

# Ein Phasenfeldmodell zur Simulation des Einflusses von Leitungsmechanismen in einem ferroelektrischen Nanogenerator

Franziska Wöhler



# **Ein Phasenfeldmodell zur Simulation des Einflusses von Leitungsmechanismen in einem ferroelektrischen Nanogenerator**

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
DOKTOR-INGENIEURS  
von der KIT-Fakultät für  
Bauingenieur-, Geo- und Umweltwissenschaften  
des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)  
genehmigte  
DISSERTATION

von

**Franziska Johanna Wöhler M.Sc.**  
aus Eckernförde

Tag der mündlichen Prüfung: 03. Februar 2023

Referent: Prof. Dr.-Ing. habil. Werner Wagner  
Korreferent: Prof. Dr.-Ing. Marc Kamlah

Karlsruhe 2024

**Herausgeber:**

Prof. Dr.-Ing. Steffen Freitag  
Prof. Dr.-Ing. habil. Werner Wagner

**Organisation und Verwaltung:**

Institut für Baustatik  
Karlsruher Institut für Technologie  
Kaiserstr. 12  
76131 Karlsruhe

Telefon: (0721) 608-42280  
Telefax: (0721) 608-46015  
E-Mail: [info@ibs.kit.edu](mailto:info@ibs.kit.edu)

© 2024 Franziska Johanna Wöhler  
Institut für Baustatik  
Karlsruher Institut für Technologie  
Kaiserstraße 12  
76131 Karlsruhe

Das vorliegende Werk darf von der KIT-Bibliothek frei im Internet angeboten werden. Die Nutzung erfolgt ausschließlich zu wissenschaftlichen Zwecken und zum Eigengebrauch. Die Urheberrechte liegen bei den Autorinnen bzw. Autoren. Für den Inhalt sind alleine die Autorinnen und Autoren verantwortlich. Jegliche Form der kommerziellen Nutzung und Abänderung der Publikation sind ohne vorherige Zustimmung und Absprache mit den Autorinnen bzw. Autoren ausdrücklich verboten. Die Namen der Autorinnen und Autoren müssen stets genannt werden. Die Nutzerinnen und Nutzer sind für die Einhaltung der Rechtsvorschriften selbst verantwortlich und können bei Missbrauch haftbar gemacht werden.

ISBN 978-3-935322-29-4



# Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut für Baustatik des Karlsruher Instituts für Technologie.

Dem Hauptreferenten Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Wagner danke ich herzlich für die Möglichkeit und Unterstützung, meine Dissertation an seinem Institut anfertigen zu können.

Ebenso möchte ich Herrn Prof. Dr.-Ing. Kamlah für die Übernahme des Korreferats, sein Interesse an meiner Arbeit und die hilfreichen Anregungen hierzu danken.

Ein weiterer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Freitag, der mir noch nach Übernahme der Institutsleitung für Fragen und Anregungen zur Seite stand und mir die Möglichkeit zur Fertigstellung meiner Arbeit gab.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft DFG danke ich für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit im Rahmen des Projekts Mu-3332/2-3. Insbesondere gilt mein Dank hier Herrn Dr.-Ing Ingo Münch, der mich in das Thema sowie die Arbeit eingeführt hat und mit viel Engagement in Diskussionen zur Seite stand.

Weiterer Dank gilt allen ehemaligen und aktuellen Arbeitskollegen. Die vielen fachlichen Diskussionen und gemeinsamen Konferenzen haben immer zu einem sehr freundlichen und angenehmen Arbeitsklima beigetragen.

Von Herzen danke ich meiner Familie für die uneingeschränkte Unterstützung und deren Rückhalt, der viel zum erfolgreichen Abschluss dieser Arbeit beigetragen hat.

Karlsruhe, im März 2024

Franziska Wöhler



## Kurzfassung

Das Bestreben elektronische Bauteile immer kleiner zu gestalten und diese möglichst autark ohne zusätzliche Batterien oder Kabel zu bedienen, führt in den Bereich der Nanotechnologie. Besonderes Interesse gebührt hierbei den piezoelektrischen Materialien, die aufgrund ihrer atomaren Beschaffenheit für die Umwandlung von mechanischer in elektrische Energie eingesetzt werden können. Die Energieumwandlung in nutzbare elektrische Energie wird als Energy Harvesting bezeichnet. In dieser Arbeit werden ferroelektrische Materialien als Untergruppe der Piezokeramiken für die Umwandlung mechanischer Energie in elektrische Energie betrachtet. Vibrierende Substratmaterialien liefern hierfür die nötigen mechanischen Deformationen, um die materielle Polarisationsausrichtung zu verändern und können somit die Ladungsbilanz der Gesamtstruktur beeinflussen.

Im Bereich der Nanoskala sind Defekte, Fremdatome und weitere Störfaktoren große Hemmnisse zum Erreichen der maximalen elektrischen Energie. Der Fokus liegt in dieser Arbeit auf der numerischen Untersuchung der Einflüsse von zusätzlichen implementierten Leckströmen (störende Leitungsmechanismen) auf das Verhalten der Nanostrukturbauteile. Im Speziellen werden der Ohm'sche Leitungsmechanismus und das space-charge-limited current (SCLC) untersucht.

Die Funktionsfähigkeit des entwickelten Nanogeneratormodells ist dann gegeben, wenn eine stabile und reversible Domänentopologie der Polarisation vorliegt. Wird diese durch den zu großen Einfluss der zusätzlich berücksichtigten Leitungsmechanismen gestört, können die damit einhergehenden Grenzlasten für die Funktionsfähigkeit des Modells ermittelt werden. Die numerischen Berechnungen werden in einem Finite Elemente Modell mittels Phasenfeldmethode durchgeführt, wobei hier die materielle Polarisation als Ordnungsparameter gewählt wird. Die Verifizierung der Implementierung erfolgt anhand des Vergleichs der eindimensionalen Entladung für ein Kondensatorbeispiel mit den analytischen Lösungen. Der Einfluss der Leitungsmechanismen wird an einem zweidimensionalen Ausschnitt des Nanogenerators untersucht. Einerseits werden Beispiele mit rein elektrischer Beladung analysiert und anschließend Simulationen mit „vibrierendem“ Substrat durchgeführt. Variationen der Leitfähigkeiten, Geometrievarianten, Höhe des angelegten elektrischen Potentials und Substratparameter werden ausgewertet. Das hier vorgestellte numerische Modell bietet die Möglichkeit, erste Abschätzungen bezüglich des Materialverhaltens unter bestimmten Annahmen der Leckströme vorzunehmen und dadurch die für die Entwicklung autarker elektronischer Bauteile erforderlichen kostenintensiven Versuche gezielter durchzuführen.



## Abstract

The endeavor to make electronic components even smaller and to operate them as autonomously without additional batteries or cables leads into the field of nanotechnology. Of particular interest are the piezoelectric materials, which, due to their atomic structure, can be used to convert mechanical into electrical energy. This process of converting different forms of energy into usable electrical energy is known as energy harvesting. In this thesis, ferroelectric materials, a subclass of piezoceramics, are employed for the conversion of mechanical to electrical energy. Vibrating substrate structures are used to induce the necessary mechanical deformations, thereby altering their material polarization orientation and influencing the charge balance of the overall structure.

At the nanoscale, defects, impurity atoms, and other interfering factors present significant obstacles to achieving maximum electrical energy conversion. This work primarily focuses on numerically investigating the effects of additional implemented leakage currents, which represent interfering conduction mechanisms, on the behavior of nanostructure devices. Specifically, the Ohmic conduction mechanism and the space-charge-limited current (SCLC) are subject of investigation.

The functionality of the developed nanogenerator model depends on the presence of a stable and reversible domain topology of polarization. Any disturbance caused by the excessive influence of the considered conduction mechanism can limit the operability of the model. The numerical calculations are performed in a finite element model, employing the phase field method with material polarization as the order parameter. The implementation is verified by comparing the one-dimensional discharge for a capacitor example with the analytical solutions. The influence of the conduction mechanisms is further explored using a two-dimensional section of the nanogenerator.

On the one hand, an example with purely electrical loading is analyzed, and on the other hand, a simulation with a ‘vibrating’ substrate is investigated. Variations in conductivities, geometry, applied electrical potential levels, and substrate parameters are evaluated. The numerical model presented here offers the capability to make initial predictions regarding material behavior under specific assumptions about leakage currents. It can be instrumental in better planning cost-intensive tests required for the development of autonomous electrical devices.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Motivation und Ziele der Arbeit . . . . .	1
1.2	Stand der Forschung . . . . .	2
1.3	Gliederung der Arbeit . . . . .	6
<b>2</b>	<b>Grundlagen ferroelektrischer Werkstoffe</b>	<b>8</b>
2.1	Einordnung, Aufbau und Eigenschaften von ferroelektrischen Ke- ramiken . . . . .	8
2.2	Entwurf eines Nanogenerators . . . . .	16
2.3	Spezialfall: Keramische Halbleiter . . . . .	21
2.3.1	Massenbegrenzte Ladungsmechanismen . . . . .	25
<b>3</b>	<b>Grundlagen der Kontinuumsmechanik</b>	<b>28</b>
3.1	Beschreibung der Kinematik . . . . .	28
3.1.1	Deformation und Bewegung eines Körpers . . . . .	29
3.1.2	Der Deformationsgradient . . . . .	30
3.1.3	Definition der Verzerrungen . . . . .	32
3.2	Mechanische Spannung . . . . .	34
3.3	Zeitableitungen . . . . .	36
3.4	Bilanzgleichungen . . . . .	36
3.4.1	Massenerhaltung . . . . .	37
3.4.2	Impulserhaltung . . . . .	39
3.4.3	Drehimpulserhaltung . . . . .	40
3.4.4	Erster Hauptsatz der Thermodynamik . . . . .	41
3.4.5	Zweiter Hauptsatz der Thermodynamik . . . . .	42
<b>4</b>	<b>Grundlagen der Elektrostatik</b>	<b>46</b>
4.1	Die elektrische Ladung . . . . .	46
4.2	Die Coulombkraft . . . . .	47
4.3	Das elektrische Feld und elektrische Potential . . . . .	49
4.4	Die Polarisierung und dielektrische Verschiebung . . . . .	50

4.5	Maxwell'sche Gleichungen . . . . .	51
4.6	Annahmen und Vereinfachungen . . . . .	53
<b>5</b>	<b>Variationsformulierung und Linearisierung</b>	<b>55</b>
5.1	Das Substratmaterial . . . . .	55
5.2	Das Ferroelektrikum und Elektrodenmaterial . . . . .	60
5.2.1	Der Ordnungsparameter . . . . .	61
5.2.2	Freie Helmholtz-Energie . . . . .	61
5.2.3	Schwache Form mit phänomenologischen Ansatz . . . . .	66
5.2.4	Linearisierung mit phänomenologischen Ansatz . . . . .	70
<b>6</b>	<b>Finite-Elemente-Modellierung</b>	<b>73</b>
6.1	Approximation der Geometrie und primären Feldvariablen . . . . .	74
6.2	Modellierung des Substratmaterials . . . . .	77
6.3	Modellierung des Ferroelektrikums und der Elektrode . . . . .	80
6.4	Newton-Raphson-Verfahren . . . . .	87
<b>7</b>	<b>Numerische Beispiele</b>	<b>90</b>
7.1	Plattenkondensator . . . . .	93
7.1.1	Hysteresekurven . . . . .	95
7.1.2	Beladung des Kondensators . . . . .	96
7.1.3	Entladung des Kondensators . . . . .	103
7.1.4	Plattenkondensator - Vergleich Ohm und SCLC - . . . . .	107
7.2	Zweidimensionale Nanogeneratorsimulationen mit Leckstromdichte . . . . .	111
7.2.1	Steuerung über das elektrische Potential - Verhältnis $d/h=100/100$ - . . . . .	113
7.2.2	Steuerung über das elektrische Potential - Verhältnis $d/h=50/100$ - . . . . .	125
7.2.3	Steuerung über das elektrische Potential - Verhältnis $d/h=200/100$ - . . . . .	129
7.2.4	Steuerung über die Verzerrung im Substrat - Verhältnis $d/h=100/100$ - . . . . .	132

<b>8 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>142</b>
<b>A Normierung des Phasenfeldmodells</b>	<b>145</b>
<b>B Erweiterung der Leitungsmechanismen auf mehrere Dimensionen</b>	<b>147</b>
<b>C Normierung der Leckstrommechanismen</b>	<b>148</b>
<b>D Zeitschrittweitensteuerung</b>	<b>149</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>151</b>



# 1 Einleitung

## 1.1 Motivation und Ziele der Arbeit

Miniaturisierung, Flexibilität, hohe Rechenleistung und stromsparende Kommunikation sind heute der allgemeine Trend bei der Entwicklung von elektronischen Geräten. Die Nutzung der in der Umgebung vorhandenen Energiequellen wie z.B. mechanische Schwingungen, Wärme oder elektromagnetische Strahlung kann sauberen Strom für den Betrieb verschiedener elektronischer Geräte liefern. Hierzu zählen unter anderem drahtlose Sensornetzwerke, mobile Elektronik, tragbare und implantierbare biomedizinische Geräte. Diese Geräte werden herkömmlich mit elektrochemischen Batterien betrieben. Die Lebensdauer der Batterien ist jedoch begrenzt und oft kürzer als die Lebensdauer der elektronischen Geräte selbst. Für das Aufladen oder Ersetzen fallen zusätzliche Kosten an. Ein weiterer Nachteil von Batterien ist, dass sie sperrig sind und in der Regel das Gewicht und die Größe der Elektronik dominieren, was die Miniaturisierung der Geräte behindert. [62, 78]

Als Alternative zu herkömmlichen Batterien kann das Energy Harvesting zum Einsatz kommen. Hierbei werden Energieformen, die bei Industriemaschinen, Fahrzeugen, menschlichen Aktivitäten oder der Bewegung von Körperorganen entstehen in nützliche elektrische Energie umgewandelt, ohne die ursprüngliche Quelle zu beeinträchtigen. [62, 78]

Von allen Energiequellen ist die mechanische Energie die am weitesten verbreitete Energieform, die erfasst und in nutzbare elektrische Energie umgewandelt werden kann. Piezoelektrisches Energy Harvesting ist ein sehr praktischer Mechanismus, um mechanische Energie aus der Umgebung zu erfassen und in elektrische Energie umzuwandeln, da der piezoelektrische Effekt ausschließlich auf der materiellen Polarisation des Materials beruht und keine separate Spannungsquelle benötigt. [24]

Piezoelektrizität ist eine Änderung der Polarisation, die einige Materialien wie z. B. Ferroelektrika, bei mechanischer Verformung (Dehnung) aufgrund einer Kristallstruktur (ohne Symmetriezentrum) aufweisen. Bleizirkonattitanat ist ein bekannter Vertreter der ferroelektrischen Materialien, da aber Blei ein schädlicher Bestandteil ist, der sich toxisch auf die Umwelt und den menschlichen Körper auswirken kann, werden bleifreie Materialien bevorzugt. In dieser Arbeit wird das bleifreie Bariumtitanat verwendet. Je nach Anwendungsbereich können auch organische Materialien oder Verbundwerkstoffe verwendet werden [78].

Die Entwicklung von Nanogeneratoren auf Nano- und Mikromaßstab ermöglicht es, den Anforderungen verschiedener Bereiche gerecht zu werden. Die dünnen Schichten piezoelektrischer Materialien können nahezu ohne große Hindernisse in

mikroelektromechanische Systeme integriert werden [78]. Nanogeneratoren können zwar so konstruiert werden, dass sie eine gute Energieleistung erzielen, aber ohne Materialanpassungen oder richtig konstruierte Elektroden weisen sie einen hohen Leckstrom und eine begrenzte Gesamtleistung auf. Die Leckstromaffinität tritt nicht nur bei Bariumtitanat, sondern auch bei anderen Materialien auf. Die Annahme linearer Zusammenhänge für das elektromechanische Materialverhalten ist durch die immer höheren Anforderungen an die Mikrostrukturbauteile und Nanogeneratoren im Energy Harvesting Bereich nicht mehr ausreichend. Aufgrund der hier herrschenden lokalen hohen elektrischen Felder im Material wird dort der Bereich der Linearität verlassen. [54]

Durch die elektromechanische Kopplung der piezoelektrischen Materialien entsteht eine Dehnungen, welche einen Grenzwert nicht überschreiten darf, da aufgrund der geringen plastischen Verformbarkeit der Materialien Schädigungen auftreten können. Für eine Bewertung der Bauteilzuverlässigkeit ist es somit entscheidend, die mechanische Spannung möglichst genau zu kennen. Des Weiteren sind für die Funktion ferroelektrischer Bauteile sowohl die Richtung als auch der Betrag der Polarisation im Werkstoff ausschlaggebend. Die numerische Simulation ist ein entscheidendes Werkzeug für die Entwicklung und Optimierung piezoelektrischer Bauteile. Mithilfe der Finiten-Elemente-Methode (FEM) wird das in dieser Arbeit vorgestellte Materialmodell des Ferroelektrikums mittels Phasenfeldmethode abgebildet. Bei der Phasenfeldmethode wird die Polarisation mithilfe des Ordnungsparameters beschrieben, was dann in das thermodynamische Problem als unabhängige Feldvariable eingeht und in der zeitabhängigen Ginzburg-Landau Evolutionsgleichung berücksichtigt wird.

Insbesondere die im Folgenden aufgeführten Arbeiten ließen den Einfluss von Leckströmen und freien Ladungsträgern unberücksichtigt. Da Leckströme die Leistung der Nanogeneratoren beeinflussen können, ist das Hauptaugenmerk dieser Arbeit auf der zusätzlichen Implementierung von Leckströmen und Untersuchungen deren Einflusses.

Die hier vorgestellte Arbeit beschäftigt sich mit der zentralen Fragestellung von Leitungsmechanismen bei der Energiegewinnung mit ferroelektrischen Nanogeneratoren, insbesondere deren Einfluss auf die Domänentopologie. Aufbauend auf der Arbeit von SU & LANDIS [80], KRAUSS [54] und MÜNCH ET AL. [65,66] wird das phänomenologische Phasenfeldmodell weiterentwickelt.

## 1.2 Stand der Forschung

Die nachfolgenden Absätze liefern eine kurze Zusammenfassung der derzeitigen Konzepte, experimentell und numerisch, in Bezug auf ferroelektrische Nanogene-

ratoren mit Aufführung der jeweils genutzten Materialien und Technologien sowie numerischer Berechnungsmethoden und -ansätze.

PARK ET AL. [68, 69] beschäftigten sich 2010 mit Bariumtitanatfilmen auf einem plastischen Substrat, wobei die Oberseite der ferroelektrischen Schicht mit einer Elektrode strukturiert war. Durch Biegung des Substrats wurde die entstandene Ladung an den Elektroden gemessen. LEE ET AL. [58] untersuchten 2014 experimentell spannungsinduzierte Polungseffekte in einem Komposit piezoelektrischer Energiegeneratoren, die aus Zinkstannat Nanowürfeln bestanden. Dieser Versuchsaufbau bietet Vorteile bei der Herstellung größerer Flächen, da er einfach und kostengünstig herzustellen ist, eine hohe Beanspruchung zulässt und mechanisch beständig ist. LEE ET AL beschreiben einen Energy-Harvester mit hoher Leistung ohne vorherige elektrische Polung aufgrund der nicht-zentrosymmetrischen Kristallstruktur des Ferroelektrikums.

Bisher aufgeführte experimentelle Untersuchungen betrafen das generelle Verhalten und die Funktionsfähigkeit der Generatoren. Allerdings waren bereits frühere Forschungsgruppen mit der Thematik der Piezoelektrizität und dem Augenmerk auf Leitungsmechanismen sowie Leckströme beschäftigt. So wurden bereits in den Sechziger Jahren von BENGUIGUI [9] und BERGLUND & BAER [10] Leitungsmechanismen in Bariumtitanat experimentell untersucht. Untersucht wurden die Leitfähigkeit, als Parameter der Driftgeschwindigkeit oder der Elektronenmobilität in Abhängigkeit der Temperatur. AVILA ET AL. [5] untersuchte 1999 Ladungstransport in dünnen Bariumtitanatfilmen auf Substraten aus Silizium. In Abhängigkeit der Temperatur wurde unter anderem der Schottky Leitungsmechanismus an den Materialgrenzen diskutiert. ROSSI ET AL. [73] berechneten 2018 aus Messergebnissen mittels Piezoresponse-Kraftmikroskopie das Ladungsträgerverhalten in Abhängigkeit der ferroelektrischen Polarisationsausrichtung. PODGORNÝ ET AL. [70] untersuchten 2021 Leckströme an polykristallinen Bleizirkonattitanat. Hierbei wird der Ohm'sche Leitungsmechanismus untersucht und die Materialparameter anhand verschiedener Frequenzen mithilfe der Hystereseschleifen ermittelt.

Parallel zu den experimentellen Arbeiten wurde Ende der Sechziger Jahre von ALLIK & HUGHES [3] ein dreidimensionales Finite-Element-Modell entwickelt, welches ein makroskopisch elektromechanisches Materialmodell abbildete. Es konnten lineare piezoelektrische und elastische Effekte simulieren werden. CAO ET AL. [15–17] beschäftigten sich vorerst mit quasi eindimensionalen Lösungen für Domänenwände, wobei sie herausfanden, dass auch die Kopplungseffekte bei ferroelektrischen Materialien zwischen Verzerrung und Polarisation durch Oberflächenspannungen sowie durch die Domänentopologie stark beeinflusst werden. Allgemein untersuchten sie Phasenübergänge bei Perowskitstrukturen durch elektromechanische Kopplungen anhand der Landau-Ginzburg Theorie mit der Po-

larisation als Ordnungsparameter. CHEN [20] beschreibt eine Mikrostruktur anhand von Feldvariablen, die über Grenzflächenbereiche hinweg kontinuierlich sind. Die zeitliche und räumliche Entwicklung der Feldvariablen wird durch die Cahn-Hilliard nichtlineare Diffusionsgleichung und die Allen-Cahn-Relaxationsgleichung berücksichtigt. Mit den grundlegenden thermodynamischen und kinetischen Ansätzen ist die Phasefeldmethode in der Lage, die Entwicklung komplexer Mikrostrukturen vorherzusagen, ohne die Positionen von Grenzflächen explizit zu verfolgen. CHEN gibt einen Überblick über verschiedene Materialprozesse bezüglich Domänenentwicklung in dünnen Schichten sowie Rissausbreitung und Elektromigration. HU & CHEN haben Ende der Neunziger Jahre ferroelektrische Domänentopologien, erst im zweidimensionalen Raum, dann im dreidimensionalen Raum numerisch untersucht [37, 38]. Es wurde ein Computersimulationsmodell für 90° ferroelektrische Domänenbildung und -entwicklung auf der Grundlage der zeitabhängigen Ginzburg-Landau Gleichungen entwickelt. Unterschiedliche Effekte hinsichtlich elektrischer und elastischer Interaktionen wurden diskutiert. Weiter untersuchten sie den kubisch zu tetragonalen Phasenübergang des Ferroelektrikums in 3D Simulationen.

XIAO & BHATTACHARYA [90] lieferten eine Theorie für deformierbare halbleitende Ferroelektrika auf der Basis von Raumladungen und Dotierungsdichte als zusätzliche Feldvariablen. Untersucht wurde anhand von Sauerstoff Fehlstellen im Bariumtitanat. Sie fanden heraus, dass sich Verarmungsschichten mit verarmten Elektronen an der Grenzschicht zwischen Ferroelektrikum und Elektrode ausbildeten. Andererseits bildeten sich Ladungskonzentrationen und ein großes elektrisches Feld an 90°-Domänenwänden aus, nicht aber an 180°-Domänenwänden. Kernaussage ist, dass durch Fehlstellen im Ferroelektrikum es zu einer Umverteilung oder erzwungenen Diffusion von Sauerstoffleerstellen kommen kann, was die Alterung von ferroelektrischen Materialien beschleunigt. In CAO ET AL. [18, 19] werden mittels Phasefeldmodell der Langzeitwiderstand und Lebensdauerzyklen behandelt. Leckstrom wird als wichtiger Parameter für die Lebensdauer herausgehoben. Hierin wird ein Phasefeldmodell zur Untersuchung des Widerstandsdegradationsverhaltens von Bariumtitanat vorgeschlagen, indem nichtlineare Diffusionsgleichungen für den ionischen/elektronischen Transport analysiert werden. Es wird gezeigt, dass die polarisationsgebundenen Ladungen an der Grenzfläche zwischen Metall und Ferroelektrikum von großer Bedeutung für den Ladungsträgertransport und die Entwicklung des Leckstroms im Kondensator sind. Simulationen wurden anhand eines Plattenkondensators durchgeführt.

HUBER, FLECK, LANDIS & McMEEKING haben zusammen in den neunziger Jahren ein konstitutives Modell für polykristalline Ferroelektrika entwickelt, [39]. McMEEKING ET AL. hat mit WANG und LYNCH nicht nur das ferroelektrische, sondern auch die Interaktion mit ferroelastischen Verhalten auf das Polarisati-

onsswitching untersucht [42]. Einige Jahre später haben McMEEKING & LANDIS [63] analysiert, dass Ladungen auf die Elektroden getrieben werden oder von den Elektroden abgeleitet werden können, was mit externer elektrischer Arbeit einhergeht. HUBER ET AL. [39] entwickelten ein konstitutives Modell zur Behandlung von polykristallinen Ferroelektrika. LANDIS [57] erarbeitet zudem ein nicht-lineares Modell für Ferroelektrika auf Grundlage von konstitutiven Gleichungen zur Analyse der Leistung von ferroelektrischen Bauelementen. SU & LANDIS [80] haben einen weiteren Ansatz gefunden, der ebenfalls thermodynamisch begründet und zudem noch auf der Mesobene mit Mikrospannungen erweitert ist. KONTOSOS & LANDIS [51, 52] untersuchten die Domänenstruktur und Evolution bei dünnen ferroelektrischen Schichten im Phasefeldmodell. KAMLAH forscht auf dem Gebiet der Ferroelektrika, u.a. [47, 48]. Anfangs wurde von KAMLAH ein Modell für strukturmechanische Untersuchungen mithilfe der Finite Elemente Methode entwickelt, um das Verständnis komplexer Polungs- und Eigenspannungszustände in piezokeramischen Bauteilen aufzuzeigen. Zudem wurde ein thermodynamisch fundiertes und mikroskopisch motiviertes konstitutives Modell für Piezokeramiken angegeben. Darauf aufbauend wurden weitere Simulation zum Einfluss der Eigenschaften von polykristallinen Ferroelektrika angestellt. Hierbei wurde in einem ebenen Verzerrungszustand jedes einzelne Korn im Polykristall als ein Finite Element charakterisiert. SCHWAAB ET AL. [76, 77] beschäftigten sich mit einem kontinuumsmechanischen Materialmodell zum Hysterese-Verhalten der Piezokeramik. Der Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit wurde anhand der Berücksichtigung der Ladungserhaltung, hier in Form des Ohm'schen Gesetzes, untersucht.

Numerische Simulationen sind aufwendig, insbesondere wenn mehrere Domänenwände untereinander und mit freien Rändern interagieren. Im Zuge der kontinuierlichen Beschreibung der Domänenwand wird die lokale Polarisation durch einen kontinuierlichen Phasenparameter erfasst. Dieser wird zudem als eine zusätzliche Feldvariable mit der Bedingung eingeführt, dass dessen Evolution der zeitabhängigen Ginzburg-Landau Gleichung unterliegt. Grundlegende Unterschiede der einzelnen Phasefeldmodelle für numerische Untersuchungen der ferroelektrischen Werkstoffe betreffen unter anderem die Wahl des Ordnungsparameters, die Art der elektromechanischen Kopplung und die Anzahl und Ordnung der Terme der Polarisation in der freien Energiefunktion. Die Leckströme bilden derzeit noch immer einen Teil der Forschung im Bereich ferroelektrischer Materialien und Nanogeneratoren ab.

Die Arbeiten von MÜNCH & KRAUSS beschäftigten sich mit Bariumtitanatfilmen, aufgedampft auf einem Substrat. Ihr Finite Elemente Modell beruht auf dem vollständig entwickelten Modell von SU & LANDIS. Das Hauptziel hierbei ist das grundlegende Verständnis der Domänenumschaltung, die durch ein zyklisches elektrisches Feld angeregt wird. Es wurden numerische Simulationen an ferroelek-

trischen Nanowürfeln durchgeführt, die durch ein unterliegendes Substrat unidirektional mechanisch belastet wurden. Das Augenmerk lag dabei auf dem Einfluss der Substratdehnung auf das Polarisationsverhalten des Würfels aufgrund des angelegten elektrischen Feldes. Es wurde gezeigt, dass dreidimensionale Simulationen deutliche Unterschiede zu zweidimensionalen Simulationen aufweisen und das realistische Verhalten mit 3D Simulationen modelliert werden sollte. Zusätzlich wurde das Design der oberen Elektrode als ein entscheidender Parameter für die Stabilisierung der inneren Domänentopologie herausgearbeitet, sodass die Energieumwandlung nahezu vollständig genutzt werden kann. Ein wichtiges weitere Forschungsergebnisse von MÜNCH ET AL. ist die Kopplung des Phasenmodells für den ferroelektrischen Nanogenerator mit einem Standard-Vollwellengleichrichter und einem Kondensator. Hierbei wurden nichtlineare Diodeneigenschaften sowie Energieverluste berücksichtigt.

Aufbauend auf dem Modell von MÜNCH ET AL. [65, 66] und KRAUSS ET AL. [54, 55] wird in dieser Arbeit der Einfluss der Leckströme mithilfe eines numerischen Modells erarbeitet und untersucht. Dies ermöglicht die geometrischen und elektrischen Randbedingungen zu untersuchen, bevor kostenintensive Versuche nötig sind. Es werden vorerst zur Abschätzung von allgemeinem Verhalten von Leckströmen numerisch zweidimensionale Simulationen ohne nachgeschalteten Gleichrichter untersucht. Mithilfe der zweidimensionalen Simulationen werden grundlegende Einflüsse des zusätzlich implementierten Leitungsmechanismus auf das Polarisationsverhalten von Ferroelektrika untersucht.

### 1.3 Gliederung der Arbeit

Zuerst werden in **Kapitel 2** grundlegende ferroelektrische Eigenschaften dieser Materialgruppen genannt und das Prinzip des Nanogenerators erläutert und die Funktionalität des Nanogenerators aufbauend auf dem Materialverhalten von Ferroelektrika definiert. Die in dieser Arbeit verwendeten Materialien werden zudem kurz vorgestellt.

Daran anschließend wird in **Kapitel 3** die Kontinuumsmechanik erläutert, auf der das numerische Modell aufbaut. Hierbei werden unter anderem die Grundgleichungen der linearen Thermodynamik aufgeführt. Anfangs wird die Geometrie und die Bewegung eines materiellen Körpers definiert und die mechanischen Verzerrungen und Spannungen sowie thermodynamische Grundgleichungen eingeführt.

Elektrostatische Grundgleichungen, insbesondere die ausgewählten Leckstrommechanismen, werden in **Kapitel 4** erläutert und mit Bezug zu den in dieser Arbeit verwendeten Materialien aufgeführt. Es folgt eine kurze Übersicht der verwend-

ten Annahmen in dieser Arbeit.

Die Implementierung des Ferroelektrikums als Halbleiter wird in **Kapitel 5** eingeführt. Es werden zuerst die konstitutiven Gleichungen des linear elastischen Substratmaterials vorgestellt, bevor anschließend das phänomenologische Phasenfeldmodell für das Ferroelektrikum näher ausgeführt wird. Es wird jeweils die für die numerische Umsetzung benötigte schwache Form und Linearisierung ausgearbeitet.

Die Finite Elemente Formulierung wird in **Kapitel 6** beschrieben, bevor in **Kapitel 7** Einflüsse unterschiedlicher Leitungsmechanismen auf den Nanogenerator diskutiert werden. Hierbei werden zuerst die Leitungsmechanismen anhand eines Kondensators verifiziert und einfache Patch Tests zur Analyse von geometrischen Variationen ausgearbeitet. Weiter werden für einen 2D-Ausschnitt des favorisierten Generators Domänentopologien anhand der Parameter, Art des Leitungsmechanismus, Geometrieverhältnis und Höhe des angelegten elektrischen Potentials diskutiert. Die elektrische Grenzlast und maximal ertragbare Lastwechselzahl kann hieraus ermittelt werden. Weiter wird ein Beispiel angegeben, anhand dessen der Einfluss auf die Domänentopologie als Folge von mechanischen Dehnung auf das Ferroelektrikum angegeben wird. Dies dient zur Ermittlung einer mechanischen Grenzlast.

**Kapitel 8** liefert eine Zusammenfassung und einen Ausblick auf weitere mögliche Forschungsarbeiten.

## 2 Grundlagen ferroelektrischer Werkstoffe

Für die Umwandlung von mechanischer in elektrische Energie, wie es in dieser Arbeit ausgeführt wird, werden spezielle Materialien verwendet. Es handelt sich hierbei um ferroelektrische Keramiken, die insbesondere elektromechanische Eigenschaften aufweisen.

Der folgende Abschnitt stellt eine Zusammenfassung der ferroelektrischen Eigenschaften von Keramiken dar und beruht auf SCHWAAB [76], BÖHLE [13], BRZOWSKI [14], SCHRADER [74], JOFFE [46], CHIU [21], HORNBÖGEN [36] und [1, 6, 34, 53, 60, 83] sowie den darin zitierten Werken.

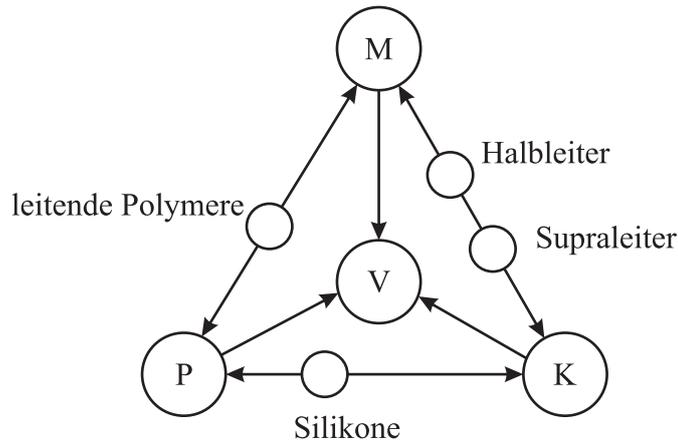
Zunächst werden die Grundlagen zu ferroelektrischen Keramiken vorgestellt. Weiter wird das Prinzip des Nanogenerators anhand der Verschiebung von Domänenwänden erläutert. Abschließend liegt der Fokus auf der Diskussion des elektrischen Ladungstransports innerhalb von ferroelektrischen Materialien. Dieses Kapitel soll dabei keine vollständige Zusammenfassung des vorhandenen Wissens über ferroelektrische Halbleiter und Nanogeneratoren darstellen. Es werden die Grundlagen vermittelt, die für das Verständnis der nachfolgenden Kapitel nötig sind. Für weiterführende Betrachtungen sei auf die aufgeführte Literatur verwiesen.

### 2.1 Einordnung, Aufbau und Eigenschaften von ferroelektrischen Keramiken

Es folgt eine Einordnung der Ferroelektrika in die Werkstoffgruppe der Keramiken und zudem eine kurze Einführung in die materiellen Eigenschaften von ferroelektrischen Werkstoffen.

Es gibt drei größere Werkstoffgruppen mit ihren jeweiligen charakteristischen Eigenschaften: Metalle (M), Polymere (P) und Keramiken (K), siehe Abbildung 2.1. Zusätzlich sind die Verbundwerkstoffe (V) zu nennen, welche aus einer Kombination von zwei oder mehreren Werkstoffen bestehen. Weiter gibt es Werkstoffgruppen, die zwischen den Hauptwerkstoffgruppen einzuordnen sind: Halbleiter, Silikone und leitende Polymere. Die Halbleiter werden im weiteren Teil der Arbeit hinsichtlich ihrer elektrischen Eigenschaften, welche in einigen Keramiken auftreten, näher beschrieben. [36]

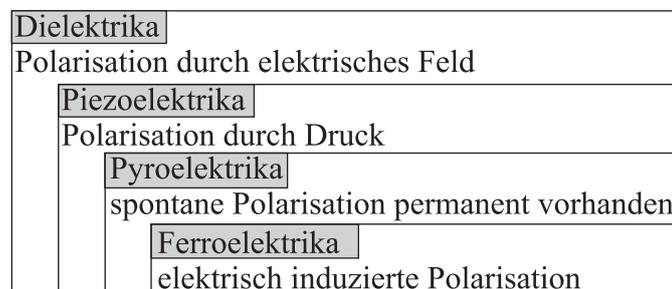
Grundsätzlich unterscheiden sich die drei Hauptgruppen durch ihren atomaren Aufbau und ihre damit verbundenen Materialeigenschaften. Im Folgenden werden Keramiken näher betrachtet, da diese die übergeordnete Hauptgruppe der Ferroelektrika darstellen. Als Vertreter der Ferroelektrika wird Bariumtitanat detaillierter diskutiert, da dies das in dieser Arbeit eingesetzte Material ist.



**Abbildung 2.1:** Einteilung der verschiedenen Werkstoffgruppen mit weiterer Unterteilung, [36].

Zu den keramischen Werkstoffen zählen nichtmetallische und anorganische Werkstoffe, bei denen der elektrische Widerstand mit steigender Temperatur abnimmt. Kennzeichnende Eigenschaften sind die hohe Druckfestigkeit, hohe chemische Beständigkeit und hohe Schmelztemperatur. Generell zählen hierzu Stoffe, die eine eher geringe elektrische Leitfähigkeit haben. Allerdings zeigen Keramiken ein sehr sprödes Verhalten. Weiter haben sie eine große Kerbempfindlichkeit und besitzen keine Möglichkeit Spannungsspitzen durch plastische Verformungen abzubauen, [36, 75].

Eine Untergruppe der Keramiken bilden die Dielektrika, wozu die Ferroelektrika zählen. Als dielektrisch werden jene Keramiken bezeichnet, die elektrisch schwach- oder nichtleitend sind und in denen die vorhandenen Ladungsträger nicht frei beweglich sind, [21]. Dielektrische Werkstoffe können weiter unterteilt werden, siehe dazu Abbildung 2.2.



**Abbildung 2.2:** Untergruppen der Dielektrika und deren spezielles Merkmal, [75].

Piezoelektrische Materialien bilden eine Unterklasse der dielektrischen Materialien. Sie beschreiben einen Zusammenhang zwischen mechanischer Spannung bzw.

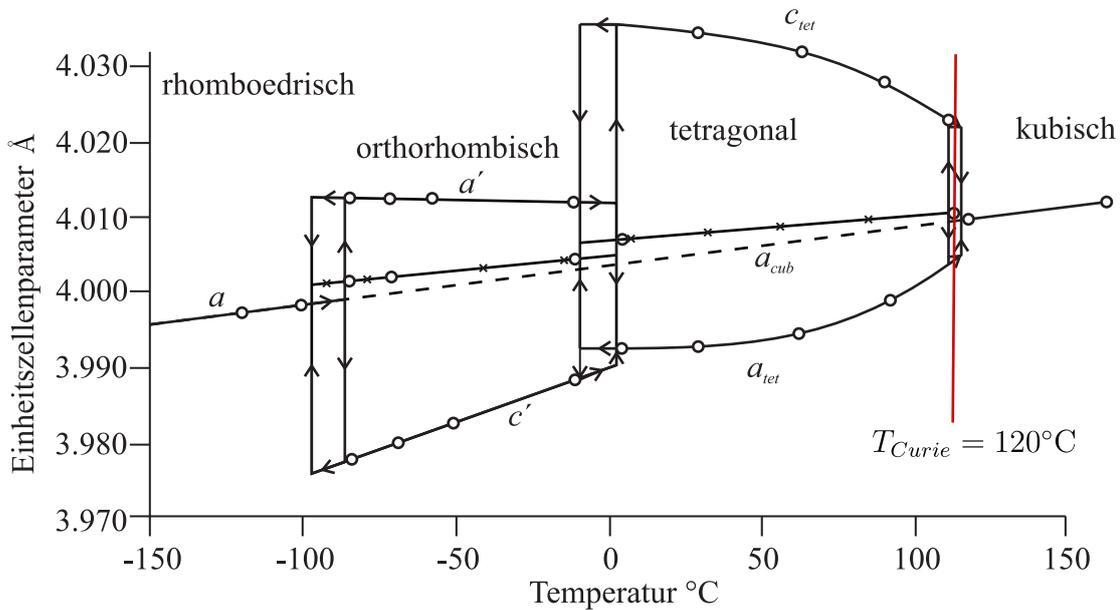
Verformung und einer elektrischen Spannung. Pyroelektrische Materialien bilden eine weitere Untergruppe, hierbei entsteht eine Änderung der Polarisierung im Kristall aufgrund einer Temperaturänderung. Eine weitere Untergruppe sind die Ferroelektrika, deren spontane Polarisierung im Kristall durch ein äußeres elektrisches Feld remanent umgeklappt werden kann. Abbildung 2.2 zeigt, dass nur gewisse Pyroelektrika auch ferroelektrisch, aber alle Ferroelektrika pyro- und piezoelektrisch sind. [75]

Im Folgenden werden die ferroelektrischen Materialien näher erläutert. Ferroelektrika sind periodisch aus Einheitszellen aufgebaut, die wiederum aus positiven und negativen Ionen zusammengesetzt sind. Die Summe der positiven und negativen Ladungen in der Einheitszelle werden jeweils durch einen positiven und negativen Ladungsschwerpunkt repräsentiert. Bei der Einheitszelle handelt es sich um Verbindungen aus Metallatomen und Sauerstoff, wobei die Sauerstoffatome an den Ecken sitzen und ein anderes materialspezifisches Atom in der Mitte angeordnet ist. Ferroelektrische Materialien besitzen die kristalline Form einer Perowskitstruktur mit der allgemeinen Zusammensetzung  $ABO_3$ , z.B. Bariumtitanat ( $BaTiO_3$ , kurz: BTO). Hierbei wird die A-Position durch  $Ba^{2+}$ -Ionen auf den acht Ecken der kubischen Einheitszelle besetzt. Der B-Platz wird von einem raumzentrierten  $Ti^{4+}$ -Ion eingenommen, welches von flächenzentrierten Sauerstoffionen  $O^{2-}$  umgeben ist. Durch eine periodische Wiederholung entsteht ein Kristall. [54]

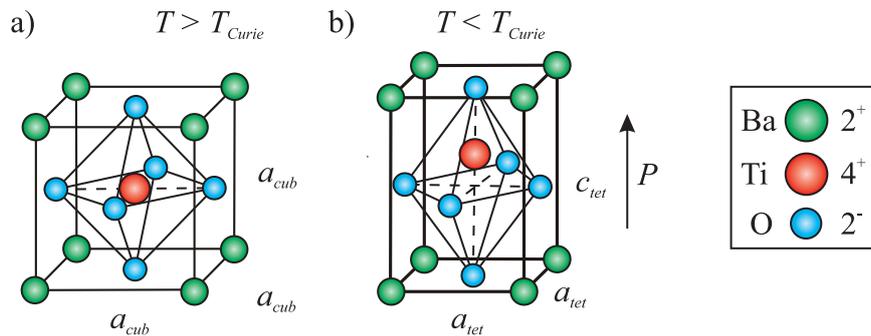
Die ferroelektrischen Kristalle gliedern sich in die Umordnungs- oder die Verschiebungsgruppe. Bariumtitanat ist ein Vertreter der zweiten Gruppe. Hierbei wird der Übergang in den Zustand der spontanen Polarisierung mit der Verschiebung eines ganzen Untergitters einer Ionensorte relativ zum Gitter der anderen Ionen verschoben. Die Temperaturabhängigkeit der spontanen Polarisierung bei BTO setzt unterhalb von  $T = 393\text{ K}$  ein. Diese spezielle Temperatur ist die materialspezifische Curie-Temperatur ( $120^\circ\text{C}$ ) und steigt mit sinkender Temperatur rasch an. Bei  $T = 237\text{ K}$  ist die Polarisierung entlang einer Würfelkante gerichtet. [21]

Der ferroelektrische Zustand wird bei Keramiken durch das Abkühlen beim Sintervorgang in der Herstellung erzielt. Durch das Abkühlen gelangt die Keramik vom paraelektrischen in den ferroelektrischen Bereich, siehe Abbildung 2.3. Hier werden die unterschiedlichen Phasen des Kristalls in Abhängigkeit der Temperatur dargestellt.

Abbildung 2.4 zeigt die Elementarzelle zum einen in einer kubischen Phase oberhalb der Curie-Temperatur (a) und zum anderen in der tetragonalen Phase unterhalb der Curie-Temperatur (b). Oberhalb der Curie-Temperatur ist die Struktur noch symmetrisch und das Material verhält sich paraelektrisch. Sobald die Temperatur unterhalb der Curie-Temperatur sinkt verschiebt sich das vierfach positiv



**Abbildung 2.3:** Phasendiagramm von BaTiO<sub>3</sub>. Übergang vom paraelektrischen zum ferroelektrischen Bereich bei BaTiO<sub>3</sub> bei  $T_{Curie}$ , übernommen aus [49].



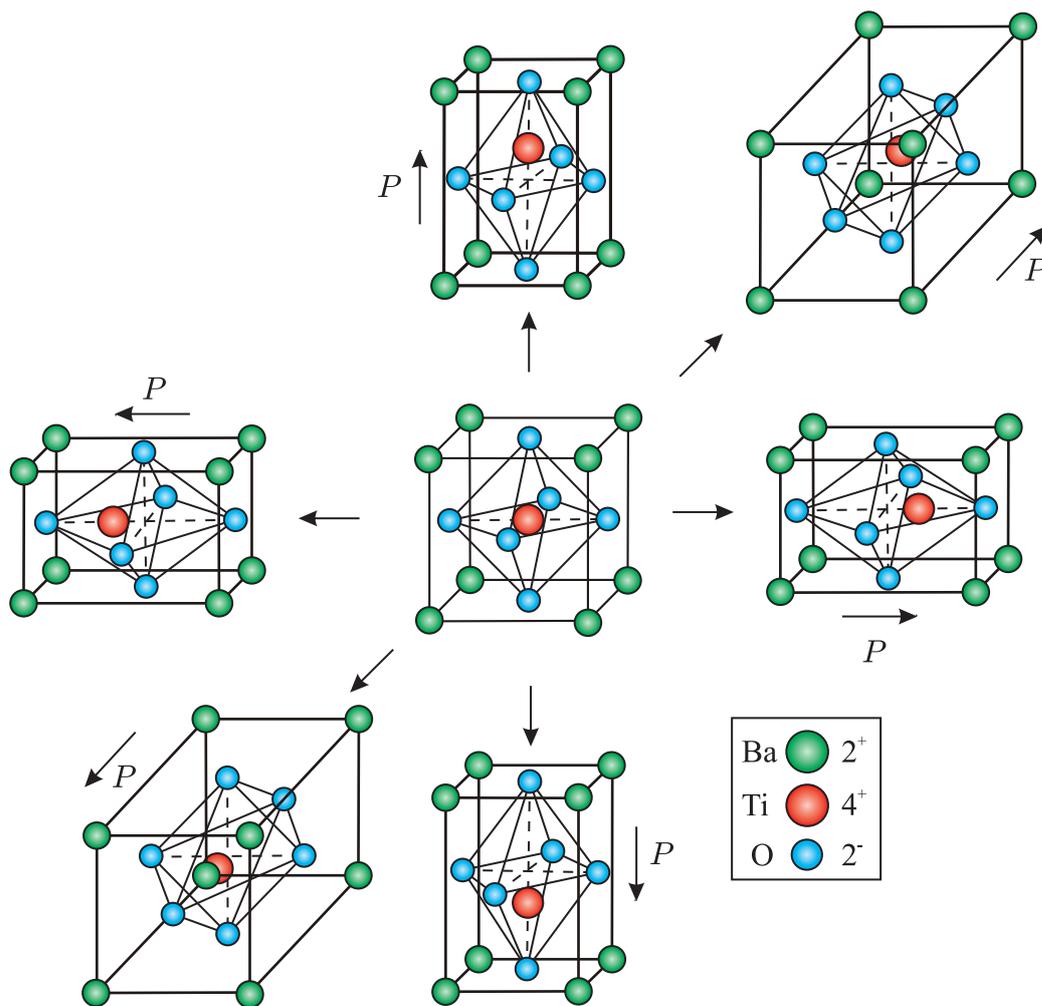
**Abbildung 2.4:** Einheitszelle von BTO oberhalb und unterhalb der Curie-Temperatur. a) Paraelektrische Phase mit kubischer Perowskitstruktur  $T > T_{Curie}$ . b) Ferroelektrische Phase mit tetragonaler Struktur und spontaner Polarisation  $T < T_{Curie}$ , [54].

geladene Titanium-Ion, sodass die Ladungsschwerpunkte der Elementarzelle nicht mehr zusammenfallen und ein elektrischer Dipol entsteht. [49, 75]

Da die Einheitszelle eine räumliche dreidimensionale Struktur besitzt, wird die spontane Polarisation durch einen Vektor entlang der polaren Achse vom negativen zum positiven Ladungsschwerpunkt im Inneren der Einheitszelle beschrieben.

