	Beschichtungsverfahren für Nassfilmbeschichtungen	42
2.8.1.	Grundlagen der Schlitzdüsenbeschichtung	42
2.8.1.1.	Geometrie der Benetzung	43
2.8.1.2.	Strömungen	44
2.8.1.3.	Druckbilanz	46
2.8.2.	Das Spiralraketbeschichtungsverfahren	49
3.	Auslegung der Flüssigkristallzelle	51
3.1.	Technische Anforderungen	51
3.2.	Wirtschaftliche Anforderungen	51
3.3.	Aufbau der Flüssigkristallzelle	52
3.3.1.	Materialien	53
3.3.2.	Prozesse	53
4.	Alternatives Elektrodenmaterial	55
4.1.	Abscheidung und Nachbehandlung von AZO	55
4.1.1.	Temperaturnachbehandlung bei höheren Temperaturen und unterschiedlicher Atmosphäre	59
4.1.2.	Nachbehandlung durch Laserkristallisation	60
4.1.3.	Variation der Schichtdicke	61
4.2.	Verträglichkeit von AZO mit LFK	63
4.3.	Bewertung von AZO für großflächige LC-Zellen im Vergleich zu ITO	64
5.	Schichtauftrag des Polarisators	67
5.1.	Voraussetzungen für die Schichterzeugung	67
5.1.1.	Anforderungen aufgrund des LFK-Polarisators	67
5.1.2.	Anforderungen aufgrund des Glassubstrats	72
5.1.3.	Anforderungen bezüglich der Wirtschaftlichkeit	72
5.2.	Auswahl eines Auftragsverfahrens – Schlitzdüsenbeschichtung	73
5.3.	Auftragssystem	74
5.3.1.	Schlitzdüse	75
5.3.2.	Versorgungssystem	75
5.3.3.	Portalsystem	76
5.3.4.	Beschichtungsparameter	76
5.3.5.	Einschränkungen durch Beschichtungssystem	76
5.4.	Auswertung einer Beschichtung	77
5.4.1.	Bewertung des Beschichtungs Vorgangs	77
5.4.2.	Bestimmung der Trockenschichtdicke	78
5.4.3.	Optische Bewertung	78



5.5.	Parameterbereiche für stabile Beschichtungen	79
5.5.1.	Vorbereitende Untersuchungen und Annahmen	81
5.5.1.1.	Approximation der Viskositätswerte	81
5.5.1.2.	Ermittlung des Schichtdickenverhältnisses zwischen Nassschicht und Trockenschicht	82
5.5.1.3.	Einfluss des Differenzdrucks auf den Volumenstrom	84
5.5.2.	Low-Flow-Limit	86
5.5.3.	Visko-kapillares Stabilitätskriterium	88
5.6.	Beschichtung mit verminderter Viskosität	90
5.7.	Gesamtbewertung des Schlitzdüsenbeschichtungsverfahrens	93
5.8.	Schichteigenschaften	95
5.8.1.	Schichthaftung	96
5.8.2.	Chemische Empfindlichkeit	97
5.8.3.	Fotolithografische Strukturierung	97
6.	Orientierungsschicht	99
6.1.	Polyimid als Orientierungsschicht	99
6.1.1.	Herstellungsprozess	99
6.2.	LFK-Polarisator als Orientierungsschicht	100
6.2.1.	Vergleich mit PI-Orientierungsschicht	100
6.2.2.	Reiben der LFK-Orientierungsschicht	101
7.	Skalierbare Füllverfahren	105
7.1.	Klassisches Füllverfahren	105
7.1.1.	Abschätzung der Prozessdauer	106
7.2.	Alternatives Füllverfahren ohne Vakuumeinsatz	112
7.3.	ODF-Füllverfahren	114
7.3.1.	Grundprinzip	115
7.3.2.	Flüssigkristallmengen	116
7.3.3.	Anforderungen an den Vakuumdruck	118
7.3.4.	Verpressen der Substrate	120
7.3.4.1.	Verpressen in Kunststoffbeutel	121
7.3.5.	Bewertung	123
8.	Zusammenfassung	125
A.	Nassfilmdicke beim Spiralrakelbeschichtungsverfahren	127
	Literaturverzeichnis	129
	Abbildungsverzeichnis	133
	Tabellenverzeichnis	137



Abkürzungen und Formelzeichen

Abkürzungen

e	außerordentlich
E-Typ	außerordentlicher Typ
LFK	lyotroper Flüssigkristall
NS	normal-schwarz
NW	normal-weiß
o	ordentlich
O-Typ	ordentlicher Typ
ODF	Füllverfahren mit offener Zelle, engl. <i>open drop fill, one drop filling</i>
PI	Polyimid
TCO	transparentes leitendes Oxid, engl. <i>transparent conductive oxide</i>
TFK	thermotroper Flüssigkristall
TN	<i>twisted nematic</i> , siehe VN
U	Umdrehungen
VN	verdrillt-nematisch
VN-Zelle	verdrillt-nematische Flüssigkristallzelle

Lateinische Formelzeichen

A_n	Eingeschlossene Fläche bei Normaldruck
A_0	Eingeschlossene Fläche bei Vakuumdruck
A	Fläche
A_r	Amplitudenanteil in r -Richtung
A_Q	Querschnittsfläche
b	Breite
B_0	Bondzahl
c_0	Vakuumlichtgeschwindigkeit
d	Abstand, Durchmesser
d^*	dimensionsloser Abstand
E	Vektor des elektrischen Felds
E_r	Komponente des elektrischen Felds in r -Richtung
E_0	komplexer Amplitudenvektor des elektrischen Felds
F	Kraft

F_n	Normalkraft
F_t	Tangentialkraft
\mathbf{g}	Erdbeschleunigungsvektor
h	Schichtdicke
h_{tr}	Trockenschichtdicke
Im	Imaginärteil
j	imaginäre Einheit
\mathbf{k}	Vektor der Summe aller Kräfte
K	Kontrast
k	Wellenzahl
k_r	Summe aller Kräfte in r -Richtung
K_a	Außenkante
Ka	Kapillarzahl
K_i	Innenkante
L	konstante Länge, Länge der Zelle
l	Länge, Länge der Düsenlippe
l_b	Position der Benetzungslinie des benetzenden Meniskus
m	Masse
\mathbf{n}	normaler Einheitsvektor
N	Anzahl, Stoffmenge
n_r	Brechungsindex in r -Richtung
\mathbf{n}	Direktor des Flüssigkristalls
n	Brechungsindex
N_e	außerordentlicher komplexer Brechungsindex
n_e	außerordentlicher Brechungsindex
N_o	ordentlicher komplexer Brechungsindex
n_o	ordentlicher Brechungsindex
n_p	Pumpendrehzahl
p_n	Normaldruck
p_0	Vakuumdruck
p	Druck
p_b	Umgebungsdruck beim benetzenden Meniskus
p_f	Umgebungsdruck beim filmbildenden Meniskus
Q	Volumenstrom
\mathbf{r}	Ortsvektor
R	elektrischer Widerstand
R_g	Gasspezifische molare Gaskonstante
R_{\square}	elektrischer Flächenwiderstand
R_1	Krümmungsradius
R_2	Krümmungsradius
r_b	Radius des benetzenden Meniskus
Re	Realteil
Re	Reynoldszahl
r_f	Radius des filmbildenden Meniskus
R_m	mittlerer Krümmungsradius

r_z	Krümmungsradius in z -Richtung
\mathbf{t}	tangentialer Einheitsvektor
T	Temperatur
t	Zeit
\mathcal{T}	Transmission
\mathcal{T}_H	Schalhub
\mathcal{T}_{NS}	Transmission einer Normal-Schwarz-Zelle
\mathcal{T}_{NW}	Transmission einer Normal-Weiß-Zelle
U	konstante Geschwindigkeit, elektrische Spannung
u	Maugin-Parameter
U_{th}	Schwellspannung
\bar{v}	mittlere Molekülgeschwindigkeit
\mathbf{v}	Geschwindigkeitsvektor
v	Geschwindigkeit
V	Volumen
V_g	Verdrängungsvolumen einer Pumpe
\dot{V}	Volumenstrom
V_0	Volumen bei Vakuumdruck
V_n	Volumen bei Normaldruck
v_s	Substratgeschwindigkeit
w	Schlitzdüsenweite
x	Raumkoordinate
y	Raumkoordinate
z	Raumkoordinate

Griechische Formelzeichen

$\dot{\gamma}$	Schergeschwindigkeit
γ	Scherverformung
Δ	Differenzen-Operator
Δ	Laplace-Operator
$\Delta\epsilon$	dielektrische Anisotropie
Δn	optische Anisotropie
Δp_{fb}	Gesamtdruckdifferenz vor und hinter der Düse
ϵ_0	elektrische Feldkonstante
ϵ_r	Permittivität in r -Richtung
$\epsilon_{ }$	Relative Permittivität parallel zum Direktor
ϵ_{\perp}	Relative Permittivität senkrecht zum Direktor
ϵ	Permittivität
$\boldsymbol{\epsilon}$	Tensor der Permittivität
η	dynamische Viskosität
η_{Vol}	volumetrischer Wirkungsgrad einer Pumpe
η_0	Nullviskosität
ϑ	Vorverkipfungswinkel, engl. <i>pre-tilt</i>
κ_e	außerordentlicher Absorptionsindex

κ_o	ordentlicher Absorptionsindex
$\bar{\lambda}$	mittlere freie Weglänge
λ	Wellenlänge
∇	Nabla-Operator
ν	Teilchendichte, Spacerflächendichte
∇_{Π}	$\nabla - \mathbf{n} \cdot (\mathbf{n} \cdot \nabla)$
π	Kreiszahl
ρ	Massendichte
ϱ_s	spezifischer elektrischer Widerstand
σ	Oberflächenspannung
τ	mechanische Schubspannung
$\boldsymbol{\tau}$	mechanischer Spannungstensor
φ	Phasenverschiebung
Φ	Grenzfläche
ψ	Benetzungswinkel
ω	Winkelfrequenz

Chemische Formelzeichen

Ar	Argon
AZO	Aluminiumzinkoxid
BaCl ₂	Bariumchlorid
Ba(NO ₃) ₂	Bariumnitrat
ITO	Indiumzinnoxid, engl. <i>indium tin oxide</i>
NH ₄ ⁺	Ammoniumion
NH ₄ Cl	Ammoniumchlorid
NH ₄ NO ₃	Ammoniumnitrat

Kurzfassung

Flüssigkristallzellen können in gläsernen Gebäudehüllen eingesetzt werden, um den Lichteinfall zu regulieren. Die prinzipielle Machbarkeit war bereits in einer vorhergehenden Arbeit gezeigt worden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde untersucht, ob für die Herstellung solcher Zellen im industriellen Maßstab kostengünstigere Verfahren als bei der Herstellung konventioneller Flüssigkristallzellen für Anzeigen eingesetzt werden können. Es konnte gezeigt werden, dass mit Aluminiumzinkoxid (AZO) ein günstigeres Elektrodenmaterial als Indiumzinnoxid (ITO) zur Verfügung steht. Mit lyotropem Flüssigkristall (LFK) steht ein Polarisator zur Verfügung, der per Flüssigfilmauftrag im Schlitzdüsenverfahren hergestellt werden kann. Es stellte sich heraus, dass der LFK-Polarisator die AZO-Elektrode chemisch verändert, so dass unter Umständen weiterhin ITO als Elektrodenmaterial zu bevorzugen ist. Der LFK-Polarisator kann zugleich als Orientierungsschicht dienen. Mit dem momentan verfügbaren LFK ist die Auftragsgeschwindigkeit sehr begrenzt, die erzielbaren Schichtdicken sind zu groß, um eine optimale Lichtdurchlässigkeit zu erreichen. Für den Zusammenbau und das Befüllen der Zellen mit thermotropem Flüssigkristall konnte kein günstigerer Prozess als das im Allgemeinen in der Flüssigkristallanzeigenindustrie eingesetzte ODF-Verfahren gefunden werden.

Abstract

Liquid crystal cells may be used in building envelopes made of glass in order to modulate light transmission. General feasibility had been demonstrated in a preceding work. In the context of this work it was investigated whether for the production of such cells at industrial scale more economical processes could be used than those used for the production of conventional liquid crystal cells for displays. It could be shown that aluminum zinc oxide (AZO) is applicable as a more economic electrode material than indium tin oxide (ITO). Using lyotropic liquid crystal (LLC) there is a polarizer available that can be produced economically by liquid film coating using a slot die process. The LLC polarizer turned out to alter chemically the AZO. Thus ITO may possibly remain the preferred electrode material. The LLC polarizer may serve as an alignment layer at the same time. Using the currently available type of LLC coating speed is very limited and the layer thicknesses that can be achieved are still too large to obtain optimal light transmission. In terms of economic efficiency for assembling and filling the cells with thermotropic liquid crystal no process other than the ODF process generally used in the liquid crystal display industry could be found.

1. Einleitung

Gebäudehüllen aus Glas sind in der Architektur moderner Bürogebäude sehr verbreitet. Tageslicht kann das Innere eines Raumes beleuchten, während die gläsernen Außenfassaden einen Bezug zur Außenwelt herstellen. Das Wohlbefinden – die „visuelle Behaglichkeit“ [1] – der Personen im Raum nimmt zu. Tritt jedoch Sonnenlicht in den Raum ein, so heizt sich der Raum auf; im ungünstigsten Fall blendet das Sonnenlicht.

Moderne Wärmeschutzisolierverglasungen minimieren den Wärmeübergang durch Wärmestrahlung und Konvektion zwischen dem Raum und der Außenwelt. Tritt das Sonnenlicht in den Raum ein, wird es an den Innenwänden des Raums in langwellige Wärmestrahlung umgewandelt. Fensterglas ist für langwellige Strahlung jedoch undurchlässig, so dass sich der Raum aufheizt. Um die überschüssige Wärme abzuführen, werden Klimaanlage eingesetzt. Klimaanlage sind jedoch energieintensiv und vermindern das Wohlbefinden. Der Einsatz von Klimaanlage kann reduziert oder vermieden werden, wenn das einfallende Sonnenlicht gedämpft wird. Absorptionsgläser, einfach verspiegelte Gläser oder Hochleistungs-sonnenschutzgläser sind schon lange verfügbar, jedoch ist deren Lichtdurchlässigkeit nicht änderbar. Gefordert sind daher Isolierverglasungen mit anpassungsfähiger Tageslichtdurchlässigkeit.

Klassische Systeme, mit deren Hilfe die Lichtdurchlässigkeit angepasst werden kann, sind mechanisch bewegliche Lamellen wie Außenjalousien, Innenjalousien oder im Scheibenzwischenraum der Isolierverglasungen angebrachte Jalousien. Diese Systeme sind aufwändig zu warten und beeinträchtigen den optischen Eindruck der Glasfassade.

Neuere Systeme entbehren mechanischer Bestandteile und können direkt in die Isolierverglasung eingebettet werden; sie sind bereits im Handel erhältlich. Zu nennen sind hier vor allem elektrochrome Systeme [2] und Suspended-Particles-Systeme [3]. Lange Schaltzeiten, farbige Gläser oder hohe Kosten dieser Systeme führen dazu, dass sie in der Architektur selten eingesetzt werden. Andere Systeme wie thermochrome und fotochrome Systeme ändern die Lichtdurchlässigkeit durch einen chemischen Vorgang, der durch die Temperatur bzw. die Lichtintensität gesteuert wird. Sie sind günstig, müssen nicht gewartet werden und beeinträchtigen auch nicht den optischen Eindruck. Jedoch ist es nicht möglich, die Lichtdurchlässigkeit manuell einzustellen.

W. Haase [4] hat ein alternatives System auf der Grundlage einer verdreht-nematischen (TN, von engl. twisted nematic) Flüssigkristallzelle entwickelt, das die Nachteile bestehender Systeme

nicht aufweist.¹ Die Schaltgeschwindigkeit von TN-Flüssigkristallzellen beträgt üblicherweise mehrere Millisekunden und der Schaltvorgang wirkt sich auf das gesamte sichtbare Spektrum aus, so dass sich nur die Transparenz, nicht aber die Farbe ändert. Allerdings ist die Transparenz stark abhängig vom Blickwinkel.

In seiner Dissertation [4] hat W. Haase in Langzeittests gezeigt, dass der grundsätzliche Aufbau seines Systems die wechselnden Einflüsse durch Temperatur, Feuchtigkeit und Sonnenstrahlung übersteht, die an einer Außenfassade herrschen. Konventionell hergestellte Flüssigkristallzellen wie in der Flachbildschirmindustrie sind für den großflächigen Einsatz in Isolierverglasungen zu teuer. Üblicherweise eingesetzte, auf der Außenseite einer Flüssigkristallzelle aufgebrachte Folienpolarisatoren waren nicht temperaturbeständig und wurden durch einen auf der Innenseite aufgebrachten Flüssigpolarisator ersetzt. Bis jetzt stand noch kein rationelles Verfahren zur Verfügung, um den Flüssigpolarisator großflächig und homogen aufzutragen.

Im Rahmen dieser Dissertation wurden die einzelnen Herstellungsschritte solcher TN-Flüssigkristallzellen für den Einsatz in einem adaptiven System zur Änderung der Lichtdurchlässigkeit daraufhin untersucht, ob kostengünstigere Verfahren eingesetzt werden können. Zunächst werden die Grundlagen (Kapitel 2) der einzelnen Herstellungsschritte dargestellt. Danach wird die Gesamtzelle vorgestellt (Kapitel 3). Die Reihenfolge der weiteren Kapitel orientiert sich an der Reihenfolge der Herstellungsschritte. Beginnend mit dem Auftrag des Elektrodenmaterials (Kapitel 4), des Polarisators (Kapitel 5) und der Orientierungsschicht (Kapitel 6) wird aufgezeigt, wie diese Prozesse vereinfacht werden können. Im letzten Herstellungsschritt wird die Flüssigkristallzelle zusammgebaut und befüllt. Hierzu werden die Erkenntnisse dargestellt, wie dies für großflächige Flüssigkristallzellen in kostengünstiger Weise möglich ist (Kapitel 7). Schließlich werden die Auswirkungen auf das Gesamtsystem vorgestellt (Kapitel 8).

¹Unter dem Namen „Privacy Glass“ sind bereits Systeme auf der Basis von Flüssigkristallzellen auf dem Markt. Hierbei werden sogenannte PDLC (von engl. polymer dispersed liquid crystal)-Zellen eingesetzt. Durch den Schaltvorgang ändert sich die Lichtstreuung, was die Scheibe eintrüben kann, die Gesamttransmission jedoch nur geringfügig ändert.

2. Grundlagen

In den folgenden Abschnitten sollen die Grundlagen zum Verständnis der einzelnen Herstellungsschritte gelegt werden.

Es beginnt mit der Polarisierung von Licht. Darauf folgt eine allgemeine Einführung in die Flüssigkristalle, deren Lage und Ausrichtung die Polarisierung von Licht beeinflussen kann. Daraus leiten sich das Prinzip einer verdrillt-nematischen Flüssigkristallzelle und das Prinzip eines Polarisators aus lyotropem Flüssigkristall ab.

An die Flüssigkristallzelle soll über ihre gesamte Fläche ein elektrisches Feld angelegt werden können. Dazu wird eine Elektrode flächig mit Hilfe des Kathodenzerstäubungsverfahrens aufgebracht. Erläutert werden die physikalischen Hintergründe dieses Verfahrens und das Prinzip der transparenten leitenden Oxide, aus welchen das Elektrodenmaterial besteht.

Ein großer Abschnitt dieses Kapitels widmet sich schließlich den Grundlagen der Strömungsmechanik. Darauf baut das theoretische Verständnis der Flüssigbeschichtungsverfahren für dünne Schichten auf, welche für die Herstellung des Polarisators eingesetzt werden. Weiterhin sind die Grundlagen der Strömungsmechanik notwendig für das theoretische Verständnis der Zellenbautechnik.

2.1. Polarisierung von Licht

Gemäß [5] kann ein Lichtstrahl als transversale elektromagnetische Welle betrachtet werden, die sich im Raum ausbreitet und deren elektrische und magnetische Felder sowohl im zeitlichen als auch im räumlichen Verlauf schwingen. Die Felder schwingen dabei in isotropen Medien stets senkrecht zur Wellenausbreitungsrichtung, die Schwingungsebenen von elektrischem und magnetischem Feld sind senkrecht zueinander orientiert. Im Weiteren wird nur das elektrische Feld von elektromagnetischen Wellen betrachtet; eine Betrachtung des magnetischen Felds ist in analoger Weise möglich.

Die Schwingungsrichtung der Transversalwelle kann als Überlagerung zweier voneinander linear unabhängiger Schwingungsrichtungen aufgefasst werden. Sind diese beiden Schwingungsrichtungen vollständig unkorreliert, spricht man von unpolarisiertem Licht. Bei linear

polarisiertem Licht hingegen schwingt das elektrische Feld einer elektromagnetischen Welle nur in einer Richtung. Wie in [5] bezieht sich die Polarisationsrichtung im Folgenden stets auf die Schwingungsrichtung des elektrischen Felds¹.

Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wird im Weiteren die Ausbreitung des Lichts nur in z -Richtung betrachtet, wodurch sich der komplexe Amplitudenvektor E_0 des elektrischen Felds stets in der x - y -Ebene bewegt. Die x - y -Ebene ist senkrecht zur z -Richtung orientiert. Das elektrische Feld $E(z,t)$ einer monochromatischen, ebenen Lichtwelle kann als Funktion der z -Koordinate und der Zeit t dargestellt [5] werden:

$$E(z,t) = \operatorname{Re} \left\{ E_0 \cdot e^{j(\omega t - kz)} \right\}, \quad (2.1)$$

wobei ω die Winkelfrequenz und k die Wellenzahl bezeichnen. Der komplexe Amplitudenvektor ist definiert als:

$$E_0 = \begin{pmatrix} A_x e^{j\varphi_x} \\ A_y e^{j\varphi_y} \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (2.2)$$

Hierbei bezeichnen φ_x und φ_y die Phasenverschiebung der reellen, positiven Amplitudenanteile A_x und A_y in x - und in y -Richtung. Die relative Phasenverschiebung zwischen den x - und y -Komponenten des elektrischen Felds E ergibt sich zu [8]:

$$\varphi = \varphi_y - \varphi_x. \quad (2.3)$$

2.1.1. Polarisationszustände

Eine Lichtwelle wird im zeitlichen Verlauf an einem festen Ort $z = 0$ oder im räumlichen Verlauf zu einem festen Zeitpunkt $t = 0$ beobachtet. Währenddessen beschreibt der Vektor E des elektrischen Felds in der x - y -Ebene eine Kurve, die charakteristisch für den Polarisationszustand ist. Im Allgemeinen handelt es sich bei der Kurve um eine Ellipse, die in speziellen Fällen linien- oder kreisförmig wird:

Bei einer Phasenverschiebung von $\varphi = i \cdot \pi$ mit $i \in \mathbb{Z}$ bewegt sich der E -Vektor auf einer Geraden durch den Ursprung. Es handelt sich also um eine linear polarisierte Welle. Bei gleich großen Amplituden $A_x = A_y$ und einer Phasenverschiebung $\varphi = \frac{\pi}{2} + i \cdot \pi$ mit $i \in \mathbb{Z}$ bewegt sich der E -Vektor auf einer Kreisbahn. Es handelt sich in diesem Fall um zirkuläre Polarisation.

¹Aus historischen Gründen (wie z. B. in [6] definiert) hingegen ist die Polarisationsrichtung i. Allg. mit der Schwingungsebene des magnetischen Felds (auch als „Polarisationsebene“ bezeichnet [7]) verknüpft.

2.1.2. Polarisiertes Licht und optisch anisotropes Medium

Optisch anisotrope Medien besitzen richtungsabhängige relative Permittivitäten und richtungsabhängige Brechungsindices. Die Permittivität kann in Form eines Tensors $\boldsymbol{\varepsilon}$ angegeben werden, der nur reelle, symmetrische Einträge besitzt. Wird weiterhin das Hauptachsensystem des Tensors so gewählt, dass nur die Hauptdiagonale besetzt ist, ergibt sich für den Tensor $\boldsymbol{\varepsilon}$ [5]:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix}, \quad (2.4)$$

wobei ε_x , ε_y und ε_z die relativen Permittivitäten in Richtung der Koordinaten x , y bzw. z bezeichnen.

Beschränkt man sich auf transparente und para- bzw. diamagnetische Materialien [5] – Materialien also, die Licht nicht absorbieren und deren relative Permeabilität $\mu_r \approx 1$ ist, so kann mit Hilfe des allgemeinen Zusammenhang $n = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}}$ von Brechungsindex n und relativer Permittivität ε (2.4) in Abhängigkeit der richtungsabhängigen Brechungsindices n_x , n_y und n_z ausgedrückt werden als:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \varepsilon_0 \cdot \begin{pmatrix} n_x^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_y^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_z^2 \end{pmatrix}, \quad (2.5)$$

wobei ε_0 die elektrische Feldkonstante bezeichnet. Die Achsen x , y und z sind die dielektrischen Hauptachsen des optischen Mediums. Per Konvention [5] sind die Brechungsindices so definiert, dass $n_x < n_y < n_z$ gilt. Es handelt sich hierbei um sogenannte biaxiale Medien, die zwei optische Achsen besitzen. Die optischen Achsen sind diejenigen Ausbreitungsrichtungen, in denen eine Lichtwelle unabhängig von ihrer Polarisationsrichtung nur einen Brechungsindex erfährt.

Bei uniaxialen Medien hingegen gibt es lediglich zwei unterschiedliche Brechungsindices: n_o , den ordentlichen, und n_e , den außerordentlichen Brechungsindex. Per Konvention [5] sind sie so definiert, dass $n_o = n_x = n_y$ und $n_e = n_z$ gilt. Damit fällt bei uniaxialen Medien die optische Achse mit der z -Achse zusammen. Eine Lichtwelle, die sich in diesem Fall in z -Richtung ausbreitet, erfährt nur den Brechungsindex n_o . In allen anderen Ausbreitungsrichtungen erfährt eine Lichtwelle zwei unterschiedliche Brechungsindices, wird also an einer Grenzschicht zweifach gebrochen. Dieses Phänomen wird daher als Doppelbrechung bezeichnet. Quantitativ wird die Doppelbrechung durch die Differenz $\Delta n = n_e - n_o$ erfasst. Die Größe Δn wird auch als optische Anisotropie bezeichnet.

2.1.3. Polarisationsfilter

Polarisiertes Licht wird in technischen Systemen üblicherweise durch Polarisationsfilter erzeugt. Diese weisen eine stark anisotrope Absorption auf. Um die richtungsabhängige Absorption zu berücksichtigen, werden die uniaxialen Brechungsindizes daher zu komplexen Brechungsindizes N_o und N_e erweitert [5]:

$$N_o = n_o - j\kappa_o, \quad (2.6)$$

$$N_e = n_e - j\kappa_e, \quad (2.7)$$

wobei κ_o und κ_e die Absorptionsindizes bezeichnen. Es gibt nun zwei unterschiedliche Arten von Polarisationsfiltern, O-Typ- und E-Typ-Polarisatoren [5]. O-Typ-Polarisatoren (siehe Abbildung 2.1a) transmittieren ordentliche Wellenanteile und dämpfen außerordentliche Wellenanteile. Die elektrischen Felder ordentlicher Wellen schwingen in solchen Richtungen, dass sie nur N_o erfahren, die elektrischen Felder außerordentlicher Wellen erfahren N_o und N_e . Es gilt dann bei idealen² Medien: $\kappa_o = 0$, $\kappa_e > 0$. E-Typ-Polarisatoren (siehe Abbildung 2.1b) verhalten sich genau umgekehrt.

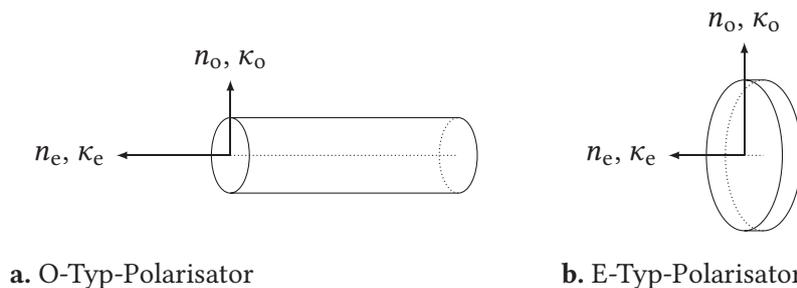


Abbildung 2.1.: Idealisierte Form anisotrop absorbierender Moleküle bei O-Typ- und E-Typ-Polarisator gemäß [5]

Die Güte eines Polarisators wird nun danach beurteilt, wieviel Licht in Durchlassrichtung im Verhältnis zu Licht in Sperrrichtung den Polarisator passiert. Es sei \mathcal{T}_1 die Transmission von linear polarisiertem Licht parallel zur Durchlassrichtung und \mathcal{T}_2 die Transmission von linear polarisiertem Licht senkrecht zur Durchlassrichtung. Für einen Polarisator gilt dann in Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge $0 \ll \mathcal{T}_1(\lambda) \leq 1$ und $0 \leq \mathcal{T}_2(\lambda) \ll 1$ [5]. Für einen idealen Polarisator gilt jeweils das Gleichheitszeichen.

2.2. Flüssigkristall

Bei gewöhnlichen Kristallen tritt gleichzeitig eine Positionsfernordnung und eine Orientierungsfernordnung der Moleküle auf, während bei gewöhnlichen, isotropen Flüssigkeiten weder

²Reale Medien absorbieren in geringem Maße stets auch die ordentlichen Wellenanteile, d. h. $\kappa_o \approx 0$.

eine Positionsfernordnung noch eine Orientierungsfernordnung der Moleküle auftritt. Zwischen diesen beiden Phasen können Mischphasen, auch Mesophasen genannt, bestehen [9]. Tritt in diesen Mesophasen eine Positionsfernordnung ohne Orientierungsfernordnung der Moleküle auf, so spricht man von einem plastischen Kristall; im umgekehrten Fall, wenn eine Orientierungsfernordnung ohne Positionsfernordnung der Moleküle auftritt, spricht man von einem flüssigen Kristall oder auch Flüssigkristall. Da nur scheiben- oder stabförmigen Molekülen eine Orientierung zugeordnet werden kann, gibt es bei kugelförmigen Molekülen keine Flüssigkristallphase [9].

Thermotrope Flüssigkristalle (TFK) bestehen in der Regel aus organischen Einzelmolekülen. Die flüssigkristalline Phase tritt abhängig von der Temperatur auf. Lyotrope Flüssigkristalle (LFK) bestehen in der Regel aus Molekülaggregaten. Die flüssigkristalline Phase tritt abhängig von der Molekülkonzentration in einer Lösung auf. Das Lösungsmittel ist meist Wasser. Bei den LFK tritt die Flüssigkristallphase meist auch in einem gewissen Maß abhängig von der Temperatur auf [10].

Eine elektrisch schaltbare Flüssigkristallzelle ist im Allgemeinen mit thermotropen Flüssigkristallen befüllt. Sie bilden ein Bindeglied zwischen der Optik und der elektrischen Ansteuerung und sind daher für den in Kapitel 2.3 beschriebenen elektrooptischen Effekt maßgeblich verantwortlich. Daneben existieren lyotrope Flüssigkristalle, auf deren Grundlage die Polarisatoren der Flüssigkristallzelle für diese Arbeit hergestellt wurden.

2.2.1. Thermotroper Flüssigkristall

Innerhalb der Flüssigkristallphase von TFK gibt es weitere Unterphasen. Als Beispiel weist die smektische Phase in einer Dimension zusätzlich eine Positionsfernordnung auf [5]. Dagegen weist die nematische Phase nur eine Orientierungsfernordnung auf. Im Folgenden werden nur nematische Flüssigkristalle – Flüssigkristalle, die in einem bestimmten Temperaturbereich eine nematische Phase aufweisen – betrachtet, da sie für die bereits erwähnte Flüssigkristallzelle eingesetzt werden [5]. Viele nematische Flüssigkristalle sind von stabförmiger Gestalt.

Der Direktor \mathbf{n} gibt an einem beliebigen Ort im Flüssigkristallmedium die bevorzugte Orientierungsrichtung der Molekülachsen in der unmittelbaren Umgebung an [5]. Ist der nematische Flüssigkristall im gesamten Volumen einheitlich orientiert, zeigt der Direktor überall in die gleiche Richtung. Bei stabförmigen Molekülen nematischer Flüssigkristalle stimmt die Richtung des Direktors mit der Orientierung der Moleküllängsachse überein, welche die Symmetrieachse des Flüssigkristallmoleküls bildet. Aufgrund dieser Symmetrie können für das Flüssigkristallmedium zwei unterschiedliche relative Permittivitäten angegeben werden: Parallel zum Direktor (ϵ_{\parallel}) und senkrecht zum Direktor (ϵ_{\perp}). Aus beiden ergibt sich eine charakteristische Größe für den Flüssigkristall, die dielektrische Anisotropie $\Delta\epsilon$:

$$\Delta\epsilon = \epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}. \quad (2.8)$$

Die dielektrische Anisotropie ist entscheidend für das Schaltverhalten einer Flüssigkristallzelle. Ein außen angelegtes elektrisches Feld induziert ein Dipolmoment in den Flüssigkristallmolekülen [5]. Sofern der Direktor nun nicht exakt senkrecht oder parallel zum elektrischen Feld orientiert ist, ergibt sich ein Drehmoment, das die Flüssigkristallmoleküle für $\Delta\epsilon > 0$ entlang des elektrischen Feldes und für $\Delta\epsilon < 0$ quer zum elektrischen Feld ausrichtet.

Bereits in Kapitel 2.1.2 wurde die optische Anisotropie Δn vorgestellt. Da der Direktor mit der optischen Achse des Flüssigkristalls zusammenfällt, wirkt der ordentliche Brechungsindex n_o senkrecht zum Direktor, während der außerordentliche Brechungsindex n_e parallel zum Direktor wirkt [5]. Wenn die Flüssigkristallmoleküle einheitlich orientiert sind, dann gilt: Eine beliebig polarisierte Lichtwelle, die sich in \mathbf{n} -Richtung bewegt, erfährt nur n_o und somit keinerlei Änderung der Polarisation. Eine Lichtwelle, die sich hingegen senkrecht zur \mathbf{n} -Richtung bewegt, erfährt nur dann keine Änderung der Polarisation, sofern sie linear polarisiert ist und die Schwingungsebene des elektrischen Feldes parallel zu \mathbf{n} orientiert ist (die Welle erfährt dann nur n_e) oder senkrecht zu \mathbf{n} orientiert ist (die Welle erfährt dann nur n_o).

Werden TFK über eine bestimmte Temperatur hinaus erwärmt, wechseln sie in die isotrope Phase und verlieren ihre doppelbrechenden Eigenschaften. Diese Temperatur heißt auch Klärpunkt. Da sich ein einzelner TFK nur in einem eng begrenzten Temperaturbereich in der nematischen Phase befindet, werden TFK mit unterschiedlichen Eigenschaften gemischt [5]. Korrekterweise muss man daher bei schaltbaren Flüssigkristallzellen von TFK-Mischungen sprechen.

2.2.2. Lyotroper Flüssigkristall

Nach [9] werden die Molekülaggregate, aus denen die LFK bestehen, üblicherweise aus Tensiden gebildet. Tenside sind amphiphile Moleküle, die einen hydrophilen Kopfteil und einen hydrophoben Schwanzteil aufweisen. Der Kopfteil kann sich über Wasserstoffbrücken an die umgebenden Wassermoleküle anlagern, während sich die Schwanzteile auf der gegenüberliegenden Innenseite der Aggregate befinden.

Tenside können auch scheibenförmig sein. Hierbei ist der Mittelteil hydrophob und von flächiger Gestalt und die außenliegenden Kopfgruppen sind hydrophil. Die Moleküle lagern sich zu stapelförmigen Aggregaten zusammen, weil zwischen den Mittelteilen attraktive Dispersionswechselwirkungen bestehen [9]. Der Polarisator, der in dieser Arbeit eingesetzt wird, besteht ebenfalls aus scheibenförmigen Molekülen (siehe Kapitel 2.4).

Werden Aggregate gebildet, so führt das nach [11] zu einer höheren Viskosität der Lösung: Mit dem Grad der Positionsfernordnung nimmt die Viskosität zu. Daneben besteht eine Orientierungs- und eine Positionselastizität, so dass viskoelastisches Verhalten auftritt (siehe auch Kapitel 2.7).

2.2.3. Orientierungsmechanismen des nematischen, thermotropen Flüssigkristalls

Eine einheitliche und definierte Orientierung der TFK-Moleküle auf der gesamten Fläche einer Flüssigkristallzelle erfordert, dass von außen eine Orientierungsrichtung vorgegeben ist. Bewirkt wird dies durch eine Orientierungsschicht, die üblicherweise aus einer dünnen, transparenten Polymerschicht besteht. Das eingesetzte Material ist meist ein Polyimid. Eine bestimmte Orientierungsrichtung wird festgelegt, indem die Orientierungsschicht mehrfach in dieser Richtung gerieben wird. Die daraufhin eingefüllten Flüssigkristalle richten sich mit ihren Moleküllängsachsen entlang der Reiberichtung aus. Zusätzlich sind die Flüssigkristallmoleküle dann um einen Winkel ϑ gegenüber der Ebene der Orientierungsschicht verkippt (siehe Abbildung 2.2). Dieser Winkel wird als Vorverkippfungswinkel bezeichnet und seine Größe hängt bei

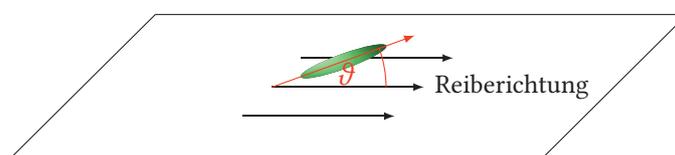


Abbildung 2.2.: Reiberichtung und Vorverkippfungswinkel ϑ

Polymerschichten hauptsächlich von der Art des Materials ab. Die Reibestärke selbst beeinflusst die Größe des Vorverkippfungswinkels nur geringfügig [12]. Auch bei den Versuchen von M. Brunner mit homöotropen Flüssigkristallzellen war kein signifikanter Einfluss der Reibestärke erkennbar [13]. Reibestärke ist hier ein Maß für die Kraft, die beim Reiben auf die Schicht wirkt.

Beim Reiben können mikroskopisch kleine Gräben entstehen. Nach [14] ist der Einfluss durch die Oberflächenstruktur jedoch nur ein möglicher Mechanismus, die Orientierung der TFK-Moleküle zu erklären. Die Enden von Molekülketten des organischen Materials der Orientierungsschicht, die durch das Reiben ausgerichtet werden und auf die TFK-Moleküle einwirken, beschreiben einen anderen möglichen Mechanismus. In [15] wird ein solcher Mechanismus auf molekularer Ebene beschrieben: Polyimid besteht unter anderem aus Benzolringen. Die Benzolringe sind vorzugsweise parallel zur Oberfläche orientiert. Daneben gibt es Benzolringe, die senkrecht zur Oberfläche orientiert sind (siehe Abbildung 2.3a, x - z -Ebene bzw. y - z -Ebene).

Wird nun die Polyimidschicht in x -Richtung gerieben, treten zweierlei Änderungen bei der Orientierung der Benzolringe auf. Zum einen verkippen die ursprünglich parallel zur Oberfläche liegenden Benzolringe entgegen der Reiberichtung aus der Ebene der Oberfläche heraus (siehe Abbildung 2.3b ①). Zum anderen sind die senkrecht zur Oberfläche orientierten Benzolringe nun nicht mehr gleichmäßig auf alle Orientierungsrichtungen verteilt, sondern liegen vorwiegend parallel zur Reiberichtung (siehe Abbildung 2.3b ②).

Die stabförmigen Flüssigkristalle bestehen unter anderem aus hintereinander angeordneten Benzolringen. Zwischen den Benzolringen der Flüssigkristalle (siehe Abbildung 2.4) und den

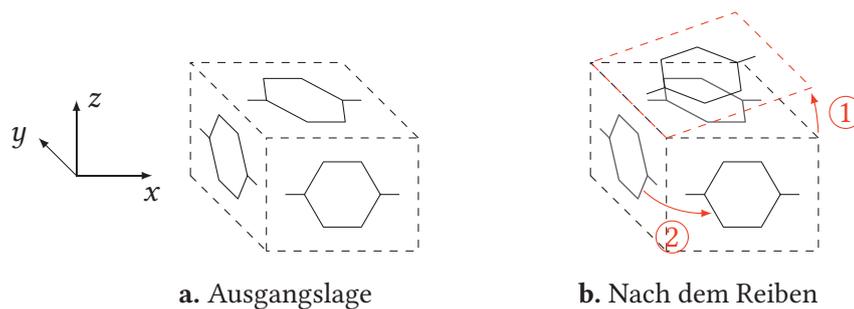


Abbildung 2.3.: Benzolringverteilung an der Oberfläche einer Polyimidschicht nach [15]

Benzolringen des Polyimids kommt es nun zu Wechselwirkungen. Die Flüssigkristalle richten sich an den Benzolringen des Polyimids aus. Die erstgenannte Änderung, die Verkippung der Benzolringe des Polyimids aus der Ebene der Oberfläche heraus, führt so zu einem einheitlichen Vorverkippungswinkel [15]. Die zweitgenannte Änderung, die Häufung von Benzolringen parallel zur Reiberichtung bewirkt eine einheitliche Ausrichtung der Flüssigkristalle in Reiberichtung [15].

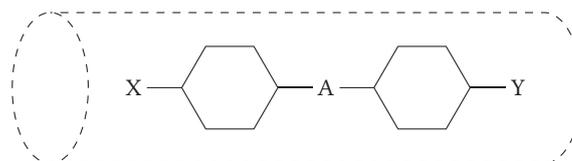


Abbildung 2.4.: Molekülstruktur eines typischen stabförmigen Flüssigkristallmoleküls, mit den Endgruppen X und Y und mit der Verbindungsgruppe A [5]

2.3. Verdrillt-nematische Flüssigkristallzellen

In dieser Arbeit wird eine verdrillt-nematische Flüssigkristallzelle (kurz VN-Zelle) eingesetzt. Die VN-Zelle ist auch unter dem Namen seiner Erfinder als Schadt-Helfrich-Zelle [16] und als TN-Zelle (von engl. *twisted nematic*) bekannt. Die VN-Zelle wird eingesetzt, weil hier der sogenannte Wellenleitungseffekt (engl. *waveguiding effect* oder auch *adiabatic following*) ausgenutzt werden kann [5]. Ist der Wellenleitungseffekt wirksam, kann eintretendes Licht unabhängig von seiner Wellenlänge moduliert werden. Zunächst wird der allgemeine Aufbau einer VN-Zelle dargestellt, danach werden ihre Funktionsweise erklärt und ihre speziellen optischen und optoelektrischen Eigenschaften im Detail betrachtet.

2.3.1. Aufbau

Die folgenden Ausführungen beschränken sich auf VN-Zellen transmissiver Art. Sollen Flüssigkristallzellen für die Lichttransmission in Gebäudeverglasungen eingesetzt werden, so sind transmissive Flüssigkristallzellen notwendig.

Wie in Abbildung 2.5 schematisch dargestellt, besteht eine VN-Zelle aus einer dünnen TFK-Schicht, die zwischen zwei Festkörpern, in der Regel Glas oder Kunststoffolie, eingebettet ist. Die beiden Festkörper sind am Umfang durch einen Klebstoff miteinander verbunden und bilden so eine geschlossene Zelle. Durch eingebrachte Abstandshalter (engl. *spacer*) besitzt die TFK-Schicht eine definierte Dicke. Die TFK sind auf beiden Seiten in Kontakt mit jeweils einer Orientierungsschicht. Die TFK-Schicht selbst enthält einen Dotierstoff, der eine helixartige Verdrillung der TFK mit definierter Ganghöhe bewirkt. Die Ganghöhe entspricht der vierfachen TFK-Schichtdicke, so dass sich über die Zelldicke eine Verdrillung um 90° ergibt. Die Orientierungsrichtungen der einschließenden Orientierungsschichten sind ebenfalls um 90° gegeneinander verdreht.

Die umschließenden Festkörper der Zelle sind transparent und vor und hinter der TFK-Schicht befindet sich im Lichtweg jeweils ein Polarisator. Der erste Polarisator – im Folgenden Eingangspolarisator – bewirkt einen definierten Polarisationszustand des einfallenden Lichts, während der zweite Polarisator – im Folgenden Ausgangspolarisator – auf das polarisierte Licht nach dem Durchlaufen der TFK-Schicht wirkt. In der Regel handelt es sich bei den Polarisatoren um außen aufgebraute Folienpolarisatoren (siehe Abbildung 2.5).

Um die Orientierung der TFK-Moleküle beeinflussen zu können, wird ein elektrisches Feld über die TFK-Schicht angelegt. Zu diesem Zweck befinden sich auf den gegenüberliegenden Innenflächen der Zellen transparente Elektroden, üblicherweise aus Indiumzinnoxid (ITO, von engl. *indium tin oxide*). Zwischen diesen Elektroden wird die Ansteuerspannung angelegt, die das benötigte elektrische Feld zwischen den Elektroden hervorruft.

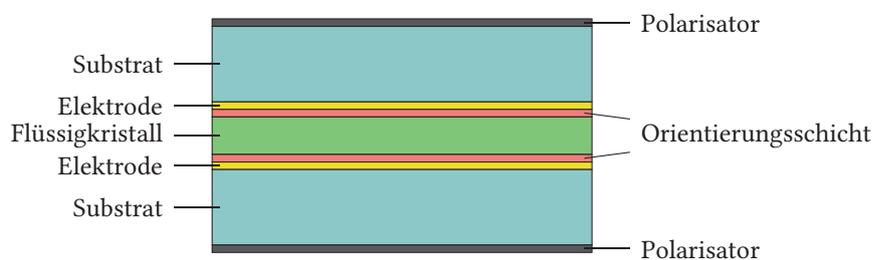


Abbildung 2.5.: Typischer Aufbau einer VN-Zelle im Querschnitt (vgl. [16])

2.3.2. Funktionsprinzip

In Abbildung 2.6 ist das Funktionsprinzip einer transmissiven VN-Zelle dargestellt, bei der die Durchlassrichtungen von Eingangspolarisator und Ausgangspolarisator um 90° gegeneinander verdreht sind (vgl. [5]). Die Darstellung ist auf solches Licht beschränkt, dessen Einfallrichtung senkrecht zur Oberfläche der VN-Zelle orientiert ist.

