

Polungs- und Biegeverhalten von $\text{Ba}(\text{Ti},\text{Sn})\text{O}_3$ - Keramiken mit einem Funktionsgradienten

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades
doktor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

vorgelegt der

Mathematisch-Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät der
Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

von Azamat Kuvatov
geb. am 28.10.1973 in Ufa

Gutachterin / Gutachter:

1. Prof.Dr. Horst Beige, Halle
2. Dr. Marc Kamlah, Karlsruhe

Halle(Saale), 10.01.2005

urn:nbn:de:gbv:3-000008387

[<http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=nbn%3Ade%3Agbv%3A3-000008387>]

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	
Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen	V
Einführung	1
1 Grundlagen	3
1.1 Ferroelektrizität	3
1.1.1 Polarisierung, Elektrostriktion	3
1.1.2 Die Kristallstruktur von Ferroelektrika	3
1.1.3 Hysterese- und Dehnungskurve	4
1.1.4 Piezoelektrische Grundgleichungen	5
1.2 Einfluss des Zinngehalts auf die Eigenschaften der BaTi _(1-x) Sn _x O ₃ Keramik	6
1.3 Anwendung ferroelektrischer Keramiken	8
1.3.1 Nutzung des direkten oder inversen Piezoeffektes	8
1.3.2 Biegeaktuatoren	9
1.4 Materialien mit einem Gradient der funktionalen Eigenschaften	10
1.4.1 FGM - Functional Gradient Materials	10
1.4.2 BaTi _(1-x) Sn _x O ₃ Keramik mit einem Gradient des Zinngehalts	11
1.5 Herstellung ferroelektrischer Keramiken	12
1.5.1 Mischoxidverfahren	12
1.5.2 Polungsprozess der Ferroelektrika	14
1.5.3 Herstellung der BaTi _(1-x) Sn _x O ₃ Keramik mit einem Gradient des Zinngehalts	14
1.6 Experimentelle Methoden	15
1.6.1 Bestimmung der Biegeauslenkung	15
1.6.2 Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der Keramik	16
1.6.3 Bestimmung der Dielektrizitätskonstante	17
1.6.4 Ferroelektrische Hysteresekurve	17
1.6.5 Bestimmung der piezoelektrischen Koeffizienten	17
1.6.6 Mikrodehnungsmeßplatz	18
1.6.7 Numerische Modellierung mit Finite-Elemente-Methode	19

2	Das Polungsverhalten von Gradientenmaterialien	21
2.1	Die Polarisierung in inhomogenen Ferroelektrika	21
2.2	Modellierung des Polungsverhaltens von Gradientenmaterialien	23
2.3	Mehrschichtstrukturen	25
2.3.1	Elektrisch verbundene, geklebte und monolithische Mehrschichtstrukturen	25
2.3.2	Zinnverteilung in den untersuchten Systemen	27
2.4	Vergleich zwischen Modellierung und Experiment	29
2.4.1	Polungsverhalten von Proben mit niedrigem Zinngehalt	29
2.4.2	Polungsverhalten von Proben mit höherem Zinngehalt	32
2.5	Modellierung der Dehnungskurve von Mehrschichtsystemen	34
2.5.1	Dehnung S_3 als Funktion der Polarisierung	34
2.5.2	Modellierung der Dehnungskurve	35
2.6	Bestimmung des Polungsgrades mit Hilfe der Modellierung des Polungsverhaltens	39
2.7	Einfluss der Polungsrichtung auf das Polungsverhalten von $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ basierten Mehrschichtsysteme	41
2.8	Feldabhängigkeit des Polungsverhaltens des auf $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ basierten Mehrschichtsystems	43
2.9	Polungsverhalten der Mehrschichtsysteme unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit	46
2.9.1	Modellierung des Polungsverhaltens von Mehrschichtsystemen unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit	46
2.9.2	Messung der Feldstärkeverteilung beim Polen mit Gleichfeld	48
3	Biegeverhalten von Gradientenmaterialien	51
3.1	Verteilung des elektrischen Feldes in seriell verbundenen Ferroelektrika bei niedrigen elektrischen Spannungen	51
3.2	Biegeaktuatoren mit Mehrschichtstruktur	53
3.2.1	Beschreibung der Modellstruktur	53
3.2.2	Grundlagen der Biegetheorie	54
3.2.3	Biegeradius und Auslenkung	57
3.2.4	Die mechanische Spannung im Aktuator während der Biegung	58
3.3	Analytische und numerische Untersuchung des Biegeverhaltens von Aktuatoren	59
3.3.1	Berechnung der Auslenkung	60
3.3.2	Verteilung der mechanischen Spannung	61
3.3.3	Maximale mechanische Spannung	62
3.4	Aktuatoren mit nichtlinearer, kontinuierlicher Verteilung des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31}	65
3.5	Analytische Analyse des Einflusses der dielektrischen Eigenschaften auf das Biegeverhalten	67
3.6	Geklebte Aktuatoren aus BaTiO_3 -Keramik	69
3.6.1	Die Struktur von Aktuatoren aus BaTiO_3 -Keramik	69

3.6.2	Biegeverhalten von Aktuatoren aus BaTiO ₃	71
3.6.3	Vergleich zwischen Experiment und Modellierung	71
3.7	Monolithische Aktuatoren aus BaTi _(1-x) Sn _x O ₃ -Keramik	73
3.7.1	Die Struktur von monolithischen Aktuatoren aus BaTi _(1-x) Sn _x O ₃ - Keramik	73
3.7.2	Besonderheiten in der Biegetheorie für Aktuatoren mit unidirek- tionalem Gradient der Eigenschaften	75
3.7.3	Biegeverhalten von Aktuatoren mit niedrigem Zinngehalt	76
3.7.4	Biegeverhalten von Aktuatoren mit höherem Zinngehalt	80
3.7.5	Vergleich des Biegeverhaltens von Aktuatoren mit verschiedener Verteilung der Eigenschaften	85
4	Optimierung und Ausblick	87
4.1	Einfluss der Polungsfeldstärke auf das Biegeverhalten von monolithischen Aktuatoren	87
4.2	Einfluss der Polungszeit auf das Biegeverhalten	88
4.3	Elektrische Zyklierung	89
	Zusammenfassung	91

Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen

A	Fläche
BT	BaTiO ₃
BTSx	BaTi _(1-x) Sn _x O ₃
c_{mj}	Elastische Steifigkeit
D	Elektrische Verschiebung
$d_{in}, e_{mn}, g_{ji}, h_{ik}$	Piezoelektrischen Koeffizienten
E_i	Elektrische Feldstärke
E_{ber}	berechnete Polungsfeldstärke
E_{pol}	Polungsfeldstärke
\overline{E}	Mittelwert der Feldstärke
FEM	Finite-Elemente-Methode
J	Elektrischer Strom
$h^{(i)}$	Schichtdicke
h	Dicke der Probe
L	Länge der Probe
N	Anzahl der Schichten
P_i	Polarisation
R	Biegeradien
S_i	Mechanische Dehnung
S_1^{bieg}	Biegedehnung
$\overline{S_1}$	mittlere Dehnung
s_{ij}	Elastische Nachgiebigkeit
T_i	Mechanische Spannung
U	Elektrische Spannung
w	Breite der Probe
w	Kreisfrequenz
WDX-EPMA	Wavelength Dispersive Electron Probe Micro-Analysis
Y_p	Youngscher Modul
β_{ji}	Dielektrische Suszeptibilität
δ	Auslenkung
ε_{ij}	Dielektrizitätskonstante
σ	Leitfähigkeit
φ	Winkel
B-1	BTS(0-2.5)
T-1	BTS(2.5-0-7.5)
B-2	BTS(7.5-15)
T-2	BTS(7.5-12.5-15)
V-2	BTS(7.5-10-12.5-15)

Einführung

Keramische piezoelektrische Werkstoffe sind polykristalline Materialien, die aus einer großen Anzahl kleiner Kristallite bestehen [3]. Dank ihrer einzigartigen piezoelektrischen und ferroelektrischen Eigenschaften [1], [2] haben diese Werkstoffe große wirtschaftliche Bedeutung erlangt und werden in vielen Bereichen der Technik angewendet. Die Hauptvorteile der keramischen Werkstoffe sind hohe piezoelektrische Eigenschaften, die Stabilität gegen Lösungsmittel, billige Herstellung und die Möglichkeit bei der Herstellung beliebige Formen zu realisieren.

Es wurde viele Bauteile und Geräte wie z.B. Schall-, Ultraschallgeber oder Aktuatoren entwickelt, die direkt oder indirekt die Eigenschaften von keramischen piezoelektrischen Werkstoffen verwenden [4]. Die Konstruktion von piezoelektrischen Bauteile hängt von der Anwendung ab. Oft, wenn es um große Auslenkungen geht, werden die so genannten **Biegeaktuatoren** verwendet.

In dieser Arbeit wird das Verhalten von Biegeaktuatoren aus piezoelektrischer Keramik beschrieben. Die klassischen Biegeaktuatoren haben eine Mehrschichtstruktur und bestehen aus zusammengeklebten Schichten [5] mit unterschiedlichen dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften (s. Abb. 1, (a)). Beim Anlegen eines elektrischen Feldes an den Aktuator führen die kleinen Änderungen der Abmessungen der Schichten durch den inversiven Piezoeffekt zu einer großen Biegung des gesamten Aktuators. Während der Biegung wird die mechanische Spannung im Aktuator stark ansteigen, weil eine Seite jeder Schicht sich verkürzt, die andere Seite sich jedoch gleichzeitig verlängert. Durch die hohe mechanische Spannung können Risse in den Schichten entstehen oder die Schichten können sich ablösen. Das verkürzt die Lebenszeit und verschlechtert die Zuverlässigkeit des Biegeaktuators.

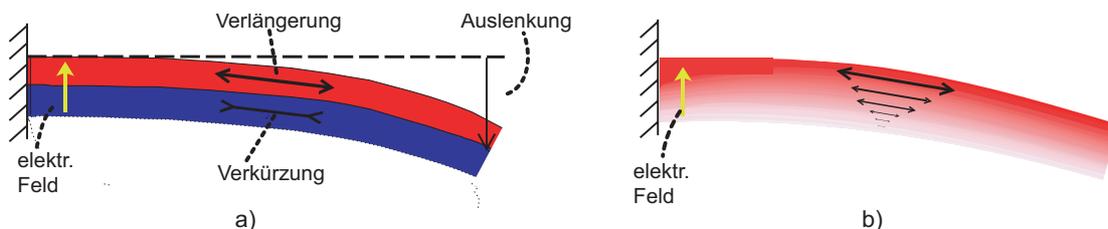


Abbildung 1: Graphische Darstellung eines klassischen piezoelektrischen Biegeaktuators (a) und Biegeaktuators aus Gradientenmaterialien (b) unter dem Einfluss eines elektrischen Feldes

Eine Möglichkeit zur Verlängerung der Lebenszeit und Verbesserung der Zuverlässigkeit von Biegeaktuatoren besteht in der Anwendung keramischer **Materialien mit einem Funktionsgradienten** (engl. Functionally graded materials - **FGM**) [6], [7], [68]. Gradientenmaterialien sind in unserem Fall monolithische keramische Werkstoffe mit in einer oder mehreren Richtungen veränderten Eigenschaften. Die in dieser Arbeit untersuchten Keramiken haben einen eindimensionalen Gradient der piezoelektrischen, dielektrischen und elastischen Eigenschaften in Richtung der Probendicke (s. Abb. 1, (b)).

In ungepolten keramischen Werkstoffen sind die Orientierung der Kristallite und damit die Domänen statistisch verteilt. Sie zeigen deshalb keine makroskopische Polarisation und keine piezoelektrischen Eigenschaften. Diese bekommen sie erst nach einem Polungsprozess. Das Polungsverhalten von homogenen Ferroelektrika verändert sich aber wesentlich, wenn es mit anderen Ferroelektrika oder Dielektrika elektrisch verbunden ist, da dann nicht mehr von einer homogenen Feldverteilung ausgegangen werden kann.

In dieser Arbeit haben die Biegeaktuatoren eine Mehrschichtstruktur, wo mehrere Schichten mit unterschiedlichen dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften miteinander verbunden sind. In diesem speziellen Fall **inhomogener Ferroelektrika** wurden erst in den letzten Jahren mit detaillierten experimentellen und theoretischen Untersuchungen des Polungsverhaltens begonnen. Die Theorien und Modelle für inhomogenen Dielektrika können hier nicht verwendet werden, weil dabei die Nichtlinearität der ferroelektrischen Eigenschaften und der Einfluss des piezoelektrischen Effekts nicht berücksichtigt werden. Aber die Größe und Verteilung der piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften hängen sowohl in Biegeaktuatoren mit einer Mehrschichtstruktur als auch in Gradientenmaterialien neben der chemischen Zusammensetzung auch von der Größe und Verteilung der Polungsfeldstärke ab. Auf der anderen Seite sind bis heute noch keine genauen Verfahren für die Messung des lokalen elektrischen Feldes sowie der lokalen dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften in monolithischen, inhomogenen Keramiken bekannt. Deshalb ist es unter anderem nötig, ein Modell für die Verteilung des elektrischen Feldes im keramischen Gradientenmaterialien zu entwickeln, weil ohne eine detaillierte Vorstellung über die Verteilung des Feldes während der Polung und im Betrieb eine Beschreibung der Aktuatoren aus solchen Gradientenkeramiken nicht möglich ist.

In dieser Arbeit wurden Modelle für das Polungs- und Biegeverhalten von Aktuatoren mit einem Funktionsgradienten entwickelt. Um diese Modelle zu überprüfen, wurden Proben aus piezoelektrischer Keramik mit variierender chemischer Zusammensetzung $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3 - \text{BaTi}_{(1-y)}\text{Sn}_y\text{O}_3$ hergestellt. Dieses Material wurde gewählt, da im Institut für Anorganische Chemie, AG Keramik am Fachbereich Chemie bereits reichhaltige Erfahrung mit diesem Mischkristallsystem gesammelt wurden. Ein anderer Grund ist, dass dieses Material im Unterschied zu den technisch häufig verwendeten Hochleistungskeramiken (PZT, PMN, etc.) bleifrei, d.h. umweltverträglich, ist. Das Polungsverhalten dieser Keramik wurde für verschiedene Gradienten der chemischen Zusammensetzung (x , y - Werte) sowie in Abhängigkeit von der Polungsfeldstärke, der Polungsrichtung und -dauer untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen lieferten Information über die Verteilung des elektrischen Feldes während der Polung und die piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften nach der Polung. Danach wurde das Biegeverhalten von Aktuatoren aus diesen keramischen Gradientenmaterialien unter verschiedenen Bedingungen untersucht. Dabei wurden Ergebnisse aus der Untersuchung des Polungsverhaltens verwendet. Die Modelle wurden durch den ständigen Vergleich der Ergebnisse der theoretischen Untersuchung mit experimentellen Ergebnissen überprüft und verbessert.

Kapitel 1

Grundlagen

1.1 Ferroelektrizität

1.1.1 Polarisation, Elektrostriktion

Beim Anlegen einer elektrischen Spannung an ein Material verschieben sich die elektrischen Ladungsschwerpunkte des Stoffes, wodurch im Material elektrische Dipole entstehen. Quantitativ ist dieser Effekt durch die Polarisation beschrieben, die der Dipoldichte, d.h. dem auf die Volumeneinheit bezogenen elektrischen Dipolmoment, gleich ist. Die Einheit der Polarisation im Internationalen Einheitensystem (SI) ist C/m^2 . In so genannten **dielektrischen Materialien** unterscheidet man drei verschiedene Arten der Polarisation: elektronische, ionische und Orientierungspolarisation [9], [1]. Bei der elektronischen Polarisation verschieben sich Elektronenwolke und Kern des Atoms, bei der ionischen Polarisation die Ionen und bei der Orientierungspolarisation die ionisierten Moleküle. Die ionische Polarisation spielt in Ferroelektrika die größte Rolle.

Welche Art der Polarisation der Kristall besitzt, hängt von der Kristallklasse ab. 11 von 32 Kristallklassen haben ein Symmetriezentrum und besitzen keine polaren Eigenschaften, d.h. in solchen Kristallen entstehen bei mechanischer Beanspruchung keine elektrischen Ladungen auf der Oberfläche. Ein äußeres elektrisches Feld verändert die Abmessungen dieser Kristalle, jedoch ist die hervorgerufene Dehnung unabhängig von der Feldrichtung (quadratischer Zusammenhang). Dieser Effekt wird als die Elektrostriktion bezeichnet und ist in jedem Material bekannt.

1.1.2 Die Kristallstruktur von Ferroelektrika

Von den restlichen einundzwanzig Kristallklassen ohne Symmetriezentrum sind zwanzig als **piezoelektrische Kristallklassen** bekannt und zeigen eine elektrische Polarisation beim Anlegen einer mechanischen Spannung (oder eine Änderungen der Abmessungen beim Anlegen einer elektrischen Spannung). Wiederum nur zehn Kristallklassen aus diesen zwanzig piezoelektrischen Kristallklassen haben eine polare Achse. In diesen Kristallen fallen die positiven und negativen Ladungsschwerpunkte auch ohne äußere mechanische oder elektrische Spannung nicht zusammen. Diese Kristalle werden als **polare Kristalle** bezeichnet und besitzen eine **spontane Polarisation**. Die spontane Polari-

sation einiger polarer Kristalle kann durch eine elektrische Spannung invertiert werden. Solche Kristalle haben eine oder mehrere polare Achsen und sind als **ferroelektrische Kristalle** oder einfach **Ferroelektrika** bekannt.

1.1.3 Hysterese- und Dehnungskurve

Die Abhängigkeit der Polarisierung vom elektrischen Feld hat die Form einer Hysterese. Die Abb. 1.1 zeigt die Hysterese einer reinen BaTiO₃ Keramik unterhalb der Curie-Temperatur. Bei kleinen elektrischen Feldstärken ist der Zusammenhang zwischen der

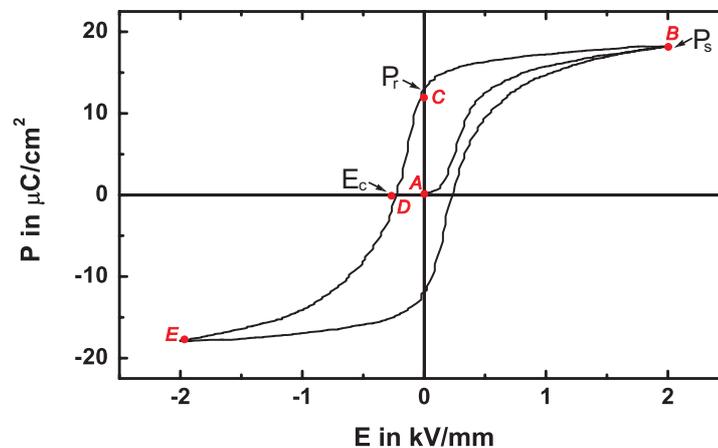


Abbildung 1.1: Die ferroelektrische Neukurve und Hysterese von BaTiO₃

Polarisation der BaTiO₃ Keramik und dem Feld linear. Mit dem Anstieg des elektrischen Feldes fängt die Polarisation schnell an zu wachsen und erreicht bei genügend großem Feld ihren Sättigungsbereich (Teil AB). In diesem Zustand orientieren sich alle Dipolmomente in Feldrichtung. Der Wert der Polarisation in diesem Bereich wird als **die Sättigungspolarisation** P_s bezeichnet und ist mit der spontanen Polarisation in der Domäne identisch. Die Keramik ist gepolt. Wird das angelegte Feld verringert, dann nimmt die Polarisation ab, aber nicht bis auf den Wert Null (Teil BC). Nach Abschalten des Feldes werden viele Dipolmomente in der Feldrichtung orientiert bleiben und die Polarisation gleich **der remanenten Polarisation** P_r sein. Der Teil AB der Kurve wird als **Neukurve** bezeichnet. Legt man ein elektrisches Feld in entgegengesetzter Richtung an, kann man die Polarisation weiter bis auf Null verringern (Teil CD). Die dazu benötigte Feldstärke wird als **Koerzitivfeldstärke** E_c bezeichnet. Bei weiterem Anstieg des elektrischen Feldes werden alle Dipolmomente in negativer Richtung orientiert (Teil DE). Die Hysterese wird komplett, wenn das Feld noch einmal in positive Richtung angelegt wird und die Keramik dadurch wieder in positiver Richtung gepolt wird (Teil EB). Die Polung der ferroelektrischen Werkstoffe führt zu einer Ausdehnung gegenüber

dem ungepolten Zustand. Die Abb. 1.2 zeigt die Abhängigkeit der Dehnung S_3 vom angelegten elektrischen Feld E_3 (Dehnungskurve) für eine reine BaTiO₃ Keramik. Die

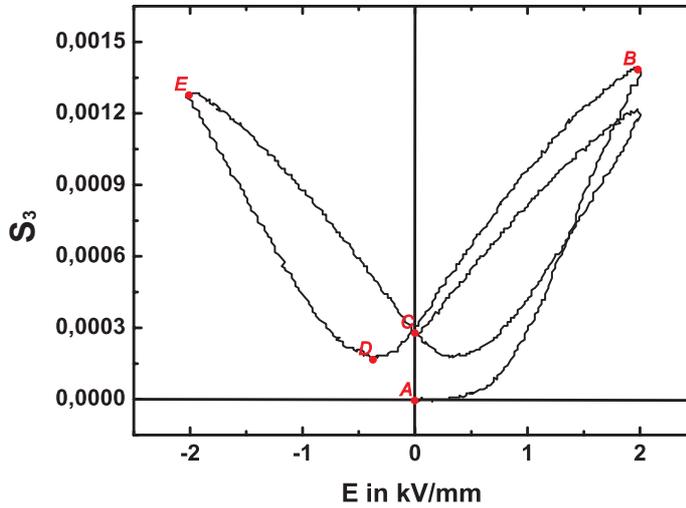


Abbildung 1.2: Dehnungskurve $S_3(E_3)$ von BaTiO₃

Bezeichnungen der Punkte auf der Dehnungshysterese entsprechen den Bezeichnungen der dielektrischen Hysterese. Die charakteristischen Punkte werden als maximale Dehnung S_{max} (B), remanente Dehnung S_r und Koerzitivfeldstärke E_C bezeichnet. Da das Volumen der Ferroelektrika in erster Näherung konstant bleibt, ergibt sich eine relative Verkürzung senkrecht zur Polungsrichtung, die ungefähr halb so groß ist wie die Dehnung in Polungsrichtung. Deshalb es ist möglich, aus der Abb. 1.2 die Abhängigkeit der relative Dehnungen S_1 und S_2 von der Polungsfeldstärke abzuschätzen.

1.1.4 Piezoelektrische Grundgleichungen

Bei der Beschreibung von Ferroelektrika, müssen die Wechselwirkungen zwischen den mechanischen und elektrischen Größen berücksichtigt werden. Diese Zusammenhänge werden mit den so genannten piezoelektrischen Grundgleichungen dargestellt [10], [11], [12]. Diese Gleichungen beschreiben die Zusammenhänge zwischen den vier physikalischen Größen mechanische Spannung \mathbf{T} , Dehnung \mathbf{S} , elektrisches Feld \mathbf{E} und dielektrische Verschiebung \mathbf{D} . In erster Näherung lassen sich diese Größen durch lineare Beziehungen beschreiben. Bei der Ableitung der piezoelektrischen Gleichungen wird ein Paar unabhängiger Variablen (eine mechanische und eine elektrische) gewählt. Je nachdem welche Größen als unabhängige Variablen benutzt werden, bekommt man die folgenden acht piezoelektrischen Grundgleichungen

$$D_i = \varepsilon_{ij}^T E_j + d_{in} T_n \quad (1.1)$$

$$D_m = \varepsilon_{mj}^S E_j + e_{mn} S_n \quad (1.2)$$

$$E_j = \beta_{ij}^T D_i - g_{jn} T_n \quad (1.3)$$

$$E_i = \beta_{ij}^S D_j - h_{ik} S_k \quad (1.4)$$

$$S_i = s_{ij}^E T_j + d_{in} E_n \quad (1.5)$$

$$S_j = s_{ij}^D T_i + g_{jn} D_n \quad (1.6)$$

$$T_m = c_{mj}^E S_j - e_{mn} E_n \quad (1.7)$$

$$T_i = c_{ij}^D S_j - h_{ik} D_k. \quad (1.8)$$

Es werden jeweils zwei Grundgleichungen benötigt, um den Zustand des Ferroelektrikums zu beschreiben, eine zur Bestimmung der mechanischen und eine für die elektrische Zustandsgröße. Die Auswahl der Zustandsgleichungen hängt von den experimentellen Bedingungen oder den Randbedingungen in der Modellierung ab. Falls nicht anders angegeben wurden in der vorliegenden Arbeit die Gl. (1.1) und (1.5) verwendet.

Aus den piezoelektrischen Grundgleichungen werden auch die Materialkoeffizienten definiert: die Dielektrizitätskonstante $\varepsilon_{ij} = \partial D_i / \partial E_j$, die dielektrische Suszeptibilität $\beta_{ji} = \partial E_j / \partial D_i$, die elastische Nachgiebigkeit $s_{ij} = \partial S_i / \partial T_j$, die elastische Steifigkeit $c_{mj} = \partial T_m / \partial S_j$ und piezoelektrischen Koeffizienten $d_{in} = \partial S_i / \partial E_n = \partial D_i / \partial T_n$, $e_{mn} = \partial D_m / \partial S_n = \partial T_m / \partial E_n$ sowie $g_{ji} = \partial E_j / \partial T_i = \partial S_j / \partial D_i$, $h_{ik} = \partial E_i / \partial S_k = \partial T_i / \partial D_k$. Der obere Index an den Koeffizienten bedeutet, dass die gekennzeichnete Größe auf einen bestimmten konstanten Wert festgelegt ist.

1.2 Einfluss des Zinngehalts auf die Eigenschaften der BaTi_(1-x)Sn_xO₃ Keramik

Für verschiedene Anwendungen werden keramische Werkstoffe mit unterschiedlichen Eigenschaften gebraucht. Die Eigenschaften der Keramiken können durch die Änderungen des Gehalts der Hauptbestandteile in der chemischen Zusammensetzung oder durch das Hinzufügen eines neuen Hauptbestandteils variiert werden. Dabei werden solche Eigenschaften wie die Kristallstruktur, die Curie-Temperatur, die spontane und remanente Polarisation, die dielektrischen, piezoelektrischen und elastischen Koeffizienten usw. geändert.

In Abb. 1.3 ist das Phasendiagramm von BaTi_(1-x)Sn_xO₃ (BTS) dargestellt [19]. Wie man sieht, ist die Kristallstruktur von BaTi_(1-x)Sn_xO₃ sowohl von der Temperatur als auch vom Zinngehalt abhängig. Mit zunehmendem Zinngehalt verringert sich die Curie-Temperatur. So ändert sich bei Raumtemperatur die Kristallstruktur mit dem Anstieg des Zinngehalts von den ferroelektrischen Phasen tetragonal, orthorhombisch und rhomboedrisch zu kubisch (paraelektrische Phase). Bei einem Zinngehalt von mehr als 15 mol% besitzt BaTi_(1-x)Sn_xO₃ Keramik keine ferroelektrischen Eigenschaften und die Abhängigkeit der Dehnung vom elektrischen Feld zeigt einen elektrostriktiven (quadratischen) Charakter. Die Abhängigkeit der makroskopischen ferroelektrischen Eigenschaften vom Zinngehalt ist in Abb. 1.4 an Hand der Veränderung der Hysteresekurven dargestellt. Der Zusatz kleiner Mengen Zinn von 2.5 mol% und 5 mol% verbessert zunächst die ferroelektrischen Parameter (orthorhombische Phase), d.h. Sättigungspo-

1.2 Einfluss des Zinngehalts auf die Eigenschaften der $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik

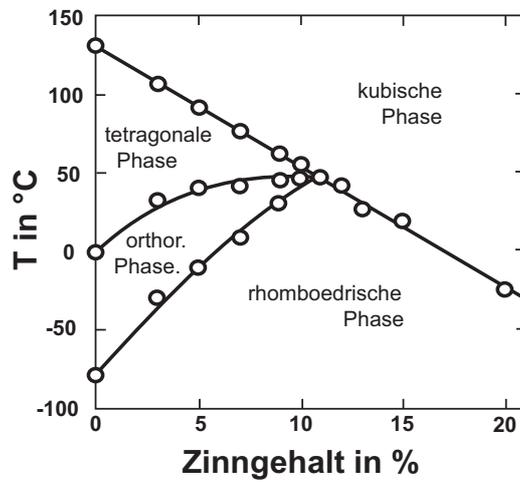


Abbildung 1.3: Phasendiagramm von $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ (orthor. - orthorhombische Phase)

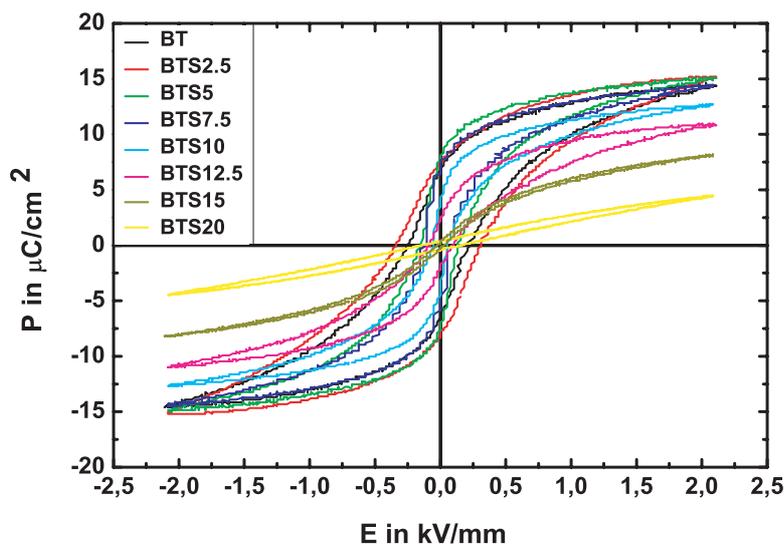


Abbildung 1.4: Hysteresekurven von $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik bei Raumtemperatur mit 10 Hz aufgenommen

larisation und remanente Polarisation nehmen leicht zu. Mit einem weiteren Anstieg des Zinngehaltes nehmen die Werte jedoch stetig ab. Ab einem Zinngehalt von 15 mol% befindet sich die $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik bei Raumtemperatur in der paraelektrischen Phase, sie besitzt deshalb keine ferroelektrische Verhältnis und damit auch keine remanente und Sättigungspolarisation Polarisation. Der höchste Wert der Polarisation wird als maximale, induzierte Polarisation bezeichnet. L_k

Die Änderungen der Kristallstruktur führen natürlich auch zu Änderungen der piezoelektrischen und dielektrischen Kleinsignaleigenschaften der Keramik [20]. Die Abb. 1.5

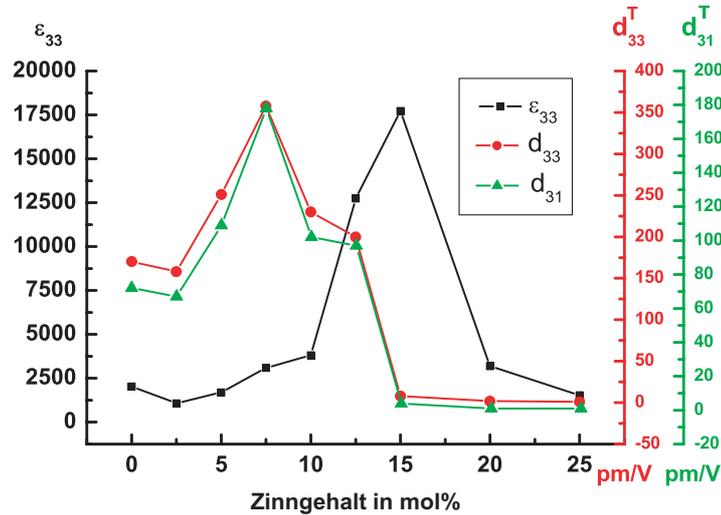


Abbildung 1.5: Abhängigkeit der Kleinsignaleigenschaften $\epsilon_{33}^T, d_{33}, d_{31}$, von $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik vom Zinngehalt

zeigt die Abhängigkeit der dielektrischen und piezoelektrischen Koeffizienten von gepolter $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik mit verschiedenem Zinngehalt bei Raumtemperatur. Sowohl die piezoelektrischen Kleinsignaleigenschaften d_{33} und d_{31} als auch die Dielektrizitätskonstante ϵ_{33}^T nehmen bei 2,5 mol% leicht ab und steigen dann mit Zunahme des Zinngehalts bis zu ihrem Maximalwert an. Bei weiterem Anstieg des Zinngehaltes verringern sich die Kleinsignaleigenschaften drastisch. Dabei hat die Dielektrizitätskonstante ihr Maximum bei 15 mol% und die piezoelektrischen Koeffizienten bei 7.5 mol%.

Die Eigenschaften der Keramik können auch bei gleicher chemischer Zusammensetzung variiert werden. Möglich ist dies beispielsweise durch eine Änderung der Korngröße oder des Polungsgrades der Keramik. Die Abhängigkeit der Eigenschaften vom Polungsgrad bzw. vom Polungsfeld wird in den Kapiteln 2 und 3 betrachtet.

1.3 Anwendung ferroelektrischer Keramiken

1.3.1 Nutzung des direkten oder inversen Piezoeffektes

Wegen solch einzigartiger Eigenschaften, wie große piezoelektrische Koeffizienten, hohe Dielektrizitätskonstante, die Möglichkeit bei der Herstellung fast jede beliebige Form zu realisieren, stabile chemische Zusammensetzung usw., finden ferroelektrische Keramiken eine sehr breite Anwendung. Zum Beispiel basieren Piezotaster, verschiedene Sensoren und Zündelemente auf dem direkten piezoelektrischen Effekt [24]. Durch diesen Effekt werden auch in Schall- und Ultraschallempfängern die akustischen Signale in elektrische

Signale umgewandelt [32]. Durch den inversen piezoelektrischen Effekt wird die elektrische Spannung in Schwingungen (Schall- und Ultraschallgeber) oder Deformationen (Aktuatoren, Motore) umgesetzt [25] - [44]. In einigen Anwendungen werden auch beide - direkte und inverse - piezoelektrischen Effekte (Schallwandler mit Sende- und Empfangsmodus) bzw. die ferroelektrischen Eigenschaften (ferroelektrische Speicher) genutzt werden.

1.3.2 Biegeaktuatoren

Im wesentlichen unterscheidet man die piezoelektrischen Aktuatoren in zwei Gruppen. Die einen verwenden den inversen piezoelektrischen Effekt direkt (einfache Zylinder, Multilayer, Torsionsaktuatoren usw.), die anderen wandeln mit Hilfe ihrer speziellen Struktur oder Geometrie den piezoelektrischen Effekt in eine höhere Auslenkung um (Unimorph, Bimorph, Multimorph, Rainbow usw.) [29], [30]. Die erste Gruppe ist zwar durch kleinere Auslenkungen, aber durch große Stellkräfte gekennzeichnet. Bei der zweiten Gruppe gehen die meist höheren Auslenkungen mit einem Verlust der verfügbaren Kräfte einher. Zur zweiten Gruppe gehören die Biegeaktuatoren oder Biegeelemente, die Gegenstand dieser Arbeit sind.

Wie bereits in der Einführung erläutert, bestehen solche Biegeaktuatoren aus Schichten mit verschiedenen piezoelektrischen Koeffizienten (s. Abb. 1) und können in verschiedenen Variationen gebaut werden. Die einfachste Variante ist der **Unimorph**, bei dem die piezoelektrische Schicht mit einer nicht piezoelektrischen, elastischen Schicht fest verbunden ist. Häufig ist die nicht piezoelektrische Schicht leitfähig und dient gleichzeitig als Elektrode. Um ein elektrisches Feld anlegen zu können, wird die andere, freie Seite der piezoelektrischen Schicht auch elektrodiert. Der **Bimorph** besteht im Gegensatz zum Unimorph aus zwei piezoelektrisch aktiven Schichten, die miteinander verklebt sind [31]. Durch diese feste Verbindung wird beim Anlegen eines elektrischen Feldes bei unterschiedlicher Ausdehnung der Schichten eine Biegung hervorgerufen. Dabei können sich die Schichten entweder in unterschiedlichen Richtungen ausdehnen bzw. zusammenziehen oder in gleicher Richtung, jedoch mit unterschiedlicher Stärke. Man unterscheidet zwischen **parallelen** und **seriellen** Biegeaktuatoren. Beim seriellen Bimorph wird die Anregungsspannung über den ganzen Aktuator angelegt. Zwischen den Schichten des parallelen Bimorphs existiert noch eine Elektrode, über die an jede Schicht die Anregungsspannung individuell angelegt wird. Besteht der Aktuator aus mehr als zwei piezoelektrisch aktiven Schichten, dann wird er als **Multimorph** bezeichnet [33].

Der Hauptnachteil von allen drei Aktuatoren sind die hohen mechanischen Spannungen, die durch die Biegung hervorgerufen werden und am stärksten in den Klebeschichten sind. [41], [42]. Die Größe der mechanischen Spannung führt zur schnellen Ermüdung des Materials, dem Entstehen von Mikrorissen und es kann am Ende zum kompletten Bruch des Aktuators oder zu elektrischen Kurzschlüssen (Durchbrüchen) kommen [43]. Dadurch werden solche für Aktuatoren wichtige Parameter wie **Lebensdauer** und **Zuverlässigkeit** begrenzt [44].

1.4 Materialien mit einem Gradient der funktionalen Eigenschaften

1.4.1 FGM - Functional Gradient Materials

Eine Methode, um die Lebenszeit von Biegeaktuatoren zu verlängern und ihre Zuverlässigkeit zu verbessern, wurden durch die Anwendung von Materialien mit einem Gradient der funktionalen Eigenschaften (FGM) gefunden [33], [38]. FGM für piezoelektrische Aktuatoren sind monolithische Keramiken mit spezieller inhomogener Struktur und Eigenschaften [39], [40]. Die Materialparameter solcher Keramiken ändern sich kontinuierlich in eine oder mehrere Richtungen innerhalb des Materials. Zum Beispiel variiert bei der in dieser Arbeit beschriebenen Keramik die chemische Zusammensetzung kontinuierlich entlang der Dicke der Probe (s. Abb. 1.6).



Abbildung 1.6: Keramische Gradientenmaterialien

Die Entwicklung der Gradientenmaterialien für Biegeaktuatoren wurde von japanischen Wissenschaftlern begonnen [49], [50]. Der Vergleich zwischen klassischen Aktuatoren und Aktuatoren aus Gradientenmaterialien zeigte, dass die mechanische Spannung in ferroelektrischen Biegern stark von der Verteilung der Eigenschaften abhängt und Risse und die Ermüdung des Materials bei klassischen Aktuatoren viel früher entstehen als bei denen aus FGM. Es wurden numerische und experimentelle Methoden entwickelt, um die mechanische Spannung in FGM abzuschätzen [51] - [53]. Weitere Untersuchungen haben bestätigt, dass die kontinuierliche Verteilung der Eigenschaften sowohl die mechanischen als auch die thermischen Spannungen im Material reduziert [54], [55], [56].

Ein anderer wichtiger Aspekt der Untersuchung der FGM ist die Bestimmung und Kontrolle des Eigenschaftsgradienten [57], [58]. Auch die Entwicklung neuer, geeigneter Gradientenmaterialien ist Gegenstand der aktuellen Forschung auf dem Gebiet der FGM [59]. Da ständig neue Anwendungen für ferroelektrische Keramiken gefunden werden, gehen die Untersuchungen und die Entwicklung der FGM weiter.

Um Gradientenmaterialien herzustellen, werden oft die für homogene Materialien entwickelten Herstellungsverfahren angewendet. Zum Beispiel können piezoelektrische Keramiken mit inhomogener chemischer Zusammensetzung mit dem Mischoxidverfahren hergestellt werden [60], [72].

Es gibt noch eine Reihe weiterer Verfahren zur Herstellung von Gradientenmaterialien [61]-[66]. Beim so genannten *Thermal Spray* [61] Verfahren werden geschmolzene Teilchen des Materials auf ein Substrat gesprüht, wo sie dann schnell erkalten [62]. Beim *Chemical Vapor Deposition* Verfahren werden die geschmolzenen Teilchen des Materials mit Hilfe eines bestimmten Gases auf das Substrat aufgebracht, wobei es teilweise zur chemischen Reaktion zwischen Teilchen und Gas kommt [63]. Ein weiteres Verfahren ist die *High Temperature Synthesis*. Hier werden die gepressten Pulver nur von einer Seite erhitzt, so dass sich ein Temperaturgradient einstellt, der wiederum zu einem Gradienten

der Eigenschaften führt [64].