Die Richtungen der spontanen Polarisation sind zufallsverteilt und gleich wahrscheinlich. Entsprechend der sechs Raumrichtungen können auch sechs Richtungen für die spontane Polarisation auftreten, siehe Abbildung 2.5. Mit dem Auftreten einer spontanen Polarisation wird zeitgleich eine entsprechende spontane

Dehnung der Einheitszelle in Polarisationsrichtung induziert. Da in einem Kristall eine große Anzahl von Einheitszellen vorliegt und die spontane Ausrichtung der Polarisationsvektoren beim Abkühlen in alle sechs Raumrichtungen gleich wahrscheinlich sind, heben sich ihre Wirkungen im Mittel gegenseitig auf. Makroskopisch betrachtet tritt keine spontane bzw. bleibende Polarisation auf. [47, 48, 54]



**Abbildung 2.5:** Die sechs Richtungen der spontanen Polarisation aufgrund der Verschiebung der Ionen entsprechend der Raumrichtungen, [54].

Innerhalb des Kristalls bilden sich Bereiche gleicher Polarisation aus, sogenannte Domänen, um mechanische Spannungen und elektrische Felder zu minimieren. Ohne ein äußeres Feld sind die Domänen unterschiedlich zueinander orientiert und durch Domänenwände voneinander getrennt. Diese Wand wird mit dem Winkel der Änderung der Polarisationsrichtung bezeichnet, z.B.  $180^\circ$  oder  $90^\circ$  Domänenwand. Die Dipolmomente der Domänen heben sich im Gesamten gegenseitig auf, sodass kein nach außen wirkendes Dipolmoment existiert. [76]

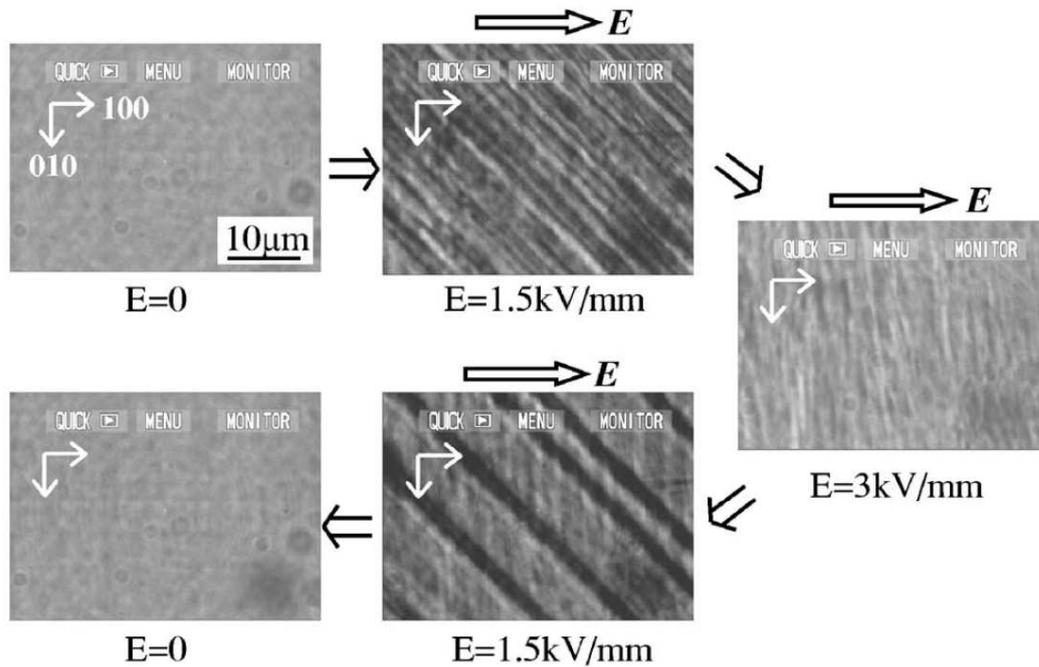
Für Ferroelektrika ist die elektromechanische Kopplung sehr bedeutsam. Wie in der Physik lassen sich auch in der Werkstoffkunde gewisse Gesetze definieren, so zum Beispiel, dass aus der Ursache und einem zugehörigen Koeffizienten eine Wirkung entsteht. Beispielsweise entsteht aus elektrischer Spannung und der elektrischen Leitfähigkeit als Koeffizient der elektrische Strom als Wirkung. Vergleichbar ist dies mit mechanischer Spannung als Ursache und elastischer Nachgiebigkeit als Koeffizient zur reversiblen Verformung als Wirkung. Der jeweilige Koeffizient ist immer die maßgebliche Werkstoffeigenschaft. In vielen Fällen ist dies ein nichtlinearer Zusammenhang. Die Nichtlinearitäten sind zudem abhängig vom Aufbau des Werkstoffs selbst. [36]

Aufgrund der statistischen Gleichverteilung der unterschiedlichen Polarisationsrichtungen im unpolarisierten Zustand ergibt dies makroskopisch keine resultierende Polarisation. Sofern ein elektrisches Feld angelegt wird, sind einige Domänen bereits entsprechend diesem ausgerichtet und somit energetisch günstig. Bei energetisch ungünstigen Domänen kommt es zu einer Richtungsänderung, um diese ebenfalls energetisch günstig auszurichten. [47]

In Abbildung 2.6 wird die Domänenstruktur bei unterschiedlich angelegtem elektrischen Feld dargestellt. Die Domänen richten sich entsprechend einem angelegten elektrischen Feld aus. Die dargestellten Experimente wurden nicht an reinem Bariumtitanat durchgeführt, stellen aber das grundsätzliche Verhalten dar. Er-sichtlich sind die unterschiedlichen Domänenstrukturen, wie sie durch das Umklappen der einzelnen Elementarzellen entstehen.

Die Umklappvorgänge bewirken eine Vergrößerung oder Verkleinerung der Bereiche der entsprechenden Raumrichtung der Elementarzellen und insgesamt wird die Keramik polarisiert. Die Polarisation beruht auf einer Verzerrung der Elementarzelle. Das Umklappen ist ein Rotieren der Elementarzelle mit Ausrichtung der Polarisation entlang einer der möglichen polaren Achsen. [54] Der Einfluss eines zyklischen einachsialen elektrischen Feldes auf die Polarisation und Dehnung wird durch die nichtlineare dielektrische Hysteresekurve und die Schmetterlingshysterese charakterisiert, siehe Abbildung 2.7.

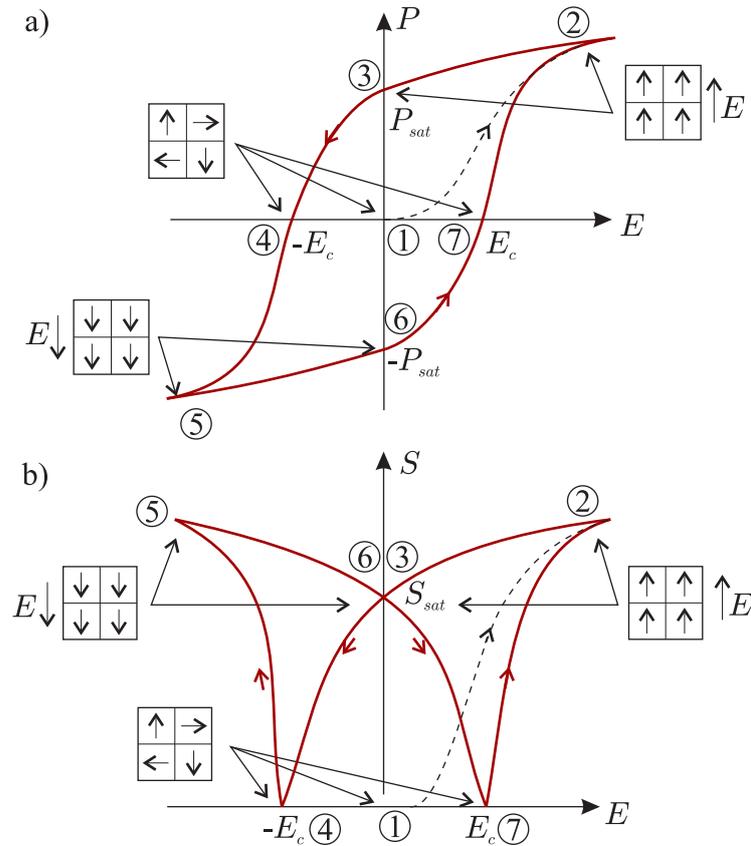
In der klassischen Hysteresekurve 2.7(a) wird die Polarisation  $P$  über dem angelegten elektrischen Feld  $E$  dargestellt. Zu Beginn des einachsialen Versuchs ist der Körper nicht polarisiert, Zustand 1. Die unterschiedlichen Domänen im Körper sind gleichverteilt und heben sich gegenseitig auf. Sobald ein elektrisches Feld angelegt wird, erzeugt dies zunächst einen Anstieg der Polarisation, wobei die Elementarzellen nach und nach zum Umklappen gezwungen werden. Zum Zeitpunkt des Zustands 2 ist der Körper vollständig polarisiert. Die Richtung der Polarisierung ist abhängig vom angelegten elektrischen Feld. Würde das elektrische Feld weiterhin gesteigert werden, bewirkt dies nur noch einen weiteren



**Abbildung 2.6:** Reversible Domänenumklappvorgänge während elektrischer Feldzyklen in einem gealterten dotierten Mn-BaTiO<sub>3</sub>-Kristall, übernommen aus [92].

linearen Anstieg der Polarisation. Hierbei würden die positiven und negativen Ladungsschwerpunkte weiter voneinander entfernt werden. Wird das elektrische Feld bis auf Null reduziert, so erreicht man den Zustand 3 mit der gesättigten Polarisation  $P_{sat}$ . Diese Größe beschreibt die größte remanente Polarisation ohne eine äußere Einwirkung eines elektrischen Feldes,  $E = 0$ . Eine weitere Reduktion des elektrischen Feldes bewirkt eine Umpolarisierung des Körpers. Im Zustand 4 ist die Summe der Polarisation gleich Null und das elektrische Feld an diesem Punkt wird als koerzitive elektrische Feldstärke bezeichnet. Bis der Körper vollständig in die entgegengesetzte Richtung polarisiert ist bedarf es einer weiteren Reduktion des elektrischen Feldes und es wird der Zustand 5 erreicht. Sofern das elektrische Feld erneut gesteigert wird werden die Zustände 6 und 7 durchlaufen, bis der Zustand 2 wieder erreicht wird. Die Zustände 6 und 7 entsprechen den Zuständen 3 und 4 mit entgegengerichteter Polarisation, bzw. elektrischem Feld. Der Zustand 1 wird nicht wieder erreicht. [47]

In der Schmetterlingshysterese wird die Dehnung  $S$ , siehe Abbildung 2.7(b), über dem elektrischen Feld  $E$  dargestellt. Auch hier wird von einem unpolarisierten Körper ausgegangen, Zustand 1. Die vorliegenden Polarisationen der Elementarzellen heben sich gegenseitig auf. Das Anlegen eines elektrischen Feldes bewirkt Umklappvorgänge der Polarisation in den Elementarzellen und eine Dehnung wird

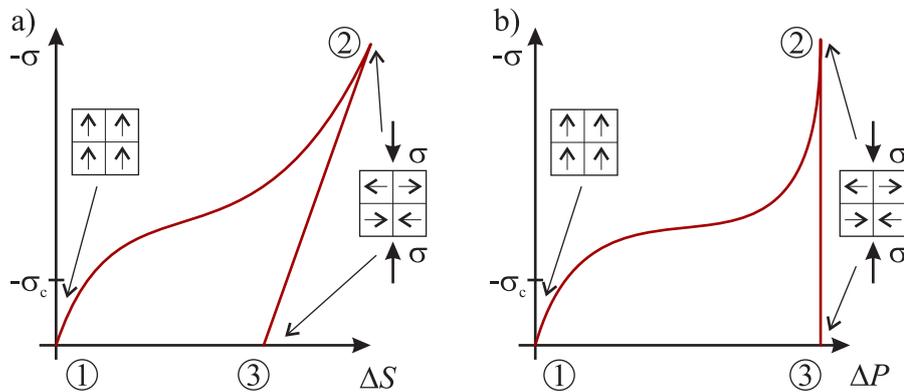


**Abbildung 2.7:** a) Typische Hystereseschleife von BaTiO<sub>3</sub> der Polarisation. b) Typische Schmetterlingshysteresese von BaTiO<sub>3</sub> der Verzerrungen; jeweils bei einachsialer Belastung durch ein angelegtes elektrisches Feld, entnommen von [47].

im Körper hervorgerufen. Der Zustand 2 beschreibt einen vollständig polarisierten Körper. Hier kann die Dehnung nur noch linear durch den inversen piezoelektrischen Effekt gesteigert werden. Nach einer Reduktion des elektrischen Feldes wird die Sättigungsdehnung  $S_{sat}$  im Zustand 3, bei  $E = 0$ , erreicht. Wird das elektrische Feld bis zur Koerzitivfeldstärke  $E_c$  verringert, so sind die Dehnungen gleich Null. Unter weiterer Reduktion des elektrischen Feldes wird der Körper in entgegengesetzte Richtung polarisiert und die Dehnungen werden wieder gesteigert. Deutlich ist, dass in den unpolarisierten Zuständen 4 und 7 keine Dehnungen vorliegen. [47]

Andererseits kann die Mikrostruktur auch durch eine mechanische Spannung verändert werden. Ausgangszustand ist hier, im Gegensatz zum vorherigen Beispiel, ein polarisierter Körper. Sofern eine Druckspannung  $-\sigma$  in Richtung der polaren Achse wirkt führt dies zu einer Depolarisation. Die Druckspannung bewirkt, dass die Elementarzellen 90°-Umklappvorgänge orthogonal zu den Spannungsrichtung durchführen. Hierbei wird die Druckspannung über der Änderung der

Dehnung  $\Delta S$ , Abbildung 2.8(a), und die Änderung der Polarisation  $\Delta P$ , Abbildung 2.8(b), aufgetragen. Die Polarisations- und Dehnungskurven zeigen anfangs einen linearen Verlauf, bis die koerzitive Spannung  $-\sigma$  erreicht wird.



**Abbildung 2.8:** Schematischer Dehnungs- und Polarisationsverlauf ferroelektrischer Materialien unter angelegter Druckspannung, [47].

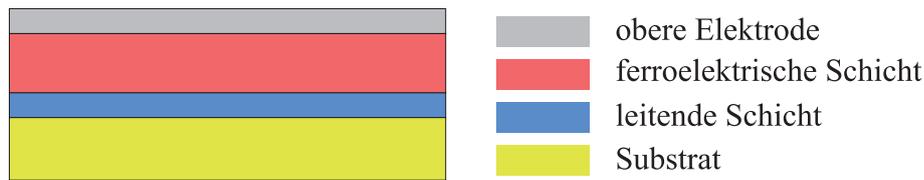
Für weiterführende Literatur über ferroelektrische Keramiken und deren Eigenschaften sei insbesondere auf die folgende Literatur verwiesen JAFFE ET AL. [44] und KAMLAH [47].

## 2.2 Entwurf eines Nanogenerators

Der folgende Abschnitt basiert im Wesentlichen auf Arbeiten von Münch und Krauß, die in [54] publiziert sind. In dieser Arbeit werden monokristalline Strukturen untersucht, somit kann eine Interaktion der Domänenwände mit einzelnen Korngrenzen außer Acht gelassen werden. Die Energiequelle für den Nanogenerator stellen mechanische Deformationen dar, welche unterhalb der kritischen Dehnung für ferroelektrische Materialien liegen, sodass keine Risse oder mechanische Beschädigung des Nanogenerators zu erwarten sind.

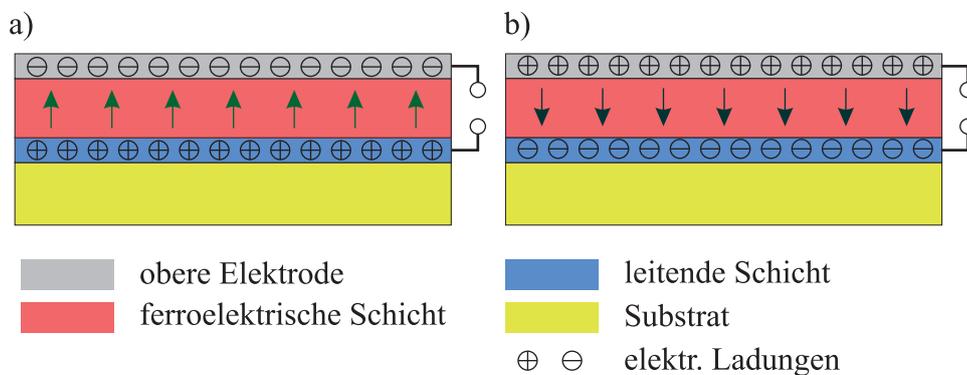
Der Nanogenerator ist wie folgt aufgebaut. Die unterste Schicht bildet das Substrat, welches die Deformation an die darüber liegenden Schichten weiterleitet. Auf dem Substrat wird eine sehr dünne leitfähige Schicht aufgebracht, welche als untere Elektrode fungiert. Auf diese wiederum befindet sich das ferroelektrische Material. Als Gegenpol zur unteren leitfähigen Schicht wird auf der Oberseite des Ferroelektrikums eine zusätzliche Elektrode aufgebracht. Der Schichtenaufbau ist in Abbildung 2.9 dargestellt, [54].

Von besonderer Bedeutung ist die ferroelektrische Schicht, denn diese soll durch die Änderung der Polarisation zum Erzeugen eines elektrischen Stroms an den



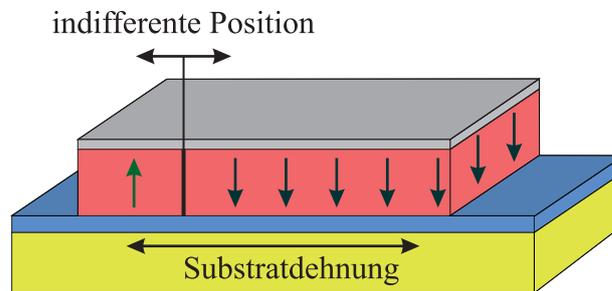
**Abbildung 2.9:** Schichtenaufbau des favorisierten Nanogeneratormodells. (nicht maßstäblich)

Elektroden beitragen. Für eine dauerhafte Nutzung des Generators ist es erforderlich, dass die Domänentopologie stabil bleibt. Eine stabile Domänentopologie ist dann gewährleistet, wenn sich die Domänenwände während der Dehnungsänderung verschieben können, allerdings bei Entlastung wieder in den Ausgangszustand zurückkehren. In Abbildung 2.10 ist die ferroelektrische Schicht jeweils komplett in eine Richtung polarisiert, dies wird als Monodomäne bezeichnet. Der ideale Nanogenerator bestünde aus so einer Monodomäne mit vollständig vertikal ausgerichteter Polarisation, da das vollständige Material zur Energieumwandlung genutzt wird. Durch den Einfluss eines extern angelegten elektrischen Feldes ist die Polarisation in ihrer Richtung umkehrbar. Vor der Umpolung herrscht ein Polungszustand, Abbildung 2.10(a), der durch das Anlegen eines elektrischen Feldes induziert wird. Nach der Umkehrung des elektrischen Feldes richtet sich die Polarisation ebenfalls um, Abbildung 2.10(b). Hierbei wären die größtmögliche Änderung an Oberflächenladungen zu erzielen und die freien Ladungsträger würden von der oberen Elektrode zur unteren angezogen werden und umgekehrt. Dieses Modell ist allerdings nicht umsetzbar. Die Domänen sind nur aufgrund der Änderung des angelegten elektrischen Feldes zum Umklappen bereit. Die Pfeile deuten die Polarisationsrichtung an, [54].



**Abbildung 2.10:** Idealer Nanogenerator, a) vor Umpolung, b) nach Umpolung. Die Pfeile deuten die Polarisationsrichtung an, [54].

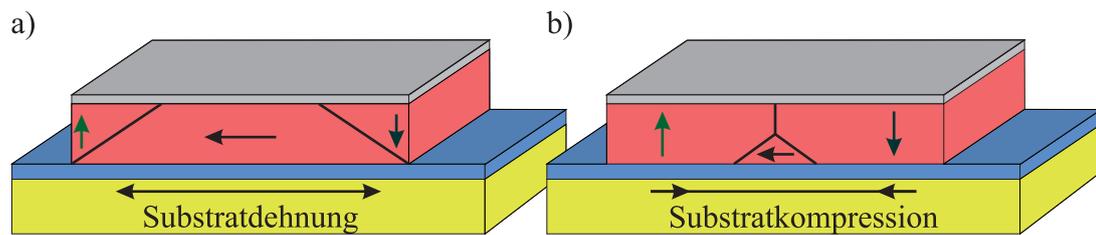
Eine weitere Möglichkeit wäre eine Domänenstruktur aus zwei Domänen zu generieren, wobei diese durch eine  $180^\circ$  Domänenwand voneinander getrennt wären. Die  $180^\circ$  Domänenwand beschreibt einen Richtungswechsel der Polarisierung um  $180^\circ$ . Dieser Zustand kann allein durch die Verzerrung des Substrates nicht gesteuert werden, da die Domänenwand aus dem Ferroelektrikum wandern würde und somit wieder eine Monodomäne entsteht. Abbildung 2.11 beschreibt einen indifferenten Zustand der Polarisationsdomänen. Diese Variante ist ebenfalls nur durch Anlegen eines elektrischen Stroms umzusetzen und folglich zu verwerfen. Ein Umklappen der Polarisationsdomäne ist mithilfe rein mechanischer Arbeit nicht mehr möglich.



**Abbildung 2.11:** Nanogenerator mit zwei Domänen, getrennt durch eine  $180^\circ$  Domänenwand, [54].

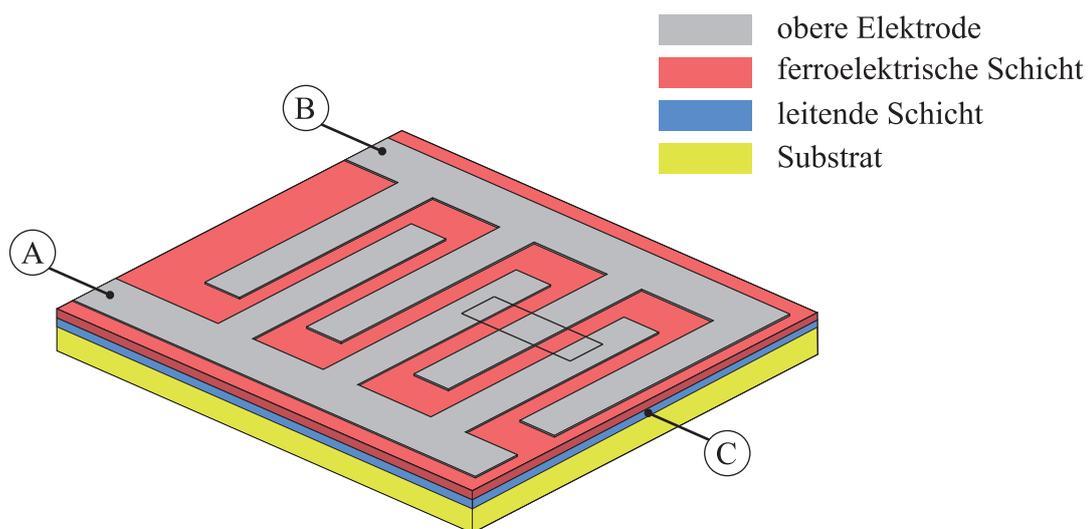
Um ein reversibles Nanogeneratorprinzip zu erhalten wird eine Variante verwendet, die sowohl vertikale, als auch horizontale Anteile der Polarisierung aufweist, Abbildung 2.12. Dies ist aufgrund der tetragonalen Geometrie der Einheitszelle möglich. Eine komplette Umkehrung der vertikalen Polarisierung kann dann jedoch nicht genutzt werden. Durch die Kompression im Substrat, Abbildung 2.12(b), werden freie Ladungen in Richtung der Elektroden angezogen und die vertikalen Domänen nehmen mehr Raum ein. Die Domäne mit horizontaler Polarisierung hingegen verringert ihr Volumen. Es bildet sich zwischen den beiden vertikalen Domänen eine  $180^\circ$  Domänenwand aus. Bei der Substratdehnung, Abbildung 2.12(a), wird die horizontale Polarisierung begünstigt. Die Elementarzellen werden gedehnt und die Polarisierung richtet sich vermehrt in Richtung der Dehnung aus. Hierbei wird ein Ladungsausgleich angestrebt und es führt zu einem Rückfluss der Elektronen. Es wird der Ausgangszustand wiederhergestellt, [54].

Beim vorangegangenen Prinzip ist die Reversibilität gegeben, jedoch ist aufgrund der durchgehenden oberen Elektrode keine Änderung der Oberflächenladung zu verzeichnen. Die Summe der Oberflächenanteile der Polarisierung ist je Elektrode Null, da ein Ladungsausgleich innerhalb der Elektroden herrscht. Die Funktionalität des Nanogenerators ist demnach noch nicht gegeben.



**Abbildung 2.12:** Schematische Darstellung des Nanogenerators mit zwei  $90^\circ$  Domänenwänden. a) Ausgangszustand und Zustand unter Substratdehnung, b) Zustand nach Substratkompression, [54].

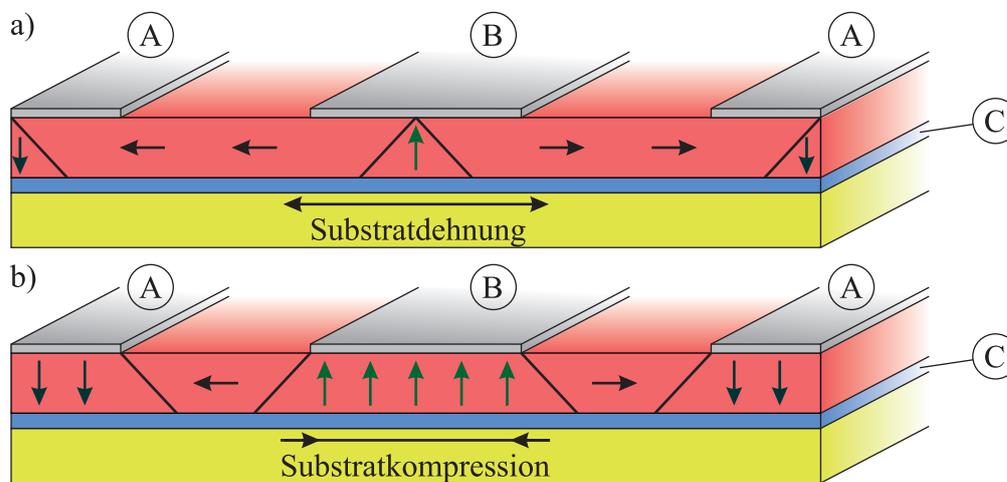
Sofern eine Strukturierung der Oberflächenelektrode vorgenommen wird und die Domänen­topologie verändert wird, ist zusätzlich zur Reversibilität auch die Funktionalität gegeben. Eine mögliche Strukturierung der Oberflächenelektrode ist in Abbildung 2.13 dargestellt. Hierbei wird angenommen, dass die ferroelektrische Schicht aus Herstellungsgründen weiterhin zusammenhängend ist. Bei dieser Va-



**Abbildung 2.13:** Mögliche Strukturierung der oberen Elektrode auf einer kontinuierlichen ferroelektrischen Schicht, [54].

riante mit kontinuierlicher ferroelektrischer Schicht und strukturierter Elektrode werden zwei Elektroden an der Oberseite und eine elektrisch leitende Schicht unterhalb des Ferroelektrikums verwendet, um eine stabile Domänen­topologie zu erhalten. Um eine erste Abschätzung des Einflusses der Leitungsmechanismen auf die Funktionalität des gewählten Nanogeneratorsaufbaus mit strukturierter oberer Elektrode zu erhalten, wird in dieser Arbeit zunächst ein 2D-Modell gewählt. Der Domänenquerschnitt im Ausschnitt aus Abbildung 2.13 ist in Abbildung 2.14 dargestellt. Sofern eine elektrische Spannung zwischen den Elektroden A und B

angelegt wird stellt sich ein elektrisches Feld zwischen den beiden oberen Elektroden ein und auch zwischen den oberen Elektroden und der unteren leitfähigen Schicht. Die untere leitende Elektrode wird stets geerdet. Die Erdung der unteren Elektrode ist zur Reversibilität der Polarisationszustände erforderlich. Es stellt sich der Domänenzustand in Abbildung 2.14(a) ein. Eine Kompression der Substratschicht führt zu einer Änderung der Oberflächenladungen, die Streckung führt wieder zum Ausgangszustand. Eine periodische Wiederholung der Substratkompression und Substratdehnung gewährt idealerweise eine Reversibilität und Funktionalität des Nanogenerators mit strukturierter oberer Elektrode und führt zu den beiden aufgeführten Domänenzuständen, [54].



**Abbildung 2.14:** Regelmäßiger Ausschnitt aus Abbildung 2.13 unter a) Substratdehnung und b) Substratkompression, [54].

Eine Vergrößerung der vertikalen Polarisationsdomänen infolge einer Substratkompression, Abbildung 2.14(b), führt dazu, dass Ladungen zu den jeweiligen oberen Elektroden orientiert sind, um dort für einen Ladungsausgleich zu sorgen. Infolgedessen reichern sich abwechselnd an den oberen Elektroden positive oder negative Ladungen an. Andererseits verringert sich der Raum der vertikalen Domänen infolge der Substratdehnung, Abbildung 2.14(a), und es führt zu einem Rückfluss der Ladungsträger.

Wesentlich für den Nanogenerator ist die Vordehnung der ferroelektrischen Schicht, welche dazu führt, dass der innere Domänenzustand stabil bleibt. Von Bedeutung sind hier nur horizontale Dehnungen, da eine vertikale Dehnung keinen Einfluss auf die Domänenstruktur hat. Grundsätzlich ist es möglich die Dehnungen durch einen epitaktischen Verbund zwischen der Substratschicht und dem Ferroelektrikum bereits bei der Herstellung zu erreichen. Hierfür müssen die Gitterkonstanten der beiden Schichten nahezu identisch sein, damit beim Lagenwachstum

Substratmaterial	$d_{BTO}$ [nm]	$c_{tet}$ [Å]	$a_{tet}$ [Å]
SrTiO <sub>3</sub>	100-400	4.10 ± 0.02	4.00 ± 0.02
YAlO <sub>3</sub>	210	4.07	4.00
LaAlO <sub>3</sub>	170	4.06	3.95
NdGaO <sub>3</sub>	190	4.08	4.00
DyScO <sub>3</sub>	210	4.14	3.97
MgO <sub>3</sub>	170	4.07	4.02

**Tabelle 2.1:** Gitterparameter der tetragonalen Einheitszelle von BTO auf unterschiedlichen Substratmaterialien [85].

die Atome des Ferroelektrikums sich auf die Atome des Substrat legen können. Gibt es keinen Unterschied zwischen den Gitterkonstanten, dann ist die Differenz gleich Null und es entstehen keine epitaktischen Dehnungen. Gleiches gilt für zu stark unterschiedliche Gitterkonstanten, da hierbei das Ferroelektrikum auf dem Substratmaterial relaxiert, [54].

In Tabelle 2.1 sind unterschiedliche Gitterkonstanten verschiedener Substratmaterialien aufgelistet. Für die Funktionalität des Generators muss die untere Elektrode eine elektrisch leitende Schicht sein. Hierfür eignen sich Materialien wie zum Beispiel La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO) oder SrTiO<sub>3</sub> (STO), [64].

## 2.3 Spezialfall: Keramische Halbleiter

Zusätzlich zum bisher untersuchten Nanogeneratormodells [54], werden in dieser Arbeit Halbleitereffekte in der ferroelektrischen Schicht beachtet.

Der folgende Abschnitt bezieht sich unter anderem auf [6, 21, 36, 46]. Hier sei nur eine kurze Einführung in die relevanten Eigenschaften von Halbleitern gegeben. Es soll keine ausführliche Zusammenfassung darstellen. Für weitere Informationen wird auf die aufgeführte und darin zitierte Literatur verwiesen.

Im Allgemeinen sind Halbleiter keramische Werkstoffe, welche die Besonderheit besitzen, dass ihre Stromleitfähigkeit temperaturabhängig ist, weshalb sie nicht den Leitern zuzuordnen sind. Bei tieferen Temperaturen wirken sie wie ein Isolator. Mögliche Leitungsmechanismen sind zum Beispiel Eigenleitung, Störstellenleitung, Ionenleitung oder der p-n-Übergang. Halbleiter sind spezielle Werkstoffe mit einem spezifischen elektrischen Widerstand zwischen dem der Metalle und dem der Isolatoren. Durch die Zugabe bestimmter Stoffe (Dotierungsstoffe) kann dieser spezifische Widerstand um mehrere Zehnerpotenzen geändert werden, was für die Halbleitertechnik von großer Bedeutung ist, [21, 36]. Diese Zugabe kann gezielt oder durch Verunreinigungen im Herstellungsprozess erfolgen. Halbleiterbauelemente werden meistens aus Einkristallen hergestellt. An Korngrenzen von poly-

kristallinen Kristallen stellen sich unkontrollierte Grenzschichteffekte ein, weshalb Polykristalle in der Halbleitertechnik nicht eingesetzt werden.

Aufgrund der unterschiedlichen Ursachen für eine entstehende Leitfähigkeit in Keramiken ist die elektrische Leitfähigkeit um so höher, je größer die Zahl von Ladungsträgern und deren Beweglichkeit ist. Die hohe Leitfähigkeit der Metalle ist durch die metallische Bindung gegeben, bei der im Gitter leicht bewegliche Elektronen vorliegen, die als Ladungsträger fungieren. Keramische Werkstoffe enthalten meist keine freien Elektronen, sodass ihre elektrische Leitfähigkeit um viele Größenordnungen niedriger ist. Für die restliche Leitfähigkeit sind häufig Ionen als Ladungsträger verantwortlich. Deren Beweglichkeit ist durch die Masse und durch den Einbau in die Struktur normalerweise erheblich geringer als die Elektronenbeweglichkeit. [21, 46]

Bei den Oxidkeramiken, zu denen auch Bariumtitanat gehört, sind hauptsächlich Ionen die Ladungsträger. Der Ladungstransport ist abhängig von den Diffusionsvorgängen im jeweiligen Medium. Werden die Ionen beweglich, so kann es auf Basis von einem Ionenstrom zu einer elektrischen Leitfähigkeit  $\Gamma$  kommen.

Mit steigender Temperatur nimmt die Leitfähigkeit bei Keramiken zu. Die stromtragenden Ionen verhalten sich entsprechend Ionen in Flüssigkeiten; sie unterliegen den thermodynamischen Gesetzen und können sich an Reaktionen beteiligen. Zusammenfassend ergibt sich, dass es drei Gründe für das Auftreten der Halbleitung gibt: Anregung durch hohe Temperaturen, Einbau von Fremdionen oder Verunreinigungen und einer Änderung der kristallinen Verbindungen. [36]

Die Leitfähigkeit  $\Gamma$ , gemessen in  $1/(\Omega m)$ , ermöglicht den Transport von elektrischer Ladung im Material. Der spezifische Widerstand  $\rho$  kann sich um einen Faktor von ungefähr  $10^{24}$  zwischen den Stoffen unterscheiden. In Tabelle 2.2 sind ungefähre Werte für den spezifischen Widerstand  $\rho$  für Supraleiter, Halbleiter, Leiter und Isolatoren aufgeführt. Der spezifische Widerstand ist der reziproke Wert der Leitfähigkeit und wird in  $\Omega m$  angegeben.

Supraleiter:	$\rho \approx 0 \Omega m$
Leiter:	$10^{-8} < \rho < 10^{-6} \Omega m$
Halbleiter:	$10^{-5} < \rho < 10^6 \Omega m$
Isolatoren:	$10^7 < \rho < 10^{16} \Omega m$

**Tabelle 2.2:** Liste für spezifische Widerstände für Supraleiter, Leiter, Halbleiter und Isolatoren, [36]

Ist die auftretende elektrische Spannung zu groß, so kann dies zu einem dielektrischen Durchschlag führen. Für einen elektrischen Durchschlag sind verschiedene Effekte im Werkstoff verantwortlich. Den Beginn bildet die Beschleunigung

einzelner Elektronen, die beim Aufprall auf die Elektronenhülle anderer Atome weitere Elektronen freisetzen. Es entstehen Ionen. Mit zunehmender Feldstärke steigt sowohl die Elektronenanzahl als auch die Anzahl der aus den Bindungen abgelösten Ionen. In diesen Gebieten ist die kritische Feldstärke bereits bei geringen Spannungen erreicht und der elektrische Durchschlag wird eingeleitet. So wie der elektrische Durchschlag können auch ungewollte Leitungsmechanismen, sogenannte Leckströme, die Funktionalität der Nanogeneratoren beeinträchtigen. Leckströme sind ungewollte Ladungsströme, die unter anderem in halbleitenden Keramiken auftreten. [21]

Eine Art von Leckstrom tritt auf, wenn in einem vorgesehenen Stromkreis Strom an einer ungewollten Stelle austritt. Eine weitere betrifft insbesondere dielektrische Materialien, die keine perfekten Isolatoren sind. Diese besitzen eine von null abweichende Leitfähigkeit, weshalb ein Leckstrom fließen kann. Im Folgenden werden spezielle Leitungsmechanismen näher beschrieben und in den numerischen Untersuchungen angewendet. Abhängig ob in englischer oder deutscher Literatur wird die Übersetzung und Verwendung des Wortes „leakage current“ als ungewollte Leckströme oder generell als Leitungsmechanismen bezeichnet. Im Weiteren werden die beiden Begriffe synonym verwendet mit der Bedeutung Leitungsmechanismen in keramischen Materialien.

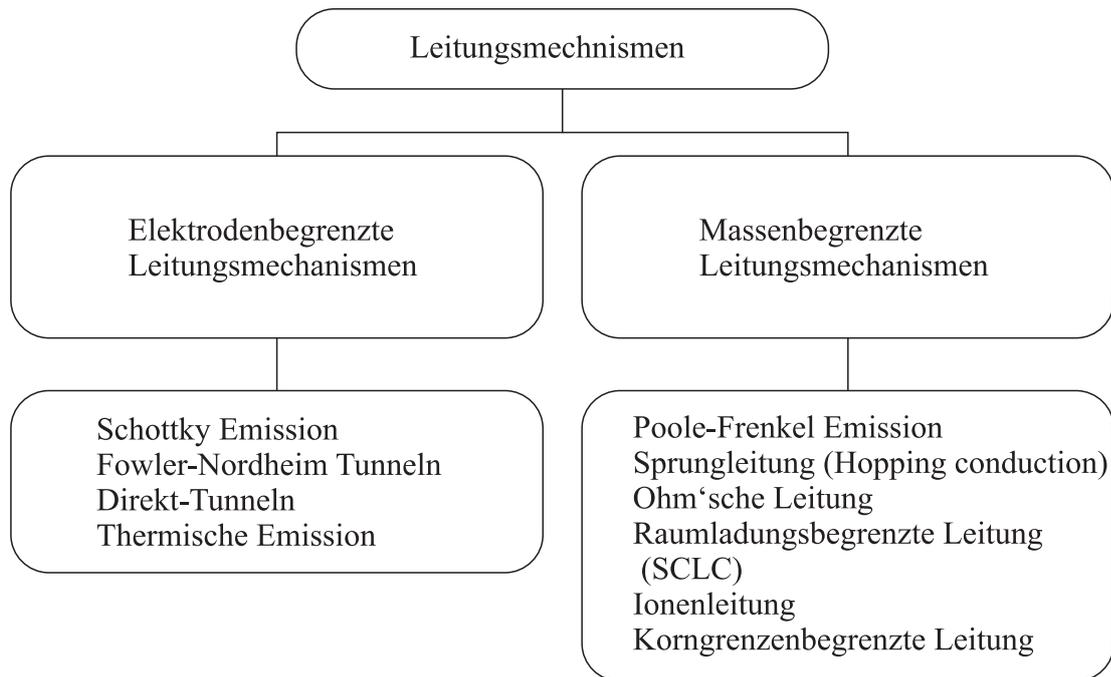
In der Literatur sind nur die Leckstromformulierungen anhand eines eindimensionalen Versuchsaufbaus gegeben. Daher ist eine Erweiterung auf bis zu drei Dimensionen nötig, siehe Anhang B. Für die Erweiterung auf drei Raumrichtungen wird Isotropie vorausgesetzt.

Die Unterteilung von Leitungsmechanismen erfolgt anhand ihres dominanten Auftretens. So gibt es Leckströme, die sich an den Elektroden begrenzt auswirken, oder andere, die entsprechend den Eigenschaften des Dielektrikums im gesamten Material auftreten. In CHIU [21] werden unterschiedliche Leitungsmechanismen beschrieben. Eine grafische Gegenüberstellung ist in Abbildung 2.15 gegeben.

In der vorliegenden Arbeit werden massenbegrenzte Leitungsmechanismen untersucht, welche im Nachfolgenden näher erläutert werden.

Zum Verständnis der nachfolgenden Erläuterungen bezüglich der unterschiedlichen Leitungsmechanismen und deren Ursache wird eine kurze Einführung in das Bändermodell der Leiter, Halbleiter und Isolatoren gegeben. Diese Kurzfassung bezieht sich auf KOMMER [50]. Grundlage des Bändermodells ist die Fermi-Energie  $E_F$ . Der Begriff der Fermi-Energie ist ein feststehender physikalischer Begriff aus der Quantenstatistik. Anschaulich ist die Fermi-Energie die Energie, die einem Elektron hinzugefügt werden muss, um es aus dem Metall herauszuschlagen.

Weitere Begriffe des Bändermodells sind Energiebänder. Es gibt zwei bedeutende



**Abbildung 2.15:** Gegenüberstellung verschiedener elektrodenbegrenzter und massenbegrenzter Leitungsmechanismen, [21].

Energiebänder, die zur Beschreibung der elektrischen Leitfähigkeit von Materialien wichtig sind. Zum einen ist es das Valenzband, welche das höchste besetzte Energieband am absoluten Nullpunkt ist. Zum anderen das Leitungsband, welches das nächsthöhere Energieband über dem Valenzband beschreibt. Der Abstand zwischen diesen beiden Bändern ist die Bandlücke. Die Bandlücke  $E_G$  wird in der Einheit  $eV$  angegeben und definiert insbesondere die elektrische Leitfähigkeit von Materialien. [21]

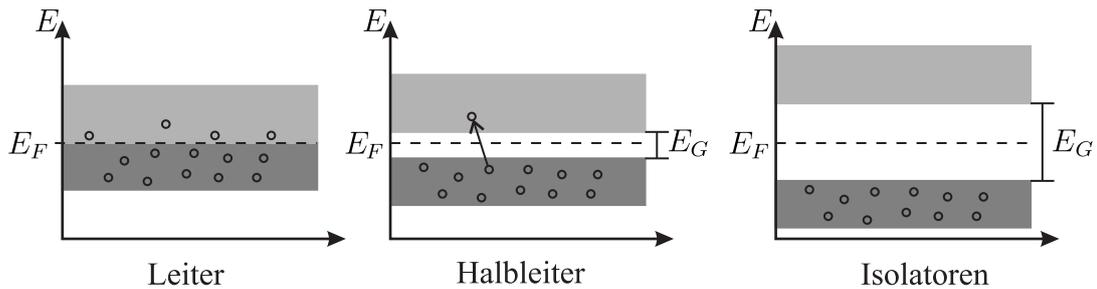
Die angeregten Elektronen im Leitungsband können durch ihre freie Beweglichkeit zur elektrischen Leitfähigkeit beitragen. Anhand der Anzahl von Elektronen im Leitungsband und der Größe der Bandlücke wird eine Klassifizierung in Leiter, Halbleiter und Isolatoren vorgenommen. Die Grenzen sind eher als unscharfe Werte zu betrachten, sie variieren durchaus in Abhängigkeit der Temperatur. Tabelle 2.3 führt die Bereich von Bandlücken für Leiter, Halbleiter und Isolatoren auf. Zu beachten ist, dass die Grenzen zwischen Leitern und Halbleitern sowie Halbleitern und Isolatoren nicht streng ausgelegt werden sollten, da sie je nach Dotierung und Material schwanken können. [34]

In Abbildung 2.16 sind die unterschiedlichen Bändermodelle für Leiter, Halbleiter und Isolatoren dargestellt. Für die elektrische Leitfähigkeit ist die Lage des Leitungsbandes relativ zum Valenzband von Bedeutung.

Bei Leitern berühren sich die beiden Bänder mindestens, es kann durchaus zu

Leiter:	keine Bandlücke
Halbleiter:	$< 3 eV$
Isolatoren:	$> 3 eV$

**Tabelle 2.3:** Bandlücken der verschiedenen Werkstoffklassifizierungen, Leiter, Halbleiter und Isolatoren, [34]



**Abbildung 2.16:** Bändermodelle für Leiter, Halbleiter und Isolatoren im Vergleich, entnommen aus [50].

kleinen Überlappungen führen. Halbleiterbandmodell hingegen weisen eine geringe Bandlücke auf, die von Elektronen überwunden werden muss, damit das Material leitend wird. Bei Isolatoren ist die Bandlücke zu groß, als dass Elektronen die Bandlücke überwinden könnten und somit ist keine elektrische Leitfähigkeit möglich.

### 2.3.1 Massenbegrenzte Ladungsmechanismen

Als massenbegrenzte Ladungsmechanismen werden jene bezeichnet, die von den elektrischen Eigenschaften des Dielektrikums selbst abhängen. Hierzu zählen die Poole-Frenkel Emission, Sprungleitung („hopping conduction“), Ohm’sche Leitung, raumladungsbegrenzte Leitung („space-charge-limited current“), ionischer Leitungstransport und Korngrenzenbegrenzte Leitung („grain-boundary-limited conduction“), siehe Abbildung 2.15. Der Ohm’sche Ladungstransport und „Space-charge-limited current“ werden in dieser Arbeit ausführlicher behandelt und auch in das numerische Modell implementiert. [21]

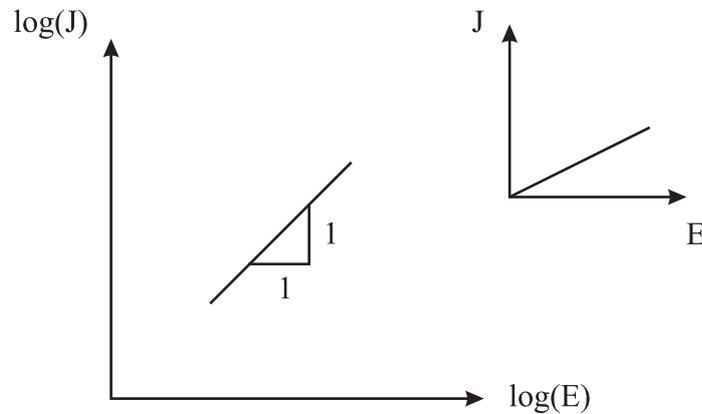
#### Ohm’scher Ladungstransport

Die Ohm’sche Leitung wird vorwiegend durch die Bewegung von freien Elektronen im Leitungsband und Fehlstellen im Valenzband verursacht. Bei diesem Leitungsmechanismus ist ein lineares Verhältnis zwischen dem Stromdichtevektor  $\mathbf{J}$  und dem Vektor des elektrischen Feldes  $\mathbf{E}$  gegeben. [21] Die Stromdichte kann

hierbei beschrieben werden als:

$$\mathbf{J} = \Gamma \mathbf{E} \quad (2.1)$$

Die Größe dieser Ladungsdichte ist sehr gering, weshalb dieser Mechanismus gewöhnlich bei sehr niedrigen elektrischen Spannungen beobachtet wird und insbesondere dann, wenn kein weiterer signifikanter Ladungstransport stattfindet [21]. In Experimenten wird auf den Ohm'schen Ladungstransport geschlossen, wenn der Graph in doppelt logarithmischer Skalierung der Achsen eine Steigung von 1 aufweist, siehe Abbildung 2.17.