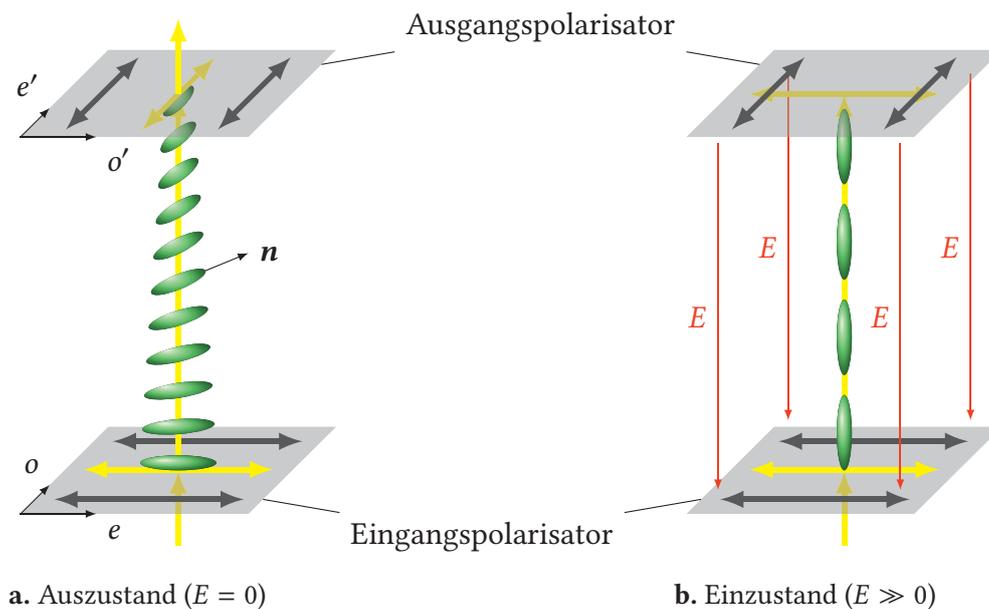


Abbildung 2.6.: Funktionsprinzip einer transmissiven VN-Zelle mit senkrecht zueinander orientierten Polarisatoren

Ist kein elektrisches Feld angelegt (s. Abbildung 2.6a), dann wird die Polarisationsrichtung des eintretenden, linear polarisierten Lichts um 90° gedreht, während es die Flüssigkristallschicht durchläuft. Nach dem Austreten aus der Flüssigkristallschicht ist die Polarisationsrichtung des Lichts parallel zur Durchlassrichtung des Ausgangspolarisators orientiert. Das Licht kann ungehindert hindurchtreten.

Wird ein elektrisches Feld an die Zelle angelegt (s. Abbildung 2.6b), dann richten sich die TFK-Moleküle entlang der elektrischen Feldlinien aus (in VN-Zellen werden Flüssigkristalle mit positiver dielektrischer Anisotropie $\Delta\epsilon > 0$ eingesetzt). Das einfallende Licht bewegt sich entlang der Direktorrichtung und damit auch entlang der optischen Achse des TFK. Das Licht erfährt keine Änderung der Polarisationsrichtung. Nachdem das Licht aus der Flüssigkristallschicht ausgetreten ist, wird es vom Ausgangspolarisator blockiert.

2.3.3. Optische Eigenschaften

Ausgehend von der Anordnung in Abbildung 2.6a wird im Folgenden dargelegt, wie die Modulation des Lichts durch die VN-Zelle mathematisch beschrieben werden kann.

Die Durchlassrichtung des linearen Eingangspolarisators sei parallel zum lokalen Direktor n an der Eingangsseite der TFK-Schicht orientiert. Die Einfallsrichtung des Lichts sei senkrecht zur Zellenoberfläche orientiert.

Zunächst sei die Durchlassrichtung des linearen Ausgangspolarisators parallel zu der des Eingangspolarisators orientiert. Diese Betriebsart wird als normal-schwarz (engl. *normally black*) bezeichnet [5], weil die VN-Zelle im Normalfall, d. h. solange kein elektrisches Feld angelegt ist, eintretendes Licht blockiert. Die VN-Zelle erscheint „schwarz“. Nach [5] gilt in diesem Fall für die Gesamttransmission:

$$\mathcal{T}_{\text{NS}} = \frac{1}{2} \frac{\sin^2\left(\frac{\pi}{2} \sqrt{1+u^2}\right)}{1+u^2}, \quad (2.9)$$

wobei der Mauguin-Parameter u in Abhängigkeit der TFK-Schichtdicke h , der optischen Anisotropie Δn und der Wellenlänge λ definiert ist als:

$$u = 2h \frac{\Delta n}{\lambda}. \quad (2.10)$$

Ist die Durchlassrichtung des Ausgangspolarisators senkrecht zu der des Eingangspolarisators orientiert, so ergibt sich nach [5] die Gesamttransmission zu:

$$\mathcal{T}_{\text{NW}} = \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \frac{\sin^2\left(\frac{\pi}{2} \sqrt{1+u^2}\right)}{1+u^2}. \quad (2.11)$$

Diese Betriebsart wird als normal-weiß (engl. *normally white*) bezeichnet, da eintretendes Licht im Normalfall die VN-Zelle passieren kann. Die VN-Zelle erscheint „weiß“. Dies ist die übliche Betriebsart einer VN-Zelle, weil der in der Praxis erzielbare Kontrast höher ist als in der Normal-Schwarz-Betriebsart [5]. Im Folgenden wird nur noch die Normal-Weiß-Betriebsart betrachtet.

Die Transmission nimmt gemäß Gleichung (2.11) für $u = \sqrt{3}$, $u = \sqrt{15}$, $u = \sqrt{35}$,... das Maximum von $\mathcal{T}_{\text{NW}} = \frac{1}{2}$ an. In diesen Fällen tritt auf der Ausgangsseite der TFK-Schicht linear polarisiertes Licht aus. Exakt gilt dies jedoch nur, wenn Wellenlänge, TFK-Schichtdicke und optische Anisotropie aufeinander abgestimmt sind, da u entsprechend (2.10) von diesen drei Größen abhängt.

Ist die Mauguin-Bedingung $u \gg 1$ erfüllt – z. B. für große Werte von h –, folgt aus Gleichung (2.11) ebenfalls [5]:

$$\mathcal{T}_{\text{NW}} \approx \frac{1}{2}. \quad (2.12)$$

Das Maximum ist also für große TFK-Schichtdicken näherungsweise unabhängig von der Wellenlänge. Die Verdrillungsrate der TFK-Schicht ist in diesem Fall klein genug, damit sich die lineare Polarisationszustand scheinbar mit den verdrillten Direktoren mitdreht [5]. Dieser Effekt wird als Wellenleitung bezeichnet.



2.3.4. Betriebsarten

Für Bildschirmwandungen werden VN-Zellen üblicherweise im 1. Maximum der Transmissionsfunktion (vgl. Gleichung (2.11)) betrieben, d. h. $u = \sqrt{3}$. Zwar ist der Wellenleitungseffekt in diesem Fall nicht ausgeprägt, aber die VN-Zelle ist dünn, so dass die Transmission eine geringe Abhängigkeit vom Blickwinkel aufweist [5].

Im Rahmen dieser Arbeit wurden VN-Zellen für die Betriebsart im 2. und 5. Maximum, d. h. $u = \sqrt{15}$ und $u = \sqrt{99}$, gebaut. In diesen Fällen ist die TFK-Schichtdicke größer. Das ermöglicht, auf einfachere Herstellungsprozesse zurückgreifen zu können: Es können während der Herstellung größere Partikel vorhanden sein, so dass die Anforderungen an die Reinraumklasse geringer sind. Weiterhin sind die Nebenminima der Maxima höherer Ordnung deutlich kleiner als solche des 1. Maximum [5], was bedeutet, dass gewisse Schwankungen des Mauguin-Parameters u und damit Schwankungen der TFK-Schichtdicke h einen geringeren Einfluss auf die Transmission haben. Es ist daher bei Betrieb in höherem Maximum zu erwarten, dass Schwankungen der TFK-Schichtdicke über die Flüssigkristallzellenfläche hinweg die Homogenität des Weißwertes in geringerem Maße beeinflussen.

2.3.5. Elektrooptische Eigenschaften

Wird eine elektrische Spannung an die Elektroden angelegt, bewirkt das elektrische Feld zwischen diesen eine Ausrichtung der TFK. Aufgrund der mechanischen Eigenschaften des Flüssigkristalls beginnen sich die TFK erst ab einer gewissen Schwellenspannung auszurichten.

Mit steigender Spannung richten sich die Flüssigkristalle annähernd entlang der elektrischen Feldlinien aus, so dass das senkrecht einfallende Licht nur den ordentlichen Brechungsindex n_o erfährt. Damit tritt keine Doppelbrechung mehr auf, das polarisierte Licht trifft unabhängig von der Wellenlänge ungehindert auf den Ausgangspolarisator und wird dort im Fall von NW-Zellen blockiert. Damit hängt der Schwarzwert der VN-Zelle, d. h. die Transmission im Schwarzzustand der Zelle $\mathcal{T}_{\text{schwarz}}$, nur von der Güte der Polarisatoren und der exakt senkrechten Ausrichtung ihrer Polarisationsrichtungen zueinander ab.

Für die Anwendung in einer schaltbaren Verglasung ist der Schalthub entscheidend. Dieser ist folgendermaßen definiert [4]:

$$\mathcal{T}_H = \mathcal{T}_{\text{weiß}} - \mathcal{T}_{\text{schwarz}}, \quad (2.13)$$

wobei $\mathcal{T}_{\text{weiß}}$ den Weißwert, also im Fall einer NW-Zelle die Transmission im spannungsfreien Zustand bezeichnet. Der Schalthub ist als Differenz zwischen den beiden Extremzuständen

einer Zelle definiert. Er ist ein Maß dafür, um welchen Betrag die Strahlungsleistung variiert werden kann, die im Fall einer schaltbaren Verglasung den Innenraum erreichen kann.

2.4. Dünnschichtpolarisator

In dieser Arbeit wird ein lyotroper Flüssigkristall (LFK) als Grundlage für einen Dünnschichtpolarisator eingesetzt. Der LFK (siehe Kapitel 2.2.2) besteht aus Tensiden mit planarem Mittelteil, die sich in einer wässrigen Lösung befinden [17]. Bei den Tensiden handelt es sich um Farbstoffe, deren Absorptionsspektren so eingestellt sind, dass sie nahezu das gesamte sichtbare Spektrum der elektromagnetischen Strahlung abdecken.

Bei dem eingesetzten LFK handelt es sich um eine Weiterentwicklung des LFK der früheren Firma Optiva. Aktuell ist dieser LFK jedoch nicht im freien Verkauf. Es wird davon ausgegangen, dass die grundsätzlichen Aussagen der früheren Optiva-Veröffentlichungen [17–19] auf den vorliegenden LFK übertragbar sind.

2.4.1. Chemischer Aufbau

Laut [18, 19] besteht der LFK aus dreierlei Farbmolekülen, die in den Abbildungen 2.7, 2.8 und 2.9 in ihren Strukturformeln dargestellt sind. Allen Farbmolekülen gemein ist ein hydrophober

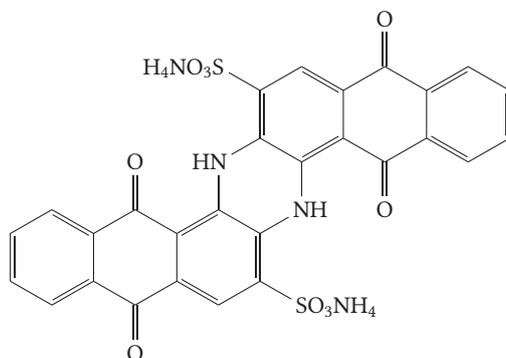


Abbildung 2.7.: Blau absorbierendes LFK-Farbmolekül nach [18, 19]

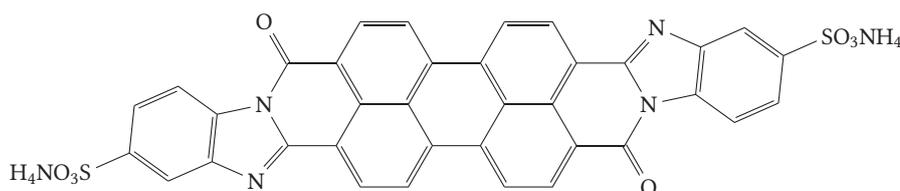


Abbildung 2.8.: Violett absorbierendes LFK-Farbmolekül nach [18, 19]

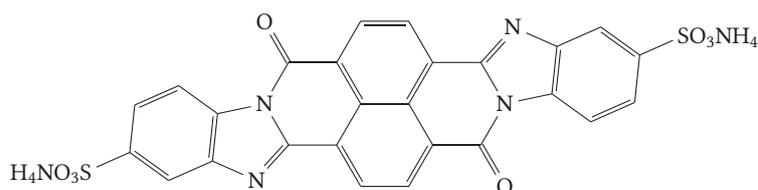


Abbildung 2.9.: Orange absorbierendes LFK-Farbmolekül nach [18, 19]

Mittelteil und hydrophile, ionische Sulfongruppen im Randbereich [18, 19]. Aufgrund der Bindungsart mit $[\text{NH}_4]^+$ handelt es sich um Säuren. Dies wird gleichermaßen durch den pH-Wert von 3,9 bestätigt, der im Datenblatt [20] angegeben ist.

Die Farbmoleküle lösen sich im Wasser und lagern sich bei geeigneter Molekülkonzentration aufgrund ihrer hydrophoben Mittelteile zu stabförmigen Supramolekülen zusammen [19]. Eine Schicht aus Supramolekülen kann nur dann als Polarisator wirken, wenn die Supramoleküle einheitlich orientiert sind und so eine optisch anisotrope Schicht vorliegt. Dazu müssen die Supramoleküle mechanisch ausgerichtet werden, was durch Scherkräfte oder hydrodynamische Kräfte geschehen kann. In Abbildung 2.10 sind drei parallel liegende Supramoleküle dargestellt. Die Scheiben repräsentieren die einzelnen Farbmoleküle. Die Pfeile geben die Auftragsrichtung und damit auch die Orientierung der Supramoleküle vor. Nach dem Schichtauftrag verdampft

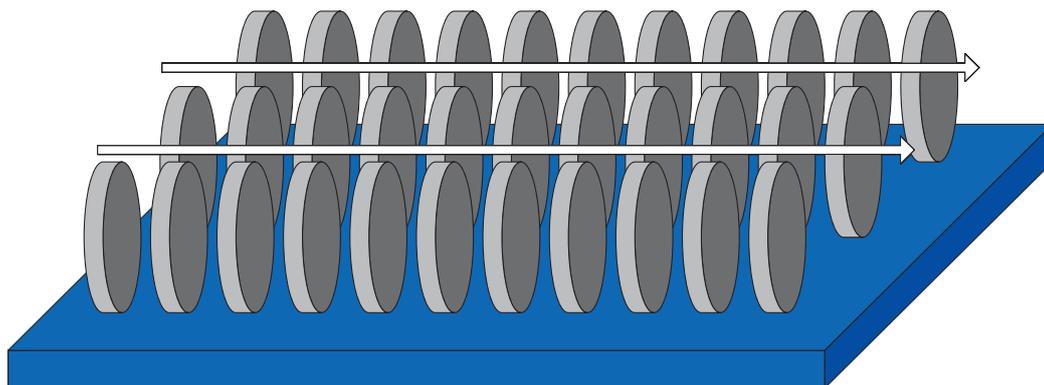


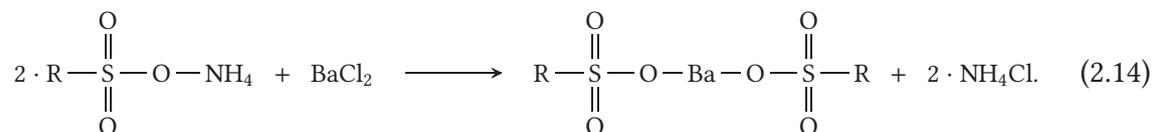
Abbildung 2.10.: LFK-Supramoleküle nach [17]

das Lösungsmittel Wasser, während sich die Supramoleküle zu einer dünnen, kristallinen Schicht zusammenlagern [17, 21]. Die Schicht ist weiterhin wasserlöslich. Deshalb wird sie vor weiteren Prozessschritten chemisch stabilisiert.

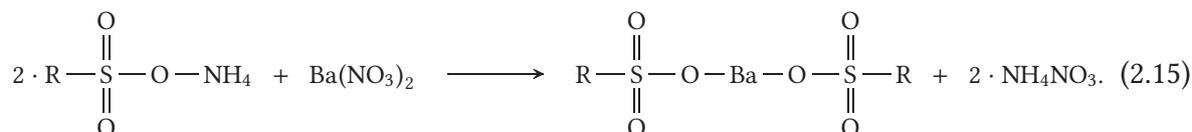
2.4.2. Stabilisierung

Der Dünnschichtpolarisator wird stabilisiert, indem die hydrophilen Sulfongruppen so verändert werden, dass die Farbmoleküle ihre Wasserlöslichkeit verlieren. Wird für den Stabilisie-

rungsprozess Bariumchlorid (BaCl_2) eingesetzt, läuft gemäß [18] zwischen den Sulfongruppen folgende Reaktion ab:



Aufgrund der Giftigkeit von Bariumchlorid wurde für die Versuche das ebenfalls wirksame, aber weniger schädliche Bariumnitrat ($\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$) eingesetzt. Die zugrundeliegende Stabilisierungsreaktion wird analog zur Reaktionsgleichung (2.14) folgendermaßen vermutet:



Als Reaktionsprodukt ergibt sich ungiftiges Ammoniumnitrat (NH_4NO_3). Im Gegensatz dazu wird Ammoniumchlorid (NH_4Cl) als gesundheitsschädlich eingestuft. In den Stabilisierungsreaktionen (2.14) und (2.15) werden die hydrophilen Ammoniumionen durch Bariumionen ersetzt. Die Bariumionen reagieren mit den Sulfongruppen, wodurch die Farbmoleküle wasserunlöslich werden. Je zwei Farbmoleküle werden durch ein Bariumatom miteinander verbunden, so dass sich eine gewisse Vernetzung ergibt.

2.4.3. Optisches Funktionsprinzip

Der Dünnschichtpolarisator kann näherungsweise als uniaxiales Material betrachtet werden. Sind die Supramoleküle einheitlich orientiert, entspricht die Auftragsrichtung der optischen Achse der kristallinen Polarisatorschicht³.

Der LFK-Polarisator entspricht einem E-Typ-Polarisator [22] (siehe Kapitel 2.1.3). In Richtung der optischen Achse, in welcher der Absorptionsindex κ_e wirkt, tritt kaum Absorption auf. Stark absorbiert wird jedoch senkrecht zur optischen Achse, wo κ_o wirkt. Es gilt also:

$$\begin{aligned} \kappa_e &\approx 0, \\ \kappa_o &\gg 0. \end{aligned} \quad (2.16)$$

³Eigentlich handelt es sich um ein biaxiales Material, da die Farbmoleküle nicht rotationssymmetrisch sind. In der Schicht ergeben sich unterschiedliche Absorptionsindices der Farbmoleküle senkrecht und parallel zur Substratebene.

2.5. Kathodenzerstäubungsverfahren

Dünne Schichten ($\approx 1 \mu\text{m}$) auf großen Flächen werden häufig im Kathodenzerstäubungsverfahren abgeschieden. Insbesondere ist das Verfahren auch in der Glasindustrie weit verbreitet, beispielsweise für Wärmeschutzschichten [23].

Das Kathodenzerstäubungsverfahren (engl. *sputter deposition*) wird auch als Sputtern bezeichnet. Das Grundprinzip des Verfahrens im Gleichstrombetrieb ist schematisch in Abbildung 2.11 dargestellt. Die flächige Kathode und die flächige Anode sind ähnlich einem Plattenkondensator

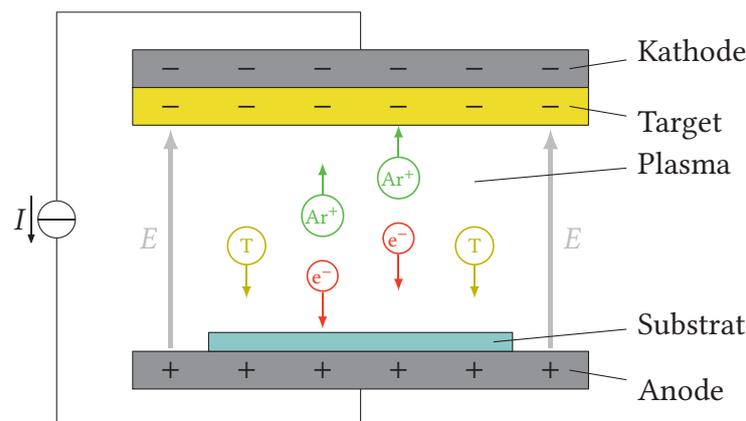


Abbildung 2.11.: Schema des Kathodenzerstäubungsprinzips

parallel angeordnet. Die Kathode ist elektrisch leitend mit dem Target verbunden, das aus dem abzuschneidenden Material besteht. Auf der Anodenseite befindet sich ein Substrat, das beschichtet werden soll. Die gesamte Anordnung befindet sich in einer gasdichten Kammer. Es wird zunächst eine Spannung angelegt, die ein elektrisches Feld E zwischen Anode und Kathode bewirkt.

Das Verfahren besteht nun aus zwei Teilprozessen: Die Abscheidungskammer wird mit einem Gas befüllt, üblicherweise mit Argon (Ar) [24]. Das elektrische Feld ionisiert das Argongas, ein Argonplasma entsteht. Die äußeren, negativ geladenen Elektronen (e^-) sind von den positiv geladenen Argonionen (Ar^+) getrennt. Die Ar^+ -Ionen setzen den eigentlichen Teilprozess der Zerstäubung in Gang, indem sie in Richtung Kathode beschleunigt werden und aus dem Target Moleküle (T) herausschlagen [24]. Im zweiten Teilprozess, dem Abscheideprozess, lagern sich diese Moleküle auf dem Substrat an und bilden mit der Zeit eine geschlossene Dünnschicht. Der in Gang gesetzte Teilchenfluss bewirkt einen Stromfluss, der im weiteren Verlauf auf einen Strom I begrenzt wird, so dass sich eine bestimmte Abscheiderate einstellt.

Der Abscheideprozess funktioniert nur dann, wenn in der Abscheidungskammer ein ausreichendes Vakuum herrscht, so dass die mittlere freie Weglänge in der Kammer ausreichend groß ist, um ein Auftreffen der Target-Moleküle auf dem Substrat zu ermöglichen. Gleichzeitig muss

ein ausreichend hoher Argondruck herrschen, um eine gewisse Zerstäubungsrate am Target zu erzielen. Um trotz der beiden gegensätzlichen Anforderungen eine ausreichend hohe Abscheiderate zu erhalten, ist in der Praxis zusätzlich ein Magnetfeld parallel zur Targetoberfläche vorhanden, das die Elektronen auf kreisförmige Bahnen zwingt [24]. Das Magnetfeld ist derart angeordnet, dass die Elektronenbahnen eine geschlossene Schleife bilden und so zu einer Elektronenfalle werden. Das erhöht die Kollisionsrate zwischen den Elektronen und den Argonatomen und führt so zu einer höheren Argonionendichte. Der Vakuumdruck kann dadurch verringert werden, was zu einer größeren mittleren freien Weglänge führt. Weiterhin erhöht sich durch die nun höhere Plasmadichte die Stromdichte am Target und somit auch die Zerstäubungsrate am Target. Zusammen mit der größeren mittleren freien Weglänge bewirkt dies eine höhere Abscheiderate [24].

Beim sogenannten reaktiven Sputtern ist dem Argon ein weiteres Gas beigemischt, etwa Sauerstoff, um die Schichtzusammensetzung unabhängig vom unveränderlichen Molekülverhältnis im Target einstellen zu können.

Das Kathodenzerstäubungsverfahren kann auch dazu genutzt werden, eine Substratoberfläche zu reinigen und die Oberflächenenergie heraufzusetzen. Dies geschieht dadurch, dass die Ionen direkt auf die Substratoberfläche geschossen werden; das Substrat nimmt die Stelle des Targets ein.

2.6. Transparente leitfähige Oxide

Transparente leitfähige Oxide (TCO, von engl. *transparent conductive oxide*) sind halbleitende Oxidverbindungen, die aufgrund ihrer Bandlücke sowohl sichtbares Licht durchlassen als auch aufgrund einer durch hohe Dotierung bewirkten Entartung Strom leiten können. Ein häufig eingesetztes Beispiel ist ITO, ein Zinn-dotierter Indiumoxid-Halbleiter [25].

Von besonderem Interesse ist bei leitfähigen Dünnschichten der spezifische Widerstand ρ_s . Der Widerstand R eines Schichtstreifens der Länge l , der Breite b und der Dicke h beträgt:

$$R = \rho_s \frac{l}{b \cdot h}. \quad (2.17)$$

Betrachtet man nun eine quadratische Fläche, gilt wegen $l = b$:

$$R = \frac{\rho_s}{h} =: R_{\square}, \quad (2.18)$$

wobei R_{\square} als Flächenwiderstand bezeichnet wird und die Einheit Ω/\square besitzt [25]. Er gibt den Widerstand einer beliebigen quadratischen Fläche an. Der Flächenwiderstand wird direkt mit Hilfe des Vierpunktmessverfahrens ermittelt. Die Schichtdicke wird an einem Schichtsprung mit Hilfe eines Kontaktprofilometers gemessen.

Die optischen Eigenschaften der Dünnschichten werden mit einem Spektrometer bestimmt. Hierbei ist insbesondere die wellenlängenabhängige Transmission von Interesse. Abhängig von der Schichtdicke tritt auch Absorption auf.

2.7. Grundlagen der Strömungsmechanik

Zum Verständnis der Grundlagen der Nassfilmbeschichtungsverfahren, aber auch für das Verständnis der Hintergründe zum Befüllen von TFK-Zellen ist es hilfreich, zunächst in die allgemeinen Grundlagen der Strömungsmechanik einzuführen: Es werden gewisse Grundgrößen und Grundgleichungen definiert und hergeleitet, um darauf aufbauend zwei einfache Strömungsarten vorzustellen, die Poiseuille- und die Couette-Strömung. Es werden verschiedene Arten von Randbedingungen präsentiert, die allgemein notwendig sind, um strömungsmechanische Differentialgleichungen zu lösen. Abschließend werden typische Kennzahlen definiert, die dazu dienen, die Art der vorliegenden Strömung abzuschätzen.

2.7.1. Grundgrößen

In der Strömungsmechanik werden Flüssigkeiten und Gase unter dem Begriff „Fluid“ zusammengefasst. Der wesentliche Unterschied besteht darin, dass das Fluid „Gas“ kompressibel ist, während dies beim Fluid „Flüssigkeit“ im Allgemeinen nicht der Fall ist. Grundlegende Größen in der Strömungsmechanik sind Schubspannung, Viskosität, Oberflächenspannung, Druck und Dichte.

Die skalare Größe der Schubspannung τ ist nach [26] wie folgt definiert:

$$\tau = \frac{dF_t}{dA}, \quad (2.19)$$

wobei F_t die tangential zur Fläche A aufgewandte Kraft bezeichnet. Dies ist in Abbildung 2.12 illustriert, wo sich die obere Fläche A aufgrund einer Kraft F_t mit der Geschwindigkeit U parallel zur unbewegten unteren Fläche über ein Fluid bewegt, das sich dazwischen befindet.

Besteht bei Betrachtung eines Geschwindigkeitsprofils $v_x(y)$ eine lineare Abhängigkeit der Schubspannung vom Geschwindigkeitsgradienten entsprechend

$$\tau_{xy} = \eta \frac{dv_x}{dy}, \quad (2.20)$$

so wird das zugrunde liegende Fluid als ein Newton'sches Fluid bezeichnet. Der Proportionalitätsfaktor η bezeichnet die dynamische Viskosität des Fluids mit der Einheit

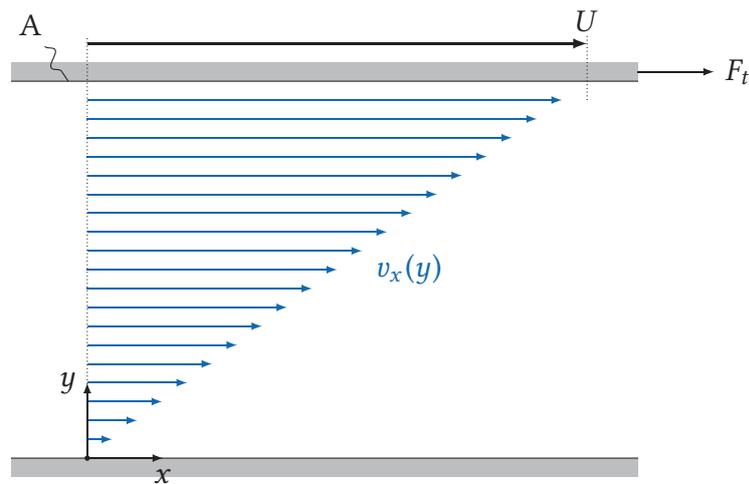


Abbildung 2.12.: Definition der Schubspannung τ und Geschwindigkeitsverteilung der Couette-Strömung [26]

$$\frac{\text{N} \cdot \text{s}}{\text{m}^2} = \text{Pa} \cdot \text{s}.$$

Der Geschwindigkeitsgradient

$$\dot{\gamma} = \frac{dv_x}{dy} \quad (2.21)$$

heißt Schergeschwindigkeit (auch Scherrate genannt) und ist die zeitliche Ableitung der Scherverformung $\gamma = \frac{dx}{dy}$.

Die Oberflächenspannung σ ist definiert als Kraft F pro Linienelement der Länge l in der Oberfläche [27]:

$$\sigma = \frac{dF}{dl}. \quad (2.22)$$

Die Kraft F wirkt senkrecht zum Linienelement l .

Eine weitere wichtige Größe ist der Druck p , definiert durch die senkrecht zur Fläche A wirkende Normalkraft F_n :

$$p = \frac{dF_n}{dA}. \quad (2.23)$$

Schließlich ist die Massendichte ρ definiert als Masse m pro Volumen V :

$$\rho = \frac{dm}{dV}. \quad (2.24)$$

Die ideale Gasgleichung beschreibt den Zusammenhang zwischen Druck, Temperatur und Volumen [26, 28]:

$$p \cdot V = N \cdot R_g \cdot T, \quad (2.25)$$

wobei V das eingeschlossene Volumen, N die Stoffmenge, R_g die gasspezifische molare Gas-konstante und T die Temperatur bezeichnen.

2.7.2. Grundgleichungen

Die Betrachtungen in diesem Kapitel sind in Anlehnung an [26] dargestellt.

Die kontinuumsmechanischen Gleichungen zur Betrachtung strömungsmechanischer Vorgänge bestehen aus den Grundgleichungen zu Masseerhaltung, Impulserhaltung und Energieerhaltung. Ergänzt werden sie durch thermodynamische Zustandsgleichungen. In dieser Arbeit sollen jedoch noch nur inkompressible, stationäre Strömungen ohne Wärmeübertragung betrachtet werden. Ohne Wärmeübertragung fallen die thermodynamischen Zustandsgleichungen weg. Bei inkompressiblen Strömungen wird die Dichte ρ als konstant angenommen. Lediglich eine Abhängigkeit von der Temperatur besteht. Daher beschränken sich die folgenden Betrachtungen auf die Grundgleichungen zu Masseerhaltung und Impulserhaltung.

Die Grundgleichung zur Masseerhaltung, auch Kontinuitätsgleichung genannt, lautet in ihrer allgemeinen Form:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0 \quad (2.26)$$

bzw. in kartesischen Koordinaten entsprechend:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho v_x)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v_y)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho v_z)}{\partial z} = 0, \quad (2.27)$$

wobei t die Zeit, $\mathbf{r} = \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}$ den Ortsvektor und $\mathbf{v} = \begin{pmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{pmatrix}$ den Geschwindigkeitsvektor bezeichnen. Die Kontinuitätsgleichung stellt die zeitliche Änderung der Masse in einem Volumenelement als Differenz der Summe der einströmenden und der ausströmenden Massenströme dar.

Für eine stationäre, inkompressible Strömung, d. h. eine Strömung mit inkompressiblem Fluid und mit konstanter Dichte ρ , vereinfacht sich Gleichung (2.26) zu:

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (2.28)$$

bzw. in kartesischen Koordinaten zu:

$$\frac{\partial(\rho v_x)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v_y)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho v_z)}{\partial z} = 0. \quad (2.29)$$

Die Grundgleichung zur Impulserhaltung, auch unter dem Namen Navier-Stokes-Gleichung bekannt, lautet unter der Voraussetzung inkompressibler Strömungen und Newton'scher Medien:

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} \right) = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{v} + \mathbf{k} \quad (2.30)$$

bzw. in kartesischen Koordinaten:

$$\begin{aligned} \rho \left(\frac{\partial v_x}{\partial t} + v_x \frac{\partial v_x}{\partial x} + v_y \frac{\partial v_x}{\partial y} + v_z \frac{\partial v_x}{\partial z} \right) &= -\frac{\partial p}{\partial x} + \eta \left(\frac{\partial^2 v_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v_x}{\partial z^2} \right) + k_x, \\ \rho \left(\frac{\partial v_y}{\partial t} + v_x \frac{\partial v_y}{\partial x} + v_y \frac{\partial v_y}{\partial y} + v_z \frac{\partial v_y}{\partial z} \right) &= -\frac{\partial p}{\partial y} + \eta \left(\frac{\partial^2 v_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_y}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v_y}{\partial z^2} \right) + k_y, \\ \rho \left(\frac{\partial v_z}{\partial t} + v_x \frac{\partial v_z}{\partial x} + v_y \frac{\partial v_z}{\partial y} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) &= -\frac{\partial p}{\partial z} + \eta \left(\frac{\partial^2 v_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_z}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} \right) + k_z, \end{aligned} \quad (2.31)$$

wobei $\mathbf{k} = \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \\ k_z \end{pmatrix}$ die Zusammenfassung aller auf die im Volumen befindliche Masse wirkenden Volumenkräfte in der Einheit N/m^3 beschreibt. Zu diesen gehören beispielsweise die Gewichtskraft oder elektrische und magnetische Kräfte. Die Größe ∇p bezeichnet den Druckgradienten. Die Navier-Stokes-Gleichung stellt die zeitliche Änderung des Impulses in einem Volumenelement in Abhängigkeit der Summe der einströmenden Impulsströme, der Summe der ausströmenden Impulsströme, der Summe der auf das Volumenelement wirkenden Scherkräfte und Normalspannungen, und der auf die Masse des Volumenelements wirkenden Kräfte dar.

Für die weiteren Betrachtungen spielen unter den Kräften, die von außen auf die im Volumen befindliche Masse wirken, lediglich die Gewichtskraft eine Rolle. Daher gilt im Folgenden:

$$\mathbf{k} = -\rho \cdot \mathbf{g}, \quad (2.32)$$

wobei \mathbf{g} die Erdbeschleunigung bezeichnet. Da nur stationäre Strömungen betrachtet werden sollen, für die $\frac{d\mathbf{v}}{dt} = 0$ gilt, vereinfacht sich Gleichung (2.30) zusammen mit der Beziehung (2.32):

$$\rho (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{v} - \rho \mathbf{g}. \quad (2.33)$$



2.7.3. Die Poiseuille-Strömung

Bei der Poiseuille-Strömung handelt es sich um eine ebene, stationäre Kanalströmung. Ausgehend von der Navier-Stokes-Gleichung für inkompressible und stationäre Strömungen (2.33) soll das Geschwindigkeitsprofil der Poiseuille-Strömung hergeleitet werden [26] (siehe Abbildung 2.13). Da es sich um eine horizontale Strömung handelt, hat die Erdbeschleunigung \mathbf{g} keinen Einfluss auf die Strömung, so dass der Term $\rho\mathbf{g}$ wegfällt. Weiterhin handelt es sich um ein zweidimensionales Problem, d. h. der Kanal ist in z -Richtung unendlich ausgedehnt, so dass nur die x - y -Ebene betrachtet werden muss. Die Strömung soll in x -Richtung fließen und in y -Richtung geschichtet sein. Es treten also nur Geschwindigkeitskomponenten v_x in x -Richtung auf. Aus Gleichung (2.31) ergibt somit eine vereinfachte Navier-Stokesgleichung für den zweidimensionalen Fall:

$$\rho v_x \frac{\partial v_x}{\partial x} = -\frac{\partial p}{\partial x} + \eta \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} + \eta \frac{\partial^2 v_x}{\partial x^2}. \quad (2.34)$$

Da eine ausgebildete Strömung betrachtet werden soll, das heißt der Kanal soll in x -Richtung unendlich ausgedehnt sein, treten in x -Richtung keine Geschwindigkeitsänderungen auf und es gilt:

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} = 0. \quad (2.35)$$

Des Weiteren ist der Druckgradient entlang des Kanals konstant, so dass gilt:

$$\frac{\partial p}{\partial x} = \text{konst.} \quad (2.36)$$

Da $v_x = v_x(y)$ gilt, ergibt sich Gleichung (2.34) mit den Voraussetzungen (2.35) und (2.36) zu:

$$\frac{dp}{dx} = \eta \frac{d^2 v_x}{dy^2}. \quad (2.37)$$

Diese Differentialgleichung kann durch Variablentrennung gelöst werden. An den Grenzflächen des Kanals bei $y = 0$ und $y = d$ beträgt die Strömungsgeschwindigkeit $v_x(y) = 0$. Somit gelten die beiden Randbedingungen:

$$v_x(d) = 0 \text{ und} \quad (2.38a)$$

$$v_x(0) = 0. \quad (2.38b)$$

Es ergibt sich das folgende parabolische Geschwindigkeitsprofil (siehe auch Abbildung 2.13):

$$v_x(y) = \frac{1}{2\eta} \frac{dp}{dx} (y^2 - y \cdot d). \quad (2.39)$$

Das Maximum der Strömungsgeschwindigkeit liegt in der Kanalmitte.

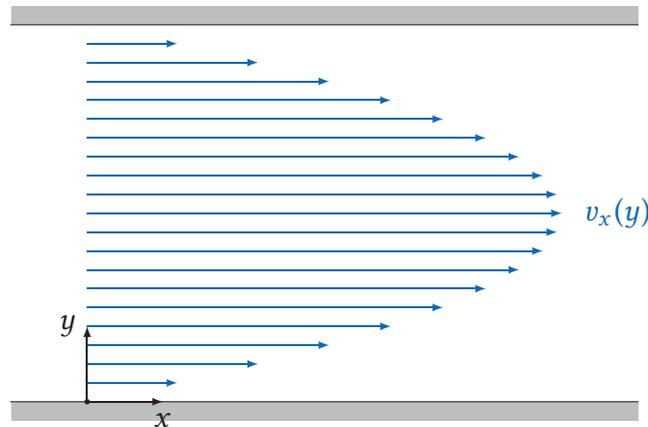


Abbildung 2.13.: Geschwindigkeitsverteilung der Poiseuille-Strömung [26]

2.7.4. Die Couette-Strömung

Es werden zwei unendlich ausgedehnte Platten angenommen, von denen die untere feststehend ist, während die obere mit einer konstanten Geschwindigkeit U in x -Richtung bewegt wird. Im Gegensatz zur Poiseuille-Strömung ist der von außen aufgeprägte Druck konstant, so dass die zusätzliche Voraussetzung $\frac{dp}{dx} = 0$ gilt. Die Navier-Stokes-Gleichung der Poiseuille-Strömung (2.37) vereinfacht sich zu [26]:

$$\frac{d^2 v_x}{dy^2} = 0. \quad (2.40)$$

Bei $y = d$ bewegt sich das Fluid mit der Geschwindigkeit U der Platte mit, während es sich bei $y = 0$ nicht bewegt. Die Randbedingungen ergeben sich somit zu:

$$v_x(d) = U \text{ und} \quad (2.41a)$$

$$v_x(0) = 0. \quad (2.41b)$$

Für die Couette-Strömung ergibt sich so ein lineares Strömungsprofil (siehe auch Abbildung 2.12):

$$v_x(y) = \frac{U}{d}x. \quad (2.42)$$

2.7.5. Randbedingungen und Kennzahlen

Da die analytische Lösung der Grundgleichungen der Strömungsmechanik in ihrer allgemeinen Form aufwendig ist, können wie im Fall von Poiseuille- und Couette-Strömung aufgrund von Randbedingungen und physikalischen Eigenschaften der Fluide in der Regel Vereinfachungen getroffen werden. Zur Verallgemeinerung werden nun verschiedene Arten von Randbedingungen betrachtet und nachfolgend einige Kennzahlen definiert, mit deren Hilfe die Strömungsberechnungen in Kapitel 2.8.1 vereinfacht werden können.

Für eine allgemeine Betrachtung der Randbedingungen sollen zwei Fluidphasen 1 und 2 mit einer gemeinsamen Grenzfläche Φ (siehe Abbildung 2.14) betrachtet werden. Dabei werde nur ein lokal begrenztes Volumen betrachtet, innerhalb dessen sich die Eigenschaften der Fluidphasen und der Grenzfläche nicht ändern.

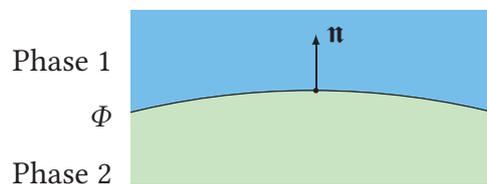


Abbildung 2.14.: Fluidphasen 1 und 2 mit Grenzfläche Φ

2.7.5.1. Die kinematischen Randbedingungen

Nach [29] kann mit Hilfe der Kontinuitätsgleichung die sogenannte kinematische Randbedingung hergeleitet werden. Sie ist aufgeteilt in eine Randbedingung für die Normalkomponenten und eine Randbedingung für die Tangentialkomponenten.

Betrachtet man nur die Normalkomponenten der Geschwindigkeiten, d. h. die Geschwindigkeitskomponenten orthogonal zur Grenzfläche, so ergibt sich folgende Gleichung:

$$\rho_1 (\mathbf{v}_1 - \mathbf{v}_\Phi) \cdot \mathbf{n} = \rho_2 (\mathbf{v}_2 - \mathbf{v}_\Phi) \cdot \mathbf{n}, \quad (2.43)$$

wobei \mathbf{v}_1 und \mathbf{v}_2 die lokalen Fluidgeschwindigkeitsvektoren der Fluidphasen 1 und 2 an der Grenzfläche und ρ_1 und ρ_2 deren Massendichten bezeichnen. Der Vektor \mathbf{n} bezeichnet den Einheitsvektor orthogonal zur Grenzfläche, während \mathbf{v}_Φ den Geschwindigkeitsvektor der Grenzfläche bezeichnet. Die Gleichung besagt, dass die Masse auch über Phasengrenzen hinweg erhalten bleiben muss.

Ein häufiger Sonderfall ist, dass eine Fluidphase aus einem Festkörper besteht: Sei Fluidphase 1 ein Festkörper. Weil kein Massetransfer stattfindet, müssen die Normalkomponenten der

Geschwindigkeiten⁴ von Festkörper und Grenzfläche identisch sein, also:

$$\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{n} = \mathbf{v}_\Phi \cdot \mathbf{n}. \quad (2.44)$$

Damit fällt die linke Seite der Gleichung (2.43) weg und es ergibt sich eine vereinfachte kinematische Randbedingung:

$$\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{n} = \mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{n}. \quad (2.45)$$

Diese Randbedingung gilt ebenso allgemein für Fluide, zwischen denen an ihrer Grenzfläche kein Massetransfer, also keine Vermischung, stattfindet.

Betrachtet man nun die tangentialen Geschwindigkeitskomponenten zweier Fluidphasen, so gilt allgemein:

$$\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{t} = \mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{t}, \quad (2.46)$$

wobei \mathbf{t} einen zur Grenzfläche tangentialen Einheitsvektor bezeichnet. Die Gleichung besagt, dass es an der Grenzfläche zwischen den zwei Fluidphasen keinen Schlupf geben darf.

Für den Fall, dass die Randbedingung (2.45) gültig ist, können die Randbedingungen für Normal- und Tangentialkomponenten zusammengefasst werden. So gilt für undurchdringliche Grenzflächen allgemein die folgende kinematische Randbedingung:

$$\mathbf{v}_1 = \mathbf{v}_2. \quad (2.47)$$

2.7.5.2. Die dynamischen Randbedingungen

Genau wie die Masse muss auch der Impuls über die Phasengrenzen hinweg erhalten bleiben. Dies wirkt sich auf Drücke und Spannungen aus. Die folgende Gleichung stellt in allgemeiner Form die dynamische Randbedingung für ein Impulsgleichgewicht an einer Grenzfläche Φ zwischen zwei Fluidphasen 1 und 2 dar [29]:

$$(p_1 - p_2)\mathbf{n} + \mathbf{n} \cdot (\boldsymbol{\tau}_2 - \boldsymbol{\tau}_1) + \nabla_{\text{II}}\sigma - \frac{\sigma}{R_m}\mathbf{n} = 0, \quad (2.48)$$

wobei $\nabla_{\text{II}} = \nabla - \mathbf{n} \cdot (\mathbf{n} \cdot \nabla)$ gilt. Die Schubspannungstensoren $\boldsymbol{\tau}_1$ und $\boldsymbol{\tau}_2$ beschreiben die Schubspannungen der jeweiligen Fluidphase und R_m ist der mittlere Krümmungsradius der Grenzfläche Φ . Im Fall Newton'scher Fluide und inkompressibler Strömungen gilt für $\boldsymbol{\tau}_i$ (vgl. Gleichung (2.20)):

$$\boldsymbol{\tau}_i = \eta_i \cdot \left[\nabla \mathbf{v}_i^T + (\nabla \mathbf{v}_i^T)^T \right] \quad \text{mit } i = 1, 2. \quad (2.49)$$

⁴Es ist möglich, dass sich auch der Festkörper und damit die Grenzfläche bewegen; i. Allg. gilt daher: $\mathbf{v}_\Phi \neq 0$.