Nach der Herstellung der Gradientenmaterialien werden meist mehrere Eigenschaften des Materials inhomogen, andere hingegen homogen sein. Da die elastischen und dielektrischen Eigenschaften von der chemischen Zusammensetzung abhängig sind, hat die in Abb. 1.6 dargestellte Keramik zunächst einen Gradient der elastischen und dielektrischen Koeffizienten und erst nach dem Polen wird auch der piezoelektrische Koeffizient von der Dicke abhängig. Viele Verfahren basieren auf der Umwandlung des Gradienten der chemischen Zusammensetzung in einen Gradient der piezoelektrischen Koeffizient [7], [67]-[73]. Die inhomogene Verteilung der funktionellen Eigenschaften des Materials kann z.B. durch einen Gradienten des elektrischen Widerstands bzw. einen Gradienten des Polungsfelds erreicht werden [67], [68], [70]. Das Polungsfeld in einem Material mit einem Widerstandsgradient wird in dem Bereich mit hohem Widerstand konzentriert und diesen Bereich besser polen. Ein anderes Verfahren verwendet die Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der chemischen Zusammensetzung [7], [71], [72]. Wird die Polungstemperatur so gewählt, dass ein Bereich des Gradientenmaterials während des Polens in der paraelektrischen Phase ist, so bleibt dieser piezoelektrisch inaktiv. Ein weiteres Verfahren ist das Polen mit einem Temperaturgradient, das auf der Temperaturabhängigkeit der Polungseigenschaften der Keramik basiert. In einer Keramik ohne chemischen Gradient wird in Polungsrichtung ein Temperaturgradient erzeugt. Nach dem Polen und der Stabilisierung der Temperatur besitzt die Keramik einen Gradienten der piezoelektrischen Koeffizient.

1.4.2 $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik mit einem Gradient des Zinngehalts

In der vorliegenden Arbeit wird $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ (BTS) - Keramik mit einem Gradient des Zinngehaltes untersucht. Dieses Mischkristallsystem wurde aufgrund der starken Abhängigkeit der piezoelektrischen und dielektrischen Koeffizienten vom Zinngehalt, besonders im Bereich von 0 bis 20 mol% **Sn**, gewählt. Die Zinnverteilung nach dem Sintern wurde mit der Elektronenstrahlmikroanalyse (WDS-EPMA Verfahren: Abschnitt 1.6.2) untersucht. In Abb. 1.7 ist die gemessene Verteilung von Zinn in BTS(7.5-15), BTS(7.5-12.5-15) und BTS(7.5-10-12.5-15) Keramiken dargestellt. Die Mikroanalyse der inhomogenen BTS Keramik zeigt deutlich die Bereiche mit konstantem Zinngehalt und die Übergänge zwischen diesen Bereichen. Dabei hängt die Dicke des Übergangsbereiches vom Unterschied des Zinngehalts der benachbarten Schichten ab und ist für den Bimorph gleich $300 \mu\text{m}$, für den Trimorph 150 bzw. $200 \mu\text{m}$ und für den 4-morph gleich $150 \mu\text{m}$. Eine Bestätigung für diese Abhängigkeit zeigt der Trimorph, dessen Übergänge verschiedene Dicken haben. Dabei wird der breitere Übergang zwischen den Schichten BTS12.5 und BTS7.5 beobachtet, wo der Unterschied im Zinngehalt doppelt so groß ist wie zwischen den BTS15 und BTS12.5 Schichten.

Die Zinn-Diffusion führt zu einer Verringerung der Schichtdicke. Besonders betrifft das die inneren Schichten, die an zwei Übergangsschichten angrenzen. Andererseits sind sie immer noch deutlich als Schichten erkennbar. Als Folge besteht die $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik mit einem Gradient des Zinngehalts aus Schichten mit konstantem Zinngehalt und Übergänge mit unbekanntem dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften.

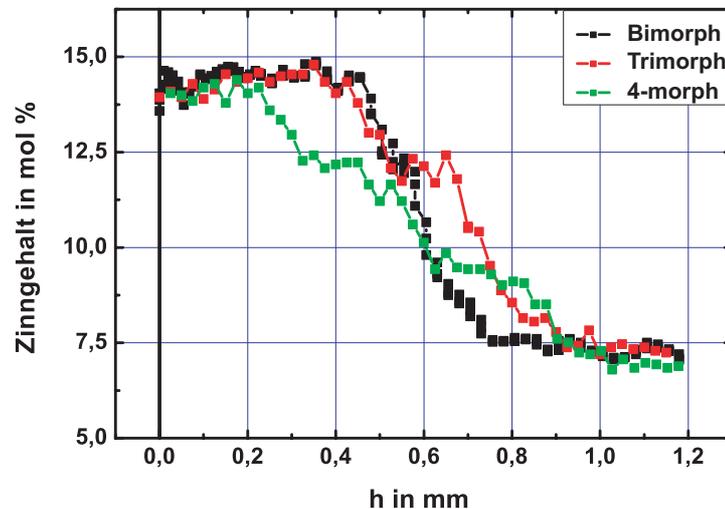


Abbildung 1.7: Die Verteilung des Zinngehalts in inhomogener BTS_x Keramik nach der Elektronenstrahlmikroanalyse (WDS)

Wenn eine solche monolithische Probe z.B. als Bimorph bezeichnet wird, bedeutet es nur, dass vor dem Sintern die Probe aus 2 Schichten bestanden hatte. Wie man in Abb. 1.7 sieht, macht der Anstieg der Anzahl der Schichten den Gradient des Zinngehalts glatter und schon beim 4-morph ist der Gradient zwischen den äußeren Schichten fast ideal.

1.5 Herstellung ferroelektrischer Keramiken

1.5.1 Mischoxidverfahren

Im den vorhergehenden theoretischen Abschnitten wurden die Eigenschaften von piezoelektrischen Keramiken und Kristallen beschrieben.

In dieser Arbeit werden Keramiken mit einem Funktionsgradienten auf der Basis des Mischsystems $BaTi_{(1-x)}Sn_xO_3$ untersucht. Deshalb beschränken sich die weiteren Abschnitte auf Herstellung und Eigenschaften dieser Keramiken.

Die Hauptbestandteile der $BaTi_{(1-x)}Sn_xO_3$ Keramik sind die zweiwertigen Ionen Ba^{+2} sowie die vierwertigen Ionen Ti^{+4} und Sn^{+4} . [13]-[18]. Die Eigenschaften der Keramik werden durch Änderungen des Zinngehalts variiert. Die Abhängigkeit der Eigenschaften vom Zinngehalt wird in einem folgenden Abschnitt besprochen. Es existieren mehrere unterschiedliche Präparationsmethoden, um das Pulver als Ausgangsmaterial für die Keramik herzustellen. Generell unterscheidet man zwischen dem klassischen Mischoxidverfahren und nasschemischen Verfahren. Jedes dieser Verfahren besitzt Vor- und Nachteile. Die Wahl hängt insbesondere von den Anforderungen an das Endprodukt ab. Die in dieser Arbeit beschriebenen $BaTi_{(x-1)}Sn_xO_3$ Keramiken wurden mit dem Mischoxidverfahren hergestellt [19].

In Abb. 1.8 ist das Mischoxidverfahren zur Herstellung von $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik schematisch dargestellt. Im ersten Schritt wird das aus BaCO_3 , TiO_2 , SnO_2 bestehende Ausgangsgemenge mit Wasser als Suspensionsmittel vermischt, zerkleinert und durch Erhöhung der Dichte aktiviert. Während des Kalzinierens des $\text{BaCO}_3/\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_2/\text{Sn}_x\text{O}_2$ Gemenges, geht der Zersetzungsprozess des BaCO_3 mit der Bildung von festem $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ und gasförmigem Kohlendioxid einher. Das beschreibt die folgende Gleichung.

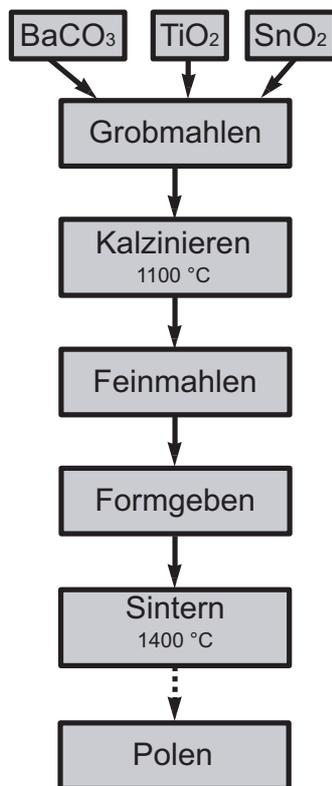
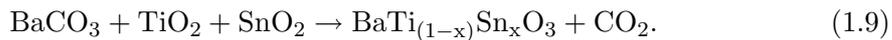


Abbildung 1.8: Herstellung von BTS Keramik

Um eine vollständige Zersetzung zu erreichen, sollte die Temperatur beim Kalzinieren ca. 1100°C betragen. Nach dem Kalzinieren besteht das $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ -Pulver aus sehr grobkörnigen Teilchenagglomeraten, die beim Feinmahlen zerkleinert werden und danach zu einem homogen granulierten Pressling gepresst werden. Als vorletzter Schritt werden die Presslinge durch eine Sinterung bei 1400°C in einen Festkörper mit kompakter polykristalliner Struktur, d. h. die endgültige Keramik, umgewandelt. Mit dem Mischoxidverfahren hergestellte Keramik hat eine Dichte, die ca. 90-95 % der theoretischen Dichte des Einkristalls entspricht. Die Abb. 1.9 zeigt ein Schlifffbild einer BaTiO_3 Keramik mit einer mittleren Korngröße von ca. $50\ \mu\text{m}$.

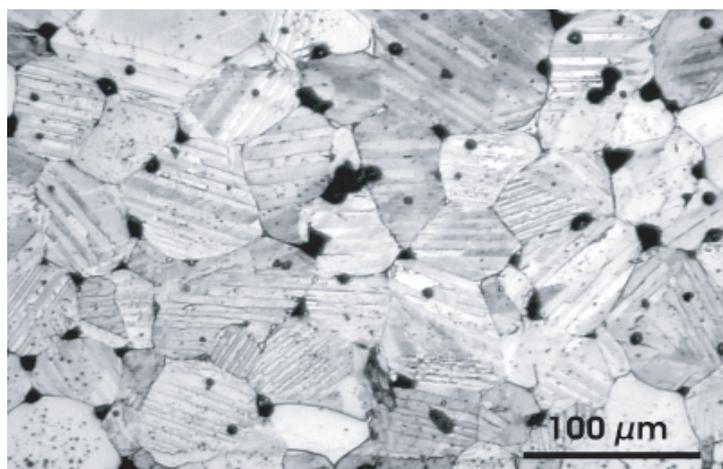


Abbildung 1.9: Schlifffbild einer mit dem Mischoxidverfahren hergestellten BaTiO_3 Keramik

1.5.2 Polungsprozess der Ferroelektrika

Nach der Sinterung ist die piezoelektrische Keramik isotrop und zeigt keinen piezoelektrischen Effekt. Deshalb wird der Polungsprozess als letzter Schritt bezeichnet, obwohl er nicht zum Mischoxidverfahren gehört.

Da ohne Elektroden an die Keramik keine elektrische Spannung angelegt werden kann, werden die Proben vor dem Polen mit Aluminiumelektroden bedeckt (Metallisierung) [21].

Nach der Metallisierung werden die ferroelektrischen Keramiken gepolt. Während der Polung wird die Orientierung der Dipolmomente der Domänen in eine bestimmte Richtung erreicht. Das Polungsfeld muss dabei höher als das Koerzitivfeld sein und darf nur in einer, positiver oder negativer, Richtung angelegt werden. Die Größe des Feldes und die Dauer der Polung hängen von der "Beweglichkeit" der ferroelektrischen Domänen ab und werden oft experimentell, z.B. durch Messung der Hysteresekurve, bestimmt [23]. BaTi_(1-x)Sn_xO₃ Keramik wird bei Raumtemperatur und mit einer Gleichspannung von 2 kV/mm nach 5 Sekunden vollständig gepolt. Der Polungsprozess wurde im Ölbad durchgeführt, um einen Funkenüberschlag auf Grund der niedrigen Durchschlagfestigkeit von Luft zu vermeiden. Der Einfluss der Polungsfeldstärke und des Polungsgrades auf die Eigenschaften der Keramik wird in dieser Arbeit diskutiert.

1.5.3 Herstellung der BaTi_(1-x)Sn_xO₃ Keramik mit einem Gradient des Zinngehalts

Zur Herstellung wurde auch das Mischoxidverfahren verwendet. Zuerst wurden Pulver mit 0, 2.5, 5, 10, 12.5, 15, 20 mol% Zinn hergestellt (s. Abb. 1.8 bis zur Stufe *Sintern*). Danach wurde jeweils eine Pulverschicht mit einem bestimmten Zinngehalt in eine Form gebracht und gepresst. Die Schichtdicke betrug zwischen 0,67 und 0,335 mm. Danach wurde die nächste Schicht mit einem anderen Zinngehalt aufgebracht und das ganze wieder gepresst. War die Gesamtanzahl der Schichten erreicht, wurde das gesamte System gesintert. Die Sintertemperatur entsprach der bei der Herstellung der homogenen Keramik und betrug 1400°C. Nach dem Sintern erhielt man eine monolithische Keramik mit einem Gradient des Zinngehalts in Richtung der Dicke. Die Dicken der einzelnen Schichten betrugen zwischen 0.59 und 0.295 mm. Der chemische Gradient kann durch die Anzahl der Pulverschichten im Grünling beeinflusst werden. Wurden zum Beispiel nur zwei Schichten verwendet, wird die Keramik als **Bimorph** bezeichnet. Die Proben, die aus drei und vier Schichten bestehen, werden **Trimorph** und **4-morph** genannt. Da die Länge der vollständigen chemischen Bezeichnung schon für einen Bimorph lang ist (z.B. BaTi_{0.925}Sn_{0.075}O₃ – BaTi_{0.85}Sn_{0.15}O₃) und mit Zunahme der Schichtzahl noch länger wird, werden bei der Bezeichnung der Schichtsysteme nur die ersten Buchstaben der chemischen Elemente (mit Ausnahme von Sauerstoff) und der Zinngehalt in mol% angegeben. Damit reduziert sich die Bezeichnung des erwähnten Bimorphs auf BTS(7.5-15). In Tabelle 1.1 sind die Bezeichnungen von einigen der untersuchten inhomogenen Keramiken angegeben.

Bimorph	Trimorph	4-morph
BTS(0-2.5)	BTS(2.5-0-7.5)	BTS(7.5-10-12.5-15)
BTS(7.5-15)	BTS(7.5-12.5-15)	BTS(0-5-10-7.5)
BTS(0-10)	BTS(0-2.5-7.5)	

Tabelle 1.1: Chemische Bezeichnungen ausgewählter inhomogener Keramiken

1.6 Experimentelle Methoden

1.6.1 Bestimmung der Biegeauslenkung

Das Biegeverhalten von Gradientenmaterialien wurde durch die Messung der Auslenkung untersucht. In Abb. 1.10 ist der Messaufbau für die Messung der Auslenkung graphisch dargestellt. Ein Ende des Aktuators ist fixiert und das andere Ende ist unter einem kapazitiven Abstandssensor positioniert. Das heißt, es wird die Auslenkung der freien Länge des Aktuators gemessen, die natürlich verändert werden kann. Das

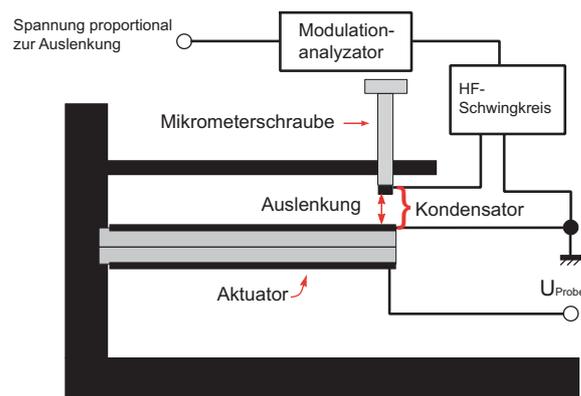


Abbildung 1.10: Graphische Darstellung der Messung der Auslenkung

Messverfahren beruht auf dem so genannten Kapazitätssondenprinzip. Die obere Seite des Aktuators dient als eine Platte des Messkondensators. Die andere Kondensatorplatte wird durch eine Mikrometerschraube möglichst dicht über dem Aktuator platziert. Dieser Messkondensator ist Teil eines Hochfrequenzschwingkreises. Wird eine Biegung des Aktuators durch die Anregungsspannung U_{Probe} erzeugt, ändert sich der Abstand zwischen den Kondensatorplatten und damit seine Kapazität und letztendlich die Frequenz des HF-Schwingkreises. Diese Frequenzänderung wird mit Hilfe eines Modulationsanalyzators HP 8910A in ein Spannungssignal umgewandelt. Das Signal wird mit einem Spannungsverstärker verstärkt und anschließend mit einem LockIn-Voltmeter gemessen. Als Ergebnis wird ein Spannungssignal proportional zur Auslenkung aufgenommen. Um dieses Verhältnis zu kalibrieren, wird die obere Kondensatorplatte mit einem Schrittmotor um einen definierten Betrag abgesenkt oder gehoben und die damit verbundene

Spannungsänderung gemessen. Dieser Betrag betrug im allgemeinen $20 \mu\text{m}$, bei einer Schrittweite des Motors von $2 \mu\text{m}$. Obwohl die Empfindlichkeit des kapazitiven Sensors sehr hoch ist, ist die Genauigkeit der Messung in erster Linie durch die Kalibrierung bestimmt und liegt bei ca. 5 %. Der Messplatz ist so gebaut, dass die Auslenkung nur bei Raumtemperatur gemessen werden kann. Um die Zerstörung des Hochfrequenzschwingkreises durch der Kurzschluss zwischen der Probe und obere Platte des Messkondenstors zu vermeiden, beträgt die maximale elektrische Spannung 500 V.

1.6.2 Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der Keramik

In dieser Arbeit wurde die Verteilung von Zinn in der $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik mit dem WDX-EPMA Verfahren bestimmt [92]-[94]. Bei diesem Verfahren werden die Proben mit Elektronen bestrahlt. Während der Bestrahlung werden Elektronen aus den inneren Schalen entfernt. Nach kurzer Zeit werden die Leerstellen von Elektronen aus weiter außen liegenden Schalen aufgefüllt. Die Energiedifferenz zwischen den beiden Schalen wird als Röntgenquant (Photon) abgegeben. Die Energie des Photons ist charakteristisch für jedes chemische Element. Die Intensität der Photonenstrahlung (Anzahl der Photonen per Zeiteinheit) ist proportional zur Konzentration dieses Elements.

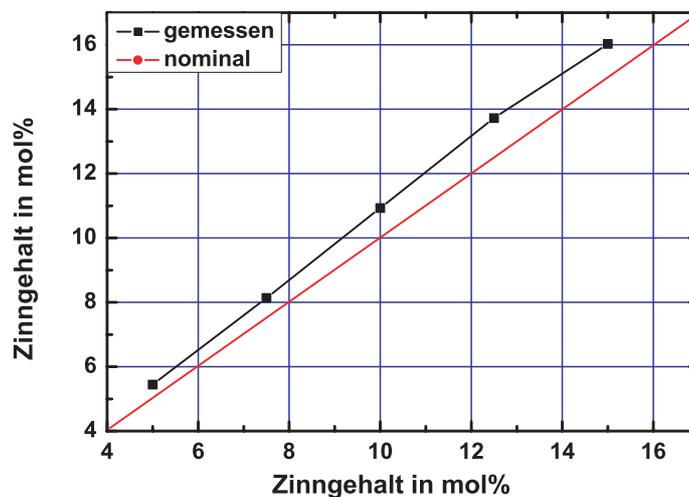


Abbildung 1.11: Der Zinngehalt von homogenen BTS_x Keramik nach Cameca CAMEBAX System

Die Messungen wurden mit dem System Cameca CAMEBAX France gemessen [95]. Wenn alle Elementen bekannt sind, wird das System die Konzentration des Elements durch Vergleich des gemessenen Signals mit einem Signal von so genannten Standards berechnet. Standards sind Materialien mit genau bekannter Konzentration ihrer Elemente. Bei dieser Untersuchung wurden dafür ein BaTiO_3 -Einkristall und metallisches Zinn verwendet.

Zuerst wurde die Konzentration des Elements Sn von einzelnen $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Proben mit verschiedenem Zinngehalt bestimmt. Da die Sn-Konzentration dieser Proben schon bekannt war, konnte damit die Messgenauigkeit überprüft werden. Es wurde beobachtet, dass die gemessene Konzentration der Elemente höher war als die nominale (s. Abb. 1.11). Deshalb wurde ein Kalibrierungsfaktor bestimmt. Die im Abschnitt 1.4.2 dargestellte Verteilung des Zinngehalts in inhomogener BTS_x Keramik wurde mit diesem Kalibrierungsfaktor korrigiert.

1.6.3 Bestimmung der Dielektrizitätskonstante

Zur Bestimmung der dielektrischen Eigenschaften eines ferroelektrischen Materials wird ein Kondensator mit diesem Material gefüllt. Nach Anlegen einer elektrischen Spannung U wird die Ladung des Kondensators im Vergleich mit Ladung des Vakuumkondensators bei konstanten U dank der Polarisierung des Materials höher. [74], [75]. Der Vergrößerungsfaktor ist als die Dielektrizitätskonstante bekannt. Da in Ferroelektrika durch die Orientierung der Dipole immer dielektrische Verluste auftreten, muss die Dielektrizitätskonstante als komplexe Zahl aufgeschrieben werden

$$\varepsilon_r^*(w) = \varepsilon'(w) + j\varepsilon''(w), \quad (1.10)$$

wobei ε' der Realteil, ε'' der Imaginärteil und w die Kreisfrequenz ist. Das Verhalten von Ferroelektrika in einem elektrischen Feld kann mit Hilfe dieser zwei Größen beschrieben werden [76], [77].

Es existieren viele Verfahren, um die dielektrischen Eigenschaften zu messen. Die Wahl des Verfahrens hängt insbesondere von folgenden Faktoren ab: Frequenz des elektrischen Feldes, Größe der Dielektrizitätskonstante und der dielektrischen Verluste sowie Form und Größe der Probe. Häufig wird bei niedrigen Frequenz ($0 - 10^7$ Hz) die *Steady-state Methode*, die Brückenmethode oder der Schwingkreis verwendet. Die *Standing-Wave-Methode* Methode wird im hohen Frequenzbereich ($10^8 - 10^{13}$) angewandt [78].

1.6.4 Ferroelektrische Hysteresekurve

Neben den genannten Kleinsignalmethoden ist die ferroelektrische Hysteresekurve d.h. die Abhängigkeit der Polarisierung \mathbf{P} von der angelegten elektrischen Feldstärke \mathbf{E} , eine wichtige Charakterisierung ferroelektrischer Materialien. Die Polarisierung ist als der Dipolmoment pro Volumeneinheit definiert. Da sich die Dipole im Inneren kompensieren, wird die makroskopische Polarisierung gleich der elektrischen Ladungsdichte auf der Oberfläche des Ferroelektrikums sein. Die Messung der Polarisierung wird häufig mit Hilfe der so genannten Sawyer-Tower Schaltung durchgeführt [79].

1.6.5 Bestimmung der piezoelektrischen Koeffizienten

Allgemein unterscheidet man Methoden für die Bestimmung der piezoelektrischen Koeffizienten, die entweder auf dem direkten oder inversen Piezoeffekt oder auch auf beiden Effekten beruhen. Bei der Verwendung des direkten Effektes wird die Oberflächenladung bei der mechanischen Belastung (Spannung) einer Probe gemessen [80].

Bei der Verwendung des inversen Piezoeffektes wird die Änderung der Probenabmessung durch eine Änderungen der elektrischen (Widerstand [81], Kapazität [82]), magnetischen (Induktivität [83]) oder optischen (Reflexion des Lichtes, Diffraction und die Interferenz des Lichtes [84]) Charakteristik des Messsystems bestimmt. Bei der piezoelektrischen Dehnung kommt es zu einer Deformation des Kristallgitters des Materials. Diese Deformation kann z.B. mit Hilfe der Röntgenstrahldiffraktometrie gemessen werden.

Bei der Untersuchung mit der so genannten Resonanzmethode werden die Eigenschwingungen der Probe mit einem elektrischen Wechselfeld [85], [86] angeregt. Auf Grund der Kopplung von direktem und inversem piezoelektrischen Effekt kommt es im Bereich der mechanischen Eigenfrequenz zu einem Maximum des Resonatorstroms. Aus dem Spektrum bestimmt man die Serienresonanzfrequenz und Parallelresonanzfrequenz für die Berechnung des piezoelektrischen Koeffizienten.

1.6.6 Mikrodehnungsmeßplatz

Die in dieser Arbeit verwendeten Hysteresekurven von Polarisierung und Dehnung sowie die piezoelektrischen und dielektrische Kleinsignalkoeffizienten wurden mit Hilfe des Mikrodehnungsmessplatzes gemessen (Abb. 1.12) [87]. Dieser Messplatz beruht auf drei Messprinzipien: Sawyer-Tower-Schaltung, Kapazitätssonde und Kompensationsprinzip [88]. Die Dielektrizitätskonstante und die Polarisierung werden mit einer modifizierten Sawyer-Tower-Schaltung gemessen [79], [89]. Für die Bestimmung verschieden großer Probenkapazitäten sind zwei unterschiedliche Kondensatoren C_s für die Sawyer-Tower-Schaltung vorgesehen.

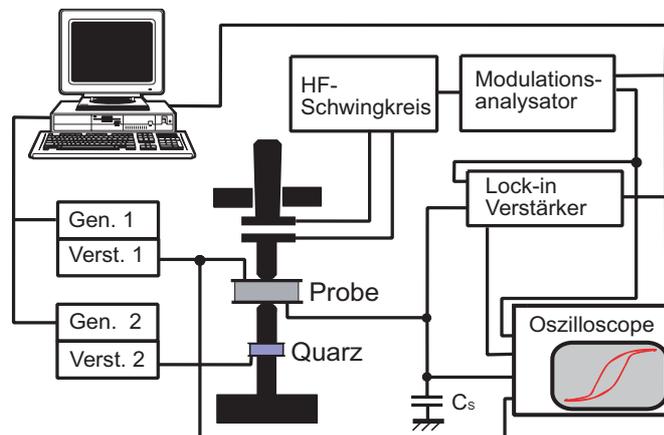


Abbildung 1.12: Schematische Darstellung des Mikrodehnungsmeßplatzes

Die Dehnung wird mittels einer Kapazitätssonde gemessen. Dafür wird die elektrodierte Probe zwischen zwei Stößeln platziert. Der obere Stößel wird durch eine 6 Punkt-Aufhängung gehalten, so dass er nur senkrecht nach oben oder unten bewegt werden kann, seitliche Bewegungen sind ausgeschlossen. An der Oberseite des Stößels

befindet sich eine Kondensatorplatte. Eine zweite Kondensatorplatte wird mit Hilfe einer Mikrometerschraube möglichst nah herangeführt. Dieser Messkondensator ist Teil eines Hochfrequenzschwingkreises, dessen Wirkungsweise bzw. der weitere Signalgang analog zur Beschreibung der Biegemessung (Abschnitt 1.6.1) ist. Zur Kalibrierung des Verhältnisses von Messspannung und Änderung der Probendicke wird eine Quarzscheibe verwendet, die mechanisch mit der Probe in Reihe geschaltet ist. Der piezoelektrische Koeffizient des Quarzes beträgt $d_{Quarz}=2,89$ pm/V und ist von der Größe der Anregungsspannung weitgehend unabhängig.

Der piezoelektrische Koeffizient (Kleinsignal) wird mit Hilfe des Kompensationsprinzips bestimmt. Dazu wird die Quarzscheibe durch einen phasengekoppelten zweiten Generator mit einer Wechselspannung der gleichen Frequenz angeregt. Nun werden Amplitude und Phase der Quarzspannung so lange variiert, bis Quarz und Probe genau gegenphasig schwingen und mit der Kapazitätssonde keine Längenänderung mehr gemessen wird. Ist die Probe so eingebaut, dass die Dehnung parallel zum angelegten elektrischen Feld gemessen wird, so ergibt sich der piezoelektrische Koeffizient d_{33} der Probe

$$d_{33,Probe} = \frac{S_{3,Probe}}{E_{3,Probe}} = \frac{U_{Quarz}}{U_{Probe}} d_{Quarz}, \quad (1.11)$$

wo U_{Quarz} die am Quarz und U_{Probe} die an der Probe angelegte Spannung ist. Wird die Probe so zwischen die beiden Stößel eingebaut, dass das elektrische Feld der Probe senkrecht zur Richtung der Dehnungsmessung anliegt, kann der piezoelektrische Koeffizient d_{31} gemessen werden. Dieser ergibt sich dann ebenfalls aus den Quarz- und Proben- spannungen U_{Quarz} , U_{Probe} sowie der Dicke h und Breite w der Probe mit Hilfe des Ausdrucks

$$d_{31,Probe} = \frac{S_{1,Probe}}{E_{3,Probe}} = \frac{U_{Quarz}}{U_{Probe}} \frac{h}{w} d_{Quarz}. \quad (1.12)$$

Bei diesem Verfahren ist die Messfrequenz durch die mechanische Eigenfrequenz des Stößels begrenzt, die bei ca. 2kHz liegt. Um Störungen auszuschließen, werden die Messungen bei Frequenzen unter 1kHz durchgeführt. Typische Messfrequenzen liegen bei ca 100 Hz. Man spricht deshalb auch von einer quasistatischen Messung. Die gesamte Messapparatur befindet sich in einem Thermostat, so dass Messungen im Temperaturbereich von -40°C bis $+100^{\circ}\text{C}$ durchgeführt werden können.

1.6.7 Numerische Modellierung mit Finite-Elemente-Methode

Die Finite-Elemente-Methode (**FEM**), ist ein numerisches Berechnungsverfahren, mit dem Spannungen und Verformungen komplexer geometrischer Strukturen berechnet werden können [96], [97], [98]. Die zu untersuchende Struktur wird in eine endliche Anzahl Elemente, daher die Bezeichnung *Finite Elemente*, unterteilt, die über Knoten miteinander verbunden sind. Für jedes dieser Elemente wird unter Berücksichtigung von Anfangs- oder Randbedingungen der physikalische Sachverhalt formuliert. Die Beschreibungen aller Elemente werden in einem Gesamtgleichungssystem zusammengefasst. Dieses wird dann mittels spezieller Methoden der numerischen Algebra gelöst.

Bei der Untersuchung der piezoelektrischen Aktuatoren wird die FEM zur 3D-Modellierung

des Biegeverhaltens verwendet. Berechnet wurden die Auslenkung der Biegeelemente sowie die Verteilung aller Komponenten der mechanischen Spannung. Ein Nachteil der Methode ist, dass sie keine analytischen Lösungen für die Abhängigkeit zwischen verschiedenen Parametern liefert, z.B. zwischen der Auslenkung und der Anzahl der Schichten. Die FEM kann nicht auch mit unendlichen Zahlen umgehen, weshalb der Gradient immer durch eine endliche Anzahl von Schichten dargestellt werden musste.

Die Modellierungen in dieser Arbeit wurden von Dr. R. Steinhausen und Dr. W. Seifert mit dem kommerziellen FEM-Programm ANSYS durchgeführt.

Kapitel 2

Das Polungsverhalten von Gradientenmaterialien

In diesem Kapitel wird das Polungsverhalten von monolithischen, inhomogenen BTS Keramiken mit Hilfe der Neukurven der einzelnen Schichten modelliert. Es werden Systeme mit großer und kleiner maximaler Polarisierung untersucht. Um die Einflüsse der mechanischen Spannung und von inneren Elektroden bzw. leitfähigen Klebeschichten auf das Polungsverhalten abzuschätzen, wurden auch die Neukurven von geklebten und elektrisch verbundenen Systemen gemessen und mit der Modellierung verglichen.

2.1 Die Polarisation in inhomogenen Ferroelektrika

Bei einem elektrischen Feld, das niedriger als die Durchbruchfeldstärke ist, kann das Polungsverhalten eines homogenen ferroelektrischen Werkstoffs gut durch zwei Parameter beschrieben werden. Das sind die Polarisation P_i und mechanische Dehnung S_i . Die Abhängigkeit der dielektrischen Polarisation vom polarisierenden Feld (ferroelektrische Hysterese) und die Abhängigkeit der mechanischen Dehnung vom polarisierenden Feld (Dehnungshysterese, oft auch als Schmetterlingskurve bezeichnet) sind von den meisten bekannten ferroelektrischen Werkstoffen heute gut untersucht.

Das Polungsverhalten von homogenen Ferroelektrika aber verändert sich wesentlich, wenn es mit anderen Ferroelektrika oder Dielektrika elektrisch verbunden ist, da dann nicht mehr von einer homogenen Feldverteilung ausgegangen werden kann. In dieser Arbeit zum Beispiel haben die Biegeaktuatoren eine sogenannte **Mehrschichtstruktur**, wo mehrere Schichten mit unterschiedlichen dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften miteinander verbunden sind. In diesem speziellen Fall **inhomogener Ferroelektrika** wurden erst in den letzten Jahren mit detaillierten experimentellen und theoretischen Untersuchungen des Polungsverhaltens begonnen [99], [100]. Die Theorien und Modelle für inhomogene Dielektrika können hier nicht verwendet werden, weil dabei die Nichtlinearität der ferroelektrischen Eigenschaften und der Einfluss des piezoelektrischen Effekts nicht berücksichtigt werden. Aber die Größe und Verteilung der piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften hängen sowohl in Biegeaktuatoren mit einer Mehrschichtstruktur als auch in Gradientenmaterialien neben der chemischen

Zusammensetzung auch von der Größe und Verteilung der Polungsfeldstärke oder mit einem Wort vom **Polungsverhalten** ab. Deswegen steht vor den Untersuchungen des Biegungsverhaltens der Gradientenmaterialien die Entwicklung von theoretischen und experimentell überprüften Modellen für das Polungsverhalten solcher Werkstoffe.

Um das Polungsverhalten des Gradientenmaterials zu beschreiben, wird das Schichtmodell verwendet, d.h. das Gradientenmaterial wird als ein aus vielen Schichten bestehender Werkstoff angenommen. Die Eigenschaften jeder Schicht sind konstant, sie ändern sich aber von Schicht zu Schicht. Die elektrische Verschiebung D ist im ganzen Werkstoff konstant und der Ladungsdichte auf den Elektroden gleich. Vernachlässigt man Raumladungen, die z.B. durch die Leitfähigkeit der Keramiken auftreten könnten, so setzt sich die dielektrische Verschiebung aus dem Vakuumanteil des elektrischen Feldes und der Polarisation des Dielektrikums zusammen

$$D = \varepsilon_0 E + P, \quad (2.1)$$

sie kann aber auch als

$$D = \varepsilon_0 \varepsilon E \quad (2.2)$$

geschrieben werden, wobei ε die Dielektrizitätskonstante des Materials ist. Aus dem Vergleich von Gl. (2.1) und (2.2) ergibt sich für die Polarisation

$$P = \varepsilon_0 (\varepsilon - 1) E. \quad (2.3)$$

Da für Ferroelektrika die Dielektrizitätskonstanten meist sehr viel größer als 1 sind, ergibt sich in erster Näherung

$$P = \varepsilon_0 \varepsilon E. \quad (2.4)$$

Aus den Gl. (2.2) und (2.4) folgt, dass nicht nur die dielektrische Verschiebung, sondern auch die Polarisation in jeder Schicht konstant ist.

$$P^{(1)} = P^{(2)} = \dots = P^{(N)}. \quad (2.5)$$

Beim Anlegen eines ansteigenden elektrischen Feldes, beginnt die Polarisation eines unpolarisierten Ferroelektrikums von Null an zu steigen. Bei genügend großer Feldstärke wird ein Sättigungsbereich erreicht. Dies ist in Abb. 1.1 am Beispiel der Neukurve von BaTiO₃ Keramik dargestellt. Eine weitere Vergrößerung des Feldes führt nur zu einem unmerklichen Anwachsen der Polarisation, was vernachlässigt werden kann. Die obere Grenze für das elektrische Feld ist die Durchbruchfeldstärke.

Der Wert der Sättigungspolarisation hängt neben dem Material (chemische Zusammensetzung) auch von anderen Parametern wie Temperatur und Frequenz ab. Besteht ein Gradientenmaterial aus Ferroelektrika mit verschiedenen Sättigungspolarisationen, so wird die maximale Polarisation des Gesamtsystems durch den Wert der niedrigsten Sättigungspolarisation begrenzt (Gl. (2.5)). In Abb. 2.1 ist dies am Beispiel eines Zweischichtsystems bestehend aus BTS(0-2.5) dargestellt. Der niedrigere Wert der Sättigungspolarisation der BTS2.5 Schicht begrenzt den maximalen Wert der Polarisation in der BT Schicht. Der Grenzwert ist mit der schwarzen gestrichelten Linie gekennzeichnet.

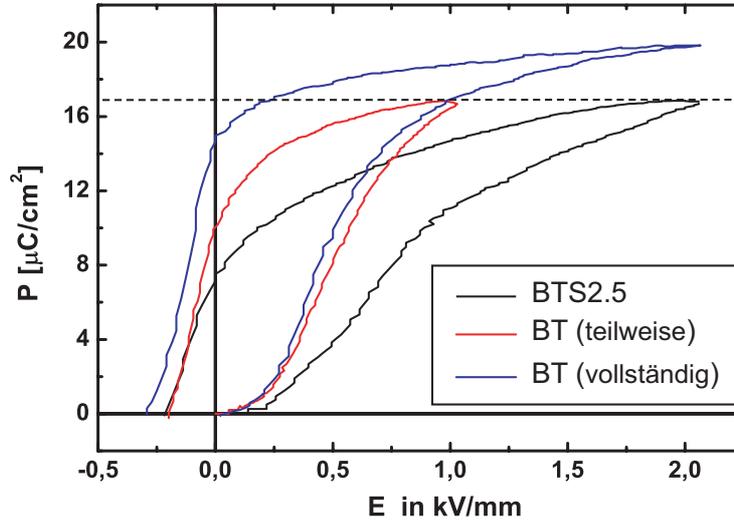


Abbildung 2.1: Neukurven in elektrisch verbundenen BTS(0-2.5) Keramik, im Vergleich mit vollständiger Neukurven von BT

Zum Vergleich ist die komplette Neukurve von BT Keramik ebenfalls eingezeichnet. Alle Neukurven wurden bei 10 Hz gemessen. Da die Polarisation in den Schichten mit hohen Sättigungspolarisationen den Sättigungsbereich nicht erreicht, werden diese Schichten nur teilweise gepolt. Nur die Schicht mit der kleinsten Sättigungspolarisation wird komplett gepolt.

2.2 Modellierung des Polungsverhaltens von Gradientenmaterialien

Mit Hilfe der Ergebnisse des vorherigen Abschnitts kann ein einfaches Modell des Polungsverhaltens von Gradientenmaterialien unter Verwendung der Neukurven von einzelnen Schichten erstellt werden. Der erste Schritt ist die Bestimmung der Sättigungspolarisation jeder Schicht. Dafür werden die vollständigen Neukurven aller verwendeten Materialien gemessen. Dann die Neukurve mit der kleinsten Sättigungspolarisation P_s^{min} ausgewählt. Alle anderen Neukurven werden nochmal gemessen, wobei das elektrische Feld nur soweit erhöht wird, bis die jeweilige Polarisation den Wert P_s^{min} erreicht. Im Beispiel der Abb. 2.1 ist zu sehen, dass bei einer maximalen Feldstärke von 2 kV/mm in der BT-Schicht, die maximale Feldstärke in der anderen Schicht nur 1 kV/mm beträgt.