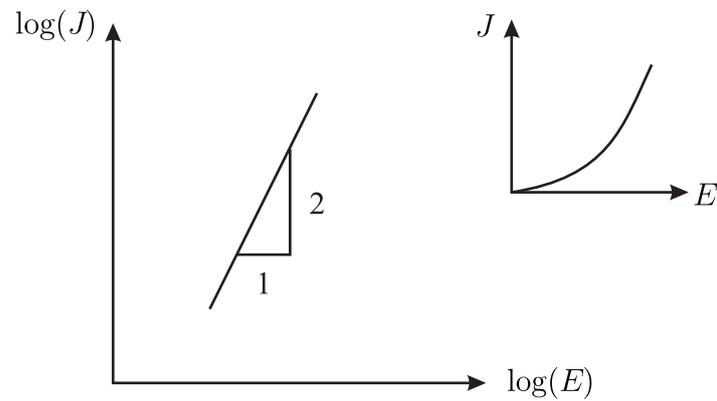
**Abbildung 2.17:** Schematischer Graph des Ohm'schen Ladungstransports, Stromflussdichte  $\mathbf{J}$  über elektrischen Feld  $\mathbf{E}$ .

### Space-charge-limited Current (SCLC)

Als Raumladung SCLC wird jener Ladungstransport bezeichnet, bei dem sich in einem nichtleitenden Medium eine räumlich verteilte Ladung aufbaut. Dies geschieht durch einen Überschuss von negativen oder positiven Ladungsträgern. Die Abhängigkeit von Ladungsdichte zum elektrischen Feld wird über das Mott-Gurney Gesetz angegeben, [21, 46]:

$$\mathbf{J} = \frac{9}{8} \mu \kappa_0 \varepsilon_r \frac{1}{d} \mathbf{E}^2 \quad (2.2)$$

Hierbei ist  $\mu$  die Mobilität der Elektronen,  $\varepsilon_r$  die relative Permittivität des Ferroelektrikums,  $d$  ist die Dicke der Schicht und  $\kappa_0$  beschreibt die Permittivität des freien Raums. Unter der Voraussetzung von starker angelegter Spannung werden Fehlstellen besetzt, ein Überschuss an Ladungsträgern aufgebaut und schlussendlich entsteht ein Ladungsfluss. Der SCLC Mechanismus wird, verglichen mit dem Ohm'schen Leitungstransport, bei etwas höheren Spannungen bemerkbar. [21, 46]



**Abbildung 2.18:** Schematischer Graph des SCLC Ladungstransports, Stromflussdichte  $J$  über elektrischen Feld  $E$ .

Der Ladungstransport in Form von SCLC liegt vor, wenn die logarithmische Skalierung der Stromdichte-Kurve über dem elektrischen Feld eine Steigung von 2 aufweist, wodurch die quadratische Abhängigkeit des Ladungstransports erkennbar wird, siehe Abbildung 2.18.

## 3 Grundlagen der Kontinuumsmechanik

Dieses Kapitel ist eine kurze Zusammenfassung der Grundlagen für kontinuumsmechanisches Verhalten von Festkörpern. Zudem werden hier die Voraussetzungen für die numerische Methode der Finiten Elemente dargelegt.

Die Kontinuumsmechanik ist ein Teilgebiet der Mechanik und liefert die Grundgleichungen, um die Gleichgewichtsbedingungen für einen deformierbaren Körper unter Beachtung von Belastungen und Randbedingungen zu bestimmen. Dies führt somit auf ein Randwertproblem.

In den folgenden Abschnitten werden die Grundlagen zur Beschreibung von deformierbaren Körpern vorgestellt. Ein deformierbarer Körper versucht durch seine Formänderung und Bewegung im Raum sich der ihm aufgetragenen Belastung zu entziehen. Diese Formänderung oder auch Bewegung im Raum kann durch die sogenannte Kinematik mathematisch beschrieben werden. Hierbei entstehen innere Kräfte und relative Verschiebungen im Körper, die Spannungen und Verzerrungen. Die Kontinuumsmechanik behandelt neben der Kinematik eines Körpers ebenfalls physikalisch motivierte Bilanz- und Erhaltungssätze. Diese werden im weiteren Verlauf eine wesentliche Rolle zur Beschreibung des ferroelektrischen Materialverhaltens spielen.

Das folgende Kapitel ist eine Zusammenfassung von ALTENBACH [4], BETTEN [12], ERINGEN [28,29], HOLZAPFEL [35], WRIGGERS [89] und SU & LANDIS [80]. Für weitere Herleitungen wird auf diese Literatur und den darin zitierten Quellen verwiesen.

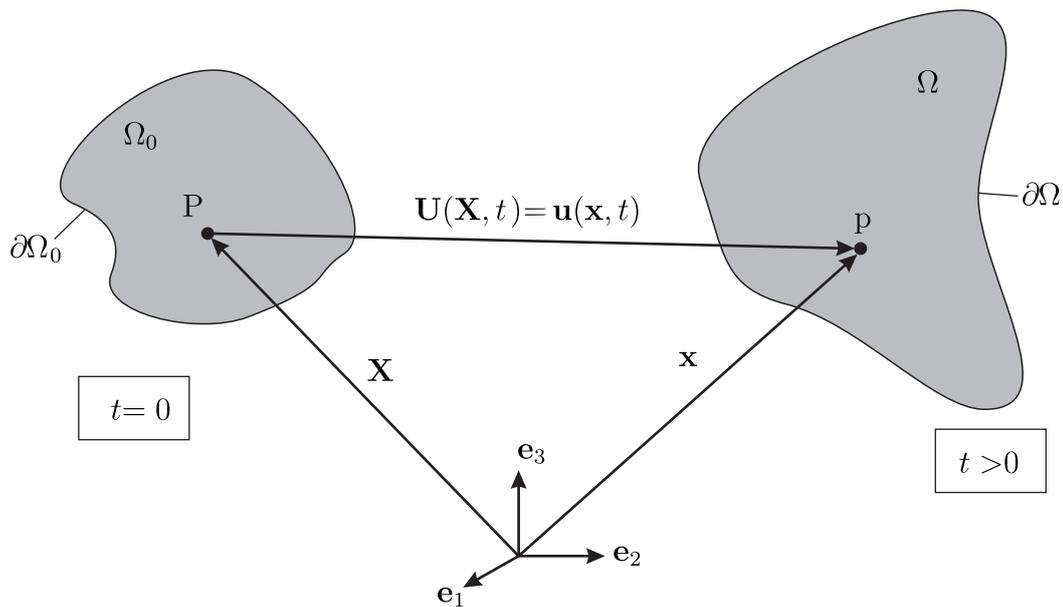
Zur mathematischen Beschreibung eines materiellen Körpers wird ein System von Gleichungen, die sogenannten Feldgleichungen, benötigt, welche zu gegebenen Randbedingungen gelöst werden müssen. Hierbei geben sie Informationen über den Materialzustand im Inneren wieder. Diese Feldgleichungen können als System von Differentialgleichungen formuliert werden und sind unabhängig von den Eigenschaften des zu betrachtenden materiellen Körpers. Erst durch die sogenannten Stoffgleichungen werden die individuellen Eigenschaften sowie das Verhalten des Materials berücksichtigt und das Gleichungssystem somit vervollständigt.

### 3.1 Beschreibung der Kinematik

Die Kinematik beschreibt die Deformation eines Körpers sowie die Verzerrungsmaße und zeitlichen Ableitungen dieser Größen. Sie werden für die konstitutive Beschreibung und Formulierung der Bilanzgleichungen benötigt.

### 3.1.1 Deformation und Bewegung eines Körpers

Im Folgenden werden die Deformationen und Bewegungen eines Körpers  $\mathcal{B}$ , welcher sich im euklidischen Raum befindet, in zwei zeitlich unterschiedlichen Zuständen betrachtet. Der Körper  $\mathcal{B}$  ist eine zusammenhängende Struktur, die als homogen betrachtet wird und sich aus kontinuierlich verteilten Materialpunkten  $\mathcal{P}$  zusammensetzt. Der Körper  $\mathcal{B}$  zum Zeitpunkt  $t$  ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Es gilt:  $\mathcal{P} \in \mathcal{B}$ .



**Abbildung 3.1:** Körper  $\mathcal{B}$  in der Referenz- und Momentankonfiguration: zum Zeitpunkt  $t = 0$  und  $t > 0$ .

Zum Zeitpunkt  $t = 0$  ist der Körper  $\mathcal{B}$  in der Referenzkonfiguration. Das Gebiet, das der Körper  $\mathcal{B}$  zu diesem Zeitpunkt einnimmt, wird mit  $\Omega_0$  bezeichnet. Für alle Zeitpunkte für die  $t > 0$  gilt, bewegt sich der Körper  $\mathcal{B}$  im Raum und verändert seine Position. Das zum Zeitpunkt  $t > 0$  beschriebene Gebiet  $\Omega$  wird als Momentankonfiguration beschrieben. Die Punkte und Vektoren, welche sich auf die Referenzkonfiguration beziehen, werden im Folgenden mit großen lateinischen Buchstaben beschrieben, wohingegen bei Punkten und Vektoren, welche sich auf die Momentankonfiguration beziehen kleine lateinische Buchstaben verwendet werden.

Ein einzelner Punkt  $P$ , der sich in der Referenzkonfiguration  $\Omega_0$  befindet, verändert seine Position zum Zeitpunkt  $t > 0$ . Derselbe Punkt wird in der Momentankonfiguration mit  $p$  bezeichnet. Dieser Punkt besitzt zu der jeweiligen Referenz- und Momentankonfiguration einen Ortsvektor, welcher durch  $\mathbf{X} = X_i \mathbf{e}_i$  bzw.

$\mathbf{x} = x_i \mathbf{e}_i$  beschrieben wird. Hierbei sind  $\mathbf{e}_i$  die kartesischen Basisvektoren im dreidimensionalen Raum mit  $i = 1, 2, 3$ . In der vorliegenden Arbeit gilt die Einstein'sche Summenkonvention.

Um im Speziellen die Änderung des Ortes eines einzelnen Materialpunktes zu beschreiben, muss zusätzlich der Begriff der Verschiebung eingeführt werden. Allgemein lässt sich eine Verschiebung eines Punktes als Differenz der Ortsvektoren zu unterschiedlichen Zeitpunkten bzw. in unterschiedlichen Konfigurationen definieren. Wird die Verschiebung auf die Referenzkonfiguration  $\Omega_0$  (Lagrange Formulierung) bezogen, erhält man:

$$\mathbf{U} = \mathbf{x}(\mathbf{X}, t) - \mathbf{X} \quad (3.1)$$

Bezieht man die Verschiebung auf die Momentankonfiguration  $\Omega$  (materielle Formulierung), so nennt man es die Eulersche oder räumliche Formulierung:

$$\mathbf{u} = \mathbf{x} - \mathbf{X}(\mathbf{x}, t) \quad (3.2)$$

In Abbildung 3.1 sind die Verschiebungen  $\mathbf{U}$  und  $\mathbf{u}$  dargestellt. Somit entsprechen die beiden Verschiebungen einander, denn sie beschreiben jeweils die Differenz der Ortsvektoren von der Referenz- und Momentankonfiguration. Ist die Verschiebung aller Punkte des Körpers gleich, so handelt es sich um eine Starrkörperverschiebung.

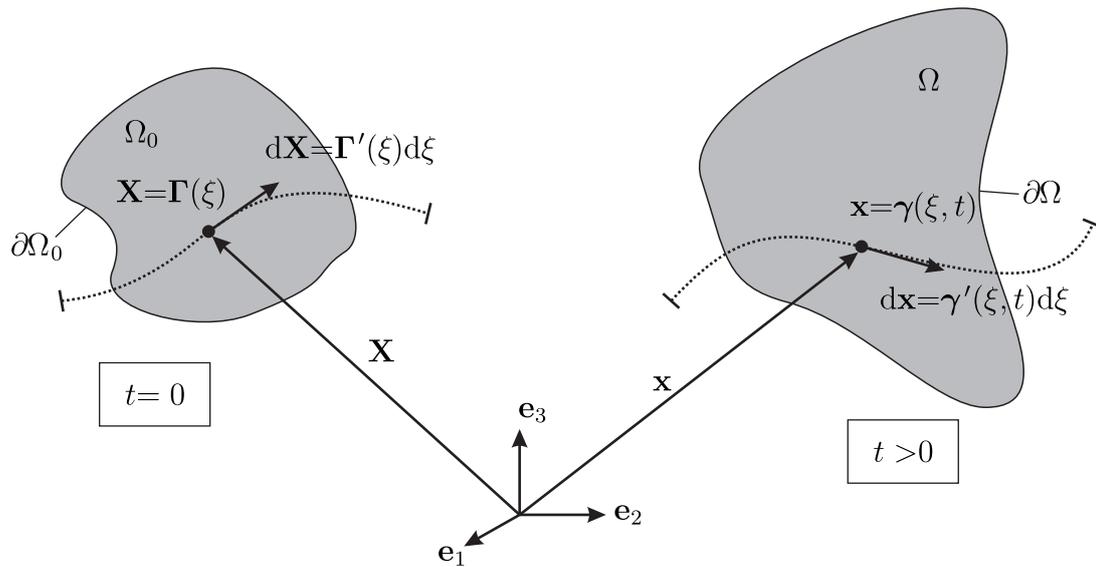
### 3.1.2 Der Deformationsgradient

Bisher wurde nur die Bewegung eines separierten Punktes betrachtet. Für die Beschreibung der Deformationen eines Körpers wird im Allgemeinen eine Kurve  $\xi$  auf  $\mathcal{B}$  bewertet. Hierzu wird die Kurve  $\xi$  mithilfe der Abbildungsfunktion  $\mathbf{\Gamma}$  in der Referenzkonfiguration  $\Omega_0$  dargestellt. Die Abbildungsfunktion  $\mathbf{\Gamma}$  beschreibt mit  $\mathbf{X} = \mathbf{\Gamma}(\xi)$  die undeformierte Materialkurve in der Referenzkonfiguration  $\Omega_0$ , siehe Abbildung 3.2. Die Darstellung in der Momentankonfiguration  $\Omega$  erfolgt mithilfe der Abbildungsfunktion  $\gamma$ . Analog gilt für die Momentankonfiguration  $\mathbf{x} = \gamma(\xi, t)$  auf  $\Omega$ . Abhängig vom Parameter  $\xi$  werden durch  $\mathbf{X}$  und  $\mathbf{x}$  alle Punkte auf einer Kurve der jeweiligen Konfiguration bestimmt.

Die Tangente der jeweiligen Kurve beschreibt den momentanen Tangentenvektor  $d\mathbf{x}$  und einen Tangentenvektor  $d\mathbf{X}$  in der Referenzkonfiguration. Es gilt hierbei:

$$d\mathbf{x} = \gamma'(\xi, t)d\xi = \frac{\partial \gamma(\xi, t)}{\partial \xi} d\xi \quad \text{bzw.} \quad d\mathbf{X} = \mathbf{\Gamma}'(\xi)d\xi = \frac{\partial \mathbf{\Gamma}(\xi)}{\partial \xi} d\xi \quad (3.3)$$

Die beiden Tangentenvektoren beschreiben infinitesimale Linienelemente. Basierend auf der jeweiligen Konfiguration bezeichnet man  $d\mathbf{X}$  als undeformiertes Linienelement auf dem Gebiet  $\Omega_0$  und  $d\mathbf{x}$  als deformiertes Linienelement auf  $\Omega$ . Zur



**Abbildung 3.2:** Parametrische Kurven in Referenz- und Momentankonfiguration.

Beschreibung der Verformung in der unmittelbaren Nähe eines Materialpunktes wird der Deformationsgradient eingeführt. Für den Deformationsgradienten gilt:

$$\mathbf{F}(\mathbf{X}, t) = \frac{\partial \mathbf{x}(\mathbf{X}, t)}{\partial \mathbf{X}} = \text{Grad } \mathbf{x}(\mathbf{X}, t) \quad (3.4)$$

Durch weitere Umformung kann der Deformationsgradient auch als Ausdruck der Verschiebung dargestellt werden:

$$\mathbf{F}(\mathbf{X}, t) = \frac{\partial (\mathbf{X} + \mathbf{u})}{\partial \mathbf{X}} = \mathbf{1} + \text{Grad } \mathbf{u} = \mathbf{1} + \mathbf{H} \quad (3.5)$$

$$\mathbf{H} = \text{Grad } \mathbf{u} \quad \text{mit} \quad H_{ij} = \frac{\partial u_i}{\partial X_j}$$

Hierbei wird gezeigt, dass der Deformationsgradient mit dem zweistufigen Einheitstensors  $\mathbf{1}$  und dem Verschiebungsgradienten  $\mathbf{H} = \text{Grad } \mathbf{u}$  darzustellen ist. Mithilfe einer zusätzlichen Beachtung einer Abbildungsfunktion  $\chi$  kann gezeigt werden, dass der Deformationsgradient invertierbar ist. An dieser Stelle wird auf die aufgeführte Literatur verwiesen. Daraus folgt, dass schließlich die Abbildung der Tangentenvektoren invertierbar ist:

$$d\mathbf{X} = \mathbf{F}^{-1}(\mathbf{x}, t) d\mathbf{x} \quad (3.6)$$

$$\mathbf{F}^{-1}(\mathbf{x}, t) = \text{grad } \mathbf{X}(\mathbf{x}, t) \quad (3.7)$$

Der Deformationsgradient entspricht einem linearen Operator, der die Tangentialräume der Referenz- und Momentankonfiguration miteinander verknüpft. Allgemein ist der Deformationsgradient nicht symmetrisch.

$$\mathbf{F} \neq \mathbf{F}^T \quad (3.8)$$

Die Determinante des Deformationsgradienten  $\mathbf{F}$  wird häufig als Jacobideterminante bezeichnet. Sie besitzt die Eigenschaft einen Zusammenhang zwischen der Momentan- und der Referenzkonfiguration herzustellen:

$$dv = J(\mathbf{X}, t)dV \quad \text{mit} \quad J(\mathbf{X}, t) = \det\mathbf{F}(\mathbf{X}, t) \quad (3.9)$$

### 3.1.3 Definition der Verzerrungen

Der eingeführte Deformationsgradient bildet den gesamten Deformations- und Verschiebungsvorgang eines Punktes ab. Er enthält sowohl Starrkörpertranslationen, Starrkörperrotationen und Deformationen. Für die Beschreibung der Verzerrungen eines Körpers sind lediglich die Deformationen nötig. Für eine getrennte Betrachtung der Rotations- und Deformationsanteile wird der Deformationsgradient  $\mathbf{F}$  zunächst multiplikativ zerlegt:

$$\mathbf{F} = \mathbf{R}\mathbf{U} = \mathbf{V}\mathbf{R} \quad (3.10)$$

Der Tensor  $\mathbf{R}$  beschreibt die reine Rotation eines Linienelementes, ohne Längenänderung. Die Tensoren  $\mathbf{U}$  und  $\mathbf{V}$  beschreiben dahingegen die Streckungen eines Linienelementes. Die beiden Tensoren unterscheiden sich im Bezug auf die jeweilige Konfiguration. Der Tensor  $\mathbf{U}$  beschreibt den materiellen Rechts-Streck-Tensor in der Referenzkonfiguration  $\Omega_0$  und der Tensor  $\mathbf{V}$  beschreibt den Links-Streck-Tensor in der Momentankonfiguration  $\Omega$ .

Beide Tensoren  $\mathbf{U}$  und  $\mathbf{V}$  sind symmetrische, positiv definite Tensoren zweiter Stufe. Es gilt  $\mathbf{U} = \mathbf{U}^T$  und  $\mathbf{V} = \mathbf{V}^T$ . Für den Rotationstensor  $\mathbf{R}$  gilt zusätzlich die Eigenschaft der Orthogonalität:

$$\mathbf{R}\mathbf{R}^T = \mathbf{R}^T\mathbf{R} = \mathbf{1} \quad \text{bzw.} \quad \mathbf{R}^T = \mathbf{R}^{-1} \quad (3.11)$$

Der Deformationsgradient  $\mathbf{F}$  ist im Allgemeinen nicht symmetrisch. Wird hier seine Transponierte auf den Deformationsgradienten selbst angewendet, so erhält man einen symmetrischen positiv definierten Tensor. Dieser Tensor wird Rechts-Cauchy-Green Tensor  $\mathbf{C}$  genannt:

$$\mathbf{C} := \mathbf{F}^T\mathbf{F} = (\mathbf{R}\mathbf{U})^T\mathbf{R}\mathbf{U} = \mathbf{U}^T\mathbf{R}^T\mathbf{R}\mathbf{U} = \mathbf{U}^T\mathbf{U} \quad (3.12)$$

Hier ist erkennbar, dass der Tensor  $\mathbf{C}$  nur mithilfe der Streckung  $\mathbf{U}$  beschrieben wird und demzufolge frei von Rotationsanteilen ist. Da für den reinen Rotationsanteil gilt, dass keine zusätzlichen Längenänderungen vorliegen, ist seine Determinante  $\det\mathbf{R} = 1$ . Demzufolge entspricht die Längenänderung des Deformationsgradienten lediglich der Längenänderung der Strecktensoren. Es gilt  $\det\mathbf{F} = \det\mathbf{U} = \det\mathbf{V}$ . Zusätzlich gilt mit Gleichung (3.12)  $\det\mathbf{C} = (\det\mathbf{F})^2$ .

Für eine reine Starrkörpertranslation verschwindet der Verschiebungsgradient  $\mathbf{U}$ . Somit ist  $\mathbf{C}$  nicht frei von Starrkörperverschiebungen und es verbleibt nur der Einheitstensor  $\mathbf{1}$ . Für eine Definition eines Verzerrungsmaßes, welches frei von Starrkörperverschiebungen ist, wird der Green'sche Verzerrungstensor eingeführt:

$$\mathbf{G} := \frac{1}{2} (\mathbf{C} - \mathbf{1}) = \frac{1}{2} (\mathbf{F}^T \mathbf{F} - \mathbf{1}) \quad (3.13)$$

Das so erhaltene Verzerrungsmaß ist symmetrisch und zugleich frei von Starrkörpertranslationen, was anhand der Rotationsfreiheit des rechten Cauchy-Green-Tensors belegt ist. Der Verzerrungstensor in Gleichung (3.13) wird häufig auch als Green-Lagrange'scher Verzerrungstensor bezeichnet.

Eine Beschreibung des Green-Lagrange'schen Verzerrungstensors  $\mathbf{G}$  mithilfe des Verschiebungsgradienten  $\mathbf{H}$  wird zu:

$$\mathbf{G} := \frac{1}{2} (\mathbf{F}^T \mathbf{F} - \mathbf{1}) = \frac{1}{2} ((\mathbf{1} + \mathbf{H})^T (\mathbf{1} + \mathbf{H}) - \mathbf{1}) = \frac{1}{2} (\mathbf{H} + \mathbf{H}^T + \mathbf{H}^T \mathbf{H}) \quad (3.14)$$

Der Green-Lagrange'sche Verzerrungstensor  $\mathbf{G}$  kann also allein durch den Verschiebungsgradienten  $\mathbf{H}$  dargestellt werden. Dieser tritt hier sowohl allein stehend als auch in quadrierter Form auf. Somit lässt sich der Verzerrungstensor in einen linearen und einen nichtlinearen Anteil additiv zerlegen. Beide Terme sind weiterhin symmetrisch:

$$\mathbf{G} = \mathbf{G}_{lin} + \mathbf{G}_{nili} \quad (3.15)$$

$$\mathbf{G}_{lin} = \frac{1}{2} (\mathbf{H} + \mathbf{H}^T) \quad \text{bzw.} \quad \mathbf{G}_{nili} = \frac{1}{2} (\mathbf{H}^T \mathbf{H}) \quad (3.16)$$

Da in dieser Arbeit nur kleine Verschiebungen auftreten, wird der Green-Lagrange'sche Verzerrungstensor auf den linearen Anteil reduziert:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_{lin} &= \frac{1}{2} (\mathbf{H} + \mathbf{H}^T) \\ \mathbf{G}_{lin(ij)} &= \frac{1}{2} (\mathbf{H}_{ij} + \mathbf{H}_{ji}) \\ \mathbf{G}_{lin(ij)} &= \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial X_j} + \frac{\partial u_j}{\partial X_i} \right) \end{aligned} \quad (3.17)$$

Der lineare Verzerrungstensor  $\mathbf{G}_{lin}$  wird im Folgenden mit  $\boldsymbol{\varepsilon}$  bezeichnet und lautet in Matrixform:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \begin{pmatrix} u_{1,1} & \frac{1}{2}(u_{1,2} + u_{2,1}) & \frac{1}{2}(u_{1,3} + u_{3,1}) \\ \frac{1}{2}(u_{2,1} + u_{1,2}) & u_{2,2} & \frac{1}{2}(u_{2,3} + u_{3,2}) \\ \frac{1}{2}(u_{3,1} + u_{1,3}) & \frac{1}{2}(u_{3,2} + u_{2,3}) & u_{3,3} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{21} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{31} & \varepsilon_{32} & \varepsilon_{33} \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

Die einzelnen Verzerrungskomponenten können ebenso in Vektorform angeordnet werden. Diese als Voigt'sche Notation bezeichnete Darstellung dient zur einfacheren Handhabung bei der Implementierung mithilfe der Finiten Elemente Methode.

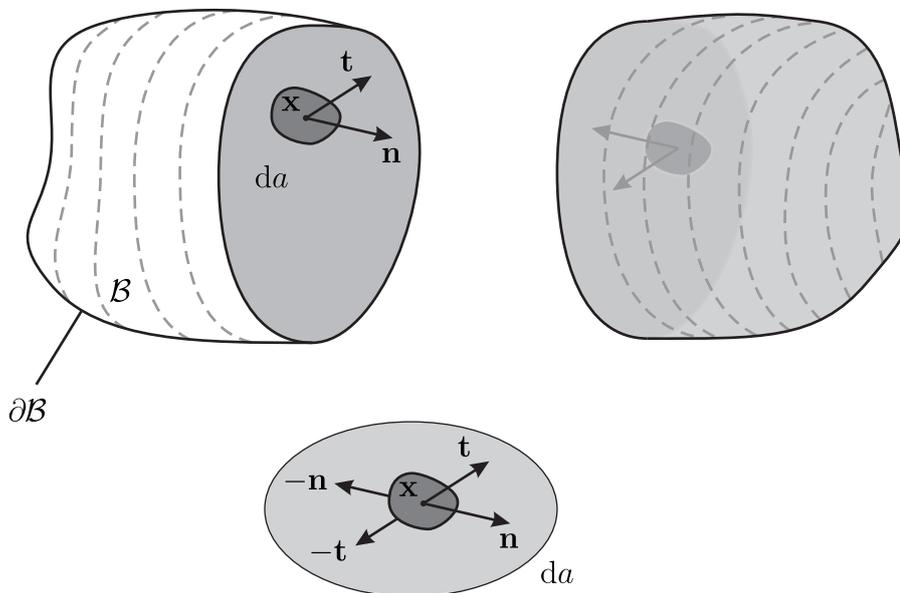
Für die Schubverzerrungen werden oftmals die Ingenieurgleitungen  $\gamma = 2\varepsilon_{ij}$  mit  $i \neq j$  verwendet:

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\varepsilon} &= (\varepsilon_{11} \quad \varepsilon_{22} \quad \varepsilon_{33} \quad 2\varepsilon_{12} \quad 2\varepsilon_{13} \quad 2\varepsilon_{23})^T \\ \boldsymbol{\varepsilon} &= (\varepsilon_{11} \quad \varepsilon_{22} \quad \varepsilon_{33} \quad \gamma_{12} \quad \gamma_{13} \quad \gamma_{23})^T\end{aligned}\quad (3.19)$$

### 3.2 Mechanische Spannung

Aufbauend auf der Kinematik aus dem vorangegangenen Abschnitt werden im Folgenden die Spannungen im Inneren des Körpers beschrieben, welche aus den Deformationen resultieren.

Es wird eine analoge Schreibweise bezüglich der Groß- und Kleinbuchstaben wie bisher verwendet. Es entstehen zwischen zwei benachbarten Punkten Spannungen, sofern diese eine Relativverschiebung erfahren. Der ebene Schnitt durch den Körper in der Momentankonfiguration, Abbildung 3.3, stellt die entstehenden Spannungen grafisch dar. Der Körper  $\mathcal{B}$  wird gedanklich geteilt und eine Fläche  $da$  wird näher betrachtet. Der Normalenvektor  $\mathbf{n}$  steht senkrecht zur Fläche  $da$  und wirkt im deformierten Zustand der Spannungsvektor  $\mathbf{t}$ . Die Spannungen in der Momentankonfiguration werden häufig auch als wahre oder Cauchy-Spannungen bezeichnet: Der Spannungszustand an einem Materialpunkt kann durch die Span-



**Abbildung 3.3:** Schnitt durch den Körper  $\mathcal{B}$  in der Momentankonfiguration mit Ansicht des Spannungsvektors  $\mathbf{t}$  und dem Normalenvektor  $\mathbf{n}$  auf die Fläche  $da$ .

nungsvektoren an drei aufeinander senkrechten Schnittflächen vollständig erfasst

werden. Es entstehen neun Komponenten, die die Einträge des Cauchy Spannungstensors  $\sigma$ . Durch das Momentengleichgewicht am Volumenelement ist dieser symmetrisch:

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}^T \quad (3.20)$$

Der Cauchy Spannungstensor gibt die wahren Spannungen an, da er in der Momentankonfiguration auf  $da$  wirkt.

Der Normalenvektor der Fläche  $da$  und der Spannungsvektor  $\mathbf{t}$  können mithilfe des Spannungstensors  $\boldsymbol{\sigma}$  direkt in Beziehung zueinander gestellt werden. Dieser Zusammenhang wird auch Cauchy-Theorem genannt und beschreibt die lineare Abhängigkeit zwischen dem Spannungsvektor  $\mathbf{t}$  und Normalenvektor  $\mathbf{n}$ :

$$\mathbf{t}(\mathbf{x}, \mathbf{n}) = \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x})\mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad (3.21)$$

Der hier eingeführte Spannungstensor  $\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x})$  wird als Cauchy-Spannungstensor bezeichnet und wirkt in der Momentankonfiguration. Analog hierzu gilt folgende Form für die Referenzkonfiguration:

$$\mathbf{T}(\mathbf{X}, \mathbf{N}) = \mathbf{P}(\mathbf{X})\mathbf{N}(\mathbf{X}) \quad (3.22)$$

In der Referenzkonfiguration bezeichnen die beiden Vektoren  $\mathbf{T}$  und  $\mathbf{N}$  analog den Traktionsvektor und Normalenvektor. Der Spannungstensor  $\mathbf{P}$  wird hier als erster Piola-Kirchhoff'scher Spannungstensor bezeichnet.

Wie in Abbildung 3.3 zu sehen, treten die Spannungsvektoren jeweils paarweise auf. Der eingeführte Schnitt in den Körper erzeugt zwei Oberflächen mit entgegengerichteten Normalenvektoren. Demzufolge haben Spannungsvektoren auf der Schnittfläche die gleiche Größe. Aufgrund der entgegengesetzten Orientierung ist die Summe der Vektoren null:

$$\mathbf{t}(\mathbf{x}, \mathbf{n}) da = \mathbf{T}(\mathbf{X}, \mathbf{N})dA \quad (3.23)$$

Zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen dem Piola-Kirchhoff'schen Spannungstensor und der Cauchy Spannung bedient man sich der Determinante des Deformationsgradienten in Gleichung (3.9) und der Deformationen der Spannungsvektoren in den Gleichungen (3.21) und (3.22). Somit folgt:

$$\mathbf{P} := J\boldsymbol{\sigma}\mathbf{F}^{-T} \quad (3.24)$$

Der Cauchy-Spannungstensor wirkt auf der Momentankonfiguration. Da nur eine einseitige Transformation mit  $\mathbf{F}^{-T}$  vorgenommen wird ist der erste Piola-Kirchhoff'sche Spannungstensor im Allgemeinen nicht symmetrisch. Für einen Bezug des Spannungstensors auf die Referenzkonfiguration führt eine weitere Transformation mit  $\mathbf{F}^{-1}$  auf den zweiten Piola-Kirchhoff'sche Spannungstensor (2. PK):

$$\mathbf{S} := \mathbf{F}^{-1}\mathbf{P} = J\mathbf{F}^{-1}\boldsymbol{\sigma}\mathbf{F}^{-T} \quad (3.25)$$

Der zweite Piola-Kirchhoff'sche Spannungstensor ist allerdings keine physikalisch interpretierbare Größe. Durch die symmetrische Eigenschaft ( $\mathbf{S} = \mathbf{S}^T$ ) und den direkten Bezug auf die Referenzkonfiguration wird er häufig als Rechengröße in Kombination mit dem Green'schen Verzerrungstensor  $\mathbf{G}$  verwendet.

### 3.3 Zeitableitungen

Zur zeitlichen Beschreibung von physikalischen Eigenschaften der materiellen Punkte  $\mathcal{P}$  wird an dieser Stelle die Zeit  $t$  eingeführt. Für die zeitlichen Ableitungen werden folgende Symbole verwendet:

$$\frac{\partial(\bullet)}{\partial t} = (\dot{\bullet}) \quad \text{und} \quad \frac{\partial^2(\bullet)}{\partial t^2} = (\ddot{\bullet}) \quad (3.26)$$

Im Folgenden wird die Beziehung zwischen der Zeitableitung und der Richtungsableitung eingeführt. Wir betrachten die materielle Zeitableitung eines glatten räumlichen Feldes  $f(\mathbf{x}, t)$ , die mit  $\partial f(\mathbf{x}, t)/\partial t$  oder  $\dot{f}$  bezeichnet wird. Sie ist die Zeitableitung von  $f$  bei fixiertem Ortsvektor  $\mathbf{x}$ .

$$\dot{f}(\mathbf{x}, t) = \frac{\partial f(\mathbf{x}, t)}{\partial t} \quad (3.27)$$

Aus dem räumlichen Gradienten und unter Verwendung von Gleichung (3.4) ergibt sich die zeitliche Ableitung der Jacobimatrix  $J = \det[\mathbf{F}]$ :

$$\frac{\partial J}{\partial t} = \dot{J} = \frac{\partial \det \mathbf{F}}{\partial \mathbf{F}} : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} = J \mathbf{F}^{-T} : \dot{\mathbf{F}} = J \operatorname{div}[\mathbf{v}]. \quad (3.28)$$

### 3.4 Bilanzgleichungen

Jeder Körper strebt unter äußeren Belastungen einen Gleichgewichtszustand an. Zusätzlich sind noch Bilanz- und Erhaltungssätze nötig, um diesen zu beschreiben. Die folgenden Bilanzgleichungen können in die drei mechanischen Bilanzen der Masse, des Impulses und des Drehimpulses und zusätzlich in die beiden Hauptsätze der Thermodynamik unterteilt werden. Letztere geben Aufschluss über die Entropie und Energie eines Systems. Zu diesem Zeitpunkt werden noch keine materiellen Eigenschaften betrachtet, sondern unabhängig von diesen die Bilanzgleichungen diskutiert. Sie besitzen die mathematische Struktur:

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega_t} \mathbf{D} \, dv = \int_{\Omega_t} \mathbf{V} \, dv + \int_{\partial \Omega_t} \mathbf{O} \, da \quad (3.29)$$

Gleichung (3.29) besagt, dass die zeitliche Änderung einer physikalischen Größe  $\mathbf{D}$  des Körpers  $\Omega$  im Gleichgewicht mit ihrer Ursache steht. Diese Änderungen

können entweder im Inneren des Körpers oder durch Zu- und Abflüsse über den Rand geschehen. Wie bereits in Gleichung (3.29) zu erkennen, sind die Terme in ein zeitliches Dichtefeld einer physikalischen Größe  $\mathbf{D} = \mathbf{D}(\mathbf{x}, t)$ , einen volumenbezogenen Zu- oder Abfluss  $\mathbf{V} = \mathbf{V}(\mathbf{x}, t)$  und analog in einen oberflächenbezogenen Zu- oder Abfluss  $\mathbf{O} = \mathbf{O}(\mathbf{x}, t)$  einzuteilen.

### Reynolds'sches Transporttheorem

Um die grundlegenden Erhaltungssätze der Kontinuumsmechanik herzuleiten wird zunächst der Transportsatz für Volumen, das Reynolds'sche Transporttheorem, erläutert.

Allgemein wird das räumliche Skalarfeld durch die Funktion  $\Phi = \Phi(\mathbf{x}, t)$  beschrieben und bildet im Einheitsvolumen zum Zeitpunkt  $t$  eine beliebige physikalische Größe ab. Die Funktion  $\Phi$  sei stetig differenzierbar. Somit wird ihr aktueller Wert innerhalb eines Gebietes  $\Omega$  mit Volumen  $v$  mithilfe des Integrals von  $\Phi$  in Abhängigkeit der Zeit  $t$  über das Volumen beschrieben. Es ergibt sich die skalarwertige Funktion:

$$I(t) = \int_{\Omega} \Phi(\mathbf{x}, t) dv \quad (3.30)$$

Für die Zeitableitung von  $I(t)$  muss zunächst die Ableitung auf die Referenzkonfiguration  $\Omega_0$  bezogen werden. Eine Ableitung auf die Momentankonfiguration ist nicht möglich, da diese selbst von der Zeit abhängt. Zusätzlich wird für das Volumen  $dv$  die Beziehung aus Gleichung (3.9) verwendet. Die zeitlichen Ableitungen werden wie in Gleichung (3.26) gekennzeichnet:

$$\dot{I}(t) = \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega} \Phi(\mathbf{x}, t) dv = \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega_0} \Phi(\mathbf{x}(\mathbf{X}, t), t) J(\mathbf{X}, t) dV \quad (3.31)$$

Da das Gebiet  $\Omega_0$  auf der Referenzkonfiguration zeitunabhängig ist, können das Integral und die Ableitung in vertauschter Reihenfolge ausgeführt werden. Für eine Umformung auf die Momentankonfiguration sei auf weitere Literatur verwiesen [35], es ergibt sich:

$$\dot{I}(t) = \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega} \Phi(\mathbf{x}, t) dv = \int_{\Omega} \left[ \dot{\Phi}(\mathbf{x}, t) + \Phi(\mathbf{x}, t) \operatorname{div} \dot{\mathbf{x}} \right] dV \quad (3.32)$$

Gleichung (3.32) ist als das Reynolds'sche Transporttheorem bekannt. Die Funktion  $\Phi$  kann durch die physikalischen Skalarfelder Masse, innerer Energie und Entropie ersetzt werden.

#### 3.4.1 Massenerhaltung

Die Masse  $m$  im Körper  $\mathcal{B}$  sei über das Gebiet  $\Omega$  kontinuierlich verteilt. In der Momentankonfiguration zum Zeitpunkt  $t$  besitzt das Gebiet  $\Omega$  die Oberfläche  $\partial\Omega$ .

Die Masse eines Körpers ist ein skalarer Wert und somit lässt sich für jeden Punkt des Körpers eine Massendichte  $\rho := \rho(x)$  definieren. Die Masse des gesamten Körpers wird durch die Integration der Massendichte ermittelt.

In der Referenz- und Momentankonfiguration lässt sich die Masse wie folgt definieren:

$$\begin{aligned} m_0 &= \int_{\Omega_0} \rho_0 \, dV && \text{in der Referenzkonfiguration} \\ m &= \int_{\Omega} \rho \, dv > 0 && \text{in der Momentankonfiguration} \end{aligned} \quad (3.33)$$

Unter Verwendung der Jacobimatrix  $dv = \det \mathbf{F} \, dV = J \, dV$  folgt:

$$m = \int_{\Omega_0} \rho_0 \, dV = \int_{\Omega_0} \rho J \, dV \quad (3.34)$$

$$0 = \int_{\Omega_0} [\rho_0 - \rho J] \, dV \quad (3.35)$$

Für das Gebiet  $\Omega_0$  in der Referenzkonfiguration wird Gleichung (3.35) nur erfüllt, wenn für den Klammerausdruck die Bedingung  $[\rho_0 - \rho J] = 0$  erfüllt ist. Diese Bedingung liefert die erste lokale Form der Massenerhaltung, welche punktweise erfüllt sein muss. Die lokale Massenerhaltung stellt einen direkten Bezug zwischen der Massendichte eines Punktes aus der Referenzkonfiguration zu der Massendichte eines Punktes in der Momentankonfiguration mithilfe der Jacobideterminante dar:

$$\rho_0 = \rho J = \rho \det \mathbf{F} \quad (3.36)$$

Angenommen die Masse eines Körpers ändert sich während der Verzerrung nicht, so ist die Masse des Körpers unabhängig von der Zeit von  $t$ . Daher ist sie identisch, bezogen auf die Referenz- und Momentankonfiguration. Aufgrund dieser Unabhängigkeit der Massen bezüglich der Zeit ist keine zeitliche Ableitung vorhanden:

$$\dot{m} = \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega_0} \rho_0 \, dV = \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega} \rho \, dv = 0 \quad (3.37)$$

Darüber hinaus gilt die Zeitableitung der Jacobimatrix  $\dot{J} = J \operatorname{div} \dot{\mathbf{x}}$  und es folgt:

$$\dot{m} = \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega_0} \rho_0 \, dV = \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega_0} \rho J \, dV \quad (3.38)$$

$$\int_{\Omega_0} \dot{\rho}_0 \, dV = \int_{\Omega_0} J [\dot{\rho} + \rho \operatorname{div} \dot{\mathbf{x}}] \, dV = 0 \quad (3.39)$$

Im einfachen Fall wird die Jacobimatrix zu null, weshalb für ein beliebiges Gebiet  $\Omega_0$  in der Referenzkonfiguration der Ausdruck in der Klammer  $[\dot{\rho} + \rho \operatorname{div} \dot{\mathbf{x}}]$  zu null werden muss. Dies führt auf die zweite lokale Form der Massenerhaltung:

$$\dot{\rho} + \rho \operatorname{div} \dot{\mathbf{x}} = 0 \quad (3.40)$$

### 3.4.2 Impulserhaltung

Im folgenden Abschnitt wird die physikalische Größe des Impulses für einen Körper beschrieben. Der Impuls  $\mathbf{I}$  ist definiert durch das Produkt der Masse  $m$  eines Körpers und seiner Geschwindigkeit  $\dot{\mathbf{x}}$ . Wie im vergangenen Abschnitt angenommen, wird die Masse des Körpers während der Verformung nicht verändert. Somit ergibt sich mithilfe der ersten lokalen Massenerhaltung:

$$\mathbf{I} := m\dot{\mathbf{x}} = \int_{\Omega} \rho \dot{\mathbf{x}} dv = \int_{\Omega_0} \rho \dot{\mathbf{x}} J dV = \int_{\Omega_0} \rho_0 \dot{\mathbf{x}} dV \quad (3.41)$$

Die Änderung des Impulses in der Zeit entspricht den äußeren Belastungen auf den Körper und stellt eine Kraftgröße dar:

$$\dot{\mathbf{I}} = \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{I} = \int_{\Omega} \rho \ddot{\mathbf{x}} dv = \int_{\partial\Omega_0} \bar{\mathbf{t}} da + \int_{\Omega} \rho \mathbf{b} dv = \mathbf{f}_t + \mathbf{f}_b \quad (3.42)$$

Die äußeren Lasten sind in Gleichung (3.42) in zwei Terme aufgeteilt. Der Term  $\mathbf{f}_t$  beschreibt die Oberflächenkräfte auf den Rand  $\partial\Omega$  und der Term  $\mathbf{f}_b$  definiert die Volumenkräfte auf  $\Omega$ . Da es sich in Gleichung (3.42) um die zeitliche Ableitung handelt, sind die Volumenkräfte somit die Beschleunigungen auf den Körper, welche mit der Massendichte  $\rho$  multipliziert werden. Anhand dieser dynamischen Beschreibung wird die Gleichung (3.42) oftmals auch als dynamisches Kräftegleichgewicht bezeichnet. Der Oberflächenterm dieser Gleichung kann mithilfe des Cauchy-Theorems aus Gleichung (3.21) umgeformt werden und es folgt:

$$\int_{\Omega} \rho \ddot{\mathbf{x}} = \int_{\partial\Omega} \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} da + \int_{\Omega} \rho \mathbf{b} dv. \quad (3.43)$$

Mithilfe des Gauß'schen Integralsatzes lässt sich das globale Kräftegleichgewicht umwandeln zu:

$$\int_{\Omega} \rho \ddot{\mathbf{x}} dv = \int_{\Omega} \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} dv + \int_{\Omega} \rho \mathbf{b} dv \quad (3.44)$$

$$\mathbf{0} = \int_{\Omega} (\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} + \rho(\mathbf{b} - \ddot{\mathbf{x}})) dv \quad (3.45)$$

Das Kräftegleichgewicht soll allgemein für jedes beliebige Volumen gültig sein, somit muss die lokale Impulsbilanz punktwise erfüllt sein. Dies bedeutet, dass der Klammerausdruck des Integrals erfüllt sein muss:

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} + \rho(\mathbf{b} - \ddot{\mathbf{x}}) = 0 \quad (3.46)$$

Die vorangegangenen Gleichungen sind in der Momentankonfiguration definiert. Analog zu den vorangegangenen Abschnitten können mithilfe der Jacobimatrix, der Massenerhaltung und der Definition des ersten Piola-Kirchhoff'schen Spannungstensors  $\mathbf{P}$  die Gleichungen in die Referenzkonfiguration überführt werden:

$$\int_{\Omega_0} (\operatorname{Div} \mathbf{P} + \rho_0(\mathbf{b}_0 - \ddot{\mathbf{x}})) dV = \mathbf{0} \quad (3.47)$$

$$\operatorname{Div} \mathbf{P} + \rho_0(\mathbf{b}_0 - \ddot{\mathbf{x}}) = \mathbf{0} \quad (3.48)$$

### 3.4.3 Drehimpulserhaltung

Analog zur Impulserhaltung eines Körpers wird auch seine Drehimpulsbilanz formuliert. Der Drehimpuls  $\mathbf{h}$  lässt sich durch die Geschwindigkeit  $\dot{\mathbf{x}}$  des Körpers, seiner Masse  $m$  und seinem Abstand zu einem ortsfesten Punkt  $\mathbf{O}$ , dem Ursprung, definieren als:

$$\mathbf{h} := \int_{\Omega} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \rho \dot{\mathbf{x}} \, dv = \int_{\Omega_0} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \rho \dot{\mathbf{x}} \, dV \quad (3.49)$$

Der Drehimpuls wird mithilfe des Kreuzproduktes des Impulses und dem Abstand vom aktuellen Punkt zum Ursprung  $(\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x})$  beschrieben. Analog zur Impulsbilanz muss die zeitliche Änderung des Drehimpulses der Summe der äußeren Momente entsprechen:

$$\dot{\mathbf{h}} := \frac{\partial}{\partial t} \int_{\Omega} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \rho \dot{\mathbf{x}} \, dv = \int_{\Omega} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \rho \ddot{\mathbf{x}} \, dv \quad (3.50)$$

Die äußeren Momente setzen sich aus Anteilen bezüglich der Oberflächen- als auch der Volumenlasten zusammen:

$$\mathbf{m}_{\bar{\mathbf{t}}} + \mathbf{m}_{\mathbf{b}} = \int_{\partial\Omega} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \bar{\mathbf{t}} \, da + \int_{\Omega} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \rho \mathbf{b} \, dv \quad (3.51)$$

Der Term der Oberflächenlasten kann mithilfe des Cauchy-Theorems und unter Verwendung des Divergenztheorems in ein Volumenintegral umgeformt werden:

$$\int_{\partial\Omega} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \bar{\mathbf{t}} \, da = \int_{\partial\Omega} (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} \, da = \int_{\Omega} ((\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} + \boldsymbol{\epsilon} : \boldsymbol{\sigma}^T) \, dv \quad (3.52)$$

Die zeitliche Änderung des Drehimpulses aus Gleichung (3.50) kann mithilfe der Gleichungen (3.51) und (3.52) zu einem Integral zusammengefasst werden:

$$\int_{\Omega} \left( (\mathbf{x}_{\mathbf{O}} - \mathbf{x}) \times [\rho(\ddot{\mathbf{x}} - \mathbf{b}) - \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma}] + \boldsymbol{\epsilon} : \boldsymbol{\sigma}^T \right) \, dv = \mathbf{0} \quad (3.53)$$

Gleichung (3.53) setzt sich wiederum aus zwei Termen zusammen. Der erste Term ist die lokale Form der Impulsbilanz und wird somit zu null. Im zweiten Term ist der dreistufige Permutationstensor  $\boldsymbol{\epsilon}$  enthalten. Dieser besitzt folgende Eigenschaft:

$$\epsilon_{ijk} = \begin{cases} 1; & \text{für gerade Permutationen (123, 231, 312)} \\ -1; & \text{für ungerade Permutationen (321, 213, 132)} \\ 0; & \text{sich wiederholende Indizes} \end{cases} \quad (3.54)$$

Somit vereinfacht sich Gleichung (3.53) zu:

$$\int_{\Omega} \boldsymbol{\epsilon} : \boldsymbol{\sigma}^T \, dv = \mathbf{0} \quad (3.55)$$

Da Gleichung (3.55) ebenfalls für ein beliebiges Volumen erfüllt sein muss folgt, dass die Bedingung punktweise erfüllt sein muss:

$$\boldsymbol{\epsilon} : \boldsymbol{\sigma}^T = \mathbf{0} \quad \text{bzw.} \quad \epsilon_{ijk} \sigma_{kj} = 0_i \quad (3.56)$$

Daraus folgt, dass der Cauchy-Spannungstensor symmetrisch sein muss, da ansonsten die Gleichung (3.56) nicht erfüllt ist:

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}^T \quad (3.57)$$

Weiter folgt die Symmetrieeigenschaft des 2. PKs:

$$\mathbf{S} = \mathbf{S}^T \quad (3.58)$$

Die wesentliche Aussage der Drehimpulsbilanz ist die Symmetrie des Cauchy-Spannungstensors und des 2. PK's. Diese Eigenschaft spielt in den folgenden Absätzen eine wichtige Rolle bei der Formulierung des Stoffgesetzes.