Der Ausdruck $\nabla \mathbf{v}_i^T$ bezeichnet das dyadische Produkt⁵ [30] der Vektoren ∇ und \mathbf{v}_i . Über die Beziehung $\frac{1}{R_m} = \nabla_{\parallel} \cdot \mathbf{n}$ ist der Krümmungsradius der Grenzfläche mit der Flächennormalen verknüpft [29]. Der Radius R_m kann an jedem Punkt der Grenzfläche auf die Krümmungsradien R_1 und R_2 einer zweifach gekrümmten Grenzfläche [26] zurückgeführt werden:

$$\frac{1}{R_m} = \pm \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (2.50)$$

Die Kreise der Krümmungsradien R_1 und R_2 liegen in senkrecht zueinander orientierten Ebenen. Auf der Schnittgeraden der Ebenen liegt die jeweilige Flächennormale \mathbf{n} .

Im Folgenden wird die dynamische Randbedingung auf ihre Normalkomponenten und Tangentialkomponenten aufgeteilt. Aus der Bildung des Skalarprodukts aus \mathbf{n} und beiden Seiten der Gleichung (2.48) ergeben sich die Normalkomponenten der dynamischen Randbedingung:

$$(p_1 - p_2) + [\mathbf{n} \cdot (\boldsymbol{\tau}_2 - \boldsymbol{\tau}_1)] \cdot \mathbf{n} = \frac{\sigma}{R_m}, \quad (2.51)$$

Die Tangentialkomponenten der dynamischen Randbedingung werden durch die zwei linear unabhängigen, zur Grenzfläche tangentialen Einheitsvektoren \mathbf{t}_α und \mathbf{t}_β beschrieben:

$$[\mathbf{n} \cdot (\boldsymbol{\tau}_2 - \boldsymbol{\tau}_1) + \nabla_{\parallel} \sigma] \cdot \mathbf{t}_\alpha = 0 \quad \text{und} \quad (2.52a)$$

$$[\mathbf{n} \cdot (\boldsymbol{\tau}_2 - \boldsymbol{\tau}_1) + \nabla_{\parallel} \sigma] \cdot \mathbf{t}_\beta = 0. \quad (2.52b)$$

Die tangentialen dynamischen Randbedingungen sind insbesondere dann von Bedeutung, wenn entlang der Grenzfläche ein Gradient in der Oberflächenspannung σ vorhanden ist. So ist die Oberflächenspannung im Allgemeinen temperaturabhängig. Die Anwesenheit von Tensiden kann ebenfalls einen Gradienten in der Oberflächenspannung bewirken [29].

2.7.5.3. Kennzahlen

Im Folgenden werden mehrere dimensionslose Kennzahlen nach [29] und [26] eingeführt, die eine Auswertung von Strömungen hinsichtlich der Gültigkeit von Vereinfachungen erlauben. Einige Vereinfachungen, die für das nachfolgende Kapitel bei der Betrachtung der Schlitzdüsenbeschichtung wichtig sind, werden ausgeführt.

Die Reynoldszahl beschreibt das Verhältnis von Trägheitskräften zu Reibungskräften und ist nach dem Eliminieren geometrieabhängiger Größen wie folgt definiert:

$$Re = \frac{\rho v b}{\eta}, \quad (2.53)$$

⁵Für den Fall zweier dreidimensionaler Vektoren $\mathbf{a} = \begin{pmatrix} a_x \\ a_y \\ a_z \end{pmatrix}$ und $\mathbf{b} = \begin{pmatrix} b_x \\ b_y \\ b_z \end{pmatrix}$ gilt: $\mathbf{a}\mathbf{b}^T = \begin{pmatrix} a_x b_x & a_x b_y & a_x b_z \\ a_y b_x & a_y b_y & a_y b_z \\ a_z b_x & a_z b_y & a_z b_z \end{pmatrix}$.

wobei b der charakteristischen Dimension der Strömung entspricht, was je nach Situation z. B. Rohrdurchmesser oder Kanalbreite sein kann. Für große Reynoldszahlen dominieren die Trägheitskräfte, für kleine Reynoldszahlen die Reibungskräfte bzw. viskose Kräfte. In dieser Arbeit werden im Wesentlichen solche Strömungen betrachtet, für die $Re \ll 1$ gilt. Die Navier-Stokes-Gleichung aus (2.33) vereinfacht sich folgendermaßen:

$$0 = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{v} - \rho \mathbf{g}. \quad (2.54)$$

Solche Strömungen, bei denen die viskosen Kräfte den gesamten Strömungsbereich dominieren, werden auch als schleichende Strömungen bezeichnet [26]. Zudem handelt es sich um laminare Strömungen, d. h., das Fluid bewegt sich entlang parallel verlaufender Strömungslinien [29]. Für $Re \gg 1$ bildet sich eine dünne Grenzschicht an den Wänden, die weiterhin durch viskose Kräfte beeinflusst wird; von der Wand entfernt sind die viskosen Kräfte vernachlässigbar. Abhängig von der Geometrie treten ab einem kritischen Wert der Re -Zahl turbulente Strömungen auf. Ein in der Literatur oft genannter Wert, der für Rohrströmungen gilt, ist $Re = 2300$ [26, 29, 31].

Aufgrund der dynamischen Randbedingung beeinflusst die Oberflächenspannung σ eines Fluids an den Fluidgrenzflächen die Strömung. Diesen Einfluss beschreibt die Kapillarzahl Ka durch das Verhältnis von Reibungskräften zu Oberflächenspannungskräften. Nach dem Eliminieren geometrieabhängiger Größen wird die Kapillarzahl wie folgt definiert:

$$Ka = \frac{\eta v}{\sigma}. \quad (2.55)$$

Die Oberflächenspannung an der Grenzfläche einer Flüssigkeit (Fluidphase 1) zur Luft (Fluidphase 2) soll betrachtet werden. Es sei angenommen, dass die Auswirkungen der Reibungskräfte der Luft auf die Flüssigkeit vernachlässigbar sind, d. h. es gilt $\boldsymbol{\tau}_2 = 0$. Dies vereinfacht die Randbedingung (2.51):

$$(p_1 - p_2) - [\mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\tau}_1] \cdot \mathbf{n} = \frac{\sigma}{R_m}. \quad (2.56)$$

Mit Gleichung (2.49) ergibt sich aus Gleichung (2.56) nach beidseitiger Division durch σ folgende Gleichung:

$$\frac{1}{\sigma}(p_1 - p_2) - \frac{\eta}{\sigma} \mathbf{n} \cdot \left[\nabla \mathbf{v}_1^T + (\nabla \mathbf{v}_1^T)^T \right] \cdot \mathbf{n} = \frac{1}{R_m}. \quad (2.57)$$

In Gleichung (2.57) kann nun Ka aus Gleichung (2.55) eingesetzt werden:

$$\frac{1}{\sigma}(p_1 - p_2) - \frac{Ka}{|\mathbf{v}_1|} \mathbf{n} \cdot \left[\nabla \mathbf{v}_1^T + (\nabla \mathbf{v}_1^T)^T \right] \cdot \mathbf{n} = \frac{1}{R_m}. \quad (2.58)$$

Für $Ka \ll 1$ überwiegen die Oberflächenspannungskräfte gegenüber den Reibungskräften, so dass Gleichung (2.58) vereinfacht werden kann:

$$p_1 - p_2 = \frac{\sigma}{R_m}. \quad (2.59)$$

Diese Gleichung beschreibt die Beziehung zwischen Druckdifferenz und Oberflächenspannung an einer mit Radius R_m gewölbten Oberfläche. Es besteht keine Abhängigkeit mehr von der Strömungsgeschwindigkeit v . Bei kleiner Kapillarzahl kann eine Strömung näherungsweise als statisch betrachtet werden [29].

Eine weitere strömungsmechanische Kennzahl ist die Bondzahl, die als Verhältnis von Gravitationskräften zu Oberflächenspannungskräften definiert ist:

$$Bo = \frac{\rho g b}{\frac{\sigma}{b}} = \frac{\rho g b^2}{\sigma}, \quad (2.60)$$

wobei g die Erdbeschleunigung bezeichnet. Für $Bo \ll 1$ sind die Gravitationskräfte vernachlässigbar.

2.8. Beschichtungsverfahren für Nassfilmbeschichtungen

Nach [29] können Beschichtungsverfahren für Nassfilmbeschichtungen grob in vordosierende und selbstdosierende Beschichtungsverfahren unterteilt werden. Bei vordosierenden Beschichtungsverfahren wird die Schichtdicke durch die Vorgabe eines Volumenstroms eingestellt, bei selbstdosierenden Beschichtungsverfahren ergibt sich die Schichtdicke aus anderen Parametern des Verfahrens. Die wichtigsten Vertreter der vordosierenden Beschichtungsverfahren sind Schlitzdüsenbeschichtung (engl. *slot coating* oder auch *slot die coating*), Gießbeschichtung (engl. *slide coating*) und Vorhangbeschichtung (engl. *curtain coating*). Zu den selbstdosierenden Verfahren zählen Rakelbeschichtung, Tauchbeschichtung und Walzenbeschichtung. Aus der Reihe fällt ein weiteres selbstdosierendes Verfahren, die Rotationsbeschichtung (engl. *spin coating*). Im Unterschied zu den bereits genannten Verfahren handelt es sich nicht um ein lineares Beschichtungsverfahren und ist somit für die Herstellung von linear ausgerichteten LFK-Polarisatorschichten von vornherein ungeeignet.

Im Folgenden soll das Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren vorgestellt werden. Für die genauen Hintergründe, die zur Wahl dieses Verfahrens führten, sei auf Kapitel 5 verwiesen. Das Spiralarakelbeschichtungsverfahren wird im Anschluss ebenfalls kurz dargestellt, da es Grundlage einiger Vorversuche war.

2.8.1. Grundlagen der Schlitzdüsenbeschichtung

Das Grundprinzip des Schlitzdüsenbeschichtungsverfahrens ist in Abbildung 2.15 schematisch dargestellt. Es wird hier ausschließlich die Beschichtung von oben betrachtet, aber prinzipiell sind beliebige Beschichtungswinkel und auch Überkopfbeschichtungen möglich [32]. Das

Beschichtungsmedium wird bei konstanter Fließgeschwindigkeit von oben zugeführt und tritt durch die Düsenlippen unten aus dem Schlitz aus. Gleichzeitig wird das zu beschichtende Substrat in gleichförmiger Weise unter den Düsenlippen vorbeibewegt, wodurch sich auf dem Substrat ein Film einheitlicher Dicke bildet. Zwischen Düsenlippen und Substrat bilden sich

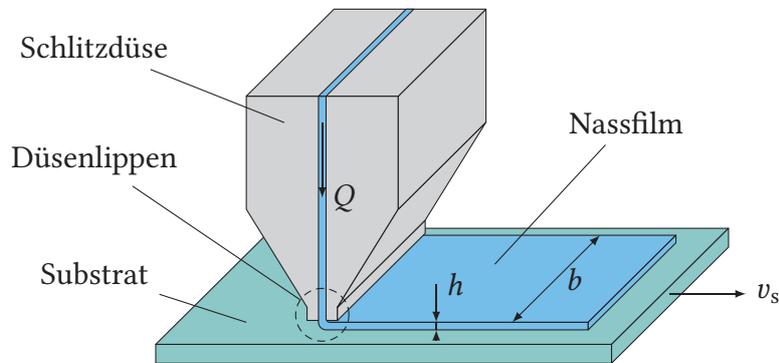


Abbildung 2.15.: Grundprinzip der Schlitzdüsenbeschichtung (vgl. [29, 33])

an jeder Lippe jeweils eine gewölbte Oberfläche aus, ein sogenannter Meniskus. Die beiden Menisken werden in einen benetzenden und einen filmbildenden Meniskus unterschieden. Die Nassschichtdicke h bezeichnet die Dicke des ungetrockneten Films, für die bei diesem Beschichtungsverfahren allgemein gilt [33]:

$$h = \frac{Q}{b \cdot v_s}. \quad (2.61)$$

In dieser Gleichung zeigt sich der große Vorteil dieses Beschichtungsverfahrens: Die Nassschichtdicke kann unabhängig vom Abstand zwischen Schlitzdüse und Substrat eingestellt werden, allein durch Vorgabe des Volumenstroms $Q = \dot{V} = \frac{dV}{dt}$ und der Geschwindigkeit v_s des Substrats. Die Bahnbreite b ist in aller Regel konstant. Allerdings ist die Beschichtung nur innerhalb bestimmter Grenzen des Abstands stabil, abhängig von den Eigenschaften des Beschichtungsmediums, der Geometrie der Schlitzdüse und der Substratgeschwindigkeit. Im Weiteren sollen diese Grenzen gemäß [33–35] und [29] hergeleitet werden.

2.8.1.1. Geometrie der Benetzung

In Abbildung 2.16 ist die Geometrie einer Schlitzdüse mit benetzendem Beschichtungsmedium gemäß [33–35] dargestellt. Die Beschichtungsrichtung entspricht der in Abbildung 2.15. Zur weiteren Betrachtung wird die Schlitzdüse in mehrere Bereiche unterteilt. Außerhalb der Schlitzdüse befinden sich der benetzende Bereich (b) und der filmbildende Bereich (f). Unter der Düse befinden sich der Bereich (1) unter der hinteren Düsenlippe, der Bereich (2) unter dem Zufluss und der Bereich (3) unter der vorderen Düsenlippe. Abweichend von der Zuordnung der Bereiche in Abbildung 2.16 bezeichnen p_1 und p_3 nur die Drücke unterhalb der Menisken

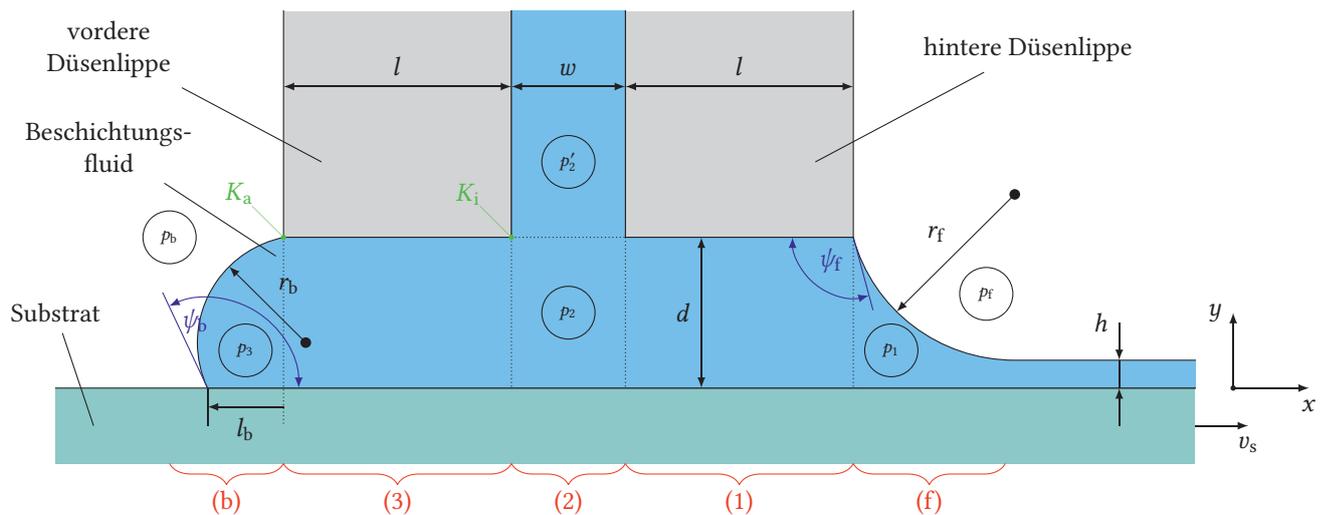


Abbildung 2.16.: Benetzungsverhältnisse an der Schlitzdüse im Querschnitt nach [36]

und nicht unter den Düsenlippen. Die beiden Menisken haften jeweils an der Außenkante der vorderen (K_a) bzw. hinteren Düsenlippe.

2.8.1.2. Strömungen

Im Folgenden sollen zunächst die vorherrschenden Strömungen im Zwischenraum von Düsenlippen und Substrat (Bereiche (1) und (3)) betrachtet werden. Es wird angenommen, dass für die Bondzahl $Bo \ll 1$ gilt und somit der Einfluss der Schwerkraft gegenüber dem Einfluss der Oberflächenspannung vernachlässigt werden kann. Weiterhin wird angenommen, dass aufgrund der kleinen Abmessungen und geringen Strömungsgeschwindigkeiten der Einfluss der Massenträgheit vernachlässigt werden kann, d. h. $Re \ll 1$.

Die Strömungen lassen sich aus der Kontinuitätsgleichung (2.28) und der Navier-Stokes-Gleichung (2.30) herleiten. Die Düsenlippen sind sehr kurz im Verhältnis zur Bahnweite, so dass $b \gg l$ gilt. Wie im bereits betrachteten Fall der Poiseuille- und der Couette-Strömung in Kapitel 2.7.3 und Kapitel 2.7.4 sind die Düsenlippen in z -Richtung deshalb näherungsweise unendlich ausgedehnt und im Zwischenraum wird eine ausgebildete Strömung angenommen, so dass hier eine zweidimensionale Betrachtungsweise ausreicht. Die Navier-Stokes-Gleichung vereinfacht sich somit (vgl. Gleichung (2.37)):

$$0 = -\frac{dp}{dx} + \eta \frac{d^2 v_x}{dy^2}. \quad (2.62)$$

Gemäß den kinematischen Randbedingungen (2.47) für die Grenzschicht zwischen Fluid und Festkörper gilt für die beiden Begrenzungen des Zwischenraums am Substrat bei $y = 0$ und an der Düsenlippe bei $y = d$ [36]:

$$\begin{aligned} v_x(0) &= v_s \\ v_x(d) &= 0, \end{aligned} \quad (2.63)$$

wobei v_s der konstanten Substratgeschwindigkeit entspricht. Werden diese Randbedingungen auf die Lösung der Differentialgleichung (2.62) angewendet, ergibt sich folgende Abhängigkeit der Strömungsgeschwindigkeit des Fluids:

$$v_x(y) = (y - d) \cdot \left(\frac{y}{2\eta} \cdot \frac{dp}{dx} - \frac{v_s}{d} \right). \quad (2.64)$$

Es ist erkennbar, dass es sich hierbei um eine Überlagerung von Poiseuille- und Couette-Strömung handelt [31] (siehe Abbildung 2.17). Da der Druckgradient als konstant angenommen

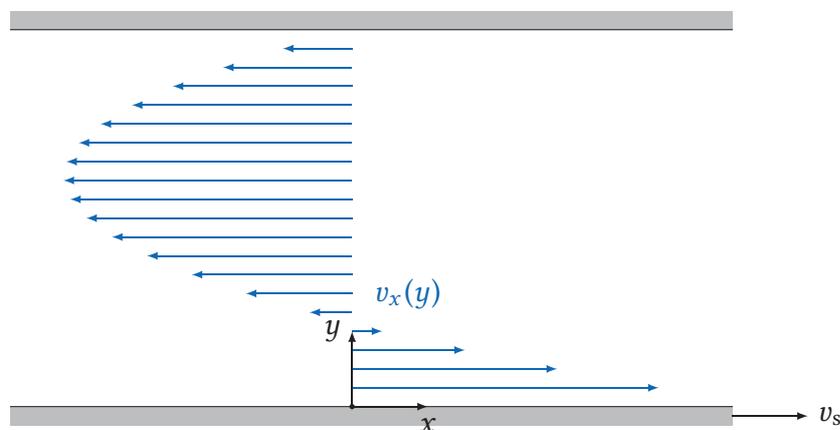


Abbildung 2.17.: Geschwindigkeitsverteilung bei Überlagerung von Poiseuille- und Couette-Strömung (vgl. [31])

wird, soll er im folgenden durch den Differenzenquotienten ersetzt werden:

$$\frac{dp}{dx} = \frac{\Delta p}{\Delta x}.$$

Zur weiteren Betrachtung soll der effektive Volumenstrom $\frac{dV}{dt}$ unter den Düsenlippen bestimmt werden. Dazu wird $v_x(y)$ aus Gleichung (2.64) über den Düsenabstand d integriert:

$$\frac{dV}{dt} = b \cdot \int_0^d v_x(y) dy. \quad (2.65)$$

Es ergibt sich:

$$\frac{dV}{dt} = -\frac{bd^3}{12\eta} \cdot \frac{\Delta p}{\Delta x} + \frac{bdv_s}{2}. \quad (2.66)$$

Bisher wurde nicht zwischen vorderer und hinterer Düsenlippe unterschieden. Wenn im Folgenden der Druckgradient bestimmt wird, ergeben sich Unterschiede für die beiden Bereiche.

2.8.1.3. Druckbilanz

Wie in Abbildung 2.16 dargestellt herrschen unter den Menisken, in der Zuführung der Düse und vor und hinter der Düse die Drücke p_f (filmbildend), p_1 , p_2 , p_3 und p_b (benetzend). Aus den vorgenannten Drücken werden folgende Druckdifferenzen gebildet:

$$\Delta p_{f1} = p_f - p_1, \quad (2.67)$$

$$\Delta p_{12} = p_1 - p_2, \quad (2.68)$$

$$\Delta p_{23} = p_2 - p_3, \quad (2.69)$$

$$\Delta p_{3b} = p_3 - p_b. \quad (2.70)$$

Voraussetzung für stabile Beschichtungsverhältnisse ist, dass die Summe der einzelnen Druckdifferenzen der Gesamtdruckdifferenz vor und hinter der Düse entspricht [29]:

$$\Delta p_{fb} = p_f - p_b = \Delta p_{f1} + \Delta p_{12} + \Delta p_{23} + \Delta p_{3b}. \quad (2.71)$$

Ist vor oder hinter der Düse keine zusätzliche Einrichtung zur Erzeugung eines Über- bzw. Unterdrucks vorhanden, ergibt sich in Gleichung (2.71) für die Gesamtdruckdifferenz $\Delta p_{fb} = 0$.

Damit ergeben sich die Druckgradienten im Bereich (1) und im Bereich (3) zu $\frac{\Delta p}{\Delta x} = \frac{\Delta p_{12}}{l}$ bzw. $\frac{\Delta p}{\Delta x} = \frac{\Delta p_{23}}{l}$. Umgestellt nach der Druckdifferenz folgt aus Gleichung (2.66) für den Bereich (1):

$$\Delta p_{12} = \left(\frac{bdv_s}{2} - \frac{dV}{dt} \right) \frac{12\eta l}{bd^3}. \quad (2.72)$$

Im Bereich (3), der nicht filmbildend ist, muss für den effektiven Volumenstrom $\frac{dV}{dt} = 0$ gelten. Daher folgt aus Gleichung (2.66) für die Druckdifferenz im Bereich (3):

$$\Delta p_{23} = \frac{6\eta v_s l}{d^2}. \quad (2.73)$$

Zur vollständigen Druckbilanz (2.71) müssen nun noch die Druckdifferenzen Δp_{f1} und Δp_{3b} bestimmt werden. Sie sind allgemein abhängig von der Oberflächenspannung und der Krümmung des filmbildenden bzw. des benetzenden Meniskus.

Es soll nun angenommen werden, dass die Reibungskräfte gegenüber den Oberflächenspannungskräften vernachlässigbar sind, d. h. $Ka \ll 1$. Dann folgt aus der dynamischen Randbedingung für den statischen Fall (2.59) die Druckdifferenz:

$$\Delta p_{f1} = \frac{\sigma}{R_m}, \quad (2.74)$$

wobei sich der Radius R_m bestimmt aus:

$$\frac{1}{R_m} = \frac{1}{r_f} + \lim_{r_z \rightarrow \infty} \frac{1}{r_z} = \frac{1}{r_f}, \quad (2.75)$$

wobei r_z der in z -Richtung unendlich große Radius des zylinderförmigen Meniskus ist. In [37] wird eine Näherung zwischen Nassschichtdicke h und Krümmungsradius r_f des filmbildenden Meniskus hergeleitet, die für $h \ll r_f$ gültig ist:

$$\frac{h}{r_f} = 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}}. \quad (2.76)$$

Für die Druckdifferenz (2.74) im filmbildenden Bereich, auch als quasistatischer Kapillardruck [33–35] bezeichnet, ergibt sich nach Einsetzen der Gleichungen (2.75) und (2.76):

$$\Delta p_{f1} = 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h}. \quad (2.77)$$

Diese Druckdifferenz hängt von der Kapillarzahl und damit nach der Definition der Kapillarzahl in (2.55) auch von der Strömungsgeschwindigkeit ab. Durch die Beziehung (2.76) ist der Radius festgelegt, nicht jedoch der Kontaktwinkel an der hinteren Düsenlippe. Der Extremfall ist, dass der Abstand zwischen Düse und Substrat so groß ist, dass der Meniskus die hintere Düsenlippe unter einem Winkel von $\psi_f = 0^\circ$ benetzt. Damit muss gelten:

$$d - h \leq 2r_f. \quad (2.78)$$

Unter ansonsten unveränderten Bedingungen reißt der Meniskus bei Überschreiten dieses Abstands. Eingesetzt in Gleichung (2.76) ergibt sich als Bedingung für einen stabilen filmbildenden Meniskus:

$$\frac{2h}{d - h} \geq 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}}. \quad (2.79)$$

Diese Bedingung wird auch als „Low-Flow-Limit“ bezeichnet [29].

Zur Herleitung der Druckdifferenz Δp_{3b} im benetzenden Bereich wird ein zylinderförmiger Meniskus mit Radius r_b angenommen, wie er in Abbildung 2.16 abgebildet ist. Weitere Parameter sind der Kontaktwinkel ψ_b und der Ort l_b der Benetzungslinie. Für die Druckdifferenz Δp_{3b} gilt aufgrund der dynamischen Randbedingung (2.59):

$$\Delta p_{3b} = \frac{\sigma_b}{r_b}. \quad (2.80)$$

Gemäß [38] kann aus der Geometrie des Meniskus folgende Beziehung für r_b hergeleitet werden:

$$r_b = -\frac{d^2 + l_b^2}{2(d \cos \psi_b - l_b \sin \psi_b)}. \quad (2.81)$$

Zur Berechnung der Extremwerte wird die Bedingung $\frac{dr_b}{dl_b} = 0$ ausgewertet und es ergeben sich die beiden Extrempunkte des nach innen bzw. nach außen gewölbten Meniskus:

$$l_{b,\text{innen}} = d \frac{\cos \psi_b - 1}{\sin \psi_b} \quad \text{bzw.} \quad (2.82)$$

$$l_{b,\text{außen}} = d \frac{\cos \psi_b + 1}{\sin \psi_b}. \quad (2.83)$$

Für den Wertebereich des Krümmungsradius r_b folgt damit aus Gleichung (2.81):

$$\frac{-d}{1 + \cos \psi_b} \leq r_b \leq \frac{d}{1 - \cos \psi_b}. \quad (2.84)$$

Eingesetzt in Gleichung (2.80) ergibt sich folgender Wertebereich für die Druckdifferenz Δp_{3b} :

$$-\sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d} \leq \Delta p_{3b} \leq \sigma \frac{1 - \cos \psi_b}{d}. \quad (2.85)$$

Für eine vollständige Druckbilanz nach Gleichung (2.71) sind nun alle Druckdifferenzen bekannt, so dass aus den Gleichungen (2.72), (2.73), (2.77) und (2.85) folgende Druckbilanz aufgestellt werden kann:

$$1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{bdv_s}{2} - \frac{dV}{dt} \right) \frac{12\eta l}{bd^3} + \frac{6\eta v_s l}{d^2} - \sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d} \\ \leq \Delta p_{fb} \leq 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{bdv_s}{2} - \frac{dV}{dt} \right) \frac{12\eta l}{bd^3} + \frac{6\eta v_s l}{d^2} + \sigma \frac{1 - \cos \psi_b}{d}. \quad (2.86)$$

Für den Fall, dass der benetzende Meniskus unter die Düsenlippe in die Düse hineinwandert und an der inneren Kante K_i am Auslass (siehe Abbildung 2.16) anhaftet, ergibt sich $\Delta p_{23} = 0$. Der Druckbereich für eine stabile Beschichtung vergrößert sich und in der Druckbilanz aus Gleichung (2.86) ändert sich die untere Grenze entsprechend:

$$1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{bdv_s}{2} - \frac{dV}{dt} \right) \frac{12\eta l}{bd^3} - \sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d} \\ \leq \Delta p_{fb} \leq 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{bdv_s}{2} - \frac{dV}{dt} \right) \frac{12\eta l}{bd^3} + \frac{6\eta v_s l}{d^2} + \sigma \frac{1 - \cos \psi_b}{d}. \quad (2.87)$$

Bei Kapillarzahlen $Ka > 1$ dominieren viskose Kräfte, so dass die aufgrund der Kapillarkraft entstehende Druckdifferenz Δp_{f1} vernachlässigt werden kann [29].

2.8.2. Das Spiralrakelbeschichtungsverfahren

Bei der in dieser Arbeit eingesetzten Rakel handelt es sich um einen spiralförmig gravierten Metallstab. Der Metallstab wird zur Beschichtung über das Substrat gezogen. Die Querschnittsfläche des Gravurprofils bestimmt im wesentlichen die Nassschichtdicke. Ausgangsform für die den gravierten Rakelstab ist ein drahtumwickelter Stab (engl. *mayer rod* oder *meyer rod*), bei dem die Drahtdicke die Nassschichtdicke bestimmt. Zur Berechnung der Nassschichtdicke siehe Kapitel A im Anhang.

Der gravierte Rakelstab ist starr und gleitet beim Beschichten über das Beschichtungssubstrat. Ein starres Beschichtungssubstrat wie Glas, das in der Realität eine gewisse Welligkeit aufweist, ist eigentlich wenig geeignet für dieses Beschichtungsverfahren: Der Stab wird nicht über die komplette Beschichtungsbahnbreite plan aufliegen und so zwangsläufig zu Schichtdickenvariationen quer zur Beschichtungsrichtung führen. Trotzdem lassen sich mit diesem Verfahren insbesondere bei Vorversuchen schnell aussagekräftige Beschichtungsergebnisse erzielen.



3. Auslegung der Flüssigkristallzelle

Die Anforderungen an eine Flüssigkristallzelle, die in einer schaltbaren Verglasung eingesetzt werden soll, unterscheiden sich deutlich von denen, die für Bildschirmanwendungen notwendig sind. Diese Anforderungen wirken sich auf die Herstellung einer solchen Flüssigkristallzelle aus.

3.1. Technische Anforderungen

Im Hinblick auf die elektro-optische Funktion und die Einbettung in eine Isolierverglasung lassen sich die technischen Anforderungen an die Flüssigkristallzelle ableiten:

- Die Flüssigkristallzellen sollen in einem größeren Temperaturbereich funktionsfähig sein, laut [39] werden in Isolierverglasungen Temperaturen bis 80 °C erreicht.
- Die eingesetzten Materialien sollen eine ausreichende Stabilität gegenüber ultraviolettem Licht aufweisen.
- Es soll ein ausreichender Blickwinkel abgedeckt werden, um unterschiedliche Sonnenstände zu berücksichtigen.
- Eine ausreichende mechanische Stabilität der Flüssigkristallzelle muss gewährleistet sein, beispielsweise bei Windlasten.
- Die Transmission für Licht aus dem sichtbaren Spektrum soll im transparenten Zustand möglichst hoch sein.

3.2. Wirtschaftliche Anforderungen

Vorrangiges Ziel bei der Auswahl von Materialien und Herstellungsprozessen für diese Arbeit sind niedrige Kosten bzw. geringer Aufwand, sowohl apparativ als auch zeitlich, unter

Einhaltung der vorgenannten technischen Anforderungen. Da die Flüssigkristallzelle in eine Isolierverglasung eingebettet werden soll, bedeutet dies auch, dass es vorteilhaft ist, die Prozesse zur Herstellung der Zelle in vorhandene Produktionslinien und -prozesse von Glasherstellern integrieren zu können.

Geeignete Prozesse sind solche, die ohne Reinraumanforderungen auskommen und ausreichende Robustheit gegenüber Ungenauigkeiten im Herstellungsprozess aufweisen. Weiterhin ist es notwendig, dass die Prozesse auf größere Flächen übertragbar, d. h. skalierbar sind. Speziell für die einzelnen Funktionsschichten einer Flüssigkristallzelle bedeutet dies, dass Beschichtungsprozesse

- skalierbar,
- linear,
- und in einen Fließbandproduktionsprozess integrierbar

sein müssen.

3.3. Aufbau der Flüssigkristallzelle

Anders als im üblichen Aufbau einer Flüssigkristallzelle wie er in Abbildung 2.5 dargestellt ist, soll für diese Arbeit der in Abbildung 3.1 dargestellte Aufbau eingesetzt werden. Der Polarisator

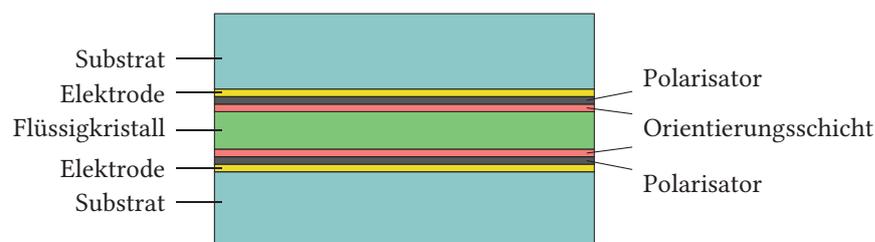


Abbildung 3.1.: Modifizierter Aufbau einer VN-Zelle im Querschnitt

befindet sich nun im Zellinneren, zwischen Elektrode und Orientierungsschicht. Dies hat zweierlei Vorteile gegenüber dem üblichen Aufbau:

1. Die umgebenden Elektrodenschichten und Glassubstrate können einen größeren Teil des potentiell schädlichen ultravioletten Anteils des einfallenden Lichts filtern.
2. Die umgebenden Glassubstrate schützen den LFK-Polarisator vor mechanischen Beschädigungen.

Aufbauend auf den Anforderungen der vorangegangenen Abschnitte wird im Folgenden die getroffene Auswahl an Materialien und Prozessen dargestellt.

3.3.1. Materialien

Als Elektrodenmaterial soll Aluminiumzinkoxid (AZO) eingesetzt werden. Der Vorteil gegenüber ITO besteht in den geringeren Materialkosten. Der konventionell außen aufgebraute Folienpolarisator soll durch einen flüssig aufgebrauchten Dünnschichtpolarisator (LFK-Polarisator) ersetzt werden, der gegenüber hohen Temperaturen unempfindlich ist. Die Flüssigkristallmischung wird so gewählt, dass der Klärpunkt deutlich oberhalb von 80 °C liegt. Gleichzeitig wird die Ganghöhe des Flüssigkristalls so gewählt, dass sie für die Betriebsart des 2. bzw. 5. Transmissionsminimum passend ist. Das Substrat besteht weiterhin aus speziellem Displayglas. Das in Isolierverglasungen eingesetzte Flachglas weist genauso wie das Displayglas gewisse Wellungen auf. Jedoch ist das Flachglas aufgrund seiner größeren Dicke (in der Regel ≥ 4 mm (siehe auch [4]) gegenüber ca. 0,7 mm bis 1,1 mm bei Displayglas) zu starr, als dass diese Wellungen beim Herstellen der Zelle durch Verpressen ausgeglichen werden könnten.

3.3.2. Prozesse

Zur Auswahl der einzelnen Zellenbauprozesse sei auf die folgenden Kapitel verwiesen.



4. Alternatives Elektrodenmaterial

Das Elektrodenmaterial Indiumzinnoxid (ITO, von engl. *indium tin oxide*), das üblicherweise in Flüssigkristallanzeigen eingesetzt wird, ist sehr teuer. ITO besteht zu 90 % aus Indium, einem selten vorkommenden Element. Entsprechend hoch ist sein Preis. Er lag im Oktober 2013 bei USD 680/kg [40]. Als alternatives Elektrodenmaterial bietet sich Aluminiumzinkoxid (AZO) an. Es handelt sich hierbei um einen Aluminium-dotierten Zinkoxidhalbleiter. Der Preis des Hauptbestandteils Zink lag im Oktober 2013 bei USD 1883/t [40] und betrug damit nur ca. 0,3 % des Indiumpreises.

AZO ist elektrisch leitfähig und transparent und kann wie ITO im Kathodenzerstäubungsverfahren abgeschieden werden. Im Folgenden ist der Einfluss der Abscheidparameter und der Temperaturnachbehandlung auf die Eigenschaften des AZO bezüglich elektrischer Leitfähigkeit und optischer Transparenz dargestellt. Vgl. dazu auch [41]. Das untersuchte AZO-Target wurde durch Sintern hergestellt und besteht gewichtsanteilig zu 98 % aus Zinkoxid (ZnO) und zu 2 % aus Aluminiumoxid (Al_2O_3). Der Einsatz von AZO für die Anwendung in Flüssigkristallanzeigen wurde bereits in [42] untersucht.

4.1. Abscheidung und Nachbehandlung von AZO

Wie in Kapitel 2.5 dargestellt steigt die Abscheiderate mit der Zerstäubungsleistung. Allerdings beeinflussen die energiereicheren Moleküle, die auf dem Substrat auftreffen, auch die Struktur der Schicht, was sich im Allgemeinen auf die elektrische Leitfähigkeit und die Transparenz der Schicht auswirkt.

In Abbildung 4.1 ist der spezifische Widerstand ρ_s von nominell 100 nm dicken AZO-Schichten dargestellt. Die AZO-Schichten wurden bei unterschiedlicher Zerstäubungsleistung hergestellt und anschließend einer Temperaturnachbehandlung für eine Stunde bei Raumluft unterzogen. Die tatsächliche AZO-Schichtdicke wurde an mehreren Stellen auf AZO-beschichteten Referenzsubstraten ermittelt, die jeweils zusammen mit den Substraten beschichtet wurden, die für die Temperaturnachbehandlung vorgesehen waren. Die Abweichung der tatsächlichen AZO-Schichtdicke von der nominellen Schichtdicke liegt im Bereich von -5% bis 23% . Der spezifische Widerstand ist in Abhängigkeit von der Temperatur der Nachbehandlung aufgetragen. Der spezifische Widerstand ist gemäß Gleichung (2.18) als Produkt der Schichtdicke des Referenzsubstrats und des spezifischen Widerstands des Referenzsubstrats zu berechnen.

renzsubstrats und des gemessenen Flächenwiderstands der jeweiligen temperaturbehandelten AZO-Schicht dargestellt. Um den spezifischen Widerstand bei unbehandelten Substraten zu ermitteln, wurden die Referenzsubstrate herangezogen.

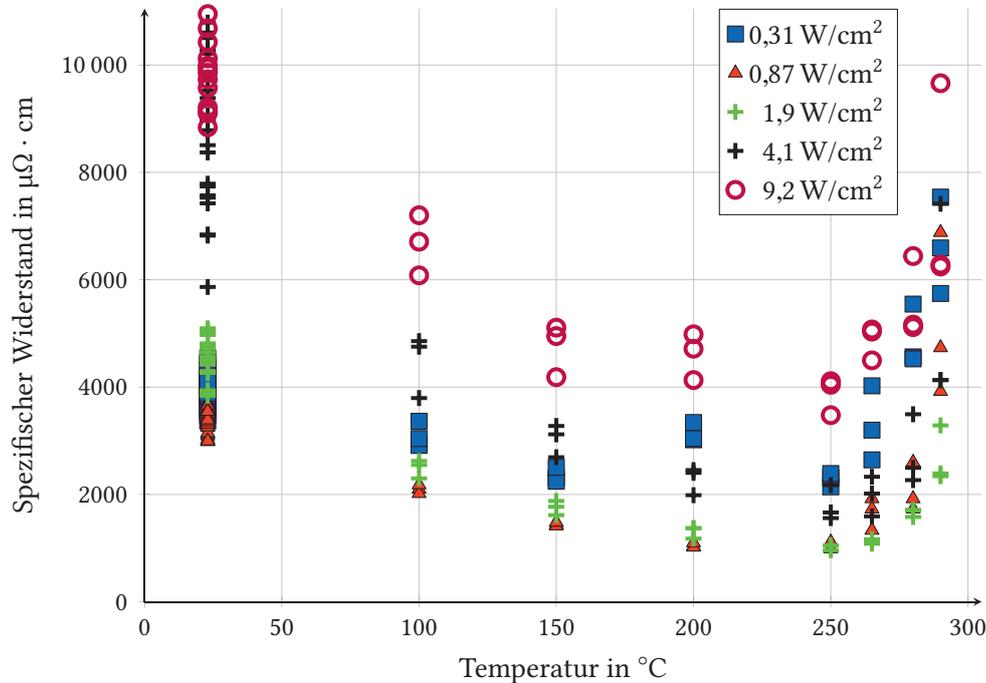


Abbildung 4.1.: Spezifischer Widerstand von bei unterschiedlichen Zerstäubungsleistungen hergestellten 100 nm dicken AZO-Schichten in Abhängigkeit von der Temperatur bei einer einstündigen Nachbehandlung in Raumluft

In den vorliegenden Messwerten zeigt sich bei einer Temperatur zwischen 200 $^{\circ}\text{C}$ und 265 $^{\circ}\text{C}$ unabhängig von der Zerstäubungsleistung ein Minimum des spezifischen Widerstands. Für Nachbehandlungstemperaturen ≥ 100 $^{\circ}\text{C}$ tritt bezüglich der Zerstäubungsleistung ein Widerstandsminimum im Bereich von 0,87 W/cm^2 bis 1,9 W/cm^2 auf.

In [25] wird gezeigt, dass die elektrische Leitfähigkeit von AZO während des Beschichtens mit steigender Substrattemperatur zunimmt. Die elektrische Leitfähigkeit nimmt bis etwa 250 $^{\circ}\text{C}$ zu und hängt zwischen 250 $^{\circ}\text{C}$ und 350 $^{\circ}\text{C}$ nicht mehr von der Substrattemperatur ab. Dies wurde ebenda durch erhöhte Mobilität erklärt, eine verbesserte Kristallinität wurde durch Röntgenbeugung nachgewiesen. Im Unterschied dazu wurde bei der vorliegenden Arbeit die AZO-Schicht nicht während des Sputterns, sondern erst nachträglich einer Temperaturbehandlung ausgesetzt. Da sich jedoch gleichermaßen bis zu einer Temperatur von etwa 250 $^{\circ}\text{C}$ die Leitfähigkeit erhöht, sind auch hier thermisch beeinflusste Änderungen in der Kristallstruktur als Erklärung denkbar.

In Abbildung 4.2 ist die Abhängigkeit der Transparenz von der Temperatur der Nachbehandlung bei unterschiedlicher Zerstäubungsleistung dargestellt. Die Transparenz ist hier als durchschnittlicher Transmissionswert für Wellenlängen des sichtbaren Lichts, d. h. für Wellenlängen von 400 nm bis 800 nm definiert. Die wellenlängenabhängige Transmission der jeweiligen Schicht ergibt sich aus dem Verhältnis der gemessenen Lichtintensität hinter dem beschichteten Glassubstrat und der gemessenen Lichtintensität hinter einem unbeschichteten Glassubstrat.

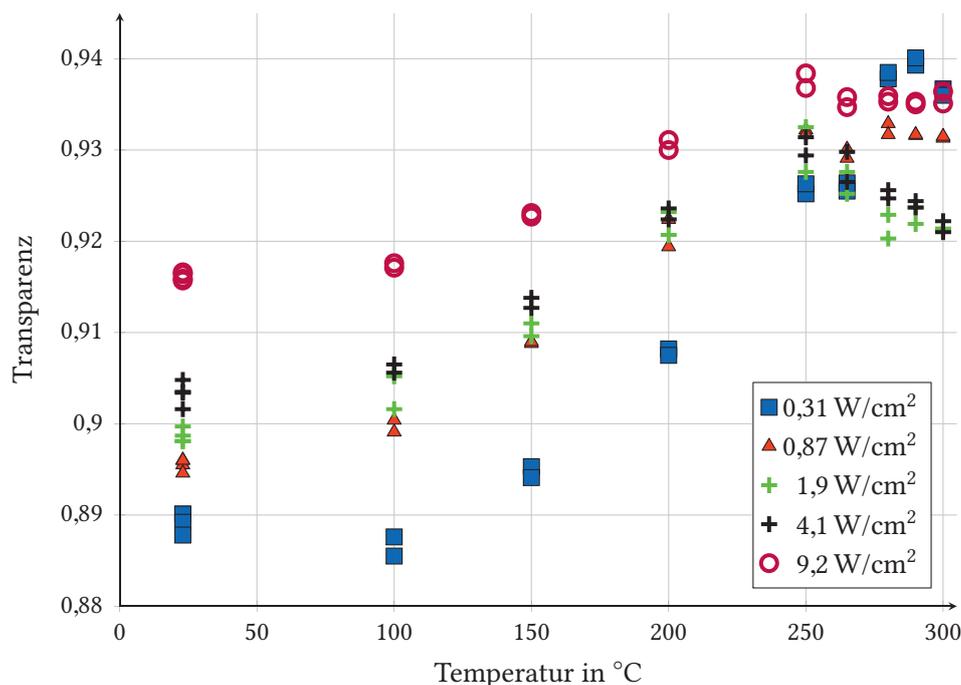


Abbildung 4.2.: Transparenz von bei unterschiedlichen Zerstäubungsleistungen hergestellten 100 nm dicken AZO-Schichten in Abhängigkeit von der Temperatur bei einer einstündigen Nachbehandlung in Raumluft

Es zeigt sich eine Zunahme der Transparenz mit der Temperatur und bis etwa 200 °C eine Zunahme der Transparenz mit der Zerstäubungsleistung. Bei höheren Temperaturen ist der Einfluss der Zerstäubungsleistung geringer, eine einfache Abhängigkeit von der Zerstäubungsleistung ist nicht mehr erkennbar.