Da die Polarisation in allen Schichten gleich ist und sich nur im Bereich von $[0 \div P_s^{min}]$ ändert, wird die Polarisation als Variable und statt der Neukurve $P = f(E)$ die inverse Funktion $E = f(P)$ betrachtet. Das ermöglicht es außerdem, die elektrische Feldstärke in jeder Schicht zu berechnen. Die Neukurve jeder einzelnen Schicht wurde in zwei Abschnitte geteilt, jeweils einen ansteigenden und einen abnehmenden Kurvenast. Diese

Kurven können mit verschiedenen Funktionen mathematisch beschrieben werden, z.B. mit einem Polynom. In dieser Arbeit wurden die experimentell ermittelten Neukurven mit Polynomen 5. Grades gefittet

$$\begin{aligned} E_3^{anst} &= A_0 + A_1 P_3 + A_2 P_3^{(2)} + A_3 P_3^{(3)} + A_4 P_3^{(4)} + A_5 P_3^{(5)} \\ E_3^{abmem} &= A_0 + A_1 P_3 + A_2 P_3^{(2)} + A_3 P_3^{(3)} + A_4 P_3^{(4)} + A_5 P_3^{(5)}. \end{aligned} \quad (2.6)$$

In Abb. 2.2 ist die gemessene und gefittete Neukurve eines teilweise gepolten Ferroelektrikums als Funktion $E = f(P)$ dargestellt. In Abbildung überdeckt der gefittete Teil den gemessenen Teil komplett und liefert die nötige inverse Funktion $E = f(P)$. Es wird natürlich nur der gefittete Teil, der die schwarzen Linien bedeckt, verwendet. Weitergehende Reste der roten Linien haben keine physikalische Bedeutung. Die Feldstärke im

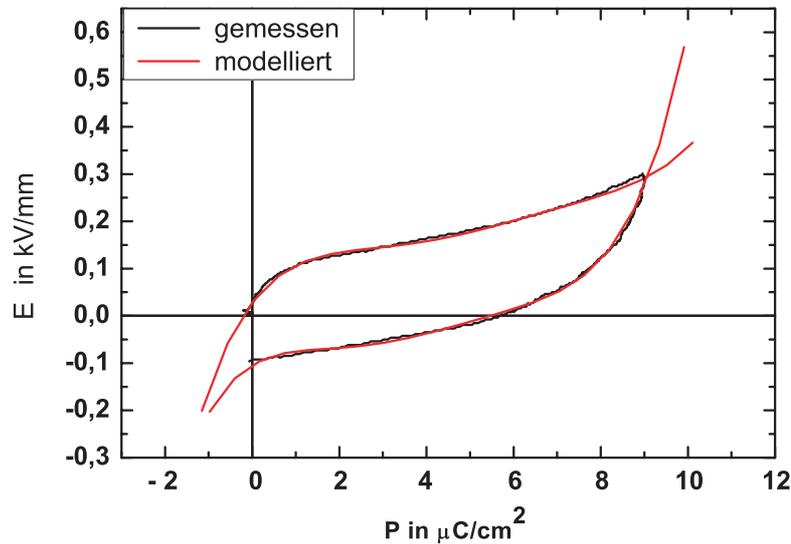


Abbildung 2.2: Gemessene und gefittete inverse Hysteresekurve $E(P)$

Gesamtsystem ergibt sich

$$\overline{E}_3 = \frac{U_{ber}}{h} = \frac{\sum_{i=1}^N E_3^{(i)} h^{(i)}}{h}, \quad (2.7)$$

wobei \overline{E}_3 hierbei eine Art Mittelwert der Feldstärke ist, denn in jeder Schicht ist das elektrische Feld unterschiedlich und nicht gleich $\frac{U_{ber}}{h}$. In Gl. (2.7) ist U_{ber} die berechnete Gesamtspannung, die bei späteren Untersuchungen verwendet wird. Die inverse Neukurve $\overline{E}_3 = f(P_3)$ des Gesamtsystems wird mit Hilfe der Gl. (2.7) berechnet und anschließend in die Neukurve invertiert. Dabei sind die $E_{(i)}$ die gefitteten inversen Funktionen (s. Gl. (2.6)) $E_3 = f(P_3)$ der einzelnen Schichten. Die Berechnung erfolgt in zwei Schritten, wobei der ansteigende und der abnehmende Teil der inversen Kurve getrennt berechnet wird.

Der Hauptnachteil dieser Methode ist, dass bei Änderung eines Parameters, z.B. der Polungsfeldstärke, der Anzahl der Schichten oder der chemischen Zusammensetzung von einer oder mehrerer Schichten, die Neukurve für jede Schicht erneut gemessen werden muss. Deshalb erforderte die Untersuchung des Einflusses verschiedener Parameter auf das Polungsverhalten von Mehrschichtsystemen viel Zeit. Eine Möglichkeit, dieses Modell zu verbessern, ist die Verwendung numerischer Modelle zur Beschreibung der Neu- und Hysteresekurven. Darauf wird im Abschnitt 2.9 noch eingegangen.

2.3 Mehrschichtstrukturen

2.3.1 Elektrisch verbundene, geklebte und monolithische Mehrschichtstrukturen

Neben den monolithischen keramischen Proben mit einem Funktionsgradienten wurden in dieser Arbeit noch zwei Modellstrukturen aus Einzelschichten untersucht, die sich in der Verbindungsweise der Schichten unterschieden.

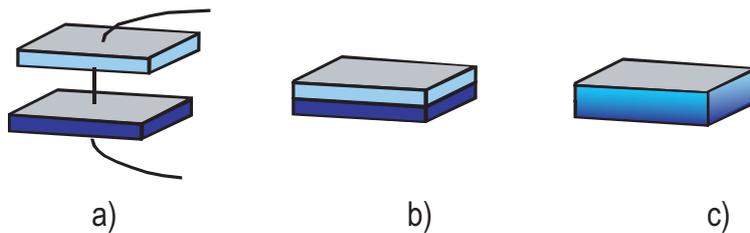


Abbildung 2.3: Elektrisch verbundene Mehrschichtstruktur (a), geklebte Mehrschichtstruktur (b), monolithische Mehrschichtstruktur (c)

Die Modellsysteme bestehen aus zwei und mehr Schichten aus BTS-Keramik mit bestimmtem Zinngehalt. Alle Schichten wurden mit dem bekannten Mischoxidverfahren hergestellt. Um ihnen einheitliche Abmessungen zu geben, wurden die Schichten aus einer größeren Platte geschnitten und dann geschliffen. Im nächsten Schritt wurden die Schichten mit Aluminium elektrodiert. Gewöhnlich hatten die Proben folgende Abmessungen: Länge L 5-8 mm, Breite w 3-4 mm. Die Dicke der einzelnen Schicht hängt von der Anzahl der Schichten im System ab und wurde so gewählt, dass die Gesamtdicke h gleich 1.1-1.2 mm ist. Die Dicke der Schicht mit der Nummer i ergibt sich daher aus

$$h^{(i)} = \frac{h}{N}, \quad (2.8)$$

wo N die Gesamtanzahl der Schichten ist.

Im ersten Modellsystem werden die einzelnen Schichten mit einem dünnen, schmalen Streifen aus Zinnfolie verbunden und wird als **elektrisch verbundene Mehrschichtstruktur** bezeichnet (Abb. 2.3(a)). Diese Struktur ist dadurch gekennzeichnet, dass die Schichten mechanisch frei sind, d. h., dass mechanische Spannungen keinen Einfluss auf

das Polungsverhalten haben. Weiterhin sind die einzelnen Schichten elektrodiert. Das ermöglicht es, den Einfluss von inneren Elektroden auf das Polungsverhalten des ganzen Systems zu untersuchen. Ein weiterer wichtiger Aspekt ist, dass es in diesem System möglich ist, die dielektrischen und piezoelektrischen Kleinsignaleigenschaften der einzelnen Schichten nach dem Polungsvorgang direkt zu messen.

Im zweiten Modellsystem werden die Schichten nach der Elektrodiertung mit Leitleitlack Silber fest zusammengeklebt. Das System wird deshalb als **geklebte Mehrschichtstruktur** bezeichnet (Abb. 2.3(b)). Geklebte Mehrschichtstruktur entspricht den konventionellen Biegeaktuatoren mit inneren Elektroden zwischen den piezoelektrischen Schichten. Da die Schichten fest zusammengeklebt sind, werden während des Polungsprozesses mechanische Spannungen auf Grund unterschiedlicher remanenter Dehnungen auftreten. Die experimentelle Untersuchung soll zeigen, ob die mechanischen Spannungen Einfluss auf das Polungsverhalten haben.

Beide Modellstrukturen wurden mit den bereits beschriebenen monolithischen Gradientenkeramiken verglichen. Diese **monolithische Mehrschichtstruktur** (Abb. 2.3(c)) hat im Unterschied zu anderen zwei Strukturen keine inneren Elektroden. Die Schichten sind am stärksten verbunden, da sie bereits zusammen gesintert wurden. Die Proben wurden mit dem Mischoxidverfahren hergestellt und bestehen sowohl aus Bereichen mit konstanter chemischer Zusammensetzung als auch aus Zwischenschichten mit unbekannter, inhomogener chemischer Zusammensetzung (s. Abschnitt 1.4.2).

An dieser Stelle soll kurz das Auftreten mechanischer Spannungen in den verschiedenen Mehrschichtsystemen diskutiert werden. In den monolithischen Strukturen treten bereits beim Herstellen mechanische Spannungen auf Grund des unterschiedlichen Schrumpfungsverhaltens der Materialien beim Sintern bzw. der thermischen Ausdehnungskoeffizienten beim Abkühlen auf. Dies zeigt sich insbesondere in einer Verformung der gesinterten Keramikplatten. Es zeigt sich jedoch bereits hier, dass eine Erhöhung der Anzahl der Pulverschichten mit unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung eine deutliche Verbesserung bewirkt. So sind monolithische Keramiken aus 4 Schichten (4-morph) nicht mehr gebogen.

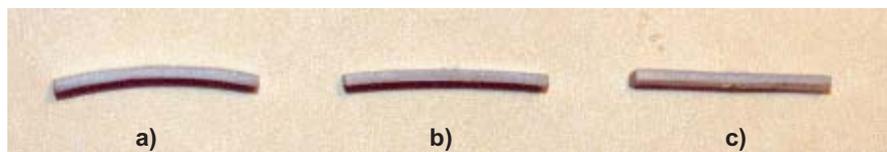


Abbildung 2.4: Monolithische Bimorph **a)**, Trimorph **b)** und 4-morph **c)**

Die andere Art der mechanischen Spannung wird beim Anlegen der Polungs- oder Anregungsspannung auf Grund der unterschiedlichen piezoelektrischen Dehnung der Schichten erzeugt. Diese treten in allen Systemen auf, wo die Schichten fest miteinander verbunden sind. Die beim Polungsprozess auftretenden mechanischen Spannungen sind nur zum Teil reversibel. Irreversibel ist der Anteil, der auf unterschiedlichen remanenten Dehnungen der Schichten beruht. Dies ist der Fall bei den monolithischen Keramiken

sowie bei Mehrschichtstrukturen, die erst nach dem Kleben gepolt wurden.

Während des Betriebes als Biegeaktuator treten natürlich auch mechanische Spannungen auf, die im Abschnitt 3.2.2 diskutiert wurden. Diese sind im allgemeinen reversibel.

Mechanische Spannungen, die auf Grund der polykristallinen Struktur der Keramik in den Körnern durch mechanische Klemmung der Nachbarkörner entstehen, werden in dieser Arbeit vernachlässigt.

2.3.2 Zinnverteilung in den untersuchten Systemen

Die untersuchten Proben wurden nach ihrer chemischen Zusammensetzung in zwei Gruppen geteilt, die in Tabelle 2.1 dargestellt sind. Die Proben aus der ersten Gruppe bestehen aus Schichten mit niedrigem Zinngehalt (max 7.5 mol%), während die Proben aus der zweiten Gruppe aus Schichten mit höherem Zinngehalt (min 7.5 mol%, jedoch maximal 15mol%) bestehen. Mit niedrigem Zinngehalt wurden nur Bimorph und Trimorph hergestellt. Die Gruppe II besteht sowohl aus Bimorph, Trimorph als auch aus 4-morph.

Gruppe I	Gruppe II
BTS(0-2.5)	BTS(7.5-15)
BTS(2.5-0-7.5)	BTS(7.5-12.5-15)
	BTS(7.5-10-12.5-15)

Tabelle 2.1: Chemische Zusammensetzung der Systeme in Gruppe I und Gruppe II

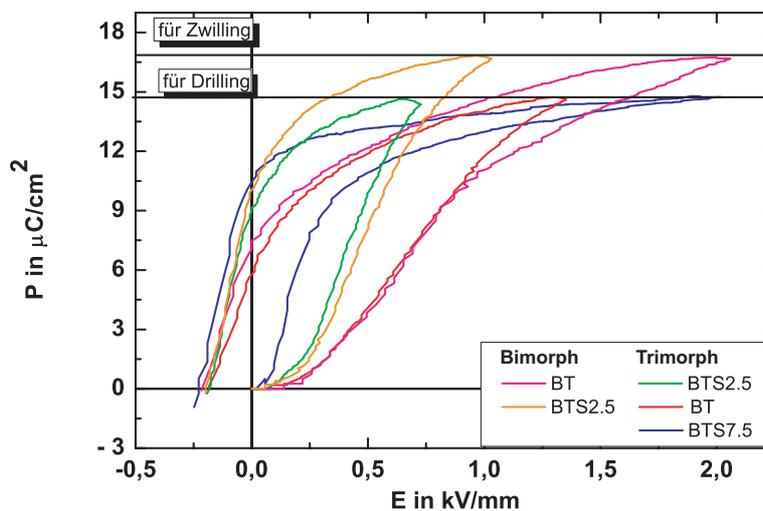


Abbildung 2.5: Neukurven der Einzelschichten für Proben der Gruppe I

Die Neukurven der einzelnen Schichten für die Proben der Gruppe I sind in Abb. 2.5

dargestellt. Die Werte der maximalen Polarisation des Systems BTS(0-2.5) sind durch die Sättigungspolarisation P_s von BT und im System BTS(2.5-0-7.5) durch den Wert P_s von BTS7.5 begrenzt. Da BT eine höhere Sättigungspolarisation als BTS7.5 hat, ist die maximale Polarisation von BTS(0-2.5) auch höher als die von BTS(2.5-0-7.5).

Abb. 2.6 zeigt die Neukurven der Schichten in den Systemen der Gruppe II. Hier haben alle Systeme die gleiche maximale Polarisation, weil sie durch die maximale Polarisation von BTS15 begrenzt sind. Alle Neukurven beider Gruppen sind bei Raumtemperatur und 10 HZ gemessen worden. Der Zinngehalt hat einen starken Einfluss auf das Polungsverhalten der Bariumtitanatstannat-Keramik (BTS). Abgesehen vom leichten Anstieg zwischen 0 und 2,5 mol% Zinn, ist die Sättigungspolarisation der Keramik umso niedriger je höher der Zinngehalt ist. Deshalb haben die Systeme aus Gruppe I mit niedrigem Zinngehalt eine höhere maximale Polarisation als die aus Gruppe II. Die

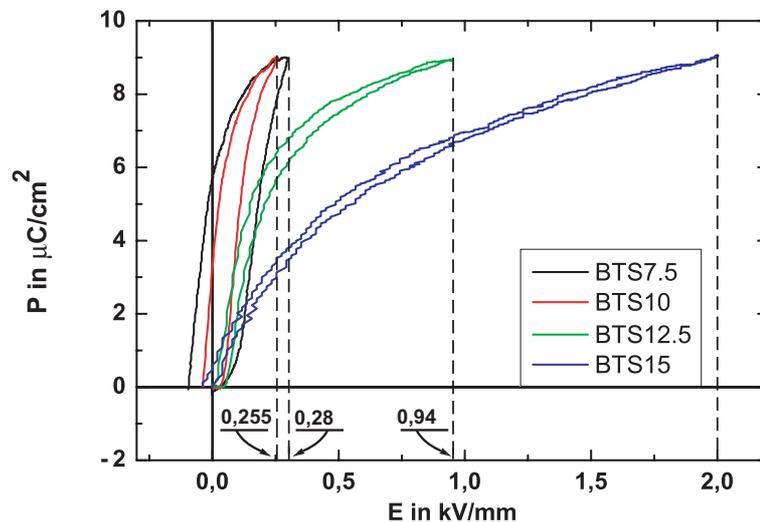


Abbildung 2.6: Neukurven der Einzelschichten für Proben der Gruppe II

im Abschnitt 2.2 beschriebene Methode liefert die Verteilung des elektrischen Feldes im Material während des Polungsvorganges. Auf diese Weise können Rückschlüsse auf den Polungsgrad jeder Schicht gezogen werden. Wie bereits beschrieben, reicht für die BTS-Keramiken, die sich in der ferroelektrischen Phase befinden, eine Polungsfeldstärke von 2 kV/mm, um den Sättigungsbereich zu erreichen. Auf Grund dieser Tatsache, wurden die Proben mit Mehrschichtstruktur so gepolt, dass die Feldstärke in der Schicht mit der niedrigsten maximalen Polarisation P^{min} genau 2 kV/mm beträgt. Die Werte der elektrischen Felder in den anderen Schichten können graphisch aus den maximalen Werten der Polarisation bestimmt werden (s. Abb. 2.6).

Die Maximalwerte der elektrischen Felder in den Schichten der Proben aus Gruppe I und Gruppe II sind in Tabelle (2.2) dargestellt. Da die maximale Polarisation der Schichten aus Gruppe II immer durch den maximalen Wert der Polarisation von BTS15 bei 2kV/mm begrenzt wird, ist das dazugehörige Polungsfeld in den Schichten BTS7.5,

BTS10, BTS12.5 von der Anzahl der Schichten in der Mehrschichtstruktur unabhängig.

Das gesamte elektrische Feld wurde mit Hilfe der Gl. (2.7) berechnet und ist in Tabelle 2.3 dargestellt. Wie man sieht, ist es für beide Gruppen umso niedriger, je höher die Anzahl der Schichten ist. Das bedeutet, dass bei gleicher Probendicke eine geringere Spannung beim Polen nötig ist, um die maximale Feldstärke von 2 kV/mm in einer Schicht zu erzeugen.

Gruppe I				Gruppe II	
Bimorph	Feld, kV/mm	Trimorph	Feld, kV/mm	Bim., Trim., 4-mor.	Feld, kV/mm
BT	1.04	BTS2.5	0.705	BTS7.5	0.28
BTS2.5	2	BT	1.32	BTS10	0.255
-	-	BTS7.5	2	BTS12.5	0.94
-	-	-	-	BTS15	2.0

Tabelle 2.2: Berechnete Verteilung der elektrischen Feldstärke in den Schichten der Systeme aus Gruppe I und II bei $E_{pol} = E_{ber}$

Gruppe I	$\overline{E_{ber}}$, kV/mm	Gruppe II	$\overline{E_{ber}}$, kV/mm
BTS(0-2.5)	1.52	BTS(7.5-15)	1.15
BTS(2.5-0-7.5)	1.34	BTS(7.5-12.5-15)	1.07
-	-	BTS(7.5-10-12.5-15)	0.86

Tabelle 2.3: Berechnete Polungsfeldstärke E_{ber} für die Systeme der Gruppen I und II

2.4 Vergleich zwischen Modellierung und Experiment

In diesem Abschnitt werden die ferroelektrischen Neukurven und die Neukurven der Dehnung der Mehrschichtstrukturen aus der Gruppen I und II präsentiert. Dabei werden die modellierten Kurven mit gemessenen Neukurven von monolithischen, geklebten und elektrisch verbundenen Strukturen verglichen. Alle Kurven wurden bei Raumtemperatur mit 10 Hz gemessen.

2.4.1 Polungsverhalten von Proben mit niedrigem Zinngehalt

Die modellierte Neukurve von BTS(0-2.5) ist zusammen mit den Neukurven der beiden einzelnen Schichten in Abb. 2.7 dargestellt. Die modellierte Kurve befindet sich dabei in der Mitte. Zum einen fällt auf, dass sie ihren Sättigungsbereich offenbar nicht erreicht. Darauf wird jedoch später im Abschnitt zum Einfluss der Polungsfeldstärke noch separat eingegangen.

Interessant ist der Punkt, wo das elektrische Feld wieder gleich Null ist und das gesamte System die remanente Polarisierung erreicht hat. Da in diesem Modell davon ausgegangen wird, dass die Polarisierung in allen Schichten gleich ist, bedeutet dies, dass beim Zustand, wo das äußere Feld gleich Null ist, in den einzelnen Schichten das Feld

positive (BT) oder negative (BTS2.5) Werte annimmt. Diese inneren Felder kompensieren sich jedoch. In Abb. 2.8 sind die modellierte Kurve und gemessene Neukurven des

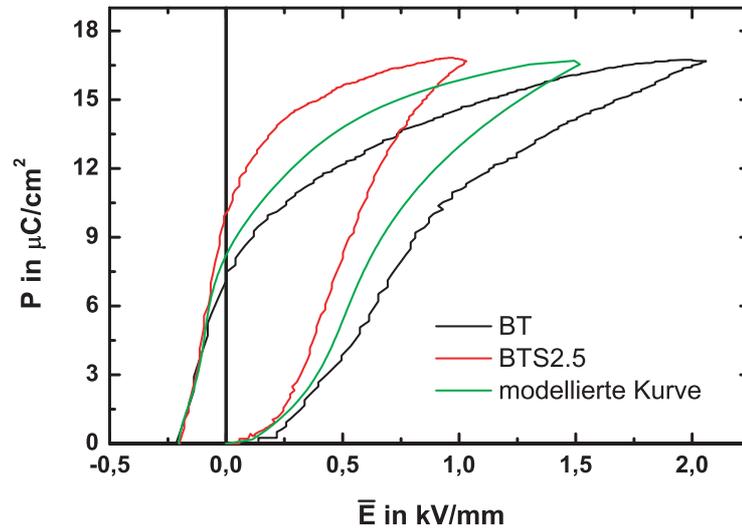


Abbildung 2.7: Gemessene Neukurven der Einzelschichten und modellierte Neukurve des Systems BTS(0-2.5)

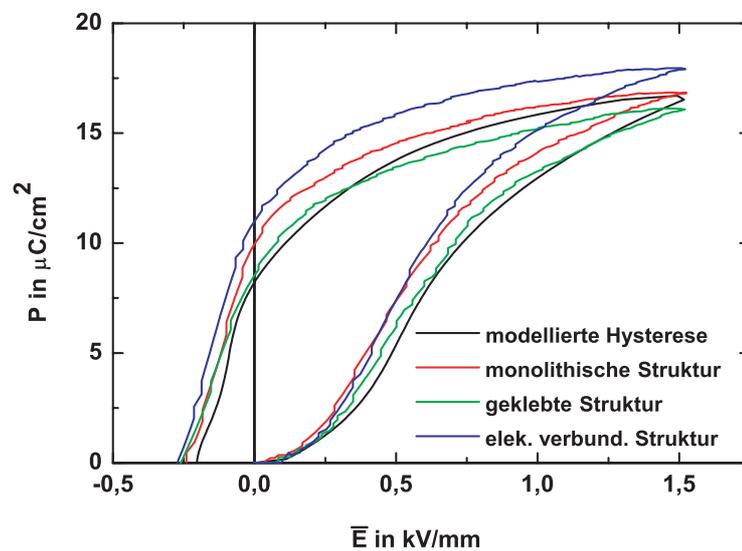


Abbildung 2.8: Modellierter und gemessener Neukurven des Systems BTS(0-2.5)

monolithischen Bimorph BTS(0-2.5) dargestellt. Dazu wurden auch gemessene Kurven von geklebten und elektrisch verbundenen Strukturen dargestellt. Alle Neukurven sind beim berechneten Feld gemessen.

Allgemein sind sich die experimentellen Kurven sowohl der geklebten und elektrisch verbundenen als auch der monolithischen Mehrschichtstrukturen sehr ähnlich. Die maximalen und remanenten Polarisierungen liegen sehr nah beieinander. Obwohl man deutlich sehen kann, dass die höchste maximale Polarisation die elektrisch verbundene Struktur hat, dann kommt die monolithische Struktur und den niedrigsten Wert hat die geklebte Struktur, jedoch ist der Unterschied nicht groß. Die in Abb. 2.8 dargestellten Werte sind die Ergebnisse einer einzelnen Messung, bei wiederholten Messungen konnte keine Signifikanz in dieser Reihenfolge festgestellt werden. Es kann deshalb davon ausgegangen werden, dass weder die mechanische Spannung oder die inneren Elektroden noch die Übergangsschicht in der monolithischen Struktur deutlichen Einfluss auf das Polungsverhalten des Mehrschichtsystems BTS(0-2.5) haben, es treten nur kleine statistische Schwankungen auf. Die modellierte Neukurve ist in guter Übereinstimmung mit allen gemessenen Neukurven. Das bedeutet, dass nur die ferroelektrischen Eigenschaften der BT und BTS2.5 Schichten Einfluss auf das Polungsverhalten haben, piezoelektrische oder ferroelastische Einflüsse können vernachlässigt werden.

Die gleichen Untersuchungen wurden für das BTS(2.5-0-7.5) System durchgeführt (s. Abb. 2.9). Der Anstieg der Anzahl der Schichten und die Einführung der BTS7.5-Schicht

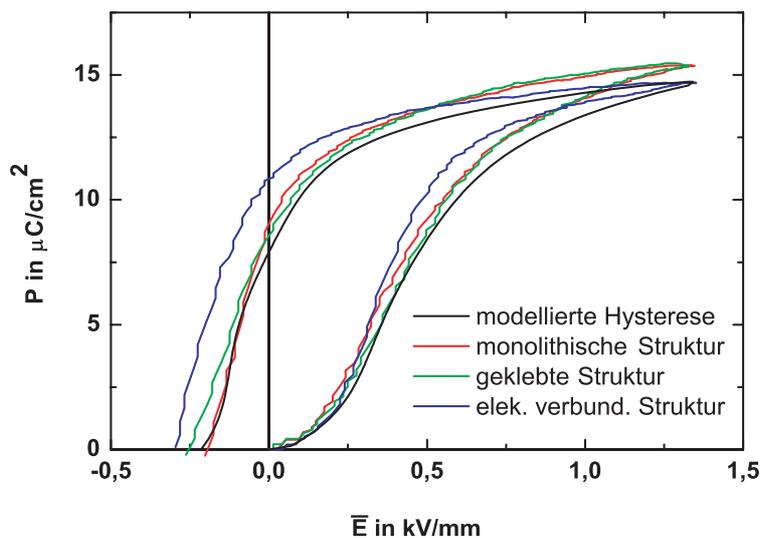


Abbildung 2.9: Modellierte und gemessene Neukurven des Systems BTS(2.5-0-7.5)

haben das allgemeine Bild nicht verändert. Der Unterschied zwischen den experimentellen Kurven der verschiedenen Strukturen ist auch beim BTS(2.5-0-7.5) System gering. Im Vergleich mit BTS(0-2.5) haben dieses Mal die geklebten und monolithischen Strukturen eine leicht höhere Polarisation. Das zeigt noch einmal, dass Schwankungen der Polarisation im Mehrschichtsystem nicht auf mechanische Spannungen, innere Elektroden oder Übergänge zurückzuführen sind, sondern rein statistischer Natur sind. Die modellierte Kurve ist ebenfalls in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Kur-

ven.

2.4.2 Polungsverhalten von Proben mit höherem Zinngehalt

Die modellierte und die gemessenen Kurven von Bimorph aus Gruppe II sind in Abb. 2.10 dargestellt. Es gibt auch für diesen Fall keinen beträchtlichen Unterschied zwischen der

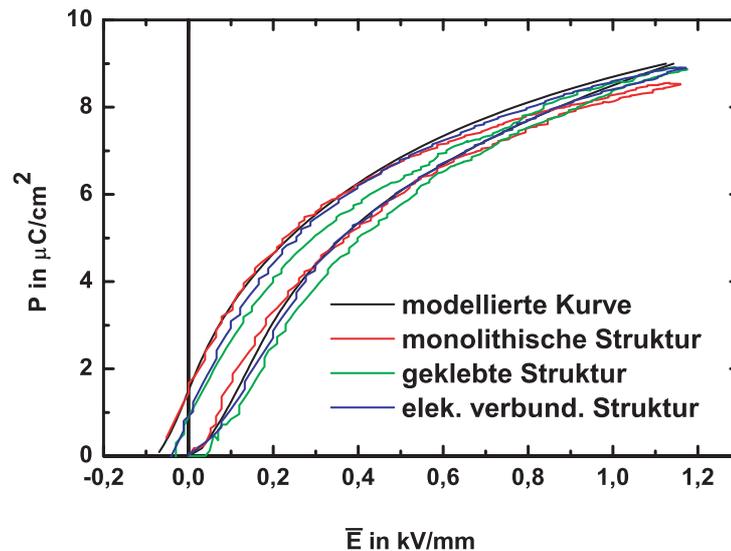


Abbildung 2.10: Modellerte und gemessene Neukurven des Systems BTS(7.5-15)

modellierten und den gemessenen Neukurven der Polarisation. Ein Einfluss der mechanischen Spannung oder der inneren Elektroden auf das Polungsverhalten des Bimorphs ist nicht zu sehen. In Vergleich zu Bimorph und Trimorph aus Gruppe I, wo das elektrische Feld in den Schichten relativ gleichmäßig verteilt ist, ist in den Mehrschichtsysteme der Gruppe II der größte Teil der angelegten Spannung in der BTS15-Schicht konzentriert und an der BTS7.5-Schicht fällt nur ein sehr kleines Feld ab. Da sich die elektrostriktive BTS15 Schicht selbst bei hohen elektrischen Spannungen relativ wenig dehnt, ist der Unterschied der Ausdehnungen zwischen den BTS7.5 und BTS15 Schichten sehr niedrig und als Folge treten niedrige mechanische Spannungen auf. Diese Behauptung wird bei der Diskussion der Dehnungskurven bewiesen. Auf Grund dieser niedrigen mechanischen Spannungen ist der Unterschied zwischen modellierten und gemessenen Kurven noch kleiner als der in Gruppe I.

Der Anstieg der Anzahl der Schichten sollte die mechanische Spannung noch weiter reduzieren. Wie man sieht, sind die modellierten Kurven des Trimorphs (s. Abb. 2.11) und 4-morph (s. Abb. 2.12) in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Neukurven.

Die Werte der maximalen und remanenten Polarisation von Bimorph, Trimorph und 4-morph wurden in Abb. 2.13 für die verschiedenen Modellstrukturen und die monolithischen Keramiken miteinander verglichen. Wie man sieht, ist die maximale Polarisation

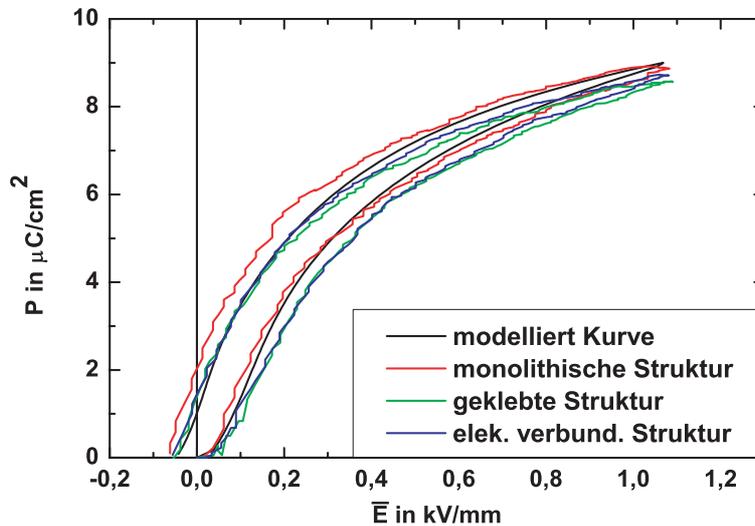


Abbildung 2.11: Modellierte und gemessene Neukurven des Systems BTS(7.5-12.5-15)

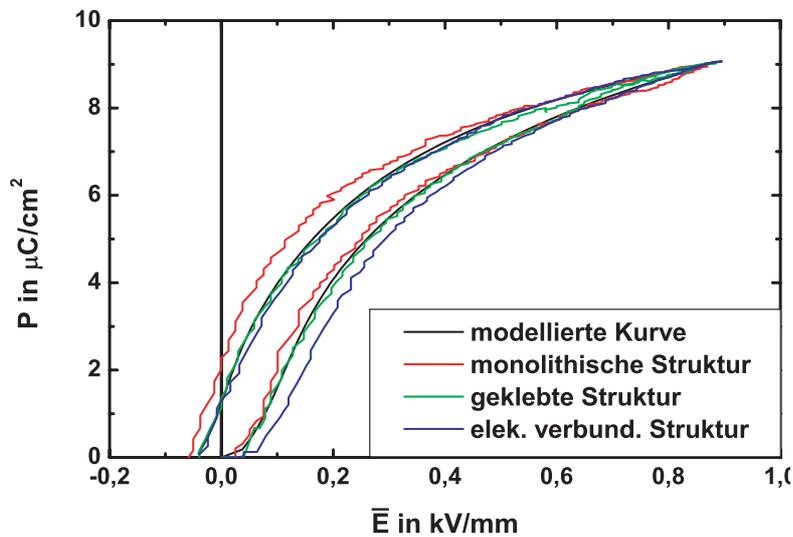


Abbildung 2.12: Modellierte und gemessene Neukurven des System BTS(7.5-10-12.5-15)

von der Anzahl der Schichten unabhängig und für alle Proben fast gleich. Dies steht im Einklang mit der theoretischen Voraussetzung, dass die maximale Polarisation des Gesamtsystems von der niedrigsten maximalen Polarisation begrenzt wird.

Auch wenn die bisherigen Vergleiche der Neukurven keine großen Unterschiede zeigten, ist in Abb. 2.13 doch zu erkennen, dass für jede Anzahl der Schichten die remanente

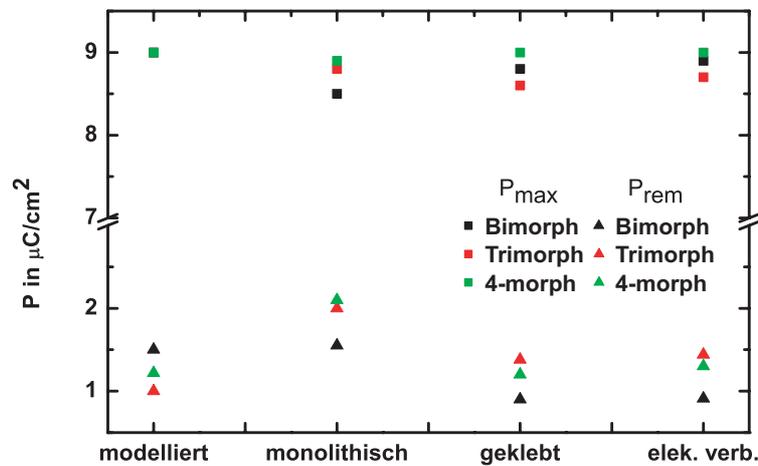


Abbildung 2.13: Maximale Polarisation und remanente Polarisation der Systeme aus Gruppe II

Polarisation der monolithischen Proben höher ist als die der Modellstrukturen. Es ist zu vermuten, dass sich der chemische Gradient positiv auf das Verhalten der Keramik auswirkt. Als Folge ist anzunehmen, dass die ferroelektrischen Schichten der monolithischen Proben stärker gepolt sind und sich dies positiv auf das Biegeverhalten der Proben auswirkt. Die Ursache ist bei den Bereichen zwischen den Schichten in der monolithischen Struktur zu suchen. Der Übergang zwischen den Schichten ist nicht scharf abgegrenzt, in diesen endlich breiten Bereichen ändert sich nicht nur die chemische Zusammensetzung stetig, sondern auch die physikalischen Eigenschaften, was offensichtlich einen positiven Einfluss auf das Polungsverhalten des ganzen Systems hat. Das erklärt, warum der monolithische 4-morph mit der höchsten Zahl der Zwischenschichten die höchste remanente Polarisation hat. Die Gradientenmaterialien zeigen also bereits beim Polen leichte Vorteile gegenüber den herkömmlichen geklebten Mehrschichtstrukturen.

2.5 Modellierung der Dehnungskurve von Mehrschichtsystemen

2.5.1 Dehnung S_3 als Funktion der Polarisation

Die gleiche Methode wie für die Modellierung der Polarisationsneukurve wurde für die Modellierung der Dehnungskurve von Mehrschichtsystemen verwendet. Zuerst wurden die Neukurven der Dehnung von einzelnen Schichten bei Raumtemperatur mit 10 Hz gemessen. Das Polungsfeld war gleich dem berechneten Feld aus Tabelle 2.3. Danach wurden die Kurven, wie bei der Modellierung der ferroelektrischen Neukurve, durch

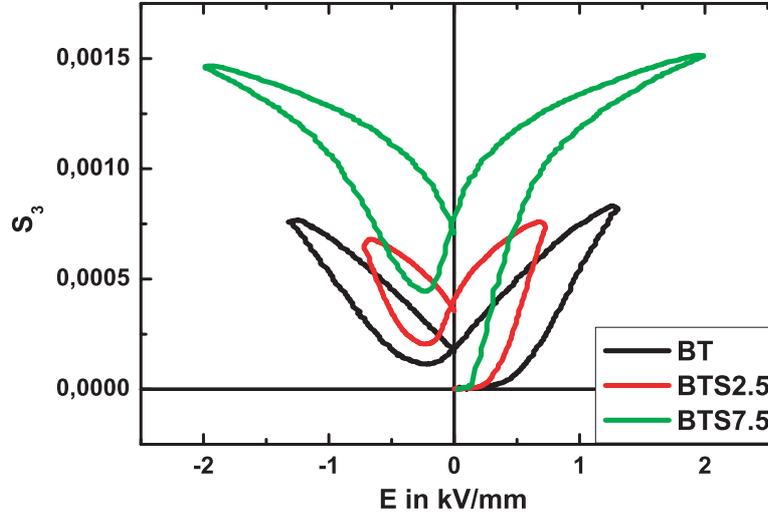


Abbildung 2.14: Neukurven der Dehnung der einzelnen Schichten des Trimorphs BTS(2.5-0-7.5) bei maximalem elektrischen Feld wie in der Modellierung der ferroelektrischen Neukurven

Polynome als Funktion des elektrischen Feldes gefittet

$$\begin{aligned} S_3^{anst1} &= A_0 + A_1 E_3 + A_2 E_3^2 + A_3 E_3^3 + A_4 E_3^4 + A_5 E_3^5 \\ S_3^{abnem1} &= B_0 + B_1 E_3 + B_2 E_3^2 + B_3 E_3^3 + B_4 E_3^4 + B_5 E_3^5 \end{aligned} \quad (2.9)$$

$$\begin{aligned} S_3^{anst2} &= C_0 + C_1 E_3 + C_2 E_3^2 + C_3 E_3^3 + C_4 E_3^4 + C_5 E_3^5 \\ S_3^{abnem2} &= D_0 + D_1 E_3 + D_2 E_3^2 + D_3 E_3^3 + D_4 E_3^4 + D_5 E_3^5, \end{aligned} \quad (2.10)$$

wo S_3^{anst1} , S_3^{abnem1} die ansteigenden und abnehmenden Äste der Dehnungskurve bei positivem Feld, S_3^{anst2} , S_3^{abnem2} die ansteigenden und abnehmenden Teile der Dehnungskurve bei negativem Feld sind.

2.5.2 Modellierung der Dehnungskurve

Die gemessenen Neukurven der Dehnung der einzelnen Schichten für den Trimorph BTS(2.5-0-7.5) aus Gruppe I sind in Abb. 2.14 dargestellt. Die größte maximale Dehnung hat die Schicht BTS7.5 mit der kleinsten Sättigungspolarisation und demzufolge auch der größten Feldstärke in der Schicht. Die anderen Schichten, die nur teilweise gepolt sind, haben niedrigere maximale Dehnungen. Da die Unterschiede zwischen den Werten der maximalen Dehnung relativ groß sind, sollten als Folge beim Polungsvorgang höhere mechanische Spannungen auftreten.