#### 3.4.4 Erster Hauptsatz der Thermodynamik

Der erste Hauptsatz der Thermodynamik erfordert die Einhaltung der Energie für einen thermodynamischen Prozess. In dieser Arbeit werden nur die mechanischen, thermischen und elektrischen Energieanteile betrachtet, daher beruhen die hier aufgeführten Gleichungen auf diesen Energieanteilen. Der erste Hauptsatz der Thermodynamik besagt, dass die gesamte Energie eines Körpers sich aus der Summe der mechanischen Leistung  $\mathcal{P}_{ext}$  und der Wärmezufuhr  $\mathcal{Q}$ , welche auf den Körper einwirken, zusammensetzt. Die Energie eines Körpers wird durch seine kinetische Energie  $\mathcal{K}$  und die innere Energie  $\mathcal{E}$  definiert:

$$\mathcal{K} = \int_{\Omega} \frac{1}{2} \rho \dot{\mathbf{x}} \cdot \dot{\mathbf{x}} dv \quad \text{und} \quad \mathcal{E} = \int_{\Omega} \rho e dv \quad (3.59)$$

Die innere Energie eines Körpers wird mithilfe einer massenspezifischen Energiedichtefunktion  $e = e(\mathbf{x})$  beschrieben. Der erste Hauptsatz der Thermodynamik lautet:

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathcal{K} + \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{E} = \mathcal{P}_{ext} + \mathcal{Q} \quad (3.60)$$

Die mechanische Leistung, die auf den Körper einwirkt, kann in einen Oberflächen- und Volumenanteil zerlegt werden. Die Oberflächen- und Volumenanteile werden durch die entsprechend wirkenden Lasten erzeugt:

$$\mathcal{P}_{ext} = \int_{\Omega} \bar{\mathbf{t}} \cdot \dot{\mathbf{x}} da + \int_{\Omega} \rho \mathbf{b} \cdot \dot{\mathbf{x}} dv \quad (3.61)$$

Der Term der Wärmezufuhr setzt sich aus dem Wärmefluss  $\mathbf{q}$  durch die Oberfläche des Körpers und aus den körpereigenen Wärmequellen  $r$  zusammen:

$$\mathcal{Q} = \int_{\partial\Omega} -\mathbf{q} \cdot \mathbf{n} da + \int_{\Omega} \rho r dv \quad (3.62)$$

Es ergibt sich durch Einsetzen der jeweiligen Energieterme in Gleichung (3.60) folgender Ausdruck:

$$\int_{\Omega} \rho(\ddot{\mathbf{x}} \cdot \dot{\mathbf{x}} + \dot{e}) dv = \int_{\partial\Omega} (\bar{\mathbf{t}} \cdot \dot{\mathbf{x}} - \mathbf{q} \cdot \mathbf{n}) da + \int_{\Omega} \rho(\mathbf{b} \cdot \dot{\mathbf{x}} + r) dv \quad (3.63)$$

Unter Verwendung des Divergenztheorems und des Cauchy Theorems kann der Oberflächenterm aus Gleichung (3.63) in ein Volumenintegral überführt werden:

$$\int_{\partial\Omega} (\bar{\mathbf{t}} \cdot \dot{\mathbf{x}} - \mathbf{q} \cdot \mathbf{n}) da = \int_{\Omega} (\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} \cdot \dot{\mathbf{x}} + \boldsymbol{\sigma} : \operatorname{grad} [\dot{\mathbf{x}}] - \operatorname{div} \mathbf{q}) dv \quad (3.64)$$

Einsetzen dieses umgeformten Oberflächenterms in Gleichung (3.63), ergibt:

$$\int_{\Omega} \rho \dot{e} dv = \int_{\Omega} (\boldsymbol{\sigma} : \operatorname{grad} [\dot{\mathbf{x}}] - \operatorname{div} \mathbf{q} + \rho r + [\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} + \rho(\mathbf{b} - \ddot{\mathbf{x}})] \cdot \dot{\mathbf{x}}) dv \quad (3.65)$$

Ebenfalls ist hier die lokale Form der Impulsbilanz enthalten, welche nach Gleichung (3.46) zu null wird. Es folgt für den 1. Hauptsatz der Thermodynamik:

$$\int_{\Omega} \rho \dot{e} dv = \int_{\Omega} (\boldsymbol{\sigma} : \operatorname{grad} [\dot{\mathbf{x}}] - \operatorname{div} \mathbf{q} + \rho r) dv \quad (3.66)$$

Da diese Energieerhaltung für beliebige Körper gültig sein soll, folgt daraus die lokale Form der Energieerhaltung:

$$\rho \dot{e} = \boldsymbol{\sigma} : \operatorname{grad} [\dot{\mathbf{x}}] - \operatorname{div} \mathbf{q} + \rho r \quad (3.67)$$

Hierbei ist zu erkennen, dass eine Änderung der inneren Energie von der zugeführten Wärme ( $-\operatorname{div} \mathbf{q} + \rho r$ ) und der Spannungsleistung ( $\boldsymbol{\sigma} : \operatorname{grad} [\dot{\mathbf{x}}]$ ) abhängt. Aufgrund der Symmetrie des Cauchy-Spannungstensors liefert nur der symmetrische Anteil des Geschwindigkeitsgradienten  $\mathbf{d} := \operatorname{sym}(\operatorname{grad} [\dot{\mathbf{x}}])$  eine Leistung an den Spannungstermen. Diese beiden Größen werden als arbeits- oder auch leistungskonform bezeichnet. In Analogie können weitere arbeitskonforme Paarungen aufgestellt werden:

$$\int_{\Omega} \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{d} dv = \int_{\Omega_0} \mathbf{P} : \dot{\mathbf{F}} dV = \int_{\Omega_0} \mathbf{S} : \dot{\mathbf{G}} dV \quad (3.68)$$

Die lokale Form der Energieerhaltung aus Gleichung (3.67) in der Referenzkonfiguration lautet:

$$\rho_0 \dot{e}_0 = \mathbf{S} : \dot{\mathbf{G}} - \operatorname{div} \mathbf{Q} + \rho_0 R \quad (3.69)$$

### 3.4.5 Zweiter Hauptsatz der Thermodynamik

Im vorangegangenen Abschnitt wurde der erste Hauptsatz der Thermodynamik behandelt, welcher die Erhaltung und den Austausch von Energien durch thermodynamische Prozesse beschreibt. Hierbei sind bisher beliebige Umwandlungen von

Energien möglich. Physikalisch gesehen ist dies für nicht alle Prozesse möglich. Beispielsweise liegt bei einem Wärmetransport eine explizite Prozessrichtung vor, welche nicht umkehrbar ist. Diese Eigenschaft wird im Zusammenhang mit dem zweiten Hauptsatz der Thermodynamik als Entropie  $\mathcal{S}$  beschrieben. Die Entropie wird durch die massenspezifische Entropiedichte  $s = s(\mathbf{x}, \mathbf{t})$  definiert:

$$\mathcal{S} := \int_{\Omega} \rho s \, dv \quad (3.70)$$

Die zeitliche Änderung der Entropie wird mithilfe der Wärmezufuhr  $\mathcal{Q}$ , bezogen auf die absolute Temperatur  $\Theta$ , beschrieben. Mithilfe der Definition der massenspezifischen Entropiequelle  $\vartheta$  ergibt sich die Änderung der Entropie zu:

$$\frac{\partial}{\partial t} \mathcal{S} = \int_{\Omega} \rho \dot{s} \, dv = \int_{\partial\Omega} -\frac{\mathbf{q}}{\Theta} \cdot \mathbf{n} \, da + \int_{\Omega} \frac{\rho r}{\Theta} \, dv + \int_{\Omega} \rho \vartheta \, dv \quad (3.71)$$

Die Gleichung (3.71) wird als zweiter Hauptsatz der Thermodynamik bezeichnet. Änderungen der Entropie können einerseits in Form von Änderungen der Wärmeproduktion oder der Entropieproduktion im Inneren des Volumens auftreten; andererseits können sie in Form von Änderungen des Wärmeflusses  $\mathbf{q}$  bezogen auf die Oberfläche hervorgerufen werden. Aufgrund der Tatsache, dass die Entropie nicht kleiner werden darf, kann die Entropieproduktion  $\vartheta$  im Inneren des Körpers nicht negativ werden. Dies könnte nur durch einen Vorzeichenwechsel der Entropieänderung erzeugt werden, was einer Umkehrung der Prozessrichtung entspräche. Da dies physikalisch nicht möglich ist, liegt hier ein physikalischer Widerspruch vor. Es folgt:

$$\vartheta \geq 0 \quad (3.72)$$

Der Grenzfall  $\vartheta = 0$  liegt vor, wenn keine zusätzliche Entropie in das System eingebracht wird, daher sind diese Prozesse reversibel und es herrscht auch keine Prozessrichtung. Hierbei sind somit alle Zustände ohne weiteres Einbringen von Energie ineinander überführbar. Für Fälle bei denen die Prozessrichtung nicht vernachlässigt werden darf, zum Beispiel Problemstellung unter Berücksichtigung von Reibung, Plastizität, oder ähnlichem, wird Energie dissipiert und diese Prozesse gelten als irreversibel. Die Entropieproduktion ist hierbei positiv,  $\vartheta > 0$ . Unter Verwendung von Gleichung (3.72) ergibt sich die Clausius-Duhem Ungleichung in räumlicher Darstellung zu:

$$\int_{\Omega} \rho \dot{s} \, dv \geq \int_{\partial\Omega} -\frac{\mathbf{q}}{\Theta} \cdot \mathbf{n} \, da + \int_{\Omega} \frac{\rho r}{\Theta} \, dv \quad (3.73)$$

Analog zu den vorherigen Abschnitten wird auch hier der Oberflächenterm mithilfe des Divergenztheorems in ein Volumenintegral überführt. Die Referenzkonfiguration wird auf die absolute Temperatur angewendet, welche eine ortsabhängige Größe ist,  $\Theta = \Theta(\mathbf{x})$ :

$$\int_{\partial\Omega} -\frac{\mathbf{q}}{\Theta} \cdot \mathbf{n} \, da = \int_{\Omega} \operatorname{div} \left( \frac{\mathbf{q}}{\Theta} \right) \, dv = \int_{\Omega} \left( \frac{1}{\Theta} \operatorname{div} \mathbf{q} - \frac{1}{\Theta^2} \mathbf{q} \cdot \operatorname{grad} \Theta \right) \, dv \quad (3.74)$$

Somit kann die Entropie unter Verwendung der Gleichungen (3.73), (3.74) und der Energieerhaltung aus Gleichung (3.66) umgeformt werden zu:

$$\int_{\Omega} \left( \rho \Theta \dot{s} - \rho \dot{e} + \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{d} - \frac{1}{\Theta} \mathbf{q} \cdot \text{grad } \Theta \right) dv \geq 0 \quad (3.75)$$

Da auch hier gilt, dass der Körper beliebig sein darf, muss auch die Entropiebilanz eine lokale Gültigkeit haben:

$$\rho \Theta \dot{s} - \rho \dot{e} + \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{d} - \frac{1}{\Theta} \mathbf{q} \cdot \text{grad } \Theta \geq 0 \quad (3.76)$$

Für die nachfolgende Betrachtung wird angenommen, dass keine Temperaturänderung im Laufe der Zeit auftritt und auch kein Temperaturunterschied zwischen einzelnen Punkten des Körpers herrscht. Somit liegt ein adiabatischer Zustand des Körpers vor und die Bedingung  $\text{grad } [\Theta] = 0$  gilt. Hieraus folgt die Clausius-Planck-Ungleichung:

$$\mathcal{D}_{int} = \rho \Theta \dot{s} - \rho \dot{e} + \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{d} \geq 0 \quad (3.77)$$

Die Entropieänderung wird mit der inneren Dissipation  $\mathcal{D}_{int}$  gleichgesetzt. Eine Formulierung in der Referenzkonfiguration ergibt sich somit zu:

$$\mathcal{D}_{int} = \rho_0 \Theta \dot{s}_0 - \rho_0 \dot{e}_0 + \mathbf{S} : \dot{\mathbf{G}} \geq 0 \quad (3.78)$$

Zusätzlich zu den massenspezifischen zeitlichen Änderungen der Entropieproduktion treten in der Dissipation die jeweiligen arbeitskonformen Paarungen  $\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{d}$  (Momentankonfiguration) oder  $\mathbf{S} : \dot{\mathbf{G}}$  (Referenzkonfiguration) auf. Unter der Annahme von elastischem Materialverhalten, wie es auch in dieser Arbeit angenommen wird, kann die Verzerrungsenergiefunktion  $\psi$  definiert werden. Im Zusammenhang mit der Thermodynamik wird diese Energiefunktion als die freie oder auch Helmholtzenergiefunktion bezeichnet. Sie wird auf Grundlage der inneren Energie und dem Produkt aus der Entropie mit der absoluten Temperatur definiert.

$$\psi := \rho_0 e_0 - \rho_0 \Theta s_0 \quad (3.79)$$

In Gleichung (3.79) beziehen sich alle Größen auf die Referenzkonfiguration. Für eine Betrachtung der Energieänderung auf Grundlage der Helmholtzenergiefunktion  $\psi$  wird deren zeitliche Änderung benötigt, welche wie folgt lautet:

$$\dot{\psi} := \rho_0 \dot{e}_0 - \rho_0 \left( \dot{\Theta} s_0 + \Theta \dot{s}_0 \right) \quad (3.80)$$

Durch das Einsetzen von Gleichung (3.80) in Gleichung (3.78) folgt:

$$\mathcal{D}_{int} = \mathbf{S} : \dot{\mathbf{G}} - \dot{\psi} - \rho_0 \dot{\Theta} s_0 \quad (3.81)$$

Für isotherme Prozesse  $\dot{\Theta} = 0$  entfällt hierbei der Term der zeitlichen Temperaturänderung. Da die Helmholtzenergiefunktion vom Green'schen Verzerrungstensor

abhängt,  $\psi = \psi(\mathbf{G})$ , kann die zeitliche Änderung der Verzerrungsenergie mithilfe der Verzerrungsänderungen beschreiben werden:

$$\dot{\psi}(\mathbf{G}) = \frac{\partial \psi(\mathbf{G})}{\partial \mathbf{G}} : \frac{\partial \mathbf{G}}{\partial t} = \frac{\partial \psi(\mathbf{G})}{\partial \mathbf{G}} : \dot{\mathbf{G}} \quad (3.82)$$

Unter der Annahme, dass keine Dissipation,  $\mathcal{D}_{int} = 0$ , stattfindet, folgt:

$$\left( \mathbf{s} - \frac{\partial \psi(\mathbf{G})}{\partial \mathbf{G}} \right) : \dot{\mathbf{G}} = 0 \quad (3.83)$$

Für den nicht trivialen Fall ( $\dot{\mathbf{G}} \neq 0$ ) muss der Klammerausdruck verschwinden. Hieraus kann der zweite Piola-Kirchhoff'sche Spannungstensor in Abhängigkeit der Ableitung der Energiefunktion  $\psi$  nach den Green-Lagrange'schen Verzerrungen  $\mathbf{G}$  definiert werden zu :

$$\mathbf{s} = \frac{\partial \psi(\mathbf{G})}{\partial \mathbf{G}} \quad (3.84)$$

## 4 Grundlagen der Elektrostatik

In den weiteren Absätzen werden prinzipielle Mechanismen von ferroelektrischen Materialien erläutert, welche im Rahmen dieser Arbeit zum grundlegenden Verständnis beitragen. Eine ausführliche und detaillierte Darstellung kann folgenden Werken TIPLER [84], GERTHSEN [31], SCHRADER [74], FLIESSBACH [30] sowie SCHWAAB [76] und KOWALSKY [53] entnommen werden.

Die Kopplung von mechanischem und elektrostatischem Verhalten ist für die Beschreibung des ferroelektrischen Materials zwingend nötig. Sie bilden die Grundlage für die Beschreibung der Beziehung zwischen elektrischen und magnetischen Feldern sowie deren Ursachen und den elektrischen Ladungen sowie dem elektrischen Strom. Hierfür werden bestimmte Annahmen getroffen. So werden unter anderem magnetische und elektrodynamische Effekte nicht berücksichtigt. Als Grundlage dieser Arbeit dient die Elektrostatik. Ihre fundamentalen Gesetze sind die Maxwell-Gleichungen, die Materialgleichungen und die Kontinuitätsgleichungen der Elektrodynamik.

### 4.1 Die elektrische Ladung

Die elektrische Ladung ist eine fundamentale Größe in der Physik. Ausgehend von der Annahme, dass die Ausdehnung der betrachteten geladenen Teilchen klein ist gegenüber ihren Abständen, sind die Ladungen in einem Punkt konzentriert. Diese Ladungen heißen Punktladungen. Eine Punktladung ist durch die Angabe ihres Ortsvektors  $\mathbf{x}_i$  und ihrer Stärke  $q_i$  festgelegt. Die Gesamtladung  $q$  eines Systems aus  $N$  Punkte entspricht der Summe der Einzelladungen  $q_i$ :

$$q = \sum_{i=1}^N q_i \quad (4.1)$$

Die mikroskopische Ladungsdichte  $\bar{\rho}(\mathbf{x})$  für ein Kontinuum wird mithilfe der Delta-Dirac-Distribution  $\delta$  bezüglich der Punktladungen  $q_i$  mit ihren Ortsvektoren  $\mathbf{x}_i$  definiert:

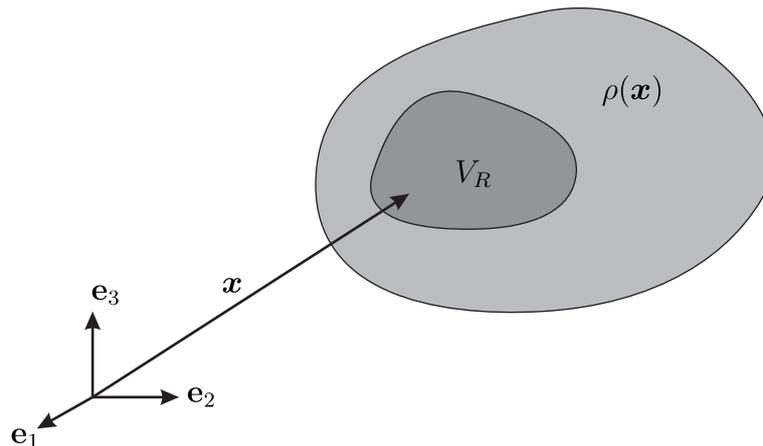
$$\bar{\rho}(\mathbf{x}) = \sum_{i=1}^N q_i \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_i) \quad (4.2)$$

Eine stetige, begrenzte Ladungsdichte  $\rho(\mathbf{x})$  kann durch  $N$  Punktladungen angenähert werden. Dazu wird ein Bereich  $V_R$  in  $N$  Teilvolumina aufgeteilt:

$$\rho(\mathbf{x}) = \frac{1}{V_R} \int_{V_R} \bar{\rho}(\mathbf{x}) dv = \frac{1}{V_R} \sum_{i=1}^N q_i \quad (4.3)$$

Die zugehörige Oberflächenladungsdichte  $\omega(\mathbf{x})$  mit  $M$  Ladungen ergibt sich über eine repräsentative Oberfläche  $A_R$  zu:

$$\omega(\mathbf{x}) = \frac{1}{A_R} \int_{A_R} \bar{\rho}(\mathbf{x}) da = \frac{1}{A_R} \sum_{i=1}^M q_i \quad (4.4)$$



**Abbildung 4.1:** Repräsentativen Volumenelement  $V_R$  mit Ladungsdichte  $\rho(\mathbf{x})$  und Ortsvektor  $\mathbf{x}$ .

Abbildung 4.1 zeigt die Mittelung der elektrischen Ladung über ein repräsentatives Volumen  $V_R$  mit seinem Ortsvektor  $\mathbf{x}$ .

## 4.2 Die Coulombkraft

Die Coulombkraft bestimmt u.a. die physikalischen Eigenschaften eines Festkörpers. Sie kann mit der Gravitationskraft verglichen werden. Insbesondere hat sie die gleiche Abstandsabhängigkeit. Die Coulombkraft ist proportional zur Ladung. Die Ladung  $q$  ist eine physikalische Größe des Körpers  $\mathcal{B}$ .

Aus vielen Experimenten sind folgende Verallgemeinerungen bekannt:

1. Die Coulombkraft ist eine Zentralkraft und wirkt in Richtung der Verbindungslinie von zwei Ladungen.
2. Die Coulombkraft genügt dem Gegenwirkungsprinzip (3. Newtonsche Axiom):  $\mathbf{F}_2 = -\mathbf{F}_1$
3. Die Coulombkraft ist proportional zum Produkt der beiden Ladungen  $q_1$  und  $q_2$ . Die einzelnen Ladungen können positiv oder negativ sein. Gleichnamige Ladungen stoßen sich ab, ungleichnamige ziehen sich an.

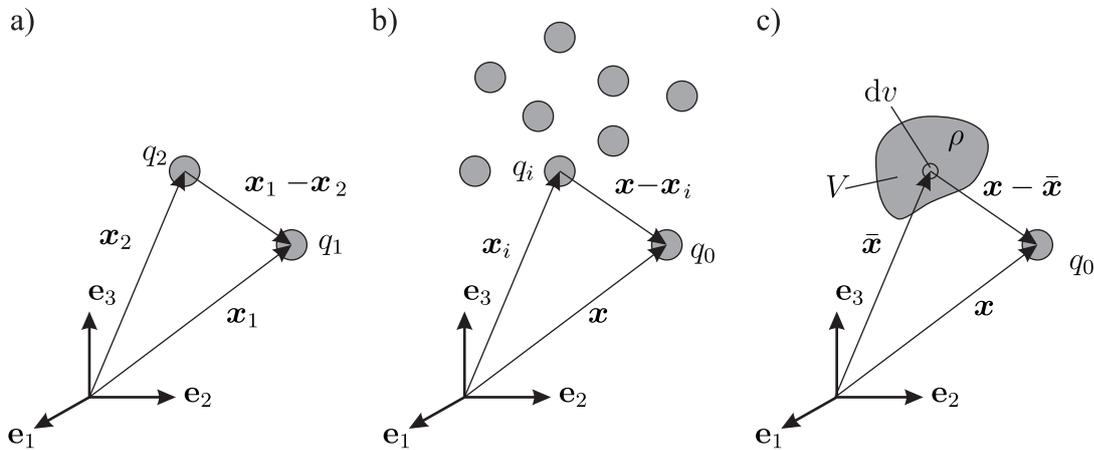
4. Die Kraft  $\mathbf{F}_{12}$  auf eine Ladung  $q_1$  infolge einer zweiten Ladung  $q_2$  ist in vektorieller Darstellung gegeben als

$$\mathbf{F}_{12} = \frac{q_1 q_2 (\mathbf{x}_1 - \mathbf{x}_2)}{4\pi\kappa_0 |\mathbf{x}_1 - \mathbf{x}_2|^3}. \quad (4.5)$$

Die Vektoren  $\mathbf{x}_i$  sind die Ortsvektoren der zugehörigen Ladungen  $q_i$ ,  $\kappa_0$  ist die Permittivität des Vakuums,  $\kappa_0 \approx 8,854 \cdot 10^{-12} \text{ C}/(\text{Vm})$ . Der resultierende Vektor  $\mathbf{x}_1 - \mathbf{x}_2$  zeigt vom Ort der Ladung  $q_2$  zum Ort der Ladung  $q_1$ .

5. Für Coulombkräfte gilt das Superpositionsprinzip. Die resultierende Kraft auf eine Ladung ergibt sich als Summe der Coulombkraft zwischen dieser Ladung und allen anderen Ladungen.
6. Für die Ladungen gilt der Erhaltungssatz: Die Summe der Ladungen eines abgeschlossenen Systems ist erhalten. Die Ladungen elementarer Teilchen sind unveränderliche Eigenschaften dieser Teilchen.

Im Folgenden werden die zuvor beschriebenen Szenarien grafisch dargestellt. Abbildung 4.2(a) beschreibt den Zustand der elektrostatischen Kraft  $\mathbf{F}_{12}$  zwischen zwei einzelnen Punktladungen. Die Zustände ändern sich über eine Ansammlung von Ladungen, Abbildung 4.2(b) bis hin zum Zustand (c). Hier wird die Kraft auf eine Probeladung  $q_0$  durch eine Ladungsdichte  $\rho$  ausgedrückt.



**Abbildung 4.2:** Das Coulomb'sche Gesetz bei unterschiedlicher Anordnung von Punktladungen und Ladungsdichten.

Für  $N$  Ladungen  $q_1, \dots, q_N$  mit den Ortsvektoren  $\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_N$  erfährt die weitere Ladung  $q_0$  mit dem Ortsvektor  $\mathbf{x}$  nach den bereits aufgeführten Ergebnissen eine Kraft:

$$\mathbf{F}_0(\mathbf{x}) = \sum_{i=1}^N \frac{q_0 q_i}{4\pi\kappa_0} \frac{\mathbf{x} - \mathbf{x}_i}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}_i|^3} \quad (4.6)$$

Werden die Punktladungen durch die Ladungsdichtefunktion  $\rho$  beschrieben, so wirkt auf die Probeladung  $q_0$  eine Kraft der Größe:

$$\mathbf{F}_0(\mathbf{x}) = \int_V \frac{\rho}{4\pi\kappa_0} \frac{\mathbf{x} - \mathbf{x}_i}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}_i|^3} dv \quad (4.7)$$

### 4.3 Das elektrische Feld und elektrische Potential

Die Größe  $\mathbf{E}$  wird als das Elektrische Feld bezeichnet. In der vorliegenden Arbeit werden ruhende Ladungen betrachtet, daher ist das elektrische Feld statisch. Allgemein ist die elektrische Feldstärke definiert als:

$$\mathbf{E} = \frac{\mathbf{F}_0}{q_0} \quad (4.8)$$

$$\mathbf{F}_0 = q_0 \cdot \mathbf{E} \quad (4.9)$$

Unter Berücksichtigung der Gleichung (4.6) und mithilfe von:

$$\text{Grad} \left[ \frac{1}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}_i|} \right] = - \frac{\mathbf{x} - \mathbf{x}_i}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}_i|^3} \quad (4.10)$$

wird das elektrische Feld umgeformt zu:

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}) = -\text{Grad} [\phi(\mathbf{x})] \quad (4.11)$$

Somit ist das elektrische Potential  $\phi$  über den Gradienten des elektrischen Feldes definiert.

Für eine weiterführende Herleitung sei auf die bereits aufgeführte Literatur verwiesen, unter anderem [30, 43].

Das elektrische Feld kann als Vektorfeld durch seine Quellen,  $\text{Div} \mathbf{E}$ , und Wirbel,  $\text{Rot} \mathbf{E}$ , bestimmt werden. Bei statischer Betrachtung, und sofern keine magnetische Interaktion vorliegt, ist es rotations- bzw. wirbelfrei:

$$\text{Rot} [\mathbf{E}(\mathbf{x})] = \mathbf{0}. \quad (4.12)$$

Nach dem Gauß'schen Gesetz ist die Beziehung zwischen dem elektrischen Feld und einer Ladungsdichte gegeben als:

$$\kappa_0 \text{Div} [\mathbf{E}(\mathbf{x})] = \rho(\mathbf{x}). \quad (4.13)$$

Somit ist die Ladungsdichtefunktion  $\rho(\mathbf{x})$  eine Quelle für das elektrische Feld  $\mathbf{E}$ . Die Ladungsdichte  $\rho(\mathbf{x})$  setzt sich aus den freien Ladungen und den gebundenen Ladungen zusammen. So können die freien Ladungen sich frei im Material bewegen und werden mit  $\rho_f$  bezeichnet, wohingegen die gebundenen Ladungen eine feste Position im Material aufweise,  $\rho_b$ . Daraus ergibt sich eine Gesamtladungsdichte zu  $\rho = \rho_f + \rho_b$ .

#### 4.4 Die Polarisation und dielektrische Verschiebung

Im Allgemeinen beschreibt die elektrische Polarisation die Verschiebung der Ladungsschwerpunkte innerhalb eines Atoms, wenn z.B. ein externes elektrisches Feld aufgebracht wird.

Wird in einem Plattenkondensator ein Dielektrikum mit einer spezifischen Dielektrizitätskonstante eingebracht, füllt das Dielektrikum den Platz zwischen den Kondensatorplatten nahezu komplett aus. Zu beobachten ist, dass die angelegte Spannung um einen spezifischen Faktor sinkt. Da das homogene elektrische Feld des Kondensators proportional zur Spannungsdifferenz ist, sinkt auch das elektrische Feld um den gleichen Faktor. Die Ursache der Feldverminderung liegt in der dielektrischen Polarisation des Dielektrikums. Das Dielektrikum, das ein Isolator ist, besteht aus neutralen Atomen, die im Allgemeinen jeweils aus mehreren positiven und negativen Ladungen bestehen. Die positiven Ladungen innerhalb eines Atoms werden durch den positiven Ladungsschwerpunkt und die negativen Ladungen durch den negativen Ladungsschwerpunkt beschrieben. Sofern das Atom noch neutral ist, liegen beide Schwerpunkte am gleichen Ort. Beim Einschub des Dielektrikums in das elektrische Feld des Plattenkondensators werden die Ladungsschwerpunkte eines Atoms gegeneinander verschoben. Die negative Kondensatorplatte zieht den positiven Ladungsschwerpunkt an und umgekehrt. Schlussendlich liegen die beiden Schwerpunkte nicht mehr an der gleichen Stelle, sondern haben einen gewissen Abstand zueinander. Beispielsweise haben zwei Ladungsschwerpunkte mit dem Betrag  $q$  einen Abstand von  $r$  zueinander. So bilden sie einen elektrischen Dipol, der durch ein elektrisches Dipolmoment  $d$  beschrieben werden kann:

$$d = q r \quad (4.14)$$

Da das Dielektrikum aus vielen Ladungsschwerpunkten besteht, berücksichtigt die Polarisation die gebildeten Dipole im Dielektrikum. Die Polarisation ist die vektorielle Summe aller Dipolmomente pro Volumen. Die Vektorsumme beschreibt die Richtung der Polarisation. Um eine möglichst große Polarisation im Dielektrikum zu erreichen, sollten möglichst alle gebildeten Dipole parallel zueinander ausgerichtet sein und in die gleiche Richtung wirken.

Betrachtet werden zunächst die freien und gebundenen Ladungsdichten,  $\rho_f$  und  $\rho_b$ , unter Vernachlässigung der magnetischen Kopplung:

$$\text{Rot} [\mathbf{E}] = \mathbf{0} \quad \text{und} \quad \kappa_0 \text{Div} [\mathbf{E}] = \rho = \rho_b + \rho_f \quad (4.15)$$

Durch eine Mittelung, mit  $\langle \dots \rangle$  gekennzeichnet, können die Größen auf die makroskopische Ebene überführt werden:

$$\text{Rot} \langle \mathbf{E} \rangle = \mathbf{0} \quad \text{und} \quad \kappa_0 \text{Div} \langle \mathbf{E} \rangle = \langle \rho_b \rangle + \langle \rho_f \rangle \quad (4.16)$$

Die gebundenen Ladungen  $\rho_b$  des betrachteten Materials entstehen durch eine Ladungsverschiebung in den Elementarzellen. Ihre Mittelung entspricht der Divergenz des Vektorfeldes der Polarisierung, die auch als materielle Polarisierung bezeichnet wird:

$$\langle \rho_b \rangle = -\text{Div} [\mathbf{P}] \quad (4.17)$$

Einsetzen von Gleichung (4.17) in (4.16)<sub>2</sub> ergibt:

$$\text{Div} [\langle \kappa_0 \mathbf{E} \rangle + \mathbf{P}] = \langle \rho_f \rangle \quad (4.18)$$

Im Folgenden werden Vereinfachungen  $\mathbf{E} := \langle \mathbf{E} \rangle$  und  $\rho_f := \langle \rho_f \rangle$  berücksichtigt. Durch die Ausrichtung der atomaren Dipole aufgrund des elektrischen Feldes kommt es zu einer Polarisierung  $\mathbf{P}$  des Mediums. Darunter versteht man das mittlere Dipolmoment pro Volumen. Die Polarisierung erzeugt ein eigenes elektrisches Feld, welches dem externen Feld im Isolator überlagert wird und das externe elektrische Feld abschwächt. Hierzu wird die dielektrische Verschiebung  $\mathbf{D}$ , auch elektrische Flussdichte genannt, eingeführt:

$$\mathbf{D} = \kappa_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (4.19)$$

Somit ergeben sich, unter Vernachlässigung der magnetischen und elektrischen Kopplung, die makroskopischen Feldgleichungen zu:

$$\text{Div} [\mathbf{D}] = \rho_f \quad \text{und} \quad \text{Rot} [\mathbf{E}] = \mathbf{0} \quad (4.20)$$

Die dielektrische Verschiebung  $\mathbf{D}$  steht auf dem Rand  $\partial\mathcal{B}$  eines materiellen Körpers im Gleichgewicht mit der Dichte der freien Oberflächenladungen  $\omega_f$ :

$$\mathbf{D} \cdot \mathbf{n} = \omega_f \quad (4.21)$$

## 4.5 Maxwell'sche Gleichungen

Die Maxwell-Gleichungen beschreiben allgemein die Phänomene des Elektromagnetismus. Sie beschreiben mathematisch die Zusammenhänge zwischen elektrischen und magnetischen Feldern sowie elektrischen Ladungen und elektrischem Strom. Diese Zusammenhänge sind zeitabhängige Vorgänge, daher ergeben sich die Feldgleichungen nach SCHWAAB [76] zu:

$$\text{Div} \mathbf{D} = \rho_f; \quad \text{Div} \mathbf{B} = 0 \quad (4.22)$$

$$\text{Rot} \mathbf{E} = -\dot{\mathbf{B}}; \quad \text{Rot} \mathbf{H} = \mathbf{J} + \dot{\mathbf{D}} \quad (4.23)$$

Da in dieser Arbeit keine Einzelheiten über die atomaren mikroskopischen Details diskutiert werden, wird eine räumliche Mittelung betrachtet. Im Folgenden

werden die einzelnen Gleichungen kurz aufgeführt. Zudem werden nur sehr kleine elektrische Felder erwartet. Die elektrischen Ströme und der hohe elektrische Widerstand, trotz der Annahme von Halbleiterkeramiken, führen dazu, dass die entstehenden Wechselwirkungen mit magnetischen Feldern vernachlässigt werden können. Nachfolgend werden die einzelnen Gesetze kurz erläutert. Das Gesetz der Ladungserhaltung wird zusätzlich aufgeführt, da es im weiteren Vorgehen der Arbeit von großer Bedeutung ist.

### Gauß'sches Gesetz für elektrische Felder

Elektrische Ladungen sind Quellen und Senken des elektrischen Feldes:

$$\operatorname{Div} \mathbf{D} = \rho_f; \quad \text{Im Fall eines Isolators ist } \rho_f = 0 \quad (4.24)$$

### Gauß'sches Gesetz für magnetische Felder

Es gibt keine magnetischen Quellen und Senken, demzufolge ist die magnetische Induktion  $\mathbf{B}$  quellfrei:

$$\operatorname{Div} \mathbf{B} = 0 \quad (4.25)$$

### Induktionsgesetz

Die zeitliche Änderung der magnetischen Induktion  $\mathbf{B}$  beeinflusst das elektrische Feld  $\mathbf{E}$ :

$$\operatorname{Rot} \mathbf{E} = \dot{\mathbf{B}} \quad (4.26)$$

Der Spezialfall, dass keine magnetische Induktion  $\mathbf{B} = 0$  vorliegt, ist Gleichung (4.26) das Faraday'sche Gesetz.

$$\operatorname{Rot} \mathbf{E} = \mathbf{0} \quad (4.27)$$

### Durchflutungsgesetz

Elektrische Ströme  $\mathbf{J}$  und die zeitliche Änderung der dielektrischen Verschiebung  $\dot{\mathbf{D}}$  erzeugen, wenn das Modell wie eine Spule aufgebaut ist, einen Wirbel im Magnetfeld  $\mathbf{H}$ :

$$\operatorname{Rot} \mathbf{H} = \dot{\mathbf{D}} + \mathbf{J} \quad (4.28)$$

Mit der Annahme, dass der magnetische Einfluss vernachlässigbar ist, wird Gleichung (4.28) zu:

$$\mathbf{0} = \dot{\mathbf{D}} + \mathbf{J} \quad (4.29)$$

### Ladungserhaltung

Das Gesetz der Ladungserhaltung wird mithilfe des Durchflutungsgesetzes Gleichung (4.29) und dem Gauß'schen Gesetz für elektrische Felder Gleichung (4.24) beschrieben als:

$$\text{Div } \mathbf{J} + \dot{\rho}_F = 0 \quad (4.30)$$

## 4.6 Annahmen und Vereinfachungen

Nachfolgend werden einige Vereinfachungen und Annahmen aufgeführt, die in dieser Arbeit berücksichtigt werden.

Es werden kleine Deformationen vorausgesetzt, da die mechanischen Dehnungen bei ferroelektrischen Keramiken gewöhnlich weniger als 1% betragen. Somit wird das Modell in der vorliegenden Arbeit in der Referenzkonfiguration berechnet. Es gelten diesbezüglich folgende Vereinfachungen:

$$\det[\mathbf{F}] = 1, \quad \text{grad}[\bullet] = \text{Grad}[\bullet] \quad (4.31)$$

Für ideale Ferroelektrika gilt, dass sie eine hohe elektrische Permittivität haben und daher als nichtleitend angesehen werden können. Da in dieser Arbeit die Leitungsmechanismen untersucht werden, wird eine Ladungsdichte im Volumen angenommen. Die Ladungsdichte führt zum Stromtransport im Ferroelektrikum:

$$\rho_f \neq 0, \quad \mathbf{J} \neq \mathbf{0} \quad (4.32)$$

Daraus folgt, dass für  $\text{Div}[\mathbf{D}] = \rho_f$  die Ladungsbilanz aus Gleichung (4.30) eingesetzt wird:

$$\text{Div}[\dot{\mathbf{D}}] + \text{Div}[\mathbf{J}] = 0 \quad (4.33)$$

Generell werden keine isothermischen Veränderungen angenommen, es werden uniforme, räumlich konstante Temperaturen vorausgesetzt:

$$\text{Grad}[\theta] = \mathbf{0} \quad (4.34)$$

Weiter wird eine quasi-statische Bewegung der materiellen Punkte des Körpers festgelegt. Damit gilt für die Geschwindigkeit und Beschleunigung:

$$\dot{\mathbf{x}} \approx \mathbf{0}, \quad \ddot{\mathbf{x}} \approx \mathbf{0} \quad (4.35)$$

Die elektrischen Ströme und die sich daraus ergebenden zeitlichen Änderungen des elektrischen Feldes sind aufgrund des hohen elektrischen Widerstandes von ferroelektrischen Materialien gering. Daher werden elektromagnetische Wechselwirkungen vernachlässigt. Aus diesem Grund werden keine magnetischen Abhängigkeiten betrachtet, jegliche magnetischen Größen werden in diesem Modell vernachlässigt.

Das in dieser Arbeit aufgeführte Kontinuumsmodell basiert auf folgenden Feldgleichungen:

$$\begin{aligned}
\boldsymbol{\varepsilon} &= \frac{1}{2}(\mathbf{H} + \mathbf{H}^T) && \text{in } \mathcal{B} \\
\text{Div } [\boldsymbol{\sigma}] + \mathbf{b} &= \mathbf{0} && \text{in } \mathcal{B} \\
\boldsymbol{\sigma} &= \boldsymbol{\sigma}^t && \text{in } \mathcal{B} \\
\text{Div } \mathbf{P} &= -\rho_b && \text{in } \mathcal{B} \\
\mathbf{P} \cdot \mathbf{n} &= \omega_b && \text{auf } \partial\mathcal{B} \\
\mathbf{D} &= \kappa_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} && \text{in } \mathcal{B} \\
\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} &= \bar{\mathbf{t}} && \text{auf } \partial\mathcal{B} \\
\text{Div } [\mathbf{J}] &= -\dot{\rho}_f && \text{in } \mathcal{B} \\
\text{Div } \mathbf{D} &= \rho_f && \text{in } \mathcal{B} \\
\mathbf{D} \cdot \mathbf{n} &= -\omega_f && \text{auf } \partial\mathcal{B} \\
\mathbf{E} &= -\text{Grad } [\phi] && \text{in } \mathcal{B}
\end{aligned} \tag{4.36}$$

Die konstitutive Gleichung Umformung im Hinblick auf die numerische Implementierung zur Berücksichtigung von Ladungsmechanismen ergibt sich aus der zeitlichen Ableitung des Gauß'schen Gesetzes, eingesetzt in die Formulierung der Ladungserhaltung:

$$\begin{aligned}
\text{Div } \mathbf{D} = \rho_f &\quad \rightarrow \quad \text{Div } \dot{\mathbf{D}} = \frac{\partial \rho_f}{\partial t} \\
\text{Div } \mathbf{J} + \frac{\partial \rho_f}{\partial t} &= 0 \\
\text{Div } (\dot{\mathbf{D}} + \mathbf{J}) &= 0 \\
\text{Div } \left( \mathbf{D} + \int_t \mathbf{J} dt \right) &= 0
\end{aligned} \tag{4.37}$$

Bei einer Betrachtung mittels Differenzenquotienten für die zeitliche Ableitung folgt für die Formulierung der Leitungsmechanismen:

$$\begin{aligned}
\text{Div} \left( \frac{\mathbf{D}^{t+\Delta t} - \mathbf{D}^t}{\Delta t} + \mathbf{J}^t \right) &= 0 \\
\text{Div} \left( \mathbf{D}^{t+\Delta t} - \mathbf{D}^t + \mathbf{J}^t \cdot \Delta t \right) &= 0
\end{aligned} \tag{4.38}$$

## 5 Variationsformulierung und Linearisierung

Das folgende Kapitel beschreibt die Variationsformulierung und Linearisierung der kontinuumsmechanischen Grundgleichungen für das Substrat, das ferroelektrische Material sowie das Elektrodenmaterial. Für Details wird u.a. auf die Literatur von HUGHES & PISTER [41], WRIGGERS [89], SU & LANDIS [80] und BATHE [7] verwiesen.

Die bisher vorgestellten materialunabhängigen Grundgleichungen und die elektromechanischen Erweiterungen reichen nicht aus, um alle unbekanntes Größen zu bestimmen. Abhilfe schafft hier eine Betrachtung des Werkstoffverhaltens unter Belastung, um eine Verbindung zwischen den rein mechanischen und elektrischen Größen zu erhalten. Die bisher eingeführten Deformationen können über das Verschiebungsfeld  $\mathbf{u}$  beschrieben werden. Zusätzlich werden der Vektor der materiellen Polarisation  $\mathbf{P}$  und das elektrische Potential  $\phi$  als primäre Feldvariablen verwendet. Die Differentialgleichungen aus inneren und äußeren Kräften sind unter Beachtung von bestimmten Randvorgaben zu lösen. Die Randbedingungen werden einerseits in Verschiebungsrandbedingungen  $\partial\Omega_u$  (Dirichlet) und andererseits in Krafrandbedingungen  $\partial\Omega_\sigma$  (Neumann) eingeteilt. Gemeinsam decken sie die gesamte Oberfläche des Körpers ab:

$$\partial\Omega = \partial\Omega_u \cup \partial\Omega_\sigma \quad , \quad \partial\Omega_u \cap \partial\Omega_\sigma = \emptyset \quad (5.1)$$

Ziel ist die Ermittlung der primären Feldvariablen unter Einhaltung vorgegebener Randbedingungen. Dies wird als starke Form der Randwertaufgabe bezeichnet. Eine analytische Lösung ist meistens nur für triviale Problemstellungen möglich, daher wird in dieser Arbeit eine Näherungslösung mithilfe der Finiten Elemente Methode (FEM) berechnet. Hierbei wird eine Variationsformulierung, auch schwache Form genannt, genutzt, welche das Gleichgewicht nicht mehr exakt in jedem Punkt erfüllt, sondern im integralen Mittel.

Eine Erläuterung für das allgemeine Vorgehen wird anhand des Substratmaterials aufgeführt. Anschließend folgt eine ausführliche Beschreibung des ferroelektrischen Materials und der Elektrode, welche zum Teil die Randbedingungen des ferroelektrischen Materials erfüllt.