Aufgrund der insgesamt recht hohen Transparenz des AZO von mindestens 0,9 bei höheren Nachbehandlungstemperaturen als 200 °C können die Parameter Temperatur und Zerstäubungsleistung so gewählt werden, dass die AZO-Beschichtung hinsichtlich des spezifischen Widerstands optimal ist, d. h. dass der spezifische Widerstand minimal ist.

Zur Beurteilung des Transmissionsverhaltens von AZO wird der spektrale Verlauf im Vergleich zu einer ebenfalls 100 nm dicken ITO-Schicht betrachtet, die mit dem ITO-Standardprozess hergestellt wurde. Es wurden für jedes beschichtete Substrat zwei Spektralmessungen durchgeführt.

In Abbildung 4.3 ist jeweils der Mittelwert beider Messungen dargestellt. Für Wellenlängen ≤ 450 nm und ≥ 900 nm sind die dargestellten Werte trotzdem von einem stärkeren Rauschen überlagert, da in diesen Wellenlängenbereichen die Lichtquelle, die für die Messungen eingesetzt wurde, nur eine geringe Intensität aufweist.

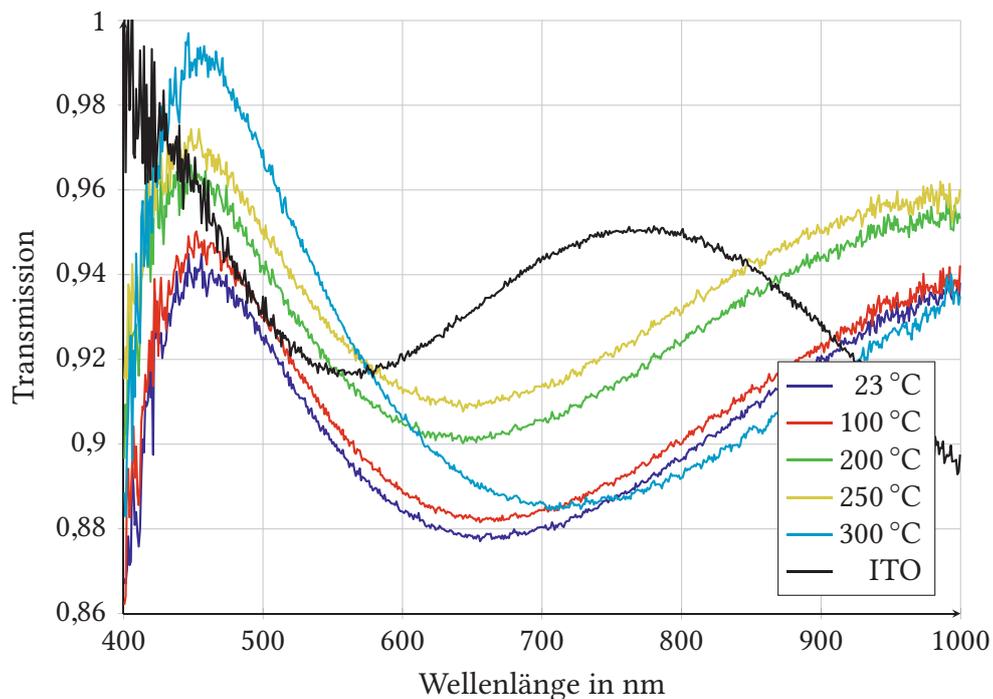


Abbildung 4.3.: Transmission von bei einer Zerstäubungsleistung von $1,9 \text{ W/cm}^2$ hergestellten 100 nm dicken AZO-Schichten in Abhängigkeit von der Wellenlänge bei einer einstündigen Nachbehandlung in Raumluft unterschiedlicher Temperatur

In den Spektralverläufen fällt auf, dass sich bei Temperaturen bis 250 °C die Kurvenform nicht wesentlich ändert, sondern die einzelnen Kurven nur vertikal gegeneinander verschoben sind. Dagegen unterscheidet sich die Kurvenform der bei 300 °C nachbehandelten AZO-Schicht deutlich: Das Wellenlängenminimum ist von zuvor 650 nm nach 720 nm verschoben, ein Indiz für eine Änderung des Brechungsindexes. Zu einer genaueren Beurteilung wären jedoch ellipsometrische Messungen notwendig.

Bei allen drei untersuchten Charakteristika der AZO-Schichten – spezifischer Widerstand, Transparenz und spektraler Transmissionsverlauf – ändert sich die Abhängigkeit von der Nachbehandlungstemperatur oberhalb von etwa 250 °C deutlich.

4.1.1. Temperaturnachbehandlung bei höheren Temperaturen und unterschiedlicher Atmosphäre

In [43] hat S. Ata untersucht, wie sich die Dauer der Temperaturnachbehandlung auf den spezifischen Widerstand der AZO-Schicht auswirkt. Bei einer Temperatur von 250 °C sinkt der spezifische Widerstand nach einstündiger Temperaturbehandlung wie in Abbildung 4.1 dargestellt auf etwa 1000 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$, während bei einer Probe von S. Ata nach 24-stündiger Temperaturbehandlung ein spezifischer Widerstand von 5000 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ gemessen wurde. Damit scheint eine Langzeitbehandlung einen ähnlichen Effekt wie eine Behandlung bei hohen Temperaturen zu haben.

In einem weiteren Versuch hat S. Ata Temperaturbehandlungen in einem RTA-Ofen (von engl. *rapid thermal annealing*) durchgeführt, bei dem mit Hilfe einer Halogenglühlampenbeheizung in sehr kurzer Zeit sehr hohe Temperaturen erreicht werden können. Zusätzlich kann der Vorgang in unterschiedlicher Atmosphäre stattfinden. In Tabelle 4.1 sind die Ergebnisse aus [43] dargestellt, bei der AZO-beschichtete Glassubstrate bei einer Temperatur von 350 °C und einer Dauer von 1 min im RTA-Ofen gelagert wurden. Die Substrate wurden vermutlich zumindest teilweise in unterschiedlichen Beschichtungsläufen hergestellt. Die niedrigsten

Tabelle 4.1.: Spezifischer Widerstand bei Temperaturnachbehandlung mit 350 °C im RTA-Ofen nach [43] bei einer Dauer von 1 min

Atmosphäre	$\rho_{s,\text{vorher}}$ in $\mu\Omega \cdot \text{cm}$	$\rho_{s,\text{nachher}}$ in $\mu\Omega \cdot \text{cm}$
Helium	3824	572
Stickstoff	3405	683
Argon	3506	581
Argon:Sauerstoff (85:15)	3212	1703
Argon:Wasserstoff (95:5)	3359	608

Werte für den spezifischen Widerstand ergeben sich bei thermischer Behandlung in Argon- und Helium-Atmosphäre, also in chemisch inerte Atmosphäre. Nur unwesentlich anders verhält es sich bei der Gegenwart von Wasserstoff. Dies deutet daraufhin, dass es entweder zu keinem nennenswerten Einbau von Wasserstoff in die AZO-Schicht kommt oder dass durch den Wasserstoff zumindest keine Änderung der Leitfähigkeit verursacht wird, die aufgrund einer Reaktion des Wasserstoffs mit Sauerstoffmolekülen aus der AZO-Schicht denkbar wäre.

Bei Anwesenheit von Sauerstoff in der Atmosphäre erhöht sich der spezifische Widerstand deutlich. Betrachtet man die in Abbildung 4.4 dargestellten Transmissionsspektren der verschiedenen Fälle [43], so zeigen sich bei inerte Atmosphäre und bei Anwesenheit von Wasserstoff ähnliche Kurvenverläufe, während bei Argon/Sauerstoff-Atmosphäre das Spektrum deutlich verschoben ist. Die Sauerstoffatmosphäre verschiebt das Transmissionsminimum in Richtung größerer Wellenlängen.

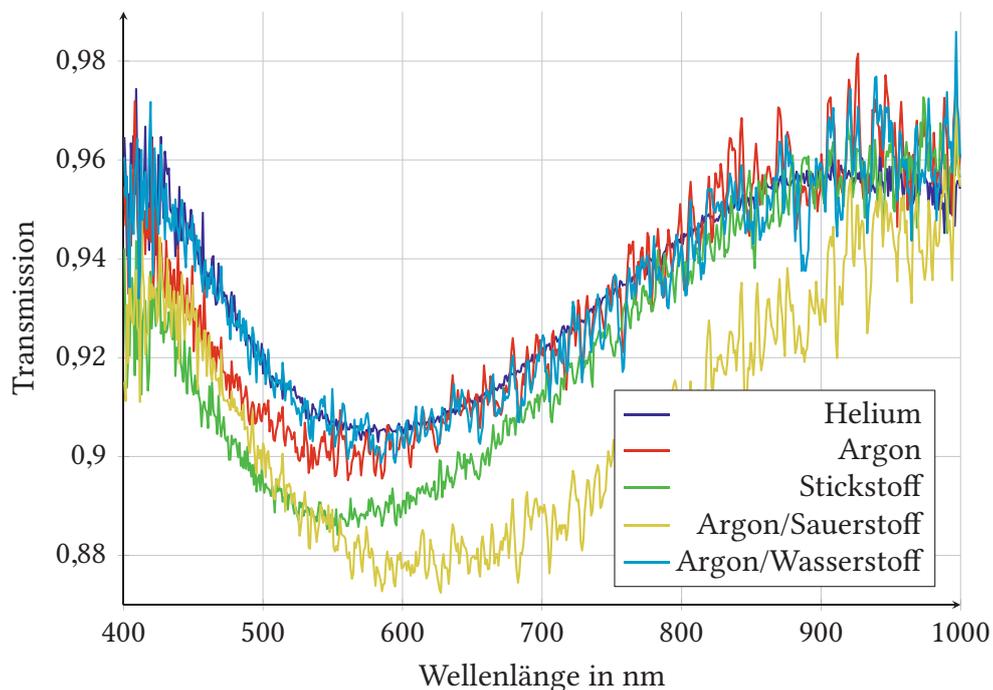


Abbildung 4.4.: Transmission von 100 nm dicken AZO-Schichten in Abhängigkeit der Wellenlänge nach thermischer Behandlung im RTA-Ofen bei unterschiedlicher Atmosphäre bei einer Temperatur von 350 °C und einer Dauer von 1 min [43]

Diese Ergebnisse zeigen, dass anders als in Kapitel 4.1 der spezifische Widerstand von AZO auch bei Nachbehandlungstemperaturen oberhalb von 250 °C weiter vermindert werden kann, sofern der Sauerstoffanteil der Nachbehandlungsatmosphäre ausreichend klein ist.

4.1.2. Nachbehandlung durch Laserkristallisation

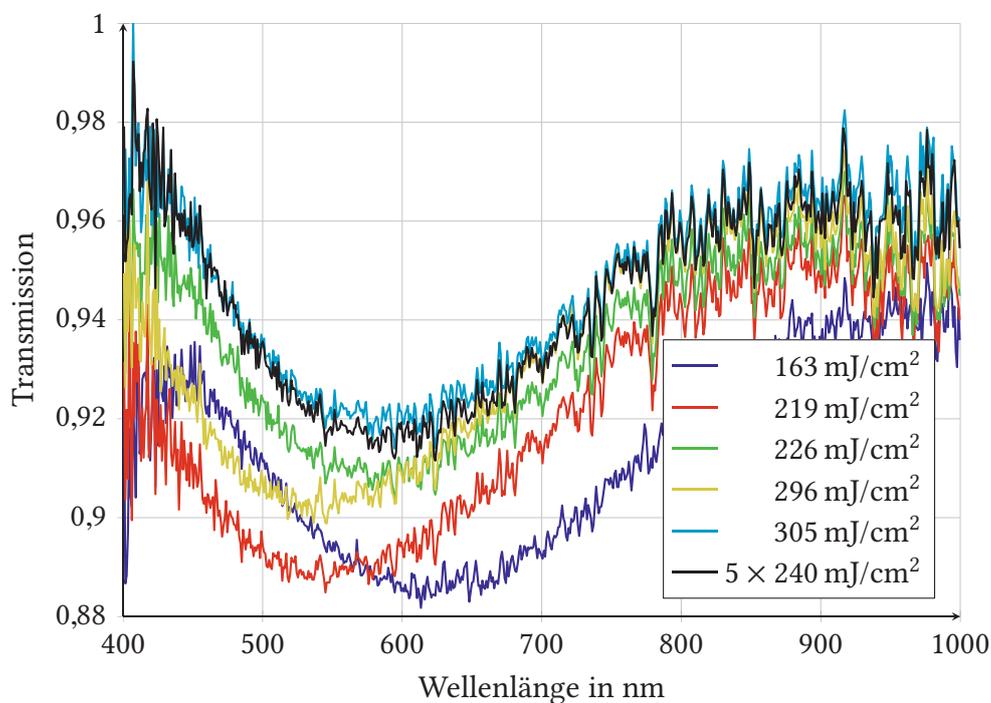
In einem weiteren Versuch wurde eine AZO-Schicht mit einem Excimer-Laser beschossen, der Laserlicht mit einer Wellenlänge von 308 nm für 210 ns [44] bei hoher Intensität aussendet. Dieser Prozess wird als Laserkristallisation bezeichnet. Dabei ergab sich in Abhängigkeit von der Laserenergie das in Tabelle 4.2 dargestellte Ergebnis.

Der erreichte Minimalwert des spezifischen Widerstands liegt im Bereich der Ergebnisse des RTA-Ofens, obwohl bei diesen Versuchen Sauerstoff in der Atmosphäre vorhanden war. Eine mögliche Erklärung: Während der kurzen Zeitspanne, in der die AZO-Schicht eine hohe Temperatur aufweist, kann keine ausreichende Sauerstoffmenge der Atmosphäre mit dem AZO reagieren.

In Abbildung 4.5 sind die zugehörigen Transmissionsspektren der AZO-Schicht nach der Laserbehandlung dargestellt. Bei dem minimal erzielten Wert für den spezifischen Widerstand ist die Transmission über das Spektrum des sichtbaren Lichts hinweg stets größer als 0,9.

Tabelle 4.2.: Spezifischer Widerstand einer nominell 100 nm dicken AZO-Schicht bei Beschuss mit Excimer-Laser unter Luftatmosphäre

Laserenergie in mJ/cm^2	ρ_s in $\mu\Omega \cdot \text{cm}$
Vor Beschuss	2930
163	983
219	606
226	541
296	1040
305	$6,8 \cdot 10^7$
5×240	496

**Abbildung 4.5.:** Transmission einer 100 nm dicken AZO-Schicht in Abhängigkeit der Wellenlänge bei Laserkristallisation mit Excimer-Laser

4.1.3. Variation der Schichtdicke

Zuletzt stellt sich noch die Frage, ob man durch eine entsprechend dicke AZO-Schicht den gleichen Flächenwiderstand wie bei ITO erreichen kann, ohne dass sich die Transmission wesentlich verschlechtert. Bei einem gewünschten Flächenwiderstand von $20 \Omega/\square$, wie er bei

einer 100 nm dicken ITO-Schicht etwa auftritt, müsste nach den bisherigen Ergebnissen die AZO-Schicht die fünffache Dicke aufweisen, d. h. 500 nm.

Es zeigt sich, dass der spezifische Widerstand nach einer einstündigen Wärmebehandlung bei der 500 nm dicken AZO-Schicht ca. $1500 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ gegenüber ca. $1000 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ bei einer 100 nm dicken AZO-Schicht beträgt. Das zugehörige Transmissionsspektrum ist in Abbildung 4.6 dargestellt.

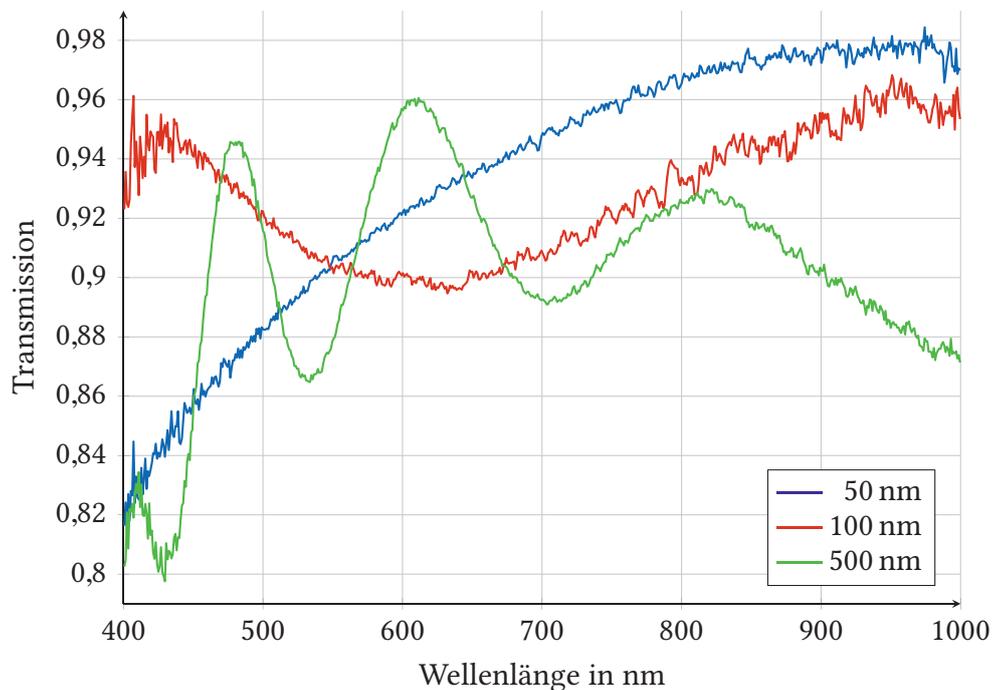


Abbildung 4.6.: Transmission von AZO-Schichten unterschiedlicher Schichtdicke in Abhängigkeit der Wellenlänge nach einer thermischen Behandlung bei 240°C bei Raumluft. Dargestellt ist jeweils der Mittelwert dreier Transmissionsmessungen.

Es zeigt sich, dass bei einer Schichtdicke von 500 nm innerhalb des Transmissionsspektrums mehr Minima und Maxima auftreten, was jedoch in den bei größerer Schichtdicke stärker ausgeprägten optischen Interferenzen begründet ist. Abgesehen davon bleibt die Transmission auf einem vergleichbar hohen Niveau wie die einer 100 nm dicken Schicht. Zum Vergleich ist noch das Transmissionsspektrum einer 50 nm dicken AZO-Schicht dargestellt, dessen Transmission sich ebenfalls in einen ähnlichen Bereich befindet.

Damit wird die Transmission des AZO im Wesentlichen nicht durch seine Absorption begrenzt, sondern durch die Interferenzen. Da hier eine AZO-Luft-Grenzschicht betrachtet wird, ist zu erwarten, dass die Reflexionen und damit die Auswirkung der Interferenzen größer sind als innerhalb einer Zelle, denn dort eingesetzte Materialien weisen im Allgemeinen einen höheren

Brechungsindex auf als den von Luft. Damit sind die Brechungsindexunterschiede zu den an die AZO-Schicht angrenzenden Materialien geringer.

4.2. Verträglichkeit von AZO mit LFK

Nach den bisher betrachteten Eigenschaften ist AZO dem ITO als Elektrodenmaterial durchaus ebenbürtig. In der Abfolge der Prozessschritte zur Herstellung einer Flüssigkristallzelle ist als Schritt nach dem Aufbringen der Elektrode vorgesehen, dass der Flüssigpolarisator aus LFK auf die Elektrode aufgebracht wird. Beim teilweisen Beschichten einer AZO-Schicht mit LFK und anschließendem Abwaschen der aufgetragenen LFK-Schicht ergab sich das in Abbildung 4.7 dargestellte Bild. Es sind zwei unterschiedliche dunkle Bereiche zu sehen. Im dunkleren Bereich

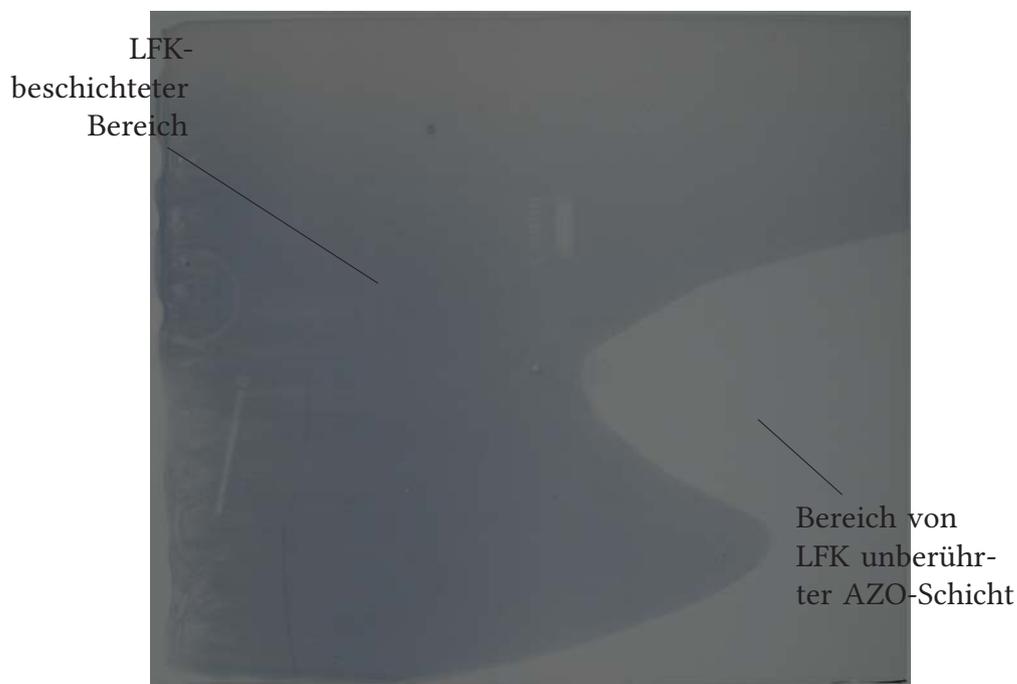


Abbildung 4.7.: AZO-beschichtetes Substrat unter polarisiertem Licht nach Auftrag und Entfernung der LFK-Beschichtung

wurde vor dem Abwaschen LFK aufgebracht. Bei Messung des Übergangs vom dunkleren zum helleren Bereich mit einem Kontaktprofilometer ist ein Anstieg mit einer Stufenhöhe von 60 nm messbar, bei einer nominellen Schichtdicke der AZO-Schicht von 100 nm. Dies schlägt sich auch in unterschiedlichen Flächenwiderständen nieder. So beträgt der Wert im helleren, von LFK unberührten Bereich ca. $80 \Omega/\square$, während er im dunkleren Bereich $190 \Omega/\square$ beträgt.

Der LFK in wässriger Lösung bewirkt also bei der AZO-Schicht einen nasschemischen Ätzprozess. Dies ist leicht dadurch erklärbar, dass die LFK-Tinte laut Datenblatt [20] einen pH-Wert

von 3,9 aufweist. Es handelt sich also um eine Säure. In anderen Versuchen wurde gezeigt, dass sich AZO auch mit stark verdünnten Säuren wie etwa 0,1 %-iger Salzsäure sehr leicht ätzen lässt.

Bei ITO sind diese Effekte nicht feststellbar. Somit eignet sich AZO nicht unmittelbar für den Einsatz in schaltbaren Flüssigkristallzellen mit innenliegenden Polarisatoren.

Es bleibt die Möglichkeit, die AZO-Schicht vor Auftrag des LFK-Polarisators mit einer Schutzschicht beispielsweise aus Siliziumoxid zu versehen. Diese hat allerdings den Nachteil geringerer Haftung des LFK im Vergleich zu ITO und führt zudem zu einem zusätzlichen Produktionsschritt.

Es ist denkbar, den LFK-Polarisator auf die Außenflächen der Flüssigkristallzelle aufzubringen, so dass er nicht mit der innenliegenden AZO-Elektrode in Berührung kommt. Die Vorteile eines innenliegenden LFK-Polarisators wurden bereits in Kapitel 3.3 dargelegt, so dass der Ansatz eines außenliegenden LFK-Polarisators nicht weiter verfolgt wird.

4.3. Bewertung von AZO für großflächige LC-Zellen im Vergleich zu ITO

Lässt man die aufwendigen und damit teuren Nachbehandlungen mit Excimer-Laser und RTA-Ofen außer Acht, so beträgt der spezifische Widerstand einer AZO-Schicht etwa das fünffache des spezifischen Widerstands einer ITO-Schicht. Kompensiert werden kann dieser Nachteil durch eine entsprechend dickere AZO-Schicht. Die Transparenz im sichtbaren Spektrum des Lichts verringert sich dadurch um etwa 2 % bis 3 %, zu kurzwelligem Licht hin um über 10 %. Allgemein weist AZO jedoch für kurzwelligeres Licht eine geringere Transmission auf. Dies ist vorteilhaft, wenn ultraviolette Anteile des Lichtspektrums herausgefiltert werden sollen.

Für eine funktionsfähige Flüssigkristallzelle ist auch ein Flächenwiderstand von $100 \Omega/\square$ ausreichend, der bereits mit einer Schichtdicke von 100 nm erreicht werden kann. Ein hoher Flächenwiderstand erhöht die Schaltzeit, die jedoch unkritisch für die Anwendung in schaltbaren Verglasungen ist.

Zwar sind die direkten Kosten für AZO gegenüber ITO viel niedriger, jedoch ergeben sich durch AZO Nachteile einer aufwendigeren Prozessführung aufgrund der Unverträglichkeit mit dem LFK-Material.

Zur Betrachtung der Kosten beim Einsatz von ITO im Bereich der Glasindustrie ist zu bemerken, dass ITO ein Standardmaterial ist, das dort z. B. für Low-E-Beschichtungen großflächig



eingesetzt wird [45]. Für AZO müsste womöglich eine gesondert einzurichtende Beschichtungseinheit angeschafft werden.

Eine abschließende Kostenbetrachtung ist nur im Rahmen einer konkreten Produktionslinie bei einem Glashersteller möglich.



5. Schichtauftrag des Polarisators

Für den Einsatz als Dünnschichtpolarisator stand der in Kapitel 2.4 beschriebene lyotrope Flüssigkristall zur Verfügung. Ziel war es, ein geeignetes Beschichtungsverfahren für den Schichtauftrag zu finden. Im Folgenden werden zunächst die Anforderungen für ein geeignetes Beschichtungsverfahren abgeleitet und definiert. Darauf folgt eine Untersuchung der Grenzen des eingesetzten Schlitzdüsenverfahrens vor dem Hintergrund der in Kapitel 2.8.1 dargelegten theoretischen Beschreibung. Zur Vervollständigung der Eignungsuntersuchung des LFK schließt das Kapitel mit einer Abhandlung der Schichteigenschaften.

5.1. Voraussetzungen für die Schichterzeugung

Zunächst sollen die Anforderungen dargelegt werden, die das Verfahren zum Auftrag des LFK-Dünnschichtpolarisators erfüllen muss. Diese lassen sich unterteilen in Anforderungen, die in den Materialeigenschaften des LFK begründet sind, in solche, die sich aus der Beschichtung auf ein starres Glassubstrat ergeben und in solche, die für eine wirtschaftliche Herstellung des LFK-Dünnschichtpolarisators entscheidend sind.

5.1.1. Anforderungen aufgrund des LFK-Polarisators

Aus den Materialeigenschaften wie sie in Kapitel 2.4 beschrieben sind, ergibt sich unmittelbar, dass das Beschichtungsverfahren ein lineares sein muss, damit sich für die Supramoleküle eine einheitliche, lineare Ausrichtung ergibt. Für die Ausrichtung sind ausreichend große und einheitlich orientierte Scherkräfte erforderlich. In Vorversuchen mit verschiedenen Beschichtungsverfahren konnten diese Anforderungen präzisiert werden. Daneben kristallisierten sich noch weitergehende Anforderungen an das Beschichtungsverfahren heraus.

In Abbildung 5.1 ist das Beschichtungsbild eines Auftrags im Flexodruckverfahren, einer Variante der Walzenbeschichtung, dargestellt, bei Durchleuchtung mit linear polarisiertem Licht. Das Flexodruckverfahren ist grundsätzlich linear, denn das Substrat bewegt sich an der Walze mit dem eingespannten Klischee geradlinig vorbei. In Abbildung 5.1a ist die Auftragsrichtung der LFK-Schicht parallel zur Polarisationsrichtung des Durchlichts orientiert, in Abbildung 5.1b



a. Polarisationsrichtung des Durchlichts parallel zur Auftragsrichtung

b. Polarisationsrichtung des Durchlichts senkrecht zur Auftragsrichtung

Abbildung 5.1.: Druckbild eines 6,5 cm breiten LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Flexodruckverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht

ist die Auftragsrichtung senkrecht zur Polarisationsrichtung orientiert. Im Groben ist nun eine deutliche Polarisatorwirkung der LFK-Schicht aufgrund der deutlichen Helligkeitsunterschiede zwischen den beiden Orientierungen festzustellen, jedoch ist gleichzeitig ein Muster vorhanden, das ein invertiertes Verhalten aufweist. Vermutlich führen Ablösevorgänge des Klischees vom Substrat zu Scherkräften, die nicht einheitlich parallel zur Auftragsrichtung orientiert sind, was sich wiederum auf die Orientierung der LFK-Supramoleküle auswirkt. Folglich weicht an diesen Stellen die Durchlassrichtung der LFK-Schicht von der Auftragsrichtung ab. Das Klischee selbst ist strukturiert, so dass sich diese Ablösevorgänge nur lokal auswirken.

Sind die Scherkräfte, die während des Beschichtens auftreten, zu gering, vermindert sich die Polarisatorwirkung der LFK-Schicht. In Abbildung 5.2 ist das Beschichtungsbild eines Auftrags im Schlitzdüsenverfahren dargestellt. Es wurde ein Substrat mit zu geringer Auftragsgeschwindigkeit beschichtet. Die Helligkeitsunterschiede zwischen den Abbildungen 5.2a und 5.2b, die eine um 90° gegeneinander verdrehte Ausrichtung des linear polarisierten Durchlichts aufweisen, sind gering. Im Vergleich zur Abbildung 5.1 scheinen die Beschichtungsbilder jeweils in der rechten Hälfte, außerhalb des Anfahrbereichs, über die Fläche hinweg eine homogene Helligkeit aufzuweisen. Bei Vergrößerung eines Ausschnitts (siehe Abbildung 5.3) zeigt sich jedoch ein grobkörniger Eindruck, verstärkt durch die Wahl der Polarisationsrichtung des Durchlichts, die nun um 45° gegenüber der Auftragsrichtung verdreht ist. Die grobkörnige Struktur ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass sich die LFK-Supramoleküle bei zu geringer Auftragsgeschwindigkeit aufgrund von Scherkräften, die geringer als die Reibungskräfte im LFK-Fluid sind, nicht einheitlich in Auftragsrichtung ausrichten.

Ein Beschichtungsverfahren darf im Unterschied zum Beschichtungsbild in Abbildung 5.1 keine Strukturen im Schichtauftrag erzeugen. Bei einer Spiralraket-Beschichtung wie sie in



a. Polarisationsrichtung des Durchlichts parallel zur Auftragsrichtung



b. Polarisationsrichtung des Durchlichts senkrecht zur Auftragsrichtung

Abbildung 5.2.: Beschichtungsbild eines 15 cm breiten LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren bei geringer Auftragsgeschwindigkeit, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht



Abbildung 5.3.: Vergrößerter Ausschnitt des Beschichtungsbilds aus Abbildung 5.2, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht, Auftragsrichtung 45° zur Polarisationsrichtung des Durchlichts orientiert

Kapitel 2.8.2 beschrieben ist, wird in Auftragsrichtung grundsätzlich keine Struktur im Beschichtungsbild erzeugt, jedoch kann sich die Fräsung quer zur Beschichtungsrichtung abbilden (siehe Abbildung 5.4). Die so hergestellte LFK-Schicht wirkt als Polarisator, wie der Helligkeitsunterschied zwischen den beiden Abbildungen 5.4b und 5.4a mit jeweils unterschiedlicher Orientierung der Polarisationsrichtung des Durchlichts nachweist. Die entlang der Beschichtungsrichtung verlaufenden Linien, besonders deutlich bei einer 45° -Orientierung der Polarisationsrichtung des Durchlichts zur Auftragsrichtung erkennbar (siehe Abbildung 5.4c), sind jedoch unerwünscht.

Ist der Schichtauftrag ausreichend dick, können die erzeugten Strukturen verfließen, solange die Schicht noch nicht trocken ist. In Abbildung 5.5 ist das Beschichtungsbild in solch einem



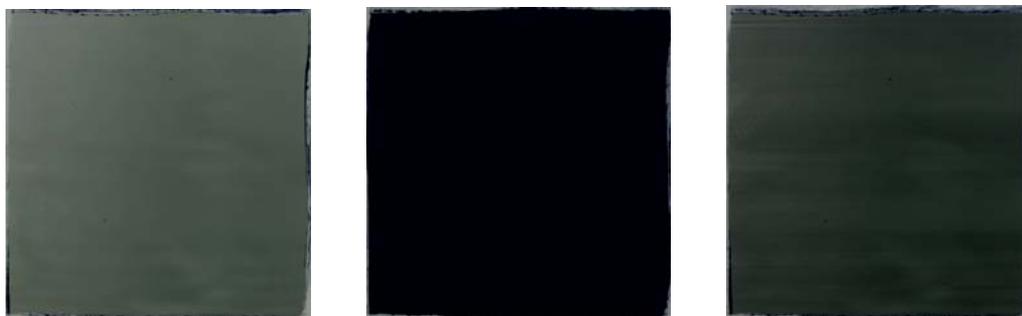
a. Polarisationsrichtung des Durchlichts parallel zur Auftragsrichtung orientiert

b. Polarisationsrichtung des Durchlichts senkrecht zur Auftragsrichtung orientiert

c. Polarisationsrichtung des Durchlichts 45° zur Auftragsrichtung orientiert

Abbildung 5.4.: Beschichtungsbild eines ca. 4 cm breiten LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Spiralrakelbeschichtungsverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht

Fall dargestellt; es sind kaum mehr Linien erkennbar. Nachteilig ist, dass sich durch die dickere Schicht bereits in Durchlassrichtung des Polarisators eine deutlich verminderte Transmission ergibt (siehe Abbildung 5.5a). Dies vermindert zudem den Schaltheub einer damit gebauten Flüssigkristallzelle. Das Verfließen wirkt jedoch auch auf die Orientierung der LFK-Supramoleküle,



a. Polarisationsrichtung des Durchlichts parallel zur Auftragsrichtung orientiert

b. Polarisationsrichtung des Durchlichts senkrecht zur Auftragsrichtung orientiert

c. Polarisationsrichtung des Durchlichts 45° zur Auftragsrichtung orientiert

Abbildung 5.5.: Beschichtungsbild eines ca. 4 cm breiten, dicken LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Spiralrakelbeschichtungsverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht

so dass die Möglichkeit besteht, dass sie ihre einheitliche Orientierung verlieren. Grundsätzlich kann es bei dicken Schichten zu einem Rückorientieren der LFK-Supramoleküle kommen: Solange die Schicht noch nicht trocken ist, wirkt die Brown'sche Bewegung auf die Moleküle. Dies wird in Abbildung 5.6 deutlich. Dieses Beschichtungsbild wurde im Schlitzdüsenbeschichtungs-

verfahren hergestellt. Jeweils der Bereich in der linken Hälfte entstand durch das Anfahren, wodurch hier der Schichtauftrag besonders dick ist. Es zeigt sich, dass die Helligkeit dieses Bereichs im Gegensatz zum übrigen Bereich nahezu unabhängig von der Orientierung des polarisierten Durchlichts gleichbleibt. Desweiteren ist eine Körnung erkennbar.



a. Polarisationsrichtung des Durchlichts parallel zur Auftragsrichtung orientiert

b. Polarisationsrichtung des Durchlichts senkrecht zur Auftragsrichtung orientiert

c. Polarisationsrichtung des Durchlichts 45° zur Auftragsrichtung orientiert

Abbildung 5.6.: Beschichtungsbild des Anfahrbereichs (ca. 5 cm breiter Ausschnitt) eines LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht

Die sich aus den Materialeigenschaften ergebenden Anforderungen an ein Beschichtungsverfahren für den LFK-Polarisator lauten:

1. die Supramoleküle müssen während des Schichtauftrags linear ausgerichtet werden,
 - a) durch ausreichende Scherkräfte und
 - b) durch eine lineare Auftragsrichtung.
2. Es dürfen keine Strukturen abgebildet oder erzeugt werden, insbesondere
 - a) quer zur Auftragsrichtung darf die Beschichtungsapparatur keine Strukturen aufweisen und
 - b) die Bewegung muss gleichförmig sein.
3. Ausreichend dünne Schichten müssen abscheidbar sein, um
 - a) eine ausreichende Transmission zu ermöglichen und



- b) eine Rückorientierung der LFK-Supramoleküle während des Trockenvorgangs zu verhindern.

5.1.2. Anforderungen aufgrund des Glassubstrats

Da Glassubstrate beschichtet werden sollen, die gewisse Welligkeiten aufweisen können [46], muss das Verfahren bezüglich des Abstandes der Beschichtungseinrichtung vom Substrat einen ausreichende Toleranz aufweisen.

- 4. Zum einen muss die Beschichtung auch bei Schwankungen des Abstands stabil sein,
- 5. zum anderen muss die erzeugte Schichtdicke unabhängig vom Abstand sein.

Diese Bedingungen werden zum Beispiel vom Spiralrakelbeschichtungsverfahren nicht erfüllt, da hier ein starrer Stab über das Substrat gleitet. So können Welligkeiten im Glas nicht ausgeglichen werden (siehe auch Kapitel 2.8.2).

5.1.3. Anforderungen bezüglich der Wirtschaftlichkeit

Bezüglich der Wirtschaftlichkeit lassen sich aus den grundsätzlichen Anforderungen an eine wirtschaftliche Herstellung aus Kapitel 3.2 folgende Forderungen ableiten: Das Beschichtungsverfahren muss

- 6. skalierbar sein,
- 7. eine hohe Auftragsgeschwindigkeit aufweisen
- 8. und eine definierte Schichtdicke aufweisen können.
 - a) Insbesondere muss die Schichtdicke reproduzierbar und
 - b) einstellbar sein, unabhängig von der Auftragsgeschwindigkeit.
- 9. Die Beschichtungsfläche soll begrenzt sein.

Um die Eigenschaften des gewählten Beschichtungsverfahrens von einem kleinen Probesubstrat auf große Flächen, wie sie bei Isolierverglasungen auftreten, übertragen zu können, ist ein skalierbares Beschichtungsverfahren notwendig. Eine prinzipielle Skalierbarkeit ist durch ein lineares Beschichtungsverfahren bereits gegeben, da es keine grundsätzliche Beschränkung der Auftragslänge gibt, sofern stets Beschichtungsmaterial nachgeführt werden kann. Jedoch ist

es notwendig, dass das Verfahren auch in der Breite skalierbar ist, um große Flächen nahtlos beschichten zu können. Für eine rationelle Herstellung der Beschichtungen ist eine hohe Auftragsgeschwindigkeit erstrebenswert.

Reproduzierbarkeit, insbesondere hinsichtlich der Schichtdicke, ist für einen kontinuierlichen Produktionsprozess unerlässlich. Die Schichtdicke muss unabhängig von der Auftragsgeschwindigkeit einstellbar sein, so dass beispielsweise Materialveränderungen, die sich nicht in gleichem Maße auf die mechanischen und auf die optischen Eigenschaften des LFK auswirken, kompensiert werden können. Darüber hinaus ist es wünschenswert, dass beim gewählten Beschichtungsverfahren die zu beschichtende Fläche innerhalb der Substratfläche begrenzt werden kann, d. h., es sollten möglichst keine Nacharbeiten erforderlich sein, um einen umlaufenden, definierten Bereich von LFK freihalten zu können (siehe Abbildung 5.7). Die Notwendigkeit eines solchen Bereichs wird in Kapitel 5.8.1 begründet.

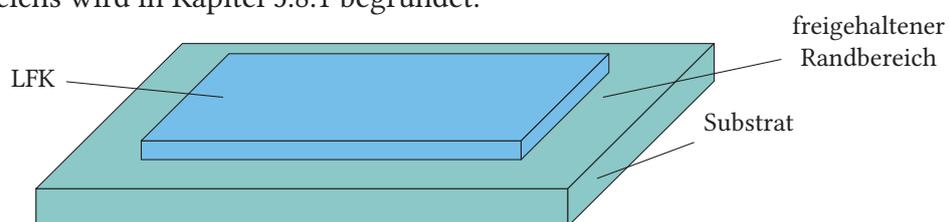


Abbildung 5.7.: LFK-beschichtetes Substrat mit freigehaltenem Rand

5.2. Auswahl eines Auftragsverfahrens – Schlitzdüsenbeschichtung

Das Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren, dessen Grundlagen in Kapitel 2.8.1 vorgestellt wurden, erfüllt als selbstdosierendes Verfahren prinzipiell die in Kapitel 5.1 aufgestellten Forderungen 1, 2, 4, 5, 6 und 8. Speziell bei den Forderungen 1a, 2a, 4, 5 und 8 ist zu überprüfen, ob diese in der Praxis im Zusammenspiel mit dem LFK-Material erfüllt werden. Überhaupt kann erst nach Beschichtungsversuchen eine Aussage getroffen werden, ob die Forderungen 3, 7 und 9 erfüllbar sind.

Für hohe Auftragsgeschwindigkeiten bei zugleich dünnen Schichtaufträgen wäre prinzipiell das Vorhangbeschichtungsverfahren besser geeignet. Zudem lassen sich mit diesem Verfahren mehrere Schichten gleichzeitig auftragen wie beispielsweise bei der Herstellung von fotografischen Filmen [29]. Entscheidend für die Vorhangbeschichtung ist ein ausreichend großer Abstand – in der Regel mehrere Zentimeter – zwischen Schlitzgießer und Substrat. Das Beschichtungsfluid tritt aus dem Schlitzgießer aus und bildet einen Vorhang, der auf das sich bewegende Substrat auftrifft und einen Film bildet. Laut [29] treten im Beschichtungsfluid gewisse Scherkräfte vor dem Austritt aus dem Schlitzgießer auf; ob sie die Forderung 1a erfüllen würden, ist jedoch unklar.

Voraussetzung für die Vorhangbeschichtung ist ein hoher Volumenstrom bei gleichzeitig hoher Substratgeschwindigkeit, um einen stabilen Vorhang und dünne Schichten zu erzeugen. Eben aufgrund des hohen Materialdurchsatzes sowohl an begrenzt verfügbarem Beschichtungsfluid als auch an Substratfläche ist eine Erprobung im Rahmen einer Laborarbeit nicht möglich. Daneben ist nicht vorstellbar, dass dieses Verfahren die Forderung 9 erfüllt. Es ist eine gewisse Strecke erforderlich, um einen stabilen Vorhang zu erzeugen und das Substrat auf die Auftragsgeschwindigkeit zu beschleunigen.

Im Folgenden wird das eingesetzte Auftragssystem für das Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren vorgestellt. Darauf folgen Ausführungen zur Auswertung von Beschichtungen. Im Anschluss wird anhand von Beschichtungsversuchen dargelegt, inwieweit die aufgestellten Forderungen von diesem Auftragsverfahren erfüllt werden können.

5.3. Auftragsystem

Wie in Abbildung 5.8 dargestellt, ist die Schlitzdüse an ein Versorgungssystem angeschlossen, das aus einer Pumpe und einem Vorratsbehälter für das Beschichtungsfluid besteht. Die Pumpe führt der Schlitzdüse das Beschichtungsfluid mit einem Volumenstrom Q von oben zu. Ein

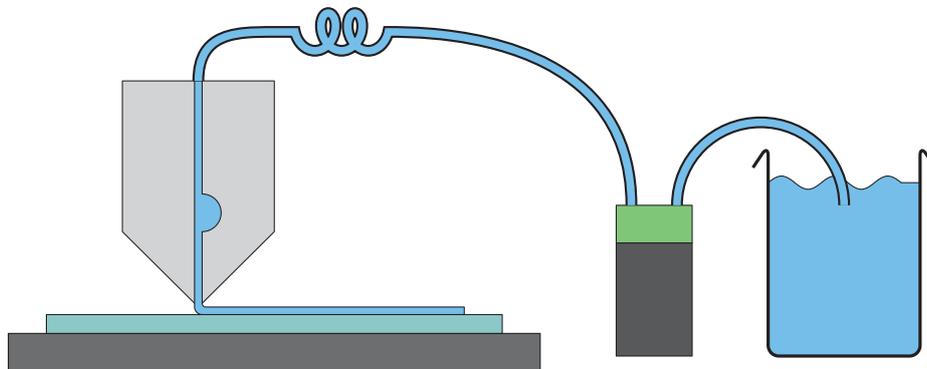
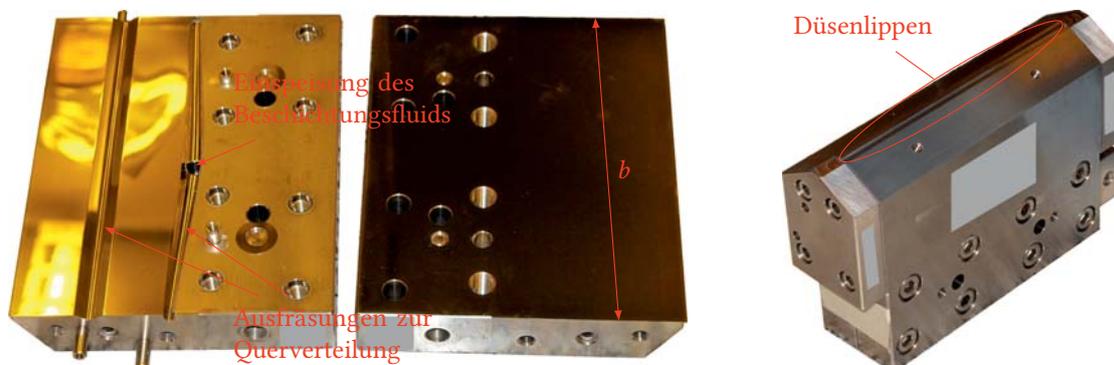


Abbildung 5.8.: Schema des LFK-Auftragssystems

Portalsystem nimmt die Schlitzdüse auf (nach einer Idee von L. Rau), das Substrat lagert auf einer Platte. Beim Verfahren der Schlitzdüse bildet das Beschichtungsfluid einen Film auf dem Substrat. Im Gegensatz zu einem kommerziell verfügbaren Auftragssystem bewegt sich bei diesem System die Düse, während das Substrat fixiert ist. Bei einem kommerziellen System mit fixierter Schlitzdüse und verfahrbarem Substrat besteht der Vorteil in einem kontinuierlichen Beschichtungsprozess, ähnlich einem Fließband. Es ist technisch einfacher, das leichte Substrat gleichförmig zu verfahren als die verhältnismäßig schwere Schlitzdüse. Eine fixierte Schlitzdüse kann unter Umständen präziser ausgerichtet werden. Im Folgenden werden die einzelnen Bestandteile des Auftragssystems genauer beschrieben.