Die Untersuchung der Dehnungskurven liefert auch Hinweise auf das zu erwartende Biegeverhalten der Aktuatoren. Um die Schichten nicht zu depolarisieren, werden die Aktuatoren bei relativ kleiner Anregungsspannung oder unipolar in Polungsrichtung

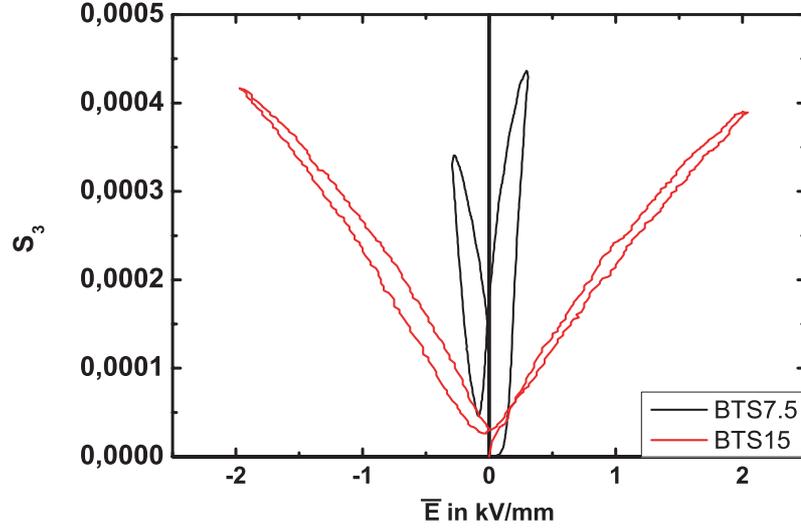


Abbildung 2.15: Neukurven der Dehnung der einzelnen Schichten des Bimorphs BTS(7.5-15) bei maximalem elektrischem Feld wie in der Modellierung der ferroelektrischen Neukurven

angeregt. Aus der Abb. 2.14 ist zu erkennen, dass der Anstieg der Kurven in der Nähe der remanenten Dehnung, d.h. die Kleinsignal-Piezokoeffizienten, bei allen Schichten sehr ähnlich ist. Das bedeutet, dass die Verteilung der piezoelektrischen Koeffizienten nicht groß ist. Bei der Beschreibung des Biegeverhalten wird gezeigt, dass je kleiner die Unterschiede der Piezokoeffizienten sind, desto kleiner wird die Auslenkung. Für den Trimorph BTS(2.5-0-7.5) ist also nicht unbedingt eine große Biegeauslenkung zu erwarten.

Der Unterschied zwischen den maximalen Dehnungen von BTS7.5 und BTS15 in den gemessenen Kurven für das System BTS(7.5-15) (s. Abb. 2.15) ist klein, obwohl der größte Teil des elektrischen Feldes in der Schicht BTS15 konzentriert ist. Im Unterschied zu BTS(2.5-0-7.5) sollte beim Polen eine niedrigere mechanische Spannung erzeugt werden. Diese Vermutung ist in guter Übereinstimmung mit dem, was bei der Modellierung der Neukurven der Polarisation beobachtet wurde.

Da der Anstieg der Dehnungskurve von BTS7.5 ca. fünf mal größer als der von BTS15 ist, wird im Unterschied zum BTS(2.5-0-7.5)-Aktuator eine höhere Biegeauslenkung zu erwarten sein. Die Richtigkeit dieser Vermutung wird die Untersuchung des Biegeverhaltens zeigen.

Die gesamte Neukurve der Dehnung S_3^{ges} von Mehrschichtsystemen ergibt sich aus der Summe der Dehnung der Einzelschichten $S_3^{(i)}$ mit Hilfe des Ausdrucks

$$S_3^{ges} = \sum_{i=1}^N \frac{h^{(i)}}{h} S_3^{(i)}(P). \quad (2.11)$$

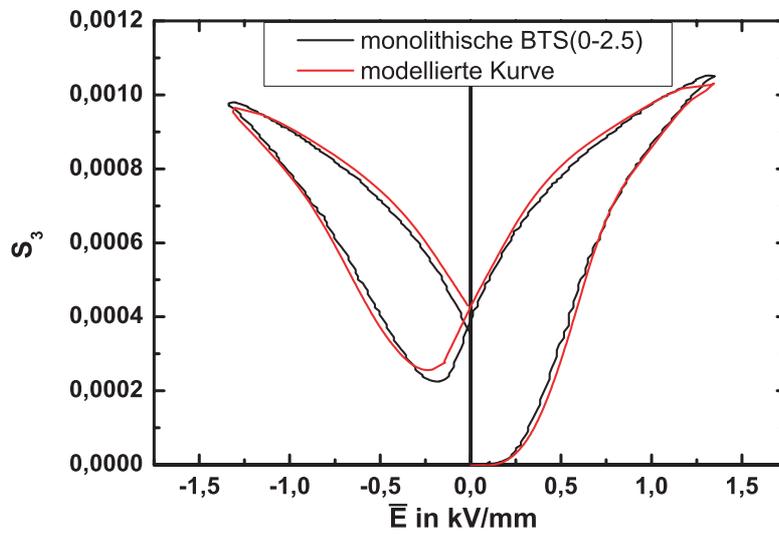


Abbildung 2.16: Gemessene und modellierte Neukurven der Dehnung von BTS(2.5-0-7.5)

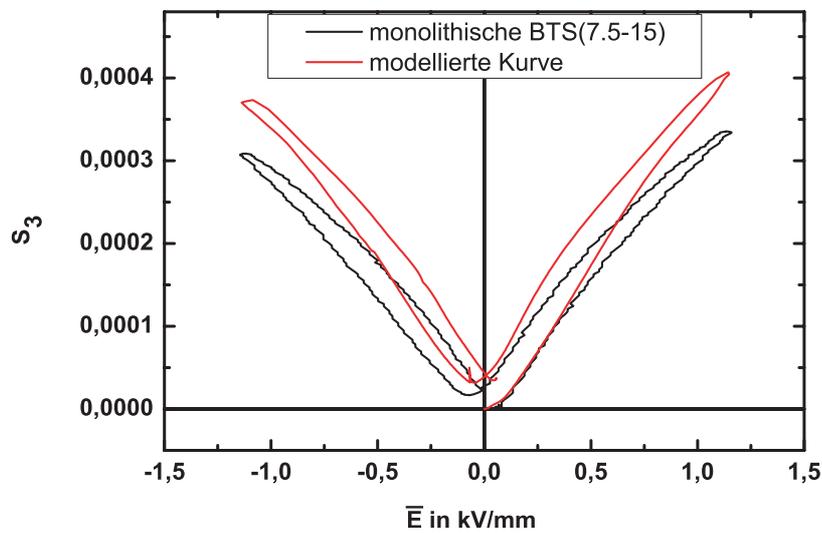


Abbildung 2.17: Gemessene und modellierte Neukurven der Dehnung von BTS(7.5-15)

Da die elektrische Feldstärkeverteilung in den einzelnen Schichten mit Hilfe der Gl. (2.6) in Abhängigkeit von der Polarisierung berechnet wird, ergibt sich die Dehnung auch als Funktion $S_3^{(i)}(P)$. Es ist also zu beachten, dass nicht die elektrische Feldstärke, sondern die Polarisierung in allen Schichten gleich ist, deshalb ist es nicht möglich, aus den

Abb. 2.14 und 2.15 die Verteilung des elektrischen Feldes zu bestimmen. Daraus folgt außerdem, dass vor der Modellierung der Dehnungskurven zuerst die ferroelektrische Neukurve modelliert werden muss.

Die Abb. 2.16 und 2.17 zeigen die modellierte Neukurve der Dehnung im Vergleich zu den gemessenen Kurven der entsprechenden monolithischen Systeme. Die Übereinstimmung zwischen Modellierung und Experiment zeigt, dass die mechanische Spannung, die auf Grund der unterschiedlichen Dehnung der Schichten entsteht und in diesem einfachen Modell vernachlässigt wurde, keinen spürbaren Einfluss auf Neukurven hat. Insbesondere die remanenten Dehnungen stimmen gut überein. Leichte Abweichungen sind nur bei der maximalen Dehnung beim Bimorph BTS(7.5-15) zu beobachten. Hierzu muss gesagt werden, dass der Hauptunterschied zwischen BTS(2.5-0-7.5) und BTS(7.5-15) der Anteil der Dehnungen der einzelnen Schichten an der Gesamtdehnung S_3^{ges} ist. Da bei BTS(2.5-0-7.5) der Hauptanteil der Dehnung von der vollständig gepolten BTS7.5 Schicht kommt, haben Änderungen des elektrischen Feldes bzw. die daraus resultierende Änderung der Dehnung $S_3^{(i)}$ in den beiden anderen Schichten nicht so starke Auswirkungen auf S_3^{ges} . Anders hingegen ist es bei BTS(7.5-15). Der Anteil der Dehnung beider Schichten ist ca. gleich groß. Kleine Änderungen des elektrischen Feldes in der BTS7.5-Schicht führen auf Grund des steilen Anstieges der Kurve zu großen Änderungen der Dehnung $S_3^{BTS7.5}$ und damit zu einer wesentlichen Auswirkung auf die gesamte Dehnung S_3^{ges} im Bereich der maximalen Feldstärke. Für die remanente Dehnung spielt das keine Rolle. Die Änderungen des elektrischen Feldes in der BTS7.5-Schicht könnten z.B. durch Schwankungen der Dicke der Schichten oder den Einfluss der Zwischenschichten verursacht werden.

2.6 Bestimmung des Polungsgrades mit Hilfe der Modellierung des Polungsverhaltens

Die dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften der untersuchten $Ba(Ti, Sn)O_3$ -Keramiken hängen nicht nur vom Zinngehalt, sondern auch vom Polungsfeld und dem daraus resultierenden Polungsgrad ab. Eines der wichtigsten Ziele der Modellierung des Polungsverhaltens von Gradientenmaterialien ist es, Aussagen über die Größe der dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften der Schichten nach dem Polungsprozess zu treffen.

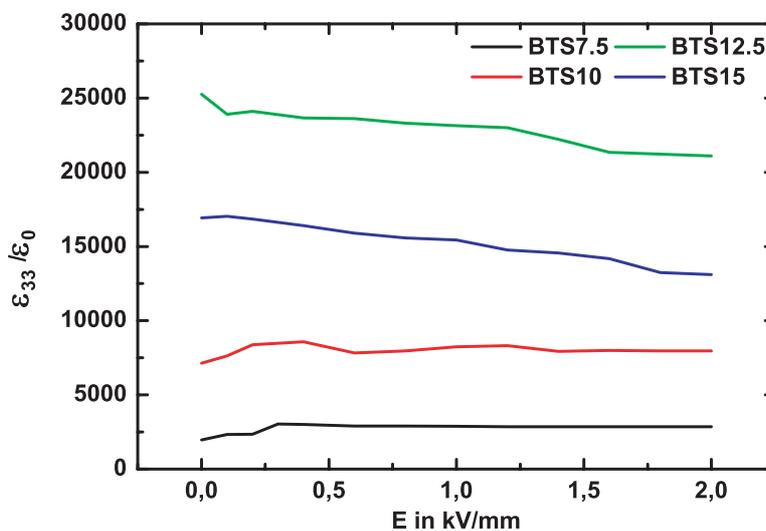


Abbildung 2.18: Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstante von der Polungsfeldstärke für $BaTi_{(1-x)}Sn_xO_3$ -Keramik mit verschiedenem Zinngehalt

Um die Verteilung der piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften der Schichten nach der Polung abzuschätzen, wurde zuerst die Abhängigkeit der Eigenschaften vom Polungsfeld untersucht. Für diese Untersuchungen wurden Proben mit homogenem Zinngehalt verwendet. Zuerst wurden die Dielektrizitätskonstante ϵ_{33} und die piezoelektrischen Koeffizienten d_{33} und d_{31} der Probe im ungepolten Zustand gemessen. Dann wurde die Probe mit einem elektrischen Feld von 0.1 kV/mm teilweise gepolt und unmittelbar anschließend die Koeffizienten wieder gemessen. Dieser Vorgang wurde wiederholt, wobei die Polungsfeldstärke in Schritten von 0.1 kV/mm bis auf 2 kV/mm wurde. In Abb. 2.18 ist der Einfluss der Polungsfeldstärke auf die Dielektrizitätskonstante von BTS7.5, BTS10, BTS12.5, BTS15 dargestellt. Wie man sieht, ist der Unterschied zwischen der Dielektrizitätskonstante im ungepolten und gepolten Zustand der Keramik relativ klein. Im Vergleich dazu ist der Einfluss des Zinngehaltes um ein Vielfaches größer. Die Abhängigkeit des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} ist in Abb. 2.19 dargestellt. Der Koeffizient steigt bei allen vier Zinngehalten mit der Erhöhung der Polungsfeldstärke an.

Für BTS7.5, BTS10, BTS12.5 ist dies bis zu einer Polungsfeldstärke von 1.5 kV/mm zu beobachten. Danach sind die Proben fast vollständig gepolt. Die Keramik mit 15 mol% Sn (BTS15) befindet sich bei Raumtemperatur in der paraelektrischen Phase und besitzt keine piezoelektrischen, sondern nur elektrostriktive Eigenschaften.

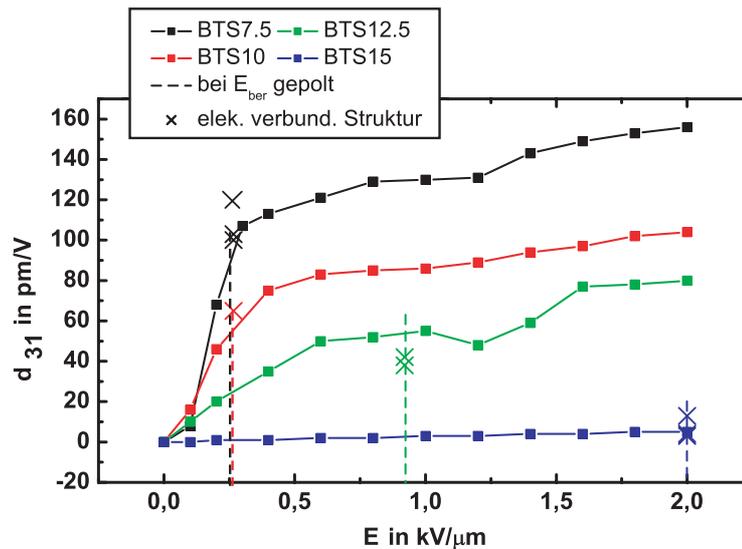


Abbildung 2.19: Abhängigkeit des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} von der Polungsfeldstärke für $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ -Keramik mit verschiedenem Zinngehalt

Parallel zu dieser Untersuchung wurden die dielektrischen und piezoelektrischen Eigenschaften von elektrisch verbundenen Strukturen mit 2, 3 und 4 Schichten gemessen. Die Strukturen wurden zunächst mit dem berechneten Feld \overline{E}_{ber} (s. Gl. (2.3)) 5 Sekunden gepolt. Nach 24 Stunden wurden dann die dielektrischen und piezoelektrischen Koeffizienten der einzelnen Schichten gemessen. In Abb. 2.19 sind die Ergebnisse mit einem Kreuz dargestellt. In diesem Diagramm sind auch die Daten der elektrischen Feldstärke aus Tabelle 2.2 eingetragen (Punktlinie). In erster Näherung stimmen die d_{31} -Koeffizienten der Schichten der elektrisch verbundenen Mehrschichtstrukturen gut mit den Werten der homogenen Materialien überein. Das bestätigt die Annahme, dass bei kurzen Polungszeiten die Polarisation des Schichtsystems durch die Schicht mit der kleinsten maximalen Polarisation - in diesem Fall BTS15 - begrenzt wird. Dabei ist die die Anzahl und Zusammensetzung der anderen Schichten nicht von Bedeutung.

Die größte Abweichung tritt bei der empfindlichsten Neukurve, d.h. BTS7.5, auf. Wiederholte Messungen haben gezeigt, dass die Ursachen der Abweichungen statistische Schwankungen und Messfehler sind, die ungefähr 8% betragen. Trotz dieser Abweichungen ist es immer noch möglich, die Modellierung des Polungsverhaltens der Mehrschichtsysteme zu verwenden, um die Verteilung der piezoelektrischen Eigenschaften in der inhomogenen Keramik nach der Polung abzuschätzen.

2.7 Einfluss der Polungsrichtung auf das Polungsverhalten von $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ basierten Mehrschichtsysteme

Im Unterschied zu homogenen Proben spielt bei der Polung des hier untersuchten Mehrschichtsystems eine große Rolle, an welcher Elektrode die Spannung und an welcher die Masse angeschlossen wurde. Zum Beispiel kann der Bimorph BTS(7.5-15) durch Anlegen des Polungsfeldes in der Richtung des chemischen Gradienten, d.h. $\text{BTS7.5} \rightarrow \text{BTS15}$ oder in der Richtung antiparallel zum Gradient, d.h. $\text{BTS15} \rightarrow \text{BTS7.5}$ gepolt werden.

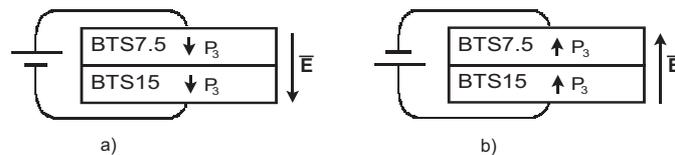


Abbildung 2.20: Kennzeichnung der positiven (a) und negativen (b) Polungsrichtungen

Um die Polungsrichtungen zu unterscheiden wurde die Richtung parallel zum chemischen Gradient als **positive Polungsrichtung** und die antiparallel zum chemischen Gradient als **negative Polungsrichtung** bezeichnet (s. Abb. 2.20).

In Abb. 2.21 ist die ferroelektrische Neukurve von zwei verschieden gepolten monolithischen Bimorphen BTS(7.5-15) dargestellt. Ein Bimorph wurde dabei in positiver

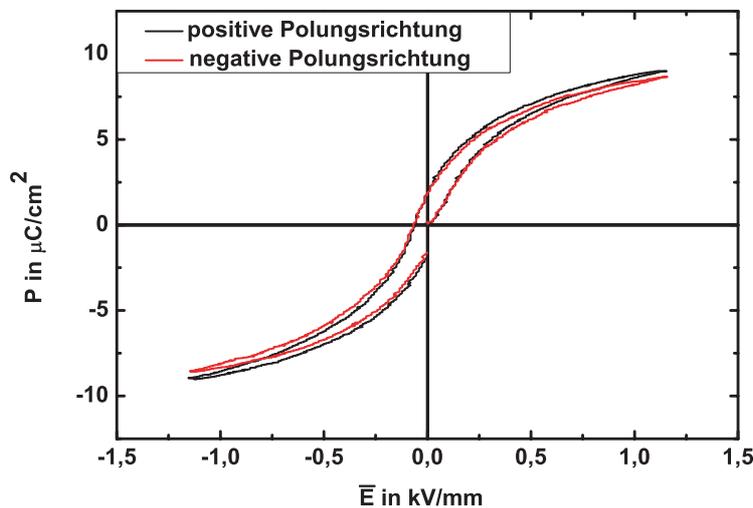


Abbildung 2.21: Neukurven der Polarisation von zwei monolithischen Bimorphen BTS(7.5-15), gepolt in positiver bzw. negativer Polungsrichtung

Richtung gepolt und der andere in negativer Richtung. Die Kurven wurden bei Raumtemperatur und 10 Hz gemessen. Die Neukurven beider Bimorph sind fast gleich und

dieser Fakt ist in guter Übereinstimmung mit der Elektrizitätstheorie, die besagt, dass in jedem Moment die elektrische Verschiebung und damit in erster Näherung auch die Polarisation überall gleich sind (Gl. 3.2) und das unabhängig von der Richtung des elektrischen Feldes. Ein Unterschied ist bereits in der Neukurve der Dehnung S_3 zu erkennen. Hier zeigt der in positiver Richtung gepolte Bimorph eine etwas höhere maximale Dehnung in Feldrichtung (Abb. 2.22).

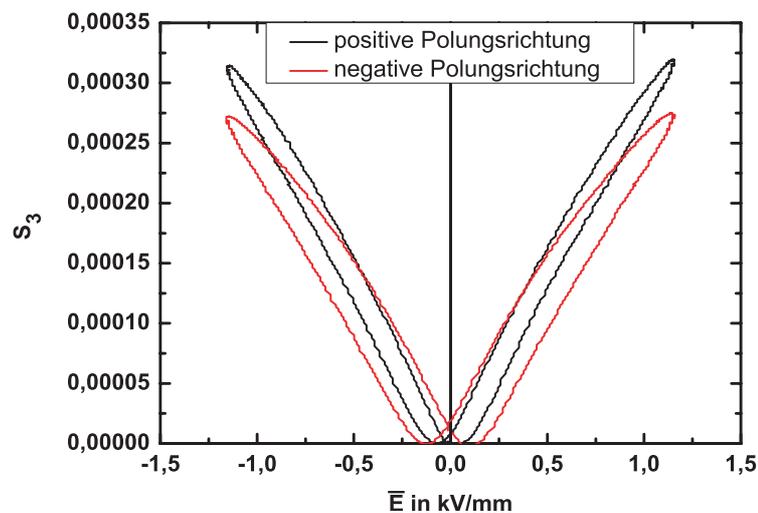
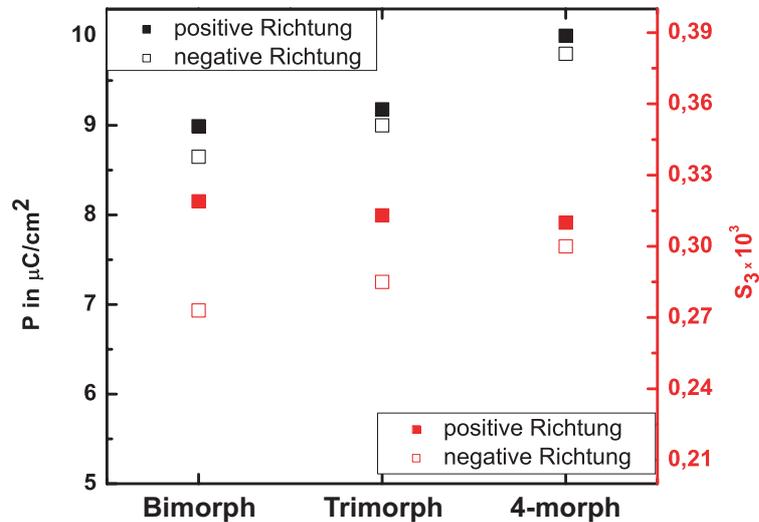


Abbildung 2.22: Neukurven der Dehnung von zwei monolithischen Bimorphen BTS(7.5-15), gepolt in positiver und negativer Polungsrichtung

Die gemessene maximale Polarisation und die maximale Dehnung von monolithischen Bimorph, Trimorph und 4-morph aus der Gruppe II sind in der Abb. 2.23 dargestellt. Bei der Polarisation ist dabei kein Einfluss der Schichtanzahl zu erkennen. Wie beim Bimorph unterscheidet sich beim Trimorph und 4-morph die maximale Polarisation in positiver und negativer Richtung kaum voneinander. Bei der maximalen Dehnung verschwindet der Unterschied zwischen positiv und negativ gepolten Proben mit der Zunahme der Schichtanzahl. Beim 4-morph sind beide Richtungen fast gleichberechtigt. Es ist dabei anzumerken, dass dabei die maximale Dehnung bei positiver Polungsrichtung leicht ab- und bei negativer Polungsrichtung leicht zunimmt. Hier kann man vermuten, dass es für ein ideales Gradientenmaterial keine große Rolle spielen wird, in welcher Richtung es gepolt wurde. Bisher konnte die Ursache dieses Effektes noch nicht geklärt werden. Es ist durchaus möglich, dass die Leitfähigkeit der Schichten oder die Herstellungsbedingungen eine Rolle spielen. Die Untersuchungen müssen weiter fortgesetzt werden. Welche Auswirkungen dieser Effekt auf das Biegeverhalten der Aktuatoren hat, wird in einem späteren Abschnitt diskutiert.



Abbildungung 2.23: Maximale Polarisierung und maximale Dehnung von in positive oder negative Polungsrichtungen gepolten monolithischen Bimorph, Trimorph und 4-morph aus Gruppe II

2.8 Feldabhängigkeit des Polungsverhaltens des auf $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ basierten Mehrschichtsystems

Eine Erhöhung der Polungsfeldstärke in Mehrschichtsystemen führt zur Erhöhung der lokalen Feldstärke in alle Schichten. Betrachten wir das Zweischichtsystem BTS(7.5-15), um eine Vorstellung über den realen Einfluss einer Zunahme der Polungsfeldstärke zu bekommen. Bei einem Anstieg des Polungsfeldes vom ursprünglich berechneten Wert von 1.15 kV/mm auf 2 kV/mm nimmt der Wert der maximalen Polarisierung des Bimorphs von 8.6 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ auf 10.6 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ zu (s. Abb. 2.24). Entsprechend den bisher diskutierten Annahmen ist dieser Wert gleich für die Polarisierung in den einzelnen Schichten. Das Feld in BTS15 steigt dementsprechend von 2 kV/mm auf 3.6 kV/mm an, während es in der BTS7.5-Schicht nur von 0.28 kV/mm auf 0.4 kV/mm zunimmt. Allerdings führt diese Zunahme der Feldstärke in der nur teilweise gepolten Schicht BTS7.5 zu einer Verbesserung der Polung, was sich z.B. in einer Zunahme des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} von 100 pm/V auf 120 pm/V erkennen lässt.

Bei einer maximalen Polungsfeldstärke von 2 kV/mm sollte sich die maximale Polarisierung für Bimorph, Trimorph und 4-morph unterscheiden, da es auf Grund der verschiedenen Schichtzahlen zu einer jeweils anderen Feldverteilung kommt. In Abb. 2.25 sind die Neukurven der monolithischen Systeme aus der Gruppe II dargestellt. Wie man sieht, ist die maximale Polarisierung aller drei Systeme fast gleich. Das kann dadurch erklärt werden, dass bei sehr hohen Feldstärken (mehr als 2 kV/mm) die Polarisierung in der BTS15-Schicht kaum noch ansteigt. Daraus folgt, dass bei einer weiteren Erhöhung der elektrischen Spannung das Feld fast nur in der BTS15 Schicht ansteigen wird. Die-

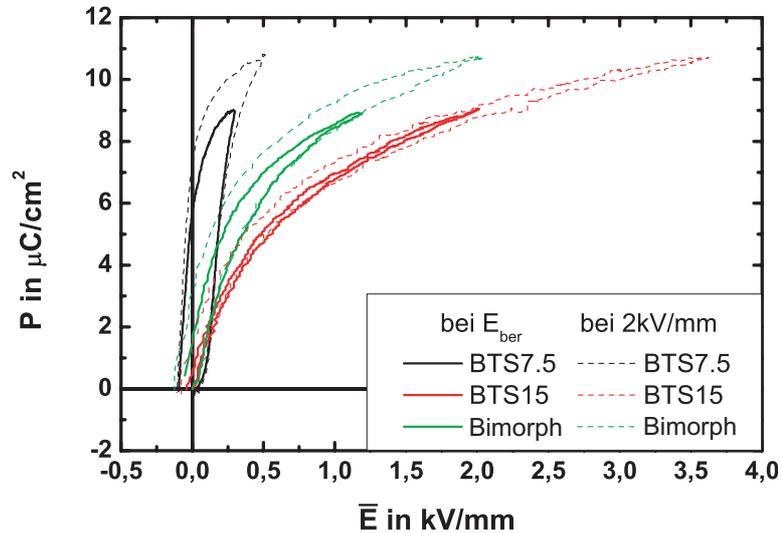


Abbildung 2.24: Neukurven von einzelnen BTS7.5 und BTS15 Keramiken und monolithischem BTS(7.5-15) Bimorph, gemessen bei E_{ber} und 2 kV/mm

ser Effekt ist dabei umso größer, je größer die Anzahl der Schichten ist. Die Feldstärke und damit der Polungsgrad der anderen Schichten wird sich nur sehr wenig ändern und damit von der Anzahl der Schichten kaum beeinflusst. In Tabelle 2.4 sind der Anstieg des elektrischen Feldes und die piezoelektrische Koeffizienten d_{31} für alle Zinngehalt aus Gruppe II dargestellt. Hier sind die Mittelwerte der piezoelektrischen Koeffizienten dargestellt, auf Grund von Schwankungen der maximalen Polarisation können die Werte sich bis zu 10% unterscheiden.

Zinngehalt	$E_3^{(i)}$, kV/mm		d_{31} , pm/V	
	bei E_{ber}	bei 2 kV/mm	bei E_{ber}	bei 2 kV/mm
BTS7.5	0.28	0.4	100	120
BTS10	0.255	0.5	60	80
BTS12.5	1.0	1.6	50	80
BTS15	2	3.6-5.5	2	4

Tabelle 2.4: Verteilung des elektrischen Feldes und der piezoelektrischen Koeffizienten für die Polungsfeldstärken E_{ber} und 2 kV/mm

Neben den piezoelektrischen Kleinsignaleigenschaften d_{31} ist insbesondere auch die maximale Dehnung des Gesamtsystems von der maximalen Feldstärke abhängig. In Abb. 2.26 ist die Dehnung S_3 für monolithische und geklebte Bimorph in Abhängigkeit von der Feldstärke dargestellt. Im Vergleich zur Polarisation, bei der eine Zunahme der Gesamtpolarisation von 25% zu beobachten war, nimmt die Dehnung bei einer Erhöhung der Polungsfeldstärke von E_{ber} auf 2 kV/mm um ca. 50 % zu. Andererseits bleibt die

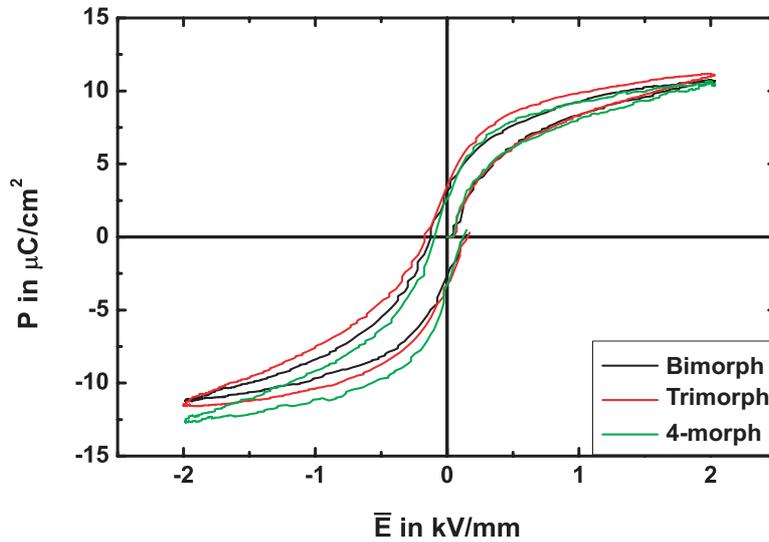


Abbildung 2.25: Neukurven von monolithischen Systemen aus Gruppe II bei 2 kV/mm und 10 Hz

remanente Dehnung auch bei einer Polungsfeldstärke von 2 kV/mm nahezu konstant.

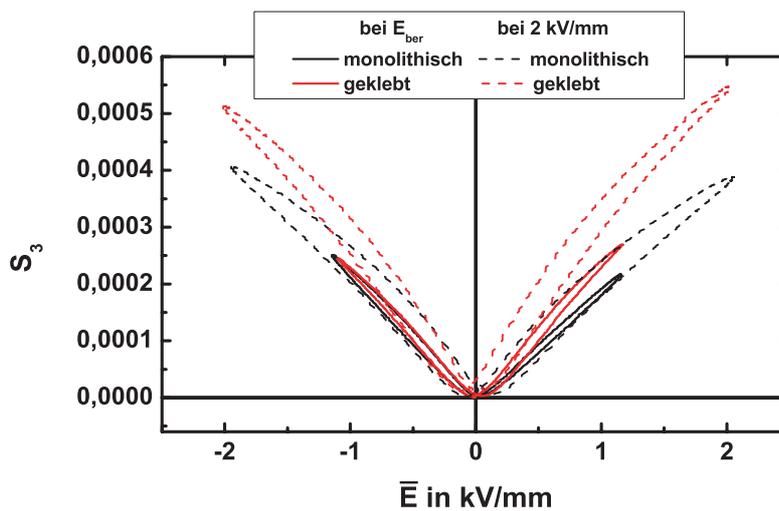


Abbildung 2.26: Die Dehnungskurve von monolithischen und geklebten Bimorph BTS(7.5-15) beim Polungsfeld $E_{ber}=1.15 \text{ kV}/\text{mm}$ und 2 kV/mm

2.9 Polungsverhalten der Mehrschichtsysteme unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit

2.9.1 Modellierung des Polungsverhaltens von Mehrschichtsystemen unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit

Die Polungszeiten, d.h. die Zeit während der das Polungsfeld angelegt ist, waren bei den bisher beschriebenen Untersuchungen nicht länger als 15 Sekunden und können als kurz bezeichnet werden. Diese kurzen Polungszeiten wurden gewählt, um zum einen die folgenden Ergebnisse der Biegeuntersuchungen mit den Messungen der Polarisationsneukurven vergleichen zu können, die auf Grund des Messprinzips der Sawyer-Tower-Schaltung bei Frequenzen von 0.1 Hz und höher gemessen wurden. Zum anderen konnte dadurch bei der Modellierung der Neukurven zunächst die Leitfähigkeit der Keramiken vernachlässigt werden. Andererseits erscheint es notwendig, bei einem längeren Polungsvorgang mit einem Gleichfeld die Leitfähigkeit der Keramik zu berücksichtigen.

Einen ersten Hinweis, dass der Polungsgrad von kurzgepolten Mehrschichtsysteme nicht nur von der Polungsfeldstärke abhängt, sondern auch ein zeitabhängiges Verhalten aufweist, erhielten wir durch die Untersuchung des Biegeverhaltens bei zyklischer Belastung mit relativ hohen Anregungsspannungen. In Abb. 2.27 sind die Auslenkungen eines monolithischen BTS(7.5-15)-Biegeelements dargestellt. Der Bieger wurde zunächst kurzzeitig (5 Sekunden) bei 1.15 kV/mm gepolt. Dann wurde die Auslenkung des freien Endes des einseitig fixierten Biegers gemessen. Eine genaue Beschreibung dieser Messung findet sich im nächsten Kapitel. Der Biegeaktuator wurde dann mit einer unipolaren

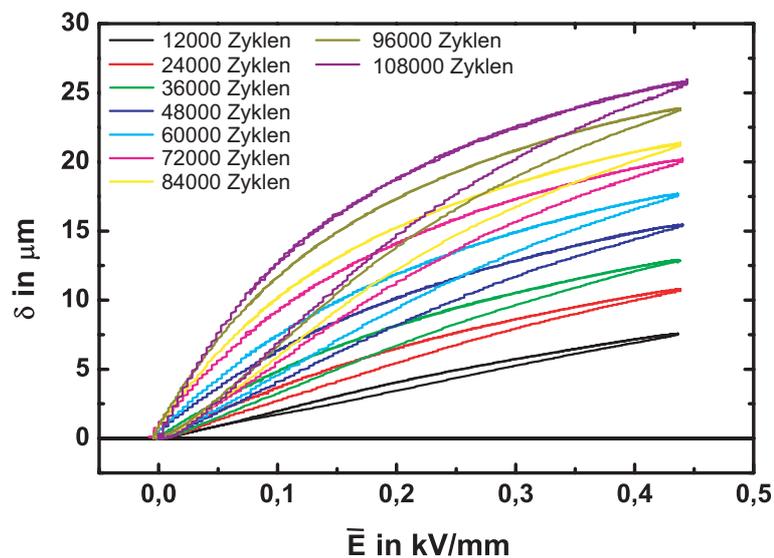


Abbildung 2.27: Abhängigkeit der Auslenkung eines kurzgepolten monolithischen BTS(7.5-15) Aktuators von der Anzahl der Zyklenzahl bei 500 V

elektrischen Spannung von 500 V (0.44 kV/mm) und 137 Hz zyklisch belastet. Nach einem Zyklusintervall von ~ 12000 wurde die Auslenkung erneut gemessen. Dabei wurde festgestellt, dass die maximale Auslenkung mit der Anzahl der Zyklen wesentlich ansteigt und nach 10^6 Zyklen mehr als dreimal höher ist als bei der ersten Messung. Dieser Effekt wurde bei zyklischen Belastungen beobachtet, bei der die Anregungsfeldstärke in der Nähe oder über der Koerzitivfeldstärke der Keramik lag. Eine solche Zunahme der Auslenkung kann nur mit einer zeitabhängigen Veränderung der elektrischen Feldverteilung im Mehrschichtsystem und der damit verbundenen besseren Polung der bisher nur teilweise gepolten piezoelektrisch aktiven Schicht erklärt werden.

Wurde hingegen nur die Polungsfeldstärke geändert, die Polungszeit jedoch mit 5 Sekunden konstant gehalten, konnte zwar eine leichte Zunahme der Auslenkung beobachtet werden, jedoch nicht in dem Maße, wie es durch die Zyklierung erreicht wurde. Im Folgenden soll deshalb kurz am Beispiel eines Zweischichtsystems diskutiert werden, wie sich die Feldstärkeverteilung auf Grund der Leitfähigkeit des Material mit der Zeit ändert. Die Grundidee dieser Modellierung basiert auf der Arbeit von Or et al [100].

Die dielektrische Verschiebung in der i -ten Schicht ergibt sich nach Gl. (2.1) aus

$$D_3^{(i)} = \varepsilon_0 E_3^{(i)} + P_3^{(i)}(E_3^{(i)}), \quad (2.12)$$

wobei das elektrische Feld E_3 und damit auch Polarisierung und Verschiebung zeitabhängige Größen sein können. Bisher wurden Raumladungen im System vernachlässigt. Diese können an den Grenzschichten z.B. durch den Leitfähigkeitsstrom und Polarisationsunterschiede zwischen benachbarten Schichten entstehen [100]. Der gesamte elektrische Strom im System setzt sich zusammen aus dem Verschiebungsstrom und dem Strom, hervorgerufen durch die Leitfähigkeit σ des Materials

$$J_{ges} = \dot{D}_3^{(i)} + \sigma^{(i)} E_3^{(i)} \quad (2.13)$$

und ist in allen Schichten konstant. Setzt man Gl. (2.12) in Gl. (2.13) ein und ersetzt die zeitliche Ableitung der Polarisierung durch

$$\frac{dP(E(t))}{dt} = \frac{dP}{dE} \frac{dE}{dt} = P' \dot{E}, \quad (2.14)$$

dann erhält man für ein Zweischichtsystem die Differentialgleichung

$$\sigma^{(1)} E_3^{(1)} + \varepsilon_0 \dot{E}_3^{(1)} + P_3' \dot{E}_3^{(1)} = \sigma^{(2)} E_3^{(2)} + \varepsilon_0 \dot{E}_3^{(2)} + P_3' \dot{E}_3^{(2)}. \quad (2.15)$$

Aus Gl. (2.7) erhält man

$$\dot{E}_{ber} h = \dot{E}_3^{(1)} h^{(1)} + \dot{E}_3^{(2)} h^{(2)}. \quad (2.16)$$

Bei vorgegebenem Verlauf der angelegten Spannung U_{ges} kann man aus den Gl. (2.15), (2.16) den zeitlichen Verlauf der elektrischen Feldstärke in den beiden Schichten berechnen. Voraussetzung dafür ist wiederum die Kenntnis der Abhängigkeit $P_3(E_3)$ der Keramik, d.h. für die Berechnung des Polungsprozesses von ungepolten Keramiken sind dies die Neukurven der Materialien.

Die Auswirkungen der Berücksichtigung der Leitfähigkeit soll nun am Beispiel des BTS(7.5-15) Systems diskutiert werden. In erster Näherung wird angenommen, dass die Leitfähigkeit $\sigma^{(BTS15)}$, $\sigma^{(BTS7.5)}$ beider Schichten gleich sind. Wie bereits im Abschnitt 2.4.2 beschrieben, fällt der größte Teil der angelegten Spannung über der BTS15-Schicht ab ($E_3^{(BTS15)} > E_3^{(BTS7.5)}$). Auf Grund der höheren Feldstärke ist der Leitfähigkeitsstrom (Gl. (2.13)) in dieser Schicht größer als in der BTS7.5-Schicht. Dadurch beginnen sich gleich nach dem Anlegen der elektrischen Spannung an der Zwischenschicht elektrische Ladungen anzusammeln. Diese ihrerseits beeinflussen die Größe des Feldes in den Schichten. Im hier betrachteten Fall wird die Feldstärke $E_3^{(BTS15)}$ mit der Zeit kleiner und die Feldstärke $E_3^{(BTS7.5)}$ wird größer. Die Änderung der Feldstärke führt wiederum zur Änderungen der Ströme in den Schichten: Der Strom in der BTS15-Schicht wird kleiner und der in der BTS7.5-Schicht größer. Dieser Prozess hält so lange an, bis die Gesamtströme $J^{(BTS15)}$ und $J^{(BTS7.5)}$ in den Schichten gleich sind, d.h.

$$J^{(BTS15)} = J^{(BTS7.5)} \quad (2.17)$$

$$\begin{aligned} \sigma^{(BTS15)} E_3^{(BTS15)} &= \sigma^{(BTS7.5)} E_3^{(BTS7.5)} \\ \frac{\sigma^{(BTS15)}}{\sigma^{(BTS7.5)}} &= \frac{E_3^{(BTS7.5)}}{E_3^{(BTS15)}} = 1. \end{aligned} \quad (2.18)$$

In diesem Sättigungsfall, der nach endlicher Zeit eintritt, werden sich keine weiteren Ladungen an der Zwischenschicht ansammeln und das Verhältnis der elektrischen Feldstärken wird gleich dem reziproken Verhältnis der Leitfähigkeiten sein. Im BTS(7.5-15) System z.B. wird das Feld in den Schichten wegen gleicher Leitfähigkeit auch gleich sein (s. Gl. (2.18)). Die Zeit bis zum Einstellen dieses Gleichgewichtszustandes ist von den absoluten Werten der Leitfähigkeiten abhängig. Je größer diese sind, umso schneller stellt sich das Gleichgewicht ein.