### 5.1 Das Substratmaterial

Im Folgenden wird das linear elastische Materialverhalten für das isotrope Substratmaterial näher erläutert. Der Spannungstensor  $\boldsymbol{\sigma}$  wird hierbei in Abhängigkeit der freien Helmholtz-Energie  $\Psi$  und in Abhängigkeit der linearen Verzerrun-

gen  $\boldsymbol{\varepsilon}$  aus Gleichung (3.18) definiert:

$$\boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{\varepsilon}) = \frac{\partial \Psi(\boldsymbol{\varepsilon})}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}} \quad (5.2)$$

Unter der Annahme von linearer Elastizität kann der konstante vierstufige Elastizitätstensor  $\mathbb{C}$  mit  $3^4 = 81$  Komponenten eingeführt werden:

$$\mathbb{C} := \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}} = \frac{\partial^2 \Psi(\boldsymbol{\varepsilon})}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^2} \quad (5.3)$$

Folglich ergibt dies für den Spannungstensor  $\boldsymbol{\sigma}$ :

$$\boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{\varepsilon}) = \mathbb{C} : \boldsymbol{\varepsilon} \quad \text{bzw.} \quad \sigma_{ij} = c_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (5.4)$$

Aufgrund der Symmetrie des Spannungstensors und der Verzerrungen können die Indizes  $i$  und  $j$  bzw.  $k$  und  $l$  vertauscht werden. Somit werden die Symmetrieeigenschaften auf den Elastizitätstensor übertragen:

$$c_{ijkl} = c_{jikl} = c_{ijlk} = c_{jilk} \quad (5.5)$$

Weitere Reduzierung erfolgt durch die Vertauschbarkeit der partiellen Ableitungen:

$$c_{ijkl} = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial \varepsilon_{kl}} = \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varepsilon_{ij} \partial \varepsilon_{kl}} = \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varepsilon_{kl} \partial \varepsilon_{ij}} = \frac{\partial \sigma_{kl}}{\partial \varepsilon_{ij}} \quad (5.6)$$

Durch Vertauschen der ersten und letzten beiden Indizes aus Gleichung (5.6) folgt:

$$(ij) \iff (kl) \quad (5.7)$$

Dies führt auf weitere Symmetrieeigenschaften des Tensors  $\mathbb{C}$ :

$$c_{ijkl} = c_{klij} = c_{lki j} = c_{lkji} = c_{klji} \quad (5.8)$$

Der Spannungstensor  $\boldsymbol{\sigma}$  wird nach Ausnutzung der Symmetrieeigenschaften in Voigt Notation wie folgt dargestellt:

$$\boldsymbol{\sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{22} & \sigma_{33} & \sigma_{12} & \sigma_{13} & \sigma_{23} \end{bmatrix}^T \quad (5.9)$$

Analog wird der Verzerrungstensor  $\boldsymbol{\varepsilon}$  ausgedrückt als:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{33} & 2\varepsilon_{12} & 2\varepsilon_{13} & 2\varepsilon_{23} \end{bmatrix}^T \quad (5.10)$$

Die Zusammenstellung des allgemeinen anisotropen linear elastischen Stoffgesetzes in Vektor-Matrix-Notation ergibt sich zu:

$$\boldsymbol{\sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{12} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{23} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & c_{15} & c_{16} \\ & c_{22} & c_{23} & c_{24} & c_{25} & c_{26} \\ & & c_{33} & c_{34} & c_{35} & c_{36} \\ & & & c_{44} & c_{45} & c_{46} \\ & & & & c_{55} & c_{56} \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ 2\varepsilon_{12} \\ 2\varepsilon_{13} \\ 2\varepsilon_{23} \end{bmatrix} \quad (5.11)$$

Der Elastizitätstensor ist symmetrisch,  $\mathbb{C} = \mathbb{C}^T$ , weshalb durch Ausnutzung von Materialsymmetrien 21 verschiedene Komponenten bleiben. Das in dieser Arbeit verwendete Substratmaterial besitzt isotrope Eigenschaften. Dies bedeutet, dass in alle Richtungen die gleichen Eigenschaften herrschen und jeder beliebige Schnitt durch das Material eine Symmetrieebene darstellt. Es führt auf eine Richtungsunabhängigkeit der einzelnen Komponenten im Elastizitätstensor. Für eine vollständige Beschreibung sind zwei elastische Parameter  $c_{11}$  und  $c_{12}$  ausreichend:

$$\mathbb{C} = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & c_{11} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & & c_{11} & 0 & 0 & 0 \\ & & & \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12}) & 0 & 0 \\ sym & & & & \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12}) & 0 \\ & & & & & \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12}) \end{bmatrix} \quad (5.12)$$

Die beiden Parameter  $c_{11}$  und  $c_{12}$  werden durch die in Experimenten bestimmbar Parameter Elastizitätsmodul  $E$  und Querkontraktion  $\nu$  beschrieben:

$$\mathbb{C} = \frac{E}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} \begin{bmatrix} 1 - \nu & \nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ & 1 - \nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ & & 1 - \nu & 0 & 0 & 0 \\ & & & \frac{1 - 2\nu}{2} & 0 & 0 \\ sym & & & & \frac{1 - 2\nu}{2} & 0 \\ & & & & & \frac{1 - 2\nu}{2} \end{bmatrix} \quad (5.13)$$

Im zweidimensionalen ebenen Verzerrungszustand reduziert sich der Elastizitätstensor zu:

$$\mathbb{C} = \frac{E}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} \begin{bmatrix} 1 - \nu & \nu & 0 \\ & 1 - \nu & 0 \\ sym & & \frac{1 - 2\nu}{2} \end{bmatrix} \quad (5.14)$$

Der Spannungstensors des Substratmaterials werden demnach beschrieben als:

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbb{C}\boldsymbol{\varepsilon} \quad (5.15)$$

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es den Nanogeneratorentwurf über eine Steuerung der mechanischen Dehnung numerisch umzusetzen. Aufgrund der geringen Duktilität des darüber liegenden ferroelektrischen Materials werden nur kleine Deformationen zugelassen, in der Modellierung ist ein lineares Materialmodell ausreichend. Aufbauend auf Gleichung (3.46) lautet das mechanische Gleichgewicht für den quasi-statischen Fall:

$$\text{Div}[\boldsymbol{\sigma}] + \mathbf{b} = \mathbf{0} \quad (5.16)$$

Für die Umsetzung im Rahmen der FEM wird Gleichung (5.16) mit einer vektorwertigen Testfunktion  $\delta \mathbf{u}$  skalar multipliziert und über das Volumen des Körpers  $\mathcal{B}$  integriert:

$$\delta \Pi := \int_{\mathcal{B}} (\text{Div} [\boldsymbol{\sigma}] + \mathbf{b}) \cdot \delta \mathbf{u} \, dV = 0 \quad (5.17)$$

Die virtuelle Arbeit des Systems wird mit  $\delta \Pi$  bezeichnet. Die Testfunktion  $\delta \mathbf{u}$  beschreibt eine beliebige, infinitesimal kleine, virtuelle Verschiebung, welche die geometrischen Randbedingungen erfüllt. Nach Anwendung der Produktregel auf die Divergenz folgt:

$$\text{Div} [\boldsymbol{\sigma} \delta \mathbf{u}] = \text{Div} [\boldsymbol{\sigma}] \cdot \delta \mathbf{u} + \boldsymbol{\sigma} : \text{Grad} [\delta \mathbf{u}] = \text{Div} [\boldsymbol{\sigma}] \cdot \delta \mathbf{u} + \boldsymbol{\sigma} : \delta \text{Grad} [\mathbf{u}] \quad (5.18)$$

Die Ausnutzung der Vertauschbarkeit von Differentiation und Variation liefert:

$$\text{Div} [\boldsymbol{\sigma}] \cdot \delta \mathbf{u} = \text{Div} [\boldsymbol{\sigma}^T \delta \mathbf{u}] - \boldsymbol{\sigma} : \text{Grad} [\delta \mathbf{u}] \quad (5.19)$$

Nach weiterer Umformung mithilfe des Gauß'schen Integralsatzes und den Randbedingungen auf dem Neumann Rand  $\partial \mathcal{B}_\sigma$  folgt:

$$\int_{\mathcal{B}} \text{Div} [\boldsymbol{\sigma}^T \delta \mathbf{u}] \, dV = \int_{\partial \mathcal{B}} (\boldsymbol{\sigma}^T \delta \mathbf{u}) \cdot \mathbf{n} \, dA = \int_{\partial \mathcal{B}} \delta \mathbf{u} \cdot (\boldsymbol{\sigma} \mathbf{n}) \, dA = \int_{\partial \mathcal{B}_\sigma} \bar{\mathbf{t}} \cdot \delta \mathbf{u} \, dA \quad (5.20)$$

Da die Verzerrungen selbst und auch deren virtuelle Form symmetrisch sind, wird die virtuelle Arbeit geschrieben als:

$$\delta \Pi = \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \boldsymbol{\sigma} \, dV - \int_{\mathcal{B}} \delta \mathbf{u}^T \mathbf{b} \, dV - \int_{\partial \mathcal{B}_\sigma} \delta \mathbf{u}^T \bar{\mathbf{t}} \, dA = 0 \quad (5.21)$$

Die virtuelle Arbeit wird in Anteile der inneren und äußeren Arbeit unterteilt:

$$\delta \Pi := \delta \Pi_{int} - \delta \Pi_{ext} = 0 \quad (5.22)$$

Der Anteil der inneren Arbeit ergibt sich aus der Deformation des Körpers  $\mathcal{B}$ . Die äußere Arbeit ist der Anteil infolge der Volumen- und Oberflächenkräfte:

$$\delta \Pi_{int} = \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \boldsymbol{\sigma} \, dV \quad (5.23)$$

$$\delta \Pi_{ext} = \int_{\mathcal{B}} \delta \mathbf{u}^T \mathbf{b} \, dV + \int_{\partial \mathcal{B}_\sigma} \delta \mathbf{u}^T \bar{\mathbf{t}} \, dA \quad (5.24)$$

Für die Funktion des Nanogenerators soll eine Umwandlung von mechanischen Deformationen innerhalb des Substratmaterials an das darüberliegende Ferroelektrikum weitergeleitet werden. Hierfür wird das ferroelektrische Material in einem epitaktischen Verbund auf das Substratmaterial aufgebracht. Dieser epitaktische Verbund erzeugt einen Eigenspannungszustand im Inneren des Substratmaterials. Weitere mechanische Deformation in Form von periodischen Verzerrungen

werden zusätzlich in das Substratmaterial injiziert. Durch diese zusätzlich eingebrachten Verzerrungen wird eine Verformung der Ionengitter im Ferroelektrikum hervorgerufen.

Die Verzerrungen werden additiv in mechanische Verzerrungen  $\boldsymbol{\varepsilon}_M$  und Verzerrung aus dem Verbund und den eingepprägten Verzerrungen  $\boldsymbol{\varepsilon}_V$  aufgeteilt:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}_M + \boldsymbol{\varepsilon}_V \quad (5.25)$$

Gleichung (5.25) und (5.15) in die virtuelle Arbeit (5.21) eingesetzt, ergibt:

$$\begin{aligned} \delta\Pi = & \underbrace{\int_{\mathcal{B}} \delta\boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{C} \boldsymbol{\varepsilon} \, dV}_{\delta\Pi_{int}} \\ & - \underbrace{\int_{\mathcal{B}} \delta\boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{C} \boldsymbol{\varepsilon}_V \, dV + \int_{\mathcal{B}} \delta\mathbf{u}^T \mathbf{b} \, dV + \int_{\partial\mathcal{B}_\sigma} \delta\mathbf{u}^T \bar{\mathbf{t}} \, dA}_{\delta\Pi_{ext}} = 0 \end{aligned} \quad (5.26)$$

Allgemein ist die schwache Form die Grundlage für die FEM. Für nichtlineare Problemstellungen ist eine iterative Berechnung nötig, welche eine Linearisierung der Variationsformulierung erfordert.

Nichtlineare Anteile können nicht mehr analytisch gelöst werden und erfordern eine iterative Berechnung. Die Nichtlinearitäten können aus der Geometrie (nichtlineare Verzerrungen) oder aus nichtlinearen Materialeigenschaften (z.B. bei Plastizitäten) entstehen. Daher ist es notwendig, dass die schwache Form des Gleichgewichts linearisiert wird. Zum besseren Verständnis wird nachfolgend die Gâteaux-Ableitung, auch Richtungsableitung genannt, näher erläutert. Die Gâteaux-Ableitung wird mit einem voran gestellten  $\Delta$  symbolisiert.

Für eine vereinfachte Darstellung wird eine skalarwertige Funktion  $f(x)$  betrachtet, die die Grundvoraussetzung der Differenzierbarkeit erfüllt. Die Funktion  $f(x)$  wird mithilfe einer Taylorreihenentwicklung dargestellt und nach dem linearen Term abgebrochen. Die Stützstelle der Taylorreihenentwicklung wird mit  $\tilde{x}$  beschrieben:

$$f(\tilde{x} + \Delta x) = f(\tilde{x}) + f(\tilde{x})' \cdot \Delta x + R(\tilde{x}) \quad \text{mit:} \quad f(\tilde{x})' = \frac{\partial f(\tilde{x})}{\partial x} \quad (5.27)$$

Um den eingepprägten Verzerrungszustand aus dem epitaktischen Verbund darzustellen, werden die Verzerrungen im Substratmaterial additiv zerlegt, siehe Gleichung (5.25). Die linearen Verzerrungen folgen dem linearen Verzerrungsmaß  $\mathbf{G}$ . Mithilfe der Taylorreihenentwicklung wird die Funktion an der Stelle  $\tilde{x} + \Delta x$  durch die Stützstelle  $\tilde{x}$  und den Zuwachs  $\Delta x$  dargestellt. Die weiteren nichtlinearen Terme werden im Restglied  $R(\tilde{x})$  zusammengefasst. Im Weiteren wird der lineare

Term in Gleichung (5.27) mit  $L[\dots]$  als die Steigung oder Ableitung der Funktion  $f$  entlang der durch  $\Delta x$  charakterisierten Richtung dargestellt:

$$L[f(\tilde{x}), \Delta x] := f(\tilde{x}) + f(\tilde{x})' \cdot \Delta x = f(\tilde{x}) + \frac{\partial f(\tilde{x})}{\partial x} \cdot \Delta x \quad (5.28)$$

Die virtuelle Arbeit in Gleichung (5.21) setzt sich allerdings nicht aus skalarwertigen Funktionen zusammen. Daher wird die Richtungsableitung für die vektorwertige Funktion  $g(\mathbf{x})$  erläutert, wobei hierfür der Parameter  $\vartheta$  eingeführt wird:

$$\left. \frac{\partial}{\partial \vartheta} [g(\tilde{\mathbf{x}} + \vartheta \Delta \mathbf{x})] \right|_{\vartheta=0} \quad (5.29)$$

Analog zu der skalarwertigen Funktion liefert die Richtungsableitung eine Tangente im Raum mit der Richtung des Vektors  $\Delta \mathbf{x}$ . Dies wird mit dem Operator  $D[\dots]$  beschrieben. Mithilfe der Kettenregel folgt:

$$D[g(\tilde{\mathbf{x}})] \cdot \Delta \mathbf{x} = \left. \frac{\partial}{\partial \vartheta} [g(\tilde{\mathbf{x}} + \vartheta \Delta \mathbf{x})] \right|_{\vartheta=0} = \frac{\partial g(\tilde{\mathbf{x}})}{\partial \mathbf{x}} \cdot \Delta \mathbf{x} \quad (5.30)$$

Für die Anwendung der Gâteaux-Ableitung auf die schwache Form des Gleichgewichts für das Substratmaterial wird eine deformationsunabhängige Belastung angenommen. Somit ergibt sich die Richtungsableitung der Variation  $\delta \Pi$  aus Gleichung (5.26) nur aus der Linearisierung der inneren Arbeiten zu:

$$\Delta \delta[\Pi] = \delta \Pi + \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbb{C}_t \Delta \boldsymbol{\varepsilon} \, dV = 0 \quad (5.31)$$

Hier beschreibt  $\mathbb{C}_t$  die inkrementelle Materialtangente. Beim elastischen Substratmaterial bleibt sie unabhängig von den Verzerrungen und wird durch eine Konstante beschrieben. Unter Beachtung der Aufteilung der Verzerrungen, rein mechanisch oder durch Vorverzerrung, folgt für die Linearisierung:

$$\begin{aligned} \Delta \delta[\Pi] &= \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbb{C}_t \delta \boldsymbol{\varepsilon} \, dV - \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbb{C}_t \delta \boldsymbol{\varepsilon}_v \, dV - \int_{\mathcal{B}} \delta \mathbf{u}^T \mathbf{b} \, dV \\ &\quad - \int_{\partial \mathcal{B}_\sigma} \delta \mathbf{u}^T \bar{\mathbf{t}} \, dA + \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbb{C}_t \Delta \boldsymbol{\varepsilon} \, dV = 0 \end{aligned} \quad (5.32)$$

Die vorangegangene Linearisierung beschreibt einen allgemeinen Fall für materielle und geometrische Nichtlinearität. Das verwendete Substratmaterial ist materiell und geometrisch linear, daher werden die nichtlinearen Terme zu null und es verbleiben nur die linearen Anteile.

## 5.2 Das Ferroelektrikum und Elektrodenmaterial

Nachfolgend werden die Grundlagen für das ferroelektrische Material und die Elektroden erläutert.

Die Elektroden sind auf den Oberflächen des ferroelektrischen Materials angebracht. Sie fungieren als Sammelpunkte für die Oberflächenladung und Stromflussdichte und werden über die Randterme aus Gleichung (5.95) definiert.

Das Materialmodell für das Ferroelektrikum baut auf einem phänomenologischen Ansatz auf SU & LANDIS [80]. Unter dem Begriff der phänomenologischen Modellierung versteht man die Beschreibung von empirischen Beobachtungen mithilfe von Modellen, die zwar im Einklang mit den grundlegenden Theorien sind, aber nicht direkt aus ihnen abgeleitet werden. Sie ermöglichen einen einfachen Zugang zu der Modellierung von komplexen Verhalten, allerdings meist nur für einen gewissen Anwendungsbereich. Die Phasefeldmethode ist ein Ansatz zur Beschreibung von diffusen Interface Problemstellungen. Dieser Ansatz stellt eine Brücke zwischen atomistischen Berechnungen und phänomenologischen Modellierungsansätzen im größeren Maßstab dar. Oft wird dies auch als ein mesoskopischer Modellierungsansatz bezeichnet.

Die Konstitution des ferroelektrischen Materials baut auf der freien Helmholtz-Energie auf.

Im Folgenden wird zunächst der Ordnungsparameter des Phasefeldmodells für Ferroelektrika näher erläutert, anschließend wird die freie Helmholtz-Energie ausführlicher beschrieben. Es folgt eine Herleitung für die schwache Form des Gleichgewichts des Phasefeldmodells. Aufbauend auf der schwachen Form wird die FEM angewendet.

### 5.2.1 Der Ordnungsparameter

Zur Beschreibung der Phase selbst bzw. der Verteilung der Phasen wird eine Funktion des Ordnungsparameters eingeführt, die kontinuierlich in Zeit und Raum verteilt ist.

Die materielle Polarisation  $\mathbf{P}$  als Vektorgröße wird als Ordnungsparameter des ferroelektrischen Materials gewählt. Innerhalb einer Domäne ist dieser konstant und ändert sich rapide in einem schmalen Übergangsbereich an den Phasengrenzen. Ohne mechanische oder elektrische äußere Belastung steht die Polarisation innerhalb einer Domäne mit der spontanen Polarisation im Gleichgewicht. Die Ausrichtung der Kristallgitter bestimmt die Richtung der Polarisation innerhalb einer Domäne.

### 5.2.2 Freie Helmholtz-Energie

Die Gesamtenergie des Körpers  $\mathcal{B}$  hängt von den mechanischen Dehnungen  $\boldsymbol{\varepsilon}$ , der materiellen Polarisation  $\mathbf{P}$  und dem Gradienten  $\text{Grad } \mathbf{P}$  sowie der dielektrischen

Verschiebung  $\mathbf{D}$  ab. Die Gesamtenergie ist gegeben durch:

$$\Psi = \int_{\mathcal{B}} \psi(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}, \text{Grad } \mathbf{P}, \mathbf{D}) \, dV \quad (5.33)$$

Grafisch ist die freie Helmholtz-Energie in Abbildung 5.1 dargestellt. Für den genauen Aufbau der Energie und die Größe der Materialparameter wird auf die Angaben aus SU & LANDIS [80] und KONTOSOS & LANDIS [51, 52] verwiesen. Hierbei handelt es sich um genaue Angaben zum ferroelektrischen Bariumtitanat (BTO). In der freien Helmholtz-Energie werden die physikalischen Eigenschaften des ferroelektrischen Materials beschrieben, welche die Landau-Devonshire Theorie [25, 26] einhält.

Ausführlich wird die freie Helmholtz-Energie wie folgt aufgeführt:

$$\begin{aligned} \psi = & \frac{1}{2} a_{ijkl} P_{i,j} P_{k,l} + \frac{1}{2} \bar{a}_{ij} P_i P_j + \frac{1}{4} \bar{\bar{a}}_{ijkl} P_i P_j P_k P_l + \frac{1}{6} \bar{\bar{\bar{a}}}_{ijklmn} P_i P_j P_k P_l P_m P_n \\ & + \frac{1}{6} \bar{\bar{\bar{\bar{a}}}}_{ijklmnr} P_i P_j P_k P_l P_m P_n P_r P_s + b_{ijkl} \varepsilon_{ij} P_k P_l + \frac{1}{2} c_{ijkl} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl} \\ & + f_{ijklmn} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl} P_m P_n + g_{ijklmn} \varepsilon_{ij} P_k P_l P_m P_n + \frac{1}{2} \kappa_0 (D_i - P_i)(D_i - P_i) \end{aligned} \quad (5.34)$$

Zunächst wird die freie Helmholtz-Energiefunktion in zwei Teile unterteilt:

$$\psi(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}, \text{Grad } \mathbf{P}, \mathbf{D}) = \psi_m(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}, \text{Grad } \mathbf{P}) + \psi_f(\mathbf{P}, \mathbf{D}) \quad (5.35)$$

Hierbei beschreibt  $\psi_m$  die freie Energie des Materials und  $\psi_f$  die freie Energie des freien Raums. Letztere wird geschrieben als:

$$\psi_f(\mathbf{P}, \mathbf{D}) = \frac{1}{2\kappa_0} (\mathbf{D} - \mathbf{P}) \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{P}) \quad (5.36)$$

Die Permittivität des freien Raums beträgt  $\kappa_0 = 8.8854 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$ . Die materielle freie Helmholtz-Energie wird wie folgt weiter unterteilt:

$$\psi_m(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}, \text{Grad } \mathbf{P}, \mathbf{D}) = \psi_G(\text{Grad } \mathbf{P}) + \psi_L(\mathbf{P}) + \psi_{mech}(\boldsymbol{\varepsilon}) + \psi_c(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) \quad (5.37)$$

Der erste Term  $\psi_G(\text{Grad } \mathbf{P})$  der freien Energie bestraft große Gradienten der Polarisierung und gibt die Domänenwanddicke innerhalb des Modells wieder, dies wird auch als ‘‘Austauschenergie’’ oder ‘‘Strafterm’’ bezeichnet.

$$\psi_G(\text{Grad } \mathbf{P}) = \frac{1}{2} \text{Grad } \mathbf{P} : \mathbb{A} : \text{Grad } \mathbf{P} \quad (5.38)$$

Mithilfe des Tensors  $\mathbb{A}$ , welcher nur Bezug auf die Polarisationsgradienten hat, können unterschiedliche Arten der Domänenwände behandelt werden. Der Ten-

sor  $\mathbb{A}$  wird laut Literatur [80] aus Experimenten bestimmt. Eine übliche Gradientenenergie wird u.a. in LI ET AL. [59] und WANG ET AL. [87] genutzt:

$$\begin{aligned}\psi_G(P_{i,j}) &= \frac{1}{2}g_{11}(P_{1,1}^2 + P_{2,2}^2 + P_{3,3}^2) \\ &+ g_{12}(P_{1,1}P_{2,2} + P_{2,2}P_{3,3} + P_{1,1}P_{3,3}) \\ &+ \frac{1}{2}g_{44} \left[ (P_{1,2} + P_{2,1})^2 + (P_{2,3} + P_{3,2})^2 + (P_{1,3} + P_{3,1})^2 \right] \\ &+ \frac{1}{2}g'_{44} \left[ (P_{1,2} - P_{2,1})^2 + (P_{2,3} - P_{3,2})^2 + (P_{1,3} - P_{3,1})^2 \right]\end{aligned}\quad (5.39)$$

Mit den Beziehungen  $a_0 = 2g_{11} = g_{44}/2 = g'_{44}/2$  und  $g_{12} = 0$  kann der isotrope Sonderfall mit  $A_{ijkl} = a_0 \delta_{ij} \delta_{kl}$  erreicht werden:

$$\begin{aligned}\psi_G(\text{Grad } \mathbf{P}) &= \frac{1}{2}a_0(\text{Grad } \mathbf{P} : \text{Grad } \mathbf{P}) = \frac{1}{2}a_0\|\text{Grad } \mathbf{P}\|^2 \\ &= \frac{1}{2}a_0(P_{1,1}^2 + P_{2,2}^2 + P_{3,3}^2 + P_{1,2}^2 + P_{2,1}^2 + P_{1,3}^2 + P_{3,1}^2 + P_{2,3}^2 + P_{3,2}^2)\end{aligned}\quad (5.40)$$

Die folgenden vier Terme aus Gleichung (5.34) werden verwendet, um die Landau Energie als ein Polynom des Ordnungsparameters  $\mathbf{P}$  zu erstellen. Die Energielandschaft definiert Minima bei den sechs spontanen Polarisationszuständen der Elementarzelle. Abbildung 5.1 zeigt dies exemplarisch für ein eindimensionales Problem mit möglicher vertikaler Polarisationsausrichtung. Sie wird auch Brunnenenergie genannt:

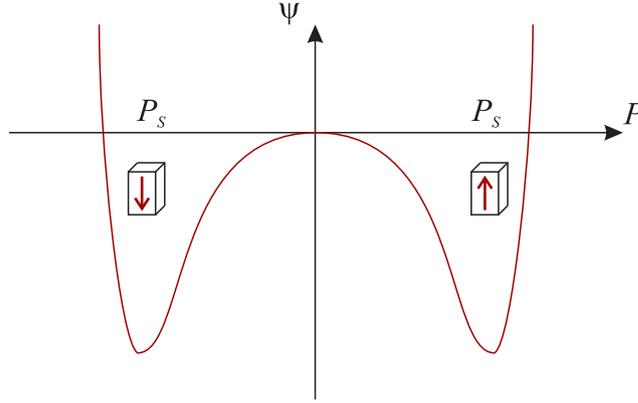
$$\begin{aligned}\psi_L(\mathbf{P}) &= \frac{a_1}{2}(P_1^2 + P_2^2 + P_3^2) + \frac{a_2}{4}(P_1^4 + P_2^4 + P_3^4) + \frac{a_3}{2}(P_1^2 P_2^2 + P_2^2 P_3^2 + P_1^2 P_3^2) \\ &+ \frac{a_4}{6}(P_1^6 + P_2^6 + P_3^6) + \frac{a_5}{4}(P_1^4 P_2^4 + P_2^4 P_3^4 + P_1^4 P_3^4) \\ &+ a_6 \left( P_1^4(P_2^2 + P_3^2) + P_2^4(P_1^2 + P_3^2) + P_3^4(P_1^2 + P_2^2) \right)\end{aligned}\quad (5.41)$$

Die rein mechanischen Anteile werden durch den mechanischen Energieanteil beschrieben:

$$\begin{aligned}\psi_{mech}(\boldsymbol{\varepsilon}) &= \frac{c_1}{2}(\varepsilon_{11}^2 + \varepsilon_{22}^2 + \varepsilon_{33}^2) + c_2(\varepsilon_{11}\varepsilon_{22} + \varepsilon_{11}\varepsilon_{33} + \varepsilon_{22}\varepsilon_{33}) \\ &+ \frac{c_3}{2}(\varepsilon_{12}^2 + \varepsilon_{21}^2 + \varepsilon_{13}^2 + \varepsilon_{31}^2 + \varepsilon_{23}^2 + \varepsilon_{32}^2)\end{aligned}\quad (5.42)$$

Um die spontane Dehnung des Materials zusammen mit den dielektrischen, elastischen und piezoelektrischen Eigenschaften in der Nähe des spontanen Zustands zu koppeln, wird der Kopplungsterm  $\psi_c$  benötigt. Der Kopplungsterm kann in drei Anteile zerlegt werden:

$$\psi_c(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) = \psi_{c1}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) + \psi_{c2}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) + \psi_{c3}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P})\quad (5.43)$$



**Abbildung 5.1:** Die Energieminima der freien Helmholtz-Energie von Bariumtitanat liegen unterhalb der Curie-Temperatur in der tetragonalen Phase bei den spontanen Polarisationszuständen, WOLDMAN & LANDIS [88].

Wobei die einzelnen Terme wie folgt lauten:

$$\begin{aligned} \psi_{c1}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) = & -\frac{b_1}{2}(\varepsilon_{11}P_1^2 + \varepsilon_{22}P_2^2 + \varepsilon_{33}P_3^2) \\ & + -\frac{b_2}{2}((\varepsilon_{22} + \varepsilon_{33})P_1^2 + (\varepsilon_{11} + \varepsilon_{33})P_2^2 + (\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22})P_3^2) \\ & + -b_3((\varepsilon_{12} + \varepsilon_{21})P_1P_2 + (\varepsilon_{13} + \varepsilon_{31})P_1P_3 + (\varepsilon_{23} + \varepsilon_{32})P_2P_3) \end{aligned} \quad (5.44)$$

$$\begin{aligned} \psi_{c2}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) = & P_1^2 \left( \frac{f_1}{2}\varepsilon_{11}^2 + \frac{f_2}{2}(\varepsilon_{22}^2 + \varepsilon_{33}^2) + f_3(\varepsilon_{11}\varepsilon_{22} + \varepsilon_{11}\varepsilon_{33}) + f_4\varepsilon_{22}\varepsilon_{33} \right. \\ & \left. + \frac{f_5}{2}(\varepsilon_{12}^2 + \varepsilon_{21}^2 + \varepsilon_{13}^2 + \varepsilon_{31}^2) + \frac{f_6}{2}(\varepsilon_{23}^2 + \varepsilon_{32}^2) \right) \\ & + P_2^2 \left( \frac{f_1}{2}\varepsilon_{22}^2 + \frac{f_2}{2}(\varepsilon_{11}^2 + \varepsilon_{33}^2) + f_3(\varepsilon_{11}\varepsilon_{22} + \varepsilon_{22}\varepsilon_{33}) + f_4\varepsilon_{11}\varepsilon_{33} \right. \\ & \left. + \frac{f_5}{2}(\varepsilon_{12}^2 + \varepsilon_{21}^2 + \varepsilon_{23}^2 + \varepsilon_{32}^2) + \frac{f_6}{2}(\varepsilon_{13}^2 + \varepsilon_{31}^2) \right) \\ & + P_3^2 \left( \frac{f_1}{2}\varepsilon_{33}^2 + \frac{f_2}{2}(\varepsilon_{11}^2 + \varepsilon_{22}^2) + f_3(\varepsilon_{11}\varepsilon_{33} + \varepsilon_{22}\varepsilon_{33}) + f_4\varepsilon_{11}\varepsilon_{22} \right. \\ & \left. + \frac{f_5}{2}(\varepsilon_{13}^2 + \varepsilon_{31}^2 + \varepsilon_{23}^2 + \varepsilon_{32}^2) + \frac{f_6}{2}(\varepsilon_{12}^2 + \varepsilon_{21}^2) \right) \end{aligned} \quad (5.45)$$

$$\begin{aligned} \psi_{c3}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) = & P_1^4 \left( \frac{g_1}{4}\varepsilon_{11} + \frac{g_2}{4}(\varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}) \right) + \frac{g_3}{4}(\varepsilon_{12} + \varepsilon_{21})(P_1P_2^3 + P_2P_1^3) \\ & + P_2^4 \left( \frac{g_1}{4}\varepsilon_{22} + \frac{g_2}{4}(\varepsilon_{11} + \varepsilon_{33}) \right) + \frac{g_3}{4}(\varepsilon_{13} + \varepsilon_{31})(P_1P_3^3 + P_3P_1^3) \\ & + P_3^4 \left( \frac{g_1}{4}\varepsilon_{33} + \frac{g_2}{4}(\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22}) \right) + \frac{g_3}{4}(\varepsilon_{23} + \varepsilon_{32})(P_2P_3^3 + P_3P_2^3) \end{aligned} \quad (5.46)$$

Die Materialkonstanten  $a_i$ ,  $b_i$ ,  $c_i$ ,  $f_i$  und  $g_i$  sind in SU & LANDIS [80] angegeben. Hierfür wurden experimentelle Ergebnisse hochqualitativer Einkristalle aus Bariumtitanat mit homogener elektrischer Polarisation ausgewertet und aus LI ET AL. [59] angepasst. Werte für die spontane Polarisation und spontane Dehnung einer ferroelektrischen Domäne sind gegeben als:

$$\begin{aligned} P_3^s &= 0.26 \text{ C/m}^2, \quad \varepsilon_{33}^s = 0.0082 \\ P_1^s &= P_2^s = 0, \quad \varepsilon_{11}^s = \varepsilon_{22}^s = -0.0027 \\ \varepsilon_{12}^s &= \varepsilon_{13}^s = \varepsilon_{23}^s = 0 \end{aligned} \quad (5.47)$$

Die elastischen Eigenschaften für diesen Zustand sind:

$$\begin{aligned} s_{11}^E &= 8.01 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}, & s_{33}^E &= 12.8 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}, \\ s_{12}^E &= -1.57 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}, & s_{44}^E &= 17.8 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}, \\ s_{13}^E &= -4.6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}, & s_{66}^E &= 7.91 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N} \end{aligned} \quad (5.48)$$

Die piezoelektrischen und dielektrischen Eigenschaften sind gegeben als:

$$\begin{aligned} d_{33} &= 106 \cdot 10^{-12} \text{ C/N}, \\ d_{31} &= -50 \cdot 10^{-12} \text{ C/N}, \\ d_{15} &= 580 \cdot 10^{-12} \text{ C/N}, \\ \kappa_{11}^\sigma &= 4100 \kappa_0 = 36.3 \cdot 10^{-9} \text{ F/m}, \\ \kappa_{33}^\sigma &= 160 \kappa_0 = 1.42 \cdot 10^{-9} \text{ F/m} \end{aligned} \quad (5.49)$$

Hier ist  $\kappa_0$  die Permittivität des freien Raums. Zur Bestimmung der Parameter  $c_i$  reichen die elastischen Eigenschaften der tetragonalen Phase nicht aus. In BERLINCOURT [11] werden die rein mechanischen Eigenschaften der kubischen Phase bei 150°C beschrieben. Die Brunnenenergie wird durch die Parameter  $a_1$  und  $a_3$  beschrieben. Der Parameter  $a_5$  bestimmt die Energiebarriere zwischen den einzelnen Polarisationszuständen der Brunnenenergie und wird in ZHANG & BHATTACHARYA [93] ausführlich beschrieben. Der Parameter  $a_0$  definiert die Dicke der Domänenwand.

Die Parameter für die materielle freie Energie  $\psi_m$  sind in Tabelle 5.1 aufgelistet.

$a_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{ V m}^3 / \text{C}$	$a_1 = -0.6683 E_c / P_0$	$a_2 = -3.8056 E_c / P_0^3$
$a_3 = 0.7892 E_c / P_0^3$	$a_4 = 12.4421 E_c / P_0^5$	$a_5 = 368 E_c / P_0^7$
$a_6 = 0.1342 E_c / P_0^5$		
$b_1 = 2.5414 E_c / \varepsilon_c P_0$	$b_2 = 1.7427 E_c / \varepsilon_c P_0$	$b_3 = 0.3995 E_c / \varepsilon_c P_0$
$c_1 = 2.050 \sigma_0 / \varepsilon_c$	$c_2 = 0.9717 \sigma_0 / \varepsilon_c$	$c_3 = 2.5595 \sigma_0 / \varepsilon_c$
$f_1 = 0.6636 E_c / \varepsilon_c^2 P_0$	$f_2 = 0.8413 E_c / \varepsilon_c^2 P_0$	$f_3 = -0.1706 E_c / \varepsilon_c^2 P_0$
$f_4 = 0.6873 E_c / \varepsilon_c^2 P_0$	$f_5 = 0.2133 E_c / \varepsilon_c^2 P_0$	$f_6 = 0.4266 E_c / \varepsilon_c^2 P_0$
$g_1 = -3.6615 E_c / \varepsilon_c^2 P_0^3$	$g_2 = 6.2742 E_c / \varepsilon_c^2 P_0^3$	$g_3 = -1.2164 E_c / \varepsilon_c^2 P_0^3$

**Tabelle 5.1:** Materialparameter der materiellen freien Energie  $\psi_m$  für die Konstanten  $a_i$ ,  $b_i$ ,  $c_i$ ,  $f_i$  und  $g_i$ , nach SU & LANDIS [80].

Die Materialparameter sind von der spontanen Polarisation  $P_0 = 0.26 \text{ C/m}^2$ , der spontanen Dehnung  $\varepsilon_c = 0.82\%$ , der Koerzitivfeldstärke  $E_c = 2.1825 \cdot 10^7 \text{ V/m}$  und  $\sigma_0 = E_c P_0 / \varepsilon_c = 692 \cdot 10^6 \text{ N/m}^2$  abhängig.

### 5.2.3 Schwache Form mit phänomenologischen Ansatz

Die vorliegende Arbeit baut auf dem Modell von SU & LANDIS [80] auf. Es verbindet die Kinematik und die elektrostatischen Grundgleichungen miteinander und kann nach der anschließenden Linearisierung mithilfe der FEM numerisch gelöst werden. In [80] wurde bereits eine Trennung zwischen den Gleichgewichtsbedingungen und der Konstitution des ferroelektrischen Materials durch Einführung einer Bilanzierung von Mikrokräften durchgeführt. Diese Bilanzierung der Mikrokräfte steht im thermodynamischen Zusammenhang mit dem Ordnungsparameter und wird im Folgenden näher erläutert.

Vorab wird die zeitabhängige Ginzburg-Landau Gleichung für den Ordnungsparameter  $\mathbf{P}$  hergeleitet. Dies ist eine Grundgleichung, welche die räumliche und zeitliche Anordnung der Domänen bestimmt.

Die folgende Herleitung erfolgt in Indexnotation, angelehnt an die Darstellung von SU & LANDIS [80].

Die freie Helmholtz-Energie des hier genutzten Phasenfeldmodells hängt einerseits von dem Ordnungsparameter  $P_i$ , als auch von seinem Gradienten ab. Der Ordnungsparameter  $P_i$  bestimmt in diesem Modell die Phase. Da der Ordnungsparameter als unabhängige Variable gewählt ist, werden zusätzlich Mikrokräfte postuliert, die arbeitskonjugiert zum Ordnungsparameter auftreten. Diese Annahme führt zu einem zweistufigen Mikrospannungstensor  $\xi_{ij}$ , der thermodynamisch zur Leistungsdichte konjugiert ist. Der Mikrospannungstensor beinhaltet die Änderungsrate des Ordnungsparameters. Zusätzlich wird ein interner Mikro-Kräfte

Vektor  $\pi_i$  definiert, sodass  $\pi_i \dot{P}_i$  die Leistungsdichte ist, die das Material intern verbraucht, z.B. in der Anordnung der Atome innerhalb der Einheitszellen. Diese Mikrokräft wird als Dissipation im Material berücksichtigt. Weiter wird ein externer Mikrokräftvektor  $\gamma_i$  eingeführt, sodass  $\gamma_i \dot{P}_i$  eine Leistungsdichte ist, die durch externe Quellen auf das Material aufgewendet wird. Somit ergibt sich die integrale Bilanzierung dieser Mikrokräfte zur Differentialgleichung:

$$\int_{\partial \mathcal{B}} \xi_{ij} n_i dA + \int_{\mathcal{B}} \pi_i dV + \int_{\mathcal{B}} \gamma_i dV = 0 \quad (5.50)$$

Hieraus folgt mithilfe des Divergenztheorems die lokale Mikrokräftbilanz zu:

$$\xi_{ij,i} + \pi_i + \gamma_i = 0 \quad \text{in } V \quad (5.51)$$

Für isothermische Prozesse unterhalb der Curie-Temperatur wird das zweite thermische Gesetz als Clausius-Duhem Ungleichung geschrieben:

$$\begin{aligned} \int_{\mathcal{B}} \dot{\psi} dV + \frac{d}{dt} \int_{\mathcal{B}} \frac{1}{2} \rho \dot{u}_i \dot{u}_i dV \\ \leq \int_{\mathcal{B}} (b_i \dot{u}_i + \phi \dot{q} + \gamma_i \dot{P}_i) dV + \int_{\partial \mathcal{B}} (t_i \dot{u}_i + \phi \dot{\omega} + \xi_{ij} n_i \dot{P}_i) dA \end{aligned} \quad (5.52)$$

Die linke Seite ist die Summe der Rate aus gespeicherter und kinetischer Energie im Material und die rechte Seite repräsentiert die von externen Quellen auf den Körper ausgeübte Kräfte.

Mit der Zeitableitung der freien Helmholtz-Energie, den fundamentalen Grundgleichungen (4.36) und unter Verwendung des Divergenztheorems, wird die Clausius-Duhem Ungleichung geschrieben als:

$$\begin{aligned} \int_{\mathcal{B}} \frac{\partial \psi}{\partial \varepsilon_{ij}} \dot{\varepsilon}_{ij} + \frac{\partial \psi}{\partial D_i} \dot{D}_i + \frac{\partial \psi}{\partial P_i} \dot{P}_i + \frac{\partial \psi}{\partial P_{i,j}} \dot{P}_{i,j} + \frac{\partial \psi}{\partial \dot{P}_i} \ddot{P}_i dV \\ \leq \int_{\mathcal{B}} \sigma_{ij} \dot{\varepsilon}_{ij} + E_i \dot{D}_i + \xi_{ij} \dot{P}_{i,j} - \pi_i \dot{P}_i dV \end{aligned} \quad (5.53)$$

Da die innere Mikrokräft  $\pi_i$  von der zeitlichen Rate der Polarisation  $\dot{P}_i$  abhängen darf, müssen auch alle thermodynamischen Kräfte potentiell eine solche Abhängigkeit haben. Es wird davon ausgegangen, dass für einen gegebenen thermodynamischen Zustand beliebige Werte von  $\dot{\varepsilon}_{ij}$ ,  $\dot{D}_i$ ,  $\dot{P}_i$ ,  $\dot{P}_{i,j}$  und  $\ddot{P}_i$  bei entsprechender Steuerung der externen Quelle  $b_i$ ,  $q$  und  $\gamma_i$  zulässig sind. Somit folgt aus der Betrachtung der Dissipationsungleichung:

$$\frac{\partial \psi}{\partial \dot{P}_i} = 0 \rightarrow \psi = \psi(\varepsilon_{ij}, D_i, P_i, P_{i,j}) \quad (5.54)$$

$$\sigma_{ij} := \frac{\partial \psi}{\partial \varepsilon_{ij}}, \quad E_i := \frac{\partial \psi}{\partial D_i}, \quad \text{und} \quad \xi_{ij} := \frac{\partial \psi}{\partial P_{i,j}} \quad (5.55)$$

Zusätzlich wird  $\eta_i = (\partial\psi/\partial P_i)$  eingeführt. Der interne Kraftvektor  $\pi_i$  muss folgendes bedienen:

$$(\pi_i + \eta_i)\dot{P}_i \leq 0 \rightarrow \pi_i = -\eta_i - \beta_{ij}\dot{P}_j \quad \text{mit} \quad (5.56)$$

$$\beta_{ij} = \beta_{ij}(\varepsilon_{kl}, D_k, P_k, P_{k,l}, \dot{P}_k) \quad \text{positiv definit} \quad (5.57)$$

Hier wird  $\beta_{ij}$  als der inverse Mobilitätstensor bezeichnet. Er beschreibt die Mobilität der Polarisationsdomänenwand und wird in dieser Arbeit angenommen als:  $\beta_{ij} = \beta\delta_{ij}$ , mit der Einheit:  $[\frac{CVs}{m^3}]$ . Der Faktor  $\beta$  wird mit 1 angesetzt.

Es lässt sich zeigen, dass der postulierte Satz von Mikrokräften in Gleichung (5.50) gerechtfertigt ist, da ihre Existenz die Form der Phasenfeldgleichungen enthalten. Zu beachten ist, dass die freie Energie beides beinhaltet; einerseits die Energie, die im Material gespeichert ist und andererseits die Energie im freien Raum, welche vom Material umgeben ist. Letztendlich folgt mit der Annahme  $\gamma_i = 0$  und durch Substitution der Größen  $\xi_{ij}$  und  $\eta_i$  die generalisiert Form der Ginzburg-Landau Gleichung:

$$\left( \frac{\partial\psi}{\partial P_{i,j}} \right)_{,j} - \frac{\partial\psi}{\partial P_i} = \beta_{ij}\dot{P}_j \quad (5.58)$$

Mithilfe der Ginzburg-Landau Gleichung wird die räumliche und zeitliche Evolution der Polarisation als Ordnungsparameter beschrieben.

Die Grundlage für die schwache Form des Gleichgewichts im Phasenfeld Modell sind die bereits hergeleiteten Differentialgleichung:

$$\text{Mechanische Impulsbilanz:} \quad \text{Div} [\boldsymbol{\sigma}] + \mathbf{b} = \mathbf{0} \quad (5.59)$$

$$\text{erw. Ginzburg-Landau Gleichung} \quad \text{Div} \left[ \frac{\partial\psi}{\partial \text{Grad} [\mathbf{P}]} \right] - \frac{\partial\psi}{\partial \mathbf{P}} = \beta \dot{\mathbf{P}} \quad (5.60)$$

$$\text{Gauß'sches Gesetz:} \quad \text{Div} [\mathbf{D}] - \rho = 0 \quad (5.61)$$

Zusätzlich zu den mechanischen Randbedingungen sind für das Ferroelektrikum elektrische Randbedingungen zu erfüllen. Im Folgenden sind die Randbedingungen für das Modell aufgelistet:

$$\mathbf{u} = \bar{\mathbf{u}} \quad \text{auf} \quad \partial\mathcal{B}_u \quad (5.62)$$

$$\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = \bar{\mathbf{t}} \quad \text{auf} \quad \partial\mathcal{B}_\sigma \quad (5.63)$$

$$\mathbf{P} = \bar{\mathbf{P}} \quad \text{auf} \quad \partial\mathcal{B}_P \quad (5.64)$$

$$\boldsymbol{\xi} \cdot \mathbf{n} = \mathbf{0} \quad \text{auf} \quad \partial\mathcal{B}_\xi \quad (5.65)$$

$$\phi = \bar{\phi} \quad \text{auf} \quad \partial\mathcal{B}_\phi \quad (5.66)$$

$$\mathbf{D} \cdot \mathbf{n} = \bar{\omega} \quad \text{auf} \quad \partial\mathcal{B}_\omega \quad (5.67)$$

Im Hinblick auf die Finite Elemente Formulierung ist es sinnvoll die Anzahl der Knotengrößen so gering wie möglich zu halten. In dieser Arbeit werden die mechanischen Verschiebungen  $\mathbf{u}$ , die elektrische Polarisation  $\mathbf{P}$  und das elektrische Potential  $\phi$  als Knotengrößen gewählt.