5.3.1. Schlitzdüse

Die eingesetzte Schlitzdüse besitzt eine Schlitzlänge bzw. Bahnbreite b von 15 cm. Die Schlitzweite kann durch Einlegefolien variiert werden und liegt standardmäßig bei 100 μm . Die Lippenbreite beträgt gemäß [47] jeweils ca. 1 mm. Die tatsächliche Schlitzdüse ist in Abbildung 5.9 dargestellt. In Abbildung 5.9a sind die beiden Hälften, aus denen die Schlitzdüse zusammengesetzt ist, abgebildet. Das Beschichtungsfluid tritt durch einen Kanal zentral von oben in die Schlitzdüse ein und wird mittels einer Ausfräsung über die Düsenlänge b in die Düse eingespeist. Das Beschichtungsfluid fließt über eine Fläche, um mit Hilfe einer weiteren Ausfräsung am Austritt an den Düsenlippen in eine parallele, gleichmäßige Strömung gezwungen zu werden. In Abbildung 5.9b ist die zusammengesetzte, einsatzbereite Düse mit nach oben ausgerichteten Düsenlippen dargestellt. Die seitlichen Blöcke dichten die Schlitzdüse nach außen ab.



a. Aufgeklappte Schlitzdüse, Innenflächen

b. Einsatzbereite Schlitzdüse, Schlitz oben

Abbildung 5.9.: Aufnahmen der Schlitzdüse

5.3.2. Versorgungssystem

Das Versorgungssystem besteht aus einer sogenannten Zahnringpumpe. Gemäß [48] wird das Medium über zwei zueinander exzentrisch gelagerte Zahnräder, die durch ihre Drehbewegung Kammern bilden, von der Eingangs- zur Ausgangsseite befördert. Der Vorteil dieses Systems ist es, dass durch Vorgabe einer Drehzahl bei bekannter Kammergröße der Volumenstrom exakt vorgegeben werden kann. Abhängig vom auftretenden Differenzdruck zwischen Ein- und Ausgangsseite besteht eine Abweichung des tatsächlichen Volumenstroms vom aufgrund der Drehzahl vorgegebenen Volumenstrom. Da die Förderkammern nicht vollständig dicht abschließen, kann sich eine gewisse Abweichung einstellen.



5.3.3. Portalsystem

Bei dem Portalsystem handelt es sich um einen in drei Richtungen verfahrbaren Kopf, der die Schlitzdüse aufnimmt. Die Positioniergenauigkeit liegt in einer Größenordnung von Mikrometern. Der Kopf ist so programmiert, dass er zum Substrat auf den gewünschten Abstand abgesenkt wird. Die Förderung des Beschichtungsmediums wird gestartet, anschließend wird der Kopf mit gleichförmiger Geschwindigkeit entlang der y -Achse bewegt.

5.3.4. Beschichtungsparameter

Mit dem vorgestellten Beschichtungssystem können folgende Parameter unmittelbar zur Beschichtungszeit verändert werden: Düsenabstand d vom Substrat, Auftragsgeschwindigkeit v_s und Pumpendrehzahl n_p . Beim Zerlegen und wieder Zusammenbauen der Schlitzdüse kann zusätzlich die Schlitzweite w verändert werden. Ein zusätzlicher Parameter ist die Viskosität η , die durch Modifikation des Beschichtungsfluids eingestellt werden kann.

Gemäß der in Gleichung (2.21) dargestellten Beziehung lassen sich über die genannten Parameter indirekt auch die Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$ und gemäß Gleichung (2.61) die Nassschichtdicke h bzw. die Trockenschichtdicke h_{tr} des Schichtauftrags einstellen.

5.3.5. Einschränkungen durch Beschichtungssystem

Aufgrund des gewählten Beschichtungssystems ist eine minimale Auftragsgeschwindigkeit von ca. 5 mm/s gegeben, niedrigere Werte lässt die Steuerung nicht zu. Die maximale Auftragsgeschwindigkeit ergibt sich allein durch die Stabilität der Beschichtungen und wird nicht durch das System begrenzt.

Desweiteren sind die Verfahrbewegungen des Portalsystems nur begrenzt gleichförmig, insbesondere in y -Richtung oszilliert die Geschwindigkeit. Da der Düsenkopf nicht starr gelagert wird, lässt sich der Abstand zwischen Düse und Substrat nicht exakt einstellen, es besteht eine Ungenauigkeit von mehreren Mikrometern. Weiterhin muss davon ausgegangen werden, dass die Auflagefläche für das Substrat Unebenheiten in der Größenordnung von Mikrometern aufweist. Ebenso weist das Substrat Dickenschwankungen von bis zu 20 μm auf einer Länge von 15 cm auf [46].

Bei der Versorgungspumpe mit Übersetzungsgetriebe lässt sich ein maximale Drehzahl n_p von ca. 1364 U/min einstellen. Das als Verdrängungsvolumen V_g bezeichnete pro Umdrehung förderbare Volumen beträgt 1,5 μL [48]. Sofern keine Abhängigkeit vom Differenzdruck besteht, ergibt sich damit gemäß [48] bei einem volumetrischen Wirkungsgrad von $\eta_{\text{Vol}} = 1$ ein maximaler Volumenstrom von

$$\dot{V} = \eta_{\text{Vol}} \cdot V_g \cdot n_p \approx 2,05 \frac{\text{mL}}{\text{min}}. \quad (5.1)$$

5.4. Auswertung einer Beschichtung

Zur Beurteilung der Qualität einer Beschichtung werden der Beschichtungsvorgang, die Trockenschichtdicke und der optische Eindruck untersucht.

5.4.1. Bewertung des Beschichtungsvorgangs

Zur Bewertung des Beschichtungsvorgangs wird insbesondere untersucht, ob sich ein vollflächiger Schichtauftrag ergeben hat. Dies gibt einen Hinweis darauf, ob der Meniskus zwischen Schlitzdüse und Substrat während des Schichtauftrags stabil war. In Abbildung 5.10 ist die Folge eines Meniskusabrisses dargestellt. Die Beschichtungsrichtung verläuft von links nach rechts.



Abbildung 5.10.: Aufnahme eines Substrats mit Meniskusabriss

Nach kurzer Strecke ist in Querrichtung dazu nur noch abschnittsweise ein Schichtauftrag vorhanden. Es muss also ein teilweiser Meniskusabriss vorgelegen haben.



5.4.2. Bestimmung der Trockenschichtdicke

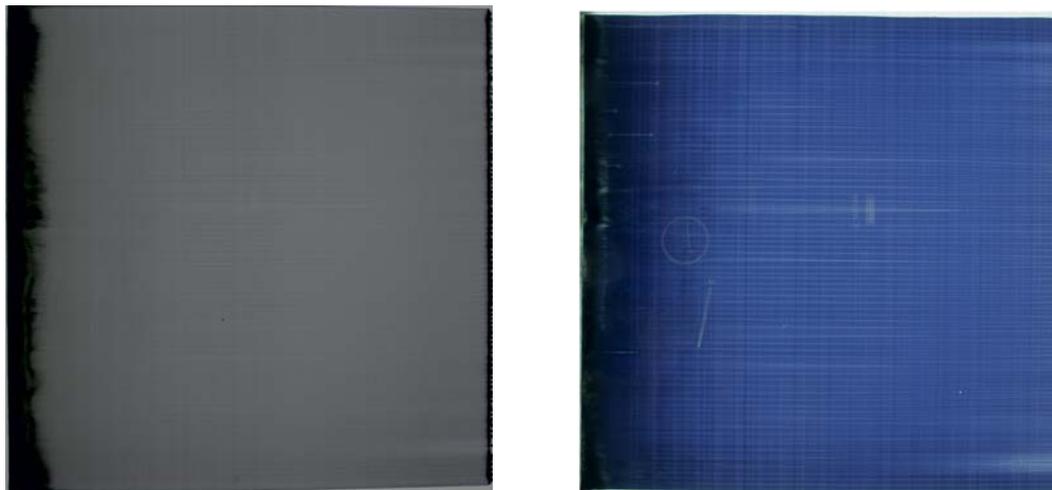
Zur Bestimmung der Trockenschichtdicke wird ein Kontaktprofilometer eingesetzt. Hierbei fährt eine feine Nadel über eine Stufe im Schichtauftrag hinweg. Dabei wird die Kraft gemessen, die auf die Nadel wirkt und in eine Höhenmessung übersetzt. Speziell die LFK-Schichten sind derart weich, dass die Nadel auch bei geringster Krafteinstellung eine sichtbare Spur in der LFK-Schicht hinterlässt. Durch Überfahren einer bereits vorhandenen Messspur lässt sich die Tiefe dieser Spur näherungsweise ermitteln. Es stellt sich heraus, dass die Spur ca. 5 nm tief ist.

Weiterhin muss in der Schicht eine geeignete Stufe erzeugt werden. Dies kann entweder durch mechanisches Abkratzen der Schicht mit einem Skalpell geschehen oder durch einen Tropfen Wasser, der die Schicht an der betreffenden Stelle auflöst. Beim ersten Verfahren besteht die Gefahr, dass entweder in die darunterliegende Schicht gekratzt wird oder dass nicht tief genug gekratzt wird. Beim zweiten Verfahren besteht die Gefahr, dass sich in dem Wassertropfen das aufgelöste Material nicht ausreichend verdünnt, so dass nach dem Trocknen des Wassers ein dünner, jedoch nicht sichtbarer Film auf dem Substrat zurückbleibt.

Für die Messungen wurde zunächst das wasserbasierte Verfahren eingesetzt. Aufgrund des dabei erforderlichen hohen Aufwands wurde später jedoch das Kratzverfahren bevorzugt, um unmittelbar nach dem Beschichtungsvorgang die Trockenschichtdicke bestimmen zu können. Aufgrund von Schwankungen in der Trockenschichtdicke, insbesondere infolge der oszillierenden Auftragsgeschwindigkeit entlang der Beschichtungsrichtung, ist eine reproduzierbare Schichtdickenmessung ohnehin nur in engen Grenzen möglich.

5.4.3. Optische Bewertung

Aufgrund der Polarisatorwirkung der aufgetragenen Schicht lässt sich sehr schnell eine optische Bewertung unter polarisiertem Licht vornehmen, z. B. mittels eines Folienpolarisators. Fehlorientierungen der Supramoleküle in der LFK-Schicht schlagen sich so direkt in Helligkeitsschwankungen nieder, die im unpolarisierten Licht nicht erkennbar sind. Störungen im Schichtauftrag, die mit bloßem Auge nicht erkennbar sind, sind letztendlich irrelevant für die angedachte Anwendung. Zur Verdeutlichung der Nützlichkeit des polarisierten Lichts für die optische Bewertung sind in Abbildung 5.11 zwei Aufnahmen desselben Substrats dargestellt, mit und ohne Polarisationsfilter. In Abbildung 5.11a sind keinerlei Störungen zu erkennen, wohingegen in Abbildung 5.11b deutliche Defekte zu sehen sind.



a. Unter nicht polarisiertem Durchlicht

b. Unter polarisiertem Durchlicht, senkrecht zur Auftragsrichtung

Abbildung 5.11.: Druckbild eines LFK-Polarisators, hergestellt im Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren

5.5. Parameterbereiche für stabile Beschichtungen

Um darlegen zu können, inwiefern das Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren die zu Anfang des Kapitels abgeleiteten Forderungen erfüllt, sollen zunächst die Bereiche stabiler Beschichtungen ermittelt werden. Ausgangspunkt sind die in Kapitel 2.8.1 dargelegten theoretischen Grundlagen, mit deren Hilfe Voraussagen zur Stabilität der vorliegenden Materialien und des eingesetzten Beschichtungssystems getroffen werden sollen. Im Anschluss werden diese Voraussagen mit den Ergebnissen aus Beschichtungsversuchen abgeglichen.

Als ersten Überblick über die durchgeführten Beschichtungen sind in Abbildung 5.12 die Trockenschichtdicken sämtlicher stabiler Beschichtungsvorgänge über dem Schlitzdüsenabstand eingetragen. Mit unverändertem LFK wurden minimale Trockenschichtdicken von ca. 400 nm erzielt, während mit LFK, der vor der Beschichtung verdünnt worden war, ca. 250 nm erreicht wurden.

In Abbildung 5.13 sind dieselben Beschichtungsvorgänge in Abhängigkeit der Auftragsgeschwindigkeit dargestellt. Gleichsam bei niedriger Auftragsgeschwindigkeit (ca. 5 mm/s) und bei hoher Auftragsgeschwindigkeit (ca. 17 mm/s) konnten die minimalen Trockenschichtdicken erzielt werden.

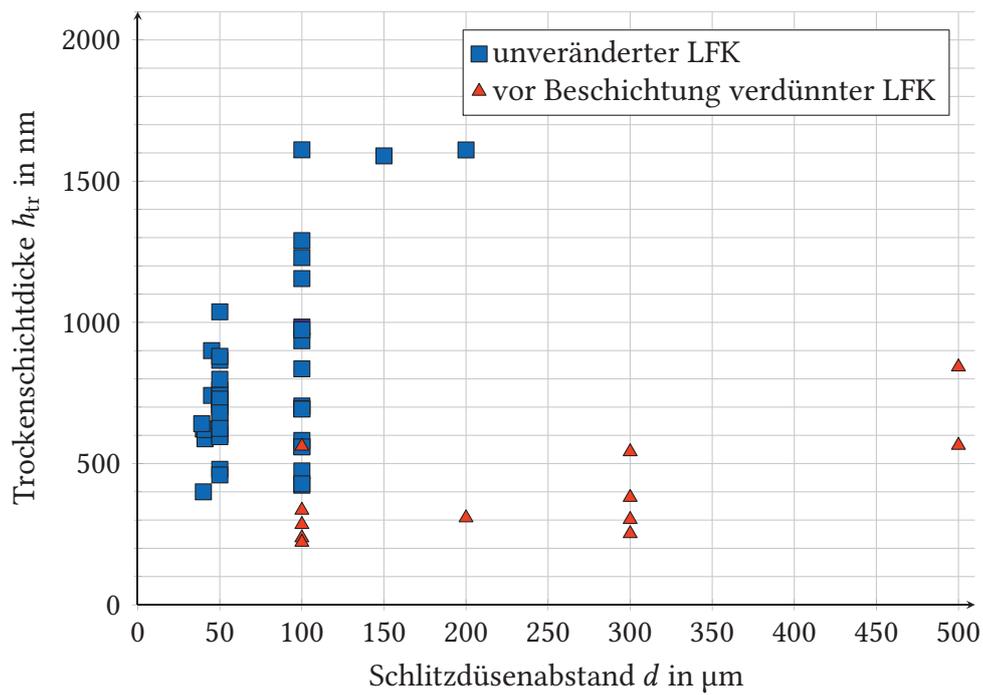


Abbildung 5.12.: Trockenschichtdicken stabiler Beschichtungen, abhängig vom Düsenabstand

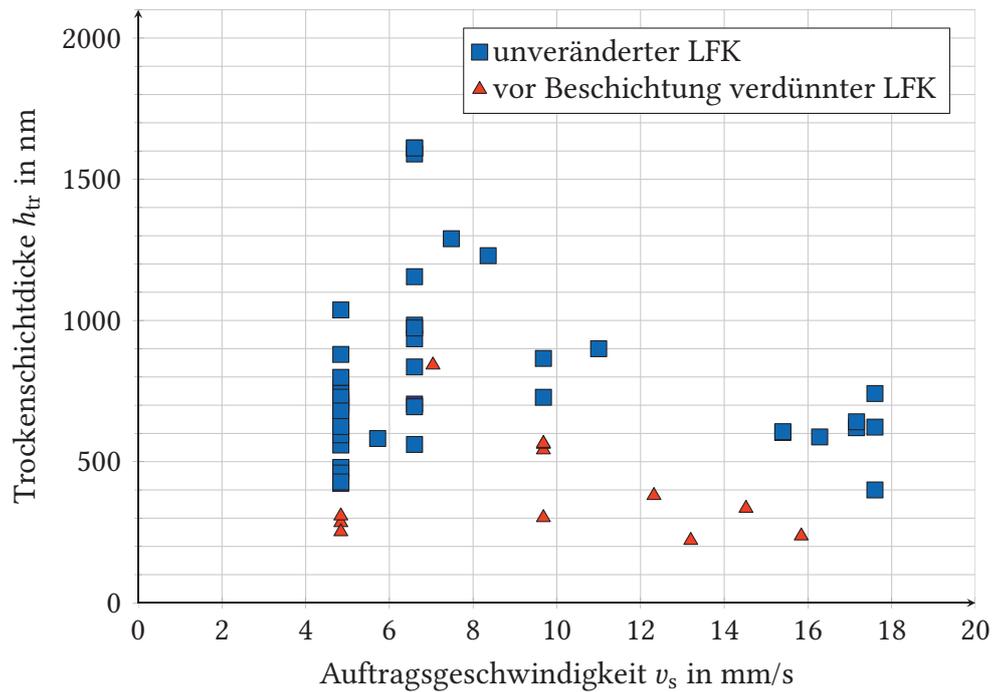


Abbildung 5.13.: Trockenschichtdicken stabiler Beschichtungen, abhängig von der Auftragsgeschwindigkeit v_s

5.5.1. Vorbereitende Untersuchungen und Annahmen

Zunächst soll der Stabilitätsbereich für den Fall des Low-Flow-Limits gemäß Gleichung (2.79) dargestellt werden, d. h., es wird die Stabilität des filmbildenden Meniskus betrachtet. Gemäß [32] wird dazu die Kapillarzahl $Ka = \frac{\eta v_s}{\sigma}$ der jeweiligen Beschichtung in Abhängigkeit vom Düsenabstand ermittelt. Dazu muss zunächst die dynamische Viskosität des LFK in Abhängigkeit von der Schergeschwindigkeit bestimmt werden. Dies wurde von der Firma FMP Technology GmbH [49] durchgeführt und es ergaben sich die in Abbildung 5.14 dargestellten Werte. Deutlich zu erkennen ist ein scherverdünnendes Verhalten, d. h., mit zunehmender Schergeschwindigkeit nimmt die Viskosität ab. Der LFK zeigt somit nicht Newton'sches Verhalten.

5.5.1.1. Approximation der Viskositätswerte

Um nun die Viskositätswerte für sämtliche Schergeschwindigkeitswerte approximieren zu können, kann die Abhängigkeit der Viskosität von der Schergeschwindigkeit durch eine Näherungsformel beschrieben werden. Dazu eignet sich in ihrer allgemeinen Form z. B. die Gleichung von Carreau-Yasuda [50], welche die Abhängigkeit der Viskosität von der Schergeschwindigkeit beschreibt:

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta_0 [1 + (\lambda \dot{\gamma})^m]^{\frac{n-1}{m}}, \quad (5.2)$$

wobei η_0 die sogenannte Nullviskosität beschreibt, d. h. die Viskosität bei nicht vorhandener Scherung. Weiterhin bezeichnet λ eine charakteristische Zeitkonstante. Bei den Bezeichnern n und m handelt es sich um empirische Größen. Wird diese Gleichung an die Messwerte in Abbildung 5.14 approximiert, ergeben sich die Werte $\eta_0 = 66,29 \text{ mPa} \cdot \text{s}$, $\lambda = 8,961 \text{ ms}$, $n = 0,8304$ und $m = 0,8353$.

Zur Berechnung von Ka wird nun die Approximation nach Gleichung (5.2) verwendet. Zur Bestimmung des „Arbeitspunkts“ in der approximierten Kurve wird die Schergeschwindigkeit benötigt. Vereinfachend wird diese aus dem Quotienten der Auftragsgeschwindigkeit v_s und dem Abstand d zwischen Schlitzdüsenlippen und Substrat berechnet:

$$\dot{\gamma} \approx \frac{v_s}{d}. \quad (5.3)$$

Weiterhin wird der dimensionslose Abstand $d^* = \frac{d}{h}$ als Verhältnis von Schlitzdüsenabstand d und Nassschichtdicke h eingeführt. Dies ist eine übliche Darstellungsweise bei der Analyse von Schlitzdüsenbeschichtungen, da sich damit Beschichtungsergebnisse unabhängig von diesen beiden Größen vergleichen lassen. Für die Grenze des Low-Flow-Limits aus Gleichung (2.79) folgt damit:

$$Ka \approx \frac{1,82}{(d^* - 1)^{\frac{3}{2}}}. \quad (5.4)$$

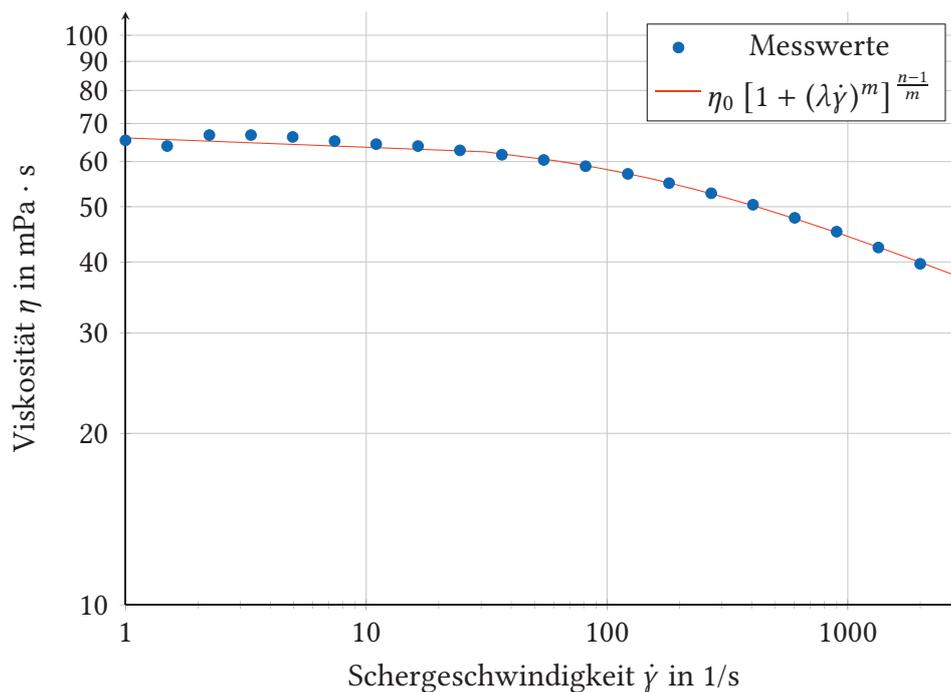


Abbildung 5.14.: Viskosität in Abhängigkeit von der Schergeschwindigkeit nach Messungen der Firma FMP Technology GmbH [49]

Aus den Beschichtungen ist der Parameter d direkt bekannt. Die Nassschichtdicke h dagegen kann nur indirekt bestimmt werden, entweder aus dem Volumenstrom oder aus der gemessenen Trockenschichtdicke, sofern allgemein das Verhältnis zwischen Nassschicht- und Trockenschichtdicke bekannt ist. Da keine Messung des Volumenstroms erfolgte, kann der Volumenstrom selbst nur indirekt aus der vorgegebenen Pumpendrehzahl bestimmt werden. Wie jedoch bereits in Kapitel 5.3.2 beschrieben, ist der tatsächliche Volumenstrom nur bedingt proportional zur vorgegebenen Pumpendrehzahl. Die Trockenschichtdicke kann hingegen direkt gemessen werden, jedoch aufgrund der Schichtdickenschwankungen in der Auftragsschicht nur lokal.

5.5.1.2. Ermittlung des Schichtdickenverhältnisses zwischen Nassschicht und Trockenschicht

Zur Ermittlung des Schichtdickenverhältnisses zwischen Nassschicht und Trockenschicht muss zunächst das Verhältnis zwischen der Dichte der Trockenschicht ρ_{fs} – im Folgenden als Feststoff bezeichnet – und der Dichte des Auftragsmaterials in flüssiger Form ρ_{ti} – im Folgenden als Tinte bezeichnet – bestimmt werden. Unter Vernachlässigung einer möglichen Volumenkontraktion der Mischung von Lösemittel und Feststoff in der LFK-Tinte lässt sich folgende Beziehung für die Volumina der Einzelkomponenten aufstellen:

$$V_{ti} = V_{fs} + V_{lm}, \quad (5.5)$$

wobei V_{ti} , V_{fs} und V_{lm} das Volumen der Tinte, des Feststoffs und des Lösemittels bezeichnen. Jeder Volumenanteil kann durch seine Dichte ρ und seine Masse m gemäß $V = \frac{m}{\rho}$ ausgedrückt werden. Aus Gleichung (5.5) folgt:

$$\frac{m_{ti}}{\rho_{ti}} = \frac{m_{fs}}{\rho_{fs}} + \frac{m_{lm}}{\rho_{lm}}. \quad (5.6)$$

Der Feststoffmassenanteil w_{fs} der LFK-Tinte ist bekannt und damit auch der Massenanteil $1 - w_{fs}$ des Lösemittels, so dass sich folgender Ausdruck ergibt:

$$\frac{m_{ti}}{\rho_{ti}} = \frac{w_{fs} \cdot m_{ti}}{\rho_{fs}} + \frac{(1 - w_{fs}) \cdot m_{ti}}{\rho_{lm}}. \quad (5.7)$$

Damit ergibt sich für die Dichte der LFK-Tinte in Abhängigkeit von der Feststoffdichte und der Lösemitteldichte folgende Gleichung:

$$\rho_{ti} = \frac{1}{\frac{w_{fs}}{\rho_{fs}} + \frac{1-w_{fs}}{\rho_{lm}}}. \quad (5.8)$$

Dies gilt allerdings nur unter der Voraussetzung, dass sich in der Trockenschicht, die durch den Feststoff gebildet wird, keine „Löcher“ oder „Poren“ befinden, die das Volumen vergrößern und damit die Dichte verringern würden. Die resultierende Gleichung ist so auch in [32] angegeben.

Die Dichte der LFK-Tinte ist aus eigenen Messungen bekannt:

$$\rho_{ti} = 1,06 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}. \quad (5.9)$$

Das Lösemittel besteht hauptsächlich aus Wasser und zu wenigen Gewichtsprozent aus unbekanntem Additiven, die deswegen vernachlässigt werden, so dass $\rho_{lm} = 1 \text{ g/cm}^3$ angenommen wird. Des Weiteren beträgt gemäß Herstellerdatenblatt [20] der Feststoffmassenanteil $w_{fs} = 12,4 \%$.

Somit ergibt sich gemäß Gleichung (5.8) für den LFK eine Feststoffdichte von

$$\rho_{fs} \approx 1,84 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}. \quad (5.10)$$

Entsprechend ergibt sich für das Dichteverhältnis

$$\frac{\rho_{fs}}{\rho_{ti}} \approx 1,74. \quad (5.11)$$

Damit lässt sich nun die Nassschichtdicke h aus der Trockenschichtdicke h_{tr} gemäß folgendem Zusammenhang berechnen:

$$\frac{h}{h_{\text{tr}}} = \frac{V_{\text{ti}}}{V_{\text{fs}}} = \frac{\frac{m_{\text{ti}}}{\rho_{\text{ti}}}}{\frac{m_{\text{fs}}}{\rho_{\text{fs}}}} = \frac{\rho_{\text{fs}} \cdot m_{\text{ti}}}{\rho_{\text{ti}} \cdot m_{\text{ti}} \cdot w_{\text{fs}}} = \frac{\rho_{\text{fs}}}{\rho_{\text{ti}}} \cdot \frac{1}{w_{\text{fs}}}. \quad (5.12)$$

So ergibt sich für die Nassschichtdicke des LFK:

$$h \approx 14,5 \cdot h_{\text{tr}}. \quad (5.13)$$

Des Weiteren ist für die Berechnung der Kapillarzahl Ka die Oberflächenspannung σ notwendig, die ebenfalls von der Firma FMP Technology GmbH zu

$$\sigma = 27,28 \frac{\text{mN}}{\text{m}} \quad (5.14)$$

bestimmt wurde [49].

5.5.1.3. Einfluss des Differenzdrucks auf den Volumenstrom

Der bereits in Kapitel 5.3.2 beschriebene Einfluss des Differenzdrucks auf den tatsächlichen Volumenstrom ist bei den hier vorliegenden Materialeigenschaften in Kombination mit den Prozessparametern sehr deutlich. Je nach Abstand zwischen Schlitzdüse und Substrat oder auch je nach Weite des Düsenpalts ergeben sich bei gleicher Pumpendrehzahl unterschiedliche Volumenströme, d. h. der in Gleichung (5.1) eingeführte volumetrische Wirkungsgrad η_{Vol} ändert sich. Da der Volumenstrom nicht direkt gemessen wurde, wird er mit Hilfe des zuvor berechneten Schichtdickenverhältnisses (5.13) gemäß Gleichung (2.61) aus der gemessenen Trockenschichtdicke h_{tr} , der bekannten Bahnbreite b und der vorgegebenen Substratgeschwindigkeit v_s berechnet:

$$\dot{V} = 14,5 \cdot h_{\text{tr}} \cdot b \cdot v_s. \quad (5.15)$$

Damit ergibt sich der volumetrische Wirkungsgrad $\eta_{\text{Vol}} = \frac{\dot{V}}{V_g \cdot n_p}$ aus dem bekannten Verdrängungsvolumen V_g und der vorgegebenen Pumpendrehzahl n_p . In Abbildung 5.15 ist dargestellt, wie sich der volumetrische Wirkungsgrad der Pumpe in Abhängigkeit von der Pumpendrehzahl ändert.

Es wird deutlich, dass mit zunehmender Pumpendrehzahl der volumetrische Wirkungsgrad geringer wird, was darauf hindeutet, dass der Differenzdruck zwischen Ein- und Ausgangsseite der Pumpe zunimmt. Bei kleiner Pumpendrehzahl nähert sich der volumetrische Wirkungsgrad dem Ideal von 1 an. Vernachlässigt man die Zuführungsleitungen und betrachtet nur die Strömung zwischen den Platten der Schlitzdüse, so handelt es sich hierbei näherungsweise um eine Poiseuille-Strömung. Es gilt dann für den Volumenstrom die Gleichung (2.66) mit dem Zusatz $v_s = 0$, da der Couette-Strömungs-Anteil entfällt:

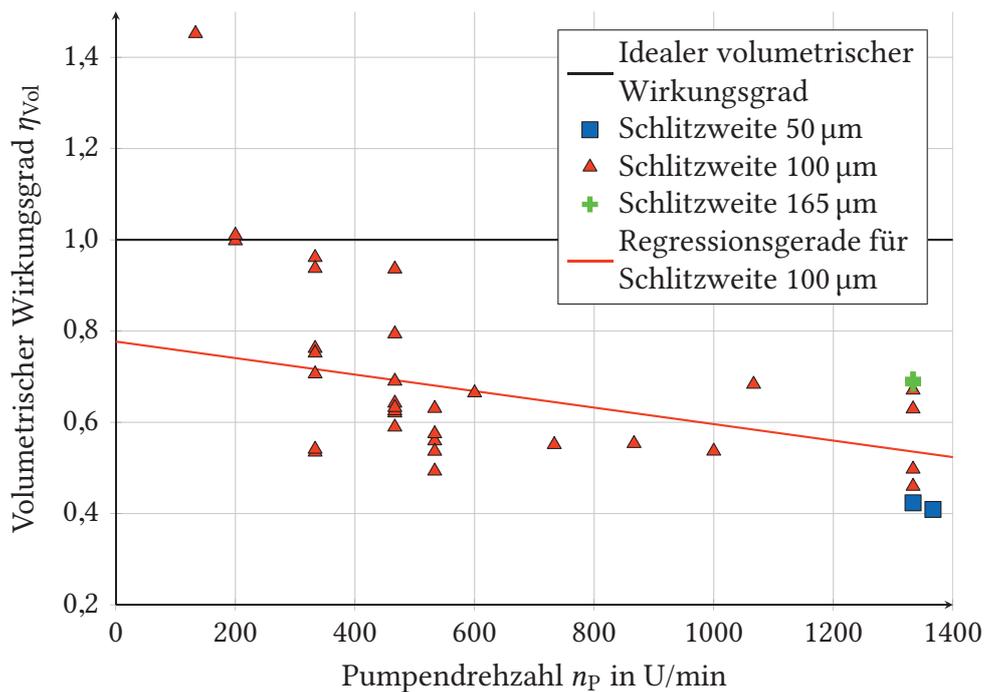


Abbildung 5.15.: Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Pumpendrehzahl bei stabilen Beschichtungsvorgängen, Schlitzweite als Parameter

$$\dot{V} = -\frac{bd^3}{12\eta} \cdot \frac{\Delta p}{\Delta x}. \quad (5.16)$$

Proportional zum Volumenstrom \dot{V} baut sich in der Schlitzdüse die Druckdifferenz Δp auf. Betrachtet man in Abbildung 5.15 nur die Werte für eine Schlitzweite von 100 μm , so zeigt die dazu berechnete Regressionsgerade eine Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Drehzahl und damit vom Volumenstrom.

Ebenso zeigt sich der Einfluss der Schlitzweite und damit des Düsenplattenabstands auf den Differenzdruck an der Pumpe. Zwischen der Druckdifferenz in der Schlitzdüse und dem Plattenabstand – hier d – besteht gemäß Gleichung (5.16) eine kubische Abhängigkeit, wobei die Druckdifferenz mit kleiner werdendem Plattenabstand ansteigt. Dies steht in Einklang mit Abbildung 5.15, wo der volumetrische Wirkungsgrad bei der kleinsten Schlitzweite am geringsten ist.

In Abbildung 5.16 sind die Werte für das Schichtdickenverhältnis nach dem Abstand zwischen Düse und Substrat – 50 μm und 100 μm – sortiert, wobei die Schlitzweite stets 100 μm beträgt. Verringert sich der Abstand zwischen Schlitzdüse und Substrat, sollte der Differenzdruck an der Pumpe zunehmen und damit der volumetrische Wirkungsgrad abnehmen. Aufgrund der großen Streuung der Messwerte lässt sich in Abbildung 5.16 dazu jedoch keine Aussage

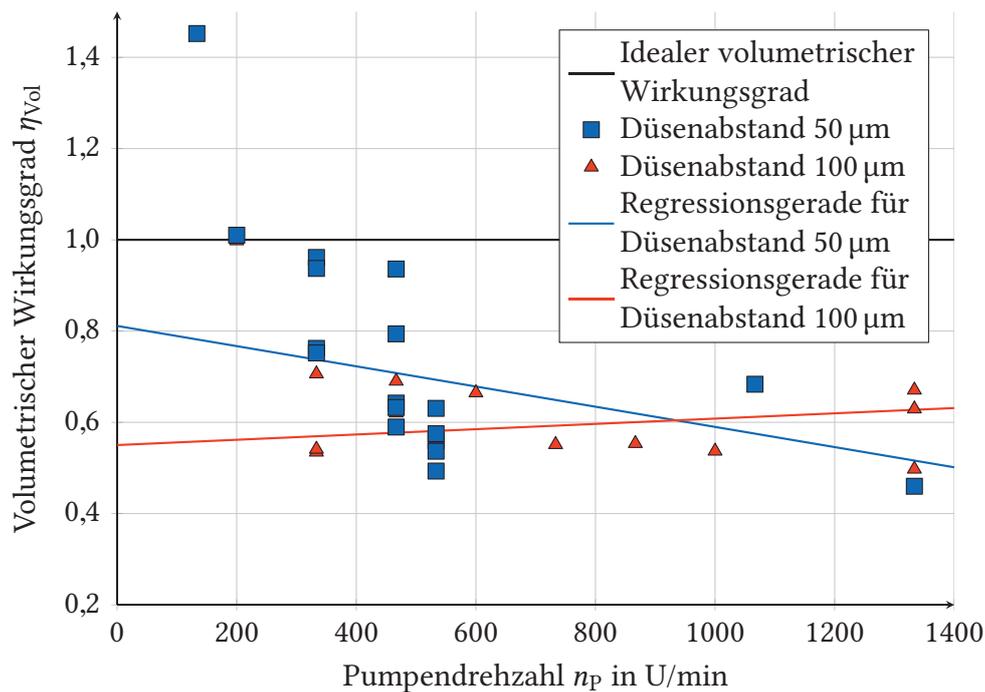


Abbildung 5.16.: Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Pumpendrehzahl bei stabilen Beschichtungen, Schlitzweite $w = 100 \mu\text{m}$, Düsenabstand als Parameter

treffen. Es ist lediglich zu erkennen, dass bei einem Düsenabstand von $50 \mu\text{m}$ die zugehörige Regressionsgerade eine betragsmäßig größere Steigung aufweist als bei einem Düsenabstand von $100 \mu\text{m}$. Dies könnte darauf hindeuten, dass bei kleinerem Düsenabstand der Einfluss der Pumpendrehzahl auf den volumetrischen Wirkungsgrad größer ist.

5.5.2. Low-Flow-Limit

Für jeden Beschichtungsvorgang lässt sich nun aus den bekannten Werten für Auftragsgeschwindigkeit v_s , Schlitzdüsenabstand d zwischen Düsenlippen und Substrat und gemessener Trockenschichtdicke h_{tr} jedem normierten Abstand d^* gemäß Gleichung (5.4) ein Wert für Ka zuordnen. In Abbildung 5.17 sind die entsprechenden Datenpunkte sämtlicher stabiler Beschichtungsvorgänge eingetragen. Daneben ist die Kurve des Low-Flow-Limits eingezeichnet. Es zeigt sich, dass sämtliche stabilen Beschichtungen unterhalb des Low-Flow-Limits liegen und somit anscheinend das Stabilitätskriterium erfüllen. Es stellt sich nun die Frage, ob dieses Kriterium tatsächlich die stabilen von den instabilen Beschichtungen unterscheidet. Zur Klärung der Frage werden im nächsten Schritt zusätzlich die Datenpunkte der instabilen Beschichtungen berechnet.

Bei den instabilen Beschichtungen ergibt sich die Schwierigkeit, dass keine aussagekräftigen Messungen für die Trockenschichtdicke möglich sind, um daraus die Nassschichtdicke

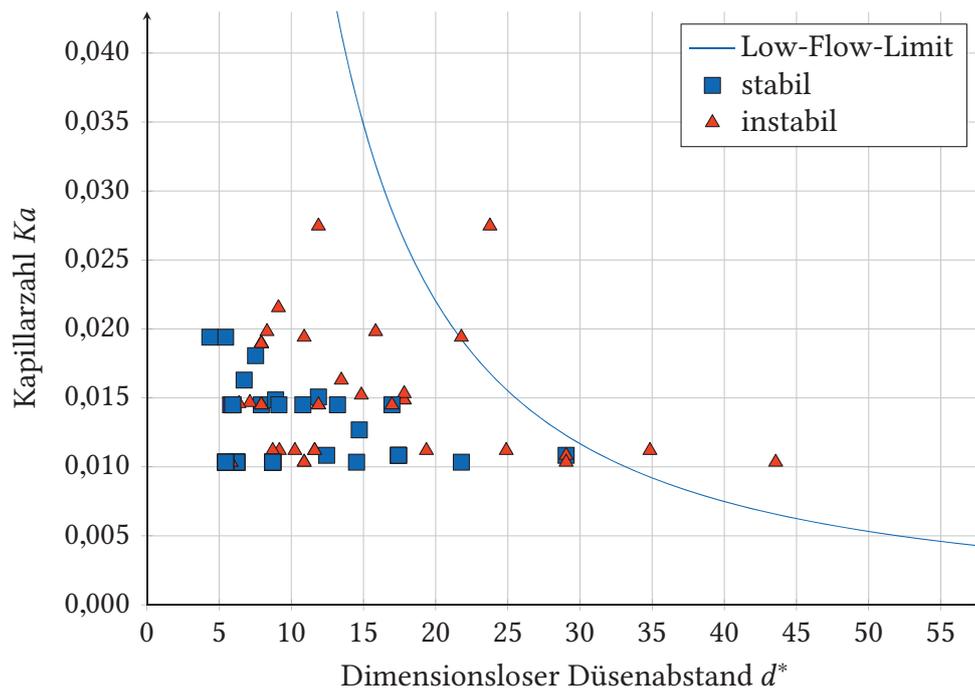


Abbildung 5.18.: Low-Flow-Limit-Betrachtung der Kapillarnzahlen stabiler und instabiler Beschichtungsvorgänge in Abhängigkeit vom normierten Düsenabstand d^* , Nassschichtdicke aus vorgegebenem Volumenstrom berechnet

5.5.3. Visko-kapillares Stabilitätskriterium

Der benetzende Meniskus liegt am Substrat unter einem Kontaktwinkel ψ_b an (siehe Abbildung 2.16). Im statischen Fall der Benetzung von zerstäubungsgeätztem ITO durch LFK beträgt $\psi_b \approx 20^\circ$ [49]. Wegen $Ka \ll 1$ ist dieser Wert auch für den dynamischen Fall gültig. Wird von außen kein Unterdruck angelegt, besitzt der benetzende Meniskus eine konkave Form, ist also ins Düseninnere gewölbt [34]. In Abwandlung zu (2.87) gilt daher:

$$1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{bdv_s}{2} - \frac{dV}{dt} \right) \frac{12\eta l}{bd^3} - \sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d} \leq \Delta p_{fb} \leq 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{bdv_s}{2} - \frac{dV}{dt} \right) \frac{12\eta l}{bd^3} + \frac{6\eta v_s l}{d^2} - \sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d}. \quad (5.17)$$

Die weiteren Schritte sind an die Darstellung in [36] angelehnt. Zur Betrachtung der Schichtdicke wird nun in Gleichung (5.17) der Volumenstrom $\frac{dV}{dt} = \dot{V}$ durch die Beziehung $\dot{V} = h \cdot b \cdot v_s$ aus Gleichung (2.61) ersetzt, so dass sich folgende Gleichung ergibt:

$$1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{d}{2} - h \right) \frac{12\eta v_s l}{d^3} - \sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d} \leq \Delta p_{fb} \leq 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma}{h} + \left(\frac{d}{2} - h \right) \frac{12\eta v_s l}{d^3} + \frac{6\eta v_s l}{d^2} - \sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d}. \quad (5.18)$$

Für den speziellen Fall $\Delta p_{fb} = 0$ ergibt sich nach Multiplikation mit $(-h)$ auf beiden Seiten:

$$0 \leq h^2 \underbrace{\frac{12\eta v_s l}{d^3}}_{=:A} + h \underbrace{\left(\sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d} - \frac{6\eta v_s l}{d^2} \right)}_{=:B} \underbrace{- 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \sigma}_{=:C} \quad \text{bzw.} \quad (5.19a)$$

$$0 \geq h^2 \underbrace{\frac{12\eta v_s l}{d^3}}_{=:A'} + h \underbrace{\left(\sigma \frac{1 + \cos \psi_b}{d} - \frac{12\eta v_s l}{d^2} \right)}_{=:B'} \underbrace{- 1,34 \cdot Ka^{\frac{2}{3}} \sigma}_{=:C'}, \quad (5.19b)$$

wobei A, B und C bzw. A', B' und C' Konstanten bezüglich h sind. Der allgemeine Lösungsansatz der quadratischen Gleichung in h lautet dann:

$$h_{1,2} \leq \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A}, \quad (5.20a)$$

$$h_{3,4} \geq \frac{-B' \pm \sqrt{B'^2 - 4A'C'}}{2A'}. \quad (5.20b)$$

Da $-4AC = -4A'C' > 0$ gilt, ist $\sqrt{B^2 - 4AC} > B$ bzw. $\sqrt{B'^2 - 4A'C'} > B'$ und somit bleibt wegen der Voraussetzung, dass $h \geq 0$ gelten muss, nur jeweils eine Lösung übrig:

$$h_1 \leq \frac{-B + \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A}, \quad (5.21a)$$

$$h_3 \geq \frac{-B' + \sqrt{B'^2 - 4A'C'}}{2A'}. \quad (5.21b)$$

In Abbildung 5.19 sind die so berechenbare untere und die obere Grenze für die Nassschichtdicke in Abhängigkeit von der Auftragsgeschwindigkeit bei einem Abstand $d = 100 \mu\text{m}$ zwischen Schlitzdüse und Substrat dargestellt. Die Nassschichtdicken der einzelnen Beschichtungsvorgänge wurden mit Hilfe des bereits bekannten volumetrischen Wirkungsgrads $\eta_{\text{Vol}} = 0,5$ und des Verdrängungsvolumens $V_g = 1,5 \mu\text{L}$ aus der jeweils vorgegebenen Pumpendrehzahl berechnet. Es sind nur solche Beschichtungen eingetragen, bei welchen der Abstand der Schlitzdüse vom Substrat $d = 100 \mu\text{m}$ beträgt.