Die für die Modellierung notwendigen Leitfähigkeiten sind für große Feldstärken - wie es bei der Polung der Fall ist - z.Z. noch wenig untersucht. Hier bietet die Modellierung die Möglichkeit, aus dem Fitten experimenteller Daten, Rückschlüsse auf die Leitfähigkeit der Keramik zu ziehen. Das Polungsverhalten von Mehrschichtsystemen unter Berücksichtigung der Leitfähigkeiten wurde mit dem Computeralgebrasystem *Mathematica* von C. Pientschke numerisch gelöst [101]. Die experimentell bestimmten Neukurven der BTS-Keramik wurden hier nicht mit einem Polynom sondern mit einer tanh-Funktion angefitet. Die Ergebnisse der Modellierung werden im Folgenden mit experimentellen Ergebnissen verglichen.

2.9.2 Messung der Feldstärkeverteilung beim Polen mit Gleichfeld

Die Untersuchung der Zeitabhängigkeit des Feldstärkeverteilung in einem Mehrschichtsystem wurde mittels eines hochohmigen Elektrometers Keithley 6514 (200 TΩ Eingangswiderstand) durchgeführt. Damit ist es möglich, die elektrischen Felder in den Schichten während des Polungsvorganges direkt zu messen. Dazu wurden zwei Schichten BTS7.5 und BTS15 elektrisch miteinander verbunden. Will man die Feldstärke in

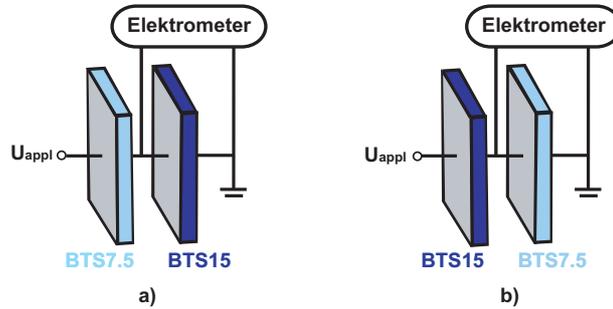


Abbildung 2.28: Schematische Darstellung der Verbindung der Proben mit dem Elektrometer mit **a)** positive und **b)** negative angelegter Spannung

beiden Schichten bei gleicher Feldrichtung messen, so muss man die Schichten vertauschen und gleichzeitig das Vorzeichen der angelegten Spannung ändern. So kann man, wenn das Feld in positiver Richtung (Abb. 2.28 **(a)**) angelegt ist, die Spannung in der BTS15-Schicht messen, und wenn das Feld in negativer Richtung (Abb. 2.28 **(b)**) angelegt ist, die Spannung in der BTS7.5-Schicht messen. Die experimentellen Ergebnisse wurden mit der Modellierung verglichen und Abschätzungen zur Leitfähigkeit der Keramik durchgeführt. Die Abb. 2.29 zeigt den zeitlichen Verlauf der elektrischen Felder in den beiden Schichten bei einer angelegten Gleichspannung von 1.4 kV. Dabei wurde

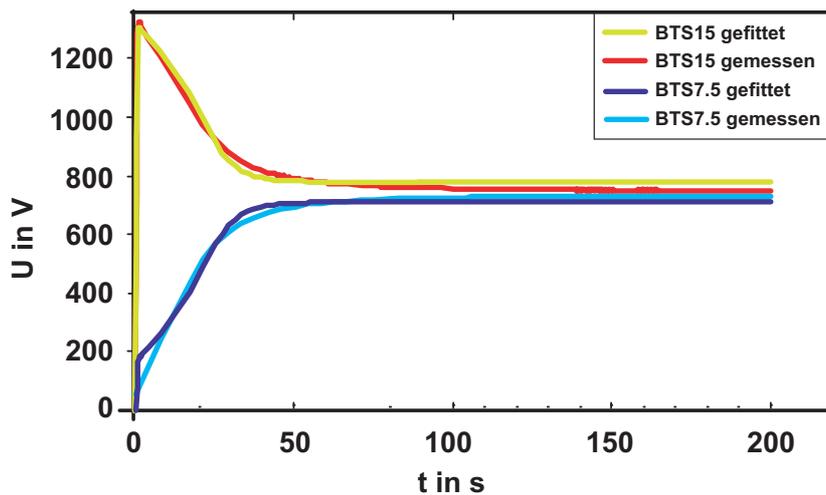


Abbildung 2.29: Gemessener und modellierter zeitlicher Verlauf der Feldstärken im Bimorph BTS(7.5-15) während der Polung mit Gleichspannung

die Spannung in einer Schicht direkt gemessen, die Spannung in der anderen Schicht wurde aus der Differenz zur angelegten Spannung bestimmt. Die Feldstärken am Beginn der Messung entsprechen den Feldern, die bei der Modellierung ohne Leitfähigkeit als Maximalwerte berechnet wurden. Dies ist ein weiterer Beweis für die Zulässigkeit dieser Modellierung, da unmittelbar nach dem Einschalten des Polungsfelds die Leitfähigkeit zunächst keine Rolle spielt. Im weiteren Verlauf steigt die Feldstärke in der bis dahin unvollständig gepolten Schicht BTS7.5 weiter an, bis es nach zirka einer Minute zu einem Sättigungszustand kommt, die Feldstärken in beiden Schichten sind annähernd gleich groß. Der Anstieg der Feldstärke in der BTS7.5 Schicht ist mit einer Zunahme der Polarisation verbunden. Durch Anfitzen der experimentellen Daten, wurde eine Leitfähigkeit der BTS-Keramiken von ca. $2 \cdot 10^{-9} (\Omega m)^{-1}$ bestimmt.

Kapitel 3

Biegeverhalten von Gradientenmaterialien

In diesem Kapitel wird die Modellstruktur eines Biegeelements aus der Gradientenmaterialien vorgestellt. Danach wird die Biegetheorie für diese Modellstruktur eingeführt und das Biegeverhalten von Aktuatoren analysiert. Die Ergebnisse werden mit Resultaten der Analyse mittels Finite-Elemente-Methode (FEM) und experimentellen Ergebnissen von geklebten und monolithischen Aktuatoren aus Gruppe I und II verglichen.

3.1 Verteilung des elektrischen Feldes in seriell verbundenen Ferroelektrika bei niedrigen elektrischen Spannungen

Biegeelemente werden häufig bei kleinen elektrischen Spannung unterhalb der Koerzitivfeldstärke betrieben. In diesem Abschnitt wird die Verteilung des elektrischen Feldes in seriell verbundenen Ferroelektrika bei niedriger Anregungsspannung beschrieben.

Handelt es sich um homogene Ferroelektrika, hängt die elektrische Feldstärke E nur von der angelegten Spannung U zwischen den Elektroden und der Dicke h der Probe ab.

$$E_3 = \frac{U}{h}. \quad (3.1)$$

Wie bekannt, ist die Feldstärke in jedem Punkt des Ferroelektrikums zwischen den Elektroden homogen und hängt nicht von den dielektrischen Eigenschaften des Materials ab. Das gilt nur für den Fall, dass die Dielektrizitätskonstante des Materials ist überall konstant und die Leitfähigkeit vernachlässigt werden kann ($\sigma = 0$). Wenn zwei Ferroelektrika mit unterschiedlichen Dielektrizitätskonstanten elektrisch seriell verbunden werden, dann wird sich die elektrische Feldstärke in beiden Ferroelektrika unterscheiden. Das entsprechende Ersatzschaltbild besteht aus zwei in Serie geschalteten Kondensatoren. Es leicht zu zeigen, dass die elektrische Feldstärke in jedem Ferroelektrikum nur von der Dielektrizitätskonstante und der Dicke abhängig ist. Das gilt allerdings nur für niedrige elektrische Spannungen, wo der Zusammenhang zwischen elektrischer Feldstärke

und Polarisation linear ist. In diesem Fall ist die elektrische Verschiebung im Innern des Ferroelektrikums immer konstant und gleich der Ladungsdichte auf der Elektrode.

$$D_3 = \varepsilon_0 \varepsilon_{33}^{(1)} E_3^{(1)} = \varepsilon_0 \varepsilon_{33}^{(2)} E_3^{(2)}, \quad (3.2)$$

$$\varepsilon_{33}^{(1)} E_3^{(1)} = \varepsilon_{33}^{(2)} E_3^{(2)}. \quad (3.3)$$

Dabei ist ε_0 die absolute Dielektrizitätskonstante und $\varepsilon_{33}^{(i)}$ die Dielektrizitätskonstante des Materials. Bezeichnen wir die Dicke der ersten Schicht als $h^{(1)}$, der zweiten als $h^{(2)}$ und die Spannungen in den Schichten als $U_3^{(1)}$ und $U_3^{(2)}$, dann ergibt sich die Gesamtspannung U_{ges} aus

$$U_{ges} = U_3^{(1)} + U_3^{(2)} = h^{(1)} E_3^{(1)} + h^{(2)} E_3^{(2)}. \quad (3.4)$$

Aus Gl. (3.3) und (3.4) ergibt sich die jeweilige Spannung in den beiden Schichten

$$\begin{aligned} E_3^{(1)} &= \varepsilon_{33}^{(2)} \frac{U_{ges}}{h^{(1)} \varepsilon_{33}^{(2)} + h^{(2)} \varepsilon_{33}^{(1)}} \\ E_3^{(2)} &= \varepsilon_{33}^{(1)} \frac{U_{ges}}{h^{(1)} \varepsilon_{33}^{(2)} + h^{(2)} \varepsilon_{33}^{(1)}}. \end{aligned} \quad (3.5)$$

Wenn die Dicken der beiden Schichten gleich sind $h^{(1)} = h^{(2)} = h/2$ (h ist die Gesamtdicke), lässt sich Gl. (3.5) umformen zu

$$E_3^{(1)} = \frac{U_{ges}}{h} \frac{2\varepsilon_{33}^{(2)}}{\varepsilon_{33}^{(2)} + \varepsilon_{33}^{(1)}} = E_3 \frac{2}{\varepsilon_{33}^{(1)} \left(\frac{1}{\varepsilon_{33}^{(1)}} + \frac{1}{\varepsilon_{33}^{(2)}} \right)}. \quad (3.6)$$

$$E_3^{(2)} = \frac{U_{ges}}{h} \frac{2\varepsilon_{33}^{(1)}}{\varepsilon_{33}^{(2)} + \varepsilon_{33}^{(1)}} = E_3 \frac{2}{\varepsilon_{33}^{(2)} \left(\frac{1}{\varepsilon_{33}^{(1)}} + \frac{1}{\varepsilon_{33}^{(2)}} \right)}. \quad (3.7)$$

Wie man sieht, ist die Feldstärke in jeder Schicht abhängig vom Verhältnis zwischen den Dielektrizitätskonstanten $\varepsilon_{33}^{(1)}$ und $\varepsilon_{33}^{(2)}$. In der Schicht mit höheren Dielektrizitätskonstante wird die Feldstärke niedriger und umgekehrt, in der Schicht mit kleiner Dielektrizitätskonstante wird die Feldstärke größer. Für einen Kondensator aus N Schichten, wird das Feld in jeder Schicht durch folgende Gleichung beschrieben

$$E_3^{(i)} = \frac{U_{ges}}{h \varepsilon_{33}^{(i)} \sum_{i=1}^N \frac{1}{\varepsilon_{33}^{(i)}}} = \frac{E_3}{\varepsilon_{33}^{(i)} \sum_{i=1}^N \frac{1}{\varepsilon_{33}^{(i)}}}. \quad (3.8)$$

3.2 Biegeaktuatoren mit Mehrschichtstruktur

3.2.1 Beschreibung der Modellstruktur

Klassische piezoelektrische Biegeelemente bestehen aus zwei oder mehr zusammen geklebten Schichten mit verschiedener dielektrischen, piezoelektrischen und elastischen Eigenschaften. Wird ein elektrisches Feld an einen solchen Aktuator angelegt, dann werden sich die oberen(unteren) Schichten verkürzen und die unteren(oberen) sich verlängern und der Aktuator wird sich biegen. Der Unterschied zwischen der Position des freien Endes eines einseitig fixierten Aktuators vor und beim Anlegen des Feldes wird durch die Auslenkung δ beschrieben.

Während der Biegung wird die mechanische Spannung \mathbf{T} im Aktuator stark ansteigen, weil sich eine Seite jeder Schicht verlängert und sich die andere Seite gleichzeitig verkürzt. In jedem Biegeaktuator existiert eine Ebene, die sich nicht verlängert oder verkürzt, wenn der Aktuator gekrümmt ist. Das Flächenträgheitsmoment dieser Ebene ist bei der Biegung gleich null und die Ebene selbst wird als **neutrale Achse** bezeichnet.

Im Unterschied zu konventionellen Biegeelementen sind die in dieser Arbeit untersuchten keramischen Aktuatoren mit einem Funktionsgradienten monolithisch und die Bereiche mit konstanten Eigenschaften können nicht deutlich voneinander unterschieden werden. Um das Biegeverhalten von monolithische Aktuatoren zu modellieren, wird das Biegeelement in erster Näherung als Mehrschichtstruktur mit N Schichten angenommen, wobei die Materialeigenschaften in jeder dieser Schichten konstant sind. Die

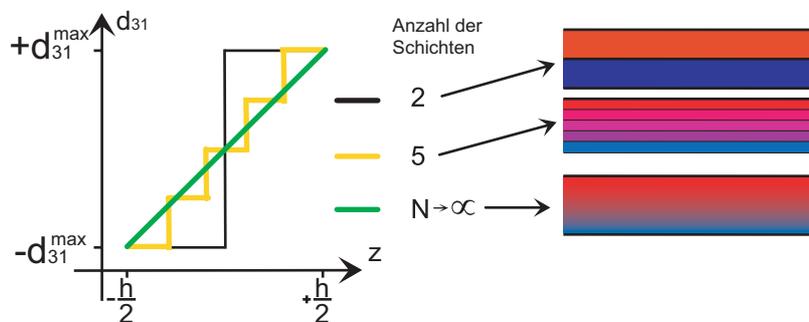


Abbildung 3.1: Verteilung des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} für Aktuatoren aus 2 bzw. 5 Schichten und aus Gradientenmaterialien.

Schichten werden von unten nach oben gezählt, die unterste Schicht hat die Nummer 1, die oberste Schicht die Nummer N . Das Koordinatensystem sind so gewählt, dass die x -Achse in Längsrichtung und die z -Achse in Dickenrichtung der Probe zeigt. Die Abmessungen jeder Schicht sind konstant. Die Gesamtdicke ist h , die Dicke der i -ten Schicht ist $h^{(i)} = h/N$, Länge und Breite sind mit L bzw. w bezeichnet. Die Randbedingung für das Modell der Biegung einer solchen Struktur ist, dass die Länge viel größer als die Breite und die Breite viel größer als die Gesamtdicke ist, d. h. $L \gg w \gg h$ (s. Abb. 3.2). Die Bedingung $L \gg w$ erlaubt es außerdem, den Einfluss der Querbiegung

δ_y auf die Auslenkung δ zu vernachlässigen. Es wird angenommen, dass die obere und

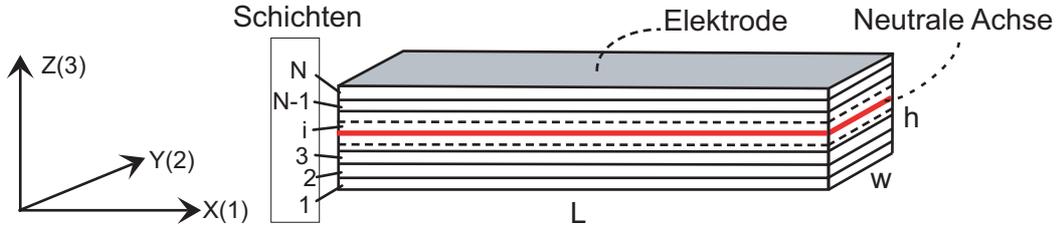


Abbildung 3.2: Modellstruktur eines piezoelektrischen Biegeaktuators

untere Schicht komplett und in einander entgegengesetzter Richtung gepolt sind. Die Polungsrichtung wird dabei durch ein unterschiedliches Vorzeichen gekennzeichnet. Dieses ist im Verhältnis zum angelegten elektrischen Feld zu sehen. Ist der piezoelektrische Koeffizient d_{31} negativ, so ist die Schicht in Richtung des angelegten Feldes gepolt. Ist das Vorzeichen positiv, so ist das angelegte Feld entgegengesetzt zur Polungsrichtung. Die inneren Schichten sind nur teilweise gepolt. Der Unterschied der piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} zwischen benachbarten Schichten ist konstant. Der piezoelektrische Koeffizient der i -ten Schicht ist demzufolge

$$d_{31}^{(i)} = d_{31}^{max} \left(\frac{2(i-1)}{N-1} - 1 \right). \quad (3.9)$$

3.2.2 Grundlagen der Biegetheorie

Die in diesem Abschnitt vorgestellte Biegetheorie beruht auf der Theorie für piezoelektrische Biegeelemente von Michael A. Marcus [25]. Wird an einen Aktuator, wie er im vorherigen beschrieben wurde, ein elektrisches Feld in Richtung der Dicke (z -Achse) angelegt, so wird auf Grund der inhomogenen Verteilung des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} eine Biegung des Aktuators erzeugt. Diese Biegung erfolgt relativ zur neutralen Achse (s. Abb. 3.3). Dabei ist n eine Zahl zwischen 0 und 1 und bezeichnet den Anteil (in Prozent) des Aktuators über der neutralen Achse. Die Position der neutralen Achse kann aus der Gleichgewichtsbedingung für die mechanischen Trägheitsmomente oberhalb und unterhalb der Achse bestimmt werden. Für Balken mit einem großen Verhältnis von Länge und Dicke wird der Biegeradius konstant und die neutrale Achse kann durch die folgende Gleichung gefunden werden

$$\frac{1}{R} \int_{-\frac{h}{2}}^{+\frac{h}{2}} Y_p(z) z dz = 0. \quad (3.10)$$

wo R der Biegeradius und $Y_p(z)$ der Elastizitätsmodul oder Youngsche Modul sind. Letzterer charakterisiert das Verhältnis zwischen mechanischer Spannung und Dehnung.

Betrachten wir zwei Querschnitte AB und $A'B'$ des Aktuators, die im ungebogenen Zustand den Abstand dx voneinander haben (s. Abb. 3.3). Bei einer Biegung ändert sich der Abstand auf der neutralen Achse nicht, der Winkel zwischen beiden Querschnitten ergibt sich aus $d\phi = \frac{dx}{R}$, wobei R der Biegeradius der neutralen Achse ist. Die relative

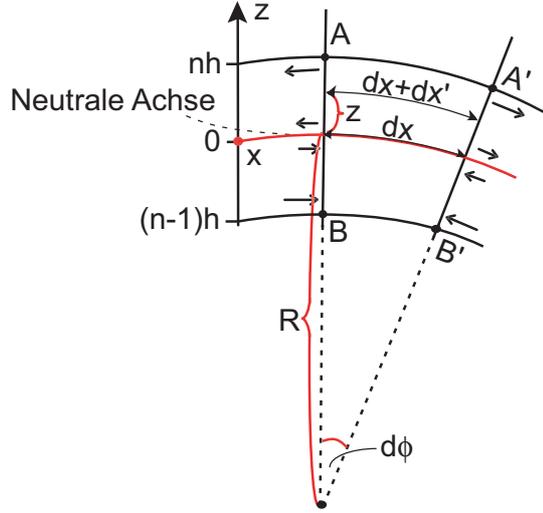


Abbildung 3.3: Verteilung der Deformation bei der Biegung

Dehnung S_1 einer im Abstand z von der neutralen Achse befindlichen Schicht ist

$$S_1 = \frac{dx'}{dx} = \frac{(R+z)d\phi - Rd\phi}{dx} = z \frac{d\phi}{dx} = \frac{z}{R}. \quad (3.11)$$

Weiterhin muss ein von außen erzeugtes Biegemoment gleich dem inneren Biegemoment sein. Für eine freie Biegung mit einem äußeren Biegemoment gleich Null gilt

$$\int_{-\frac{h}{2}}^{+\frac{h}{2}} z T_1(z) dA = 0, \quad (3.12)$$

wo $T_1(z)$ die mechanische Spannung und $dA = wdz$ die Elementarfläche mit der Breite w ist. Wird ein zweidimensionaler Spannungszustand angenommen ($T_3 = T_4 = T_5 = T_6 = 0, T_1 \neq 0, T_2 \neq 0$), ergibt sich die Dehnung eines piezoelektrischen Material aus einem mechanischen und piezoelektrischen Anteil

$$S_1 = s_{11}T_1(z) + s_{12}T_2(z) + d_{31}(z)E_3(z) \quad (3.13)$$

mit den elastischen Nachgiebigkeiten des Materials s_{11} und s_{12} sowie dem piezoelektrischen Koeffizient $d_{31}(z)$ und der elektrischen Feldstärke E_3 als Funktion der Dicke.

Unter der Wirkung eines elektrischen Feldes wird sich der Aktuator nicht nur in der z -Richtung (3) und x -Richtung (1), sondern auch in y -Richtung (2) dehnen und sich demzufolge nicht nur in der Ebene \mathbf{xz} , sondern auch in der Ebene \mathbf{yz} biegen (s.

Abb. 3.4). Die Biegung in der Ebene \mathbf{yz} ist sehr klein wegen der im Vergleich zur Länge \mathbf{L} kleinen Breite \mathbf{w} . Sie hat fast keine Einfluss auf die gesamte Auslenkung in der Richtung (3). Andererseits entsteht durch diese Biegung eine Spannungskomponente T_2 , die genauso groß ist wie die Komponente T_1 und deshalb nicht vernachlässigt werden kann. Dies unterscheidet diesen Ansatz von der Theorie von Marcus [25], die auf einem 1-dimensionalen Spannungszustand beruht. In piezoelektrischen Keramiken sind

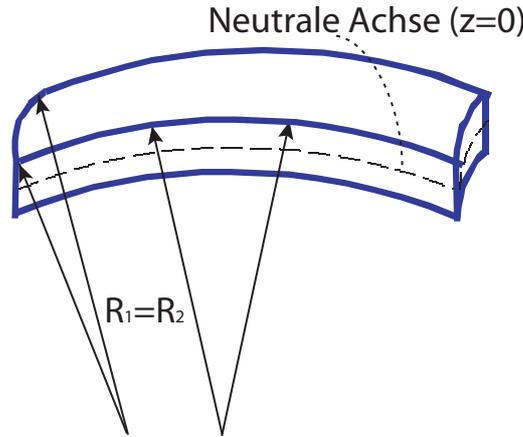


Abbildung 3.4: Zweidimensionale Biegung des Aktuators beim Anlegen eines elektrischen Feldes E_3

die piezoelektrischen Koeffizienten rotationssymmetrisch zur Polungsachse, demzufolge ist $d_{31} = d_{32}$. Wenn $L \ll h$ und $w \ll h$ erfüllt sind, sind beide Biegeradien $R_1 = R_2$ gleich und als Konsequenz $T_1 = T_2$. Da die mechanische Spannung T_2 nicht gleich null ist, wird die Dehnung S_1 höher.

Der in Gl. (3.10) verwendete Youngsche Modul ergibt sich bei Vernachlässigung der Scherspannungen und der Spannung T_3 aus

$$Y_p(z) = \frac{1}{s_{11} + s_{12}}. \quad (3.14)$$

Nach Einsetzen der Gl. (3.11), (3.13), (3.14) in Gl. (3.12) folgt nach einigen Umformungen

$$\frac{1}{R} = \frac{\int_{(n-1)h}^{nh} Y_p(z) d_{31}(z) E_3(z) z dz}{\int_{(n-1)h}^{nh} Y_p(z) z^2 dz}. \quad (3.15)$$

Die Auslenkung am freien Ende eines piezoelektrischen Aktuators mit der Länge \mathbf{L} ergibt sich aus

$$\delta = R(1 - \cos L/R). \quad (3.16)$$

Da der Biegeradius viel größer als die Länge des Aktuators ist und deshalb der Winkel

L/R sehr klein ist, vereinfacht sich mit der Näherung

$$\cos x = 1 - x^2/2 \quad (3.17)$$

die Gl. (3.16) zu

$$\delta = \frac{L^2}{2R}. \quad (3.18)$$

Setzt man in diese Gleichung die Gl. (3.15) ein, so erhält man für die Auslenkung eines piezoelektrischen Aktuators mit inhomogen verteilten Eigenschaften

$$\delta = \frac{L^2}{2R} = \frac{L^2 \int_{(n-1)h}^{nh} Y_p(z) d_{31}(z) E_3(z) z dz}{2 \int_{(n-1)h}^{nh} Y_p(z) z^2 dz}. \quad (3.19)$$

3.2.3 Biegeradius und Auslenkung

Berechnen wir den Biegeradius und die Auslenkung von oben beschriebenem Aktuator mit Mehrschichtstruktur aus der Abb. 3.2. Zunächst wird der Einfachheit halber angenommen, dass der Youngsche Modul Y_p in jeder Schicht gleich ist, d.h. der Aktuator eine symmetrische Struktur hat. Dann folgt aus Gl. (3.10), dass $z_{min} = -\frac{h}{2}$ und $z_{max} = \frac{h}{2}$ ist. Nehmen wir weiterhin an, dass die Dielektrizitätskonstante konstant ist. Daraus folgt, dass das elektrische Feld E_3 in jeder Schicht gleich ist. Der piezoelektrische Koeffizient $d_{31}^{(i)}$ der i -ten Schicht wird nach Gl. (3.9) berechnet. Wird dies in die Gleichung für den Biegeradius (3.15) eingesetzt, erhält man

$$\begin{aligned} \frac{1}{R} &= \frac{E_3 Y_p \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2} + \frac{h}{N}} d_{31}^{(1)} z dz + \dots + E_3 Y_p \int_{-\frac{h}{2} + (i-1)\frac{h}{N}}^{\frac{h}{2} + i\frac{h}{N}} d_{31}^{(i)} z dz + \dots +}{Y_p \int_{-\frac{h}{2}}^{+\frac{h}{2}} z^2 dz} \\ &\quad + \frac{E_3 Y_p \int_{-\frac{h}{2} + (N-1)\frac{h}{N}}^{\frac{h}{2} + \frac{h}{2}} d_{31}^{(N)} z dz}{Y_p \int_{-\frac{h}{2}}^{+\frac{h}{2}} z^2 dz} = \frac{6E_3 d_{31}^{max}}{hN^2(N-1)} \sum_{i=1}^N (2i - N - 1)^2, \end{aligned} \quad (3.20)$$

beziehungsweise

$$\frac{1}{R} = \frac{2E_3 d_{31}^{max}}{h} \left(\frac{N+1}{N} \right). \quad (3.21)$$

Durch Einsetzen der Gl. (3.21) in Gl. (3.19) bekommt man die Auslenkung als Funktion von der Anzahl der Schichten

$$\delta(N) = \frac{E_3 L^2 d_{31}^{max}}{h} \left(\frac{N+1}{N} \right). \quad (3.22)$$

Die Auslenkung nimmt also monoton mit der Anzahl der Schichten ab, strebt für große N jedoch einen Grenzwert an. Die größte Auslenkung wird mit einem Bieger mit $N=2$

Schichten (Bimorph) erzielt

$$\delta(N = 2) = \frac{E_3 L^2 d_{31}^{max}}{h} \left(\frac{3}{2} \right). \quad (3.23)$$

Ein Aktuator mit einem idealen Gradienten der piezoelektrischen Eigenschaften kann als Schichtstruktur mit einer unendlichen Anzahl der Schichten angenommen werden. Seine Auslenkung beträgt somit

$$\delta(N = \infty) = \frac{E_3 L^2 d_{31}^{max}}{h} .. \quad (3.24)$$

und beträgt somit 2/3 der Auslenkung eines Bimorphs.

3.2.4 Die mechanische Spannung im Aktuator während der Biegung

Die Komponente T_1 der mechanischen Spannung ist wie bereits erläutert ortsabhängig und kann durch Umformen der Gl. (3.13) berechnet werden

$$T_1(z) = Y_p(z)S_1(z) - Y_p(z)d_{31}(z)E_3(z). \quad (3.25)$$

Der piezoelektrische Koeffizient d_{31} ändert sich nur beim Übergang von einer Schicht zur anderen und bleibt innerhalb einer Schicht konstant. Ein solches Verhalten ist leicht als Abhängigkeit von der Nummer der Schicht i zu beschreiben (s. Gl. 3.9). Aber für die Untersuchung der Verteilung der mechanischen Spannung während der Biegung ist es notwendig, den Koeffizienten d_{31} als Funktion von der Koordinate $\mathbf{z} \in [z_{min} \dots z_{max}]$ darzustellen. Eine Möglichkeit ist die Anwendung der Funktion $\text{INT}(x)$, die den ganzzahligen Anteil der Zahl liefert.

In Gl. (3.9) wurde der piezoelektrische Koeffizient d_{31} der i -ten Schicht als Funktion von i dargestellt. Eine Abhängigkeit von der z -Koordinate ($\mathbf{z} \in [z_{min} \dots z_{max}]$) kann durch Verwendung der Funktion $\text{INT}(x)$ dargestellt werden, die den ganzzahligen Anteil der Zahl x liefert

$$d_{31}(z) = \left(\frac{2}{(N-1)} \text{INT} \left[N \left(\frac{z}{h} + \frac{1}{2} \right) \right] \right). \quad (3.26)$$

Das Einsetzen der Gl. (3.9), (3.11) und (3.26) in Gl. (3.25) folgt

$$T_1(N, z) = E_3 d_{31}^{max} Y_p \left(\frac{2z(N+1)}{hN} - \left(\frac{2}{N-1} \text{INT} \left[N \left(\frac{z}{h} + \frac{1}{2} \right) \right] - 1 \right) \right). \quad (3.27)$$

Es kann gezeigt werden, dass die mechanische Spannung ihr Maximum beim Übergang zwischen der ersten und letzten Schicht bzw. der vorletzten und letzten Schicht hat. Die detaillierten Ergebnisse dieser Untersuchung sind im nächsten Abschnitt grafisch dargestellt. Betrachtet man das Maximum der Spannung T_1 an der Grenzfläche zwischen erster und zweiter Schicht $z = \dots$, dann kann es in Abhängigkeit von der Anzahl der

Schichten mit folgender Gleichung berechnet werden

$$T_1^{max}(N) = E_3 Y_p d_{31}^{max} \left(\frac{N + 2}{N^2} \right). \tag{3.28}$$

Genau wie die Auslenkung nimmt auch die maximale mechanische Spannung mit wachsender Anzahl der Schichten monoton ab. Der Grenzwert für $N = \infty$ ist hier jedoch 0. Ein Biegeaktuator mit einem idealen Gradienten der piezoelektrischen Eigenschaften hat zwar eine um 1/3 geringere Biegung als ein herkömmlicher Bimorph, ist jedoch nahezu spannungsfrei. Dies könnte zu einer Verlängerung der Lebenszeit und Verbesserung der Zuverlässigkeit des Aktuators führen.

3.3 Analytische und numerische Untersuchung des Biegeverhaltens von Aktuatoren

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der analytischen Untersuchung mit Hilfe der Gl. (3.11-3.28) dargestellt. Ein Teil davon werden mit Ergebnissen der Modellierung mit der Finite-Elemente-Methode (FEM) verglichen.

Der Hauptunterschied zwischen analytischer und numerischer Untersuchung ist, dass die analytische Näherung 1-dimensional ist, lediglich die Spannungskomponente T_2 wird bei der Berechnung der Dehnung S_1 berücksichtigt. Bei der Finiten-Elemente-Methode FEM wird das Problem hingegen vollständig 3-dimensional gelöst, d.h. auch Scherkomponenten und die Biegung in y-Richtung (Breite) werden berücksichtigt. Das untersuchte Biegeelement hat in entgegengesetzten Richtungen gepolte Schichten. Es wurden bei beiden Modellierungsmethoden die gleichen Abmessungen (freie Länge, Dicke), sowie die gleiche Anregungsspannung verwendet. Die piezoelektrischen Konstanten d_{31} wurden in den Schichten nach Gl. 3.9 variiert. Die anderen piezoelektrischen Koeffizienten d_{33} und d_{15} wurden analog angepasst. Die dielektrischen und elastischen Koeffizienten sind gleich für alle Schichten. In Tabelle 3.1 sind die für die Modellierung verwendeten Größen dargestellt.

Anzahl der Schichten (N)	2 bis 11
Abmessung, mm	L=14.8, w=4, h=1.32
Piezoelek. Koeffizienten, pm/V	$d_{33}=160, d_{31}=-73, d_{15}=250$
Dielektrizitätskonstante / ϵ_0	$\epsilon_{33} = 1950$
Elastische Koeffizienten	$s_{12}^E, s_{11}^E = 166GPa$
Angelegte elektrische Spannung	100 V

Tabelle 3.1: Für analytische und numerische Berechnungen verwendete Abmessungen und Materialkoeffizienten

3.3.1 Berechnung der Auslenkung

Wenn von Auslenkung die Rede ist, dann ist immer die Auslenkung des freien Endes des Biegeelements gemeint. Der Abstand zwischen dem Probenhalter (s. Abb. 1.10) und dem freien Ende des Aktuator wird als die **freie Länge** bezeichnet und bei der analytischen Berechnung (hier Gl. (3.22)) verwendet. An dieser Stelle sei nochmals darauf hingewiesen, dass es sich sowohl bei der analytischen Berechnung als auch bei der FEM um lineare Modelle handelt. Die Ergebnisse also nur für kleine elektrische Felder und kleine Auslenkungen gültig sind. Das Vorzeichen des piezoelektrischen Koeffizienten beschreibt die Polungsrichtung kann und für unterschiedliche Schichten verschieden sein.

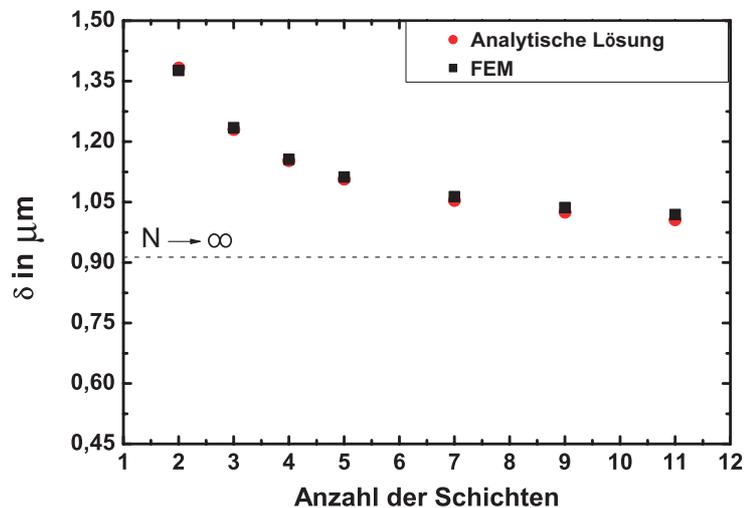


Abbildung 3.5: Abhängigkeit der Auslenkung von der Anzahl der Schichten für Bimorph, Trimorph und 4-morph. Die gestrichelte Linie ist die Auslenkung bei unendlicher Schichtanzahl

In Abb. 3.5 ist die Abhängigkeit der Auslenkung von der Anzahl der Schichten dargestellt. Die analytische Berechnung ist in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der FEM. Das bedeutet, dass die in der analytischen Theorie gemachte eindimensionale Näherung ausreichend genau für die Beschreibung des 3-dimensionalen Biegeverhaltens ist.

Für beide Methoden nimmt die Auslenkung mit dem Anstieg der Anzahl der Schichten monoton ab. Der maximale Wert der Auslenkung wird für zwei Schichten erreicht. Die Auslenkung bei einer unendlichen Anzahl der Schichten bzw. einem linearen Gradienten ist mit einer gestrichelten Linie gekennzeichnet und ist nur um $1/3$ kleiner als die maximale Auslenkung, d.h. sie beträgt $2/3$ des Bimorphs.

Der Vorteil der analytischen Näherung besteht neben einer schnelleren Neuberechnung bei Änderung der Parameter auch in der Möglichkeit, einen idealen Gradienten ($N \rightarrow \infty$) zu modellieren. Mit Hilfe der FEM kann nur eine endliche Zahl von Schichten

realisiert werden. In dieser Arbeit wurden Modelle mit maximal 11 Schichten berechnet. Andererseits erlaubt die FEM, die Spannungsverteilung und Auslenkung in jedem Punkt des Aktuators zu berechnen und zu visualisieren (s. Abb. 3.6).

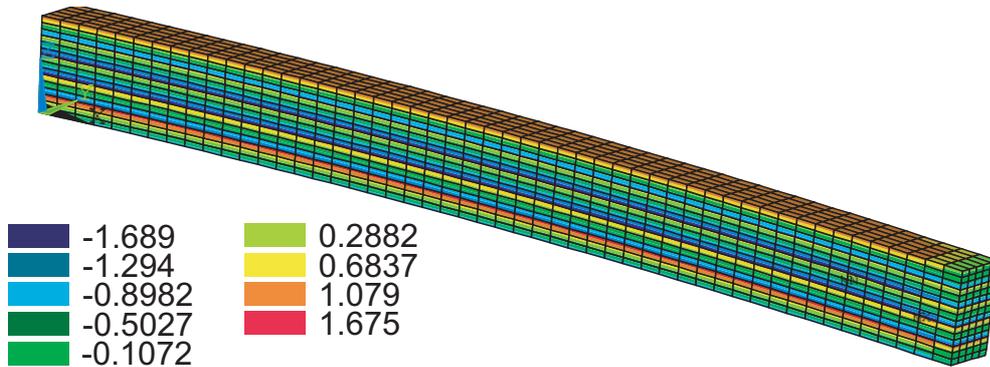


Abbildung 3.6: Visualisierung der Verteilung der Spannung T_1 eines Biegers ($N=5$) mit FEM

3.3.2 Verteilung der mechanischen Spannung

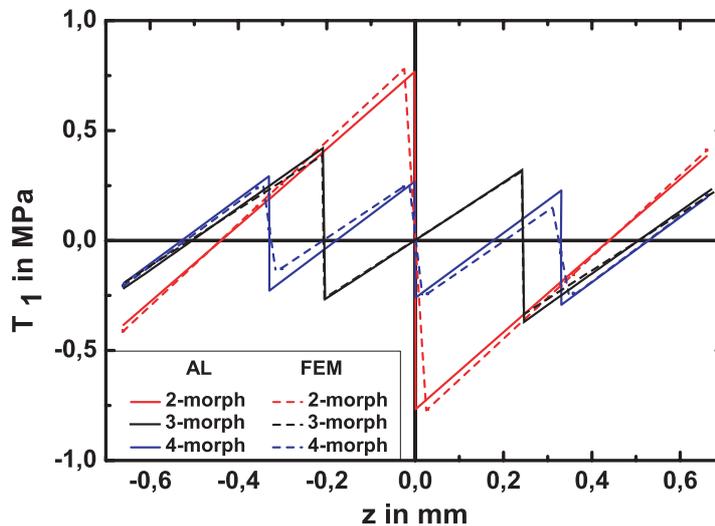


Abbildung 3.7: Verteilung der mechanischen Spannung T_1 , berechnet mit analytischer Näherung und FEM

Die Verteilung der mechanischen Spannung T_1 entlang der Dicke in Bimorph, Trimorph und 4-morph ist in Abb. 3.7 dargestellt. Die analytischen Kurven sind mit Hilfe der Gl. (3.27) berechnet. Wie auch bei der Auslenkung ist die analytische Berechnung

in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der FEM. Die mechanische Spannung ist in allen drei Aktuatoren nicht monoton verteilt. Jeweils an den Grenzflächen der Schichten kommt es zu Sprüngen zwischen Zug- und Druckspannung. Das passiert, weil sich bei der Biegung gleichzeitig eine Seite jeder Schicht verlängert und die andere Seite sich verkürzt (Abb. 3.8). Das Problem bei klassischen, geklebten Aktuatoren ist deshalb, dass die maximalen mechanischen Spannung genau an der schwächsten Stelle, nämlich der Klebeschicht auftreten.