Die konstitutiven Gleichungen müssen von den mechanischen Verzerrungen  $\boldsymbol{\varepsilon}$ , der elektrischen Polarisation  $\mathbf{P}$  und ihrem Gradienten  $\text{Grad}[\mathbf{P}]$  sowie dem elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  abhängen. Dies wird erreicht, wenn die Legendre Transformation auf die freie Helmholtz-Energiefunktion angewendet wird. Man erhält die Enthalpie Gleichung:

$$\begin{aligned}
h(\varepsilon_{ij}, P_i, P_{i,j}, E_i) &= \psi - E_i D_i \\
&= \frac{1}{2} a_{ijkl} P_{i,j} P_{k,l} + \frac{1}{2} a_{ij}^1 P_i P_j + \frac{1}{4} a_{ijkl}^2 P_i P_j P_k P_l + \frac{1}{6} a_{ijklmn}^3 P_i P_j P_k P_l P_m P_n \\
&+ \frac{1}{6} a_{ijklmnr}^4 P_i P_j P_k P_l P_m P_n P_r P_s + b_{ijkl} \varepsilon_{ij} P_k P_l + \frac{1}{2} c_{ijkl} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl} \\
&+ f_{ijklmn} \varepsilon_{ij} \varepsilon_{kl} P_m P_n + g_{ijklmn} \varepsilon_{ij} P_k P_l P_m P_n + \frac{1}{2} \kappa_0 E_i E_i - E_i P_i \quad (5.68)
\end{aligned}$$

Die Spannungen  $\sigma_{ij}$ , dielektrischen Verschiebungen  $D_i$  und Mikrokräfte,  $\xi_{ij}$  und  $\eta_i$ , werden abgeleitet als:

$$\sigma_{ij} = \frac{\partial h}{\partial \varepsilon_{ij}} \quad , \quad D_i = -\frac{\partial h}{\partial E_i} \quad , \quad \xi_{ij} = \frac{\partial h}{\partial P_{i,j}} \quad \text{und} \quad \eta_i = \frac{\partial h}{\partial P_i} \quad (5.69)$$

Unter Verwendung der Beziehungen (5.69) in die Grundgleichungen (5.59)-(5.61) folgt:

$$\text{Div} \left[ \frac{\partial h}{\partial \varepsilon_{ij}} \right] + b_i = 0 \quad (5.70)$$

$$\text{Div} \left[ \frac{\partial h}{\partial P_{i,j}} \right] - \frac{\partial h}{\partial P_i} - \beta \dot{P}_i = 0 \quad (5.71)$$

$$-\text{Div} \left[ \frac{\partial h}{\partial E_i} \right] - \rho = 0 \quad (5.72)$$

Eine Variation mit entsprechenden Testfunktionen sowie Integration über das Gebiet liefert:

$$\begin{aligned}
\int_{\mathcal{B}} \left[ \left( \text{Div} \left[ \frac{\partial h}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}} \right] + \mathbf{b}_i \right) \cdot \delta \mathbf{u}_i + \left( \text{Div} \left[ \frac{\partial h}{\partial P_{i,j}} \right] - \frac{\partial h}{\partial P_i} - \beta \dot{P}_i \right) \cdot \delta P_i \right. \\
\left. - \left( \text{Div} \left[ \frac{\partial h}{\partial E_i} \right] + \rho \right) \cdot \delta \phi \right] dV = 0 \quad (5.73)
\end{aligned}$$

Da für  $\boldsymbol{\varepsilon}$  und  $\delta \boldsymbol{\varepsilon}$  eine Symmetrie vorliegt, können die Divergenzterme in Gleichung

chung (5.73) mithilfe der Produktregel ausformuliert werden:

$$\begin{aligned} & \int_{\mathcal{B}} \left[ b_i \delta u_i - \frac{\partial h}{\partial \varepsilon_{ij}} \delta \varepsilon_{ij} - \beta_{ij} \dot{P}_j \delta P_i - \frac{\partial h}{\partial P_i} \delta P_i - \frac{\partial h}{\partial P_{i,j}} \delta P_{i,j} - \frac{\partial h}{\partial E_i} \delta E_i - \rho \delta \phi \right] dV \\ &= \int_{\partial \mathcal{B}} \left[ - \left( \frac{\partial h}{\partial \varepsilon_{ij}} \delta u_i \right)_{,j} - \left( \frac{\partial h}{\partial P_{i,j}} \delta P_i \right)_{,j} - \left( \frac{\partial h}{\partial E_i} \delta \phi \right)_{,i} \right] dA \end{aligned} \quad (5.74)$$

Die Anwendung des Gauß'schen Integralsatzes auf Gleichung (5.74) ergibt:

$$\begin{aligned} & \int_{\mathcal{B}} b_i \delta u_i - \frac{\partial h}{\partial \varepsilon_{ij}} \delta \varepsilon_{ij} - \beta_{ij} \dot{P}_j \delta P_i - \frac{\partial h}{\partial P_i} \delta P_i - \frac{\partial h}{\partial P_{i,j}} \delta P_{i,j} - \frac{\partial h}{\partial E_i} \delta E_i - \rho \delta \phi dV \\ &= \int_{\partial \mathcal{B}} - (\sigma_{ij} \delta u_i) n_j - (\xi_{ij} \delta P_i) n_j - (D_i \delta \phi) n_j dA \end{aligned} \quad (5.75)$$

Nach Einarbeitung der Randbedingungen  $\bar{\omega} = \mathbf{n} \cdot \mathbf{D}$ ,  $\bar{\mathbf{t}} = \mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma}$  und  $\mathbf{0} = \mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\xi}$  wird die schwache Form für das ferroelektrische Material geschrieben als:

$$\begin{aligned} \delta \Pi := & \int_{\mathcal{B}} \sigma_{ij} \delta \varepsilon_{ij} + \eta_i \delta P_i + \xi_{ij} \delta P_{i,j} + \beta_{ij} \dot{P}_j \delta P_i - D_i \delta E_i dV \\ & + \int_{\mathcal{B}} -b_i \delta u_i + \rho \delta \phi dV + \int_{\partial \mathcal{B}} -\bar{t}_i \delta u_i + \bar{\omega} \delta \phi dA \end{aligned} \quad (5.76)$$

Die bisher vorgestellte schwache Form beruht auf der Annahme eines idealen Ferroelektrikums, das keinerlei Ladungstransport zulässt. Um die Leckstromformalismen zu berücksichtigen, wird die Ladungserhaltungsgleichung und deren zugehörigen Randbedingungen in die schwache Form in Gleichung (5.76) eingearbeitet:

$$\text{Div} [\dot{\mathbf{D}} + \mathbf{J}] = 0 \quad \text{in } \mathcal{B}, \quad \text{mit } \mathbf{J} \cdot \mathbf{n} = \bar{v} \quad \text{auf } \partial \mathcal{B}_v \quad (5.77)$$

In der Gleichung der Ladungserhaltung ist eine Zeitableitung der dielektrischen Verschiebung enthalten, die über einen Differenzenquotienten aufgelöst wird:

$$\text{Div} [\mathbf{D}^{t+\Delta t} - \mathbf{D}^t + \mathbf{J} \Delta t] = 0 \quad \text{mit } \dot{\mathbf{D}} = \frac{\mathbf{D}^{t+\Delta t} - \mathbf{D}^t}{\Delta t} \quad (5.78)$$

Mit dem Differenzenquotienten aus Gleichung (5.78) wird Gleichung (5.76) zu:

$$\begin{aligned} \delta \Pi := & \int_{\mathcal{B}} \sigma_{ij} \delta \varepsilon_{ij} + \eta_i \delta P_i + \xi_{ij} \delta P_{i,j} + \beta_{ij} \dot{P}_j \delta P_i - (D_i^{t+\Delta t} - D_i^t + J_i \Delta t) \delta E_i dV \\ & + \int_{\mathcal{B}} -b_i \delta u_i + \rho \delta \phi dV + \int_{\partial \mathcal{B}} -\bar{t}_i \delta u_i + (D_i^{t+\Delta t} - D_i^t + J_i \cdot \Delta t) \cdot n_i \delta E_i dA \end{aligned} \quad (5.79)$$

#### 5.2.4 Linearisierung mit phänomenologischen Ansatz

Für die Umsetzung der FEM wird die schwache Form in Gleichung (5.76) linearisiert. Zur Übersichtlichkeit wird hier die Tensornotation statt der Indexnotation

verwendet. Es werden konservative Lasten vorausgesetzt, daher müssen nur die inneren Arbeiten linearisiert werden. Zusätzlich zu den Linearisierungen der rein mechanischen Terme müssen auch Linearisierungen bezüglich der Polarisation und dem elektrischen Potential ausgeführt werden. Durch die Linearisierungen von  $\boldsymbol{\sigma}$ ,  $\boldsymbol{\eta}$ ,  $\mathbf{D}$  und  $\boldsymbol{\xi}$  werden Materialtensoren  $\mathbb{C}^{\alpha\beta}$  als partielle Ableitungen bezüglich der Feldgrößen  $\boldsymbol{\varepsilon}$ ,  $\mathbf{P}$  und  $\mathbf{E}$  eingeführt. Mit Bezug auf die eingeführte Gâteaux-Ableitung in Abschnitt 5.1 werden nachfolgend die jeweiligen Linearisierungen der Spannungen aufgeführt:

$$\text{Lin}_u[\boldsymbol{\sigma}] = \tilde{\boldsymbol{\sigma}} + \mathbb{C}^{uu}(\mathbf{P}) : \Delta\boldsymbol{\varepsilon}, \quad \mathbb{C}^{uu}(\mathbf{P}) = \frac{\partial\boldsymbol{\sigma}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}} \quad (5.80)$$

$$\text{Lin}_P[\boldsymbol{\sigma}] = \tilde{\boldsymbol{\sigma}} + \mathbb{C}^{uP}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) \cdot \Delta\mathbf{P}, \quad \mathbb{C}^{uP}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) = \frac{\partial\boldsymbol{\sigma}}{\partial\mathbf{P}} \quad (5.81)$$

$$\text{Lin}_\phi[\boldsymbol{\sigma}] = \tilde{\boldsymbol{\sigma}} + \mathbb{C}^{u\phi} \cdot \Delta\mathbf{E}, \quad \mathbb{C}^{u\phi} = \frac{\partial\boldsymbol{\sigma}}{\partial\mathbf{E}} \quad (5.82)$$

Die Linearisierung von  $\Delta\mathbf{E}$  mit  $\mathbf{E} = -\text{Grad}[\phi]$  kann geschrieben werden als:

$$\Delta\mathbf{E} = -\text{Grad} \Delta\phi \quad (5.83)$$

Weiter sind die Linearisierungen den Mikrokräfte  $\boldsymbol{\eta}$  bezüglich der Größen  $\mathbf{u}$ ,  $\mathbf{P}$  und  $\phi$  gegeben:

$$\Delta_u[\boldsymbol{\eta}] = \tilde{\boldsymbol{\eta}} + \mathbb{C}^{Pu}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) : \Delta\boldsymbol{\varepsilon}, \quad \mathbb{C}^{Pu}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) = \frac{\partial\boldsymbol{\eta}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}} \quad (5.84)$$

$$\Delta_P[\boldsymbol{\eta}] = \tilde{\boldsymbol{\eta}} + \mathbb{C}^{PP}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) \cdot \Delta\mathbf{P}, \quad \mathbb{C}^{PP}(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{P}) = \frac{\partial\boldsymbol{\eta}}{\partial\mathbf{P}} \quad (5.85)$$

$$\Delta_\phi[\boldsymbol{\eta}] = \tilde{\boldsymbol{\eta}} + \mathbb{C}^{P\phi} \cdot \Delta\mathbf{E}, \quad \mathbb{C}^{P\phi} = \frac{\partial\boldsymbol{\eta}}{\partial\mathbf{E}} \quad (5.86)$$

Zusätzlich müssen die dielektrischen Verschiebungen linearisiert werden:

$$\Delta_u[\mathbf{D}] = \tilde{\mathbf{D}} + \mathbb{C}^{\phi u} : \Delta\boldsymbol{\varepsilon}, \quad \mathbb{C}^{\phi u} = \frac{\partial\mathbf{D}}{\partial\boldsymbol{\varepsilon}} \quad (5.87)$$

$$\Delta_P[\mathbf{D}] = \tilde{\mathbf{D}} + \mathbb{C}^{\phi P} \cdot \Delta\mathbf{P}, \quad \mathbb{C}^{\phi P} = \frac{\partial\mathbf{D}}{\partial\mathbf{P}} \quad (5.88)$$

$$\Delta_\phi[\mathbf{D}] = \tilde{\mathbf{D}} + \mathbb{C}^{\phi\phi} \cdot \Delta\mathbf{E}, \quad \mathbb{C}^{\phi\phi} = \frac{\partial\mathbf{D}}{\partial\mathbf{E}} \quad (5.89)$$

Bei der Berücksichtigung der Leitungsmechanismen werden auch diese linearisiert. Da die Ladungsdichte  $\mathbf{J}$  nur vom elektrischen Potential abhängig ist, ist es ausreichend nur nach dieser Größe zu linearisieren, da nach den Verzerrungen oder der Polarisation linearisierte Terme null ergeben. Die Erweiterung um die Leckstrommechanismen führt lediglich zu einem additiven Eintrag auf  $\mathbb{C}^{\phi\phi}$  mit dem Wert von  $\mathbb{C}_{LC}^{\phi\phi}$ :

$$\Delta_\phi[\mathbf{J}] = \tilde{\mathbf{J}} + \mathbb{C}_{LC}^{\phi\phi} \cdot \Delta\mathbf{E}, \quad \mathbb{C}_{LC}^{\phi\phi} = \frac{\partial\mathbf{J}}{\partial\mathbf{E}} \quad (5.90)$$

Für den zusätzlich im phänomenologischen Materialmodell eingeführten Mikrospannungstensor  $\boldsymbol{\xi}$  wird ebenfalls eine Linearisierung benötigt. Da der Spannungstensor vom Ordnungsparameter  $\mathbf{P}$  abhängt, ergibt die Linearisierung:

$$\Delta_P[\boldsymbol{\xi}] = \tilde{\boldsymbol{\xi}} + \mathbb{C}^{\nabla P} : \text{Grad}[\Delta \mathbf{P}], \quad \mathbb{C}^{\nabla P} = \frac{\partial \boldsymbol{\xi}}{\partial \text{Grad}[\mathbf{P}]} \quad (5.91)$$

Für eine genauere Erläuterung des Anteils, der jeweiligen Leitungsmechanismen hinsichtlich der Linearisierung wird auf Anhang C verwiesen.

Da der zeitlich veränderliche Term  $\beta \dot{\mathbf{P}}$  bereits linear von  $\mathbf{P}$  abhängt, ist dessen Linearisierung:

$$\Delta_P[\beta \dot{\mathbf{P}}] = \beta \tilde{\dot{\mathbf{P}}} + \beta \cdot \Delta \dot{\mathbf{P}} \quad (5.92)$$

Bedingt durch die nichtlinearen Eigenschaften der elektrischen Enthalpie sind die Tensoren  $\mathbb{C}^{uu}$ ,  $\mathbb{C}^{Pu}$ ,  $\mathbb{C}^{uP}$  und  $\mathbb{C}^{PP}$  Funktionen von  $\boldsymbol{\varepsilon}$  und  $\mathbf{P}$ . Weiterhin gilt:

$$\mathbb{C}^{Pu} = (\mathbb{C}^{uP})^T, \quad \mathbb{C}^{P\phi} = (\mathbb{C}^{\phi P})^T, \quad \mathbb{C}^{u\phi} = (\mathbb{C}^{\phi u})^T = \mathbf{0} \quad (5.93)$$

Für das Inkrement  $\Delta \Pi$  der linearisierten schwachen Form ergibt sich somit:

$$\begin{aligned} \Delta \Pi &= \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon} : \mathbb{C}^{uu} : \Delta \boldsymbol{\varepsilon} + \delta \boldsymbol{\varepsilon} : \mathbb{C}^{uP} \cdot \Delta \mathbf{P} \\ &\quad + \delta \mathbf{P} \cdot \mathbb{C}^{Pu} : \Delta \boldsymbol{\varepsilon} + \delta \mathbf{P} \cdot \mathbb{C}^{PP} \cdot \Delta \mathbf{P} + \delta \mathbf{P} \cdot \mathbb{C}^{P\phi} \cdot \Delta \mathbf{E} \\ &\quad + \delta \mathbf{E} \cdot \mathbb{C}^{\phi P} \cdot \Delta \mathbf{P} - \delta \mathbf{E} \cdot (\mathbb{C}^{\phi\phi} + \mathbb{C}_{LC}^{\phi\phi}) \cdot \Delta \mathbf{E} \\ &\quad + \text{Grad}[\delta \mathbf{P}] : \mathbb{C}^{\nabla P} : \text{Grad}[\Delta \mathbf{P}] \\ &\quad + \beta \cdot \Delta \dot{\mathbf{P}} \, dV \end{aligned} \quad (5.94)$$

Die vollständige Linearisierung der schwachen Form lautet:

$$\begin{aligned} \Delta \delta[\Pi] &:= \delta \Pi + \Delta \Pi \\ &= \int_{\mathcal{B}} \boldsymbol{\sigma} \delta \boldsymbol{\varepsilon} + \boldsymbol{\eta} \delta \mathbf{P} + \boldsymbol{\xi} \delta \text{Grad} \mathbf{P} + \beta \dot{\mathbf{P}} \delta \mathbf{P} - (\mathbf{D}^{t+\Delta t} - \mathbf{D}^t + \mathbf{J} \Delta t) \delta \mathbf{E} \, dV \\ &\quad + \int_{\mathcal{B}} -\mathbf{b} \delta \mathbf{u} + \rho \delta \phi \, dV + \int_{\partial \mathcal{B}} -\bar{\mathbf{t}} \delta \mathbf{u} + (\mathbf{D}^{t+\Delta t} - \mathbf{D}^t + \mathbf{J} \cdot \Delta t) \cdot \mathbf{n} \delta \mathbf{E} \, dA \\ &\quad + \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon} : \mathbb{C}^{uu} : \Delta \boldsymbol{\varepsilon} + \delta \boldsymbol{\varepsilon} : \mathbb{C}^{uP} \cdot \Delta \mathbf{P} + \delta \mathbf{P} \cdot \mathbb{C}^{Pu} : \Delta \boldsymbol{\varepsilon} + \delta \mathbf{P} \cdot \mathbb{C}^{PP} \cdot \Delta \mathbf{P} \\ &\quad + \delta \mathbf{P} \cdot \mathbb{C}^{P\phi} \cdot \Delta \mathbf{E} + \delta \mathbf{E} \cdot \mathbb{C}^{\phi P} \cdot \Delta \mathbf{P} - \delta \mathbf{E} \cdot (\mathbb{C}^{\phi\phi} + \mathbb{C}_{LC}^{\phi\phi}) \cdot \Delta \mathbf{E} \\ &\quad + \text{Grad}[\delta \mathbf{P}] : \mathbb{C}^{\nabla P} : \text{Grad}[\Delta \mathbf{P}] + \beta \cdot \Delta \dot{\mathbf{P}} \, dV \end{aligned} \quad (5.95)$$

## 6 Finite-Elemente-Modellierung

In diesem Kapitel wird eine Finite Elemente Modellierung (FEM) vorgestellt, mit der die Nanogeneratorstrukturen simuliert werden. Die Anforderungen an solche Formulierungen lassen sich aus den vorherigen Kapiteln ableiten und bilden im Wesentlichen das wirklichkeitsnahe Verhalten solcher Strukturen ab.

Durch das Aufbringen eines elektrischen Signals an den Elektroden wird eine mechanische Verformung im darunterliegenden ferroelektrischen Material erzeugt. In Abhängigkeit der Höhe des angelegten elektrischen Feldes kommt es zu einer Veränderung des Polungszustands und der Kristallstruktur.

Sofern eine mechanische Verzerrung aufgebracht wird, wird diese mithilfe des ferroelektrischen Materials in ein elektrisches Signal umgewandelt. Solche Vorgänge bedürfen der Einbeziehung von nichtlinearen konstitutiven Beziehungen. Aufgrund des spröden Materialverhaltens der Ferroelektrika sind nur kleine Verschiebungen möglich und somit ist ein lineares Verzerrungsmaß ausreichend.

Wie im vorherigen Kapitel gezeigt, definiert die Impulsbilanz die lokale Form des Gleichgewichts. Unter zusätzlicher Verwendung der konstitutiven Gleichungen, der Kinematik und den Randbedingungen wird sie zur starken Form des mechanischen Randwertproblems umgeformt. Durch Multiplikation mit einer Testfunktion und Integration über das Volumen ergibt sich die schwache Form. Die anschließende Linearisierung bildet die Grundlage der häufig für ingenieurmäßige Problemstellungen verwendete Methode der Finiten Elemente. Die Linearisierung wurde bereits im vorangegangenen Kapitel hergeleitet, weshalb in diesem Kapitel die Anwendung der FEM erläutert wird. Die Lösung des nichtlinearen Problems wird mithilfe des Newton-Raphson Iterationsverfahrens näherungsweise bestimmt. Zeitabhängige Größen werden unter Verwendung des Euler-Rückwärts Verfahrens berücksichtigt.

Die Beispiele in dieser Arbeit sind im zweidimensionalen Raum beschrieben und berechnet. Daher wird nachfolgende Finite-Elemente-Modellierung für 2D- Problemstellungen aufgeführt. Weiter werden quadratische Ansatzfunktionen verwendet, weshalb lediglich auf diese Art von Elementen näher eingegangen wird. Dieses Kapitel ist wie folgt gegliedert. Nach Einführung des isoparametrischen Konzepts wird mithilfe der Linearisierung der schwachen Form aus dem vorangegangenen Kapitel die Finite-Elemente-Formulierung für das Substratmaterial, das Ferroelektrikum und das Elektrodenmaterial aufgestellt. Es folgt eine Beschreibung des Newton-Raphson Verfahrens und des Euler-Rückwärts Verfahrens. An dieser Stelle wird auf die ausführliche Literatur von unter anderem BATHE [7], BELYTSCHKO ET AL. [8], HUGHES [40], SU ET AL. [80], WRIGGERS [89], ZIENKIEWICZ ET AL. [94] verwiesen.

## 6.1 Approximation der Geometrie und primären Feldvariablen

Im Rahmen der FEM wird ein Körper  $\mathcal{B}$  in seiner Ausgangskonfiguration  $\Omega_0$  mit seinem Rand  $\partial\Omega_0$  in einzelne Teilkörper zerlegt. Diese Teilkörper werden Elemente genannt. Die Anzahl der Elemente ist  $n_{elem}$ . In Abbildung 6.1 ist eine Unterteilung des gesamten Gebiets in mehrerer Elemente und zusätzlich ein 9-Knoten Element des Gebiets exemplarisch dargestellt.

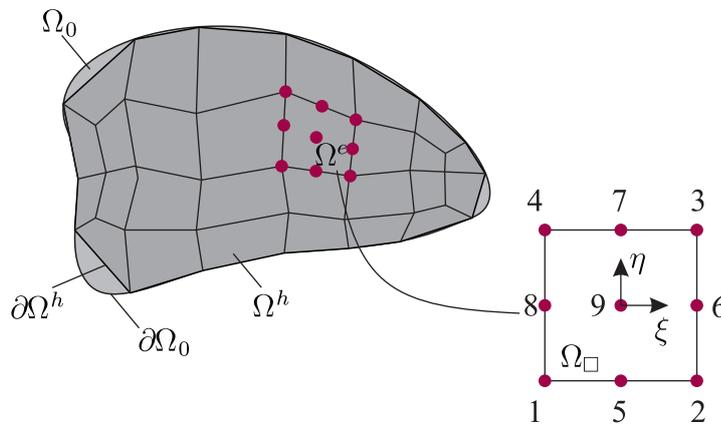


Abbildung 6.1: 9-Knoten Element, in natürlichen Koordinaten  $\xi, \eta$ .

Das Gebiet eines Elements wird mit  $\Omega^e$  bezeichnet. Die Summe der Elemente ergibt das approximierte Gebiet  $\Omega^h$  mit seinem Rand  $\partial\Omega^h$ . Die Aufteilung des Körpers in  $n_{elem}$  mit dem jeweiligen Gebiet  $\Omega^e$  ist häufig nur näherungsweise möglich:

$$\Omega_0 \approx \Omega^h = \bigcup_{e=1}^{n_{elem}} \Omega^e \quad (6.1)$$

Die einzelnen Elemente werden durch ihre Eckknoten definiert. Eine Unterteilung von komplexen Formen kann nicht immer exakt abgebildet werden. Mithilfe einer erhöhten Anzahl von Elementen ist es möglich die ursprüngliche Geometrie genauer zu beschreiben, dennoch ist bei der Approximation der Geometrie zu beachten, dass der Übergang der Elemente stetig ist. Es sollen keine Zwischenräume vorhanden sein. Dies wird verhindert, indem die Eckknoten benachbarter Elemente aufeinanderliegen. Zusätzlich werden so auch Überlappungen und Durchdringungen vermieden. Exemplarisch ist in Abbildung 6.1 ein 9-Knotenelement des Gebiets vergrößert abgebildet.

Jedes einzelne Element wird auf ein quadratisches Referenz- oder Einheitsselement  $\Omega_\square$  projiziert. Ausgehend vom Mittelpunkt dieses Einheitsselements kann

ein lokales Koordinatensystem aufgespannt werden, siehe Abbildung 6.1. Die Koordinatenachsen werden im zweidimensionalen Raum üblicherweise mit den natürlichen Koordinaten  $\xi$  und  $\eta$  beschrieben. Das Einheitsselement ist begrenzt zwischen  $\xi \in [-1, 1]$  und  $\eta \in [-1, 1]$ .

Die Eigenschaften der Teilgebiete werden mithilfe von Ansatzfunktionen auf die Elementknoten bezogen. Es werden Ansatzfunktionen  $N_I(\xi_I, \eta_I)$  angewendet, die sich auf die Koordinaten  $\xi$ ,  $\eta$  beziehen. Die Ansatzfunktionen  $N_I$  sind in dieser Arbeit die Lagrange Ansätze, welche biquadratische Polynome darstellen. Am zugehörigen Knoten nehmen sie den Wert eins an, an den anderen Knoten den Wert null. Für ein 9-Knoten-Element lauten die biquadratischen Ansatzfunktionen für die Eckknoten ( $I = 1, 2, 3, 4$ ) nach Abbildung 6.1:

$$N_I(\xi, \eta) = \frac{1}{4}(\xi^2 + \xi_I \xi)(\eta^2 + \eta_I \eta) \quad (6.2)$$

Für die Mittelknoten ( $I = 5, 6, 7, 8$ ):

$$N_I(\xi, \eta) = \frac{1}{2}\xi_I^2(\xi^2 + \xi_I \xi)(1 - \eta^2) + \frac{1}{2}\eta_I^2(\eta + \eta_I \eta)(1 - \xi) \quad (6.3)$$

Und für den Zentralknoten ( $I = 9$ ):

$$N_9(\xi, \eta) = (1 - \xi^2)(1 - \eta^2) \quad (6.4)$$

Um die Stetigkeit des Verschiebungsfeldes zu gewährleisten, müssen die Ansätze  $C^0$ -Kontinuität aufweisen, welche durch die Verwendung der Lagrange Ansatzfunktionen erfüllt ist. Mithilfe der Ansatzfunktionen  $N_I$  kann der Ortsvektor eines materiellen Punktes in der Referenz- und Momentankonfiguration näherungsweise bestimmt werden zu:

$$\mathbf{X} \approx \mathbf{X}^h(\xi, \eta) = \sum_{I=1}^9 N_I(\xi, \eta) \mathbf{X}_I \quad (6.5)$$

$$\mathbf{x} \approx \mathbf{x}^h(\xi, \eta) = \sum_{I=1}^9 N_I(\xi, \eta) \mathbf{x}_I \quad (6.6)$$

Die approximierten Größen sind hier mit einem hochgestellten Index  $(\cdot)^h$  dargestellt.

Nach dem isoparametrischen Konzept werden die gleichen Ansätze für die Geometrie und die primären Feldgrößen verwendet. Somit werden auch die Primärvariablen  $\mathbf{v}_I$ , deren Variationen  $\delta \mathbf{v}_I$  sowie Linearisierungen  $\Delta \mathbf{v}_I$  auf das Einheitsselement projiziert. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird im Folgenden auf den

hochgestellten Index zur Kennzeichnung des approximierten Größen verzichtet.

$$\mathbf{v}(\xi, \eta) = \sum_{I=1}^9 N_I(\xi, \eta) \mathbf{v}_I \quad (6.7)$$

$$\delta \mathbf{v}(\xi, \eta) = \sum_{I=1}^9 N_I(\xi, \eta) \delta \mathbf{v}_I \quad (6.8)$$

$$\Delta \mathbf{v}(\xi, \eta) = \sum_{I=1}^9 N_I(\xi, \eta) \Delta \mathbf{v}_I \quad (6.9)$$

Der Vektor der Primärvariablen im Element  $\mathbf{v}^e(\xi, \eta)$  setzt sich aus den einzelnen Vektoren der Feldgrößen  $\mathbf{v}_I(\xi, \eta)$  zusammen, ebenso der Vektor ihrer variationellen und linearisierten Größen:

$$\mathbf{v}^e = (\mathbf{v}_1^T \ \mathbf{v}_2^T \ \mathbf{v}_3^T \ \mathbf{v}_4^T \ \mathbf{v}_5^T \ \mathbf{v}_6^T \ \mathbf{v}_7^T \ \mathbf{v}_8^T \ \mathbf{v}_9^T)^T \quad (6.10)$$

$$\delta \mathbf{v}^e = (\delta \mathbf{v}_1^T \ \delta \mathbf{v}_2^T \ \delta \mathbf{v}_3^T \ \delta \mathbf{v}_4^T \ \delta \mathbf{v}_5^T \ \delta \mathbf{v}_6^T \ \delta \mathbf{v}_7^T \ \delta \mathbf{v}_8^T \ \delta \mathbf{v}_9^T)^T \quad (6.11)$$

$$\Delta \mathbf{v}^e = (\Delta \mathbf{v}_1^T \ \Delta \mathbf{v}_2^T \ \Delta \mathbf{v}_3^T \ \Delta \mathbf{v}_4^T \ \Delta \mathbf{v}_5^T \ \Delta \mathbf{v}_6^T \ \Delta \mathbf{v}_7^T \ \Delta \mathbf{v}_8^T \ \Delta \mathbf{v}_9^T)^T \quad (6.12)$$

Ableitungen der einzelnen Primärvariablen werden durch Ableitungen der Formfunktion und die jeweiligen Knotenwerte dargestellt. Für die Ableitung der Feldgrößenvektoren nach den Richtungen  $\vartheta = \xi, \eta$  gilt:

$$\mathbf{v}_{,\vartheta} = \sum_{I=1}^9 N_{I,\vartheta}(\xi, \eta) \mathbf{v}_I \quad (6.13)$$

Die Ableitung der Ansatzfunktionen  $N_{I,\vartheta}$  und deren Anordnung wird als  $\mathbf{B}$ -Matrix bezeichnet. Analog zu Gleichung (6.13) ergeben sich die virtuellen und linearisierten Vektoren der Feldvariablen zu:

$$\delta \mathbf{v}_{,\vartheta} = \sum_{I=1}^9 N_{I,\vartheta}(\xi, \eta) \delta \mathbf{v}_I \quad (6.14)$$

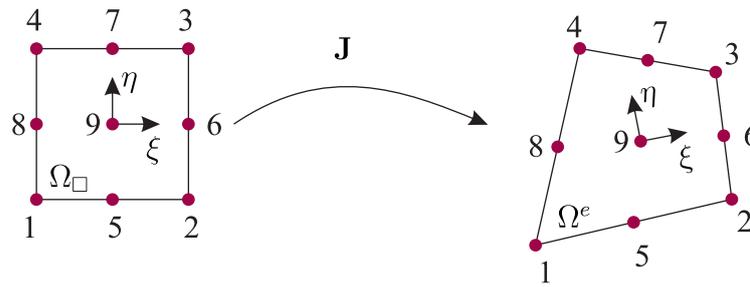
$$\Delta \mathbf{v}_{,\vartheta} = \sum_{I=1}^9 N_{I,\vartheta}(\xi, \eta) \Delta \mathbf{v}_I \quad (6.15)$$

Die Ableitungen werden mit Bezug auf das  $\xi$ - $\eta$ -Koordinatensystem des Referenzelements  $\Omega_{\square}$  aufgestellt. Für die Ableitungen im realen Basissystem wird zunächst die Jacobimatrix mit den Ableitungen der Ortsvektoren nach den natürlichen Koordinaten ermittelt:

$$\mathbf{J} = \frac{\partial \mathbf{X}}{\partial \boldsymbol{\vartheta}} = \sum_{I=1}^9 \mathbf{X}_I \otimes \nabla_{\vartheta} N_I = \begin{bmatrix} \frac{\partial X_1(\xi, \eta)}{\partial \xi} & \frac{\partial X_1(\xi, \eta)}{\partial \eta} \\ \frac{\partial X_2(\xi, \eta)}{\partial \xi} & \frac{\partial X_2(\xi, \eta)}{\partial \eta} \end{bmatrix} \quad (6.16)$$

In Gleichung (6.16) stellt  $\nabla_{\vartheta} N_I$  den Gradienten der Ansatzfunktionen nach den lokalen Koordinaten dar. Somit gilt für die Ableitungen:

$$\begin{pmatrix} N_{I,1} \\ N_{I,2} \end{pmatrix} = \mathbf{J}^{-T} \begin{pmatrix} N_{I,\xi} \\ N_{I,\eta} \end{pmatrix} \quad (6.17)$$



**Abbildung 6.2:** Transformation des Referenzelements mithilfe des isoparametrischen Ansatzes im zweidimensionalen Raum.

Um Gleichung (6.17) zu erfüllen, muss die Jacobimatrix invertierbar sein, wobei die Determinante der Jacobimatrix ungleich null sein muss. Mit der Determinante der Jacobimatrix wird das Flächenverhältnis des Referenzelements und dem tatsächlichen Element dargestellt,  $A_{\Omega^e} = \det \mathbf{J} A_{\Omega_{\square}}$ . Aus dem Flächenverhältnis wird deutlich, dass die positive Definitheit gelten muss:  $\det \mathbf{J} > \mathbf{0}$ . Die Jacobimatrix wird demzufolge genutzt, um das Referenzelement auf die reale Geometrie abzubilden, siehe Abbildung 6.2. Um Ableitungen im realen Basissystem zu erhalten, wird ebenfalls die Jacobimatrix verwendet. Mithilfe der Jacobimatrix, den Ansatzfunktionen  $N_I(\xi, \eta)$  sowie deren Ableitungen, der  $\mathbf{B}$ -Matrix, sind wichtige Größen für die FEM definiert.

## 6.2 Modellierung des Substratmaterials

Die in dieser Arbeit vorgestellten Generatoren basieren auf der Umwandlung von mechanischer Deformation in elektrische Signale. Diese Deformation des Substrats wird durch den epitaktischen Verbund und durch periodische Verzerrungen im Substratmaterial erzeugt. Um diesen Prozess numerisch umzusetzen wird eine additive Zerlegung der Verzerrungen  $\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}_M + \boldsymbol{\varepsilon}_V$  in einen mechanischen Anteil und einen Anteil, der aus der periodischen Anregung hervorgerufen wird, zerlegt (siehe Gleichung (5.25)). Im Folgenden wird die FE-Formulierung der Substratelemente näher vorgestellt. Die Primärvariablen für das Substratmaterial sind lediglich die Verschiebung  $\mathbf{u}$ , aus denen die Verzerrungen  $\boldsymbol{\varepsilon}$  berechnet werden.

Aufbauend auf der Linearisierung der Variation des Substratmaterials aus dem vorherigen Kapitel:

$$\begin{aligned} \Delta \delta[\Pi] = & \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbb{C}_t \delta \boldsymbol{\varepsilon} dV - \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbb{C}_t \delta \boldsymbol{\varepsilon}_v dV - \int_{\mathcal{B}} \delta \mathbf{u}^T \mathbf{b} dV \\ & - \int_{\partial \mathcal{B}_\sigma} \delta \mathbf{u}^T \bar{\mathbf{t}} dA + \int_{\mathcal{B}} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbb{C}_t \Delta \boldsymbol{\varepsilon} dV = 0 \end{aligned} \quad (6.18)$$

wird für die variationellen und linearisierten Ableitungen der Verschiebungen die  $\mathbf{B}_I^u$ -Matrix aufgestellt. Da nur die Verschiebungen  $\mathbf{u}$  als Primärvariablen  $\mathbf{v}$  im

Substratmaterial vorliegen, setzt sich die Matrix  $\mathbf{B}_I^u$  aus den Ableitungen der Ansatzfunktionen wie folgt zusammen:

$$\mathbf{B}_I^u = \begin{bmatrix} N_{I,1} & 0 \\ 0 & N_{I,2} \\ N_{I,2} & N_{I,1} \end{bmatrix} \quad (6.19)$$

Der Vektor der linearen Verzerrungen  $\boldsymbol{\varepsilon}$  ist:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ 2\varepsilon_{12} \end{bmatrix} = \sum_{I=1}^9 \begin{bmatrix} N_{I,1} & 0 \\ 0 & N_{I,2} \\ N_{I,2} & N_{I,1} \end{bmatrix} \mathbf{u}_I = \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^u \mathbf{u}_I \quad (6.20)$$

Analog folgt die Darstellung der variationellen und inkrementellen Verzerrungen:

$$\delta \boldsymbol{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \delta \varepsilon_{11} \\ \delta \varepsilon_{22} \\ 2\delta \varepsilon_{12} \end{bmatrix} = \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^u \delta \mathbf{u}_I \quad \Delta \boldsymbol{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \Delta \varepsilon_{11} \\ \Delta \varepsilon_{22} \\ 2\Delta \varepsilon_{12} \end{bmatrix} = \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^u \Delta \mathbf{u}_I \quad (6.21)$$

Die Linearisierung der schwachen Form, Gleichung (6.18), besteht für ihre Primärvariablen  $\mathbf{u}$  aus einem konstanten Term  $\delta \Pi^e(\mathbf{u}, \delta \mathbf{u})$  und einem linearen Term  $\Delta \delta \Pi^e(\mathbf{u}, \delta \mathbf{u}, \Delta \mathbf{u})$ . Der konstante Term  $\delta \Pi^e(\mathbf{u}, \delta \mathbf{u})$  setzt sich aus den äußeren Kräften und den bekannten inneren Kräften zusammen:

$$\begin{aligned} \delta \Pi^e(\mathbf{u}, \delta \mathbf{u})_{int} &= \int_{\Omega} \delta \boldsymbol{\varepsilon}^T \boldsymbol{\sigma} \, dV \\ &= \int_{\Omega} \sum_{I=1}^9 \delta \mathbf{u}_I^T \mathbf{B}_I^{uT} \boldsymbol{\sigma} \, dV \end{aligned} \quad (6.22)$$

$$\begin{aligned} \delta \Pi^e(\mathbf{u}, \delta \mathbf{u})_{ext} &= - \int_{\partial \Omega} \delta \mathbf{u}_I^T \bar{\mathbf{f}} \, dA - \int_{\Omega} \delta \mathbf{u}_I^T \mathbf{q} \, dV \\ &= - \int_{\partial \Omega} \sum_{I=1}^9 \delta \mathbf{u}_I^T N_I \bar{\mathbf{f}} \, dA - \int_{\Omega} \sum_{I=1}^9 \delta \mathbf{u}_I^T N_I \mathbf{q} \, dV \end{aligned} \quad (6.23)$$

Durch Einsetzen dieser Größen erhält man den sogenannten residualen Elementvektor  $\mathbf{R}^e$ :

$$\mathbf{R}^e = \mathbf{R}_{int}^e + \mathbf{R}_{ext}^e \quad (6.24)$$

$$\mathbf{R}_{int}^e = \sum_{I=1}^9 \int_{\Omega} \mathbf{B}_I^{uT} \boldsymbol{\sigma} \, dV \quad (6.25)$$

$$\mathbf{R}_{ext}^e = \sum_{I=1}^9 \int_{\partial \Omega} N_I \bar{\mathbf{f}} \, dA - \sum_{I=1}^9 \int_{\Omega} N_I \mathbf{q} \, dV \quad (6.26)$$

Anhand des Inkrements  $\Delta\delta\Pi^e(\mathbf{u}, \delta\mathbf{u}, \Delta\mathbf{u})$  lässt sich die tangentiale Elementsteifigkeitsmatrix  $\mathbf{K}_{IJ}^e$  mithilfe der Ableitungen der Ansatzfunktionen definieren:

$$\begin{aligned}\Delta\delta\Pi^e(\mathbf{u}, \delta\mathbf{u}, \Delta\mathbf{u}) &= \int_{\Omega} \delta\boldsymbol{\varepsilon}^T \Delta\boldsymbol{\sigma} \, dV \\ &= \int_{\Omega} \delta\boldsymbol{\varepsilon}^T \mathbf{C}_t \Delta\boldsymbol{\varepsilon} \, dV \\ &= \sum_{I=1}^9 \sum_{J=1}^9 \delta\mathbf{u}_I^T \underbrace{\int_{\Omega^e} \mathbf{B}_I^{uT} \mathbf{C}_t \mathbf{B}_J^u \, dV}_{\mathbf{K}_{IJ}^e} \Delta\mathbf{u}_J\end{aligned}\quad (6.27)$$

In Gleichung (6.27) bezeichnet  $\mathbf{K}_{IJ}^e$  die materielle Elementsteifigkeitsmatrix der Knotenbeiträge  $I$  und  $J$ , diese ist gleichbedeutend mit der tangentialen Steifigkeitsmatrix, da das Substratmaterial materiell und geometrisch linear ist. Elementweise ergibt sich für die Approximation der linearisierten schwachen Form:

$$\delta\Pi^e(\mathbf{u}, \delta\mathbf{u}) + \Delta\delta\Pi^e(\mathbf{u}, \delta\mathbf{u}, \Delta\mathbf{u}) = \sum_{I=1}^9 \sum_{J=1}^9 \delta\mathbf{u}_I^T (\mathbf{K}_{IJ}^e \Delta\mathbf{u}_J + \mathbf{R}_I^e) \quad (6.28)$$

Die Jacobi-Determinante stellt das Flächenverhältnis des Referenzelements zum tatsächlichen Element dar. Mit ihrer Hilfe können die Finiten Elemente in den Parameterraum des Einheitselements überführt werden.

Der Integrand dieser Funktion ist eine gebrochen rationale Funktion, weshalb eine numerische Auswertung nötig ist. In dieser Arbeit wird eine Gauß-Integration verwendet. Die Auswertung wird an Stützstellen, den sogenannten Gaußpunkten, vorgenommen. Das Integral wird über die Summe der Stützstellen mit entsprechenden Wichtungen approximiert. Anschließend werden die virtuellen und linearisierten Verschiebungsvektoren bestimmt. Die Stellen und Wichtungen der Gaußpunkte können der Literatur entnommen werden, u.a. [89].

Auf Elementebene wurde somit die Steifigkeitsmatrizen und Residualenvektoren ermittelt. Um das gesamte Gebiet zu beschreiben, werden diese bei der Assemblierung über alle Elemente analog zu Gleichung (6.1) zusammengefügt. Die zu lösende Gleichung lautet somit:

$$\delta\mathbf{u}^T (\mathbf{K}\Delta\mathbf{u} + \mathbf{R}) = \mathbf{0} \quad (6.29)$$

Da die Testfunktionen, hier  $\delta\mathbf{u}$ , beliebig aber ungleich 0 sind, muss der Klammerausdruck unter Einhaltung vorgegebener Randbedingungen null ergeben. Somit werden die Verschiebungsinkremente  $\Delta\mathbf{u}$  bestimmt. Ein oftmals eingesetztes Lösungsverfahren ist das Newton-Raphson-Verfahren (in dieser Arbeit auch häufig nur Newton-Verfahren genannt), das in Abschnitt 6.4 näher erläutert wird.

### 6.3 Modellierung des Ferroelektrikums und der Elektrode

Hilfreich für eine einfache Formulierung des Ferroelektrikums mittels FEM ist es die Anzahl der Knotenfreiheitsgrade, den sogenannten Primärvariablen, so gering wie möglich zu halten. Es bietet sich an, die mechanischen Deformationen  $\mathbf{u}$ , die Komponenten der Polarisations  $\mathbf{P}$ , und das elektrische Potential  $\phi$  als Knotenfreiheitsgrad anzusetzen. Aus den mechanischen Deformationen können die Verzerrungen ermittelt werden, die Gradienten der Polarisations werden aus dem Freiheitsgrad  $\mathbf{P}$  bestimmt und mithilfe des elektrischen Potentials  $\phi$  wird das elektrische Feld berechnet

Gleichung (5.95) ist die Grundlage für die Anwendung der Finite Elemente Methode für das Phasenfeldmodell. Auf Elementebene werden die Dehnung, das elektrische Feld und der Polarisationsgradient abgeleitet, um daraus schließlich die Spannung, die elektrische Verschiebung und die Mikrokräfte über die Gleichungen (5.68) und (5.69) zu berechnen.

Die Geometrie sowie die Inter- bzw. Extrapolation von Feldgrößen wird mithilfe der eingeführten Lagrange Formfunktionen  $N_I$  beschrieben. Der Prozessvektor  $\mathbf{v}_I$  enthält nun die Freiheitsgrade der mechanischen Verschiebung  $u_k$ , der Polarisations  $P_k$  und dem elektrischen Potential  $\phi$ .

$$\begin{Bmatrix} u_k \\ P_k \\ \phi \end{Bmatrix}_I = \mathbf{v}_I \quad k = 1, 2 \quad (6.30)$$

Der Index  $k$  bezeichnet die räumliche Dimension und gibt somit die mechanische Verschiebungs- oder Polarisationsrichtung an.

Für die ferroelektrischen Elemente werden ebenso quadratische Ansatzfunktionen verwendet.

Für die Variationsformulierung und den linearen Term der Taylorreihenentwicklung werden die einzelnen Freiheitsgrade mit den Ansatzfunktionen  $N_I$  variiert und linearisiert. Somit ergeben sich die Knotenwerte der Verschiebung  $\mathbf{u}_I$ , der Polarisations  $\mathbf{P}_I$  und des elektrischen Potentials  $\phi_I$ . Vorab werden die Freiheitsgrade knotenweise mithilfe der Ansatzfunktionen über die Anzahl der Knoten je Element  $n_{el}=9$  ermittelt:

$$\mathbf{u} = \sum_{I=1}^9 N_I \mathbf{u}_I \quad \mathbf{P} = \sum_{I=1}^9 N_I \mathbf{P}_I \quad \phi = \sum_{I=1}^9 N_I \phi_I \quad (6.31)$$

$$\delta \mathbf{u} = \sum_{I=1}^9 N_I \delta \mathbf{u}_I \quad \delta \mathbf{P} = \sum_{I=1}^9 N_I \delta \mathbf{P}_I \quad \delta \phi = \sum_{I=1}^9 N_I \delta \phi_I \quad (6.32)$$

$$\Delta \mathbf{u} = \sum_{I=1}^9 N_I \Delta \mathbf{u}_I \quad \Delta \mathbf{P} = \sum_{I=1}^9 N_I \Delta \mathbf{P}_I \quad \Delta \phi = \sum_{I=1}^9 N_I \Delta \phi_I \quad (6.33)$$

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit quasi-statischen Problemstellungen, daher werden ausschließlich zeitliche Änderungen der Knotenwerte der elektrischen Polarisation  $\dot{\mathbf{P}}_I$  und der dielektrischen Verschiebung  $\dot{\mathbf{D}}_I$  berücksichtigt:

$$\dot{\mathbf{P}} = \sum_{I=1}^9 N_I \dot{\mathbf{P}}_I \quad \delta \dot{\mathbf{P}} = \sum_{I=1}^9 N_I \delta \dot{\mathbf{P}}_I \quad \Delta \dot{\mathbf{P}} = \sum_{I=1}^9 N_I \Delta \dot{\mathbf{P}}_I \quad (6.34)$$

$$\dot{\mathbf{D}} = \sum_{I=1}^9 N_I \dot{\mathbf{D}}_I \quad \delta \dot{\mathbf{D}} = \sum_{I=1}^9 N_I \delta \dot{\mathbf{D}}_I \quad \Delta \dot{\mathbf{D}} = \sum_{I=1}^9 N_I \Delta \dot{\mathbf{D}}_I \quad (6.35)$$

Alle einzelnen Knotenwerte je Elementknoten werden in einem Knotenvektor  $\mathbf{v}_I$  versammelt:

$$\mathbf{v}_I := \begin{bmatrix} \mathbf{u}_I \\ \mathbf{P}_I \\ \phi_I \end{bmatrix}, \quad \delta \mathbf{v}_I := \begin{bmatrix} \delta \mathbf{u}_I \\ \delta \mathbf{P}_I \\ \delta \phi_I \end{bmatrix}, \quad \Delta \mathbf{v}_I := \begin{bmatrix} \Delta \mathbf{u}_I \\ \Delta \mathbf{P}_I \\ \Delta \phi_I \end{bmatrix} \quad (6.36)$$

Analog hierzu werden die zeitlich veränderlichen Größen in jeweiligen Knotenvektoren angeordnet:

$$\dot{\mathbf{v}} := \sum_{I=1}^9 N_I \dot{\mathbf{v}}_I \quad \delta \dot{\mathbf{v}} := \sum_{I=1}^9 N_I \delta \dot{\mathbf{v}}_I \quad \Delta \dot{\mathbf{v}} := \sum_{I=1}^9 N_I \Delta \dot{\mathbf{v}}_I \quad (6.37)$$

Auf Elementebene setzen sich die primären Variablen abhängig von der Anzahl der Knoten pro Element wie folgt aus den jeweiligen Knotenvektoren zusammen:

$$\mathbf{v}^e := \left( \mathbf{v}_1^T \quad \mathbf{v}_2^T \quad \mathbf{v}_3^T \quad \dots \quad \mathbf{v}_9^T \right)^T \quad (6.38)$$

$$\delta \mathbf{v}^e := \left( \delta \mathbf{v}_1^T \quad \delta \mathbf{v}_2^T \quad \delta \mathbf{v}_3^T \quad \dots \quad \delta \mathbf{v}_9^T \right)^T \quad (6.39)$$

$$\Delta \mathbf{v}^e := \left( \Delta \mathbf{v}_1^T \quad \Delta \mathbf{v}_2^T \quad \Delta \mathbf{v}_3^T \quad \dots \quad \Delta \mathbf{v}_9^T \right)^T \quad (6.40)$$

Da für das ferroelektrische Material quadratische Ansatzfunktionen verwendet werden, sind nel=9 Knotenverschiebungsvektoren die Einträge des Elementverschiebungsvektors.