Die Nassschichtdicken der stabilen Beschichtungen liegen überwiegend im berechneten Intervall, während die Nassschichtdicken der instabilen Beschichtungen größtenteils außerhalb liegen. Allerdings befinden sich gerade bei geringen Nassschichtdicken aufgrund des schmalen

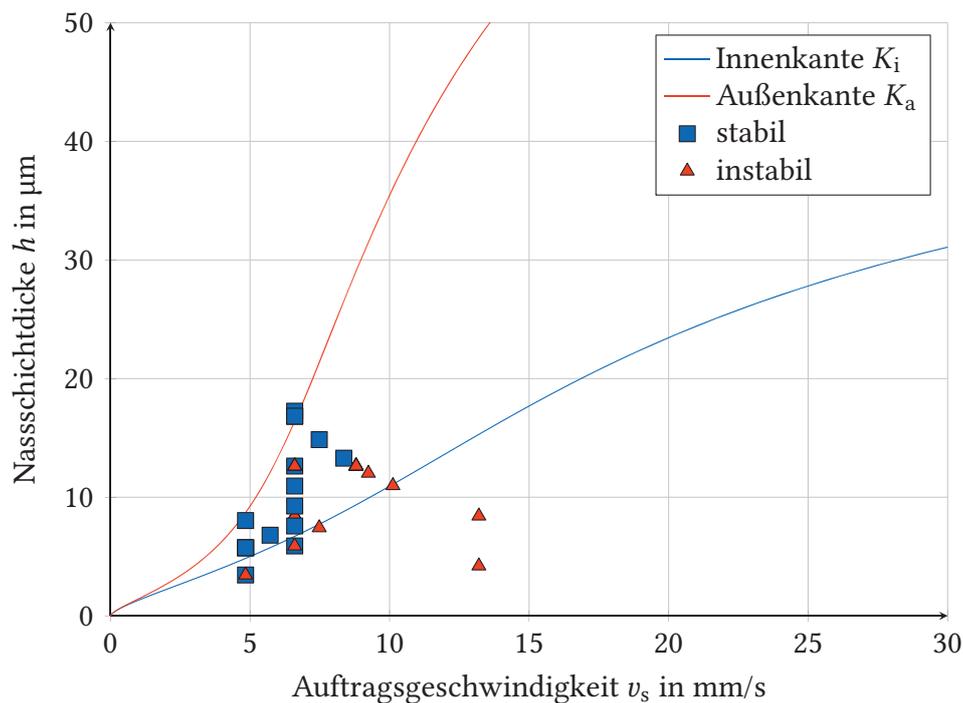


Abbildung 5.19.: Stabilitätsgrenzen der Nassschichtdicke in Abhängigkeit von der Auftragsgeschwindigkeit, $d = 100 \mu\text{m}$

Stabilitätsbereichs viele Beschichtungen an der Grenze zur Instabilität. Damit lassen sich nur schwerlich reproduzierbar stabile Beschichtungsvorgänge erzielen. Bei geringeren Abständen der Schlitzdüse zum Substrat lassen sich geringfügig dünnere Schichten erzielen. Dazu sind in Abbildung 5.20 die Grenzen bei einem Schlitzdüsenabstand von $d = 45 \mu\text{m}$ eingetragen. Die betrachteten Beschichtungen weisen Schlitzdüsenabstände zwischen $40 \mu\text{m}$ und $50 \mu\text{m}$ auf. Der Bereich stabiler Nassschichtdicken ist nun zwar etwas größer, jedoch ist ein Schlitzdüsenabstand von $45 \mu\text{m}$ hinsichtlich möglicher Welligkeiten im Substrat oder in der Substratauflage, insbesondere bei größeren Flächen, gegebenenfalls zu gering.

Nachdem sich gezeigt hat, dass sich mit Hilfe der Parameter Auftragsgeschwindigkeit v_s , Volumenstrom \dot{V} und Schlitzdüsenabstand d der Bereich stabiler Beschichtungen insbesondere hinsichtlich geringerer Nassschichtdicken nicht substantiell vergrößern lässt, bleibt als letzte Möglichkeit zu untersuchen, wie sich eine Viskositätsänderung der LFK-Tinte auswirkt.

5.6. Beschichtung mit verminderter Viskosität

Insbesondere bei einer Verminderung der Viskosität ist eine Verbesserung hinsichtlich dünnerer Schichtaufträge zu erwarten, da sich die Kapillarzahl verkleinert. Zur Reduzierung der Viskosität

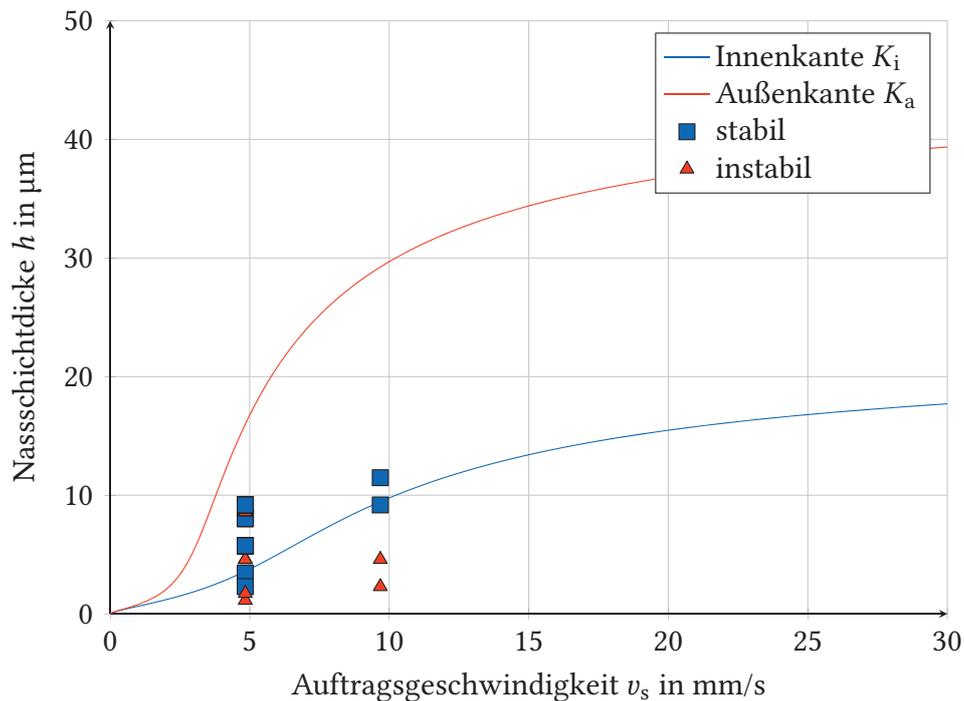


Abbildung 5.20.: Stabilitätsgrenzen der Nassschichtdicke in Abhängigkeit von der Auftragsgeschwindigkeit, $d = 45 \mu\text{m}$

wird der LFK bezüglich des Volumens im Verhältnis 1:1 mit Wasser verdünnt, das eine Viskosität von ca. $1 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ aufweist. Die Viskosität der Mischung konnte nicht bestimmt werden.

Zur Berechnung des Verhältnisses von Nassschichtdicke h zu Trockenschichtdicke h_{tr} muss zunächst die Dichte der verdünnten LFK-Tinte bestimmt werden. Dazu wird angenommen, dass sich durch das Mischen das Gesamtvolumen $V_{\text{ti,mod}}$ nicht ändert:

$$V_{\text{ti,mod}} = V_{\text{ti}} + V_{\text{lm}}. \quad (5.22)$$

Aufgrund des Mischungsverhältnisses gilt zudem:

$$V_{\text{ti}} = V_{\text{lm}} = \frac{1}{2} V_{\text{ti,mod}}. \quad (5.23)$$

Da die Masse beim Mischen erhalten bleibt, gilt für die Gesamtmasse $m_{\text{ti,mod}}$:

$$m_{\text{ti,mod}} = m_{\text{ti}} + m_{\text{lm}}. \quad (5.24)$$

Die einzelnen Massen lassen sich in Abhängigkeit des Gesamtvolumens folgendermaßen ausdrücken:

$$m_{ti} = V_{ti} \cdot \varrho_{ti} = \frac{1}{2} V_{ti,mod} \cdot \varrho_{ti} \quad (5.25a)$$

$$\text{und analog} \quad m_{lm} = \frac{1}{2} V_{ti,mod} \cdot \varrho_{lm}. \quad (5.25b)$$

Eingesetzt in Gleichung (5.24) ergibt sich die Dichte der verdünnten LFK-Mischung zu:

$$\varrho_{ti,mod} = \frac{m_{ti,mod}}{V_{ti,mod}} = \frac{1}{2} (\varrho_{ti} + \varrho_{lm}) = 1,03 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}. \quad (5.26)$$

Der Feststoffmassenanteil der modifizierten LFK-Tinte $w_{fs,mod}$ berechnet sich folgendermaßen:

$$w_{fs,mod} = \frac{m_{fs}}{m_{ti} + m_{lm}} = \frac{\frac{m_{fs}}{m_{ti}}}{1 + \frac{m_{lm}}{m_{ti}}} = \frac{w_{fs}}{1 + \frac{\varrho_{lm}}{\varrho_{ti}}} \approx 0,602. \quad (5.27)$$

Daraus folgt für das Dichteverhältnis von Feststoff und modifizierter LFK-Tinte:

$$\frac{\varrho_{fs}}{\varrho_{ti,mod}} \approx 1,79. \quad (5.28)$$

Analog zu Gleichung (5.12) ergibt sich damit:

$$h_{mod} \approx 29,7 \cdot h_{tr}. \quad (5.29)$$

In Abbildung 5.21 ist der volumetrische Wirkungsgrad dargestellt, der sich aus der vorgegebenen Pumpendrehzahl und Messungen der Trockenschichtdicke ergibt. Auffällig sind die ungewöhnlich niedrigen Wirkungsgrade bei einer Pumpendrehzahl von ca. 670 U/min. Hier liegt möglicherweise Rakelbetrieb vor, d. h., die Schlitzdüse hat überschüssiges Material weggeschoben, so dass hinterher die Trockenschichtdicke effektiv zu dünn ist. Andererseits betreffen diese Extremwerte nur die drei ersten Beschichtungen nach Reinigung des Beschichtungssystems mit Wasser. Möglicherweise war noch Wasser im System, so dass der Feststoffanteil zunächst deutlich geringer als berechnet war. Ansonsten ist anders als im Fall der unverdünnten LFK-Tinte aufgrund der geringen Zahl an Messpunkten keine eindeutige Aussage zur Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Pumpendrehzahl möglich.

Da die Viskosität der modifizierten LFK-Tinte unbekannt ist, wird zur Betrachtung des Low-Flow-Limits als grobe Abschätzung der Viskositätswert $\eta_{0,mod} = \frac{1}{2} \eta_0$ angenommen. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.22 dargestellt. Es fällt auf, dass im Gegensatz zur unverdünnten LFK-Tinte stabile Beschichtungen bis an das Low-Flow-Limit heranreichen. Falls der Viskositätswert zu hoch gewählt sein sollte, liegen die Datenpunkte etwas weiter unterhalb der Low-Flow-Limit-Kurve.

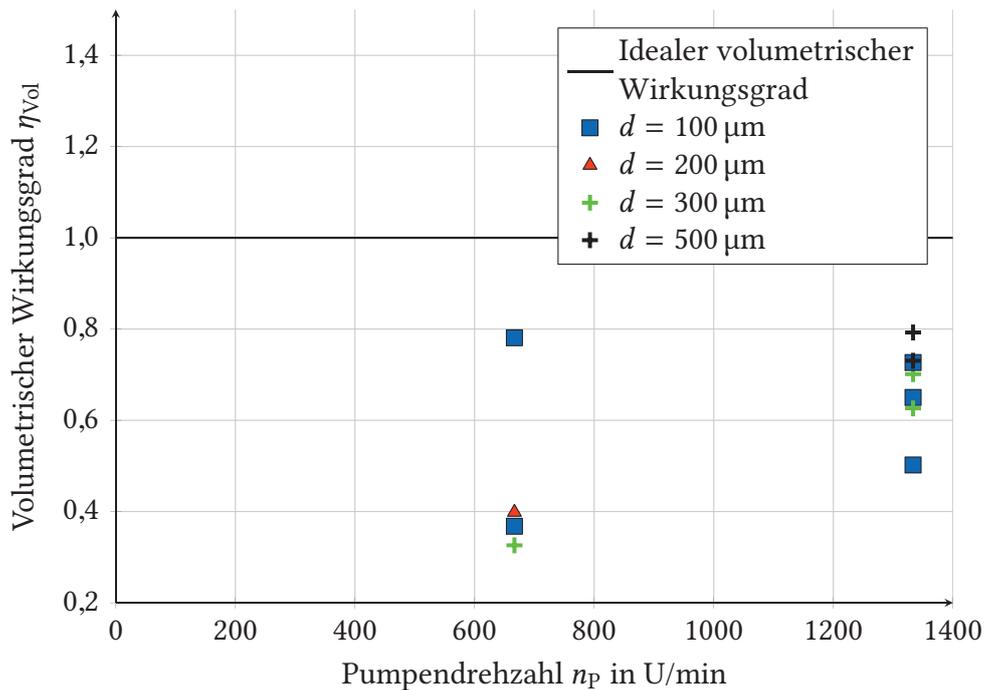


Abbildung 5.21.: Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Pumpendrehzahl bei stabilen Beschichtungsvorgängen mit verdünnter LFK-Tinte, Düsenabstand als Parameter

Zum Vergleich sind in Abbildung 5.23 stabile und instabile Beschichtungen dargestellt. Wie bei der unverdünnten LFK-Tinte wurde hierzu die Nassschichtdicke mit Hilfe des volumetrischen Wirkungsgrads $\eta_{Vol} = 0,5$ aus der eingestellten Pumpendrehzahl abgeschätzt. Obwohl die dargestellten Ka -Werte aufgrund der zweifachen Abschätzung – von Viskosität und von Volumenstrom – wenig aussagekräftig sind, so scheinen die instabilen Beschichtungen doch etwas abgesetzt zu sein von den stabilen Beschichtungen, was auf eine gewisse Wirksamkeit des Low-Flow-Limits bei verdünnter LFK-Tinte hindeuten könnte.

5.7. Gesamtbewertung des Schlitzdüsenbeschichtungsverfahrens

Wie bereits in Abbildung 5.12 dargestellt, sind konnten mit unveränderter LFK-Tinte in der Praxis minimale Trockenschichtdicken von ca. 400 nm erzielt werden, während mit verdünnter LFK-Tinte ca. 250 nm erreicht wurden. Aufgrund der herabgesetzten Viskosität sind solche Trockenschichtdicken auch bei größerem Düsenabstand möglich. Der geringe Feststoffanteil führt dabei zu einer geringeren Trockenschichtdicke als dies bei einer Tinte mit lediglich herabgesetzter Viskosität möglich wäre.

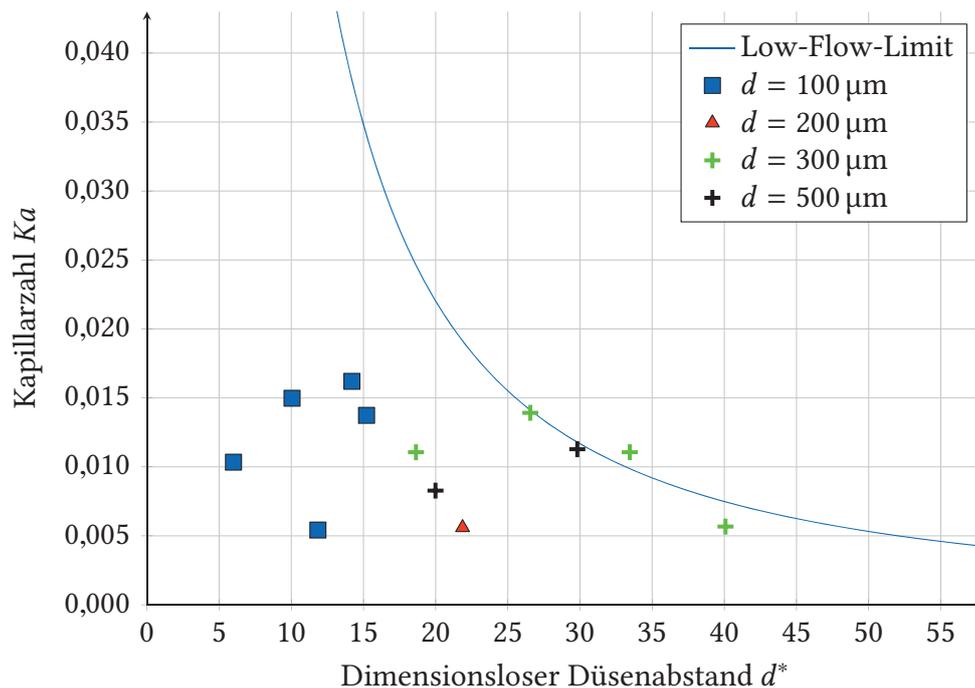


Abbildung 5.22.: Low-Flow-Limit-Betrachtung der Kapillarzahlen stabiler Beschichtungsvorgänge verdünnter LFK-Tinte in Abhängigkeit vom normierten Düsenabstand d^*

Die Grenzkurven in Abbildung 5.19 zeigen deutlich, dass bei unveränderter LFK-Tinte die Grenze für eine geringe Nassschichtdicke erreicht ist. Nur durch eine niedrigere Auftragsgeschwindigkeit oder einen geringeren Abstand zwischen Schlitzdüse und Substrat könnten noch kleinere Nassschichtdicken hergestellt werden. Hinzu kommt dabei ein kleiner werdendes Prozessfenster.

Hinsichtlich der in Kapitel 5.1 definierten Forderungen an das Beschichtungsverfahren kann das Schlitzdüsenverfahren in dieser Form nicht alle Anforderungen erfüllen. Insbesondere ist es mit den gegebenen Materialeigenschaften kaum möglich, gleichzeitig dünne Trockenschichtdicken ($\leq 400 \text{ nm}$) bei großem Schlitzdüsenabstand ($> 100 \mu\text{m}$) herzustellen. Dies wird auch durch [17] bestätigt, wo ebenfalls das Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren für den Auftrag des LFK-Polarisators für den Einsatz in Flüssigkristallanzeigen untersucht wurde: Der Abstand zwischen Schlitzdüse und Substrat wird ebenda mit „10-30 μm “ angegeben.

Darüber hinaus muss die Auftragsgeschwindigkeit für einen reproduzierbar stabilen Auftragsprozess bei diesen dünnen Schichten sehr niedrig sein. Mit $5 \text{ mm/s} = 30 \text{ cm/min}$ ist die Auftragsgeschwindigkeit hinsichtlich der geforderten Wirtschaftlichkeit zu gering, jedoch ausreichend, um die zur Ausrichtung der Supramoleküle notwendigen Scherkräfte zu bewirken. Somit sind die Forderungen 3a, 7 und 8b nur unzureichend erfüllt. Ein etwas besseres Bild ergibt sich wie gezeigt, falls eine LFK-Tinte mit niedrigerer Viskosität und bzw. oder geringerem Feststoffanteil zur Verfügung steht.

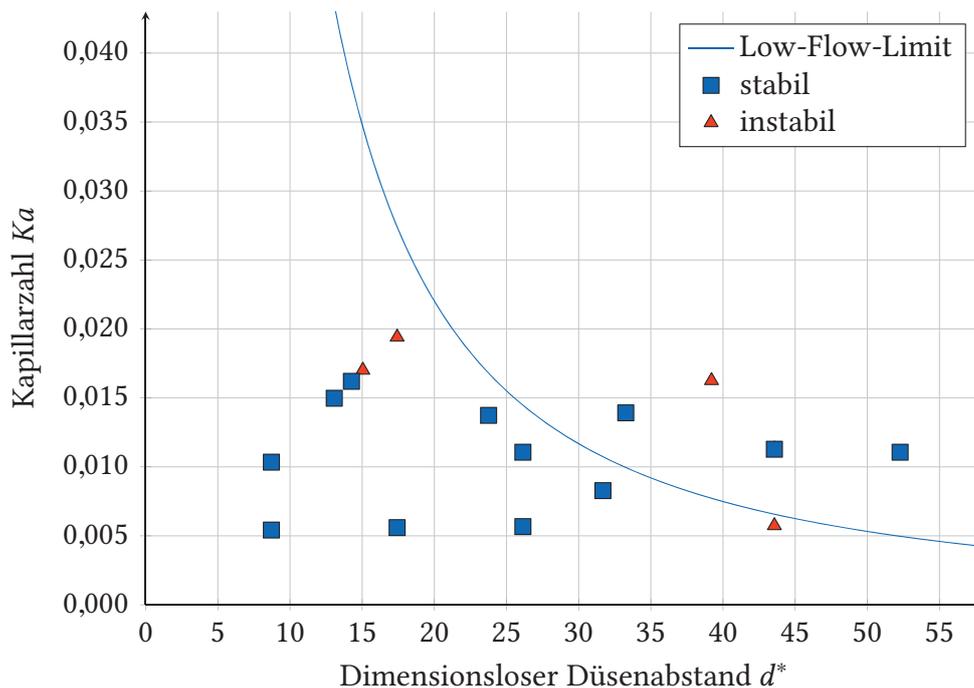


Abbildung 5.23.: Low-Flow-Limit-Betrachtung der Kapillarzahlen stabiler und instabiler Beschichtungsvorgänge verdünnter LFK-Tinte in Abhängigkeit vom normierten Düsenabstand d^* , Nassschichtdicke aus vorgegebenem Volumenstrom berechnet

Aufgrund der unzureichenden Gleichförmigkeit des Antriebs des Portalsystems kann in diesem Fall auch die Forderung 2b nicht erfüllt werden, was jedoch nicht ursächlich mit dem Schlitzdüsenverfahren zusammenhängt.

Die Forderung 9 ist ebenfalls nur teilweise erfüllbar. Parallel zur Auftragsrichtung ist der Schichtauftrag sehr präzise auf die Länge b der Düsenlippen begrenzt, jedoch lässt sich ein gewisser Anfahrbereich mit überschüssigem LFK-Material nicht ohne weiteres verhindern, so dass eine Schichtdickenüberhöhung auftritt. Der Anfahrbereich ist notwendig, weil sich mit dem Starten des Volumenstroms nicht unmittelbar ein Meniskus zwischen Düsenlippen und Substrat ausbildet. Zum Ende des Schichtauftrags ist durch gleichzeitiges Stoppen des Volumenstroms und Abheben der Düse eine hinreichend genaue Begrenzung möglich.

5.8. Schichteigenschaften

Im Hinblick auf die weiteren Fertigungsschritte für eine Flüssigkristallzelle sind nachfolgend die mechanischen und chemischen Eigenschaften der LFK-Schicht dargestellt.



5.8.1. Schichthaftung

Zur chemischen Stabilisierung des LFK wie in Kapitel 2.4 dargestellt ist die Behandlung der getrockneten LFK-Schicht mit einer Bariumnitratlösung notwendig. Es hat sich gezeigt, dass es zur erfolgreichen Stabilisierung ausreicht, die Schicht wenige Sekunden in die Bariumnitratlösung zu tauchen.

Um überschüssige Bariumnitratlösung zu entfernen bzw. um Reaktionsprodukte von der LFK-Schicht zu entfernen, ist eine anschließende Spülung mit Wasser notwendig.

Es hat sich herausgestellt, dass sich die LFK-Schicht, wenn sie auf unbehandeltes Glas oder eine unbeschichtete ITO-Schicht aufgetragen worden ist, bereits während des Eintauchens in die Bariumnitratlösung, aber besonders deutlich beim Abspülvorgang, in Streifen ablöst. Das Ergebnis dieses Effekts ist in der Aufnahme in Abbildung 5.24 abgebildet.



Abbildung 5.24.: Aufnahme eines Substrats mit streifenweiser LFK-Ablösung

Besonders gute Schichthaftung besteht bei der Beschichtung auf plasmabehandelte Oberfläche. Diese Plasmabehandlung (hier durch Sputtern, siehe Kapitel 2.5) muss innerhalb weniger Minuten vor dem Auftrag der LFK-Schicht stattfinden, so dass die Oberflächenenergie zum Zeitpunkt der Beschichtung heraufgesetzt ist. Dies führt einerseits zu einer grundsätzlich besseren Benetzbarkeit der Oberfläche durch die LFK-Tinte, andererseits kommt es anscheinend zu einer stabileren Bindung der LFK-Moleküle an die Oberfläche. Insbesondere auf einer ITO-Schicht lässt sich mit der Plasmabehandlung eine hohe Schichthaftung erzielen. Bei unbeschichtetem Glas oder Siliziumoxid-Schichten kommt es während des Spülvorgangs weiterhin leicht zu Ablösungen. Wie bereits in Kapitel 4.2 dargestellt, handelt es sich bei der LFK-Tinte um eine Säure. Da nun bei ITO die fotolithografische Strukturierung üblicherweise mit einer Säure durchgeführt wird, könnte der Grund für die gute Oberflächenhaftung des LFK darin bestehen, dass die LFK-Tinte mit der Oberfläche der plasmabehandelten ITO-Schicht chemisch reagiert und so eine Bindung eingeht. Die Plasmabehandlung von Oberflächen wird eingesetzt, um eine bessere Ätzbarkeit des jeweiligen Materials zu erzielen.

Die LFK-Schicht an sich ist sehr weich. Wie bereits im Kapitel 5.4.2 dargestellt, reicht bereits ein Gewicht von 1 mg einer Kugelförmigen Spitze mit einem Radius von 5 μm aus, um die Schicht zu beschädigen. So reicht es auch aus, mit einem Tuch über die Oberfläche der LFK-Schicht zu wischen, um diese zu entfernen oder zumindest zu beschädigen.

Daher sollte diese Schicht in den weiteren Prozessen mechanisch möglichst wenig beansprucht werden. So muss die LFK-Beschichtung vom Randbereich entfernt werden, wo später der Klebstoffrahmen aufgebracht wird. Wenn eine präzise Begrenzung des Beschichtungsbereichs nicht möglich ist, muss die LFK-Schicht nachgearbeitet werden. Eine Möglichkeit, die aber nur für kleine Stückzahlen und Flächen anwendbar ist, besteht im Abwischen der entsprechenden Randflächen mit einem wassergetränkten Tuch. Eine weitere Möglichkeit ist die im Folgenden vorgestellte Methode der fotolithografischen Strukturierung.

5.8.2. Chemische Empfindlichkeit

Eine LFK-Schicht auf plasmabehandelte ITO-Schicht ist derart chemisch stabil und stark haftend, dass sie selbst in einem Aceton- oder Propanolbad während einer Ultraschallbehandlung nicht beschädigt wird. Dies ist sogar dann der Fall, wenn die LFK-Schicht noch nicht chemisch stabilisiert wurde. Dies ermöglicht es, die LFK-Schicht fotolithografisch zu strukturieren.

5.8.3. Fotolithografische Strukturierung

Nach Aufbringen eines fotoempfindlichen Negativlacks wird dieser nach Belichtung üblicherweise mit einem wasserbasierten Entwickler entwickelt, der den Fotolack in den belichteten Bereiche entfernt. Im Fall einer darunterliegenden, nicht stabilisierten LFK-Schicht wird diese dadurch in den selben Bereichen aufgrund ihrer Wasserlöslichkeit mit entfernt. Im anschließenden Schritt zur Fotolackentfernung mit Lösungsmitteln wie Aceton und Propanol bleibt die strukturierte LFK-Schicht zurück.

Wichtig ist hierbei die Qualität der LFK-Schicht. Jegliche Bläschen, harte Kanten oder Unebenheiten, die vom Fotolack nicht vollständig abgedeckt werden können, führen zu Löchern in der Lackschicht, in die der Entwickler eindringen und die LFK-Schicht in unerwünschten Bereichen entfernen kann.

Die fotolithografische Strukturierung ermöglicht ein präzises Entfernen der LFK-Schicht aus den Randbereichen einer Flüssigkristallzelle. Jedoch ist der fotolithografische Prozess insbesondere für großflächige Substrate sehr teuer, so dass eine mechanische Lösung anzustreben ist, die bereits während des Beschichtungsvorgangs wirksam ist.



6. Orientierungsschicht

Eine verdrillt-nematische Flüssigkristallzelle benötigt für ihre Funktion Orientierungsschichten, welche die TFK-Schicht einschließen. Eine solche Orientierungsschicht kann nun entweder konventionell in Form einer geriebenen Polyimid-Schicht (PI-Schicht) erzeugt werden oder es kann dafür die LFK-Schicht eingesetzt werden. Beide Varianten sind im Folgenden dargestellt. Die LFK-Schichten der zur Verdeutlichung abgebildeten Flüssigkristallzellen wurden im Spiralkelverfahren hergestellt, so dass stets gewisse Modulationen der Helligkeit in Form von parallelen Linien erkennbar sind.

6.1. Polyimid als Orientierungsschicht

Im Gegensatz zu einer konventionellen Zelle (siehe Abbildung 2.5) wird hier die PI-Schicht nicht direkt auf die Elektrode aufgebracht, sondern auf die LFK-Polarisatorschicht (siehe Abbildung 3.1).

6.1.1. Herstellungsprozess

Das Aufbringen der PI-Schicht geschieht bei kleinen Flächen am einfachsten per Rotationsbeschichtung. Nachteil dieses Verfahrens ist, dass es nicht für beliebig große Substrate eingesetzt werden kann. Für Flächen, die für die Anwendung in Isolierverglasungen vorgesehen sind, würden die auftretenden Zentrifugalkräfte zu groß sein und zur Zerstörung der Glassubstrate führen.

Ersatzweise kann ein Druckverfahren wie z. B. Siebdruck eingesetzt werden. Damit kann hinreichend präzise die Schichtdicke eingestellt werden. Aufgrund seiner Viskosität verfließt das gelöste PI ausreichend. Durch Einsatz von Lösungsmitteln mit hohem Siedepunkt kann die PI-Schicht so lange flüssig gehalten werden, bis die Beschichtung komplett verflossen ist und eine einheitliche Schichtdicke ergibt.

Das Aufbringen einer Polyimid-Schicht auf die LFK-Schicht erwies sich als unproblematisch. Auch die anschließende Behandlung zur Aushärtung der PI-Schicht bei einer Temperatur von

200 °C führt zu keinen sichtbaren Beeinträchtigungen. Es treten hierbei nur dann Probleme auf, wenn sich eine SiO₂-Schicht im Schichtstapel befindet. Nach Untersuchungen von F. Schaschek treten hierbei Schichtverspannungen auf, die zum Abplatzen der LFK-Schicht führen [51].

Nach dem Aushärten der PI-Schicht wird die Orientierungsrichtung für den TFK festgelegt. Durch lineares Reiben der PI-Schicht mit Hilfe einer Samtwalze wird die gewünschte Richtung eingeprägt.

6.2. LFK-Polarisator als Orientierungsschicht

Aufgrund der regelmäßigen, linear ausgerichteten, supramolekularen Struktur einer LFK-Schicht besteht bereits eine Vorzugsrichtung für die Orientierung der Flüssigkristallmoleküle wie bereits W. Haase in [4] untersucht hat. Eine solchermaßen eingesetzte Orientierungsschicht führt jedoch zu Domänenbildung, d. h., es gibt Bereiche, in denen die Flüssigkristallmoleküle uneinheitlich in unterschiedliche Richtungen verkippen. Dies ist auf einen nicht ausreichenden Vorverkipfungswinkel zurückzuführen.

6.2.1. Vergleich mit PI-Orientierungsschicht

In Abbildung 6.1 ist eine Flüssigkristallzelle mit einer geriebenen PI-Orientierungsschicht einer Flüssigkristallzelle mit unbehandeltem LFK als Orientierungsschicht gegenübergestellt. In beiden Fällen dient LFK als Polarisator. Die nominelle Dicke der Polyimid-Schicht beträgt 50 nm. Die Abbildung zeigt, dass die Flüssigkristallzelle ohne PI-Schicht sehr deutlich ihre Transparenz zwischen den beiden Schaltzuständen (d, e) ändert und somit eine LFK-Schicht grundsätzlich als Orientierungsschicht für die TFK fungieren kann. Jedoch fallen in der Schrägsicht im Fall der LFK-Orientierungsschicht (f) feine Strukturen auf, während im Fall der PI-Orientierungsschicht (c) lediglich eine etwas geringere Transparenz als bei senkrechtem Blickwinkel (a) besteht. Bei den Strukturen handelt es sich um die oben angesprochene Domänenbildung. Diese Domänenbildung tritt auch bei senkrechtem Blickwinkel auf, wenn die angelegte Spannung so niedrig ist, dass sich die TFK-Moleküle nicht vollständig entlang der elektrischen Feldlinien ausrichten. Weiterhin ist auffällig, dass im Fall einer Beschichtung mit PI in unbeschaltetem Zustand die Transparenz der Flüssigkristallzelle geringer ist, was vermutlich auf die zusätzliche Grenzfläche zwischen LFK-Schicht und PI-Schicht zurückzuführen ist.

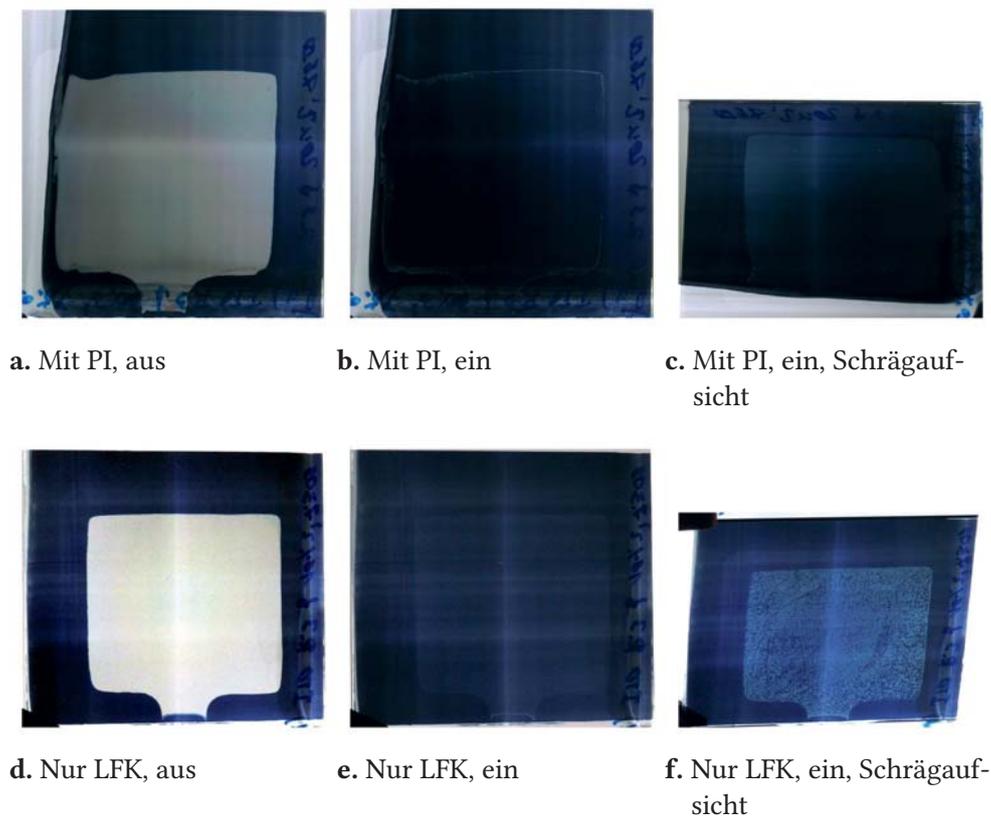


Abbildung 6.1.: Flüssigkristallzelle mit PI-Orientierungsschicht (a, b, c) und mit LFK-Orientierungsschicht (d, e, f)

6.2.2. Reiben der LFK-Orientierungsschicht

Die LFK-Schicht kann grundsätzlich die TFK-Moleküle insoweit ausrichten, dass die Molekülachsen der TFK-Moleküle bei nicht angelegtem elektrischen Feld parallel zur Ebene der Substratflächen einheitlich linear orientiert sind. Andernfalls wäre bei senkrechtem Blickwinkel kaum solch ein homogenes Bild möglich. Da die Domänenbildung nur in solchen Fällen auftritt, in denen das Licht in schrägem Winkel auf die TFK-Moleküle trifft, besteht die Vermutung, dass die TFK-Moleküle einen unzureichenden Vorverkipfungswinkel aufweisen und so bei Anlegen einer Spannung in gegensätzliche Richtungen verkippen, was sich wiederum in unterschiedlicher Transparenz niederschlägt.

Es wurde nun untersucht, ob die Verkipprichtung vereinheitlicht werden kann, indem die LFK-Schicht in Auftragsrichtung gerieben wird. Dahinter steht die Vermutung, dass der Auftragsprozess für das LFK nicht ausreichend ist, um eine Vorzugsrichtung für die Verkipprichtung der TFK-Moleküle zu bewirken. Es stellte sich heraus, dass beim Reiben der LFK-Schicht in Auftragsrichtung die Flüssigkristallzelle wie in Abbildung 6.2 dargestellt nicht mehr schaltet. Zwischen den Aufnahmen des spannungslosen Zustands (Abbildung 6.2b) und des Zustands angelegter Spannung (Abbildung 6.2b) besteht kaum ein Unterschied. Dieses Ergebnis kann nun

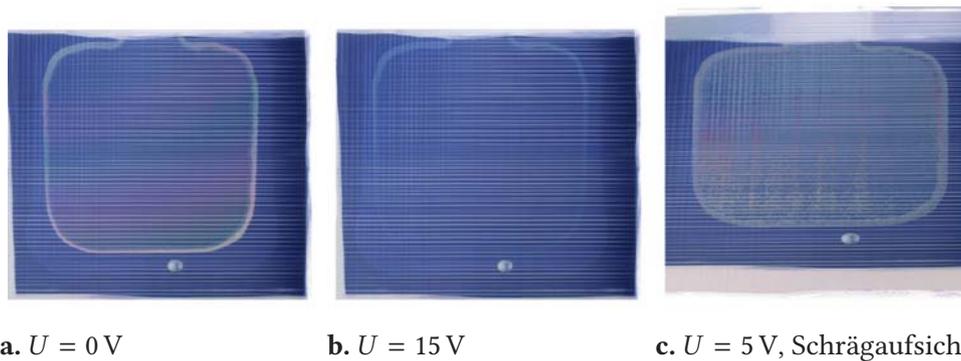


Abbildung 6.2.: Flüssigkristallzelle mit LFK-Polarisator als Orientierungsschicht, Reiberichtung parallel zur Beschichtungsrichtung, Spannung U an die Elektroden angelegt

zweierlei bedeuten: Entweder ist das Reiben grundsätzlich ungeeignet, um bei LFK-Schichten eine Vorzugsrichtung für den Verkipfungswinkel festzulegen oder die vorherige Annahme war falsch und die TFK-Moleküle bei unbehandelter LFK-Schicht richten sich nicht entlang der Auftragsrichtung sondern quer dazu aus.

Tatsächlich lässt sich wie in Abbildung 6.3 dargestellt eine funktionierende Flüssigkristallzelle ohne Domänenbildung herstellen, indem die LFK-Schicht quer zur Auftragsrichtung gerieben wird. Im Gegensatz zu Abbildung 6.1f sind in Abbildung 6.3c keine Domänen mehr erkennbar.

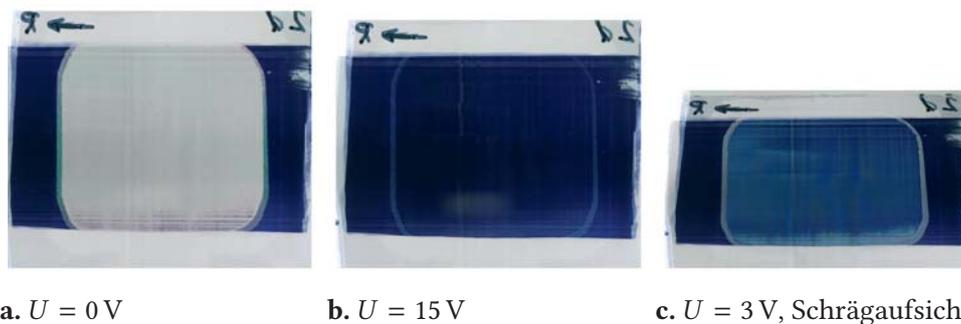


Abbildung 6.3.: Flüssigkristallzelle mit LFK-Polarisator als Orientierungsschicht, Reiberichtung quer zur Beschichtungsrichtung

Das Linienmuster ist zu dem des senkrechten Blickwinkels in Abbildung 6.3b identisch. Es ist anzunehmen, dass sich die TFK-Moleküle entlang der Ausrichtung der einzelnen LFK-Farbmoleküle (siehe Abbildung 2.10) und nicht entlang der Ausrichtung der LFK-Supramoleküle orientieren. Entscheidend für die Orientierungswirkung ist demnach die Molekülebene und nicht die makroskopische Ebene.

Inbesondere vor dem Hintergrund der in Kapitel 2.2.3 vorgestellten Theorie zu den Mechanismen der TFK-Orientierung ist der Effekt der LFK-Schicht gut erklärbar. Die LFK-Farbmoleküle bestehen ebenso wie die PI-Moleküle aus Benzolringen, an denen sich dieser Theorie nach die TFK-Moleküle ausrichten. Durch das Reiben quer zur Auftragsrichtung der LFK-Schicht werden diese nun vermutlich derart verschoben oder verdreht, dass sich eine Vorzugsrichtung für den Vorverkipfungswinkel der TFK-Moleküle herausbildet. Bei einer Reiberichtung entlang der Auftragsrichtung wirken mechanische Kräfte senkrecht auf die LFK-Farbmoleküle, was wohl in großem Maße zu ihrer unheitlichen Ausrichtung führt und damit auch eine uneinheitliche Orientierungswirkung hervorruft.

In [21] wird ebenfalls das Reiben einer LFK-Polarisatorschicht untersucht. Zur Reiberichtung steht dort etwas verklausuliert und ohne weitere Erklärung: „*The extraordinary axe of polarizers was parallel to rubbing direction.*“ Dies würde genau der Reiberichtung quer zur Auftragsrichtung entsprechen.

Untersuchungen von W. Haase et al. [52] haben gezeigt, dass Flüssigkristallzellen mit geriebenem LFK-Polarisator als Orientierungsschicht eine ausreichende Langzeitstabilität für den Einsatz in Isolierverglasungen aufweisen.



7. Skalierbare Füllverfahren

Die Flüssigkristallschicht in schaltbaren Flüssigkristallzellen ist im Allgemeinen sehr dünn. Dies führt dazu, dass bei Fließprozessen in der Flüssigkristallzelle die Reibungskräfte deutlich größer als die Trägheitskräfte sind. Dadurch erfordert es einen gewissen Aufwand, eine Flüssigkristallzelle vollständig zu befüllen. Zur Verdeutlichung der speziellen Schwierigkeiten skalierbarer Füllverfahren für großflächige Flüssigkristallzellen wird zunächst das klassische vakuumbasierte Füllverfahren dargestellt. Daran schließt sich die Untersuchung eines vakuumfreien Füllverfahrens an, deren Ergebnisse zum sogenannten ODF-Füllverfahren führen, das von Herstellern für großflächige Flüssigkristallanzeigen bereits seit Jahren eingesetzt wird.

7.1. Klassisches Füllverfahren

Beim klassischen Füllverfahren wird der Flüssigkristall in eine Zelle gefüllt, deren Zwischenraum zuvor evakuiert wurde. Der Füllprozess besteht aus drei wesentlichen Schritten. Die eingesetzten Zellen bestehen aus Glassubstraten, die durch Abstandshalter (engl. *Spacer*) einen definierten Abstand voneinander aufweisen. Bis auf eine Öffnung an einer Seite ist die Zelle rundherum gasdicht versiegelt.

In einem ersten Schritt wird der Zellzwischenraum evakuiert. Dazu befindet sich die Zelle üblicherweise in einer Vakuumkammer (siehe Abbildung 7.1a). Im folgenden Schritt wird die offene Seite mit Flüssigkristall benetzt, so dass der evakuierte Zellzwischenraum von der äußeren Umgebung gasdicht abgetrennt ist. Zuletzt wird die Vakuumkammer belüftet. Währenddessen fließt der Flüssigkristall in die Zelle hinein (siehe Abbildung 7.1b). Die Abstandshalter im Zellzwischenraum bewirken, dass die Zelle trotz der Druckdifferenz zwischen Vakuumkammer und Zellzwischenraum nicht zusammengedrückt wird.

Beim klassischen Füllverfahren hängen sowohl die Fülldauer als auch die Evakuierungsdauer in großem Maße von der Fläche der Zelle ab. Bei großflächigen Zellen nimmt der Füllprozess daher entsprechend viel Zeit in Anspruch. Des Weiteren ist der apparative Aufwand durch die Notwendigkeit einer Vakuumkammer beträchtlich.