Die maximale Spannung in allen drei Aktuatoren tritt jeweils an der Grenze zwischen den letzten oberen bzw. unteren Schichten auf. Wie man sieht, reduziert sich die mechanische Spannung im Aktuator deutlich mit zunehmender Anzahl der Schichten. Schon für den 4-morph, ist die maximale Spannung zweimal kleiner als die im Bimorph.

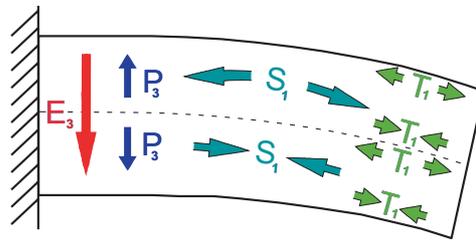


Abbildung 3.8: Zug- und Druckspannungen T_1 an der Grenze zwischen zwei Schichten

3.3.3 Maximale mechanische Spannung

In Erweiterung zur Theorie von Marcus wurde in der Biegetheorie in Abschnitt 3.2.2 zusätzlich zur mechanischen Spannungskomponente T_1 auch die Spannungskomponente T_2 eingeführt und damit eine Biegung in Richtung **(2)** (der Breite) berücksichtigt. Da die Breite im Vergleich zur Länge sehr klein ist, kann der Einfluss auf die Auslenkung vernachlässigt werden. Jedoch ist der Einfluss dieser nun zweidimensionalen Biegung auf die maximale mechanische Spannung nicht vernachlässigbar. In Abb. 3.9 ist die Verteilung der mechanischen Spannung in einem Trimorph (3-Schicht-System) für die verschiedenen Modellierungen dargestellt. Die erste analytische Näherung wurde nach der Theorie von Marcus ohne die Spannungskomponente T_2 berechnet. Bei der zweiten analytischen Näherung nach Gl. (3.25) wurde diese berücksichtigt. Das Ergebnis ist wie bereits gezeigt in guter Übereinstimmung mit der FEM-Modellierung. Die Näherung ohne T_2 Komponente liefert für das Maximum der mechanischen Spannung um 55 % kleinere Werte als die FEM-Modellierung. Das bedeutet, dass die Näherung des eindimensionalen Spannungszustandes (constant strain) bei Marcus für reale Bieger mit einer endlichen, von Null verschiedenen Ausdehnung in **(2)**-Richtung zwar für die Berechnung der Biegeauslenkung ausreichend ist, bei den mechanischen Spannungen aber zu kleine Werte liefert. Die maximale mechanische Spannung als Funktion von der Anzahl der Schichten ist in Abb. 3.10 dargestellt. Die Berechnung wurde bis N gleich 11 durchgeführt. Eine

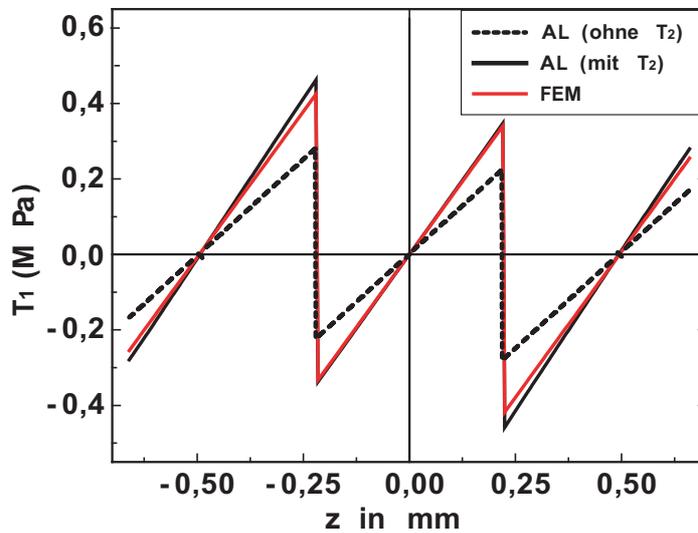


Abbildung 3.9: Ohne und mit Spannungskomponente T_2 berechnete Verteilungen der mechanischen Spannung im Trimorph im Vergleich zur FEM

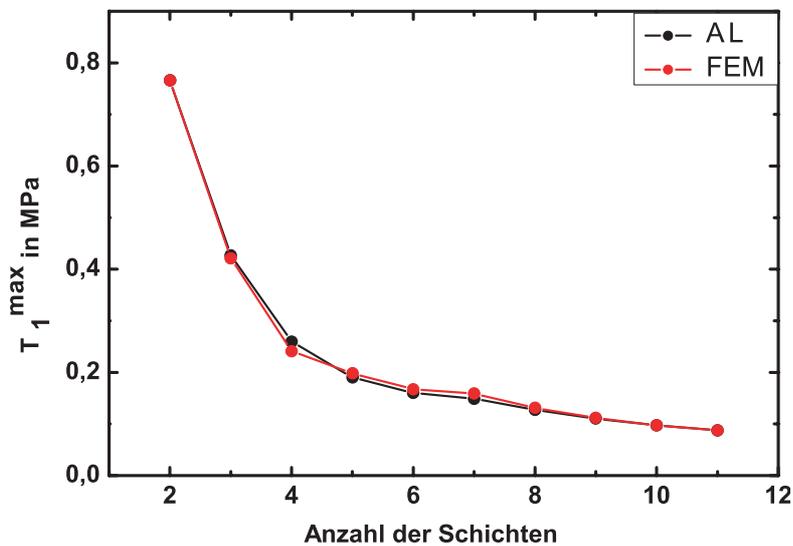


Abbildung 3.10: Abhängigkeit der maximalen mechanische Spannung von der Anzahl der Schichten, berechnet mit analytischer Näherung und FEM

größere Anzahl von Schichten wäre mit der FEM nur mit sehr großem rechentechnischem Aufwand zu modellieren gewesen. Beide Methoden zeigen die gleiche monotone Abnahme der maximalen Spannung mit dem Anstieg der Anzahl der Schichten. Bei einer

weiteren Erhöhung der Schichtzahl N nähert sich die maximale mechanische Spannung gegen Null, d.h. für Aktuatoren aus Gradientenmaterialien (mit unendlicher Anzahl der Schichten) sollten die mechanischen Spannungen im Inneren theoretisch verschwinden. Praktisch bedeutet dies, dass die maximale Spannung für solche Aktuatoren sehr gering ist.

Der Vergleich der Abhängigkeiten der maximalen Spannung und der maximalen Auslenkung von der Anzahl der Schichten zeigt, dass die Verwendung von Gradientenmaterial in Biegeaktuatoren deren Lebenszeit vergrößern und ihre Zuverlässigkeit verbessert kann. Der Verlust bei der Auslenkung beträgt hingegen nur $1/3$.

Wie bereits gezeigt, hat der Bimorph bei gleichen maximalen Piezokoeffizienten in den äußeren Schichten die höchste Auslenkung. Um die gleiche Auslenkung mit höheren Schichtzahlen zu erreichen, kann die Anregungsspannung erhöht werden. Die Frage ist, in welchem Maße sich dabei die maximale mechanische Spannung erhöhen wird. Die Abb. 3.11 zeigt die benötigte Anregungsspannung für Aktuatoren mit 3 bis 11 Schichten, um die gleiche Auslenkung wie beim Bimorph zu erreichen. Gleichfalls sind die bei diesen Anregungsspannungen auftretenden maximalen mechanischen Spannungen dargestellt. Alle Berechnungen wurden mit Hilfe der analytischen Näherung durchgeführt. Obwohl die Anregungsspannung mit zunehmender Schichtzahl erhöht werden muss, um die Auslenkung konstant zu halten, nimmt die maximale mechanische Spannung trotzdem deutlich ab. Das bedeutet also, dass im Gradientenmaterial bei gleicher oder sogar höherer Biegung eine geringere maximale mechanische Spannung auftritt als beim klassischen Bimorph.

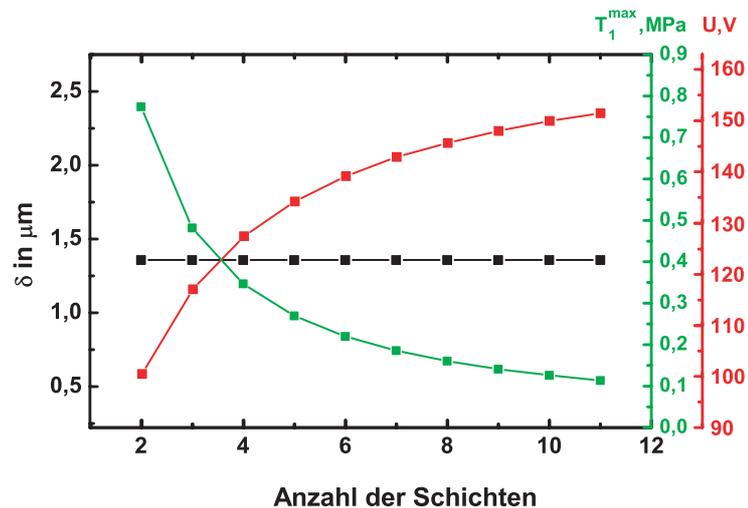


Abbildung 3.11: Maximale Anregungsspannung und maximale mechanische Spannung in Abhängigkeit von der Anzahl der Schichten bei konstanter Auslenkung. Der Wert der Auslenkung ist gleich der Auslenkung eines Bimorphs bei 100 V, d.h. $1.357 \mu\text{m}$

3.4 Aktuatoren mit nichtlinearer, kontinuierlicher Verteilung des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31}

In diesem Abschnitt wird der Einfluss der Verteilung der piezoelektrischen Eigenschaften auf das Biegeverhalten besprochen. Der Hauptunterschied zwischen dem klassischen, geklebten Biegeelement und dem Aktuator aus Gradientenmaterialien ist, dass bei letzterem die Funktion der Verteilung der elektromechanischen Eigenschaften kontinuierlich ist. Im Abschnitt 3.2.2 wurde der piezoelektrische Koeffizient d_{31} als Funktion von der Anzahl bzw. Nummer der Schichten dargestellt. Bei dieser Stufenfunktion wurde der Übergang zum Gradientenmaterial durch einen Grenzübergang $N \rightarrow \infty$ realisiert. Dadurch erhält man jedoch nur eine lineare Verteilung des Koeffizienten d_{31} entlang der Koordinate z (Dicke). Zur allgemeineren Beschreibung der Verteilung wurde die folgende Funktion mit dem Parameter k verwendet

$$d_{31}(z) = d_{31}^{max} \frac{|z|}{z} \left(\frac{|z|}{z} \frac{2z}{h} \right)^k . \tag{3.29}$$

mit $k \in [0; \infty]$. In Abb. 3.12 ist der piezoelektrische Koeffizient d_{31} als Funktion von z für verschiedene Werte von k dargestellt. Wie man sieht, beschreibt die Funktion $d_{31}(z)$ für $k = 0$ die Verteilung des piezoelektrischen Koeffizienten im geklebten Bimorph. Für

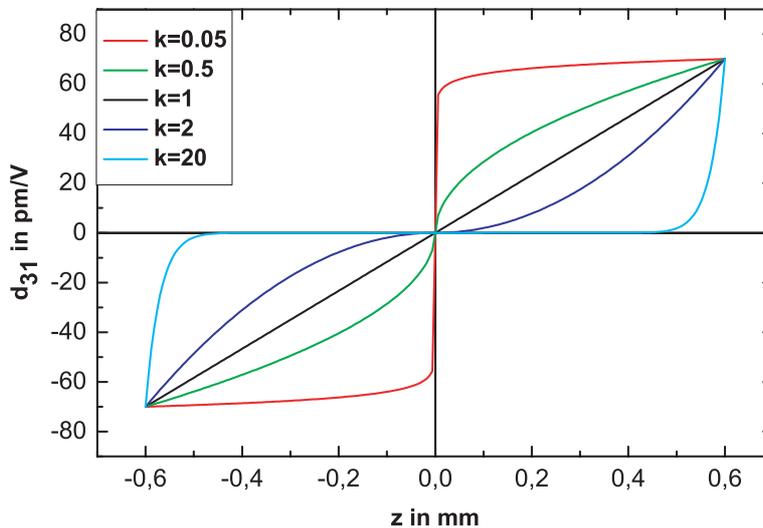


Abbildung 3.12: Graphische Darstellung der Gl. (3.29)

$k = 1$ erhält man die lineare, kontinuierliche Verteilung von $d_{31}(z)$. Obwohl Auslenkung und mechanische Spannung auch von den elastischen und dielektrischen Eigenschaften abhängig sind, wurde in diesem Abschnitt nur der piezoelektrische Koeffizient variiert.

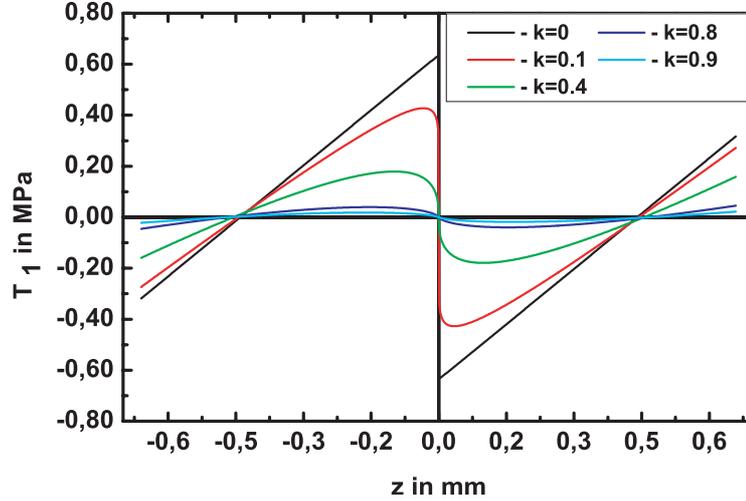


Abbildung 3.13: Die Verteilung der mechanischen Spannung bei verschiedenen Koeffizienten \mathbf{k} aus Gl. (3.31)

Das Einsetzen der Gl. (3.29) in Gl. (3.19) liefert für die Auslenkung

$$\delta(k) = \frac{3L^2 d_{31}^{max} E_3}{(2+k)h}. \quad (3.30)$$

Daraus folgt, dass mit steigendem \mathbf{k} die Auslenkung reduziert wird. Die maximale Auslenkung wird bei $\mathbf{k}=0$, d.h. für den klassischen Bimorph erreicht. Für einen linearen kontinuierlichen Gradienten bei $\mathbf{k}=1$ ist die Auslenkung um $1/3$ kleiner als die des Bimorphs.

Das Einsetzen der Gl. (3.30) in Gl. (3.25) liefert

$$T_1(z, k) = E_3 Y_p d_{31}^{max} \left(\frac{6z}{(2+k)h} - \left(\frac{2z}{h} \right)^k \right). \quad (3.31)$$

In Abb. 3.13 ist die Verteilung der mechanischen Spannung für verschiedene Koeffizienten \mathbf{k} dargestellt. Die Verteilung der mechanische Spannung als Funktion der Koordinate \mathbf{z} ist ähnlich wie bei der Abhängigkeit von der Anzahl der Schichten. Die sprunghafte Änderung der piezoelektrischen Koeffizienten im Bimorph erzeugt die größte mechanische Spannung. Je mehr sich die Verteilung der Eigenschaften der linearen annähert ($\mathbf{k} \rightarrow 1$), desto kleiner wird die maximale Spannung. Für $\mathbf{k}>1$ nimmt die maximale mechanische Spannung wieder zu. Die Untersuchung der Gl. (3.31) auf ihr Maximum liefert zwei Gleichungen

$$T_1^{max}(k) = E_3 Y_p d_{31}^{max} \left(\frac{k-1}{2+k} \right) \quad (k>1) \quad (3.32)$$

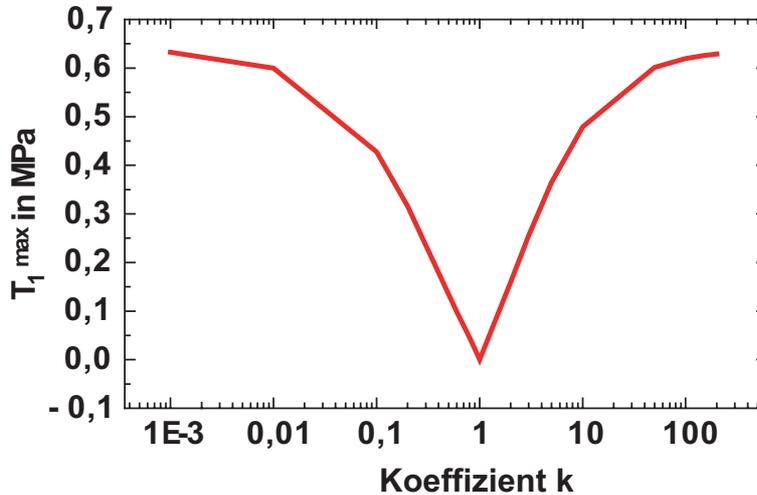


Abbildung 3.14: Maximale mechanische Spannung als Funktion des Koeffizienten k

$$T_1^{max}(k) = E_3 Y_p d_{31}^{max} \left(\frac{3}{2k + k^2} \right)^{\frac{1}{k-1}} \left(\frac{3}{2+k} - \left(\frac{3}{2k + k^2} \right)^k \right). \quad (k < 1) \quad (3.33)$$

Die Abhängigkeit der maximalen Spannung vom Parameter k für ein Zweischichtsystem ($N = 2$) ist in Abb. 3.14 dargestellt. Die Abnahme der mechanische Spannung mit der Annäherung an die lineare, kontinuierliche Verteilung der piezoelektrischen Eigenschaften ist in guter Übereinstimmung mit der Modellierung im Abschnitt 3.3.

Allgemein kann gesagt werden, dass eine Verringerung der mechanischen Spannung immer mit einer Verringerung der Auslenkung verbunden ist. Die beiden Extremfälle sind die stufenweise Verteilung, wie sie im klassischen geklebten Bimorph verwendet wird. Hier haben sowohl Auslenkung als auch mechanische Spannung ihr Maximum. Das andere Extrem ist ein Material mit einem idealen linearen Gradienten, in dem die mechanische Spannung auf ein Minimum reduziert wird, allerdings auch die Auslenkung geringer wird. Diese kann jedoch - wie gezeigt - durch eine höhere Anregungsspannung kompensiert werden.

In weiteren Untersuchungen müsste noch der Einfluss der dielektrischen und elastischen Eigenschaften einbezogen werden. Da jedoch der piezoelektrische Koeffizient das Biegeverhalten am stärksten beeinflusst, wurde darauf in dieser Arbeit verzichtet.

3.5 Analytische Analyse des Einflusses der dielektrischen Eigenschaften auf das Biegeverhalten

Wird der Funktionsgradient bei der Herstellung durch einen chemischen Gradient realisiert, so ändern sich im allgemeinen nicht nur die piezoelektrischen, sondern auch die

dielektrischen und elastischen Eigenschaften. Im folgenden soll der Einfluss der dielektrischen Koeffizienten auf das Biegeverhalten untersucht werden.

Nehmen wir an, dass die Dielektrizitätskonstante $\varepsilon_{33}^{(i)}$ innerhalb jeder Schicht konstant ist, aber sich von Schicht zu Schicht unterscheidet. Eine konstante Dielektrizitätskonstante bedeutet aber auch, dass der Zusammenhang zwischen Polarisation und Feldstärke linear ist. Dies gilt nur für kleine Feldstärken. Wir nehmen weiterhin an, dass die elastischen Eigenschaften für alle Schichten konstant sind.

Die Verteilung der Dielektrizitätskonstante verursacht eine unterschiedliche Feldstärke E_3 in den einzelnen Schichten. Die Feldstärke in der i -ten Schicht ergibt sich aus

$$E_3^{(i)} = \frac{U_{ges}}{\varepsilon_{33}^{(i)} \sum_{i=1}^N \frac{h^{(i)}}{\varepsilon_{33}^{(i)}}} = \frac{U_{ges} \varepsilon_{eff}}{\varepsilon_{33}^{(i)}} \quad (3.34)$$

mit der effektiven Dielektrizitätskonstante

$$\frac{1}{\varepsilon_{eff}} = \sum_{i=1}^N \frac{h^{(i)}}{\varepsilon_{33}^{(i)}}. \quad (3.35)$$

Das Einsetzen der Gl. (3.34) in die Gl. (3.19) liefert nach einigen Umformungen eine Formel zur Berechnung der Auslenkung von Aktuatoren mit unterschiedlichen piezoelektrischen und dielektrische Eigenschaften

$$\delta = \frac{3L^2 U_{ges} \varepsilon_{eff}}{hN^2} \sum_{i=1}^N \frac{d_{ij}^{(i)} (2i - N - 1)}{\varepsilon_{33}^{(i)}}. \quad (3.36)$$

Der piezoelektrische Koeffizient in unserem Aktuator ändert sich vom Minimum bis Null und von Null bis zum Maximum (s. Abb. 3.1). Andererseits, je größer die Dielektrizitätskonstante der einzelnen Schicht ist, desto kleiner wird das elektrische Feld in dieser Schicht. Das bedeutet, um eine maximale Dehnung zu induzieren, sollte die Dielektrizitätskonstante der Schicht mit dem größten piezoelektrischen Koeffizient am kleinsten sein. Umgekehrt sollte die Schicht mit dem kleinsten piezoelektrischen Koeffizienten die größte Dielektrizitätskonstante haben. Bei einer optimalen Verteilung der dielektrischen Eigenschaften im Verhältnis zu den elektromechanischen kann die Differenz zwischen maximaler und minimaler Dehnung vergrößert und damit das Biegeverhalten verbessert werden.

Der Einfluss der Verteilung der Elastizitätskonstanten auf das Biegeverhalten wird hier nicht detailliert diskutiert, da sich die elastischen Eigenschaften im Vergleich zu den dielektrischen und piezoelektrischen im hier untersuchten Mischsystem $BaTiO_3 - BaSnO_3$ nur relativ geringfügig ändern. So ändert sich die elastische Nachgiebigkeit s_{11}^E im Bereich zwischen $6 \cdot 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ und $13 \cdot 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$. Im Vergleich dazu ändern sich die mit dielektrischen bzw. piezoelektrische Koeffizienten um ein Vielfaches.

3.6 Geklebte Aktuatoren aus BaTiO₃-Keramik

Mit der Biegetheorie wurden die Zusammenhänge zwischen angelegter Spannung und der Auslenkung oder der mechanischen Spannung dargestellt. Da mit unseren Messmethoden keine Möglichkeit besteht, die mechanische Spannung direkt zu messen, wurde nur die Abhängigkeit der Auslenkung von verschiedenen Parametern experimentell untersucht. Die experimentellen Ergebnisse wurden mit den analytischen Lösungen und der FEM verglichen. Die ersten Aktuatoren, die für die experimentellen Untersuchungen gebaut wurden, waren der klassische Bimorph sowie Trimorph und 4-morph. Bei dieser Art Aktuatoren unterschieden sich nur die piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} und d_{33} von Schicht zur Schicht durch entgegengesetztes oder teilweises Polen. Die Dielektrizitätskonstante änderte sich durch das Polen relativ gering, die Elastizitätskonstanten wurden als konstant betrachtet. Mit Hilfe dieser Aktuatoren sollte die Modellierung durch experimentelle Daten überprüft werden.

3.6.1 Die Struktur von Aktuatoren aus BaTiO₃-Keramik

Bei den in diesem Abschnitt untersuchten Aktuatoren bestanden alle Schichten aus undotierter grobkörniger BaTiO₃-Keramik, die mit dem klassischen Mixed-Oxide Verfahren hergestellt wurde. Die Schichten wurden einzeln geschnitten, geschliffen und mit Aluminium elektrodiert. Am Ende hatten alle Schichten folgende Abmessung: Länge 20 mm, Breite 4 mm und Gesamtdicke 1.2 mm. Die einzelnen Schichten hatten eine Dicke von $1.2/N$ mm (N ist die Anzahl der Schichten). Die Schichten wurden einzeln mit verschiedenen elektrischen Polungsfeldstärken gepolt. Stärke und Richtung des Polungsfelds wurde variiert, um die nötigen Unterschiede in den piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften der Schichten zu erhalten. Die äußersten Schichten wurden jeweils bei 2 kV/mm in entgegengesetzter Richtungen gepolt. Beim Trimorph wurde die mittlere Schicht nicht gepolt. Beim 4-morph hingegen wurden die zwei mittleren Schichten nur teilweise, aber auch in entgegengesetzten Richtungen, gepolt. Die Polungsfeldstärke wurde so gewählt, dass ihre piezoelektrischen Koeffizienten nur halb so groß wie die der vollständig gepolten äußeren Schichten waren. Die Werte der piezoelektrischen und dielektrischen Kleinsignaleigenschaften der Schichten wurden jeweils 24 Stunden nach dem Polen gemessen. In Tabelle 3.2 sind die gemittelten Werte mehrerer Proben dargestellt. Abschließend wurden die Schichten mit einem leitfähigen Zweikomponentenkleber zu einer Mehrschichtstruktur zusammengeklebt (s. Abb. 3.15). Die Koeffizienten wurden

Aktuator	piezoelektrische und dielektrische Koeffizienten von Schichten							
	$d_{31}, pm/V$	ϵ_{33}	$d_{31}, pm/V$	ϵ_{33}	$d_{31}, pm/V$	ϵ_{33}	$d_{31}, pm/V$	ϵ_{33}
Bimorph	62	2006	-	-	-	-	-72	1974
Trimorph	62	1908	0	1781	-	-	-63	1890
4-morph	61	1921	32	1825	-31	1835	-60	1867

Tabelle 3.2: Die piezoelektrischen und dielektrischen Koeffizienten der einzelnen Schichten von geklebten Bimorph, Trimorph und 4-morph

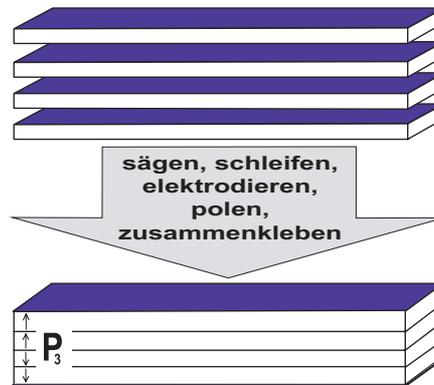


Abbildung 3.15: Graphische Darstellung der Herstellung der geklebten Aktuatoren

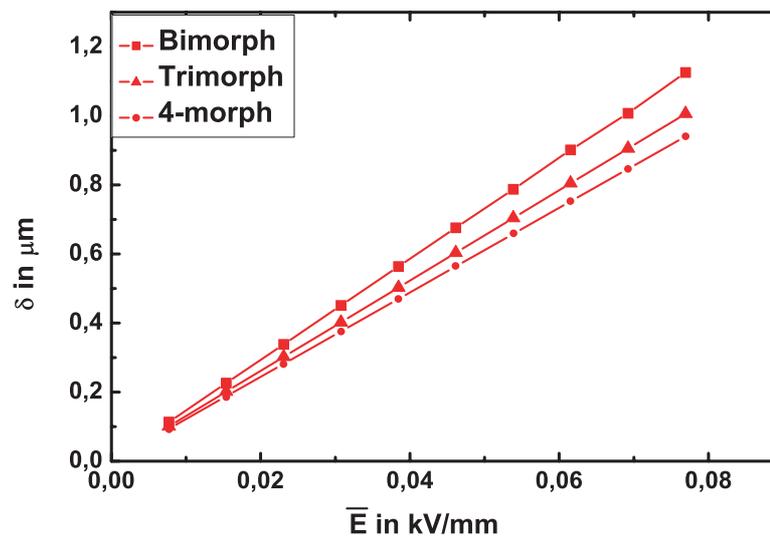


Abbildung 3.16: Abhängigkeit der Auslenkung der geklebten Bimorph, Trimorph und 4-morph von der elektrischen Feldstärke (analytische Näherung)

zur Berechnung der Auslenkung mit der Biegetheorie verwendet. Obwohl alle Schichten aus reiner BaTiO_3 Keramik sind, unterscheiden sich die Kleinsignaleigenschaften von Probe zu Probe auf Grund normaler statistischer Schwankungen wie sie von Keramiken bekannt sind (Schwankungen bei der Kornverteilung und Korngröße). Die mit der analytischen Näherung berechnete Abhängigkeit der Auslenkung von der Anregungsspannung ist in Abb. 3.16 dargestellt. Da in der hier betrachteten linearen Biegetheorie alle Parameter unabhängig von der Anregungsspannung U sind, ist auch die Auslenkung linear von U abhängig. Die Einflüsse verschiedener Parameter werden in den nächsten Abschnitten zusammen mit den experimentellen Ergebnissen diskutiert.

3.6.2 Biegeverhalten von Aktuatoren aus BaTiO₃

In Abb. 3.17 ist die Biegeauslenkung eines geklebten Bimorphs dargestellt, gemessen bei verschiedenen elektrischen Anregungsspannungen. Die Auslenkung wurden immer bei Raumtemperatur und 137 Hz gemessen. Wegen geringer mechanischer und dielektrischer Verluste ist die Auslenkung bei einem Wechselfeld nicht ganz linear, sondern zeigt eine leichte Hysterese. Die Anregungsspannung wurde an die äußeren Elektroden angelegt.

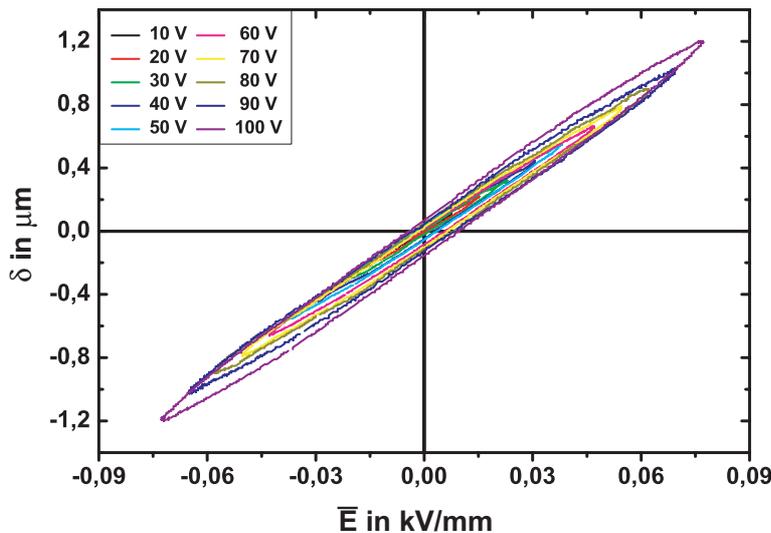


Abbildung 3.17: Biegehysterese eines geklebten Bimorphs bei verschiedenen elektrischen Feldstärken

Dadurch ist die Feldrichtung immer in einer Schicht parallel, in der anderen Schicht jedoch antiparallel zur Polungsrichtung. Um ein Depolarisieren zu vermeiden, wurde der maximale Wert der Anregungsspannung so klein gewählt, dass die Feldstärke in der Probe viel kleiner als die Koerzitivfeldstärke blieb. Die maximale Spannung betrug deshalb nicht mehr als 100 V. Die piezoelektrischen und dielektrischen Koeffizienten sind in diesem Feldstärkebereich konstant und die Abhängigkeit der Auslenkung von der Anregungsspannung ist linear. Das ist deutlich in Abb. 3.18 zu sehen, wo die maximale Auslenkung der geklebten Bimorph, Trimorph und 4-morph in Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke dargestellt ist. Erst bei 100 V sind erste leichte Nichtlinearitäten sowohl in der Form der Biegehysterese (Abb. 3.17) als auch in der maximalen Auslenkung (Abb. 3.18) zu sehen.

3.6.3 Vergleich zwischen Experiment und Modellierung

In Abb. 3.19 werden die gemessenen Auslenkungen mit den analytischen und numerischen Modellierungen in Abhängigkeit von der Anzahl der Schichten verglichen. Es ist eine gute Übereinstimmung zwischen den theoretischen und experimentellen Daten zu

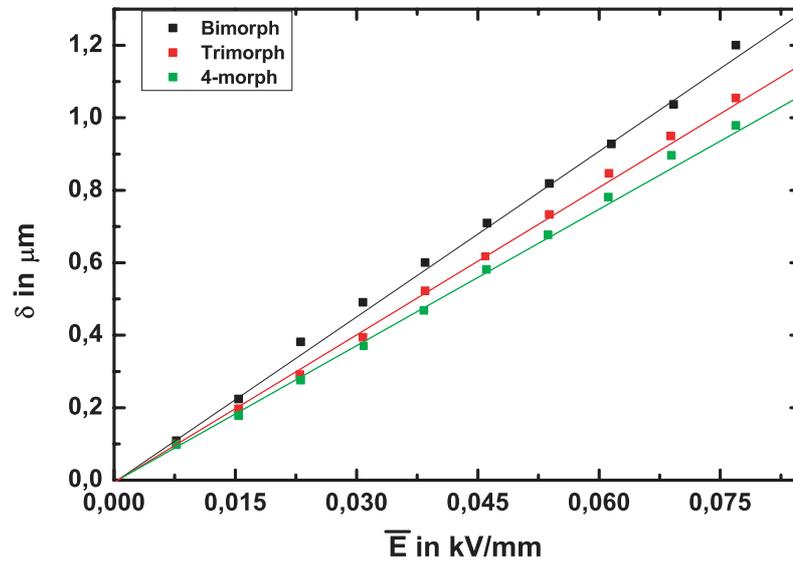


Abbildung 3.18: Gemessene Abhängigkeit der maximalen Auslenkung der geklebten Bimorph, Trimorph und 4-morph von der elektrischen Feldstärke

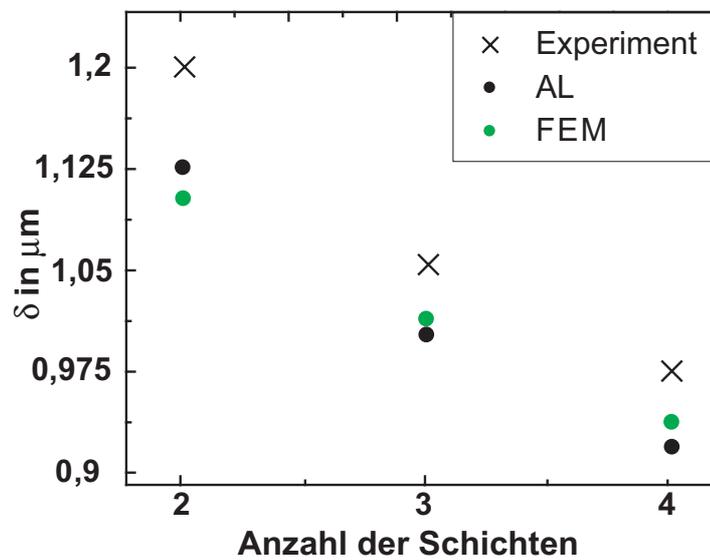


Abbildung 3.19: Gemessene und berechnete Biegeauslenkung in Abhängigkeit von der Anzahl der Schichten

beobachten. Die gemessene Werte sind für alle Proben etwa 6% größer als die berechneten Werte. Daher ist zu vermuten, dass es sich um einen geringen systematischen Fehler handelt. Im Bereich von $1 \mu\text{m}$ ist die Meßunsicherheit mit ca. 5% anzugeben. Da in der Modellierung ebenfalls experimentell ermittelte Werte (piezoelektrische und dielektri-

sche Koeffizienten, Schichtdicke, Anregungsspannung, freie Länge) verwendet wurden, sind auch diese Werte fehlerbehaftet. Mittels der Fehlerabschätzung nach Gauss beträgt dieser Fehler ebenfalls etwa 5 %.

Außerdem wurde beobachtet, dass die mechanischen Randbedingungen die Biegeauslenkung beeinflussen. In der Modellierung wurde von einer idealen Klemmung ausgegangen, d.h. die Probe ist quasi mit der Stirnseite fest an einer Wand befestigt. Im Experiment ist hingegen ein Teil der Probe im Probenhalter eingeklemmt. Mit Hilfe der FEM wurde diese reale Einspannung modelliert. In Abhängigkeit von der Länge des eingespannten Probenteils und der Einspannkraft nahm die Auslenkung um 2-3% zu. Prinzipiell kann man also davon ausgehen, dass das Modell durch das Experiment bestätigt wurde.

3.7 Monolithische Aktuatoren aus $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ -Keramik

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Untersuchung des Biegeverhaltens von Aktuatoren aus $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Keramik mit einem Gradient des Zinngehalts dargestellt. Zuerst werden die notwendigen Modifizierungen des bereits besprochenen Biegemodells diskutiert. Dann werden die Ergebnisse der Modellierung mit experimentellen Ergebnissen verglichen. Um die Einflüsse von mechanischer Spannung und inneren Elektroden abzuschätzen, wurden wie im Abschnitt zum Polungsverhalten geklebte Aktuatoren mit gleicher chemischer Zusammensetzung untersucht.

3.7.1 Die Struktur von monolithischen Aktuatoren aus $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ -Keramik

Für die nun folgenden Biegeuntersuchungen wurden monolithische Aktuatoren aus $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3$ -Keramik verwendet. Der Zinngehalt in den Aktuatoren wurde kontinuierlich entlang der Dicke der Proben verändert. Parallel zu den monolithischen Aktuatoren wurden auch geklebte Aktuatoren mit der gleichen Verteilung des Zinngehalts untersucht. Der Unterschied zwischen geklebten und monolithischen Biegeelementen ist detailliert in den Grundlagen beschrieben (s. Abschnitt 1.4.2).

Wie bei der Untersuchung des Polungsverhaltens wurden 2 Gruppen von Aktuatoren untersucht. Es wurden Bimorph und Trimorph mit niedrigem Zinngehalt ($\approx 7,5$ mol%) sowie Bimorph, Trimorph und 4-morph mit höherem Zinngehalt (7,5 - 15 mol%) hergestellt. Die Zusammensetzung der Schichtsysteme und ihre Bezeichnung sind in Tabelle 3.3 dargestellt. Die letzten Schritte der Herstellung der Aktuatoren sind in Abb. 3.20

Aktuatoren mit niedrigem Zinngehalt		Aktuatoren mit hohem Zinngehalt	
BTS(0-2.5)	B-1	BTS(7.5-15)	B-2
BTS(2.5-0-7.5)	T-1	BTS(7.5-12.5-15)	T-2
-	-	BTS(7.5-10-12.5-15)	V-2

Tabelle 3.3: Chemische Zusammensetzung der untersuchten Aktuatoren

grafisch dargestellt. Die gesinterten monolithischen Aktuatoren wurden mit Aluminiumelektroden bedampft und gepolt. Die Aktuatoren wurden mit einer berechneten Po-

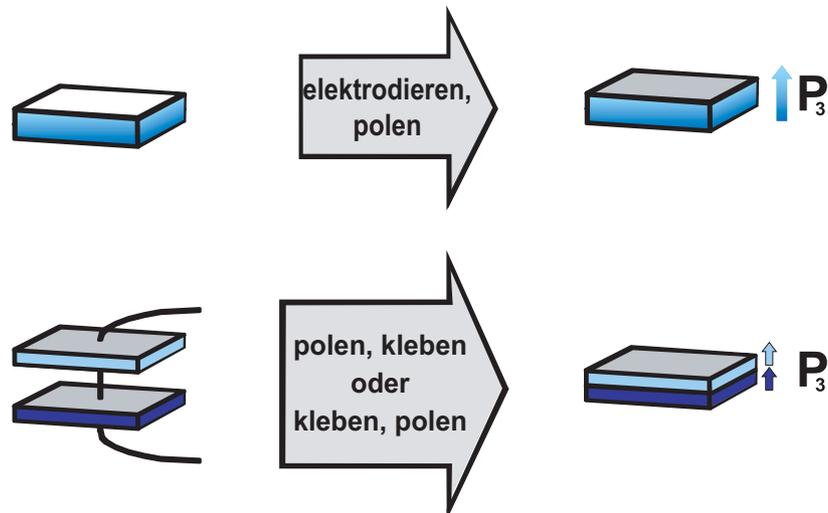


Abbildung 3.20: Graphische Darstellung des Unterschieds zwischen monolithischen und geklebten Aktuatoren

lungsfeldstärke oder mit 2 kV/mm gepolt. Die berechnete Polungsfeldstärke wurde aus der Untersuchung des Polungsverhaltens von Aktuatoren mit Mehrschichtstruktur übernommen. Die genauen Werte sind in der Tabelle 2.3 aufgelistet. Nach der Polung waren alle Schichten in den monolithischen Aktuatoren in der gleichen Richtung gepolt (unidirektionale Polung). Um den Einfluss der mechanischen Spannung und von inneren Elektroden auf das Biegeverhalten zu untersuchen, wurden so genannte **gepolt-geklebte Aktuatoren** und **geklebt-gepolte Aktuatoren** hergestellt. Die Schichten der gepolt-geklebten Aktuatoren wurden während des Polungsprozesses nur elektrisch mit dünnen schmalen Streifen aus Zinkfolie miteinander verbunden und waren somit mechanisch frei. Anschließend wurden sie für die Biegeexperimente zusammengeklebt. Die Schichten der geklebte-gepolten Aktuatoren wurden vor der Polung zusammen geklebt und erst dann gepolt. Deshalb waren sie während der Polung nicht mechanisch frei, sondern auf Grund der unterschiedlichen remanenten Dehnungen der benachbarten Schichten teilweise mechanisch geklemmt.