Zur Beschreibung des Ferroelektrikums innerhalb der FEM werden die Feldgrößen in Vektornotation verwendet. Der Spannungstensor  $\boldsymbol{\sigma}$  und der zugehörige Verzerrungstensor  $\boldsymbol{\varepsilon}$  wurden bereits im vorherigen Kapitel ausführlich hergeleitet:

$$\boldsymbol{\sigma} := \left( \sigma_{11} \quad \sigma_{22} \quad \sigma_{12} \right)^T \quad (6.41)$$

$$\boldsymbol{\varepsilon} := \left( \varepsilon_{11} \quad \varepsilon_{22} \quad 2\varepsilon_{12} \right)^T \quad (6.42)$$

Analog folgt die Darstellung für die Mikrospannungen  $\boldsymbol{\xi}$  und die Gradienten der Polarisation Grad  $[\mathbf{P}]$ :

$$\boldsymbol{\xi} := \left( \xi_{11} \quad \xi_{22} \quad \xi_{12} \quad \xi_{21} \right)^T \quad (6.43)$$

$$\text{Grad}[\mathbf{P}] := \left( P_{1,1} \quad P_{2,2} \quad P_{1,2} \quad P_{2,1} \right)^T \quad (6.44)$$

Zusätzlich zu der bereits eingeführten Operatormatrix  $\mathbf{B}_I^u$  für das Substratmaterial wird die Operatormatrix bezüglich des Polarisationsfreiheitsgrads  $\mathbf{B}_I^P$  und der Operatorvektor  $\mathbf{b}_I^\phi$  definiert:

$$\mathbf{B}_I^P := \begin{bmatrix} N_{I,1} & 0 \\ 0 & N_{I,2} \\ N_{I,2} & 0 \\ 0 & N_{I,1} \end{bmatrix}, \quad \mathbf{b}_I^\phi := \begin{bmatrix} -N_{I,1} \\ -N_{I,2} \end{bmatrix} \quad (6.45)$$

Der vollständige Satz an Operatormatrizen liefert eingesetzt folgende Zusammenhänge der Verzerrungen, Polarisationsgradienten und des elektrischen Feldes:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\varepsilon} &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^u \mathbf{u}_I & \text{Grad}[\mathbf{P}] &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^P \mathbf{P}_I & \mathbf{E} &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{b}_I^\phi \phi_I \\ \delta \boldsymbol{\varepsilon} &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^u \delta \mathbf{u}_I & \delta \text{Grad}[\mathbf{P}] &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^P \delta \mathbf{P}_I & \delta \mathbf{E} &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{b}_I^\phi \delta \phi_I \\ \Delta \boldsymbol{\varepsilon} &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{B}_I^u \Delta \mathbf{u}_I & \Delta \text{Grad}[\mathbf{P}] &= \sum_{I=1}^9 \Delta \mathbf{B}_I^P \mathbf{P}_I & \Delta \mathbf{E} &= \sum_{I=1}^9 \mathbf{b}_I^\phi \Delta \phi_I \end{aligned} \quad (6.46)$$

Mithilfe der variationellen und linearisierten Primärvariablen kann die Linearisierung der variationellen Form aus Gleichung (5.95) bezüglich der Verschiebungen, Polarisierung und elektrischen Potential wie folgt geschrieben werden:

$$\Delta \delta \Pi^e(\mathbf{u}, \mathbf{P}, \phi) = \delta \Pi^e(\mathbf{u}, \mathbf{P}, \phi) + \Delta \Pi^e(\mathbf{u}, \mathbf{P}, \phi) \quad (6.47)$$

Der hochgestellte Index  $e$  bezeichnet die jeweilige Größe als Elementgröße. Hierbei wurde die Schleife über alle Knoten und eine numerische Integration, in dieser Arbeit die Gauß-Integration, bereits durchgeführt. Das Elementresiduum  $\delta \Pi^e$  ist gegeben als:

$$\delta \Pi^e = \sum_{I=1}^9 \left( \delta \mathbf{v}_I^T \mathbf{r}_I^m + \delta \dot{\mathbf{v}}_I^T \mathbf{r}_I^t \right) \quad (6.48)$$

Hierbei beschreibt der Index  $m$  materielle Größen und der Index  $t$  bezieht sich auf zeitabhängige Größen. Der erste Summand beschreibt den materiellen Anteil des Elementresiduums. Er setzt sich aus folgenden Anteilen zusammen:

$$\mathbf{r}_I^m = \left[ (\mathbf{r}_I^{u,m})^T \quad (\mathbf{r}_I^{P,m})^T \quad \mathbf{r}_I^{\phi,m} \right]^T \quad (6.49)$$

Die jeweiligen Einträge des residualen Vektors sind gegeben durch:

$$\mathbf{r}_I^{u,m} = \int_{\Omega^e} (\mathbf{B}_I^u)^T \boldsymbol{\sigma} \, dV - \int_{\Omega^e} N_I \mathbf{b} \, dV - \int_{\partial \Omega^e} N_I \bar{\mathbf{t}} \, dA = \mathbf{r}_I^{u,int} + \mathbf{r}_I^{u,ext} \quad (6.50)$$

$$\mathbf{r}_I^{P,m} = \int_{\Omega^e} N_I \boldsymbol{\eta} + (\mathbf{B}_I^P)^T \boldsymbol{\xi} \, dV \quad (6.51)$$

$$\mathbf{r}_I^{\phi,m} = \int_{\Omega^e} -(\mathbf{b}_I^\phi)^T \mathbf{D} \, dV + \int_{\Omega^e} N_I q \, dV + \int_{\partial \Omega^e} N_I \omega \, dA = \mathbf{r}_I^{\phi,int} + \mathbf{r}_I^{\phi,ext} \quad (6.52)$$

Bisher sind die residualen Vektoren für die einzelnen Freiheitsgrade separat aufgeführt. Für die Freiheitsgrade der mechanischen Verschiebung und des elektrischen Potentials kann eine weitere Unterteilung in einen internen und externen residualen Vektor erfolgen, Gleichung (6.50) und (6.52).

Der zweite Summand beschreibt die zeitliche Änderung:

$$\mathbf{r}_I^t = \left[ (\mathbf{r}_I^{u,t})^T \quad (\mathbf{r}_I^{P,t})^T \quad \mathbf{r}_I^{\phi,t} \right]^T \quad (6.53)$$

Gleichung (6.53) hat nur Einträge für die Freiheitsgrade der Polarisierung, alle weiteren Einträge sind null:

$$\mathbf{r}_I^{u,t} = \mathbf{0} \quad \mathbf{r}_I^{P,t} = \int_{\Omega^e} N_I \beta \dot{\mathbf{P}} \, dV \quad \mathbf{r}_I^{\phi,t} = 0 \quad (6.54)$$

Die residualen Vektoren werden jeweils pro Knoten aufgestellt und anschließend auf Elementebene zusammengefasst. Es ergibt somit einen residualen Vektor für das Material und einen für die zeitliche Ableitung des Ordnungsparameters:

$$\mathbf{r}^{e,m} := [(\mathbf{r}_1^m)^T \quad (\mathbf{r}_2^m)^T \quad (\mathbf{r}_3^m)^T \quad \dots \quad (\mathbf{r}_9^{e,m})^T]^T \quad (6.55)$$

$$\mathbf{r}^{e,t} := [(\mathbf{r}_1^t)^T \quad (\mathbf{r}_2^t)^T \quad (\mathbf{r}_3^t)^T \quad \dots \quad (\mathbf{r}_9^{e,t})^T]^T \quad (6.56)$$

Für die Linearisierung wird ebenfalls das Inkrement der linearisierten schwachen Form benötigt. Für das Ferroelektrikum lautet es:

$$\Delta \delta \Pi^e = \sum_{I=1}^9 \sum_{J=1}^9 \delta \mathbf{v}_I^T \left( \mathbf{K}_{IJ}^{e,m} + \mathbf{K}_{IJ}^{e,\nabla P} \right) \Delta \mathbf{v}_J + \sum_{I=1}^9 \sum_{J=1}^9 \delta \dot{\mathbf{v}}_I^T \mathbf{D}_{IJ}^e \Delta \dot{\mathbf{v}}_J \quad (6.57)$$

Hierbei bezeichnet  $\mathbf{K}_{IJ}^{e,m}$  den materiellen Anteil der tangentialen Steifigkeitsmatrix,  $\mathbf{K}_{IJ}^{e,\nabla P}$  die Steifigkeitsanteile aus dem Polarisationsgradienten und  $\mathbf{D}_{IJ}^e$  die zeitliche Änderung des Ordnungsparameters. Die materielle Steifigkeitsmatrix lässt sich in folgende Anteile unterteilen:

$$\mathbf{K}_{IJ}^{e,m} = \begin{bmatrix} \mathbf{K}_{IJ}^{uu} & \mathbf{K}_{IJ}^{uP} & \mathbf{K}_{IJ}^{u\phi} \\ \mathbf{K}_{IJ}^{Pu} & \mathbf{K}_{IJ}^{PP} & \mathbf{K}_{IJ}^{P\phi} \\ \mathbf{K}_{IJ}^{\phi u} & \mathbf{K}_{IJ}^{\phi P} & \mathbf{K}_{IJ}^{\phi\phi} \end{bmatrix} \quad (6.58)$$

Aufgrund der physikalischen Zusammenhänge und der Materialeigenschaften liegen Abhängigkeiten der gewählten Freiheitsgrade vor. Bei Ferroelektrika ist eine Abhängigkeit zwischen der Verschiebung und der Polarisierung sowie der Polarisierung und dem elektrischen Potential gegeben. Es gibt allerdings keinen physikalischen Zusammenhang zwischen der mechanischen Deformation und dem elektrischen Potential.

Die Teilmatrizen in Gleichung (6.58) lauten:

$$\mathbf{K}_{IJ}^{uu} = \int_{\Omega^e} (\mathbf{B}_I^u)^T \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}} \mathbf{B}_J^u dV = \int_{\Omega^e} (\mathbf{B}_I^u)^T \mathbf{C}^{uu} \mathbf{B}_J^u dV \quad (6.59)$$

$$\mathbf{K}_{IJ}^{uP} = \int_{\Omega^e} (\mathbf{B}_I^u)^T \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial \mathbf{P}} N_J dV = \int_{\Omega^e} (\mathbf{B}_I^u)^T \mathbf{C}^{uP} N_J dV \quad (6.60)$$

$$\mathbf{K}_{IJ}^{Pu} = \int_{\Omega^e} N_I \frac{\partial \boldsymbol{\eta}}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}} \mathbf{B}_J^u dV = \int_{\Omega^e} N_I \mathbf{C}^{Pu} \mathbf{B}_J^u dV \quad (6.61)$$

$$\mathbf{K}_{IJ}^{PP} = \int_{\Omega^e} N_I \frac{\partial \boldsymbol{\eta}}{\partial \mathbf{P}} N_J dV = \int_{\Omega^e} N_I \mathbf{C}^{PP} N_J dV \quad (6.62)$$

$$\mathbf{K}_{IJ}^{P\phi} = \int_{\Omega^e} N_I \frac{\partial \boldsymbol{\eta}}{\partial \mathbf{E}} \mathbf{b}_J^\phi dV = \int_{\Omega^e} N_I \mathbf{C}^{P\phi} \mathbf{b}_J^\phi dV \quad (6.63)$$

$$\mathbf{K}_{IJ}^{\phi P} = \int_{\Omega^e} \mathbf{b}_I^{T\phi} \frac{\partial \boldsymbol{\eta}}{\partial \mathbf{E}} N_J dV = \int_{\Omega^e} \mathbf{b}_I^{T\phi} \mathbf{C}^{\phi P} N_J dV \quad (6.64)$$

$$\mathbf{K}_{IJ}^{\phi\phi} = \int_{\Omega^e} \mathbf{b}_I^{T\phi} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial \mathbf{E}} \mathbf{b}_J^\phi dV = \int_{\Omega^e} \mathbf{b}_I^{T\phi} \mathbf{C}^{\phi\phi} \mathbf{b}_J^\phi dV \quad (6.65)$$

$$\mathbf{K}_{IJ}^{u\phi} = (\mathbf{K}_{IJ}^{\phi u})^T = 0 \quad (6.66)$$

Da die Leckstromdichte  $\mathbf{J}$  nur vom elektrischen Potential  $\phi$  abhängig ist, ergibt dies einen zusätzlichen Eintrag  $\mathbf{K}_{IJLC}^{\phi\phi}$  auf  $\mathbf{K}_{IJ}^{\phi\phi}$ . Der skalare Eintrag für die Steifigkeitsmatrix  $\mathbf{K}_{IJges}^{\phi\phi}$  kann aufgrund der additiven Ergänzung getrennt nach dem Eintrag für die zusätzliche Berücksichtigung der Leitungsmechanismen  $\mathbf{K}_{IJLC}^{\phi\phi}$  und dem bereits vorhandenen Eintrag aufgeteilt werden  $\mathbf{K}_{IJ}^{\phi\phi}$ .

$$\mathbf{K}_{IJLC}^{\phi\phi} = \int_{\Omega^e} \mathbf{b}_I^{T\phi} \left( \frac{\partial \mathbf{J}^t}{\partial \mathbf{E}} \right) \mathbf{b}_J^\phi dV = \int_{\Omega^e} \mathbf{b}_I^{T\phi} \mathbf{C}_{LC}^{\phi\phi} \mathbf{b}_J^\phi dV \quad (6.67)$$

$$\mathbf{K}_{IJges}^{\phi\phi} = \mathbf{K}_{IJ}^{\phi\phi} + \mathbf{K}_{IJLC}^{\phi\phi} \quad (6.68)$$

Die Gesamtsteifigkeitsmatrix ist bei zusätzlicher Berücksichtigung der Leckströme immer noch symmetrisch, was den Rechenaufwand für das Lösen des Systems nicht verändert:

$$\mathbf{K}_{IJ}^{e,m} = \begin{bmatrix} \mathbf{K}_{IJ}^{uu} & \mathbf{K}_{IJ}^{uP} & \mathbf{K}_{IJ}^{u\phi} \\ \mathbf{K}_{IJ}^{Pu} & \mathbf{K}_{IJ}^{PP} & \mathbf{K}_{IJ}^{P\phi} \\ \mathbf{K}_{IJ}^{\phi u} & \mathbf{K}_{IJ}^{\phi P} & \mathbf{K}_{IJges}^{\phi\phi} \end{bmatrix} \quad (6.69)$$

Für den zweiten Anteil der Gesamtsteifigkeitsmatrix aus Gleichung (6.57), welcher bezüglich des Gradienten des Ordnungsparameters entsteht, gilt:

$$\mathbf{K}_{IJ}^{e,\nabla P} = \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{K}_{IJ}^{\nabla P} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{bmatrix} \quad (6.70)$$

Der Eintrag lässt sich schreiben als:

$$\mathbf{K}_{IJ}^{\nabla P} = \int_{\Omega^e} (\mathbf{B}_I^P)^T \frac{\partial \boldsymbol{\xi}}{\partial \text{Grad } \mathbf{P}} \mathbf{B}_J^P dV = \int_{\Omega^e} (\mathbf{B}_I^P)^T \mathbf{C}^{\nabla P} \mathbf{B}_J^P dV \quad (6.71)$$

Die zeitliche Änderung des Ordnungsparameters Gleichung (6.57) wird nur durch einen Eintrag in Abhängigkeit der Polarisation beschrieben:

$$\mathbf{D}_{IJ}^e = \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{D}_{IJ}^{PP} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & 0 \end{bmatrix} \quad (6.72)$$

Ausführlich lautet dieser Eintrag:

$$\mathbf{D}_{IJ}^{PP} = \int_{\Omega^e} N_I \mathbf{M}_\beta N_J dV \quad (6.73)$$

mit  $\mathbf{M}_\beta = \mathbf{1}_2 \beta$  als Matrix für den inversen Mobilitätstensor  $\beta$ , wobei  $\mathbf{1}_2$  die  $2 \times 2$ -Einheitsmatrix darstellt. Damit das Modell zur Vorhersage der mikrostrukturellen Entwicklung verwendet werden kann, müssen die maßgebenden Gleichungen in der Zeit integriert werden. Übliche Problemstellungen werden im mechanisch quasi-statischen Zustand approximiert, sodass die Trägheit des Materials  $\ddot{\mathbf{u}}$  vernachlässigt wird. In Gleichung (5.76) wurde dieser Anteil bereits ignoriert. Die allgemein gültigen Vorgehensweisen für solche mechanisch quasi-statischen Fälle werden hier ebenfalls angewendet.

Die Elementsteifigkeitsmatrix  $\mathbf{K}_{IJ}^e$  setzt sich aus den Matrizen  $\mathbf{K}_{IJ}^{e,m}$  und  $\mathbf{K}_{IJ}^{e,\nabla P}$  zusammen:

$$\mathbf{K}_{IJ}^e = \begin{bmatrix} \mathbf{K}_{IJ}^{uu} & \mathbf{K}_{IJ}^{uP} & \mathbf{K}_{IJ}^{u\phi} \\ \mathbf{K}_{IJ}^{Pu} & \mathbf{K}_{IJ}^{PP} + \mathbf{K}_{IJ}^{\nabla P} & \mathbf{K}_{IJ}^{P\phi} \\ \mathbf{K}_{IJ}^{\phi u} & \mathbf{K}_{IJ}^{\phi P} & \mathbf{K}_{IJ}^{\phi\phi} \end{bmatrix} \quad (6.74)$$

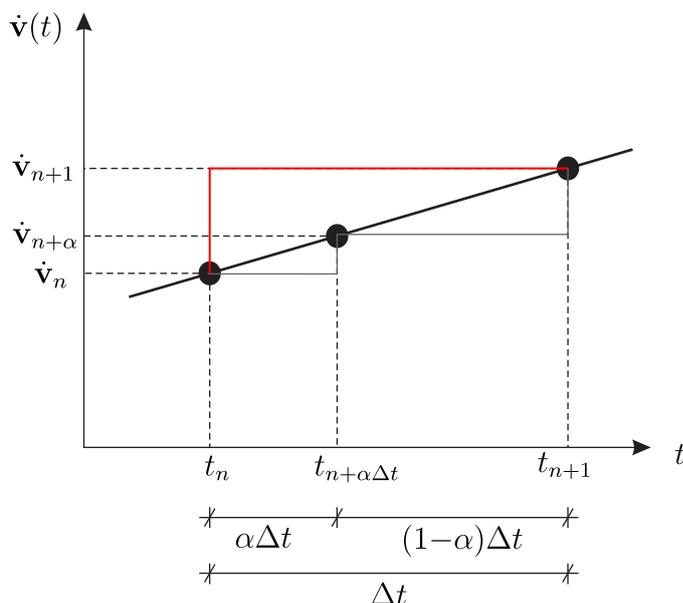
Weiter ist in Gleichung (6.57) die zeitliche Änderung des Ordnungsparameters aufgeführt. Dieser Eintrag entsteht durch die erweiterte Ginzburg-Landau Gleichung (5.60). Da diese Matrix, Gleichung (6.74), von der zeitlichen Änderung der Primärvariablen abhängt wird eine Zeitdiskretisierung eingeführt und implizit gelöst. Als implizites Lösungsverfahren wird das Euler-Rückwärts-Verfahren verwendet. Das Euler-Rückwärts Verfahren ist ein Spezialfall der allgemeinen Trapezmethode, wobei für den Parameter  $\alpha = 1$  gilt. In Abbildung 6.3 ist die allgemeine Trapezmethode dargestellt, in rot ist der Spezialfall des Euler-Rückwärts Verfahrens eingezeichnet.

Für das Euler-Rückwärts Verfahren wird folgender Anfangswert benötigt, von dem ausgehend die weitere Berechnung der zeitabhängigen Werte erfolgt:

$$\mathbf{v}(\mathbf{0}) = \mathbf{v}_0 \quad (6.75)$$

Die Änderungen des Verschiebungsvektors ergeben sich aus dem allgemeinen Trapezverfahren mit Einsetzen von  $\alpha = 1$  zu:

$$\dot{\mathbf{v}}_{n+\alpha} = (1 - \alpha)\dot{\mathbf{v}}_n + \alpha\dot{\mathbf{v}}_{n+1} \quad (6.76)$$



**Abbildung 6.3:** Schematische Darstellung der verallgemeinerten Trapezmethode, rot eingezeichnet ist das Euler-Rückwärts Verfahren mit  $\alpha = 1$ .

Ersichtlich ist hierbei, dass kein Anfangswert  $\dot{\mathbf{v}}(0)$  erforderlich ist. Für den nächsten Zeitschritt  $t + \Delta t$  ergibt sich für die Geschwindigkeit  $\mathbf{v}_{n+1}$ :

$$\begin{aligned}\mathbf{v}_{n+1} &= (1 - \alpha)\dot{\mathbf{v}}_n\Delta t + \alpha\dot{\mathbf{v}}_{n+1}\Delta t + \mathbf{v}_n \\ &= 0 \cdot \dot{\mathbf{v}}_n\Delta t + \dot{\mathbf{v}}_{n+1}\Delta t + \mathbf{v}_n \\ &= \dot{\mathbf{v}}_{n+1}\Delta t + \mathbf{v}_n\end{aligned}\quad (6.77)$$

Nach Umstellung der Gleichung (6.77) gilt:

$$\mathbf{v}_{n+1} := \mathbf{v}_n + \dot{\mathbf{v}}_{n+1}\Delta t \quad \Leftrightarrow \quad \dot{\mathbf{v}}_{n+1} = \frac{\mathbf{v}_{n+1} - \mathbf{v}_n}{\Delta t}\quad (6.78)$$

Die diskretisierten Formeln für die Polarisationsraten und die grundlegenden Lösungsfelder lauten wie folgt:

$$\dot{\mathbf{u}}_{n+1} = \frac{\mathbf{u}_{n+1} - \mathbf{u}_n}{\Delta t}\quad (6.79)$$

$$\dot{\mathbf{P}}_{n+1} = \frac{\mathbf{P}_{n+1} - \mathbf{P}_n}{\Delta t}\quad (6.80)$$

$$\dot{\mathbf{D}}_{n+1} = \frac{\mathbf{D}_{n+1} - \mathbf{D}_n}{\Delta t}\quad (6.81)$$

$$\dot{\phi}_{n+1} = \frac{\phi_{n+1} - \phi_n}{\Delta t}\quad (6.82)$$

Die vollständige Elementsteifigkeitsmatrix lautet somit:

$$\mathbf{K}_{IJ}^e = \begin{bmatrix} \mathbf{K}_{IJ}^{uu} & \mathbf{K}_{IJ}^{uP} & \mathbf{0} \\ \mathbf{K}_{IJ}^{Pu} & \mathbf{K}_{IJ}^{PP} + \mathbf{K}_{IJ}^{\nabla P} + \mathbf{D}_{IJ}^{PP}/\Delta t & \mathbf{K}_{IJ}^{P\phi} \\ \mathbf{0} & \mathbf{K}_{IJ}^{\phi P} & \mathbf{K}_{IJ}^{\phi\phi} \end{bmatrix}\quad (6.83)$$

Unter Beachtung der vorherigen Gleichung ergibt sich für das Elementresiduum aus Gleichung (6.48):

$$\delta \mathbf{v}^{eT} \mathbf{r}^e = \delta \mathbf{v}^{eT} \left( \mathbf{r}^{e,m} + \frac{\mathbf{r}^{e,t}}{\Delta t} \right) \quad (6.84)$$

Die Linearisierung aus Gleichung (6.57) ist:

$$\begin{aligned} \Delta \delta \Pi^e &= \sum_{I=1}^9 \sum_{J=1}^9 \delta \mathbf{v}_I^T \left[ \mathbf{K}_{IJ}^{e,m} + \mathbf{K}_{IJ}^{e,\nabla P} + \mathbf{D}_{IJ}^e / \Delta t \right] \Delta \mathbf{v}_J \\ &= \sum_{I=1}^9 \sum_{J=1}^9 \delta \mathbf{v}_I^T \mathbf{K}_{IJ}^e \Delta \mathbf{v}_J = \delta \mathbf{v}^{eT} \mathbf{K}_T^e \Delta \mathbf{v}^e \end{aligned} \quad (6.85)$$

Durch Assemblierung über die Elemente  $E$  wird die Gesamtsteifigkeitsmatrix  $\mathbf{K}$ , das Residuum  $\mathbf{R}$  und der Gesamtvektor  $\mathbf{v}$  der Knotenfreiheitsgrad erstellt:

$$\mathbf{R} = \bigcup_{e=1}^E \mathbf{r}^e \quad \mathbf{K} = \bigcup_{e=1}^E \mathbf{K}^e \quad (6.86)$$

$$\delta \mathbf{v} = \bigcup_{e=1}^E \delta \mathbf{v}^e \quad \Delta \mathbf{v} = \bigcup_{e=1}^E \Delta \mathbf{v}^e \quad (6.87)$$

Das Gleichungssystem der Variationsformulierung ist in linearisierter Form gegeben als:

$$\Delta \delta [\Pi(\mathbf{v}, \delta \mathbf{v}, \Delta \mathbf{v})] = 0 \quad \iff \quad \delta \mathbf{v}^T (\mathbf{R} + \mathbf{K} \Delta \mathbf{v}) = 0 \quad (6.88)$$

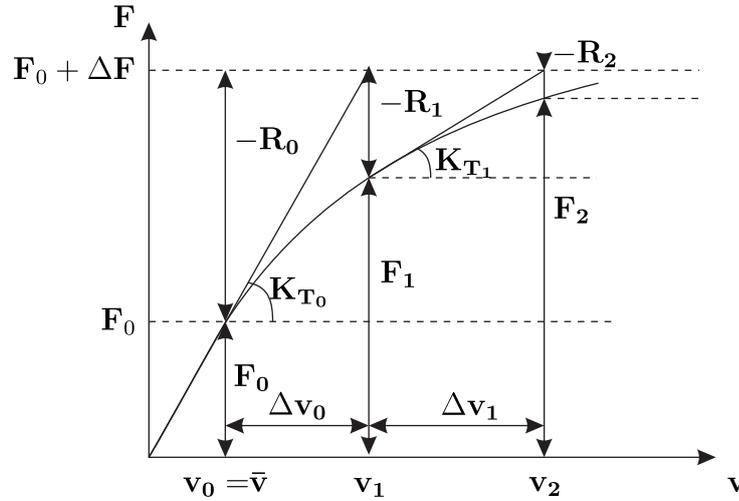
Wie auch vorab bei der Variationsformulierung des Substrats ist die Testfunktion beliebig, aber ungleich null. Somit muss ebenfalls der Klammerausdruck zu null werden und das zu lösende Gleichungssystem lautet:

$$\mathbf{R} + \mathbf{K}^T \Delta \mathbf{v} = 0 \quad \iff \quad \mathbf{K} \Delta \mathbf{v} = -\mathbf{R} \quad (6.89)$$

Zur Lösung dieses Gleichungssystems wird das nachfolgend aufgeführte Newton-Verfahren verwendet.

## 6.4 Newton-Raphson-Verfahren

Das Lösen der Variationsformulierung mithilfe der Finiten-Elemente-Methode entspricht im Wesentlichen einer standardisierten Vorgehensweise. In der nichtlinearen Strukturmechanik kann zur Lösung des nichtlinearen Gleichungssystems das bekannte Newton-Verfahren angewendet werden, so auch in dieser Arbeit. Hierbei handelt es sich grundsätzlich um eine Nullstellensuche der Ausgangsgleichung, dem Prinzip der virtuellen Verschiebungen. Die inneren Kräfte werden im



**Abbildung 6.4:** Schematischer Ablauf des Newton-Raphson-Verfahrens.

Vektor  $\mathbf{F}_i$  zusammengefasst, die äußeren Kräfte als  $\mathbf{P}$  und  $\mathbf{K}_i$  ist die Tangente im berechneten Schritt. Die Inkremente der Primärvariablen  $\Delta \mathbf{v}$  werden unter Berücksichtigung der Randbedingungen ermittelt. Eine schematische Darstellung des Verfahrensablaufs ist in Abbildung 6.4 gegeben. Für das Newton-Verfahren werden die äußeren Lasten in einzelne Lastschritte unterteilt, damit für jeden dieser Lastschritte  $i$  die zugehörigen Primärvariablen iterativ ermittelt werden können:

$$\mathbf{K}_{T_i}(\mathbf{v}_i) \Delta \mathbf{v}_i = -\mathbf{R}_i(\mathbf{v}_i) \quad (6.90)$$

Anfangs wird ein Startwert des Vektors  $\mathbf{v}_0 = \bar{\mathbf{v}}$  vorgegeben. Die Vektoren  $\mathbf{R}_i$  und  $\mathbf{K}_i$  sind von den Primärvariablen des jeweiligen Iterationsschritts  $\mathbf{v}_i$  abhängig und müssen während der Iteration angepasst werden. Anhand des Inkrements  $\Delta \mathbf{v}_i$  während eines Iterationsschritts ergibt sich die neue Primärvariable  $\mathbf{v}_{i+1}$  für den jeweils nächsten Zeitschritt:

$$\mathbf{v}_{i+1} = \mathbf{v}_i + \Delta \mathbf{v}_i \quad (6.91)$$

Die Differenz der inneren Kraft  $\mathbf{F}_i$  und der äußeren Kraft  $\mathbf{P}$  ergeben den residualen Vektor  $\mathbf{R}_i$ ,  $\mathbf{R}_i = \mathbf{F}_i(\mathbf{v}_i) - \mathbf{P}$ . Der Vektor  $\mathbf{R}_i$  wird oftmals auch als Fehlkraftvektor bezeichnet. Wenn  $\mathbf{R}_i = \mathbf{0}$  gilt, dann ist die rechte Seite der Gleichung (6.90) gleich null und es gibt keinen Zuwachs mehr. Dies ist gleichbedeutend mit der Nullstelle der Taylorreihe im aktuellen Gleichgewichtszustand in Richtung  $\Delta \mathbf{v}_i$  linearisiert und nach dem linearen Glied abgebrochen wird. Innerhalb des Verfahrens müssen demzufolge mehrere lineare Gleichungssysteme gelöst werden. Eine Iterationsschleife wird beendet, wenn die Norm des Fehlkraftvektors  $\|\mathbf{R}_i\|$  einen vorab definierten Toleranzwert unterschreitet. Die äußere Kraft  $\mathbf{P}$  bleibt während einer Iterationsschleife konstant. Bei dieser lastgesteuerten Herangehensweise wird ein steter Zuwachs der äußeren Last gefordert. Ein anderes

---

Pfadverfolgungsalgorithmen sind z.B. das Bogenlängenverfahren. An dieser Stelle wird auf weiterführende Literatur verwiesen, u.a. WAGNER ET AL. [86], RIKS [72]. Das Newton Verfahren wird so oft angewendet, bis ein vorab angegebenes Konvergenzkriterium erreicht wird und eine Lösung für die Freiheitsgrade zum Zeitschritt  $t_i + \Delta t$  berechnet wurde. Mit diesem neuen Satz bekannter Knotenfreiheitsgrade wird das nächste Lastinkrement  $t_{i+1}$  berechnet.

## 7 Numerische Beispiele

Im nachfolgenden Kapitel wird der Einfluss der verschiedenen Leitungsmechanismen anhand geeigneter numerischer Beispiele veranschaulicht und diskutiert. Mithilfe der Ergebnisse sollen Aussagen über die elektrische und mechanische Grenzbeanspruchung, bis zu der eine funktionsfähige Domänentopologie erhalten bleibt, erörtert werden. Der Einfluss der jeweiligen Leitungsmechanismen wird im Hinblick auf die sich einstellen Polarisationsdomänen diskutiert.

Dieser Arbeit liegen keine selbst ausgewerteten Versuchsdaten vor, daher werden zu den jeweiligen Simulationen die verwendeten Materialparameter separat angegeben.

Die Materialparameter unterscheiden sich je nach Literatur gemäß dem jeweiligen Versuchsaufbau, daher sind die Materialparameter in Tabelle 7.1 und Tabelle 7.2 als Richtwerte anzusehen.

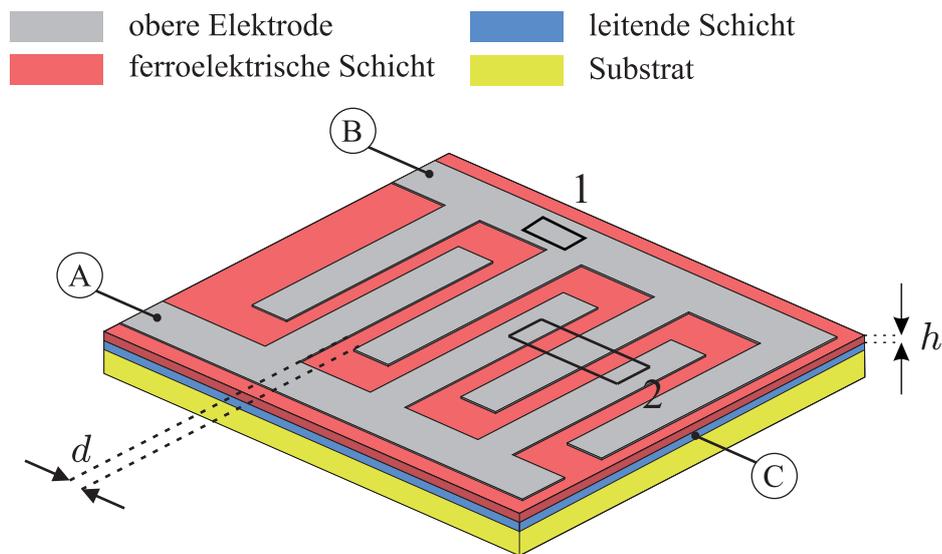
charak. elektr. Leitfähigkeit $\Gamma_c$	Literatur
$10^{-8} (1/\Omega m)$	[61]
$10^{-12} (1/\Omega m)$	[76]

**Tabelle 7.1:** Materialparameter für Ohm'sches Gesetz nach Literatur MANVCIC ET AL. [61] und SCHWAAB [76].

stat. dielektr. Konstante $\varepsilon_r$	Elektronenmobilität $\mu$	Literatur
185	$10^{-5} (m^2/V s)$	[79]
–	$0.001 (cm^2/V s) = 10^{-7} (m^2/V s)$	[81]

**Tabelle 7.2:** Materialparameter für die SCLC Formulierung nach Literatur SINGH ET AL. [79] und SUN ET AL [81].

Das favorisierte Modell des Nanogenerators ist in Abbildung 7.1 dargestellt. Die oberen Elektroden, hier mit A und B gekennzeichnet, bilden Sammelpunkte zur Beladung des Nanogenerators oder zur Messung von entstehenden Ladungsunterschieden. Der Potenzialunterschied des elektrischen Feldes kann zwischen den beiden oberen Elektroden oder jeweils zwischen einer oberen und der leitenden unteren Schicht gemessen werden. Der Abstand  $d$  zwischen den oberen Elektroden und die Schichtdicke  $h$  der ferroelektrischen Schicht sind wichtige geometrische



**Abbildung 7.1:** Favorisiertes Modell des Nanogenerators mit strukturierter oberer Elektrode. (nicht maßstäblich).

Kenngrößen des Nanogenerators und werden bezüglich ihrer Variation numerisch untersucht.

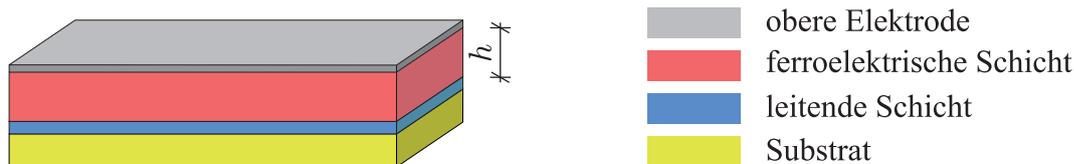
Das Modell des Nanogenerators in Abbildung 7.1 kann in folgenden Schnitten in zweidimensionalen Ansichten simuliert und analysiert werden:

Bei **Schnitt 1**, siehe Abbildung 7.2(a), ist das ferroelektrische Material zwischen einer oberen und unteren jeweils durchlaufenden Elektrode geklemmt. Dieses Modell stellt einen Plattenkondensator dar, der in Kapitel 7.1 näher beschrieben wird. Mit diesem werden die charakteristischen Hysteresekurven erzeugt. Zudem wird in diesem Beispiel der Einfluss der Schichtdicke  $h$  untersucht. Weiter wird anhand des Plattenkondensatorbeispiels der Be- und Entladungsvorgang bestimmt und anhand deren die Implementierung der Leckstrommechanismen mit Angaben aus der Literatur verglichen. Es wird ein Ausschnitt in der Mitte des Modells analysiert, daher sind keine Randeinflüsse vorherrschend und es existiert ein ebener Verzerrungszustand. Die Polarisierung in Dickenrichtung wird zu Null gesetzt und somit wird ein rein zweidimensionaler Zustand betrachtet. Die linken und rechten Ränder des Ausschnitts werden als periodische Randbedingungen ausgebildet. Dies bedeutet, die Freiheitsgrade werden jeweils miteinander gekoppelt. Der jeweilige Wert für die Verschiebung, Polarisierung und das elektrische Potential sind an beiden Rändern gleich. Explizit wird die mechanische Verschiebung vom linken Rand mit der am rechten Rand gleichgesetzt, ebenso auch die Polarisationsfreiheitsgrade und das elektrische Potential. Die Entladungszyklen werden einmal durchlaufen, wobei hier eine kurze Beladung vorangeht. Die Entladung wird zur Verifizierung der Implementierung des zusätzlich berücksichtigten Lei-

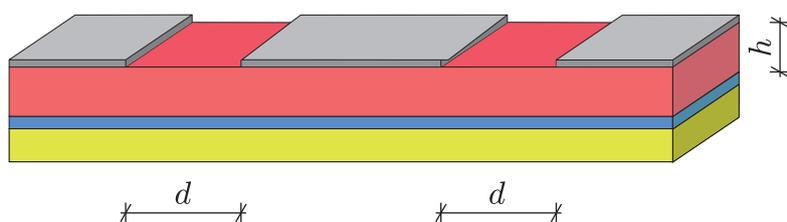
tungsmechanismus genutzt.

Der **Schnitt 2**, siehe Abbildung 7.2(b), ist ein komplexeres Beispiel und wird in Kapitel 7.2 ausführlicher diskutiert. Hierbei handelt es sich um einen symmetrischen Ausschnitt des Generators. Es ist ebenfalls ein ebener Verzerrungszustand vorhanden und an den Ränder links sowie rechts werden die Freiheitsgrade zu periodischen Randbedingungen gekoppelt. Die oberen Elektroden sind um den Abstand  $d$  unterbrochen und liegen ineinandergreifend auf dem Ferroelektrikum auf, wohingegen die untere leitende Schicht weiterhin durchlaufend ist. Die untere leitfähige Schicht ist geerdet, das elektrische Potential wird hier zu Null gesetzt. Das elektrische Potential an den oberen Elektroden ist aufgrund der Strukturierung abwechselnd gepolt. Bei diesem Beispiel sind der Abstand  $d$  zwischen den oberen Elektroden und die Schichtdicke  $h$  des Ferroelektrikums wichtige geometrische Kenngrößen, welche hinsichtlich des Leckstromverhaltens näher untersucht werden. Sofern die Belastung über das elektrische Potential an den oberen Elektroden gesteuert wird und vorab keine Verzerrung im Substrat aufgebracht wird, kann über eine geometrische Abhängigkeit der Kenngrößen  $d$  und  $h$  eine elektrische Grenzbeanspruchung ermittelt werden. Wird andererseits die Verzerrung im Substrat als Belastung auf das Modell aufgebracht, so wird eine mechanische Grenzbeanspruchung ermittelt. Die Belastung erfolgt bei den im Schnitt 2 untersuchten Geometrien anhand mehrerer Zyklen der elektrischen oder mechanischen Beanspruchung. Ziel hierbei ist die Untersuchung der Entwicklung der Polarisationszustände im Verlaufe der Zyklen.

a) Schnitt 1:



b) Schnitt 2:



**Abbildung 7.2:** Ansichten des Nanogeneratormodells, (a) der Plattenkondensator, (b) symmetrischer Ausschnitt mit unterbrochener oberer Elektrode aus Abbildung 7.1 (nicht maßstäblich).

Ohne einen dielektrischen Durchschlag bzw. Materialversagen zu erzeugen, ist das Ziel dieser Arbeit, ein Modell zu entwickeln, mithilfe dessen numerische Untersuchungen durchgeführt und die maximal ertragbaren Lastwechsel für die elektrische und mechanische Grenzlast ermitteln werden können. Als elektrische Grenzbeanspruchbarkeit wird das maximal ertragbare elektrische Potential bestimmt, die mechanische Grenzbeanspruchbarkeit ergibt sich aus der maximal aufzubringenden Verzerrung in das Substrat. Die Grenzbeanspruchbarkeit wird bestimmt, indem mehrere Belastungszyklen mit gewählten maximalen Werten für das elektrische Potential bzw. die mechanische Deformation durchgeführt werden. Ein Umklappen der Polarisationsstopologie in einen metastabilen Zustand signalisiert, dass die Grenzbeanspruchbarkeit erreicht ist. Die Funktionsfähigkeit des Nanogenerators ist gegeben, wenn die Polarisationsdomänen entsprechend der mechanischen Anregung um einen stabilen Zustand schwanken. Die Evolution bezeichnet die Herstellung des Ausgangszustands der Polarisierung, bevor die zyklische Belastung aufgebracht wird.

Bezüglich der Größe der Finiten Elemente sei an dieser Stelle auf die Arbeit von KRAUSS [54] verwiesen. Generell ist eine kleine Elementgröße erforderlich, um die Domänenwände zwischen den Polarisationsdomänen realitätsnah abgebildet werden kann. In dieser Arbeit wird mit quadratischen 9-Knoten-Elementen für das Ferroelektrikum und Substratmaterial gerechnet. In [55] wurde gezeigt, dass Pinning Effekte der Polarisierung insbesondere an den Phasengrenzen auftreten können. Als Pinning Effekt wird hierbei die Domänenwandmobilität der Polarisierung beschrieben, welche an den Polarisierungsgrenzen aufgrund der Mikrostrukturentwicklung zum Stoppen kommen kann. Um den Einfluss der Elementgröße und das Verhalten an den Polarisierungsgrenzen zu berücksichtigen wird, wie in [55] gezeigt, die Elementabmessungen entsprechend klein gewählt. Auch aus diesem Grund ist die Wahl quadratischer Ansatzfunktionen sinnvoll.

Die hier gezeigten Modelle wurden mit dem in Kapitel 6 vorgestellten Materialmodell innerhalb des Finite-Elemente-Programms FEAP [82] berechnet, welches am Institut für Baustatik des KIT weiterentwickelt wird.

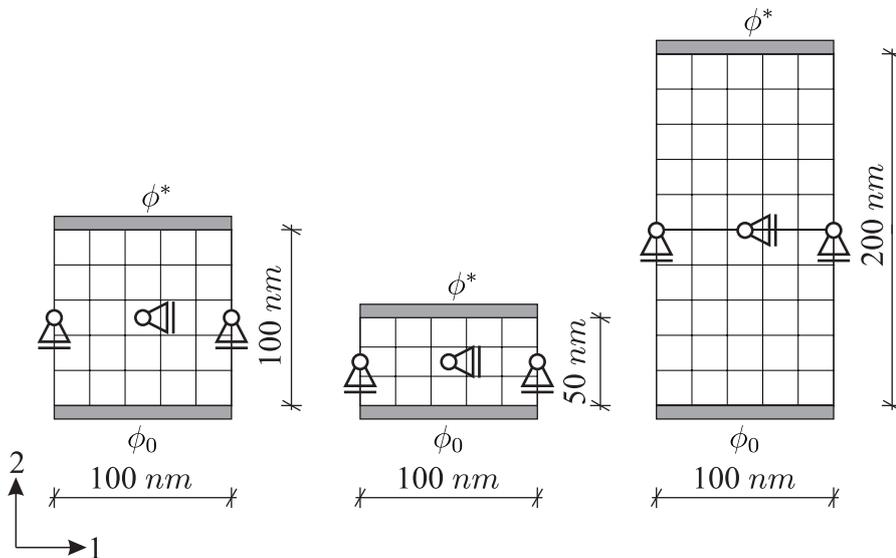
## 7.1 Plattenkondensator

Zur Validierung des Materialmodells werden in diesem Abschnitt Testszenarien vorgestellt, welche die Eigenschaften unter elektrischer Beanspruchung ermitteln. Sie eignen sich dazu sowohl die Fähigkeiten des neuen Materialmodells zu untersuchen und bieten die Möglichkeit für den Vergleich und die Validierung bereits existierender Modelle.

Beim Modell des Plattenkondensators handelt es sich um ein elektrisch eindimen-

sionales Problem, wobei der Plattenkondensator mit jeweils einer durchlaufenden oberen und unteren Elektrode bzw. leitenden Schicht aufgebaut ist, siehe Abbildung 7.2(a). Es stellt sich innerhalb des Kondensators eine Monodomäne ein.

Die Randbedingungen werden für die Simulationen der Hysteresekurven und der Be- bzw. Entladungssituation des Kondensators jeweils angepasst und an entsprechender Stelle angegeben. Es wird jeweils ein Ausschnitt mit bestimmten Abmessungen aus dem Nanogeneratormodell betrachtet. Die Auswirkungen verschiedener Verhältnisse von Breite  $b$  zu Schichtdicke  $h$  in  $[nm]$  des ferroelektrischen Materials sind nachfolgend Gegenstand der Berechnungen. Folgende Ausschnitte aus dem Plattenkondensator wurden untersucht und in Abbildung 7.3 mit den zugehörigen Randbedingungen schematisch dargestellt:  $b/h = 100/100$ ,  $b/h = 100/200$ ,  $b/h = 200/100$ ,  $b/h = 100/50$  und  $b/h = 50/100$ . Somit ergeben sich drei unterschiedliche Seitenverhältnisse:  $A^{100} = A_{\square}$ ,  $A^{50} = 1/2 \cdot A_{\square}$  und  $A^{200} = 2 \cdot A_{\square}$ . Als Referenzwert wird die quadratische Simulation mit dem Seitenverhältnis  $b/h = 100/100$ , d.h. mit dem Seitenverhältnis  $A_{\square} = 1$  genommen. Weitere Berechnungen beziehen sich jeweils auf diese Referenzwerte.



**Abbildung 7.3:** Randbedingungen und Seitenverhältnisse für die Simulationen der Hysteresekurven mit statisch bestimmter Lagerung. Für die Geometrieverhältnisse  $b/h = 50/100$  und  $b/h = 200/100$  sind die Finite-Element Netze entsprechend. Die untere Elektrode ist geerdet  $\phi_0 = 0$ .

Beim Aufladen des Kondensators wird das elektrische Potential an der oberen Elektrode stetig gesteigert, wohingegen beim Entladen des Kondensators nur kurz eine elektrische Ladung auf der oberen Elektrode angelegt und sofort wieder abgesetzt wird. Es wird untersucht wie sich das elektrische Feld im Kondensator bei

den unterschiedlichen Leckstrommechanismen verhält. Der Entladevorgang wird genutzt, um einen Vergleich zur analytischen Lösung zu erhalten, die die Implementierung der Leitungsmechanismen verifiziert. Beim Beladevorgang werden Literaturangaben nachgebildet und der Einfluss der Materialparameter herausgearbeitet.

Mit der Beladung des Kondensators werden die aus der Literatur [21, 27, 67, 71, 79, 81] bekannten Steigungen in doppelt logarithmischer Darstellung aus Versuchsergebnissen nachgefahren und somit unter anderem die Implementierung der Leckstromdichte in das Phasenfeldmodell verifiziert.

Zudem wird der numerisch ermittelte Verlauf des elektrischen Feldes während der Entladung mit der jeweils analytischen Lösung verglichen und stellt damit eine weitere Verifizierung des Phasenfeldmodells dar.

Zu beachten ist, dass die Materialparameter in den Tabellen 7.1 und 7.2 aus der Literatur entnommen sind. Die darin verwendeten Materialien bzw. Schichtdicken und -aufbauten sind mit dem in dieser Arbeit untersuchten Modell aus Abbildung 7.1 nicht exakt vergleichbar. Die Ergebnisse bei Vergleichen mit der Literatur sind daher nur als Richtwerte zu verstehen. Die Materialparameter für das Ferroelektrikum sind in Anhang A aufgeführt.

Es wird der Einfluss des Seitenverhältnisses des Kondensators mit Hinblick auf die Schichtdicke  $h$  des Nanogenerators analysiert. Des Weiteren werden Untersuchungen hinsichtlich der Freiheitsgrade und deren Kopplung durchgeführt. Anfangs werden die Simulationen nur mit dem Freiheitsgrad des elektrischen Potentials, d.h. ohne mechanische Einflüsse, durchgeführt. Zusätzliche Studien bezüglich der Kopplung und der Abhängigkeit des elektrischen Feldes und der materiellen Polarisation werden ebenfalls durchgeführt, hier dann unter Berücksichtigung der mechanischen Einflüsse.