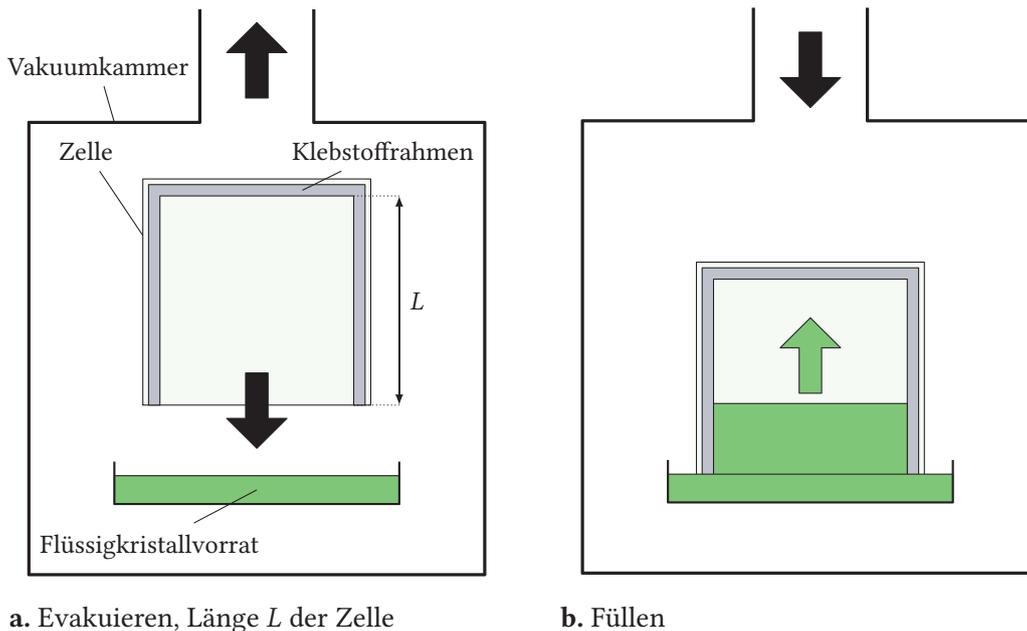


Abbildung 7.1.: Klassisches Füllverfahren

7.1.1. Abschätzung der Prozessdauer

Im Folgenden wird eine Abschätzung für die Dauer des Füllprozesses hergeleitet, um nachfolgend Maßnahmen zur Verkürzung des Zeitaufwands zu diskutieren und abzuleiten. Es werden dazu der Evakuierungsschritt der Zelle und der eigentliche Füllvorgang der Zelle getrennt betrachtet.

Im Evakuierungsschritt werden sowohl die Vakuummkammer als auch die Zelle evakuiert. Die Dauer für das Evakuieren der Vakuummkammer ist stark abhängig von der eingesetzten Pumpentechnik, jedoch bei gleichbleibender Kammergröße im Allgemeinen unabhängig von der Zellgröße. Beim Evakuieren der Zelle dürfte es sich um eine turbulente oder laminare Strömung handeln, abhängig von der Druckdifferenz zwischen Vakuummkammer und Zellzwischenraum. Die Viskosität von Gasen wie Luft ist im Vergleich zu Flüssigkeiten sehr gering, so dass der Großteil der Luft im Zellzwischenraum in vernachlässigbar kurzer Zeit entweicht. Ab einem bestimmten Druck jedoch und somit ab einer bestimmten Gasmenge im Zellzwischenraum wird der Bereich der Molekularströmung erreicht. Dieser Bereich ist erreicht, wenn für die mittlere freie Weglänge $\bar{\lambda}$ gilt [28]:

$$\bar{\lambda} \gg d, \quad (7.1)$$

wobei d hier den Zellabstand von Grund- und Decks substrat einer Zelle bezeichnen. Dies gilt unter der Annahme, dass der Zellabstand im Mikrometerbereich für die Molekularströmung relevant ist, nicht aber die Zellbreite im Zentimeterbereich. Im typischen Druckbereich von 1 mbar bis $1 \cdot 10^{-2}$ mbar, der von einer Drehschieberpumpe leicht erreicht werden kann [28],

beträgt die mittlere freie Weglänge von Luft bereits $1 \cdot 10^2 \mu\text{m}$ bis $1 \cdot 10^4 \mu\text{m}$ [28] und liegt damit um Größenordnungen über einem typischen Zellabstand von $1 \cdot 10^1 \mu\text{m}$. Der Evakuierungsvorgang der Zelle ist nun nicht mehr durch eine viskose Strömung bestimmt; es handelt sich um eine Molekularströmung und damit um einen Diffusionsprozess.

Für die Teilchenstromdichte $j = \frac{dN}{dt} \cdot \frac{1}{A}$ der Luftmoleküle, d. h. die Anzahl N der Luftmoleküle, die pro Zeiteinheit t durch die Zellöffnungsfläche A strömen, gilt nach [28] näherungsweise:

$$j \approx \frac{1}{3} \bar{v} \cdot d \frac{\Delta v}{L}, \quad (7.2)$$

wobei \bar{v} die mittlere Molekülgeschwindigkeit und $\frac{\Delta v}{L} = \frac{\Delta N}{V \cdot L}$ den Teilchendichtegradienten entlang der Zelle beschreibt. Es wird angenommen, dass die von der Zeit t abhängige Teilchendichte $v_L(t)$ ihr Maximum im Zellzwischenraum im Abstand L von der Zellöffnung (siehe Abbildung 7.1a) aufweist. Ihr Minimum befindet sich an der Zellöffnung, näherungsweise gleich der Teilchendichte v_0 in der Vakuumkammer. Unter der Annahme, dass in der Vakuumkammer im Bereich der Molekularströmung bereits nahezu der Enddruck erreicht worden ist, kann v_0 näherungsweise als konstant vorausgesetzt werden.

Damit ergibt sich aus (7.2):

$$\frac{dN}{dt} \cdot \frac{1}{A} = \frac{1}{3} \bar{v} \cdot d \cdot \frac{v_L(t) - v_0}{L}. \quad (7.3)$$

Die Teilchenzahl in der Zelle $N_{\text{Zelle}}(t)$ beträgt zum Zeitpunkt t bezogen auf die Querschnittsfläche A :

$$\frac{1}{A} \cdot N_{\text{Zelle}}(t) = L \left(\frac{v_L(t) - v_0}{2} + v_0 \right). \quad (7.4)$$

Gleichzeitig besteht der folgende Zusammenhang zwischen der zu Beginn in der Zelle vorhandenen Teilchenzahl N_1 , der bereits durch Diffusion aus der Zelle ausgetretenen Teilchenzahl $N(t)$ und $N_{\text{Zelle}}(t)$, :

$$N_{\text{Zelle}}(t) = N_1 - N(t). \quad (7.5)$$

Aus Gleichung (7.4) ergibt sich für die Teilchendichte $v_L(t)$:

$$v_L(t) = \frac{2 \cdot N_{\text{Zelle}}(t)}{L \cdot A} + v_0. \quad (7.6)$$

Mit (7.6) und (7.5) ergibt sich aus Gleichung (7.3):

$$\frac{dN}{dt} = \frac{2\bar{v}d}{3L^2} (N_1 - N(t)). \quad (7.7)$$

Diese Differentialgleichung kann nun durch Trennen der Variablen und Integration gelöst werden:

$$\int_0^{N_1 - L \cdot A \cdot v_0} \frac{1}{N_1 - N(t)} dN = \frac{2\bar{v}d}{3L^2} \int_0^{T_{\text{Diff}}} dt, \quad (7.8)$$

wobei angenommen wird, dass bei $v_L(T_{\text{Diff}}) = v_0$ der Diffusionsprozess keine weitere Molekularströmung bewirkt. Daraus ergibt sich:

$$\ln \frac{N_1}{LAv_0} = \frac{2\bar{v}d}{3L^2} \cdot T_{\text{Diff}}. \quad (7.9)$$

Aufgelöst nach T_{Diff} ergibt sich mit Hilfe von (7.4) und da $N_1 = N_{\text{Zelle}}(0)$:

$$T_{\text{Diff}} = \frac{3L^2}{2\bar{v}d} \cdot \ln \frac{v_L(0) + v_0}{2v_0}. \quad (7.10)$$

Aufgrund der idealen Gasgleichung (2.25) gilt für das Teilchendichteverhältnis $\frac{v_L(0)}{v_0} = \frac{p_1}{p_0}$. Eingesetzt in (7.10) ergibt sich:

$$T_{\text{Diff}} = \frac{3L^2}{2\bar{v}d} \cdot \ln \frac{1}{2} \left(\frac{p_1}{p_0} + 1 \right), \quad (7.11)$$

wobei p_0 den Druck in der Vakuumkammer und p_1 den Druck in der Zelle im Abstand L von der Zellöffnung bezeichnen.

Gemäß Gleichung (7.11) wird die Evakuierungsdauer im Wesentlichen durch die Zellenlänge bestimmt. Speziell die Druckdifferenz hat nur einen geringen Einfluss.

In Tabelle 7.1 ist die Dauer des Evakuierungsvorgangs aufgrund des Diffusionsprozesses beispielhaft für verschiedene Zellgrößen dargestellt. Für den Druck in der Vakuumkammer wurde ein Druck von $p_0 = 1 \cdot 10^{-2}$ mbar angenommen, für den Druck in der Zelle im Abstand L von der Zellöffnung ein Druck von $p_1 = 1 \cdot 10^1$ mbar, was etwa dem Druck entspricht, ab welchem die Molekularströmung gegenüber der viskosen Strömung dominiert. Nach [28] wurde mit $\bar{v} = 500$ m/s die für Luft bei einer Temperatur von 20°C vorherrschende mittlere Molekülgeschwindigkeit angenommen.

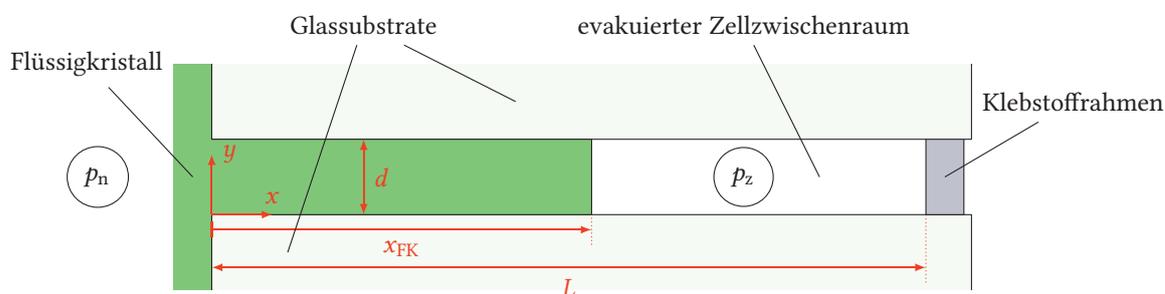
Zur Abschätzung der Fülldauer wird die auf einer Seite offene Zelle zusammen mit dem einfließenden Flüssigkristall als ebene Plattenströmung betrachtet. Im Vergleich zum Zellabstand von wenigen Mikrometern ist die Zelle quer zur Strömungsrichtung näherungsweise unendlich weit ausgedehnt. Somit kann hier die allgemeine Geschwindigkeitsverteilung einer Poiseuille-Strömung aus Gleichung (2.39) zur Betrachtung herangezogen werden:

$$v_x(y) = \frac{1}{2\eta} \cdot \frac{dp}{dx} (y^2 - y \cdot d), \quad (7.12)$$

Tabelle 7.1.: Evakuierungsdauer durch Diffusionsprozess in s in Abhängigkeit vom Zellabstand

Zellabstand d in μm	Zellenlänge L		
	15 cm	35 cm	1,0 m
5	53	288	2 353
9	29	160	1 307
30	9	48	392

wobei $\frac{dp}{dx}$ den Druckgradienten im TFK entlang der mit Geschwindigkeit v_x in x -Richtung fließenden Strömung zwischen den Substraten bezeichnet und d in diesem Fall den Zellabstand. Die Koordinaten x und y sind in Abbildung 7.2 eingezeichnet.

**Abbildung 7.2.:** Klassisches Füllverfahren, Schema im Querschnitt

Analog zum Fall der Strömung unter der Schlitzdüse berechnet sich der Volumenstrom dann zu:

$$\frac{dV}{dt} = b \int_0^d v_x(y) dy = -\frac{bd^3}{12\eta} \cdot \frac{dp}{dx}, \quad (7.13)$$

wobei b hier der Breite des Zellzwischenraums, d. h. der Strecke quer zur Strömungsrichtung zwischen den Begrenzungen durch den Klebstoffrahmen, entspricht. Da der Druckgradient $\frac{dp}{dx}$ aufgrund der Geometrie entlang der Strömung konstant ist, kann er durch den Differenzenquotienten $\frac{\Delta p}{\Delta x}$ ersetzt werden.

Kurze Zeit nach Belüften der Vakuumkammer herrscht außerhalb der Zelle näherungsweise der Normaldruck p_n , während innerhalb der ungefüllten Zelle der Vakuumdruck p_z herrscht (siehe Abbildung 7.2). Der Differenzenquotient des Drucks hängt von der Strecke x_{FK} des zu diesem Zeitpunkt bereits mit Flüssigkristall befüllten Abschnitts ab. Es gilt dann:

$$\frac{\Delta p}{\Delta x} = \frac{p_z(x_{FK}) - p_n}{x_{FK}}. \quad (7.14)$$

Aufgrund der quaderförmigen Geometrie des Zellinnenraums gilt zum Zeitpunkt t folgende Beziehung zwischen der Strecke x_{FK} und dem bereits eingeströmten Volumen $V_{\text{FK}}(t)$:

$$V_{\text{FK}}(t) = b \cdot d \cdot x_{\text{FK}}(t). \quad (7.15)$$

Mit den Gleichungen (7.14) und (7.15) ergibt sich aus Gleichung (7.13) für die über den Zellabstand gemittelte Strömungsgeschwindigkeit:

$$\frac{dx_{\text{FK}}}{dt} = -\frac{d^2}{12\eta} \cdot \frac{p_z(x_{\text{FK}}(t)) - p_n}{x_{\text{FK}}(t)}. \quad (7.16)$$

Der Druck p_z im Inneren der Zelle kann mit Hilfe der idealen Gasgleichung (2.25) bestimmt werden. Es wird hierbei angenommen, dass die Fließvorgänge ausreichend langsam sind, sodass ein isothermer Vorgang vorliegt. Weiterhin bleibt die Stoffmenge, die im Vakuumvolumen der Zelle eingeschlossen ist, konstant. Damit gilt allgemein:

$$p \cdot V = \text{konst.} \quad (7.17)$$

Während des gesamten Füllvorgangs gilt daher:

$$p_z(x_{\text{FK}}(t)) \cdot (V_0 - V_{\text{FK}}(t)) = p_0 \cdot V_0, \quad (7.18)$$

wobei $p_0 = p_z(0)$ dem Vakuumdruck und V_0 dem Vakuumvolumen zu Beginn des Füllvorgangs entspricht. Damit ergibt sich das Vakuumvolumen zum Zeitpunkt t zu $(V_0 - V_{\text{FK}}(t))$. Für V_0 gilt:

$$V_0 = b \cdot d \cdot L. \quad (7.19)$$

Mit den Gleichungen (7.15) und (7.19) ergibt sich aus Gleichung (7.18):

$$p_z(x_{\text{FK}}(t)) = p_0 \cdot \frac{V_0}{V_0 - V_{\text{FK}}(t)} = p_0 \cdot \frac{b \cdot d \cdot L}{b \cdot d \cdot (L - x_{\text{FK}}(t))} = p_0 \cdot \frac{L}{L - x_{\text{FK}}(t)}. \quad (7.20)$$

Gleichung (7.20) eingesetzt in Gleichung (7.16) ergibt dann folgende Differentialgleichung:

$$\frac{dx_{\text{FK}}}{dt} = -\frac{d^2}{12\eta} \cdot \frac{p_0 \cdot \frac{L}{L - x_{\text{FK}}(t)} - p_n}{x_{\text{FK}}(t)} = \frac{d^2}{12\eta} \cdot \frac{p_n \left(1 - \frac{p_0}{p_n} \cdot \frac{L}{L - x_{\text{FK}}(t)}\right)}{x_{\text{FK}}(t)}. \quad (7.21)$$

Um Lufteinschlüsse zu vermeiden, wird ein niedriger Vakuumdruck p_0 angestrebt. Daher kann angenommen werden, dass $\frac{p_0}{p_n} \approx 0$ gilt. Gleichung (7.21) vereinfacht sich zu:

$$\frac{dx_{\text{FK}}}{dt} = \frac{d^2}{12\eta} \cdot \frac{p_n}{x_{\text{FK}}(t)}. \quad (7.22)$$

Die Differentialgleichung kann nun durch Trennen der Variablen und Integration gelöst werden:

$$\int_0^L x_{\text{FK}} dx_{\text{FK}} = \frac{d^2 \cdot p_n}{12\eta} \int_0^{T_{\text{FK}}} dt, \quad (7.23)$$

wobei T_{FK} die Fülldauer bezeichnet. Da das Gasvolumen, das bei einem ausreichend niedrigen Vakuumdruck p_0 nach dem Füllen in der Zelle verbleibt, vernachlässigbar ist, wird über die gesamte Strecke L und damit über das gesamte Zellvolumen integriert. Für die Fülldauer ergibt sich somit:

$$T_{\text{FK}} = \frac{6\eta \cdot L^2}{p_n \cdot d^2}. \quad (7.24)$$

Die Fülldauer hängt somit hauptsächlich vom Zellabstand und der Länge der Zelle ab. Die Viskosität und der Normaldruck sind in der Regel konstant oder lassen sich nur in engen Grenzen variieren. Mit steigender Zellfläche oder genauer Zelllänge steigt somit die Fülldauer überproportional. Grundsätzlich lässt sich zum Ausgleich der Zellabstand erhöhen, jedoch können die doppelbrechenden Eigenschaften, das heißt der Wert der optischen Anisotropie Δn , des Flüssigkristalls nur in engen Grenzen variiert werden.

In Tabelle 7.2 wurde mit Hilfe von (7.24) die Füllzeit beispielhaft für unterschiedliche Zellgrößen und Zellabstände berechnet. In [16] sind für verschiedene TFK-Mischungen Viskositätswerte von $20 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ bis $45 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ bei 20°C aufgeführt. Für die Berechnung der Tabellenwerte wurde $\eta = 20 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ angenommen, um untere Werte für die Fülldauer abzuschätzen.

Tabelle 7.2.: Fülldauer in s in Abhängigkeit vom Zellabstand

Zellabstand d in μm	Zellenlänge L		
	15 cm	35 cm	1,0 m
5	1 080	5 880	48 000
9	333	1 815	14 815
30	30	163	1 333

Sowohl beim Evakuierungsvorgang als auch beim Füllvorgang besteht eine quadratische Abhängigkeit der Dauer von der Zellenlänge. Ein Vergleich der Zahlenwerte in den Tabellen 7.1 und 7.2 zeigt, dass für die angenommenen Werte das Füllen stets länger dauert als das Evakuieren, insbesondere bei geringeren Zellabständen. Ein alternatives Füllverfahren muss daher vor allem die Fülldauer reduzieren.



7.2. Alternatives Füllverfahren ohne Vakuumeinsatz

Mit dem Ziel, einen möglichst wirtschaftlichen Füllprozess zu entwickeln, wurde zunächst angestrebt, den hohen apparativen Aufwand, den eine Vakuumkammer erfordert, einzusparen. So wurden nach Ideen von N. Frühauf [53] und W. Haase [54] Füllversuche durchgeführt, bei der die Biegsamkeit eines Glassubstrats zum Tragen kommt. Gleichzeitig mit dem partiellen Absenken des Glassubstrats auf den gewünschten Zellabstand soll sich der im Zwischenraum befindliche TFK über die gesamte Zellenfläche verteilen. Ein solches Füllverfahren lässt sich auch aus der Gleichung (7.24) ableiten. Ziel soll sein, den Zellabstand d zu erhöhen. Die Biegsamkeit der Glassubstrate ermöglicht es, den höheren Zellabstand auf die Phase des Herstellungsprozesses zu beschränken, in der ein Fließen des TFK erforderlich ist.

In der Praxis auf einfache Weise umzusetzen ist es, das eindimensional gebogene Decks substrat auf dem Grundsubstrat gleichsam abzurollen, wie das in zwei möglichen Varianten – einseitiges und zweiseitiges Füllen – in Abbildung 7.3 schematisch dargestellt ist. Die Substrate nähern

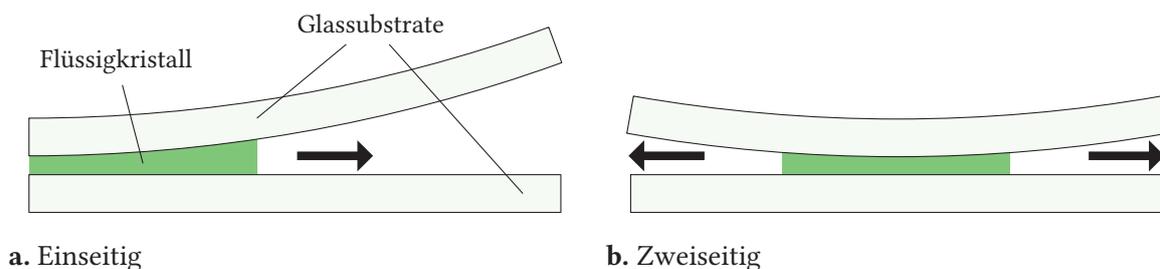


Abbildung 7.3.: Schemata des abrollenden Füllverfahrens

sich an, verdrängen dabei den TFK, der wiederum die Luft verdrängt, die sich zwischen den Substraten befindet. In der Praxis stellt sich von den beiden Varianten die zweiseitige (siehe Abbildung 7.3b) Art als einfacher umzusetzen heraus; das Decks substrat kann auf zwei Linien außerhalb der Zellfläche gelagert werden und über eine zentrale Linienlast in die gewünschte gebogene Form gebracht werden.

In Abbildung 7.4 ist die Abfolge eines Füllvorgangs dargestellt, bei dem das Decks substrat auf diese Weise gelagert ist (nach einer Idee von W. Haase [54]). Auf dem Grundsubstrat befindet sich der TFK – hier gefärbtes Wasser zur besseren Beobachtbarkeit des Vorgangs – in Form einer Linie, genau unter der Scheitellinie des gebogenen Decks substrats. Parallel zur Abrollrichtung sind auf dem Grundsubstrat auf den gegenüberliegenden Rändern Streifen aus Klebstoff aufgebracht, der noch nicht ausgehärtet ist. Auf dem Grundsubstrat befinden sich Abstandshalter. Das letzte Teilbild der Sequenz zeigt, wie sich die Klebstoffstreifen stark verbreitert haben.

In Abbildung 7.5 ist ein Füllergebnis im Detail dargestellt. Wesentliche Defekte sind Luftblasen und über die seitlichen Klebstoffstreifen getretene Flüssigkeit. Weiterhin auffällig ist die Breite

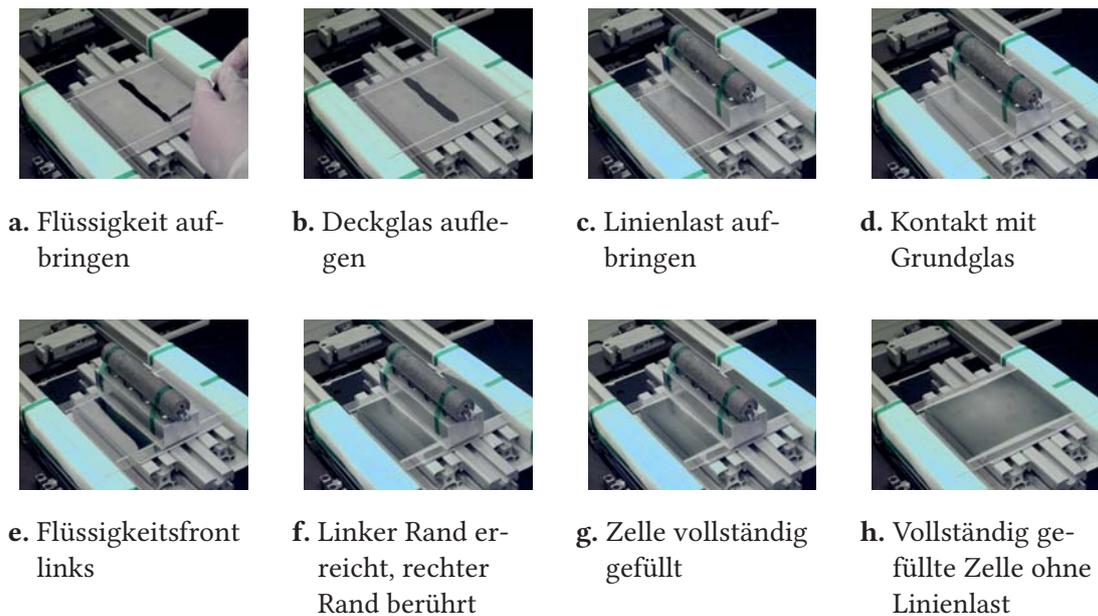


Abbildung 7.4.: Sequenz des Füllvorgangs beim Abrollfüllverfahren aus eigener Filmaufnahme

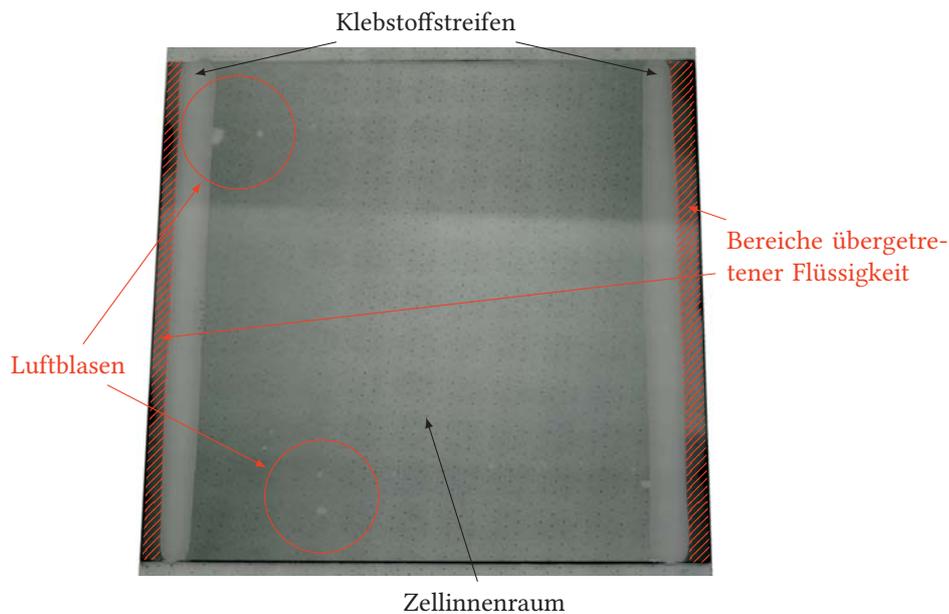


Abbildung 7.5.: 15 cm × 15 cm-Zelle im Abrollverfahren gefüllt, Punktstruktur vom Hintergrund herrührend

der Klebstoffstreifen von ca. 1 cm. Wie auch in der Sequenz in Abbildung 7.4 zu erkennen, gibt es zwei grundsätzliche Schwierigkeiten bei diesem Verfahren. Die Flüssigkeitsfronten verlaufen nicht parallel zu den Substraträndern und zudem auf den beiden Seiten nicht mit gleicher Geschwindigkeit. Daneben tritt leicht Flüssigkeit über die Klebstoffstreifen. Die uneinheitlichen Flüssigkeitsfronten führen dazu, dass leicht Luftblasen eingeschlossen werden. Ausreichend

dicke Klebstoffstreifen sind notwendig, um ein Übertreten der Flüssigkeit zu verhindern, jedoch verbreitern sich diese dadurch umso stärker beim Annähern der Substrate.

Hinsichtlich großflächigerer Glassubstrate ist zu erwarten, dass sich das Problem des Übertretens verschärft, da die Flüssigkristallmenge, die notwendig ist, um die Zelle vollständig zu füllen, stark anwächst. Wird also die Flüssigkristallmenge in einem Schritt vor dem Abrollen des oberen Glassubstrats auf einer Linie auf dem unteren Glassubstrat platziert, müssen die seitlichen Begrenzungen durch den Klebstoff ausreichend dick gewählt werden, woraus sich hinterher ein entsprechend breit verlaufender Klebstoffrahmen ergibt. Es ist vorstellbar, ein Verfahren einzusetzen, das den Flüssigkristall während des Abrollens kontinuierlich zwischen den Glasscheiben dosiert, um die Probleme aufgrund zu großer Flüssigkristallmenge lösen. Allerdings ist es für ein einheitliches Verfließen der Flüssigkristallfront notwendig, quer zur Auftragsrichtung die Glassubstrate im Abstand sehr präzise auszurichten. Geringfügiges Verkippn bewirkt ein Verfließen des Flüssigkristalls zu einer Seite hin, so dass ein Lufteinschluss droht.

Aufgrund der dargelegten Ergebnisse ist dieses Verfahren als nur bedingt skalierbar zu werten. Selbst wenn das Dosieren des Flüssigkristalls in Verbindung mit dünneren Klebstoffrahmen gelöst werden kann, bleibt der apparative Aufwand beträchtlich, um Grund- und Decks substrat präzise auszurichten und in einem automatischen Verfahren kontrolliert abzurollen. Zu untersuchen sind auch die Auswirkungen des Biegevorgangs auf die Stabilität des Schichtstapels.

Vorstellbar ist, das Abrollverfahren in einen Vakuumprozess zu überführen. Damit würden Luftblasen verhindert, jedoch bleibt zu untersuchen, ob der apparative Aufwand weiterhin geringer ist als beim ODF-Füllverfahren, das im Folgenden vorgestellt wird.

7.3. ODF-Füllverfahren

Ein Füllverfahren, das auch für großflächige Zellen noch wirtschaftlich ist, muss so beschaffen sein, dass ein Verfließen des TFK im Maßstab der Ausmaße der Zellfläche nicht notwendig ist. Daher bleibt als einzige Möglichkeit, den TFK bereits vor dem Annähern von Grund- und Decks substrat an die richtige Position zu bringen. Die bisherigen Ergebnisse lassen erwarten, dass ein solches Füllverfahren nicht ohne den Einsatz von Vakuum auskommt, da ansonsten beim Annähern von Grund- und Decks substrat Lufteinschlüsse nicht zu verhindern sind. Bei dem im industriellen Einsatz verbreiteten ODF-Füllverfahren für großflächige Flüssigkristallanzeigen handelt es sich um ein ebensolches Füllverfahren. Die Abkürzung ODF bezeichnet meist *one drop fill* [55, 56] oder *one drop filling* [57]. Maßgebliche Patente sind [58] und [59].

7.3.1. Grundprinzip

Das Ziel des ODF-Verfahrens besteht darin, den Füllprozess ohne Einfluss auf die Fülldauer skalieren zu können. Der TFK wird punktweise verteilt über die gesamte Zellfläche auf die offene Zelle aufgebracht. Das Verfließen des Flüssigkristalls geschieht gleichzeitig bei allen Flüssigkristallpunkten, während sich Grund- und Decks substrat annähern. Auf diese Weise können prinzipiell Zellen mit beliebig großer Fläche in gleicher Zeit gefüllt werden. Der Zeitaufwand für das Setzen der Punkte ist grundsätzlich flächenabhängig, aber durch das gleichzeitige Setzen mehrerer Flüssigkristallpunkte kann der Zeitaufwand für große Flächen reduziert werden.

Wie in Abbildung 7.6 schematisch dargestellt, ist auf dem Grundsubstrat ein ringsherum geschlossener Rahmen aus Klebstoffstreifen aufgebracht, der den Füllbereich für den TFK begrenzt. Zudem befinden sich Spacer auf dem Grundsubstrat. Zunächst wird wie in Abbildung 7.6a der TFK tropfenweise gleichmäßig über die Zellfläche verteilt. Anschließend wird das Decksubstrat in Vakuumatmosphäre mit dem Grundsubstrat verpresst (siehe Abbildung 7.6b). Die

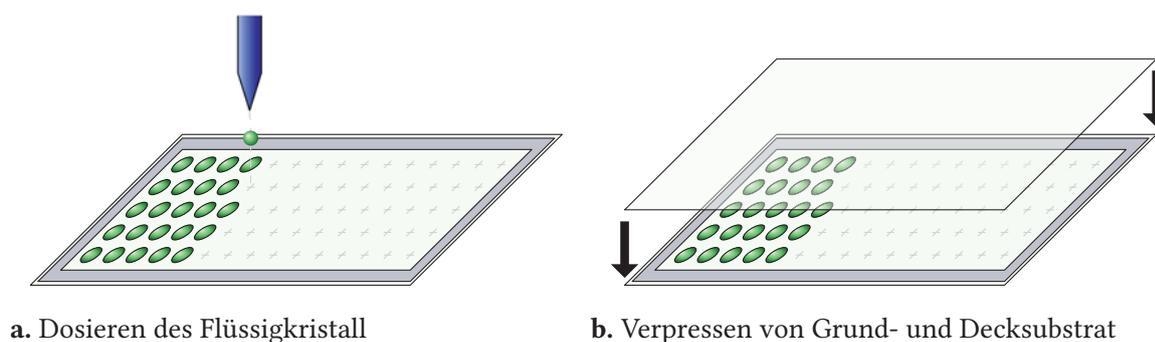


Abbildung 7.6.: Grundprinzip des ODF-Verfahrens

Klebstoffrahmendicke und die Menge des TFK müssen so bemessen sein, dass nach Abschluss des Verpressens der gesamte Zellinnenraum bei einem der Höhe der Spacer entsprechenden Zellabstand mit TFK gefüllt ist.

Die hier eingesetzten Spacer sind von einer Klebeschicht umgeben, die durch Wärmeeinwirkung aktiviert wird. Kleben die Spacer auf dem Grundsubstrat, so verhindert dies, dass sie vom verfließenden Flüssigkristall mitgerissen werden.¹ Der Klebstoff für den Klebstoffrahmen ist so beschaffen, dass er weder den Flüssigkristall kontaminiert, noch sich mit diesem vermischt. Er kann durch ultraviolettes Licht eine Vorhärtung erreichen und bei Wärmeeinwirkung vollständig aushärten.

¹Bei der Herstellung von Flüssigkristallanzeigen mit Einsatz des ODF-Prozesses werden üblicherweise aufwändiger herzustellende fotolithografische Spacer (engl. *photo spacer* oder *post-spacer*) eingesetzt [55, 60], die u. a. einen präziseren Zellabstand ermöglichen und optische Eigenschaften der Zelle verbessern.

Im Folgenden sollen unterschiedlichen Aspekte beim Einsatz des ODF-Verfahrens beleuchtet werden, darunter die Berechnung der notwendigen Flüssigkristallmenge, die Anforderungen an den Vakuumdruck und die Herausforderungen beim Verpressen der Substrate.

7.3.2. Flüssigkristallmengen

Die Menge des benötigten TFK für eine Zelle kann anhand der Geometrie des Klebstoffrahmens und der Zelldicke errechnet werden. Im Zellzwischenraum befinden sich jedoch zusätzlich Spacer, die einen gewissen Anteil des TFK verdrängen. Die hier eingesetzten Spacer sind kugelförmig und werden mittels einer Spacer-Lösemittel-Suspension auf das Decks substrat gesprüht, so dass sie eine zufällige Anordnung bei insgesamt homogener Verteilung besitzen.

Das Volumen V_{Spacer} eines einzelnen Spacers ergibt sich entsprechend dem Volumen einer Kugel zu:

$$V_{\text{Spacer}} = \frac{4}{3} \pi \left(\frac{d}{2} \right)^3, \quad (7.25)$$

wobei d dem Spacerdurchmesser und somit der nominellen Zelldicke entspricht. Das Gesamtvolumen $V_{\text{Spacer,gesamt}}$ aller Spacer im Zellinneren ist abhängig von der Spacerdichte $\nu = \frac{N}{A}$, wobei N die Zahl der Spacer auf der Fläche A angibt. Somit gilt für das Gesamtspacer volumen:

$$V_{\text{Spacer,gesamt}} = V_{\text{Spacer}} \cdot \nu \cdot A_{\text{gesamt}}. \quad (7.26)$$

Die Gesamtfläche des Zellinneren wird mit A_{gesamt} bezeichnet. Das Gesamtspacer volumen $V_{\text{Spacer,gesamt}}$ verdrängt das gleiche Volumen an TFK, so dass sich die Dicke der Flüssigkristall schicht um den Betrag

$$d_{\text{Spacer}} = \frac{V_{\text{Spacer,gesamt}}}{A_{\text{gesamt}}} = V_{\text{Spacer}} \cdot \nu \quad (7.27)$$

ändert, wenn bei der TFK-Menge die Spacer nicht berücksichtigt werden. Bezogen auf die nominelle Zelldicke d ergibt sich daraus mit den Gleichungen (7.25) und (7.26) die relative Abweichung von:

$$\frac{d_{\text{Spacer}}}{d} = \frac{\pi}{6} \cdot d^2 \cdot \nu. \quad (7.28)$$

Die anteilige Flächenbedeckung a_{Spacer} der Zellfläche A_{gesamt} durch Spacer lässt sich mit Hilfe der durch einen Spacer überdeckten Kreisfläche $A_{\text{Spacer}} = \pi \cdot \left(\frac{d}{2} \right)^2$ folgendermaßen angeben:

$$a_{\text{Spacer}} = \frac{A_{\text{Spacer}}}{A_{\text{gesamt}}} = \frac{\pi}{4} \cdot d^2 \cdot \nu. \quad (7.29)$$

Da bei größerer Schichtdicke d bei identischer Spacerdichte ν die Flächenbedeckung durch die Spacer quadratisch zunimmt, ist es sinnvoll, die Spacerdichte entsprechend zu verringern. Einerseits nimmt sonst die optische Beeinträchtigung der Zelle zu und andererseits vermögen größere Spacer entsprechend ihrem größeren Volumen höheren Kräften standzuhalten. Daher bietet sich die anteilige Flächenbedeckung a_{Spacer} als Maßzahl an, um abhängig von der Zelldicke die Spacerdichte zu bestimmen. Mit a_{Spacer} ergibt sich dann mit Gleichung (7.28) für die relative Abweichung von der nominellen Zelldicke:

$$\frac{d_{\text{Spacer}}}{d} = \frac{2}{3} \cdot a_{\text{Spacer}}, \quad (7.30)$$

d. h., bei konstanter Flächenbedeckung durch die Spacer bleibt auch die relative Abweichung vom nominellen Zellabstand konstant.

Um zu veranschaulichen, wie sich die Spacerdichte auf die relative Abweichung vom Zellabstand auswirkt, sind in Abbildung 7.7 die Werte für unterschiedliche nominelle Zellabstände dargestellt. Eingezeichnet ist zusätzlich eine konstante, vom Zellabstand unabhängige anteilige

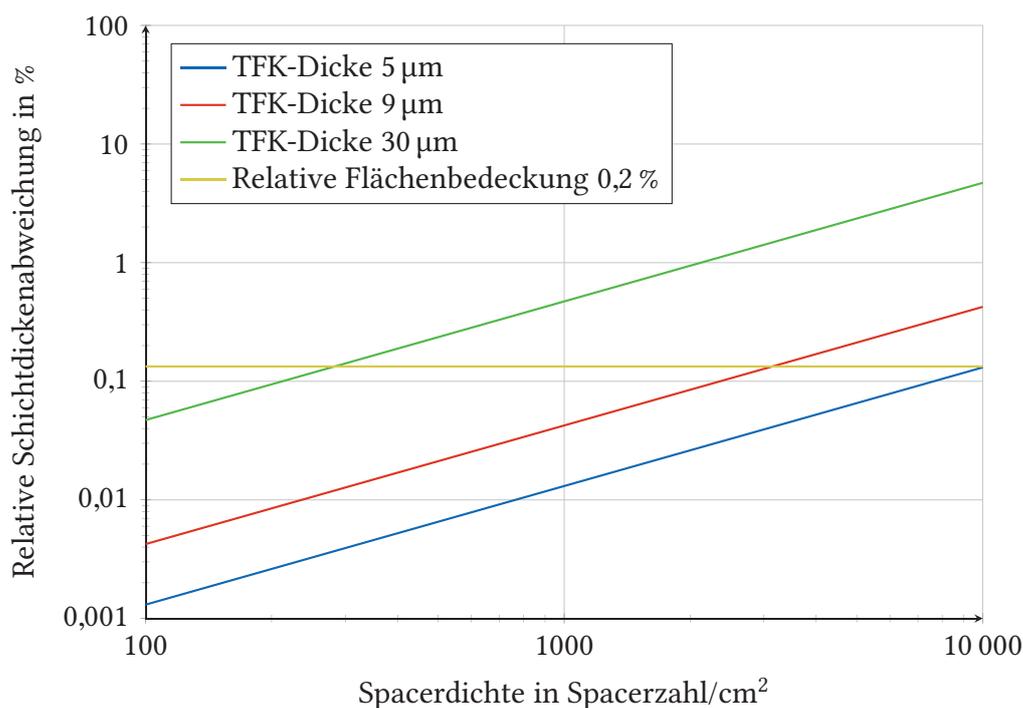


Abbildung 7.7.: Relative Abweichung der TFK-Schichtdicke in Abhängigkeit der Spacerdichte bei verschiedenen nominellen Schichtdicken

Flächenbedeckung durch Spacer von 0,2 %, was etwa einem üblichen Wert für die Spacerdichte von 10 000/cm² bei 5 µm Zellabstand entspricht. Es ergibt sich nach Gleichung (7.30) eine Schichtdickenabweichung von ungefähr 0,1 %. Die damit einhergehende proportionale Änderung des optischen Weges ist derart gering, dass das Volumen der Spacer beim Berechnen

der nötigen Flüssigkristallmenge vernachlässigt werden kann. Umgekehrt ergibt sich an die Reproduzierbarkeit der Spacerdichte nur geringe Anforderungen: Selbst bei einer Verdopplung der Spacerdichte gegenüber dem üblichen Wert bleibt die Schichtdickenabweichung bei den relevanten Zellabständen von $9\ \mu\text{m}$ und $30\ \mu\text{m}$ noch weit unter 1 %.

7.3.3. Anforderungen an den Vakuumdruck

Bei planparallelem Aufsetzen des Decksubstrats ist in dem Moment, in dem das Decksubstrat den umlaufenden, geschlossenen Klebstoffrahmen berührt, die Zelle gasdicht verschlossen. Die dabei eingeschlossene Luftmenge verbleibt auch nach dem Verpressen in der Zelle und kann zu sichtbaren Luftblasen führen. Im Folgenden soll nun betrachtet werden, welche Auswirkungen der Druck des umgebenden Vakuums auf die flächenmäßige Ausdehnung von Lufteinschlüssen in der Zelle hat.

Betrachtet wird zunächst der Moment, wenn die Zelle beim Annähern der Substrate gasdicht schließt. Ausgehend von der idealen Gasgleichung (2.25) gilt dann für das in diesem Moment in der Zelle eingeschlossene Luftvolumen V_0 :

$$V_0 = \frac{R_g \cdot T}{p_0} \cdot N_0, \quad (7.31)$$

wobei p_0 den Vakuumdruck in der umgebenden Vakuumkammer und N_0 die im Volumen V_0 enthaltene Stoffmenge bezeichnet. Das Luftvolumen V_0 lässt sich direkt aus der Differenz von Zellvolumen im Moment des Schließens und von Flüssigkristallvolumen berechnen. Planparalleles Annähern der Substrate vorausgesetzt kann das Vakuumvolumen V_0 somit durch folgende Beziehung ausgedrückt werden:

$$V_0 = A_0 \cdot (d_0 - d), \quad (7.32)$$

wobei A_0 die vom Klebstoffrahmen umschlossene Fläche und d_0 den Abstand der Substrate im Moment des vollständigen Kontaktes zwischen Klebstoffrahmen und Decksubstrat bezeichnen. Das Flüssigkristallvolumen wird durch den angestrebten nominellen Zellabstand d berücksichtigt.

Nachdem die Zelle auf ihren nominellen Zellabstand verpresst, der Klebstoffrahmen durch ultraviolettes Licht vorgehärtet und das Belüften der Vakuumkammer abgeschlossen ist, beansprucht die in der Zelle eingeschlossene Luftmenge N_0 bei Normaldruck p_n das Normalvolumen V_n :

$$V_n = \frac{R \cdot T}{p_n} \cdot N_0. \quad (7.33)$$

Voraussetzung für die Gültigkeit dieser Beziehung sind ausreichend flexible Gläser, die den äußeren Druck in das Zellinnere leiten. Über die Luftmenge N_0 mit Gleichung (7.31) in Beziehung gesetzt, beträgt das eingeschlossene Normalvolumen somit in Abhängigkeit von V_0 und p_0 :

$$V_n = V_0 \cdot \frac{p_0}{p_n} \quad (7.34)$$

Vorausgesetzt, das Normalvolumen nimmt in der verpressten Zelle die gesamte Höhe d des Zellzwischenraums ein, dann dehnt sich V_n über die Fläche A_n aus:

$$A_n = \frac{V_n}{d} \quad (7.35)$$

Mit den Gleichungen (7.32) und (7.34) ergibt sich daraus für die eingeschlossene Fläche A_n :

$$A_n = A_0 \cdot \frac{p_0}{p_n} \cdot \frac{d_0 - d}{d} = A_0 \cdot \frac{p_0}{p_n} \cdot \left(\frac{d_0}{d} - 1 \right) \quad (7.36)$$

Es zeigt sich eine proportionale Abhängigkeit der Fläche der Lufteinschlüsse von der Zellfläche. Damit sind unter ansonsten gleichen Bedingungen bei großflächigen Zellen potentiell größere Flächen von Lufteinschlüssen möglich, da aufgrund der mechanischen und thermischen Beanspruchung von Fensterverglasungen nicht ausgeschlossen werden kann, dass sich die über die Fläche der eingebetteten Flüssigkristallzelle verteilten Lufteinschlüsse zu einer oder mehreren zusammenhängenden größeren Fläche vereinen. Aus diesem Grund muss es Ziel sein, die absolute Lufteinschlussfläche – unabhängig von der Fläche der Flüssigkristallzelle – zu minimieren. In Tabelle 7.3 sind beispielhaft die Lufteinschlussflächen für Flüssigkristallzellen unterschiedlicher Fläche mit nominell $9 \mu\text{m}$ Zellabstand und einer Klebstoffrahmenhöhe von $18 \mu\text{m}$ vor dem Verpressen angegeben.