Die Schichten in den geklebt-gepolten Aktuatoren unterliegen ähnlichen (mechanischen) Bedingungen wie in monolithischen Aktuatoren. Die Hauptunterschiede sind nur die inneren Elektroden (leitfähiger Kleber) und die Tatsache, dass die monolithischen Biegeelemente keine scharfen Übergänge im Zinngehalt besitzen. Die zwei verschiedenen Arten geklebter Aktuatoren wurden hergestellt, um die Einflüsse der mechanischen Spannung beim Polen auf das Biegeverhalten des Aktuators zu untersuchen. Die Abmessungen aller Aktuatoren waren gleich: Länge 20 mm, Breite 4 mm, Dicke 1.2 mm.

3.7.2 Besonderheiten in der Biegetheorie für Aktuatoren mit unidirektionalem Gradient der Eigenschaften

Im Abschnitt 3.2.3 wurde die Biegetheorie für Aktuatoren mit einem so genannten bidirektionalen Gradient der Eigenschaften vorgestellt. Das heißt, dass z.B. der piezoelektrische Koeffizient vom negativen Maximalwert $-d_{31}$ bis zum positiven Maximalwert $+d_{31}$ variiert. In den hier untersuchten monolithischen Aktuatoren ist der Gradient unidirektional, d.h. der Koeffizienten variiert von einem minimalen Wert zu einem maximalen Wert mit demselben Vorzeichen, da alle Schichten in der gleichen Richtung gepolt sind. Unter dieser Voraussetzung muss die Biegetheorie geringfügig modifiziert werden.

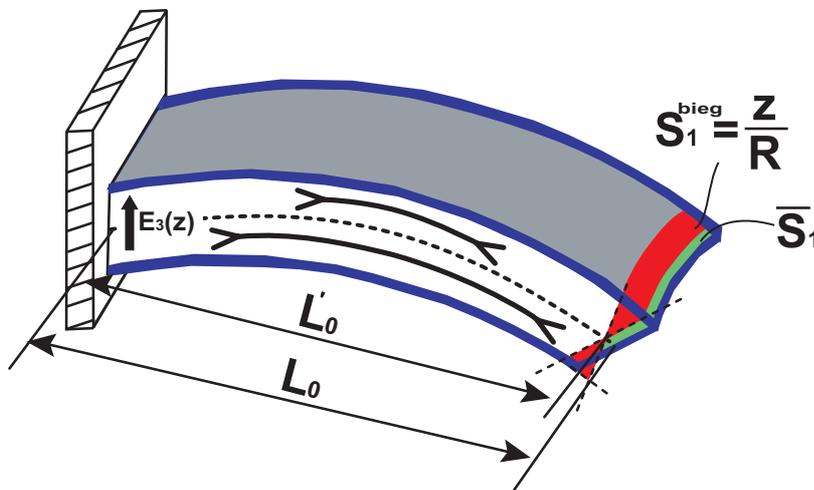


Abbildung 3.21: Schematische Darstellung eines unidirektionalen Aktuators mit der Biegedehnung S_1^{bieg} und der mittleren piezoelektrischen Dehnung \bar{S}_1

Nehmen wir an, dass das elektrische Feld in der Polungsrichtung angelegt ist. Da die Schichten in der gleichen Richtung gepolt sind, ziehen sie sich alle in Richtung S_1 zusammen, allerdings unterschiedlich stark auf Grund der unterschiedlichen piezoelektrischen Koeffizienten. Durch diese ungleichmäßige Dehnung der Schichten wird sowohl eine Biegung des Aktuators als auch eine von Null verschiedene durchschnittliche Dehnung \bar{S}_1 der Schichten in Richtung (1) hervorgerufen (s. Abb. 3.21). Die Gesamtlänge eines solchen Aktuators wird beim Anlegen des elektrischen Feldes in Polungsrichtung kleiner und in der entgegengesetzten Richtung größer. Dies steht im Unterschied zum bidirektionalen Aktuator, wo die Gesamtlänge bei der Biegung konstant bleibt, das heißt, die neutrale Achse keine Längenänderung erfährt. Die gesamte Dehnung S_1 ergibt sich für den unidirektionalen Aktuator aus folgender Gleichung

$$S_1 = S_1^{bieg} + \bar{S}_1 = \frac{z}{R} + \bar{S}_1. \quad (3.37)$$

Die Position der neutralen Achse, die durch die Zahl n beschrieben wird (s. Abschnitt 3.2.2),

kann man aus der folgenden Gleichung bestimmen

$$\begin{aligned} \int_{(n-1)h}^{nh} T_1 dz &= \int_{(n-1)h}^{nh} S_1 Y_p(z) dz = \\ \frac{1}{R} \int_{(n-1)h}^{nh} Y_p(z) z dz + \overline{S}_1 \int_{(n-1)h}^{nh} Y_p(z) dz &= 0. \end{aligned} \quad (3.38)$$

Die mittlere Dehnung \overline{S}_1 wird aus der ersten Gleichgewichtsbedingung bestimmt, bei der sich die mechanischen Trägheitsmoment in Bezug zur neutralen Achse gegenseitig aufheben

$$\int_{(n-1)h}^{nh} \left(d_{31}(z) E_3(z) - \overline{S}_1 Y_p(z) \right) dz = 0. \quad (3.39)$$

Durch Einsetzen der Gl. (3.37), (3.38) und (3.39) in Gl. (3.12) erhält man nach einigen Umformungen den Krümmungsradius der Biegung

$$\frac{1}{R} = \frac{\int_{(n-1)h}^{nh} d_{31}(z) E_3(z) Y_p(z) z dz - \int_{(n-1)h}^{nh} \overline{S}_1 Y_p(z) z dz}{\int_{(n-1)h}^{nh} z^2 Y_p(z) dz}. \quad (3.40)$$

Die Auslenkung des freien Endes erhält man durch Einsetzen von Gl. (3.40) in Gl. (3.16)

$$\delta = \frac{L^2 \int_{(n-1)h}^{nh} d_{31}(z) E_3(z) Y_p(z) z dz - \int_{(n-1)h}^{nh} \overline{S}_1 Y_p(z) z dz}{2 \int_{(n-1)h}^{nh} z^2 Y_p(z) dz}. \quad (3.41)$$

Mit Hilfe der Gl. (3.13) kann die mechanische Spannung als Funktion der z-Koordinate berechnet werden

$$T_1(z) = \left(\overline{S}_1 + \frac{z}{R} \right) Y_p(z) - d_{31} E_3(z) Y_p(z). \quad (3.42)$$

In Abb. 3.22 ist die Verteilung der mechanischen Spannung in Aktuatoren mit unidirektionalem und bidirektionalem Gradienten verglichen. Die maximale mechanische Spannung von klassischen bidirektionalen Aktuatoren ist verständlicherweise deutlich höher, da die maximalen und minimale Werte des Koeffizienten d_{31} verschiedene Vorzeichen haben. Beim unidirektionalen Aktuator, wo die Schichten nur in einer Richtung gepolt sind, reduziert sich sowohl die mechanische Spannung als auch die maximale Auslenkung.

3.7.3 Biegeverhalten von Aktuatoren mit niedrigem Zinngehalt

Im folgenden Abschnitt wird das Biegeverhalten von Proben mit niedrigem Zinngehalt unter 7,5 mol% untersucht. Es handelt sich dabei um die Zweischichtkombination aus reinem $BaTiO_3$ und BTS2.5, sie wird kurz als B-1 bezeichnet. Das zweite System besteht aus den drei Schichten BTS(2.5-0-7.5) und trägt die Bezeichnung T-1. Beide Systeme wurden bereit im Abschnitt zum Polungsverhalten verwendet. Die Konfigurationen B-1 und T-1 wurden als Biegeaktuatoren gewählt, da die Schichten über große piezoelektrische Koeffizienten und eine hohe remanente Polarisierung verfügen. Beim Trimorph T-1

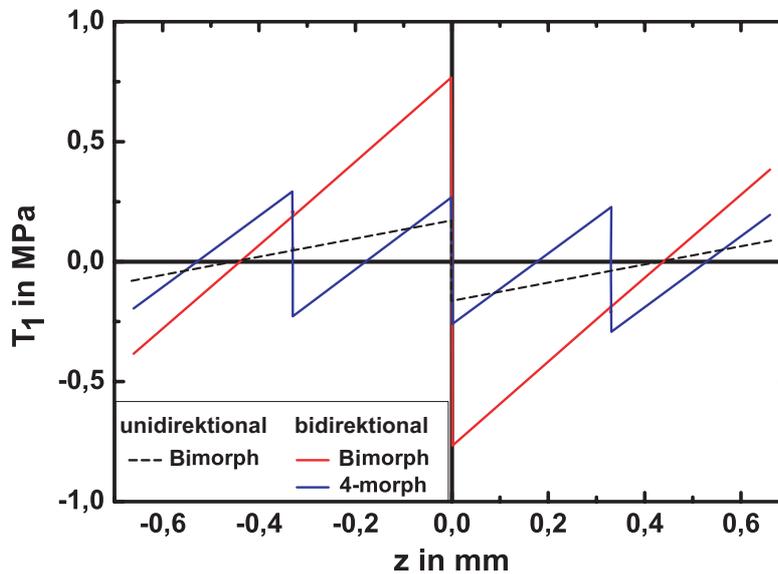


Abbildung 3.22: Verteilung der mechanischen Spannung im bidirektionalen Bimorph und 4-morph im Vergleich zum unidirektionalen Bimorph bei gleicher Anregungsspannung

ist die Besonderheit, dass kein konstanter chemischer Gradient gewählt wurde, sondern sich das reine BT in der Mitte der Probe befindet. Der Grund dafür ist, dass die piezoelektrischen Koeffizienten von BT in der Mitte zwischen denen von BTS2.5 und BTS7.5 liegen (vgl. Abb. 1.5).

In Abb. 3.23 sind die Biegehysteresen von monolithischen, geklebt-gepolten und gepolt-geklebten B-1 Aktuatoren dargestellt. Alle Proben wurden bei der berechneten Feldstärke (1.52 kV/mm) gepolt. Zunächst muss festgestellt werden, dass die maximale Auslenkung von allen Biegehysteresen sehr gering ist. Die Form der Biegehysteresen ist qualitativ bei allen Proben gleich und dadurch gekennzeichnet, dass das Maximum der Auslenkung nicht beim Feldstärkemaximum zu finden ist. Dieser Effekt ist beim geklebt-gepolten Aktuator etwas kleiner und auch die Hysterese ist etwas schmaler.

Interessant ist die allgemein fast ovale Form der Biegehysteresen. Der Grund könnte in den annähernd gleichen Werten der ferroelektrischen und elektromechanischen Eigenschaften liegen. Die beiden Schichten BT und BTS2.5 haben eine fast gleich große remanente Polarisation und Dielektrizitätskonstante. Dadurch fällt die angelegte Spannung zu ungefähr gleichen Teilen in den beiden Schichten ab. Darüber hinaus unterscheiden sich auch die piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} nur gering. Die absoluten Werte sind zwar relativ hoch und es wird eine entsprechend große Dehnung S_1 erzeugt. Aber die Differenz dieser Dehnungen, die entscheidend für die Biegeauslenkung ist, ist sehr gering. Dies erklärt zum einen die geringen Werte von weniger als $0,1 \mu\text{m}$ bei 50 V. Zum anderen reagiert dadurch die Biegung auch sehr empfindlich auf kleine Änderungen in der Spannungsverteilung zwischen beiden Schichten. Somit spielen auch kleinste Nicht-

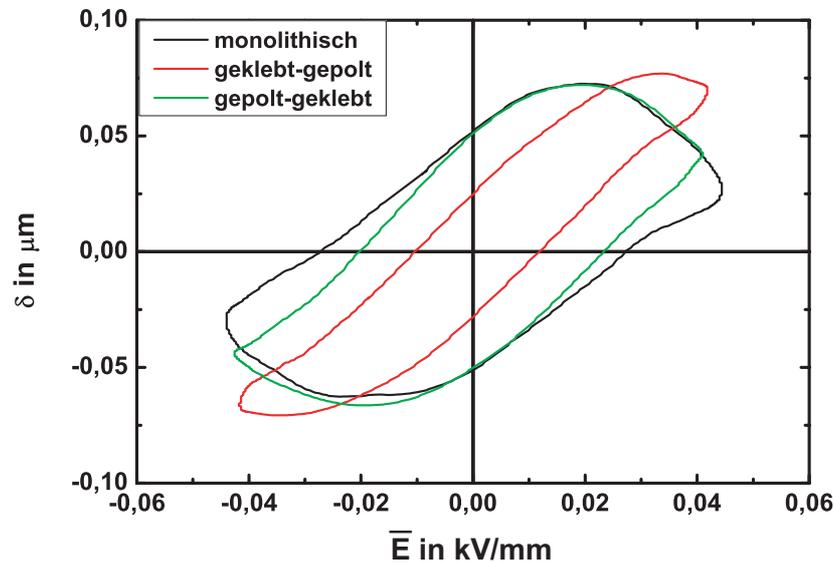


Abbildung 3.23: Biegehysteresen von monolithischen, geklebt-gepolt, gepolt-geklebten Proben B-1 bei 50 V und 137 Hz

linearitäten der dielektrischen und piezoelektrischen Koeffizienten, die auch bei kleinen Anregungsspannungen vorhanden sind, eventuell eine Rolle.

Nichtlineare piezoelektrische und dielektrische Materialeigenschaften sind aber in dem hier verwendeten Biegemodell nicht berücksichtigt. Dadurch sind auch die Abweichungen zwischen den experimentellen Daten und der Modellierung für diese Proben teilweise zu erklären. In Abb. 3.24 ist dieser Vergleich zwischen Modellierung und Experiment für verschiedene Anregungsspannungen dargestellt. Der monolithische Bimorph zeigt eine besonders starke nichtlineare Abhängigkeit der maximalen Auslenkung von der Anregungsspannung. Hier spielt das Vorhandensein der Zwischenschicht mit dem Zinngradienten von 0 auf 2,5 mol% eine Rolle. Diese auch von den Materialeigenschaften her undefinierte Schicht kann insbesondere die lokale Spannungsverteilung in der Probe beeinflussen und die damit verbundenen Probleme verstärken.

Außerdem ist zu berücksichtigen, dass die Messgenauigkeit der Auslenkung im Bereich unter $1 \mu\text{m}$ stark nachlässt. Die Empfindlichkeit der Apparatur ist zwar auch hier noch sehr hoch, allerdings ist der absolute (systematische) Fehler durch die Kalibrierung hier im Bereich des Messwertes.

In Abb. 3.25 sind die experimentell bestimmten Biegehysteresen von monolithischen BTS(0-2.5) (B-1) und BTS(2.5-0-7.5) (T-1) dargestellt. Die Biegeauslenkung wurde bei Raumtemperatur und einer Sinusspannung von 50 V und 137 Hz gemessen. Beim Trimorph scheint der Einfluss der nichtlinearen Effekte geringer zu sein. Die Hysterese zeigt nicht das anormale Verhalten, besitzt aber ebenfalls eine sehr geringe maximale Auslenkung.

Die Untersuchung hat gezeigt, dass die Aktuatoren mit niedrigem Zinngehalt B-1

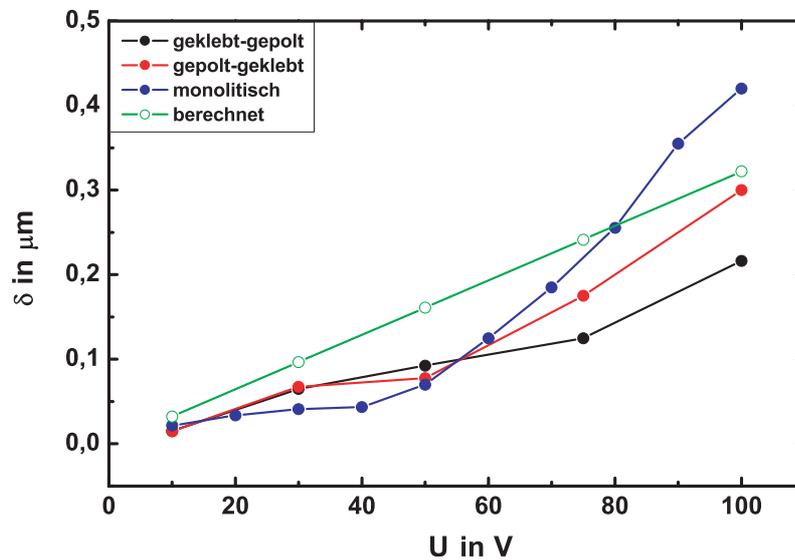


Abbildung 3.24: Die Abhängigkeit der maximale Auslenkung von der elektrische Spannung für den Aktuator B-1

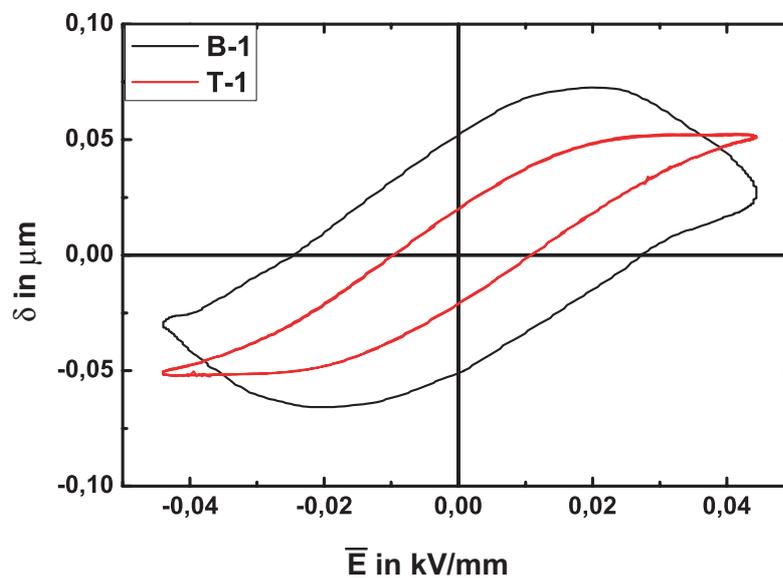


Abbildung 3.25: Biegehysterese von monolithischen Bi- und Trimorph mit geringem Zinngehalt bei 50 V und 137 Hz

und T-2 nur sehr kleine Biegeauslenkung zeigen und stark von nichtlinearen Effekten beeinflusst sind. Deshalb sind diese Konfigurationen für Biegeelemente nicht geeignet.

3.7.4 Biegeverhalten von Aktuatoren mit höherem Zinngehalt

Das Biegeverhalten von Aktuatoren mit höherem Zinngehalt unterscheidet sich deutlich von denen mit niedrigem Zinngehalt. Erwartungsgemäß sollten die Aktuatoren mit 7.5 bis 15 mol% Sn auf Grund des größeren Unterschiedes in den piezoelektrischen Eigenschaften eine größere Biegeauslenkung zeigen. In Abb. 3.26 ist die Auslenkung von monolithischen Bi-, Tri- und 4-morphen (B-2, T-2, V-2) bei 50 V dargestellt. Die Messungen wurden ebenfalls bei Raumtemperatur und 137 Hz durchgeführt. Die Kurven zeigen eine deutlich geringere Hysterese und eine wesentlich höhere Auslenkung als die Aktuatoren mit geringem Zinngehalt. Die maximale Auslenkung des 4-morphs ist 6 mal höher als die des Bimorphs B-1. Andererseits ist aber auch festzustellen, dass die nichtlinearen Effekte

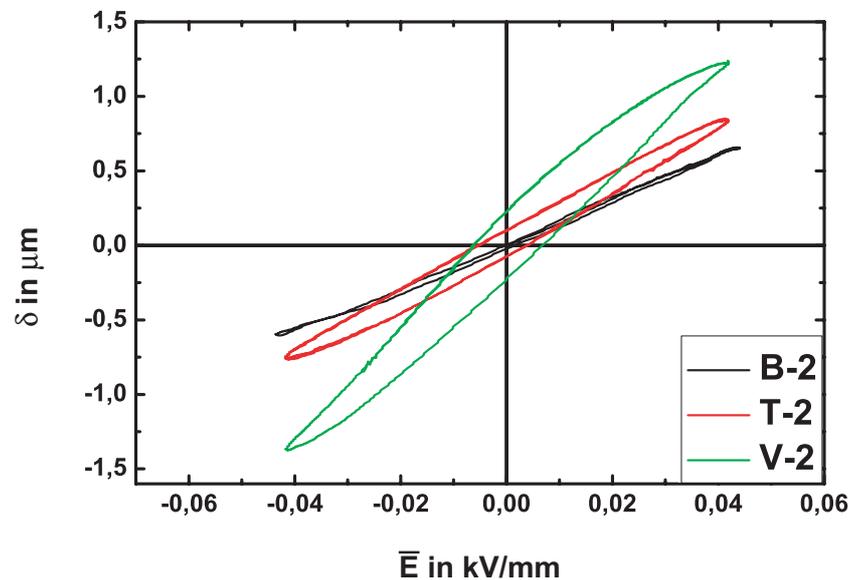


Abbildung 3.26: Biegeauslenkung von monolithischen Bi-, Tri- und 4-morph (B-2, T-2, V-2) mit hohem Sn-Gehalt bei 50 V und 137 Hz

- Vergrößerung der Biegehysterese - mit zunehmender Anzahl der Pulverschichten leicht zunehmen. Es ist deshalb anzunehmen, dass eine Verbesserung des Gradienten immer zu einer Vergrößerung der Nichtlinearität im Biegeverhalten führen wird. Andererseits wurde gezeigt, dass der Gradient des Zinngehalts im 4-morph V-2 bereits schon fast linear ist, so dass eine weitere Erhöhung der Schichten wohl zu keiner weiteren Zunahme der Nichtlinearität führen sollte. (s. Abb. 1.7). Die Abhängigkeiten der maximale Auslenkung von geklebten und monolithischen Aktuatoren von der angelegten elektrischen Spannung sind in Abb. 3.27 miteinander verglichen. Die höchste Auslenkungen erreichen die Modell-Aktuatoren, bei denen die Schichten beim Polen nur elektrisch verbunden wurden und anschließend zusammengeklebt wurden (gepolt-geklebt). In dieser Modellstruktur waren die Schichten während der Polung mechanisch frei. Vermutlich haben die Schichten deshalb ein wenig höhere piezoelektrische Koeffizienten. Die niedrigste

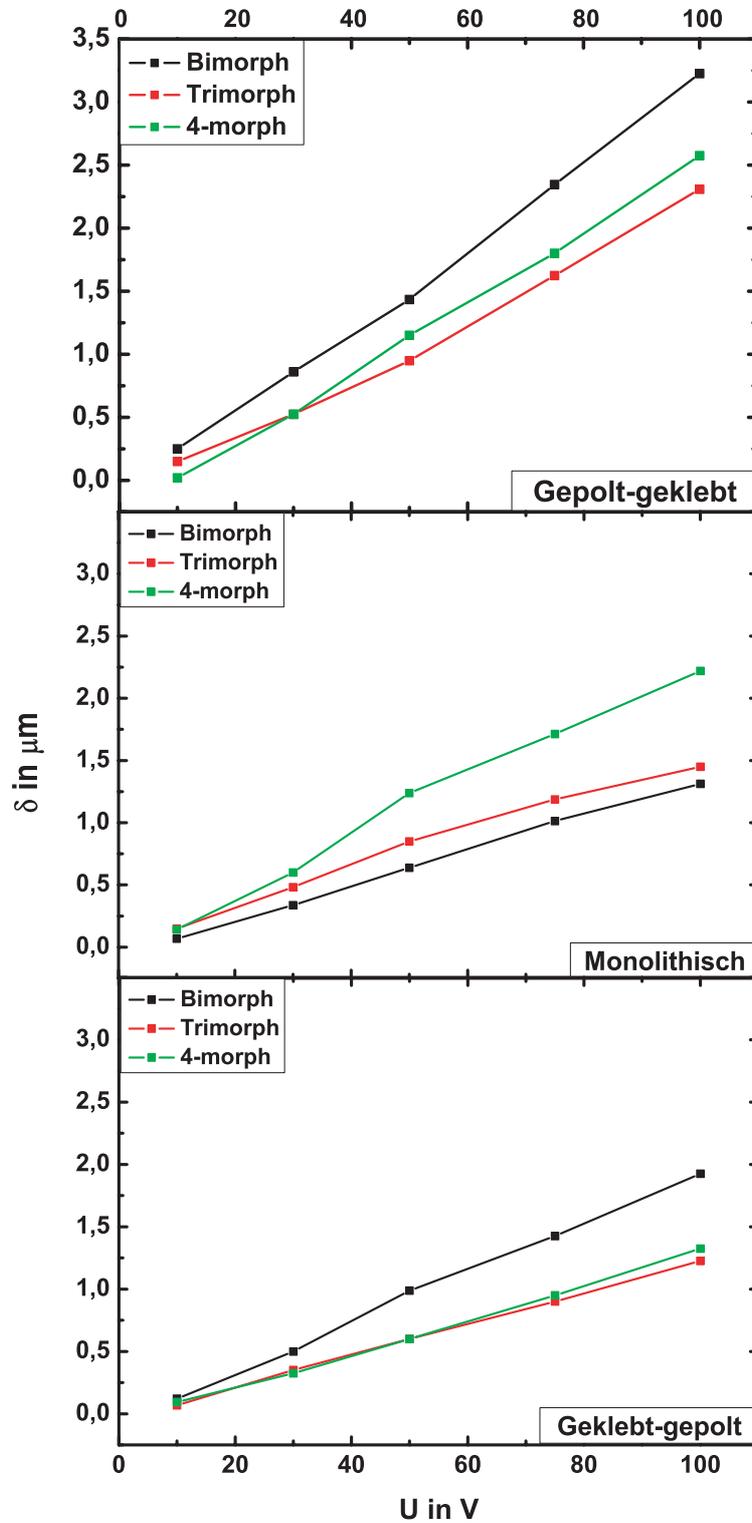


Abbildung 3.27: Auslenkung als Funktion der Anregungsspannung für gepolt-geklebt, monolithische und geklebt-gepolt B-2, T-2 und V-2. Probendicke beträgt immer 1.1 mm

maximale Auslenkung haben die geklebt-gepolt Aktuatoren, bei denen die Polung erst nach dem Zusammenkleben durchgeführt wurde. Obwohl bei der Untersuchung des Polungsverhaltens keine großen Abweichungen zwischen diesen Proben festgestellt wurden, gibt es im Biegeverhalten doch deutliche Unterschiede. Dies kann sowohl auf die mechanische Klemmung beim Polen als auch auf den Einfluss der Klebeschicht auf das Polen zurückgeführt werden. Die Klebeschicht fehlt bei den monolithischen Aktuatoren, die insbesondere beim 4-morph ein deutlich besseres Biegeverhalten zeigen als die geklebt-gepolteten Proben. Da aus der Theorie eigentlich folgt, dass mit zunehmender Schichtzahl die Biegung leicht abnimmt, im Experiment aber das Gegenteil beobachtet wurde, liegt die Schlussfolgerung nah, dass der annähernd lineare Zinngradient das Polungsverhalten auf Grund der Verringerung der mechanischen Spannungen deutlich verbessert. Dafür spricht auch, dass mit Zunahme der Pulverschichten im monolithischen Aktuator, also mit Verbesserung des Gradienten die maximale Auslenkung zunimmt. So ist die Auslenkung des monolithischen 4-morphs vergleichbar mit dem gepolt-geklebten System, bei dem die Schichten im (mechanisch) spannungsfreien Zustand gepolt wurden.

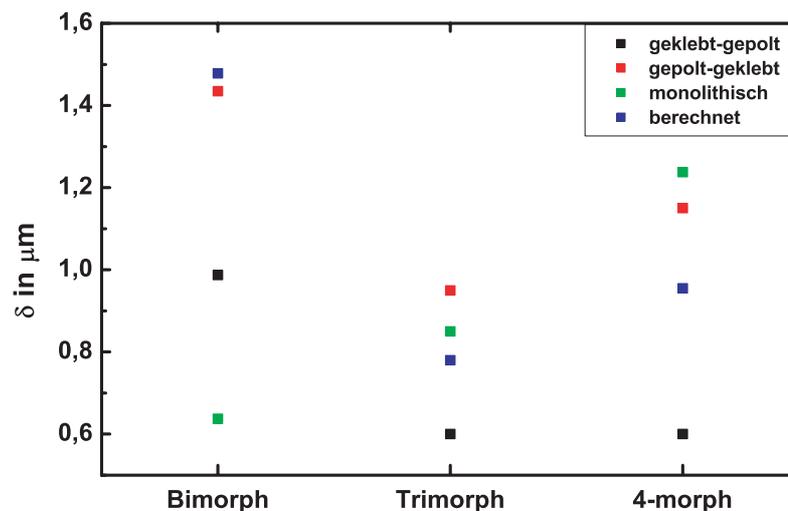


Abbildung 3.28: Auslenkung als Funktion der Anzahl der Schichten für monolithische Proben und Modellstrukturen im Vergleich zur Modellierung bei 50 V

Für den Vergleich von Experiment und linearer Modellierung wurden die Ergebnisse bei kleinen Feldstärken (Anregungsspannung 50 V) betrachtet, um nichtlineare Effekte möglichst auszuschließen. Die berechneten und gemessenen Werte der Auslenkung von B-2, T-2 und V-2 bei 50 V sind in Abb. 3.28 dargestellt. Für die Modellierung wurden die dielektrischen und piezoelektrischen Koeffizienten der gepolt-geklebten Proben verwendet, die jeweils nach dem Polen an den einzelnen Schichten bestimmt wurden, bevor diese zusammengeklebt wurden. Deshalb sind auch die Ergebnisse der Modellierung in erster Linie nur mit diesen Proben vergleichbar, eine gute Übereinstimmung kann dabei

festgestellt werden. Qualitativ stimmen auch die Werte der geklebt-gepolten Proben mit der Modellierung überein. Die deutlich geringeren Werte sind auf die bereits diskutierte schlechtere Polung auf Grund mechanischer Klemmung zurückzuführen. Bei beiden Modellstrukturen ist jedoch wie auch bei der Modellierung eine leichte Zunahme der Biegung beim 4-morph zu beobachten. Dies widerspricht nur scheinbar der Biegetheorie aus Abschnitt 3.7.2, nach der die Auslenkung mit zunehmender Schichtzahl abnehmen sollte. Es müssen hier insbesondere zwei Aspekte berücksichtigt werden. Zum einen sind die Schichten teilweise nur unvollständig gepolt, so dass der Zinngradient nicht zwangsläufig zu einem entsprechenden Gradienten der piezoelektrischen Eigenschaften führt. Zum anderen beeinflussen die dielektrischen Eigenschaften der zusätzlichen inneren Schichten beim Tri- und 4-morph die Verteilung der elektrischen Feldstärke zusätzlich.

Die monolithischen Aktuatoren besitzen Übergangsbereiche zwischen den ursprünglichen Pulverschichten, in denen die Zinnkonzentration wegen der Diffusion beim Sintern sich stetig ändert, und deren Eigenschaften unbekannt sind. Obwohl diese Bereiche in der Modellierung nicht berücksichtigt wurden, kann außer beim Bimorph doch eine gute Übereinstimmung mit der Theorie festgestellt werden. Die Auslenkung erreicht im Gegensatz zu den geklebt-gepolten Proben vergleichbare Werte wie die gepolt-geklebten Aktuatoren. Der Funktionsgradient sorgt offensichtlich für eine Verringerung der mechanischen Spannung in der Probe, die nicht nur die Funktionstüchtigkeit des Aktuators verbessern kann, sondern bereits beim Polungsvorgang dafür sorgt, dass das Ergebnis vergleichbar mit einzeln gepolten Schichten wird.

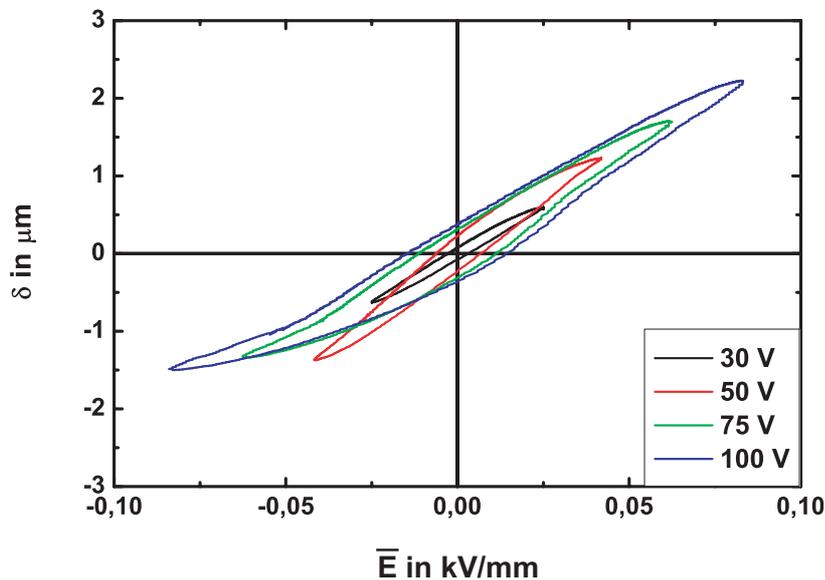


Abbildung 3.29: Biegehysteresen eines monolithischen 4-morph V-2 bei 137 Hz

Im Gegensatz zu den Aktuatoren mit geringem Zinngehalt ist das Biegeverhalten der Proben mit höherem Zinngehalt bei größeren Feldstärken stark vom Vorzeichen der Anregungsspannung abhängig (s. Abb. 3.29). Ab einer Spannung von 75 V wurden

bei den hier untersuchten Proben deutliche Unsymmetrien der Auslenkung zwischen der positiven und negativen Spannungsrichtung beobachtet. Dabei entsprach die positive Richtung der Polungsspannung. Wird das Gradientenmaterial in entgegengesetzter Richtung angeregt, so kann es in einigen Bereichen (Schichten) zur Depolarisierung oder bei höheren Spannungen sogar zur Umpolung kommen, wenn das lokale Feld die Koerzitivfeldstärke überschreitet. Diese ist bei höherem Zinngehalt geringer. Die Depolarisierung von Teilbereichen verringert selbstverständlich die Biegeauslenkung. Wird die Spannung in negativer Richtung noch weiter erhöht, so kann man sogar eine positive Biegeauslenkung erzeugen. Die Auslenkungskurve nimmt dann eine Form an, die der Dehnungs-Feldstärke-Kurve von Ferroelektrika (Schmetterlingskurve) ähnelt. Bis zu einem gewissen Grad sind diese Effekte reversibel und können mit einer erneuten Polung rückgängig gemacht werden. Für Anwendungen ist das Depolarisieren oder gar Umpolen jedoch ungeeignet, da die maximale Auslenkung eher verringert wird. In der Praxis werden Biegeaktuatoren deshalb unipolar in Richtung der Polungsspannung betrieben.

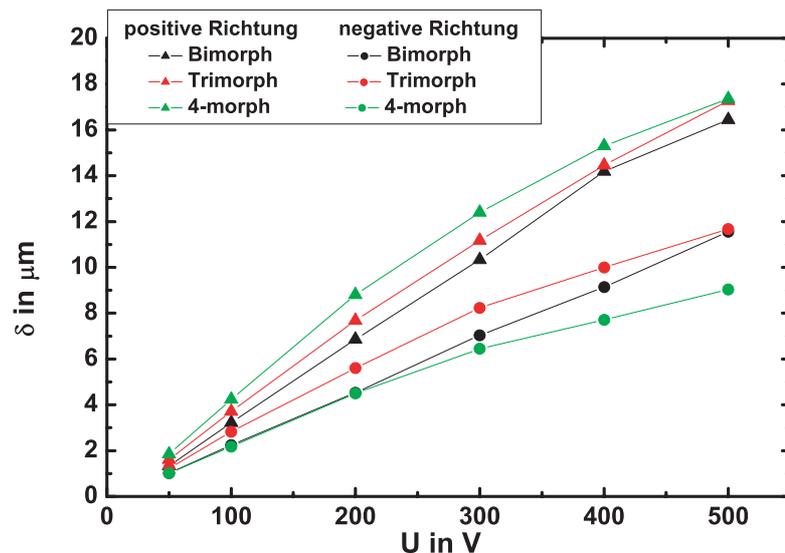


Abbildung 3.30: Abhängigkeit des Biegeverhaltens monolithischer Aktuatoren mit hohem Zinngehalt von Polungsrichtung und Größe der Anregungsspannung bei 137 Hz

Eine solche unipolare Anregung bis 500 V wurde bei der folgenden Untersuchung des Einflusses der Richtung des Polungsfeldes verwendet. Bei der Diskussion des Polungsverhaltens der Aktuatoren wurde gezeigt, dass die Auslenkung des Systems davon abhängt, an welcher Seite - BTS7.5 oder BTS15 - die Polungsspannung angelegt wurde. In Abb. 2.20 wurden die Polungsrichtungen als positiv und negativ bezeichnet. In Abb. 3.30 ist die maximale Auslenkung von unterschiedlich gepolten monolithischen Aktuatoren als Funktion der Anregungsspannung dargestellt. Es wurden jeweils drei Aktuatoren in positiver Richtung und drei in negativer Richtung gepolt. Die unipolare

Anregungsspannung wurde immer in Polungsrichtung angelegt und betrug maximal 500 V. Nach dem bereits beschriebenen nichtlinear zunehmenden Anstieg der Auslenkung bei Spannungen > 50 V, kommt es bei einer weiteren Spannungserhöhung zu einem leichten Abflachen der Kurve. Insgesamt kann die Biegeauslenkung im untersuchten Bereich in erster Näherung allerdings als linear abhängig von der Anregungsspannung bezeichnet werden.

Die Auslenkung der Aktuatoren in Abb. 3.30 ist bei gleicher Anregungsspannung höher als die in Abb. 3.27. Der Grund dafür liegt in der höheren Polungsfeldstärke von 2 kV/mm, mit der diese Proben gepolt wurden. Der Einfluss der Größe der Polungsfeldstärke wird im nachfolgenden Abschnitt diskutiert.