Tabelle 7.3.: Lufteinschlussfläche in cm^2 in Abhängigkeit vom Vakuumdruck bei $9 \mu\text{m}$ Zellabstand und $18 \mu\text{m}$ Klebstoffrahmenhöhe

Vakuumdruck in mbar	Zellinnenfläche A_n		
	$15 \text{ cm} \times 15 \text{ cm}$	$35 \text{ cm} \times 35 \text{ cm}$	$1,0 \text{ m} \times 1,2 \text{ m}$
$1 \cdot 10^2$	22,50	122,50	1200,00
$1 \cdot 10^1$	2,25	12,25	120,00
1	0,23	1,23	12,00
$1 \cdot 10^{-1}$	0,02	0,12	1,20
$1 \cdot 10^{-2}$	0,00	0,01	0,12

Die Werte machen deutlich, dass bei größeren Flächen, wie sie etwa bei Fensterverglasungen auftreten, unter den gegebenen Bedingungen selbst ein Vakuumdruck von $1 \cdot 10^{-2}$ mbar nicht ausreicht, um mit bloßem Auge sichtbare Lufteinschlüsse zu verhindern. Der Vakuumdruck kann nicht beliebig herabgesetzt werden, da andernfalls der TFK oder auch der Klebstoff verdampft.

Gemäß Gleichung (7.36) kann zur Verringerung der Lufteinschlüsse alternativ der Zellabstand vergrößert oder die Klebstoffrahmenhöhe verkleinert werden. Ein größerer Zellabstand ist

jedoch nachteilig in Bezug auf die Blickwinkelabhängigkeit der Flüssigkristallzelle und ist daher nur in Grenzen möglich. Die Klebstoffrahmenhöhe dagegen kann prinzipiell so weit gesenkt werden, dass sie nur noch geringfügig dicker als der nominelle Zellabstand ist. In der Praxis erfordert dies jedoch einerseits ein hochpräzises Dosieren der Klebstoffdicke, andererseits muss das Decks substrat präzise positioniert und dem Klebstoffrahmen angenähert werden. Gerade bei großen Flächen beeinträchtigt dies die Wirtschaftlichkeit des ODF-Füllverfahrens. Dem präzisen Annähern der Glassubstrate sind voraussichtlich durch Welligkeiten im Glas Grenzen gesetzt.

7.3.4. Verpressen der Substrate

Üblicherweise werden Substrate zum Verpressen zusammengeführt, indem das Deckglas mittels einer auf der Oberseite wirkenden Vakuumsaugung gelagert und so auf das Grundsubstrat herabgesenkt wird. Beim ODF-Verfahren ist dies jedoch nicht so einfach möglich, da sich die komplette Anordnung im Vakuum befindet und somit eine Vakuumsaugung wirkungslos ist. In [55, 56, 58] wird das ODF-Verfahren beschrieben. Bei Industrieanlagen der Flachbildschirmherstellung werden dazu wahrscheinlich eine Art von Klebfilm zur Fixierung des Decks substrates verwendet [57]. Gerade bei sehr kleinen Zelldicken und der notwendigen exakten Positionierung aufgrund der Pixel-Strukturen ist ein Durchbiegen der Glassubstrate unerwünscht.

Im Rahmen von Laborversuchen wurde das Decks substrat zur einfacheren Prozessführung auf seitlichen Auflagern über dem Decks substrat positioniert. Aufgrund der kleinen Substratflächen trat hier kein nennenswertes Durchbiegen auf. Trotzdem sollte es möglich sein, diesen Prozess auf großflächigere Substrate zu übertragen. Für Flüssigkristallzellen zur Anwendung in Fensterverglasungen sind jedoch zum einen dickere Substrate vorstellbar, die sich unter dem Einfluss der Schwerkraft nicht so stark durchbiegen. Zum anderen mag selbst geringes Durchbiegen akzeptabel sein, wenn gleichzeitig das Grundsubstrat in gleicher Weise durchgebogen wird wie in Abbildung 7.8 übertrieben dargestellt.

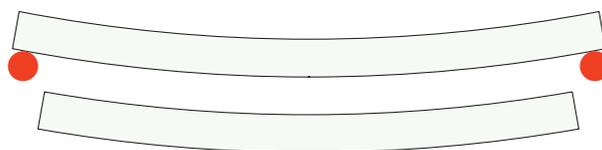


Abbildung 7.8.: Substrat-Verpressung mit doppelt gebogenen Substraten beim ODF-Verfahren, Auflagern rot

Aufgrund der apparativen Gegebenheiten wurden ODF-Füllversuche nach einer Idee von L. Rau [61] mit Hilfe eines Vakuu miergeräts durchgeführt, das Kunststoffbeutel evakuieren und im evakuierten Zustand gasdicht verschweißen kann.

7.3.4.1. Verpressen in Kunststoffbeutel

Die Anordnung der Flüssigkristallzelle im Kunststoffbeutel ist in Abbildung 7.9 schematisch dargestellt. Auf dem unteren Grundsubstrat ist der Flüssigkristall dosiert, das mit Spacern versehene

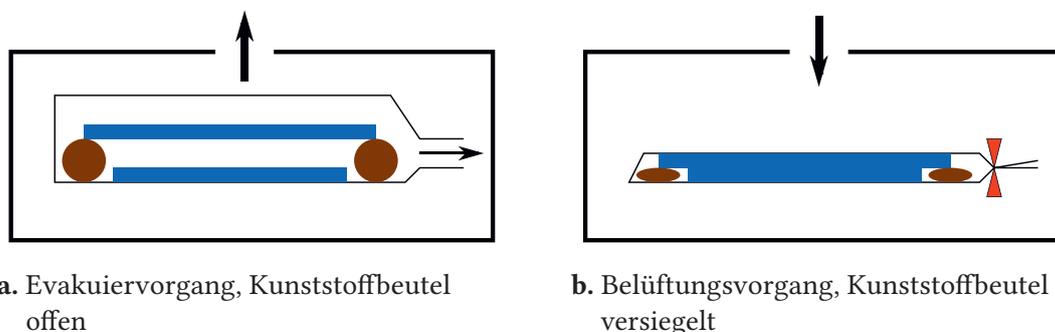


Abbildung 7.9.: Schematische Darstellung des ODF-Verfahrens in Vakuuiergerät, Flüssigkristallzelle in Kunststoffbeutel

obere Decks substrat schwebt auf äußeren Abstandshaltern gelagert über dem Grundsubstrat (siehe Abbildung 7.9a). Die Vakuunkammer, in der sich der Beutel mit der Substratanordnung befindet, wird evakuiert. Dabei wird auch der offene Beutel evakuiert. Nach dem gasdichten Verschweißen der Beutelöffnung wird die Vakuunkammer belüftet (siehe Abbildung 7.9b). Währenddessen wird der Beutel zusammengedrückt, legt sich eng um die Substratanordnung und übt so gleichermaßen Druck auf die Substrate aus, so dass diese ebenfalls zusammengepresst werden. Die äußeren Abstandshalter werden wie dargestellt ebenfalls zusammengepresst oder aufgrund der Flexibilität des Kunststoffbeutels einfach umschlossen. Der eng anliegende Beutel sorgt für einen festen Verbund, so dass die verpresste Zelle entnommen werden und der Klebstoffrahmen unter ultra-violettem Licht und Wärmeeinwirkung ausgehärtet werden kann.

Mit diesem System lässt sich das Verpressen von Flüssigkristallzellen im Vakuum untersuchen. Nachteilig ist jedoch, dass hier das Verpressen unkontrolliert und stets gleichzeitig mit dem Belüften der Vakuunkammer erfolgt.

In mehreren Versuchen hat sich gezeigt, dass der erzielbare Vakuumdruck nicht ausreicht, größere Lufteinschlüsse in der Flüssigkristallzelle zu vermeiden. Dazu ist in Abbildung 7.10 die Durchlichtaufnahme einer solchen Zelle dargestellt. Die Flüssigkristallzelle befindet sich zwischen gekreuzten Polarisatoren und verfügt über keine Orientierungsschicht, so dass der Flüssigkristall uneinheitlich orientiert ist.

Für die relativ großflächigen Lufteinschlüsse kommen verschiedene Ursachen in Frage. Es wurde zunächst ausgeschlossen, dass Ausgasungen beim Schweißvorgang oder zu kurze Evakuierungszeiten dafür verantwortlich sind. Komprimierbare äußere Abstandshalter wurden durch starre äußere Abstandshalter ersetzt, so dass ein Ausgasen der komprimierbaren Ab-

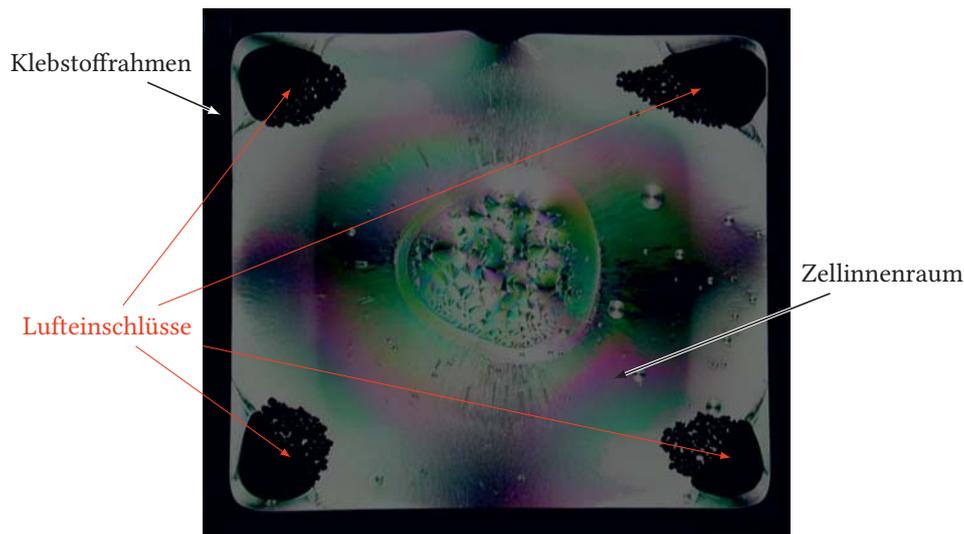


Abbildung 7.10.: Im ODF-Verfahren im Kunststoffbeutel hergestellte Flüssigkristallzelle mit Lufteinschlüssen, Aufnahme mit gekreuzten Polarisatoren

standhalter im Moment des Verpressens ebenfalls ausgeschlossen war. Aufgrund der Werte in Tabelle 7.3 kommt ein zu hoher Vakuumdruck auch nicht in Frage, da die Zellinnenfläche hier ca. $10\text{ cm} \times 9\text{ cm}$ und der Vakuumdruck in der Vakuumkammer im Moment des Klebstoffrahmenverschlusses ca. 1 mbar beträgt. Die Fläche der Lufteinschlüsse müsste also deutlich unter 1 cm^2 betragen, was nicht der Fall ist.

Die Fläche der Lufteinschlüsse lässt sich jedoch reproduzierbar dadurch senken, dass auf die äußeren Abstandhalter verzichtet wird und das Deckssubstrat vor dem Evakuieren direkt auf den Klebstoffrahmen des Grundsubstrats aufgesetzt wird, so dass sowohl der Klebstoffrahmen als auch die eingeschlossene Flüssigkristallmenge unmittelbar zu verfließen beginnt. Während des Evakuiervorgangs durchdringt die in der Zelle enthaltene Luft den Klebstoffrahmen, was in Form einer Vielzahl kleiner Bläschen sichtbar ist. Beim Verpressen durch Belüften verschwinden diese jedoch wieder, so dass der Klebstoffrahmen dicht ist. Das Ergebnis einer derart hergestellten Flüssigkristallzelle ist in Abbildung 7.11 dargestellt.

Die Fläche der Lufteinschlüsse ist nun deutlich kleiner als zuvor in Abbildung 7.10 und beträgt insgesamt weniger als 1 cm^2 . Im Fall der Verwendung von äußeren Abstandhaltern kommt es zu großflächigen Lufteinschlüssen, da zu Beginn des Belüftungsvorgangs zuerst der Kunststoffbeutel zusammengedrückt wird, bevor sich die Substrate soweit annähern, dass der Klebstoffrahmen die Zelle gasdicht abschließen kann. Dadurch gelangen sämtliche im Kunststoffbeutel enthaltenen Luftteilchen ins Zellinnere. Wird das Deckssubstrat wie in diesem Fall direkt auf den Klebstoffrahmen aufgesetzt, ist es nicht oder nur in geringem Maße möglich, dass die Luftteilchen aus dem Kunststoffbeutel in die Zelle eindringen.

Für großflächigere Zellen ist dieses Verfahren mit direktem Aufsetzen des Deckssubstrats auf den Klebstoffrahmen nicht einsetzbar hinsichtlich des Ziels, eine kurze, flächenunabhängige Füllzeit

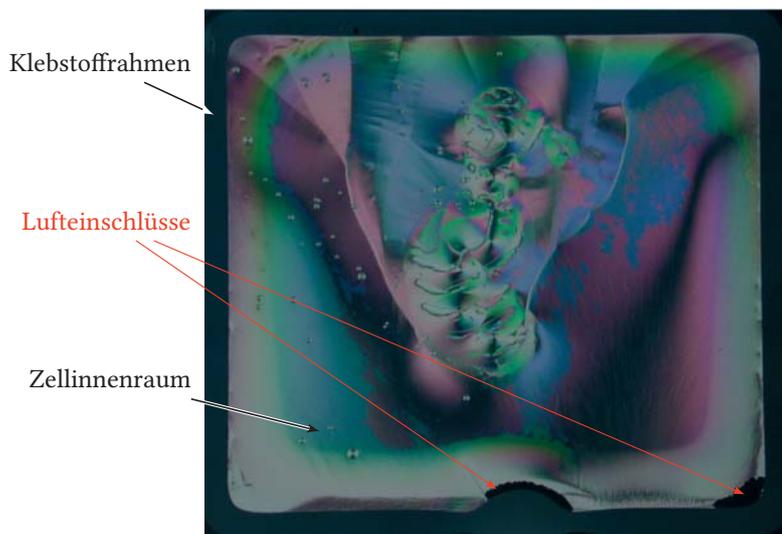


Abbildung 7.11.: Im ODF-Verfahren im Kunststoffbeutel hergestellte Flüssigkristallzelle mit geringen Lufteinschlüssen, Aufnahme mit gekreuzten Polarisatoren

zu erreichen: Um zu verhindern, dass der eingeschlossene Flüssigkristall während des Evakuiervorgangs von Lufteinschlüssen mitgerissen wird und den Klebstoffrahmen durchdringt, muss der Flüssigkristall zentral auf das Grundsubstrat in Form eines einfach zusammenhängenden Gebiets aufgebracht werden. Ein so verteilter Flüssigkristall muss aber innerhalb der Zelle über die gesamte Zellfläche verfließen, was wiederum zu langen Füllzeiten führt.

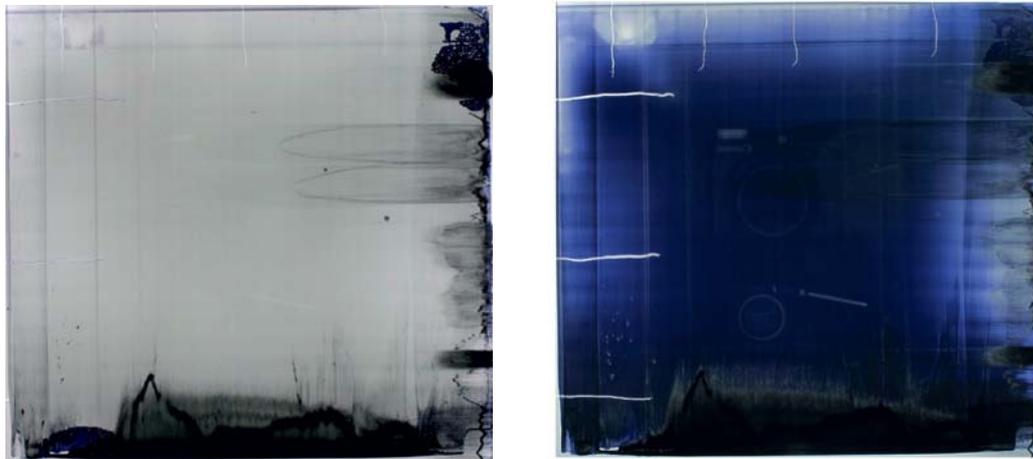
7.3.5. Bewertung

Grundsätzlich ist das ODF-Füllverfahren auf große Flüssigkristallflächen skalierbar, jedoch steigen die Anforderungen an die Präzision der Anlagen zur Positionierung der Substrate. Darüber hinaus kann auf eine aufwändige Vakuumkammer nicht verzichtet werden. Dies führt dazu, dass die Anforderungen an die Anlagen zum Befüllen von Flüssigkristallzellen, die in Isolierverglasungen eingesetzt werden sollen, kaum geringer sein werden als solche, die für die Herstellung von großflächigen Flüssigkristallanzeigen eingesetzt werden. Lediglich die Anforderungen an die Dosiergenauigkeit des Flüssigkristalls werden niedriger sein, wenn Flüssigkristallzellen mit größerem Zellabstand eingesetzt werden können.



8. Zusammenfassung

Auf Grundlage der in den vorangegangenen Kapiteln abgehandelten Teilprozessen für die wirtschaftliche Herstellung einer Flüssigkristallzelle zum Einsatz in einer Isolierverglasung wurden einige funktionsfähige Muster hergestellt. In Abbildung 8.1 ist eine solche Flüssigkristallzelle dargestellt. Die Zellfläche beträgt etwa $15\text{ cm} \times 15\text{ cm}$, der nominelle Zellabstand beträgt $9\text{ }\mu\text{m}$.



a. Aus

b. Ein, $U = 10\text{ V}$

Abbildung 8.1.: Im ODF-Verfahren im Kunststoffbeutel hergestellte Flüssigkristallzelle mit LFK-Polarisator als Orientierungsschicht

Die LFK-Trockenschichtdicken, gemittelt über 3 bzw. 5 Messungen betragen für Grund- und Deckschicht 701 nm respektive 880 nm. Die Einschaltzeit beträgt 21,4 ms, die Ausschaltzeit 20,2 ms (vgl. [62]). Die Glassubstrate wurden zunächst mit ITO-Elektroden beschichtet um dann im Schlitzdüsenverfahren darauf die LFK-Polarisatoren aufzutragen. Diese wurden gerieben, um eine Orientierungswirkung für die TFK zu erzielen. Der Zusammenbau und das Füllen der Zelle mit TFK erfolgte im ODF-Verfahren unter Einsatz von Kunststoffbeuteln. Zwischen Ein- und Auszustand ist ein deutlicher Schalthub bezüglich der Transmission zu erkennen, womit die grundsätzliche Einsetzbarkeit der Teilprozesse für die Herstellung von Flüssigkristallzellen nachgewiesen ist.

Die dargestellten Inhomogenitäten zeigen, dass insbesondere bei der Schlitzdüsenbeschichtung noch erheblicher Optimierungsbedarf hinsichtlich einheitlicher Trockenschichtdicken besteht. In Abbildung 8.1a sind größere dunkle Flächen zu erkennen, bei welchen es sich um

Anfahrbereiche handelt, die aufgrund von zu langer Dosierzeit des LFK vor Verfahrbeginn entstanden sind. Daher dürften diese Makel am Erscheinungsbild der Zelle die geringsten Schwierigkeiten hinsichtlich der Optimierung bedeuten. Bei den hellen Strichen links und oben in Abbildung 8.1b wurde die LFK-Beschichtung zur Messung der Schichtdicke entfernt.

Mit Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren sind wie bei der Flüssigkristallzelle in Abbildung 8.1 zuverlässig bisher nur Trockenschichtdicken von mehr als 600 nm erreichbar. Für dünnere Trockenschichtdicken ist mit dem gegebenen Verfahren eine Modifizierung des LFK-Materials unabdingbar. Die optimale Trockenschichtdicke liegt für das vorliegende LFK-Material im Bereich von 300 nm bis 400 nm, wo nach Simulationen [62] der Schalhub ein Maximum erreicht.

Wird die Flüssigkristallzelle per Ethylvinylacetat-Folie an die Außenscheibe einer Isolierverglasung laminiert, so ist nach [52] die mechanische Stabilität des Zellaufbaus für die Anwendung in Gebäudeverglasungen ausreichend.

Hinsichtlich der Wirtschaftlichkeit der untersuchten Aspekte ist abzuwägen, ob der Einsatz von AZO als alternativem Elektrodenmaterial zu ITO sinnvoll ist, da es sich bei ITO um ein verbreitetes Material in der Glasindustrie handelt und AZO nicht ohne weiteren Aufwand mit LFK verträglich ist. Der Schichtauftrag von LFK im Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren ist grundsätzlich möglich, so dass hier ein skalierbarer Prozess zur Verfügung steht. Jedoch sind mit dem gegebenen LFK-Material keine ausreichend dünne Schichtaufträge erzielbar. Seinen wirtschaftlichen Vorteil spielt LFK auch dadurch aus, dass es als Orientierungsschicht dienen kann und so ein Verzicht auf eine separate PI-Schicht möglich ist. Mit dem ODF-Verfahren steht ebenso ein skalierbarer Prozess für die Füllung von großflächigen Flüssigkristallzellen mit TFK zur Verfügung, jedoch ist abzusehen, dass die apparativen Anforderungen wie etwa die Größe der Vakuumkammer und die Positioniergenauigkeit für das Verpressen bei solchen Zellen sehr hoch sind. Hier sind die größten Hürden bezüglich einer industriellen und kostengünstigen Herstellung von Flüssigkristallzellen für Isolierverglasungen zu erwarten.

Weiterhin zu untersuchen bleibt die Blickwinkelabhängigkeit der Flüssigkristallzelle in Bezug auf Schalhub und Transmission, die durch Änderungen im Zellaufbau, wie etwa der Variation von TFK- und LFK-Schichtdicke, beeinflusst werden kann.

A. Nassfilmdicke beim Spiralrakelbeschichtungsverfahren

Unabhängig von der Art des Rakelstabs werden die Rakel nach einem äquivalenten Drahtdurchmesser eingeteilt (siehe Abbildung A.1). Die Querschnittsfläche A_Q berechnet sich zu:

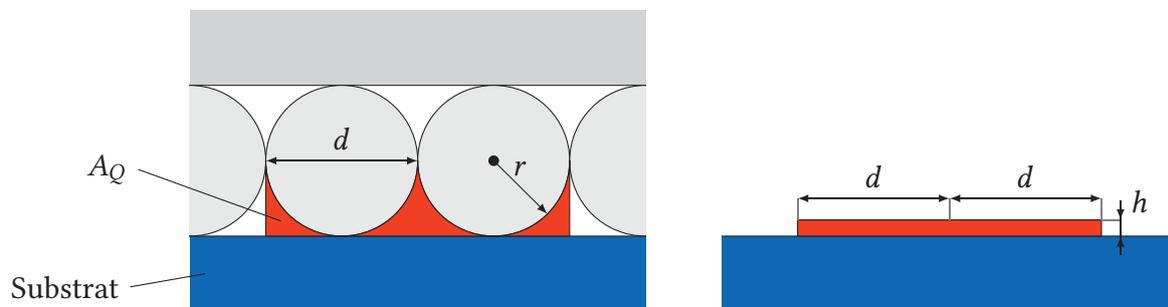


Abbildung A.1.: Berechnung der Nassfilmdicke am drahtumwickelten Stab

$$A_Q = \frac{d}{2} \cdot 2d - \pi \left(\frac{d}{2} \right)^2 = d^2 \left(1 - \frac{\pi}{4} \right), \quad (\text{A.1})$$

wobei d den Drahtdurchmesser bezeichnet. Daraus lässt sich eine äquivalente Nassfilmdicke bestimmen:

$$h = \frac{A_Q}{2d} = \frac{d}{2} \left(1 - \frac{\pi}{4} \right) \approx 0,107 \cdot d = 0,214 \cdot r. \quad (\text{A.2})$$

Dieses Ergebnis stimmt überein mit dem in [63] genannten Wert von $0,21 \cdot r$. In [64, 65] dagegen wird ohne weitere Herleitung für die Nassfilmdicke ein Wert von $0,173 \cdot r$ angegeben. Trotzdem wird das Verhältnis von Drahtdurchmesser zu Nassfilmdicke mit $10 : 1$ angeben. Die Diskrepanz wird mit nicht näher definierten praktischen Erwägungen begründet, stimmt aber mit dem Ergebnis aus Gleichung (A.2) gut überein. In [66] wird ebenfalls ein Wert von $0,2145 \cdot r$ erwähnt.



Literaturverzeichnis

- [1] F. B. Grimm. *Energieeffizientes Bauen mit Glas: Grundlagen; Gestaltung; Beispiele; Details*. München: Callwey, 2004.
- [2] *Technische Daten*. Technical specifications in German. EControl. Feb. 2011.
- [3] *SPD SmartGlass Data Sheet*. SmartGlass International. Juni 2008.
- [4] W. Haase. „Adaptive Strahlungstransmission von Verglasungen mit Flüssigkristallen“. Diss. Universität Stuttgart, 2004.
- [5] P. Yeh. *Optics of Liquid Crystal Displays*. New York: Wiley, 1999.
- [6] E. von Hartmann. *Die Weltanschauung der modernen Physik*. Leipzig: Hermann Haacke, 1902.
- [7] E. Hering, R. Martin und M. Stohrer. *Physik für Ingenieure*. Deutsch. 10. Auflage. Berlin/Heidelberg: Springer, Juli 2007.
- [8] G. Lehner. *Elektromagnetische Feldtheorie für Ingenieure und Physiker*. 3. Auflage. Berlin: Springer, 1996.
- [9] K. Hiltrop. „Grundlagen und Historie“. In: *Lyotrope Flüssigkristalle: Grundlagen, Entwicklung, Anwendung*. Hrsg. von H. Stegemeyer. Darmstadt: Steinkopff, 1999.
- [10] M. Wittenberg. „Selbstorganisation in Flüssigkristallen durch spezifische Wechselwirkungen“. Diss. Philipps-Universität Marburg, 1997.
- [11] K. Hiltrop. „Lyotrope Flüssigkristallphasen mizellarer Tensidlösungen“. In: *Lyotrope Flüssigkristalle: Grundlagen, Entwicklung, Anwendung*. Hrsg. von H. Stegemeyer. Darmstadt: Steinkopff, 1999.
- [12] D. Wang et al. „Influence of Rubbing Strength on the Contrast Ratio“. In: *International display research conference*. Society for Information Display, 2008, S. 161–163.
- [13] M. Brunner. „Untersuchung von VA-Zellen für schaltbare Verglasungen“. Studienarbeit. Lehrstuhl für Bildschirmtechnik, Universität Stuttgart, 2011.
- [14] T. Uchida und H. Seki. „Surface Alignment of Liquid Crystals“. In: *Liquid Crystals – Applications and Uses*. Hrsg. von B. Bahadur. Bd. 3. Singapur: World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 1992.
- [15] J. Stöhr et al. „Microscopic Origin of Liquid Crystal Alignment on Rubbed Polymer Surfaces“. In: *Macromolecules* 31 (1998), S. 1942–1946.

- [16] E. Lueder. *Liquid Crystal Displays: Addressing Schemes & Electro-Optical Effects*. Display Technology. Chichester: John Wiley & Sons Ltd, 2001.
- [17] Y. Ukai et al. „Current status and future prospect of in-cell-polarizer technology“. In: *Journal of the Society for Information Display* 13.1 (Jan. 2005), S. 17–24.
- [18] J. Birgerson et al. „P-88: Stabilization of Thin Crystal Film Polarizers for LCD’s“. In: *SID Symposium Digest of Technical Papers* 35.1 (2004), S. 590–593.
- [19] M. Paukshto et al. „Optics of sheared liquid-crystal polarizer based on aqueous dispersion of dichroic-dye nano-aggregates“. In: *Journal of the Society for Information Display* 13.9 (2005), S. 765–772.
- [20] *Coating Material Product Specification MIC: Z1015 -H.124.080.010.F Lot: 0177 Version: 1.2*. Kontrakt Technology Ltd., 2009.
- [21] Y. Bobrov et al. „47.4: Lyotropic Thin Film Polarizers“. In: *SID Symposium Digest of Technical Papers* 31.1 (Mai 2000), S. 1102–1105.
- [22] Y. Ukai et al. „38.1: Invited Paper: Current Status and Future Prospect of In-Cell Polarizer Technology“. In: *SID Symposium Digest of Technical Papers* 35.1 (Mai 2004), S. 1170–1173.
- [23] J.-D. Wörner, J. Schneider und A. Fink. *Glasbau: Grundlagen, Berechnung, Konstruktion*. Berlin: Springer, 2001.
- [24] K. Wasa, M. Kitabatake und H. Adachi. *Thin film materials technology*. Norwich, NY: Andrew, 2004.
- [25] H. L. Hartnagel et al. *Semiconducting transparent thin films*. Bristol: Institute of Physics Publishing, 1995.
- [26] H. Oertel jr., M. Böhle und U. Dohrmann. *Strömungsmechanik : Grundlagen - Grundgleichungen - Lösungsmethoden - Softwarebeispiele*. 5., überarbeitete und erweiterte Auflage. Wiesbaden: Vieweg Teubner Verlag / GWV Fachverlage GmbH, 2009.
- [27] *DIN EN ISO 80000-4:2012-10 (Entwurf), Größen und Einheiten – Teil 4: Mechanik*. Berlin: Beuth Verlag, März 2013.
- [28] D. Meschede. *Gerthsen Physik*. 24. Auflage. Heidelberg: Springer, 2010.
- [29] S. F. Kistler. *Liquid film coating : Scientific principles and their technological implications*. 1. ed. London: Chapman & Hall, 1997.
- [30] I. N. Bronstein et al. *Taschenbuch der Mathematik*. Nachdruck der 5. Auflage. Thun/Frankfurt am Main: Harri Deutsch, 2001.
- [31] J. Zierep. *Grundzüge der Strömungslehre : Grundlagen, Statik und Dynamik der Fluide*. 8., überarbeitete und erweiterte Auflage. Wiesbaden: Vieweg Teubner Verlag / Springer Fachmedien Wiesbaden GmbH, 2010.
- [32] *Unterlagen zum Hochschulkurs Beschichtung & Trocknung von dünnen Schichten*. Karlsruhe: Institut für Thermische Verfahrenstechnik, Karlsruher Institut für Technologie, Nov. 2012.

- [33] F. Durst, R. Haas und H. Raszillier. „Stabilität von Filmen in der Fließler-Filmbeschichtung Teil 1“. In: *Coating* 22.12 (1989), S. 434–439.
- [34] F. Durst, R. Haas und H. Raszillier. „Stabilität von Filmen in der Fließler-Filmbeschichtung Teil 2“. In: *Coating* 23.1 (1990), S. 6–10.
- [35] F. Durst, R. Haas und H. Raszillier. „Stabilität von Filmen in der Fließler-Filmbeschichtung Teil 3“. In: *Coating* 23.2 (1990), S. 52–54.
- [36] N. Dongari, R. Sambasivam und F. Durst. „Slot coaters operating in their bead mode“. In: *Coating international : Anlagen und Verfahren zur Beschichtung und Veredelung* 42.12 (2007), S. 10–15.
- [37] K. J. Ruschak. „Coating Flows“. In: *Annual Review of Fluid Mechanics* 17.1 (1985), S. 65–89.
- [38] F. Durst et al. „Numerische Simulation zweidimensionaler Schlitzdüsenströmungen bei der Fließlerbeschichtung“. In: *Coating* 24.2, 3, 7, 10 (1991), S. 52–54, 90–92, 259–263, 360–366.
- [39] W. Haase. „Adaptive Strahlungstransmission von Verglasungen mit Flüssigkristallen“. Diss. Universität Stuttgart, 2004.
- [40] *Rohstoffpreismonitor Oktober 2013*. Techn. Ber. Berlin: Deutsche Rohstoffagentur, Okt. 2013.
- [41] E. Kurz und L. Rau. „Twisted Nematic Liquid Crystal Display with Aluminum Zinc Oxide Electrode“. In: *37th Topical Meeting on Liquid Crystals*. Hrsg. von F. Gießelmann. Deutsche Flüssigkristallgesellschaft, 2009.
- [42] B.-Y. Oh et al. „Transparent conductive Al-doped ZnO films for liquid crystal displays“. In: *Journal of Applied Physics* 99.12 (2006), S. 124505.
- [43] S. Ata. „Optimierung von Aluminiumzinkoxid-Schichten für Flüssigkristallzellen“. Studienarbeit. Lehrstuhl für Bildschirmtechnik, Universität Stuttgart, 2010.
- [44] P. Schalberger. „Komplementäre Niedertemperatur-Polysiliziumschaltungen für vollintegrierte Aktiv Matrix Anzeigen mit organischen Leuchtdioden“. Diss. Universität Stuttgart, 2012.
- [45] S. Föste et al. *Abschlussbericht zum Vorhaben Hocheffiziente Flachkollektoren mit selektiv beschichteten Zweischeibenverglasungen*. Hameln/Emmerthal: Institut für Solarenergieforschung GmbH, Dez. 2013.
- [46] *Corning EAGLE XG Display Grade Glass Substrates Product Information PIE 301*. Corning: Corning Display Technologies, März 2006.
- [47] *Bedienungsanleitung zu 1-LAYER SCHLITZDÜSE 150mm AAA, TSE Projekt #267*. Murgenthal: TSE Troller AG, Dez. 2012.
- [48] *Betriebsanleitung für Mikro Zahnringpumpen m zr-2542, m zr-2942*. Parchim: HNP Mikrosysteme GmbH, Aug. 2011.
- [49] D. Schmidt, Ü. Acikel und M. Gillert. *Projektbericht Nr. 1: Möglichkeit des Einsatzes einer Schlitzdüse zur Beschichtung von flächigen Substraten für LFB* Universität Stuttgart. Erlangen: FMP Technology GmbH, Apr. 2010.

- [50] A. Y. Malkin und A. I. Isayev. *Rheology: Concepts, Methods, & Applications*. Toronto: ChemTec Publishing, 2006.
- [51] F. Schaschek. „Untersuchung von lyotropem Flüssigkristall als Polarisator für Flüssigkristallzellen“. Studienarbeit. Lehrstuhl für Bildschirmtechnik, Universität Stuttgart, 2010.
- [52] W. Haase et al. „Flüssigkristallbasierte Verglasung zur Regelung des Licht- und Energieeintrags in Gebäude“. In: *Glasbau 2014*. Hrsg. von B. Weller und S. Tasche. Berlin: Wilhelm Ernst & Sohn, 2014, S. 337–347.
- [53] N. Frühauf. *Persönliche Mitteilung*. 2009.
- [54] W. Haase. *Persönliche Mitteilung*. 2009.
- [55] T. Ueki. „Requirements for Large Size and High Resolution TFT-LCDs“. In: *Journal of the Society for Information Display* 9.3 (2001), S. 151–154.
- [56] H. Kamiya et al. „Development of One Drop Fill Technology for AM-LCDs“. In: *SID Symposium Digest of Technical Papers* 32.1 (2001), S. 1354–1357.
- [57] A. Hirai et al. „One Drop Filling for Liquid Crystal Display Panel Produced from Larger-sized Mother Glass“. In: *Hitachi Review* 57.3 (2008), S. 144–148.
- [58] T. Ishihara, S. Hisamitsu und H. Furukawa. „Verfahren zur Herstellung einer Flüssigkristallanzeige“. DE 43 04 900 A 1 (Osaka). Aug. 1993.
- [59] N. Oshima, S. Hisamitsu und H. Komon. „Production of liquid crystal display element“. S63-179323 (Osaka). Juli 1988.
- [60] S. H. Chen et al. „P-170: Advanced Photo Spacer Technology for Large-sized TFT-LCD“. In: *SID Symposium Digest of Technical Papers* 36.1 (2005), S. 539–541.
- [61] L. Rau. *Persönliche Mitteilung*. 2011.
- [62] *Schaltbare Verglasung auf der Basis von lyotropen und nematischen Flüssigkristallen, 5. Forschungsbericht*. Stuttgart: Institut für Leichtbau Entwerfen und Konstruieren/Institut für Großflächige Mikroelektronik, Universität Stuttgart, 2012.
- [63] E. D. Cohen und E. B. Guthoff. *Modern coating and drying technology*. Weinheim: VCH Verlagsgesellschaft, 1992.
- [64] D. Satas und A. A. Tracton. *Coatings Technology Handbook*. 2. ed., rev. and expanded. New York: Marcel Dekker, 2001.
- [65] A. A. Tracton. *Coatings technology: fundamentals, testing, and processing techniques*. Boca Raton, FL [u.a.]: CRC Press, 2007.
- [66] O. W. Grant und D. Satas. „Other knife and roll coaters“. In: *Web processing and converting technology and equipment*. Hrsg. von D. Satas. New York: Van Nostrand Reinhold Company, 1984, S. 60–80.
- [67] K. J. Ruschak. „Limiting flow in a pre-metered coating device“. In: *Chemical Engineering Science* 31.11 (1976), S. 1057–1060.

Abbildungsverzeichnis

2.1. Idealisierte Form anisotrop absorbierender Moleküle bei O-Typ- und E-Typ-Polarisator	18
2.2. Reiberichtung und Vorverkipfungswinkel ϑ	21
2.3. Benzolringverteilung an der Oberfläche einer Polyimidschicht nach [15]	22
2.4. Molekülstruktur eines typischen stabförmigen Flüssigkristallmoleküls	22
2.5. Typischer Aufbau einer VN-Zelle im Querschnitt (vgl. [16])	23
2.6. Funktionsprinzip einer transmissiven VN-Zelle	24
2.7. Blau absorbierendes LFK-Farbmolekül	27
2.8. Violett absorbierendes LFK-Farbmolekül	27
2.9. Orange absorbierendes LFK-Farbmolekül	28
2.10. LLC-Supramolekül	28
2.11. Schema des Kathodenzerstäubungsprinzips	30
2.12. Definition der Schubspannung τ und Geschwindigkeitsverteilung der Couette-Strömung [26]	33
2.13. Geschwindigkeitsverteilung der Poiseuille-Strömung [26]	37
2.14. Fluidphasen 1 und 2 mit Grenzfläche Φ	38
2.15. Grundprinzip der Schlitzdüsenbeschichtung (vgl. [29, 33])	43
2.16. Benetzungsverhältnisse an der Schlitzdüse im Querschnitt nach [36]	44
2.17. Geschwindigkeitsverteilung bei Überlagerung von Poiseuille- und Couette-Strömung (vgl. [31])	45
3.1. Modifizierter Aufbau einer VN-Zelle im Querschnitt	52
4.1. Spezifischer Widerstand von AZO-Schichten in Abhängigkeit von der Nachbehandlungstemperatur	56
4.2. Transparenz von AZO-Schichten in Abhängigkeit von der Nachbehandlungstemperatur	57
4.3. Transmission von AZO-Schichten in Abhängigkeit von der Wellenlänge bei unterschiedlicher Nachbehandlungstemperatur	58
4.4. Transmission von AZO-Schichten in Abhängigkeit der Wellenlänge nach thermischer Behandlung im RTA-Ofen bei unterschiedlicher Atmosphäre	60
4.5. Transmission einer 100 nm dicken AZO-Schicht in Abhängigkeit der Wellenlänge bei Laserkristallisation mit Excimer-Laser	61
4.6. Transmission von AZO-Schichten unterschiedlicher Schichtdicke in Abhängigkeit der Wellenlänge nach einer thermischen Behandlung bei 240 °C bei Raumluft	62



4.7.	AZO-beschichtetes Substrat nach LFK-Beschichtung	63
5.1.	Druckbild eines 6,5 cm breiten LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Flexodruckverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht	68
5.2.	Beschichtungsbild eines 15 cm breiten LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren bei geringer Auftragsgeschwindigkeit, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht	69
5.3.	Vergrößerter Ausschnitt des Beschichtungsbilds aus Abbildung 5.2, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht, Auftragsrichtung 45° zur Polarisationsrichtung des Durchlichts orientiert	69
5.4.	Beschichtungsbild eines ca. 4 cm breiten LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Spiralrakelbeschichtungsverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht	70
5.5.	Beschichtungsbild eines ca. 4 cm breiten, dicken LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Spiralrakelbeschichtungsverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht	70
5.6.	Beschichtungsbild des Anfahrbereichs (ca. 5 cm breiter Ausschnitt) eines LFK-Schichtauftrags, hergestellt im Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren, durchleuchtet von linear polarisiertem Licht	71
5.7.	LFK-beschichtetes Substrat mit freigehaltenem Rand	73
5.8.	Schema des LFK-Auftragssystems	74
5.9.	Aufnahmen der Schlitzdüse	75
5.10.	Aufnahme eines Substrats mit Meniskusabriss	77
5.11.	Druckbild eines LFK-Polarisators, hergestellt im Schlitzdüsenbeschichtungsverfahren	79
5.12.	Trockenschichtdicken stabiler Beschichtungen, abhängig vom Düsenabstand	80
5.13.	Trockenschichtdicken stabiler Beschichtungen, abhängig von der Auftragsgeschwindigkeit v_s	80
5.14.	Viskosität in Abhängigkeit von der Schergeschwindigkeit nach Messungen der Firma FMP Technology GmbH [49]	82
5.15.	Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Pumpendrehzahl bei stabilen Beschichtungsvorgängen, Schlitzweite als Parameter	85
5.16.	Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Pumpendrehzahl bei stabilen Beschichtungen, Schlitzweite $w = 100 \mu\text{m}$, Düsenabstand als Parameter	86
5.17.	Low-Flow-Limit-Betrachtung der Kapillarzahlen stabiler Beschichtungsvorgänge in Abhängigkeit vom normierten Düsenabstand d^* , Nassschichtdicke aus gemessener Trockenschichtdicke berechnet	87
5.18.	Low-Flow-Limit-Betrachtung der Kapillarzahlen stabiler und instabiler Beschichtungsvorgänge in Abhängigkeit vom normierten Düsenabstand d^* , Nassschichtdicke aus vorgegebenem Volumenstrom berechnet	88
5.19.	Stabilitätsgrenzen der Nassschichtdicke in Abhängigkeit von der Auftragsgeschwindigkeit, $d = 100 \mu\text{m}$	90
5.20.	Stabilitätsgrenzen der Nassschichtdicke in Abhängigkeit von der Auftragsgeschwindigkeit, $d = 45 \mu\text{m}$	91



5.21. Abhängigkeit des volumetrischen Wirkungsgrads von der Pumpendrehzahl bei stabilen Beschichtungsvorgängen mit verdünnter LFK-Tinte, Düsenabstand als Parameter	93
5.22. Low-Flow-Limit-Betrachtung der Kapillarzahlen stabiler Beschichtungsvorgänge verdünnter LFK-Tinte in Abhängigkeit vom normierten Düsenabstand d^*	94
5.23. Low-Flow-Limit-Betrachtung der Kapillarzahlen stabiler und instabiler Beschichtungsvorgänge verdünnter LFK-Tinte in Abhängigkeit vom normierten Düsenabstand d^* , Nassschichtdicke aus vorgegebenem Volumenstrom berechnet	95
5.24. Aufnahme eines Substrats mit streifenweiser LFK-Ablösung	96
6.1. Flüssigkristallzelle mit PI-Orientierungsschicht und mit LFK-Orientierungsschicht	101
6.2. Flüssigkristallzelle mit LFK-Polarisator als Orientierungsschicht, Reiberichtung parallel zur Beschichtungsrichtung, Spannung U an die Elektroden angelegt .	102
6.3. Flüssigkristallzelle mit LFK-Polarisator als Orientierungsschicht, Reiberichtung quer zur Beschichtungsrichtung	102
7.1. Klassisches Füllverfahren	106
7.2. Klassisches Füllverfahren, Schema im Querschnitt	109
7.3. Schemata des abrollenden Füllverfahrens	112
7.4. Sequenz des Füllvorgangs beim Abrollfüllverfahren aus eigener Filmaufnahme	113
7.5. 15 cm × 15 cm-Zelle im Abrollverfahren gefüllt	113
7.6. Grundprinzip des ODF-Verfahrens	115
7.7. Relative Abweichung der TFK-Schichtdicke in Abhängigkeit der Spacerdicke bei verschiedenen nominellen Schichtdicken	117
7.8. Substrat-Verpressung mit doppelt gebogenen Substraten beim ODF-Verfahren, Auflagerlinien rot	120
7.9. Schematische Darstellung des ODF-Verfahrens in Vakuumiergerät, Flüssigkristallzelle in Kunststoffbeutel	121
7.10. Im ODF-Verfahren im Kunststoffbeutel hergestellte Flüssigkristallzelle mit Lufteinschlüssen, Aufnahme mit gekreuzten Polarisatoren	122
7.11. Im ODF-Verfahren im Kunststoffbeutel hergestellte Flüssigkristallzelle mit geringen Lufteinschlüssen, Aufnahme mit gekreuzten Polarisatoren	123
8.1. Im ODF-Verfahren im Kunststoffbeutel hergestellte Flüssigkristallzelle mit LFK-Polarisator als Orientierungsschicht	125



Tabellenverzeichnis

4.1. Spezifischer Widerstand bei Temperaturnachbehandlung mit 350 °C im RTA-Ofen nach [43] bei einer Dauer von 1 min	59
4.2. Spezifischer Widerstand einer nominell 100 nm dicken AZO-Schicht bei Beschuss mit Excimer-Laser unter Luftatmosphäre	61
7.1. Evakuierungsdauer durch Diffusionsprozess in s in Abhängigkeit vom Zellabstand	109
7.2. Fülldauer in s in Abhängigkeit vom Zellabstand	111
7.3. Lufteinschlussfläche in cm ² in Abhängigkeit vom Vakuumdruck bei 9 µm Zellabstand und 18 µm Klebstoffrahmenhöhe	119