3.7.5 Vergleich des Biegeverhaltens von Aktuatoren mit verschiedener Verteilung der Eigenschaften

Der Vergleich des Biegeverhaltens der monolithischen Aktuatoren mit hohem und niedrigem Zinngehalt zeigt, dass große piezoelektrische Koeffizienten der Schichten (bei niedrigen Zinngehalten, B-1, T-1) nicht automatisch hohe Auslenkungen garantieren. Entscheidend ist die Verteilung der Eigenschaften nach dem Polungsvorgang. In Abb. 3.31 wurden die Verteilungen des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} in den geklebten Trimorphen mit niedrigem (T-1) und hohem Zinngehalt (T-2) miteinander verglichen. Die

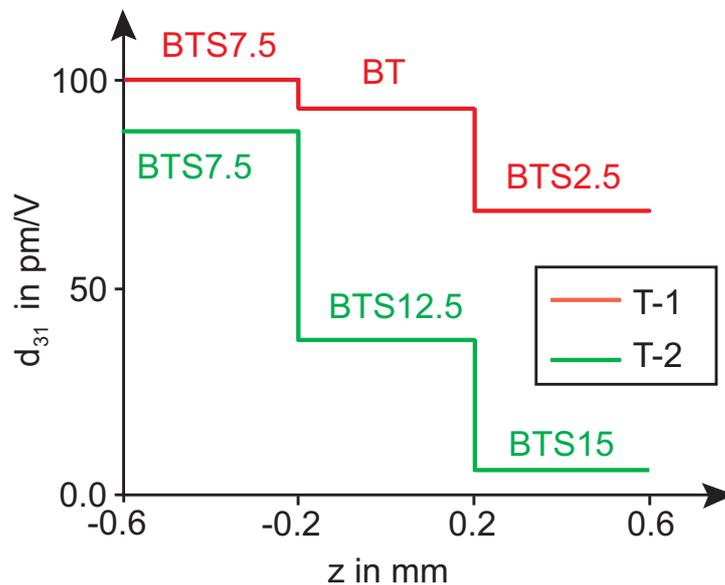


Abbildung 3.31: Graphische Darstellung der Verteilung des piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} in T-1 und T-2

Schichten von B-1 und T-1 haben alle große piezoelektrische Koeffizienten, aber der Unterschied zwischen dem maximalen und minimalen Wert ist geringer als der bei B-2, T-2

und V-2. Zum Beispiel beträgt dieser Unterschied bei T-1 nur 25%, während er bei T-2 fast 96% ist. Der große Unterschied zwischen den piezoelektrischen Koeffizienten führt zu einem großen Unterschied zwischen den Dehnungen $S_1^{(i)}$ der Schichten, die letztlich für die Biegung verantwortlich sind. Der Vergleich der maximalen Auslenkungen von T-1 und T-2 bestätigt dies. In den Konfigurationen B-2, T-2 und V-2 mit hohem Zinngehalt ist diese Voraussetzung besser erfüllt.

In Abb. 3.31 ist außerdem gut zu erkennen, dass insbesondere im System mit höherem Sn-Gehalt (T-2) die BTS7.5-Schicht mit dem höchsten piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} nur unvollständig gepolt ist (vgl. auch Abb. 1.5). Im Trimorph T-1 ist der Polungsgrad dieser Schicht zwar höher, aber immer noch nicht ideal. Hier liegt auch das Potential für weitere Optimierungen, die im nächsten Kapitel diskutiert werden. Allerdings wurden dabei nur noch Systeme mit hohem Zinngehalt und hohen Auslenkungen untersucht.

Die Dehnung der einzelnen Schichten wird aber ebenso von den dielektrischen Eigenschaften bestimmt. Es ist leicht zu sehen, dass der Unterschied zwischen dem maximalen und minimalen Wert der Dehnung dann am größten wird, wenn in der Schicht mit dem höchsten piezoelektrischen Koeffizient d_{31}^{max} auch das höchste lokale elektrische Feld E_3^{max} entsteht. Andersherum sollte in der Schicht mit dem kleinsten piezoelektrischen Koeffizient d_{31}^{min} das lokale elektrische Feld E_3^{min} minimal sein. Die Gl. (3.43) beschreibt den maximalen bzw. minimalen Wert der Dehnung. Der Gradient der piezoelektrischen Eigenschaften muss also umgekehrt proportional zum Gradient der dielektrischen Eigenschaften sein, um eine möglichst maximale Biegung des monolithischen Biegers zu erzielen.

$$\begin{aligned} S_1^{max} &= d_{31}^{max} E_3^{max} = d_{31}^{max} \frac{U_{ges}}{h \varepsilon_{33}^{(min)} \sum_{i=1}^N \frac{1}{\varepsilon_{33}^{(i)}}} \\ S_1^{min} &= d_{31}^{min} E_3^{min} = d_{31}^{min} \frac{U_{ges}}{h \varepsilon_{33}^{(max)} \sum_{i=1}^N \frac{1}{\varepsilon_{33}^{(i)}}}. \end{aligned} \quad (3.43)$$

Deshalb zeigen die Systeme B-1, T-1 aus Schichten mit höheren piezoelektrischen Koeffizienten, aber mit relativ ähnlichen Dielektrizitätskonstanten, viel kleinere Auslenkungen als die Systeme B-2, T-2, V-2 aus der Schichten mit niedrigeren, aber sehr stark variierenden piezoelektrischen Koeffizienten und sehr verschiedenen Dielektrizitätskonstanten.

Generell kann man daraus die Schlussfolgerung ziehen, dass Aktuatoren mit guten Biegeeigenschaften nicht unbedingt aus ferroelektrischen Werkstoffen mit möglichst maximalen piezoelektrischen Eigenschaften (z.B. PZT, PMN) hergestellt werden müssen, sondern auch Keramiken oder Keramiksysteme mit geringeren piezoelektrische Eigenschaften (wie das $Ba(Ti, Sn)O_3$ -System) verwendet werden können. Entscheidend ist, wie stark die piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften differieren. Ein weiterer Vorteil ist, dass es dadurch relativ einfach sein sollte, bleihaltige Hochleistungskeramiken durch umweltverträglichere bleifreie Materialien zu ersetzen.

Kapitel 4

Optimierung und Ausblick

4.1 Einfluss der Polungsfeldstärke auf das Biegeverhalten von monolithischen Aktuatoren

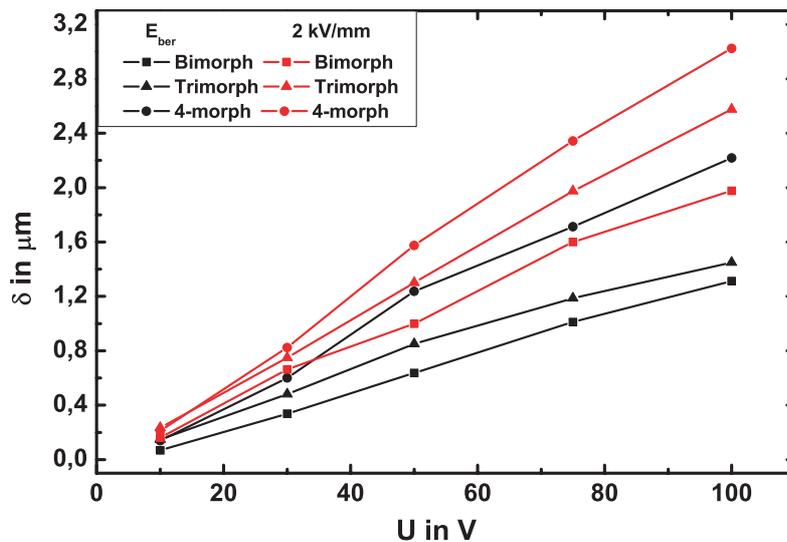


Abbildung 4.1: Maximale Auslenkung von B-2, T-2, V-2 als Funktion der Anregungsspannung. Die Aktuatoren wurden bei E_{ber} oder bei 2 kV/mm gepolt.

Im Abschnitt 2.8 wurde bereits die Verbesserung des Polungsverhaltens durch Erhöhung der Polungsfeldstärke diskutiert. Die Auswirkungen auf das Biegeverhalten sollen im Folgenden beschrieben werden. In Abb. 4.1 sind die maximalen Auslenkungen bei verschiedenen Anregungsspannungen für Aktuatoren mit hohem Sn-Gehalt dargestellt. Dabei wurde jeweils ein Bi-, Tri- und 4-morph mit der bisher diskutierten Feldstärke E_{ber} und und zweiter mit einer Feldstärke von 2 kV/mm gepolt. Die Polungsfeldstärke E_{ber} wur-

de mit Hilfe des Polungsmodells so gewählt, dass die maximale lokale Feldstärke, die in der BTS15 Schicht auftritt, 2 kV/mm nicht überschritt. Dadurch sind die Proben mit verschiedenen Schichtzahlen vergleichbar, da die maximale Polarisierung in allen Proben den gleichen Wert annimmt. Die Polungsfeldstärke wurde auf 2 kV/mm begrenzt, da bei höheren Spannungen die Gefahr eines Probendurchschlages deutlich zunahm.

Werden die Aktuatoren mit einer Feldstärke von 2 kV/mm gepolt, so ist eine deutliche Verbesserung der Biegeauslenkung zu beobachten. Dies korreliert sehr gut mit der bereits beschriebenen Zunahme der piezoelektrischen Koeffizienten d_{31} , vor allem in der piezoelektrisch aktiven Schicht BTS7.5 (s. Tabelle 2.4). Auch bei diesen monolithischen Proben nimmt die maximale Auslenkung mit der Anzahl der Schichten zu. Wie bereits erwähnt, ist dies dadurch zu erklären, dass die gleichmäßige Sn-Verteilung (chemischer Gradient) durch die Polung nicht zwangsläufig in eine gleichmäßige Verteilung der Materialeigenschaften (piezoelektrischer bzw. dielektrischer Gradient) umgewandelt wird. Hier ist in zukünftigen Arbeiten noch eine weitere Optimierung durchzuführen. So können z.B. Schichtdicken bzw. deren chemische Zusammensetzung verändert werden, um den Funktionsgradienten der piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften zu optimieren. Die Grundlagen dafür wurden in dieser Arbeit dargelegt.

4.2 Einfluss der Polungszeit auf das Biegeverhalten

Im Abschnitt 2.9 konnte gezeigt werden, dass es in einem Zweischichtsystem aus unterschiedlichen Ferroelektrika möglich ist, durch eine längere Polung mit einem Gleichfeld beide Schichten vollständig zu polen. Die dabei entstehende Differenz der Polarisation wird durch eine Raumladung am Interface zwischen den Schichten kompensiert. In ersten Versuchen wurde geprüft, wie sich dies auf das Biegeverhalten auswirkt.

Als einfachstes System wurde zunächst wieder das Zweischichtsystem BTS(7.5-15) untersucht. Zwei elektrisch miteinander verbundene Schichten wurden im Ölbad für 3 Minuten mit einer Feldstärke von 2 kV/mm gepolt. Nach 24 Stunden wurden die piezoelektrischen und dielektrischen Kleinsignaleigenschaften gemessen. In Tabelle 4.1 sind die Werte der BTS7.5-Schicht mit denen eines kurz gepolten Systems (15 Sekunden) verglichen. Es ist eine deutliche Zunahme der piezoelektrischen Eigenschaften zu erkennen, die auch zu einer Verbesserung der Biegeeigenschaften führen sollte. Die Kleinsignaleigenschaften der piezoelektrisch nicht aktiven BTS15-Schicht blieben unverändert.

Polungszeit	d_{33} in pm/V	d_{31} in pm/V	$\frac{\epsilon_{33}^T}{\epsilon_0}$
15 Sekunden	186	117	3730
3 Minuten	269	132	4760

Tabelle 4.1: Kleinsignaleigenschaften der BTS7.5-Schicht eines kurzgepolten (15 s) und 3 Minuten gepolten Bimorphs BTS(7.5-15), Polungsfeldstärke 2 kV/mm DC

In ersten Untersuchungen wurde auch die Auslenkung von monolithischen Aktuatoren mit hohem Zinngehalt untersucht, da mit diesen die bisher höchsten Auslenkungen erzielt wurden. Die Bi-, Tri- und 4-morphe wurden dazu 2 Minuten bei 2 kV/mm gepolt.

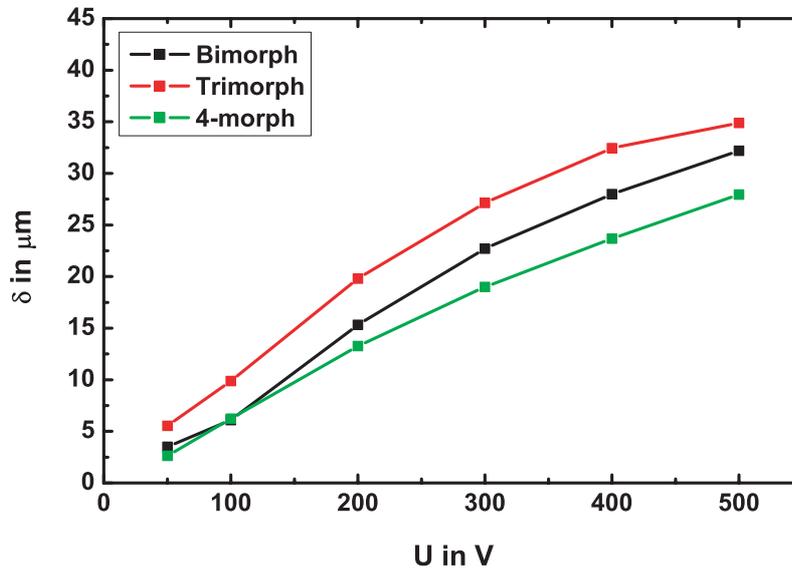


Abbildung 4.2: Auslenkung monolithischer Biegeelemente der Gruppe II, 2 Minuten bei 2 kV/mm gepolt

Die Abb. 4.2 zeigt, dass die Auslenkung gegenüber den im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Proben, die für 15 Sekunden bei 2 kV/mm gepolt wurden noch einmal deutlich zunimmt (vgl. Abb. 3.30 und 4.1). Beim Trimorph wurde sogar eine Verdoppelung der maximalen Auslenkung auf 35 μm bei unipolarer Anregung mit 500 V gefunden. Warum die Zunahme beim 4-morph geringer ausfällt, kann im Moment nicht erklärt werden. Eine Vermutung ist, dass die 2 Minuten für dieses System immer noch zu kurz sind. Dazu mehr im nächsten Abschnitt.

Die theoretische und experimentelle Untersuchung des Polungsverhaltens bei längeren Polungszeiten von Systemen mit mehr als zwei Schichten sowie die Modellierung des nichtlinearen Biegeverhaltens wird die Aufgabe zukünftiger Arbeiten sein.

4.3 Elektrische Zyklisierung

Die Lebenszeit der verschiedenen Aktuatoren kann durch Untersuchung der Abhängigkeiten des Biegeverhaltens von der Anzahl der elektrischen Zyklen bestimmt werden. Da diese Ermüdungsmessungen mit zyklischer Belastung sehr zeitaufwendig sind, wurden bisher nur einige ausgewählte Proben untersucht.

In Abb. 4.3 ist die Abhängigkeit der maximalen Auslenkung von der Anzahl der elektrischen Zyklen für einen konventionell geklebten Bimorph sowie einen monolithischen Bimorph und 4-morph dargestellt. Um einen optimalen Ausgangswert zu erhalten, wurden alle Proben 3 Minuten bei 2 kV/mm DC gepolt. Die Zyklisierung erfolgte mit 500 V (unipolar) und 100 Hz.

Die maximale Auslenkung aller Aktuatoren ist bis ca. 10^5 Zyklen fast konstant ist.

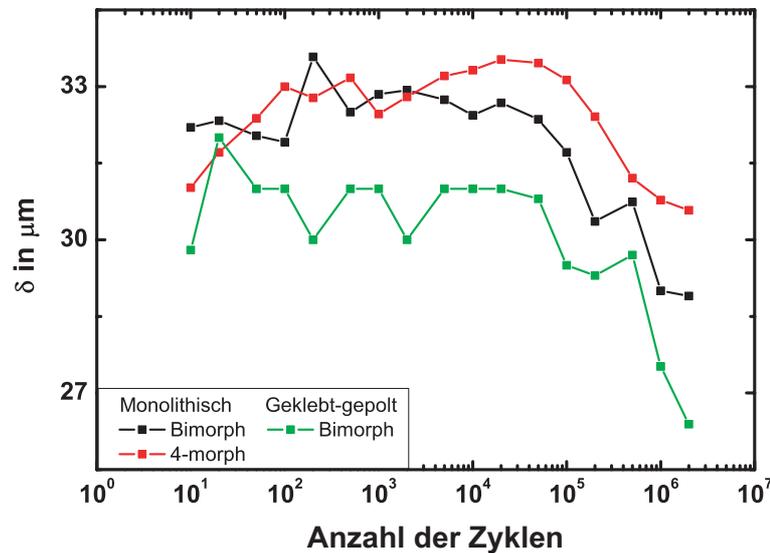


Abbildung 4.3: Maximale Auslenkung von monolithischen und geklebten Aktuatoren aus Gruppe II als Funktion von der Anzahl der elektrischen Zyklen

Nur beim monolithischen 4-morph ist ein konstant leichter Anstieg bis 10^4 Zyklen zu erkennen. Dies könnte ebenfalls ein Anzeichen dafür sein, dass die Probe nach 3 Minuten noch nicht vollständig gepolt war und durch das Zyklieren eine gewisse Nachpolung erfolgte. Eine Abnahme der Auslenkung ist bei allen drei Proben ab 10^5 Zyklen zu beobachten. Dabei nehmen die maximalen Werte der Auslenkung bis $2 \cdot 10^5$ Zyklen um ca. 10 % ab. Eine generelle Aussage über das Langzeitverhalten kann nach diesen ersten Versuchen noch nicht getroffen werden. Dazu sind weitere Untersuchungen notwendig.

Zusammenfassung

Keramische **Materialien mit einem Funktionsgradienten** (engl. Functionally graded materials - **FGM**) sind monolithische Werkstoffe mit in einer oder mehreren Richtungen veränderten Eigenschaften. Die in dieser Arbeit untersuchten Keramiken haben einen eindimensionalen Gradient der chemischen Zusammensetzung in Richtung der Probendicke. Die Eignung dieser Gradientenmaterialien für Biegeaktuatoren wurde untersucht. Während der Biegung steigt die mechanische Spannung im Aktuator stark an. Das verkürzt die Lebenszeit und verschlechtert die Zuverlässigkeit des Biegeaktuators. Die Verwendung von Gradientenmaterialien für Biegeaktuatoren sollte zur Verbesserung der Zuverlässigkeit und Verlängerung der Lebenszeit der Aktuatoren führen.

In dieser Arbeit wurde das Mischoxidsystem $\text{BaTi}_{(1-x)}\text{Sn}_x\text{O}_3 - \text{BaTi}_{(1-y)}\text{Sn}_y\text{O}_3$ (BTS) zur Herstellung monolithischer Keramik mit inhomogener chemischer Zusammensetzung verwendet. Die Eigenschaften dieser Keramik sind stark vom Zinngehalt abhängig. Zur Herstellung der Proben wurde das Mischoxidverfahren verwendet. Die Untersuchung der monolithischen inhomogenen $\text{Ba}(\text{Ti},\text{Sn})\text{O}_3$ -Keramik bestand aus zwei Teilen: Polungs- und Biegeverhalten des Gradientenmaterials.

Das Polungsverhalten der Aktuatoren wurden an Hand der Neukurven der Polarisierung und Dehnung untersucht. Es wurde gezeigt, dass sich im Gradientenmaterial der größte Teil der Polungsfeldstärke im Bereich mit der kleinsten spontanen Polarisierung konzentriert und nur dieser Bereich komplett gepolt wird. Je höher die spontane Polarisierung in einer Schicht ist, desto schlechter wird dieser Bereich gepolt. Trotz dieser nur teilweisen Polung insbesondere der stark piezoelektrisch aktiven Schichten, konnte ein ausreichender Gradient der piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften erzeugt und nachgewiesen werden. Hier ergibt sich die Möglichkeit, durch Änderung der Parameter des Gradientenmaterials die Verteilung der Eigenschaften zu kontrollieren und zu optimieren.

Das Polungsverhalten des Gradientenmaterials zeigt eine starke Abhängigkeit von der Polungszeit. Je länger das elektrische Feld an ein solches Material angelegt wird, desto größer ist der Einfluss der Leitfähigkeit der verwendeten Keramik. Dadurch kann die Polarisierung in einer nur teilweise gepolten Schicht mit der Zeit weiter ansteigen und so den Polungsgrad verbessern. Es wurde ein Modell zur Beschreibung dieses Prozesses entwickelt und durch experimentelle Untersuchungen bestätigt.

Um die Auswirkungen des Funktionsgradienten auf das Biegeverhalten abzuschätzen, wurden analytische und numerische Modellierungen und experimentelle Ergebnisse miteinander verglichen. Es wurde gezeigt, dass dabei der Bimorph die maximale Auslenkung, aber auch die größte mechanische Spannung hat. Je besser der Gradient z.B. der piezoelektrischen Eigenschaften ist, desto geringer wird die Auslenkung und die mechanische Spannung. Für den Fall eines idealen Gradienten des piezoelektrischen Koeffizienten beträgt die Auslenkung des Biegeaktuators bei gleicher Anregungsspannung nur noch $2/3$ der Auslenkung eines Bimorphs. Jedoch geht die maximale mechanische Spannung gegen Null, das Biegeelement ist nahezu spannungsfrei. Die geringere Auslenkung im Gradientenmaterial kann durch eine Erhöhung der Anregungsspannung kompensiert werden. Selbst in diesem Fall bleibt bei gleicher Auslenkung die mechanische Spannung

im Gradientenmaterial um ein Vielfaches kleiner als im klassischen Bimorph.

Die Finite-Elemente-Methode (FEM) bestätigte die beschriebenen Ergebnisse und war in sehr guter Übereinstimmung mit der analytischen Näherung. Bei der experimentellen Untersuchung des Biegeverhaltens wurde die Auslenkung eines einseitig fixierten Biegeaktuators in Abhängigkeit von kleinen Anregungsspannungen gemessen. Es wurden sowohl monolithische Gradientenmaterialien als auch entsprechende Modellstrukturen mit bis zu 4 Schichten untersucht. Die Ergebnisse waren in guter Übereinstimmung sowohl mit der analytischen Modellierung als auch mit der FEM. Das bedeutet, dass die in der analytischen Theorie gemachte eindimensionale Näherung ausreichend genau für die Beschreibung des Biegeverhaltens ist.

Im letzten Teil der Arbeit wurde mittels der gewonnenen Erkenntnisse über das Polungs- und Biegeverhalten die Biegeaktuatoren aus Gradientenmaterial optimiert. Am Beispiel des monolithischen 4-morph mit annähernd linearem Zinngradient ist es gelungen, durch die Erhöhung der Polungsfeldstärke in Richtung parallel zum Gradienten und Verlängerung der Polungszeit die Auslenkung deutlich zu erhöhen. Das führt zu der Schlussfolgerung, dass Aktuatoren mit guten Biegeeigenschaften nicht unbedingt aus ferroelektrischen Werkstoffen mit möglichst maximalen piezoelektrischen Eigenschaften (z.B. PZT, PMN) hergestellt werden müssen, sondern auch Keramiken oder Keramiksysteme mit geringeren piezoelektrischen Eigenschaften (wie das Ba(Ti,Sn)O₃-System) verwendet werden können. Ein weiterer Vorteil ist, dass es dadurch relativ einfach sein sollte, bleihaltige Hochleistungskeramiken durch umweltverträglichere bleifreie Materialien zu ersetzen.

Die Lebenszeit der verschiedenen Aktuatoren wurde durch Untersuchung der Abhängigkeiten des Biegeverhaltens von der Anzahl der elektrischen Zyklen bestimmt. Dabei blieben die maximalen Werte der Auslenkung bis $2 \cdot 10^5$ Zyklen konstant und nahmen danach um bis zu 10 % ab. Eine generelle Aussage über das Langzeitverhalten konnte nach den ersten Versuchen noch nicht getroffen werden. Dazu sind weitere Untersuchungen notwendig.

Generell wurde bewiesen, dass es möglich ist, monolithische Keramiken mit einem chemischen Gradienten zu polen und den dadurch entstandenen Funktionsgradienten für die Anwendung als Biegeaktor zu nutzen. Im Idealfall wird der Aktuator mit linearem Gradienten sogar ein nahezu spannungsfreies Biegeverhalten zeigen. In zukünftigen Arbeiten sollten noch weitere Optimierungen durchgeführt werden. So können z.B. die Schichtdicken oder die chemische Zusammensetzung verändert werden, um den Funktionsgradienten der piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften zu optimieren. Die Grundlagen dafür wurden in dieser Arbeit dargelegt. Die theoretische und experimentelle Untersuchung des Polungsverhaltens bei längeren Polungszeiten von Mehrschichtsystemen sowie die Modellierung des nichtlinearen Biegeverhaltens wird die Aufgabe zukünftiger Arbeiten sein.

Literaturverzeichnis

- [1] M. E. Lines, A. M. Glass: Principles and application of ferroelectric and related Materials (Clarendon Press, Oxford 1977)
- [2] Yuahuan Xu: Ferroelectric Materials and Their Applications, North-Holland (1991)
- [3] Karl Ruschmeyer u.a.: Piezokeramik Renningen-Malmsheim (1991)
- [4] T. Shrout, W.A. Schulze, J.V. Biggers: Ferroelectrics 29, 129-134, (1980)
- [5] K. Uchino: Piezoelectric Actuators and Ultrasonic Motors (Kluwer Academic Publishers Boston/Dordrecht/Londo 1997)
- [6] M. Niino: J. of the Jap. Soc. of Powder and Powder Metallurgy 37(2), 241 (1990)
- [7] T. Kawai, S. Miyazaki, M. Araragi: Yokogawa Technical Report 14, 6 (1992)
- [8] J. Qiu, J. Tani, T. Ueno, T. Morita, H. Takahashi and H. Du: Smart. Mater. Struct. 12, 115121 (2003)
- [9] . S. Sonin, B. A. Strukow: Einführung in die Ferroelektrizität [Übers. a. d. Russ. G. Schmidt], (Berlin, Akad. Verl, 1974)
- [10] V.L. Ginzberg: Zh. Eksp. & Teor. Fiz. 15 (1945) 739.
- [11] W.G. Cady: Piezoelectricity (MacDraw-Hill, New York, 1946)
- [12] A. Bauer, D. Bühling, H.-J. Gesemann, G. Helke, W. Schreckenbach: Technologie und Anwendungen von Ferroelektrika (Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig K.-G., Leipzig 1976)
- [13] D. Voltzke, H.-P. Abicht: J. Mater. Sci. Lett: 19, 21, 1951-1953 (2000)
- [14] U. Straube, H.T. Langhammer, H.-P. Abicht, H. Beige: J. Eur. Ceram. Soc. 19, 1171 - 1174, (1999)
- [15] M. Mitte, C. Hagendorf, K.-M. Schindler, H.-P. Abicht, N. Neddermeyer: Phys. Status Solidi A 173, 183 - 194 (1999)
- [16] D. Voltzke, H.-P. Abicht, J. Woltersdorf, E. Pippel: J. Mat. Sci. Lett. 17, 1979 - 1981 (1999)

-
- [17] H. T. Langhammer, T. Muller, K.-H. Felgner, H.-P. Abicht: *J. Am. Ceram. Soc.* 83, 3, 605-611 (2000)
- [18] D. Voltzke, H.-P. Abicht, *Solid State Sci.* 3, 4, 417-422 (2001)
- [19] G. A. Smolenskii, V. A. Isupov: *Zh. tekhn. Fiz.* 24, 1375 (1954)
- [20] J. von Cieminski, H. Th. Langhammer, H.-P. Abicht: *Phys. Stat. Sol. (a)* 120, 285-293 (1990)
- [21] K. Uchino: *Ferroelectrics* 91, 281-292 (1989)
- [22] R. W. Whatmore: *Fundamentals of Ceramic Engineering* (London, New York, 1990)
- [23] V. Mueller, A. Kouvaton, R. Steinhausen, H. Beige, H.-P. Abicht: *Ferroelectrics* (2004)
- [24] I. Jung, Y. Roh Source: *Sens. and Actuat. A* 69, 159-266, (1998)
- [25] M. A. Marcus: *Ferroelectrics* 57, 203-220 (1984)
- [26] M. A. Marcus: *J. Appl. Phys.* 52(10), 6273-78 (1981)
- [27] K. Abe, K. Uchino, S. Nomura: *Ferroelectrics* 68, 215-223, (1986)
- [28] H.J. Den Blanken, J. Van Zwol: *Ferroelectrics* 184, 179-188 (1996)
- [29] T. S. Low, W. Guo: *J. Micromechanical Sys.* 4, 4, 230-237 (1995)
- [30] A. Kouvaton, R. Steinhausen, W. Seifert, T. Hauke, H.-T. Langhammer, H. Beige, H. Abicht: *Jour. of the Euro. Ceram. Soc.* 19, 1153 - 1156 (1999)
- [31] A. B. Dobrucki, P. Pruchnicki: *Sens. and Actuat. A* 58, 203-212 (1997)
- [32] Heinrich Kuttruff: *Physik und Technik des Ultraschalls* (S. Hirzel Verlag Stuttgart 1988)
- [33] Y. Tomikawa, K. Masamura, S. Sugawara, M. Konno: *Ferroelectrics* 68, 235-248 (1986)
- [34] S. Yang, W. Huang: *AIAA jour.* 35, 12 1894-1895 (1997)
- [35] Peter C. Y. Lee, Jiun-Der Yu *IEEE Tans. on Ultras. Ferr. and Freq. Control* 45, 1, 236-250 (1998)
- [36] S. Ynag, B. Ngoi: *Smart Mater. Struct.* 8, 411-415 (1999)
- [37] S. Liang, C. A. Rogers: *Jorn. of Intell. Nater. Syst. and Struc.* 8 April (1997)
- [38] Report of Investigation of Applications of FGM, *The Soci. of Non-Traditional Tech.* Tokyo (1993)

- [39] T. Hauke, A. Z. Kouvatov, R. Steinhausen, W. Seifert, H. T. Langhammer, H. Beige, H.-P. Abicht: *Elect. Proc. of the 4th Intern. Conf. on Theor. and Exp. Problems of Mater Engin Puchov, Slovakia* (1999)
- [40] T. Hauke, A.Z. Kouvatov, R. Steinhausen, W. Seifert, H. Beige, H.T. Langhammer, H. Abicht: *Ferroelectrics* 238, 195-202 (2000)
- [41] S. Takahashi, A. Ochi, M. Yonezawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* 22, Suppl. 22-2, 157 (1983)
- [42] A. Furuta and K. Uchino: *Ferroelectrics* 160, 277 (1994)
- [43] A. Furuta, K. Uchino: *J. Amer. Ceram. Soc.* 76, 1615 (1993)
- [44] J. Thongrueng, T. Tsuchiya, K. Nagata: *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, 5306-5310, (1998)
- [45] H. Hata, Y. Tomikawa, S. Hirose, T. Takano: *Jap. jour. of appl. phys.* 1, 35, H, 9, 5023-5026 (1996)
- [46] C. Kusakabe, Y. Tomikawa, T. Takano, H. Tamura, H. Okamoto: *Jap. jour. of appl. phys.* 35, H, 9, 5018-5022 (1996)
- [47] S. Wakabayashi, M. Sakata, H. Goto, M. Takeuchi, T. Yada: *Jap, jour, of appl, phys.* 35, 5012-5014 (1996)
- [48] C. Kusakabe, Y. Tomikawo, T. Kurose, K. Ohnishi: *Jap. jour. of appl. phys.* 34, 5279-5283, (1995)
- [49] B. H. Rabin, I. Shiota, Guest Editors: *MRS Bulletin*, January, (1995)
- [50] T. Hirai: *Mat. Scie Technol.* 17B, 293-341 (1996)
- [51] Carl C. M. Wu, M. Kahn, W. Moy: *J. Am. Ceram. Soc.* 79, 3, 809-812 (1996)
- [52] A.J. Markworth, K.S. Ramesh, W.P. Parks Jr : *J. Mater. Sci.* 30, 2183-2193 (1995)
- [53] Michael M. Gasik: *Comput. Mater. Sci.* 13, 42-55 (1998)
- [54] N. Cherradi, D. Delfosse, P. Moeckli: *Proc. of FGM Tokio* (1996)
- [55] K. Tanaka, H. Watanabe, V.F. Poterasu, Y. Sugano: *Comp. Methods in Appl. Mech. and Eng.* 109, 377-389, (1993)
- [56] T. Hauke, A. Z. Kouvatov, R. Steinhausen, W. Seifert, H. T. Langhammer, H. Beige: *Proc. IUTAM 2000, Solid Mechanics and Its Applications* 89, 87-94 (2001)
- [57] Qing-Ming Wang, L. E. Cross: *J. Appl. Phys.* 83, 10, 5358-5363 (1998)
- [58] A. Z. Kouvatov, R. Steinhausen, T. Hauke, H. T. Langhammer, H. Beige, H. Abicht: *Ferroelectrics*, 273, 95-100 (2002)
- [59] Z. Lences: *Proc. FAC* 2001

-
- [60] H. T. Langhammer, M. Dabrunz, K.-H. Felgner, H.-P. Abicht: *Materials Lett.* 15, 268-273 (1992)
- [61] T. McKechnie, E.H. Richardson, and R.D. Watson: *Advances in Thermal Spray Science and Technology* ASM International, Materials Park, OH 737-742 (1995)
- [62] M. Himoda, u.a.: *Proc 3 IUMRS Tokyo* (1994)
- [63] S. Kim, M. Sasaki and T. Hirai: *Proc. 9th Korea-Japan Seminar of New Ceramics* 102-106 (1992)
- [64] Z.Y. Fu, J.P. Liu, J.Y. Zhang, Q.J. Zhang: *Proc of Int.China Cross-Strait Con. On Composite Materials III* 105 (Trans Tech Publications 2003)
- [65] H. Jihua, Li Jinfeng, K. Akira, W. Ryuzo: *J. Mater. Sci. Lett.* 17, 2033-2035, (1998)
- [66] A. Kawasaki, R. Watanabe: *Ceramic Transactions* 34, 157-164 (1994)
- [67] G.H. Haertling: *Ferroelectrics* 154, 101 (1994)
- [68] C.C.M Wu, M. Kahn, W. Moy: *J. of Amer. Ceramic Soc.* 79, 3, 809 (1996)
- [69] X. Zhu, Z. Meng: *Sensors and Actuators A*, 48, 169 (1995)
- [70] G. Li, G. Furuman, G.H. Haertling: *Ferroelectrics* 188, 223 (1996)
- [71] T. Kawai, S. Miyazaki, M. Araragi: *In Proc. the First Int. Sympos. Functionally Gradient Mat. Sendai, Japan.* 191 (1990)
- [72] X. Zhu, Q. Wang, Z. Meng: *J. of Materials Science Lett.* 14, 516 (1995)
- [73] T. Nagae, S. Saji, T. Yanagimoto, M. Nose, M. Yokota: *Mat. Transactions Jim.* 41(3), 457-460 (2000)
- [74] J. C. Anderson: *Dielectrics* (Chapman and Hall, London, 1964)
- [75] A. von Hippel: *Dielectrics and Waves* (Wiley, New York, 1954)
- [76] R. Coelho: *Physics of Dielectrics* (Elsevier, Amsterdam, 1979)
- [77] E.H. NI: *Measurements of Dielectrics* (Science Press, 1981)
- [78] Y. Li, Z. K. Qin, Z. G. Zhou: *Measurements of Piezoelectric and Ferroelectric Materials* (Science Press, Beijing 1984)
- [79] C.B. Sawyer and C.H. Tower: *Phys. Rev.* 35, 260 (1930)
- [80] Bernard Jaffe, William R. Cook, Jr. and Hans Jaffe: *Piezoelectric Ceramic* (Academic Press, London and New York, 1971)
- [81] Midori-Sokki: *Potentiometer Production Catalog*, Japan

-
- [82] K.Uchino, L.E. Cross: *Ferroelectrics* 27, 35 (1980)
- [83] P.H.Sydenham: *Jour. Phys. E., Sci. Inst.* 5, 721 (1972)
- [84] Tanida, Gomi, Nomura: *Abstract 44th Jpn. Appl. Phys. Mtg., Fall*, 27 (1983)
- [85] A. Lenk: *Elektromechanische Systeme, Bd. 2: Systeme mit verteilten Parametern*, Verlag Technik Berlin (1974)
- [86] H. Beige: *Dissertation B, Halle* (1980)
- [87] R. Steinhausen: *Dissertation, Halle* (2002)
- [88] G.Sorge, T. Hauke, M. Klee: *Ferroelectrics* 163, 77, (1995)
- [89] A. Rost: *Messung dielektrische Stoffeigenschaften* (Akademie-Verlag, Berlin, 1978)
- [90] ICE Standart Publication 483, *Guide to dynamic measurements of piezoelectric ceramics with high electromechanical coupling* (1976)
- [91] Jan G. Smits: *IEEE Transact. on Sonics and Ultrasonics* SU-23, 6, 393-402 (1976)
- [92] E. Fuchs, H. Oppolzer, H. Rehme: *Practical Beam Microanalysis* (Weinheim, New York, Basel, Cambridge 1990)
- [93] T. Johannson: *Zeit. Phys.* 82 507 (1933)
- [94] H. H. Johann: *Zeit Phys.* 69, 185 (1933)
- [95] <http://www.cmat.uni-halle.de/equipment/microsonde.htm>
- [96] K.J. Bathe: *Finite-Elemente-Methode* (Springer-Verlag Stuttgart 1991)
- [97] K. Nasita, H. Hagel: *Finite Elemente* (Springer- Verlag Berlin 1992)
- [98] H.R. Schwarz: *Methode der Finiten Elemente* (Teubner Verlag Stuttgart 1991)
- [99] L- Pintille, I. Boerasu, M.J.M. Gomes: *J of Appl. Phys.* 93 12 9961-9966 (2003)
- [100] Y.T. Or, C.K. Wong, B. Ploss, F.G. Schin: *J. of Appl. Phys.* 93 7 4112-4119 (2003)
- [101] R. Steinhausen, A.Z. Kouvatov, C. Pientschke, H.T. Langhammer and H. Beige: *2004 IEEE Inter. Ultrason. Ferroelec. and Freq. Control Joint 50th Anniversary Conf.*

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Beige für die Überlassung des Themas und die hervorragende Betreuung während der gesamten Promotionsphase. Durch seine Förderung meiner Publikationstätigkeit und der Ermöglichung, an nationalen und internationalen Konferenzen teilzunehmen, wurde die Qualität der vorliegenden Arbeit positiv beeinflusst.

Ein außerordentlicher Dank gilt Dr. R. Steinhausen, Dr. H. T. Langhammer und Dr. T. Hauke für die sehr gute und angenehme Zusammenarbeit. Die Vielzahl wissenschaftlicher Diskussionen mit ihnen hat sehr zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Herrn Prof. Dr. H.-P. Abicht und den Kollegen vom Fachbereich Chemie danke ich für die ausgezeichnete Zusammenarbeit.

Bei Dr. W. Seifert und Dr. C. Pientschke bedanke ich mich für die Unterstützung bei den numerischen Modellierungen.

Allen Mitarbeitern der Fachgruppe Nichtlineare Dynamik/Ferroelektrizität möchte ich für ihre Unterstützung und Bereitschaft zu fachlichen Diskussionen danken. Insbesondere bin ich Frau C. Seidel und Frau G. Studte für die Probenpräparation zu Dank verpflichtet.

Meiner Frau Alia und meiner Familie danke ich von ganzem Herzen für die moralische Unterstützung bei der Entstehung dieser Arbeit.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und nur mit den angegebenen Quellen und Hilfsmitteln angefertigt habe. Die den benutzten Werken wörtlich oder inhaltlich entnommenen Stellen sind als solche kenntlich gemacht worden.

Halle, den 10.01.2005

Azamat Kuvatov

Lebenslauf

Name: Azamat Kuvatov
Geburtsdatum: 28.10.1973
Geburtsort: Ufa, Russland
Staatsangehörigkeit: russisch
Familienstand: verheiratet
Anschrift: 06114 Halle, Feuerbachstr. 4

Ausbildung:

1980-1986 allgemeinbildende Schule 20 in Ufa (Russland)
1986-1990 allgemeinbildende Schule 1 in Ufa (Russland)
1990-1995 Physikstudium an der Baschkirischen Staatlichen
Universität Ufa (Russland)
seit 4/98 Promotion am Fachbereich Physik,
Martin-Luther-Universität Halle

Berufliche Tätigkeit:

10/96-3/98 Wiss. Mitarbeiter am FB Physik der Baschkirischen
Staatlichen Universität Ufa (Russland)
4/98-3/00 Wiss. Mitarbeiter am FB Physik der Universität Halle,
FG Nichtlineare Dynamik/Ferroelektrizität
4/00-6/02 Graduierten Stipendiat am FB Physik der Universität Halle
seit 7/02 Wiss. Mitarbeiter am FB Physik der Universität Halle,
FG Nichtlineare Dynamik/Ferroelektrizität

Halle, den 10.01.2005