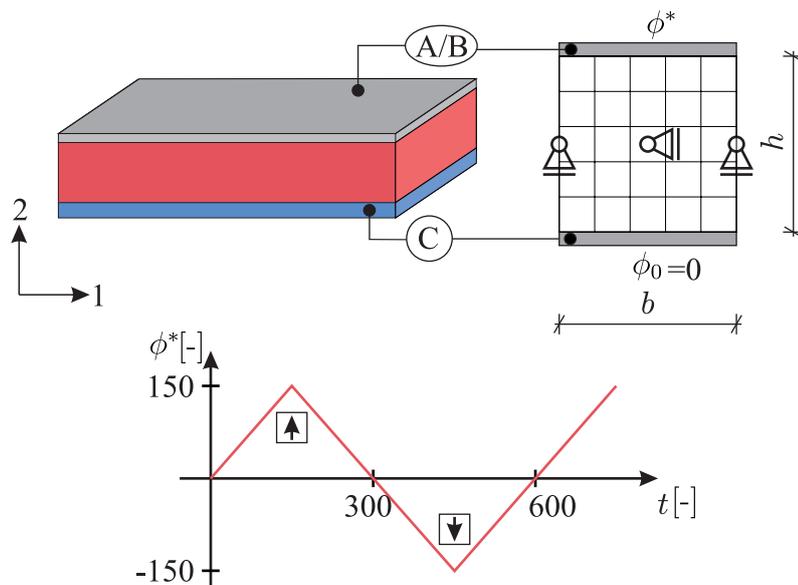
### 7.1.1 Hysteresekurven

In den folgenden Absätzen werden die klassische Hysteresekurve - Polarisation  $\mathbf{P}$  über elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  - und die Schmetterlingshysteresese - Verzerrung  $\boldsymbol{\varepsilon}$  über elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  - dargestellt. Die nachfolgenden Simulationen sind vorerst ohne Leitungsmechanismen berechnet worden.

Abbildung 7.4 stellt die Grundlagen und Randbedingungen für die berechneten Simulationen dar. Das Gebiet des ferroelektrischen Kondensatorausschnitts wird lediglich mechanisch statisch bestimmt gelagert. Das elektrische Potential an der unteren leitenden Schicht ist geerdet zu  $\phi_0 = 0$ . An der oberen Elektrode wird das elektrische Potential  $\phi^*$  zunächst linear gesteigert. Sobald keine weitere Veränderung in der Polarisation erkennbar ist, wird das elektrische Potential linear

reduziert. Nach dem Umklappen der Monodomäne in die entgegengesetzte Richtung wird das elektrische Potential wieder linear gesteigert. Diese Belastungsfolge wird mehrfach wiederholt. Die Neukurve (erste Belastung) wird nicht wieder erreicht, die ist Hystereseschleife deutlich erkennbar.

Die Last-Zeit-Kurve des elektrischen Potentials  $\phi^*$ , in Form einer Sägezahn-Kurve an der oberen Elektrode, ist schematisch unten in Abbildung 7.4 dargestellt. Ab-



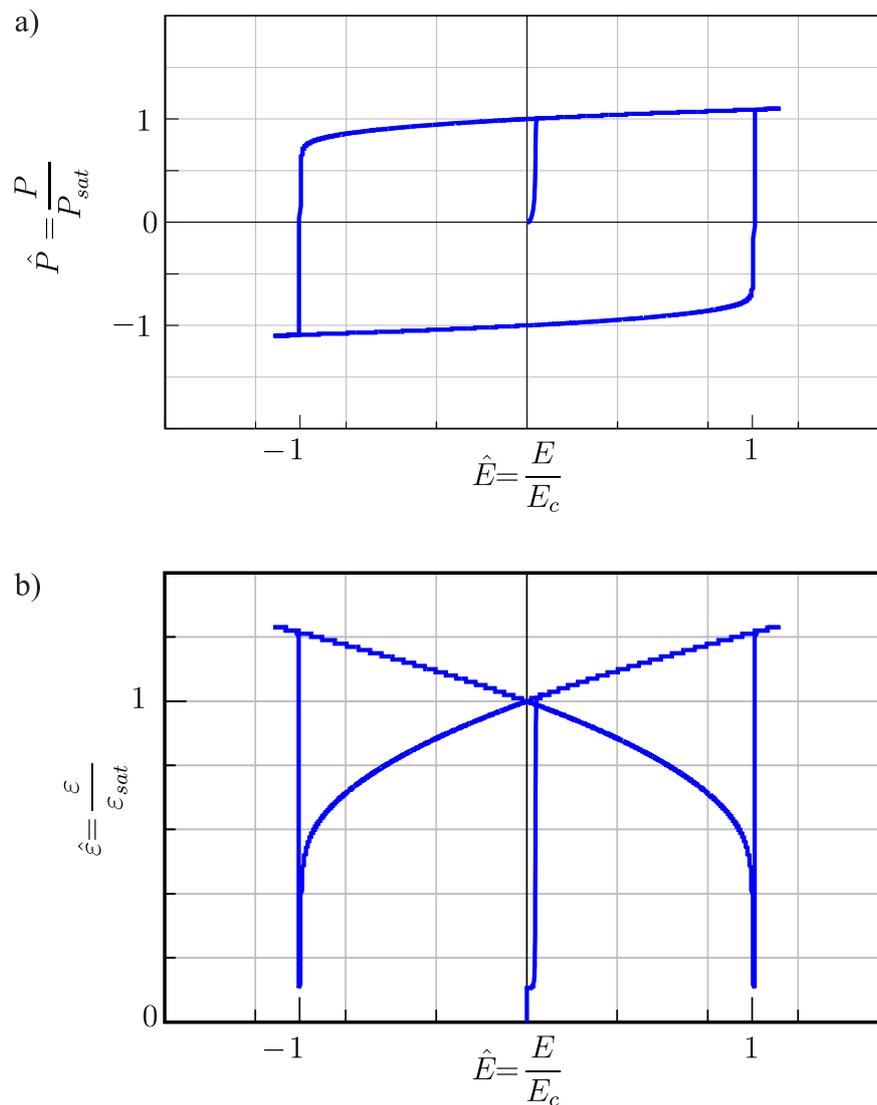
**Abbildung 7.4:** Randbedingungen für die Simulationen der Hysteresekurven, sowie die Last-Zeit-Kurve der Beladung an der oberen Elektrode.

Abbildung 7.5(a) stellt die typische Hysteresekurven dar. Die elektrische Belastung erfolgt bis ein stationärer Zustand erreicht wird.

Die Schmetterlingshysterese zeichnet die Verzerrung über dem elektrischen Feld jeweils in vertikaler Richtung ab. Hier sind ebenfalls die normierten Größen bei der gleichen Belastungsfolge aus Abbildung 7.4 dargestellt. Die numerische Belastung spiegelt das theoretische Verhalten wieder.

### 7.1.2 Beladung des Kondensators

Die Beladungssituation wird simuliert, um die in der Literatur [21,27,71,79] angegebenen Verifikationen bezüglich der Leitungsmechanismen abzubilden. Anhand von durchgeführten Experimenten werden die gemessene Leckstromdichte über dem angelegten elektrischen Feld dargestellt. Je nach gemessener Steigung der Kurve bei doppelt logarithmischer Achsenskalierung wird Rückschluss auf den vorliegenden Leitungsmechanismus gezogen.

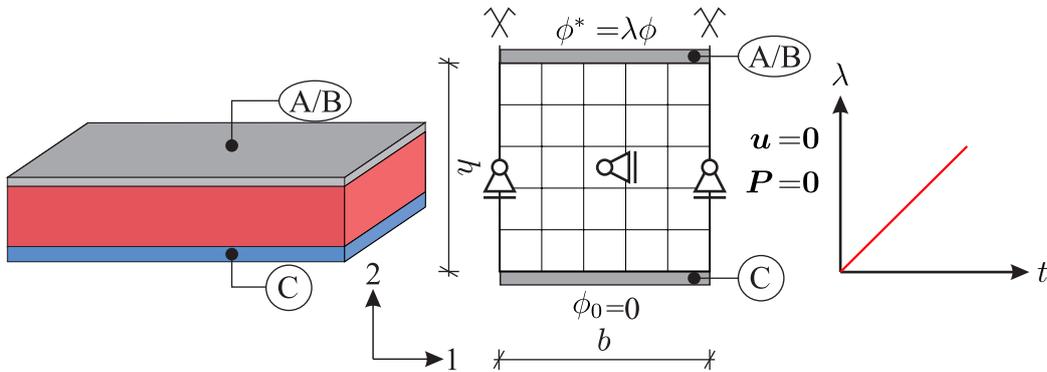


**Abbildung 7.5:** a) Hysteresekurve, b) Schmetterlingshysteresese, jeweils unter einachsialer Belastung des elektrischen Feldes.

Um die Beladungssituation des Kondensators zu simulieren, wird für das elektrische Potential eine Randbedingung an den Elektroden, analog zu einer mechanischen Verschiebung, vorgegeben. Es wird mit periodischen Randbedingungen gerechnet, um einen Ausschnitt des Nanogenerators zu simulieren. Abbildung 7.6 zeigt schematisch das berechnete Gebiet mit seinen Randbedingungen und den Verlauf des Lastfaktors  $\lambda$  für das elektrische Potential über die Zeit  $t$ . Die Belastung als elektrisches Potential an der oberen Elektrode wird linear gesteigert, wobei sich damit das elektrische Feld demzufolge erhöht.

Da das elektrische Feld  $\mathbf{E}$  senkrecht zwischen den beiden leitenden Materialien verläuft, stellt sich eine Monodomäne der Polarisation in vertikaler Richtung ein.

Für alle Kondensatorsimulationen wird die untere Elektrode geerdet  $\phi_0 = 0$ . Die Einteilung der Finiten-Element-Netze für die jeweiligen Geometrieverhältnisse richten sich nach Abbildung 7.3.



**Abbildung 7.6:** Randbedingungen und Last-Zeit Kurve des elektrischen Potentials an der oberen Elektrode für den Beladungsvorgang des Plattenkondensators. Exemplarisch ist die Geometrie  $b/h = 100/100$  dargestellt.

Anfangs wird ein quadratisches ferroelektrisches Gebiet mit unterschiedlichen Materialparametern hinsichtlich der Entwicklung der Leitungsmechanismen untersucht.

Um vorerst nur den Einfluss der Leckstromdichte zu untersuchen, werden die Randbedingungen für die Freiheitsgrade der Verschiebungen und Polarisation gehalten. Als einziger Freiheitsgrad verbleibt das elektrische Potential.

Bei Untersuchungen bezüglich der Kopplungen zwischen dem elektrischen Potential und der Polarisation stellt sich zwar eine Polarisation in vertikaler Richtung zusätzlich zum elektrischen Feld ein, aber die Kurven der Leckstromdichte  $\mathbf{J}$  über dem elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  werden davon nicht beeinflusst. Der Grund hierfür ist, dass das elektrische Feld sowie die Leckstromdichte sekundäre Größen sind und sich beide auf das elektrische Potential beziehen. Allgemein nehmen die Polarisationswerte bei vermehrter Berücksichtigung von materiellen Kopplungen leicht ab, da ein Teil der Energie für die sich einstellenden Verzerrungen benötigt wird.

In den nachfolgenden Absätzen werden für die jeweiligen Leitungsmechanismen Ohm und SCLC die entsprechenden Verläufe der Leckstromdichten über die Zeit dargestellt und mit Angaben aus der Literatur verglichen. Weitere Ausführungen bezüglich der Varianz der Seitenverhältnisse und dem Einfluss der Polarisation und Verschiebungen werden ausführlich für den Ohm'schen Ladungstransport erörtert, da das grundlegende Verhalten für den SCLC Ladungstransport ähnlich ist.

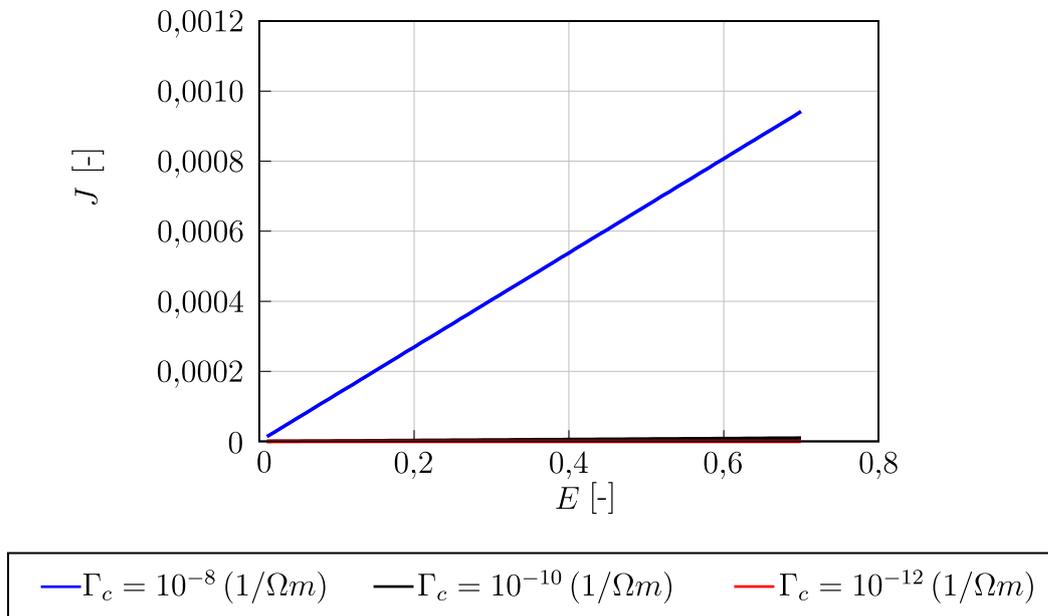
Die Leitungsmechanismen Ohm und SCLC werden vereinfacht als  $\mathbf{J} = \Gamma_c \mathbf{E}$  bzw.  $\mathbf{J} = C \mathbf{E}^2$ , mit  $C = \xi_c \cdot \kappa_0$  dargestellt, mit  $\kappa_0$  als der Vakuumsdielektrizitätszahl. Für die numerischen Berechnungen werden die Werte von  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  als charakteristische Größen in das Modell eingegeben und zusätzlich zu dem im Anhang A normierten Phasenfeldmodell im Anhang C normiert.

### Ohm'scher Ladungstransport

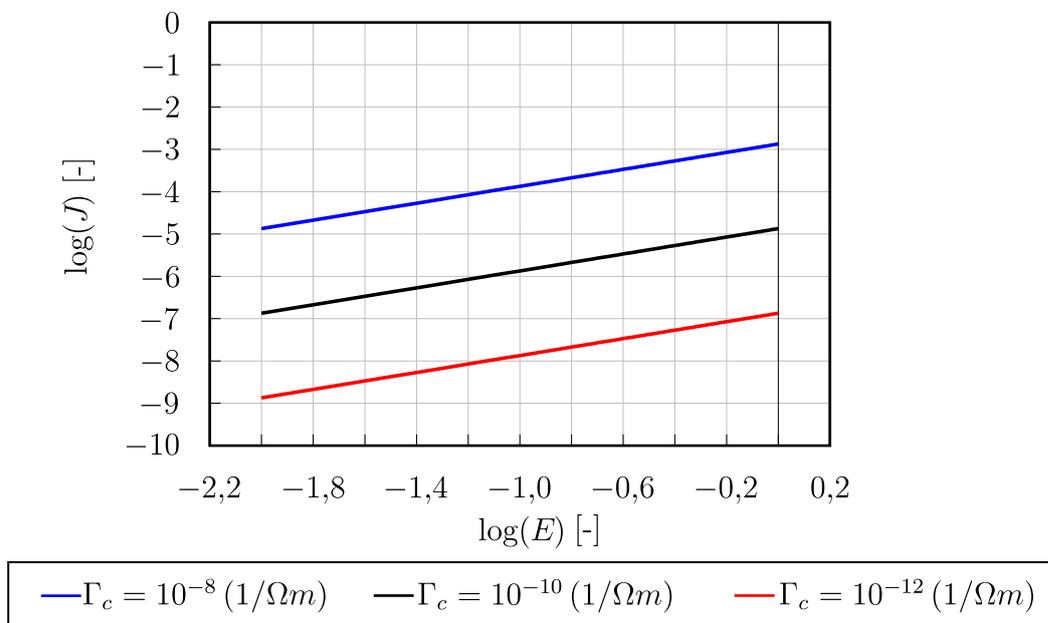
Die anfänglichen Untersuchungen bezüglich der Beladung mit dem Ohm'schen Ladungstransport werden mit einer linearen Steigerung des elektrischen Potentials an der oberen Elektrode durchgeführt. Es werden unterschiedliche Werte für den Materialparameter  $\Gamma$  untersucht und ebenso der Einfluss des Seitenverhältnisses des ferroelektrischen Kondensators analysiert.

Beim Ohm'schen Ladungstransport ist die Leckstromdichte  $\mathbf{J}$  linear vom elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  abhängig. So ist bei der Entwicklung im Beladungsprozess unter linearer Steigerung des elektrischen Potentials  $\phi$  der Graph der Leckstromdichte über dem elektrischen Feld linear. In Abbildung 7.7 sind Leckstromdichten über dem elektrischen Feld mit unterschiedlichen Materialparametern  $\Gamma_c$  für ein quadratisches Gebiet, ohne Polarisations- und Verschiebungseinfluss, dargestellt. Erkennbar ist die weite Streuung bzw. die starke Abhängigkeit des gewählten Materialparameters auf die Leckstromdichte. Aus der Literatur CHIU [21] ist bekannt, dass die Leitfähigkeit ein wichtiger Faktor bei der Bestimmung der Leckstromdichte ist. Für die Materialparameter  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$  und  $\Gamma_c = 10^{-12} (1/\Omega m)$  ist die Leckstromdichte bereits so gering, dass sie im Vergleich zur Leitfähigkeit mit  $\Gamma_c = 10^{-8} (1/\Omega m)$  nicht mehr zu unterscheiden sind.

Eine Verifizierung des Ohm'schen Ladungstransports wird unter anderem in der Literatur [21,27] mithilfe der doppelt logarithmischen Skalierung des Leckstromdichte  $\log \mathbf{J}$  über dem elektrischen Feld  $\log \mathbf{E}$  angegeben. Sofern die Steigung des Graphen 1 beträgt, handelt es sich, bei den in der Literatur durchgeführten Versuchen, um Ohm'schen Ladungstransport. Die Leckstromdichten über dem elektrischen Feld in doppelt-logarithmischer Skala sind für unterschiedliche Materialparameter  $\Gamma_c$  in Abbildung 7.8 dargestellt. Es ist jeweils eine Steigung von 1 erkennbar.



**Abbildung 7.7:** Ohm Leckstromdichte  $\mathbf{J}$  über elektrischem Feld  $\mathbf{E}$  bei unterschiedlichen Werten für  $\Gamma$  bei linearer Steigerung des elektrischen Potentials.

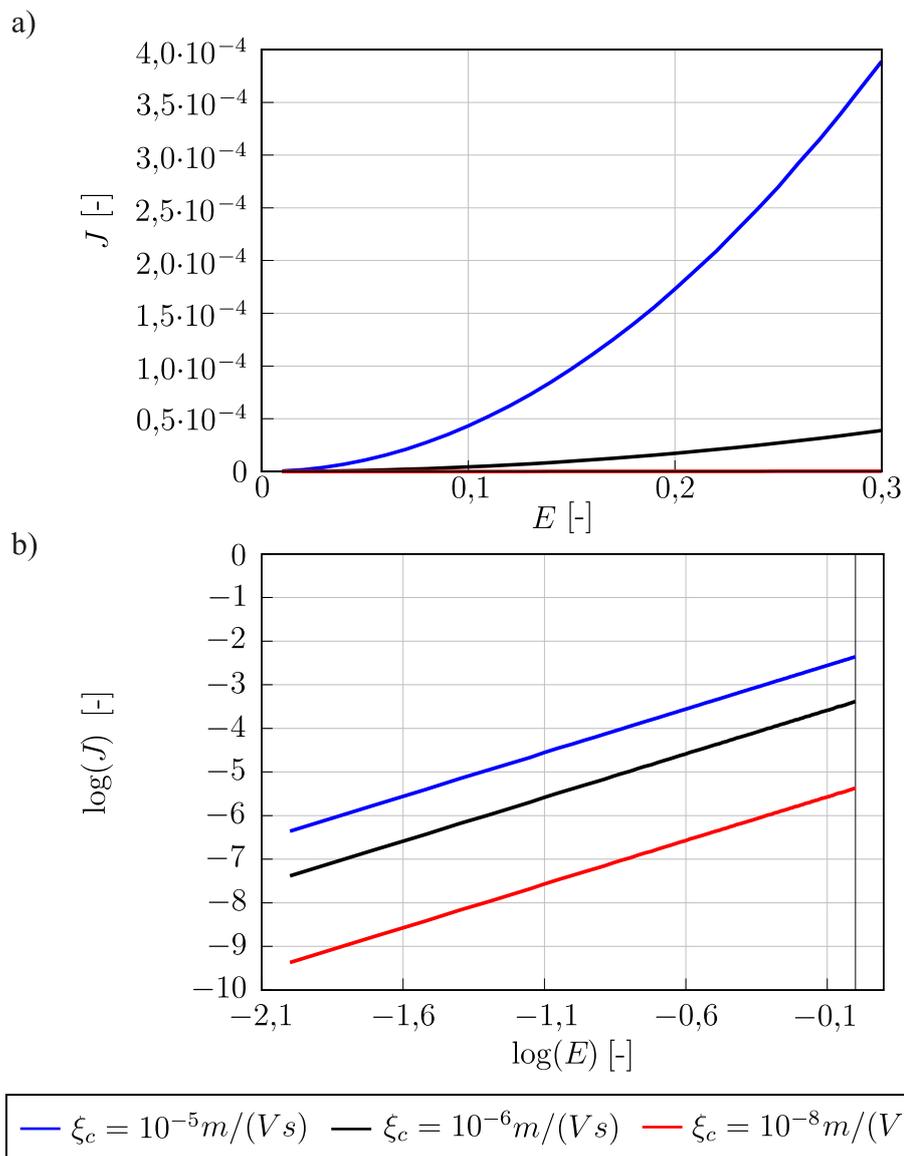


**Abbildung 7.8:** Ohm Leckstromdichte  $\mathbf{J}$  über elektrischem Feld  $\mathbf{E}$  in doppelt logarithmischer Skala bei unterschiedlichen Werten für  $\Gamma_c$ .

### SCLC Ladungstransport

Beim SCLC Ladungstransport ist die Leckstromdichte  $\mathbf{J}$  quadratisch vom elektrischen Feld  $\mathbf{E}$  abhängig. Somit ist bei der Entwicklung im Beladungsprozess unter linearer Steigerung des elektrischen Feldes der Graph der Leckstromdichte über dem elektrischen Feld eine quadratische Funktion. Die Materialparameter dieser Formulierung werden zu einem gesamten Materialparameter  $\xi_c$  zusammengefasst. Hierbei wird die dielektrische Konstante als  $\varepsilon_r = 185$ , [79], angenommen und der Gesamtwert für  $\xi_c$  wird auf die nächste Zehnerpotenz gerundet. Da für die hier aufgeführten Simulationen keine exakten Werte aus Versuchen zur Verfügung stehen, gilt diese Näherung als hinreichend genau. In Abbildung 7.9(a) sind Leckstromdichten über dem elektrischen Feld mit unterschiedlichen Materialparametern für  $\xi_c$  dargestellt. Die quadratische Form ist erkennbar, doch auch die starke Abhängigkeit des Materialparameters  $\xi_c$  selbst. Bereits bei einer Änderung um eine Zehnerpotenz von  $\xi_c = 10^{-5} \text{ m/Vs}$  zu  $\xi_c = 10^{-6} \text{ m/Vs}$  ist die Kurve der Leckstromdichte deutlich flacher.

Eine Verifizierung des SCLC Ladungstransports in der Literatur [21, 67, 71] wird mithilfe der doppelt logarithmischen Skalierung des Leckstromdichte  $\log \mathbf{J}$  über dem elektrischen Feld  $\log \mathbf{E}$  erlangt, sofern hierbei eine Steigung von 2 auftritt, siehe Abbildung 7.9(b). Die Steigung 2 ist auf die quadratische Abhängigkeit der Leckstromdichte zum elektrischen Feld zurückzuführen.



**Abbildung 7.9:** SCLC Leckstromdichte  $J$  über elektrischem Feld  $E$  bei unterschiedlichen Werten für  $\xi_c$ .

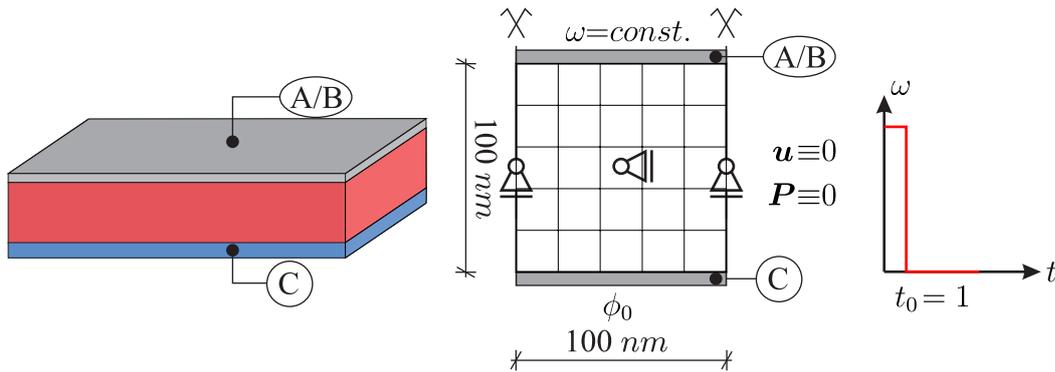
### 7.1.3 Entladung des Kondensators

Für die Simulation des Entladungsprozesses des Kondensators wird an der oberen Elektrode kurzzeitig eine Last auf den Freiheitsgrad des elektrischen Potentials aufgebracht und in den ferroelektrischen Kondensator somit ein elektrisches Feld induziert. Das anfangs aufgebrachte elektrische Feld wird mit der Zeit abgebaut, wobei keine weitere Ladung einwirkt. Nach Entfernen dieser Last wird die Entladung des elektrischen Feldes mit der analytischen Lösung verglichen. Die analytische Lösung ist nur unter Festhalterung der mechanischen und Polarisationsfreiheitsgrade gegeben. Um die numerischen Ergebnisse mit den analytischen vergleichbar zu machen, werden die Freiheitsgrade für die mechanischen Verschiebungen und die Polarisation an allen Knoten im Gebiet gehalten:  $\mathbf{u} = \mathbf{P} = \mathbf{0}$ . Demnach ist die dielektrische Verschiebung nur noch vom elektrischen Feld abhängig, es folgt  $\mathbf{D} = \kappa_0 \mathbf{E}$ . Die Implementierung der Leckstromformulierung wird anhand des Beispiels für die Entladung des Kondensators verifiziert. Die Verifizierung wurde nur mit einem Element für das Geometrieverhältnis  $b/h = 100/100$  durchgeführt.

Die Randbedingungen und Belastung sind in Abbildung 7.10 dargestellt. An den vertikalen Rändern des Ausschnitts werden periodische Randbedingungen für die Freiheitsgrade angesetzt, indem die Freiheitsgrade jeweils gekoppelt werden und so der gleiche Wert an beiden Rändern vorliegt. Aus den voran gegangenen Paragraphen geht hervor, dass die Materialparameter zur Streuung der Berechnungsergebnisse beitragen. Somit werden nachfolgende Simulationen für die Kondensatorentladung nur mit einem vorab gewählten Wert des Materialparameters durchgeführt. Die Einteilung der Finiten Elemente für die Geometrieverhältnisse unter Entladung sind die gleichen Finite-Element Netze wie bei der vorherigen Belastungssituation.

Für die Belastung wird bis zum Zeitschritt  $t_0$  eine konstante Oberflächenladung auf der oberen Elektrode aufgebracht. Die untere Elektrode ist geerdet, hier ist das elektrische Potential zu null gesetzt,  $\phi = 0$ . Bis zum Zeitpunkt  $t_0$  hat sich eine Monodomäne mit vertikaler Polarisation und ein homogenes elektrisches Feld eingestellt. Dies bedeutet, dass die Polarisation konstant wird bei hinreichend großem  $t_0$ . Ab  $t_0$  wird die Oberflächenladung zu null gesetzt,  $\omega = 0$ , und beobachtet, wie sich das elektrische Feld entwickelt. Das elektrische Feld baut sich in Abhängigkeit der Leitfähigkeit des ferroelektrischen Materials ab.

Aufgrund der Zeitabhängigkeit in den Formulierungen Ohm und SCLC ist es besonders wichtig eine geeignete Zeitschrittweite zu wählen. Insbesondere bei den Beispielen der Entladung wurden Fehler zwischen der analytischen und numerischen Kurve von  $10^{-3}$  bis  $10^{-9}$  bestimmt. Je geringer die Zeitschrittweite, desto geringer ist auch der Fehler zur analytischen Lösung.



**Abbildung 7.10:** Last-Zeit Kurve des elektrischen Potentials an der oberen Elektrode für den Entladungsvorgang des Plattenkondensators. Das Finite-Elemente Netz ist exemplarisch für das Geometrieverhältnis  $b/h = 100/100$  dargestellt.

### Ohm'scher Ladungstransport

Für die Simulation des Entladungsprozesses des Kondensators wird durch Anlegen eines kurzzeitigen elektrischen Potentials an der oberen Elektrode ein elektrisches Feld im Kondensator induziert. Dieses resultiert in einer Monodomäne mit vertikal ausgerichteter Polarisierung und ist die Ausgangssituation für die eindimensionale Entladung des Kondensators. Aufgrund der angesetzten Randbedingung für die Polarisierung beim Plattenkondensator wird im Folgenden mit den eindimensionalen Gleichungen gerechnet. Das elektrische Feld ist in der Zeit nicht konstant und entwickelt sich entsprechend dem implementierten Ladungsmechanismus. Die Freiheitsgrade der mechanischen Verschiebungen und der Polarisierung werden vernachlässigt.

Die eindimensionale Gleichung für die Ohmsche Leckstromformulierung lautet:  $J = \Gamma_c E$ . Eine analytische Lösung für die Degression des elektrischen Feldes über die Zeit  $t$  wird wie folgt bestimmt, indem die Gleichung der Ladungserhaltung umgeformt wird:

$$\frac{dD}{dt} + J = 0, \quad (7.1)$$

um anschließend die Ohm'sche Leitung einzusetzen:

$$\kappa_0 \frac{dE}{dt} + \Gamma_c E = 0. \quad (7.2)$$

Weitere mathematische Umformungen liefern:

$$\int_{E_0}^E \frac{1}{E} dE = - \int_{t_0}^t \frac{\Gamma_c}{\kappa_0} dt$$

$$[\ln(E)]_{E_0}^E = - \left[ \frac{\Gamma_c t}{\kappa_0} \right]_{t_0}^t. \quad (7.3)$$

Nach Auflösen der Integrale lautet die Entladungsformel für das elektrische Feld nach kurzzeitiger Beladung:

$$E = \frac{E_0}{e^{\frac{\Gamma_c}{\kappa_0}(t-t_0)}} \quad (7.4)$$

Für die Untersuchung der Entladungssituation wird keine Variation der Seitenverhältnisse untersucht. Das hier beschriebene Gebiet hat ein Seitenverhältnis von  $b/h = 100/100$ . Lediglich wird für unterschiedliche Materialparameter  $\Gamma_c$  der Entladungsvorgang diskutiert. Der Materialparameter  $\Gamma_c$  wird programmintern normiert, siehe Anhang C.

Für die Werte des spezifischen Widerstands  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/\Omega m$ ,  $\Gamma_c = 10^{-10} 1/\Omega m$  und  $\Gamma_c = 10^{-12} 1/\Omega m$  sind die Entladungskurven flacher oder steiler. Dies ist auf die Leitfähigkeit des Kondensators zurückzuführen.

In Abbildung 7.11 wird der Vergleich zur analytischen Lösung mit einem Materialparameter  $\Gamma_c = 10^{-14} 1/\Omega m$  dargestellt. Die Entladung startet nach einem Beladungsvorgang bei  $t_0 = 1$  und einem sich einstellenden Wert für das elektrische Feld von  $E_0 = 0.87957 [-]$  aus der numerischen Lösung. Der numerische Wert für das elektrische Feld wurde an der oberen Elektrode bestimmt. Hier sind auch die weiteren Werte der nachfolgenden Entlastungskurven berechnet. Das elektrische Feld beschreibt hier den normierten Wert. Für den Ohm'schen Ladungstransport erfolgt die Abnahme in einer abfallenden Exponentialfunktion. Die analytische Entladung ist mit einer durchgezogenen Linie, die der numerischen Lösung mit Kreuzmarkern dargestellt.

Zur Übersichtlichkeit sind die Kreuzmarker der numerischen Lösung nur an jedem zehnten berechneten Wert dargestellt. Die Zeitinkremente betragen hier  $\Delta t = 0,0001$  und der Fehler zur numerischen Lösung beträgt hier  $10^{-9}$ . Bei der Erhöhung der Zeitschrittweiten von  $\Delta t = 0,01$  beträgt der Fehler  $10^{-3}$ . Die Normierung folgt den im Anhang C angegebenen Berechnungen und Größen.

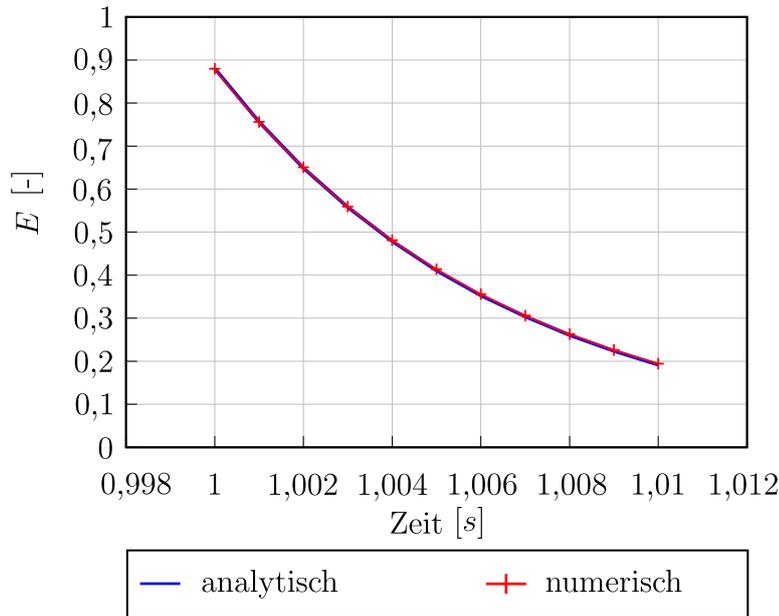
### SCLC Formulierung

Die eindimensionale Gleichung für die SCLC Leckstromformulierung lautet:

$J = \frac{9}{8} \mu \varepsilon_r \kappa_0 (1/d) E^2$ . Vereinfacht werden im Folgenden die Materialkonstanten zusammengefasst zu  $J = C E^2$ , mit  $C = \xi_c \kappa_0$ .

Es folgt ein analoges Vorgehen zum Ohm'schen Ladungsmechanismus. Nach Einsetzen der Leckstromformulierung in die Gleichung der Ladungserhaltung

$$\begin{aligned} D + \int J dt &= 0 \\ \kappa_0 \frac{dE}{dt} + C E^2 &= 0 \end{aligned} \quad (7.5)$$



**Abbildung 7.11:** Vergleich der Entladungskurve des Ohm'schen Ladungstransports, analytische Lösung und numerisches Ergebnis für  $\Gamma_c = 10^{-14} \text{ 1}/\Omega \text{ m}$ .

können die Integrale gelöst werden

$$\int_{E_0}^E \frac{1}{E^2} dE = - \int_t \frac{C}{\kappa_0} dt$$

$$\left[ -\frac{1}{E} \right]_{E_0}^E = -\frac{C}{\kappa_0} t + \frac{C}{\kappa_0} t_0, \quad (7.6)$$

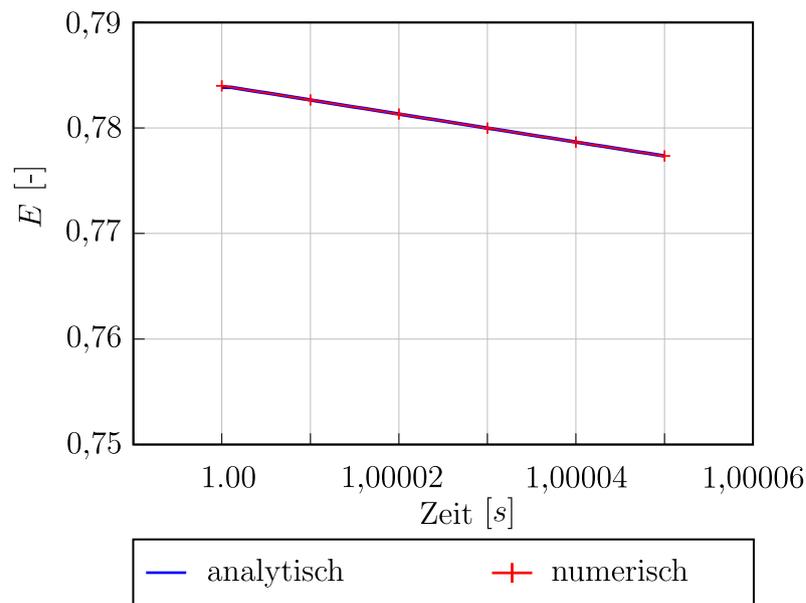
bis schlussendlich die Degressionsgleichung für das elektrische Feld in Abhängigkeit der Zeit folgt:

$$\frac{1}{E_0} + \frac{C}{\kappa_0} (t - t_0) = \frac{1}{E}$$

$$E = \frac{E_0 \kappa_0}{\kappa_0 + E_0 C (t - t_0)} \quad (7.7)$$

In Abbildung 7.12 ist die Entladungskurve für die SCLC Formulierung aufgeführt. Die analytischen Ergebnisse sind mit der durchgezogenen Linie, die Werte der numerischen Lösung sind mit zusätzlichen Kreuzmarkern dargestellt. Die Kreuzmarker wurden zur Übersichtlichkeit ebenfalls nur an jedem zehnten ausgewerteten Wert angegeben.

Der Einfluss der Zeitschrittweite ist ebenfalls erkennbar wie beim zuvor untersuchten Ohm'schen Leitungsmechanismus. So ist allgemein je kleiner die Zeitschrittweite gewählt wird auch hier der Fehler zur analytischen Lösung deutlich geringer. Allerdings ist bei einer Zeitschrittweite von  $\Delta t = 0,0001$  der Fehler zur numerischen Lösung bei  $10^{-3}$ .



**Abbildung 7.12:** Vergleich der Entladungskurve des SCLC Ladungstransports, analytische Lösung und numerisches Ergebnis mit  $\xi_c = 10^{-5} m/Vs$ .

#### 7.1.4 Plattenkondensator - Vergleich Ohm und SCLC -

##### Beladung Vergleich Ohm und SCLC

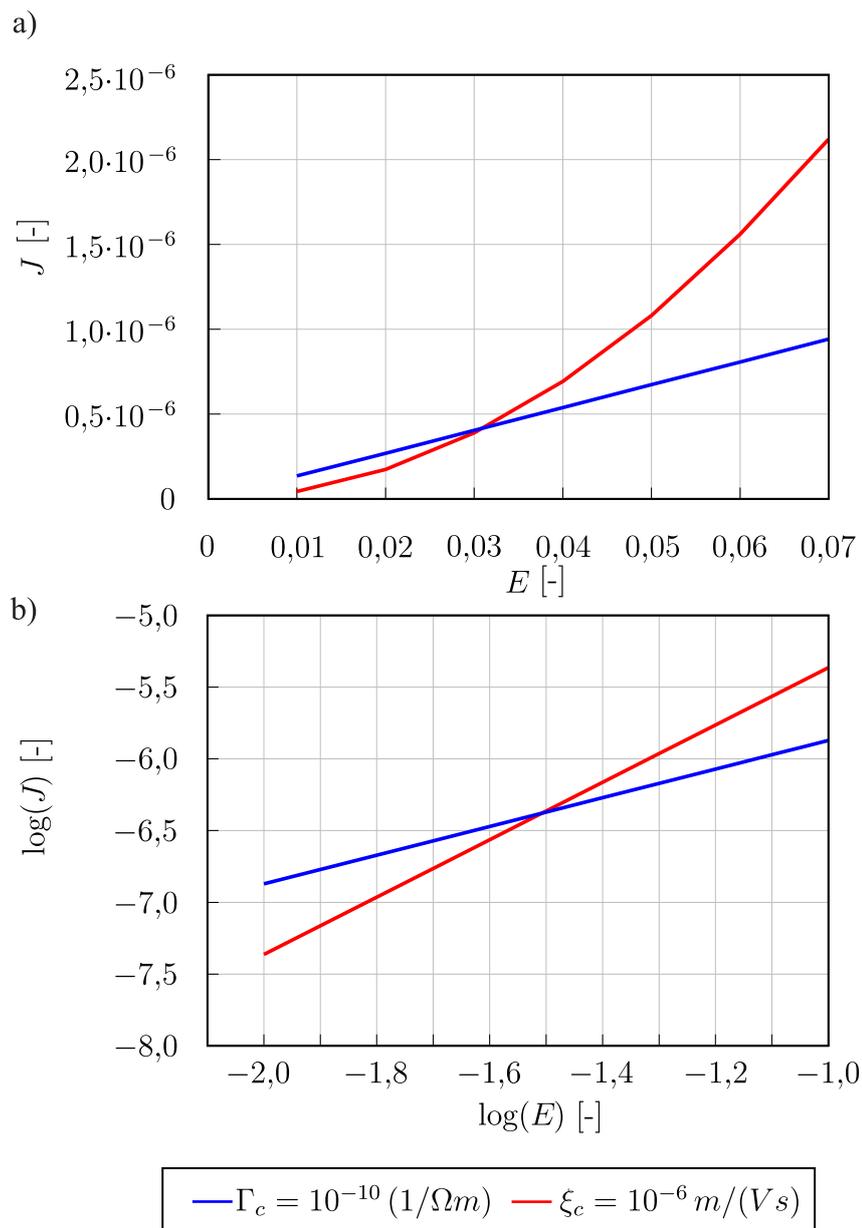
Im folgenden Abschnitt werden die beiden in dieser Arbeit angewendeten massenbegrenzten Leitungsmechanismen Ohm und SCLC für die Beladungssituation an einem quadratischen Gebiet miteinander verglichen.

Die Steigungen der einzelnen Kurven lassen sich gut mit der Literatur [21, 27, 71, 79] vergleichen. Der Übergang, wie er in der Literatur oft angemerkt wird, zwischen dem Ohm'schen Gesetz und der SCLC Formulierung ist stark von den Materialparametern  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  abhängig. Die folgenden Diagramme zeigen den Vergleich der beiden Formulierungen mit Werten  $\Gamma_c = 10^{-10} 1/\Omega m$  und  $\xi_c = 10^{-6} m/Vs$ . Abbildung 7.13(a) zeigt den Übergang zwischen beiden Mechanismen in der Darstellung Leckstromdichte  $\mathbf{J}$  über elektrischem Feld  $\mathbf{E}$ .

Erkennbar ist, wie u.a. in der Literatur [21, 27] erwähnt, dass bei kleinen elektrischen Feldern der Ohm'sche Ladungstransport überwiegt und erst bei höheren elektrischen Feldern weitere Mechanismen eintreten, hier am Beispiel der SCLC Formulierung zu erkennen. Das dominante Verhalten vom SCLC Transport tritt aufgrund der quadratischen Abhängigkeit von  $\mathbf{E}$  erst bei einem höheren elektrischen Feld ein. Der Schnittpunkt der beiden Kurven lässt sich bei Verwendung von anderen Werten für  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  verschieben. Daher sei hier noch einmal ausdrücklich erwähnt, dass die Materialparameter einen starken Einfluss auf die Simula-

tionen haben und im Vorfeld durch einfache Experimente und Untersuchungen identifiziert werden sollten.

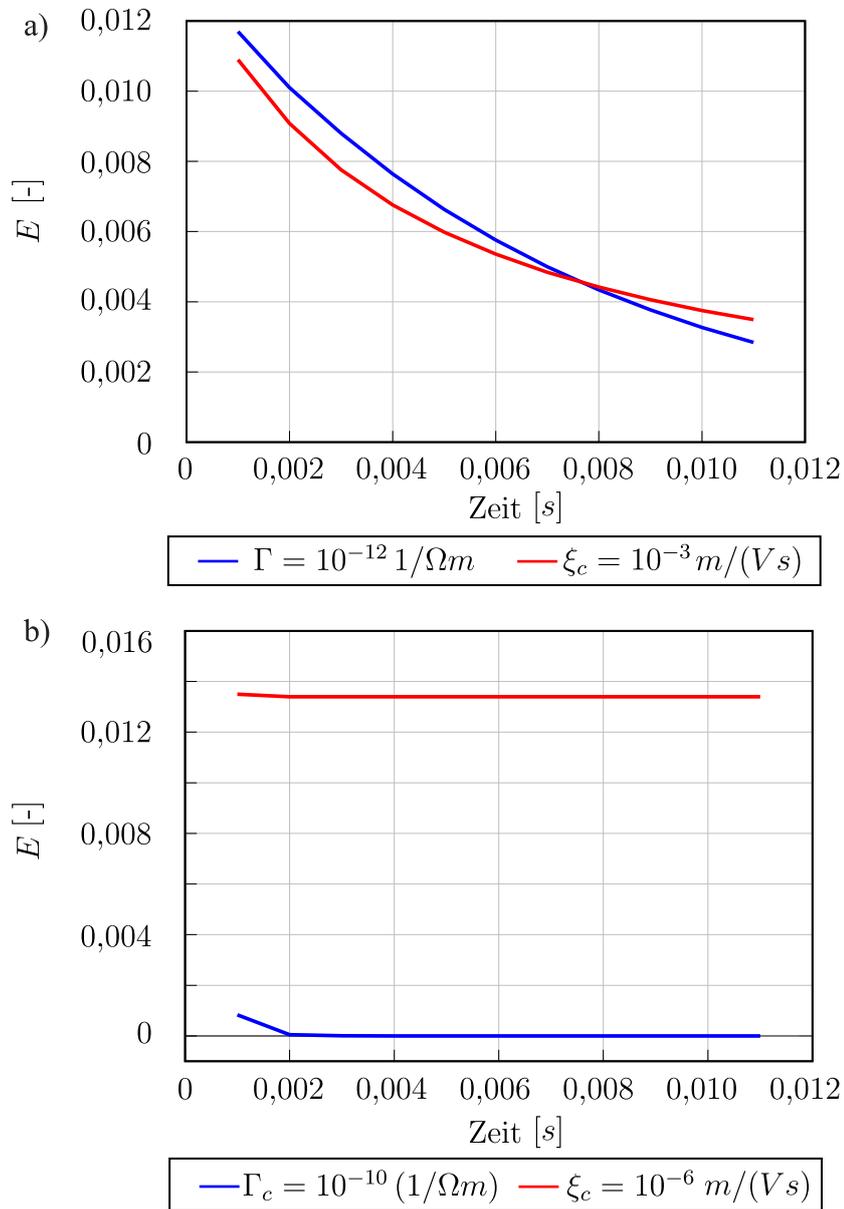
Ebenso ist das Verhalten bei der Darstellung mit doppelt logarithmischer Skalierung deutlich besser erkennbar. Der Ohm'sche Ladungstransport überwiegt, bis der SCLC Transport durch die quadratische Abhängigkeit zum elektrischen Feld dominiert, siehe Abbildung 7.13(b).



**Abbildung 7.13:** Unterschiedliche Steigungen, doppelt Logarithmische Darstellung und Übergang mit den Materialparametern  $\Gamma_c = 10^{-10} 1/\Omega m$  und  $\xi_c = 10^{-6} m/Vs$ .

### Entladung Vergleich Ohm und SCLC

Bei der Entladung sind die Materialparameter  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  von sehr großer Bedeutung. Nachfolgend sind zwei Diagramme dargestellt, bei denen die Bedeutung der Materialparameter sowie das entsprechende Entladungsverhalten im Bezug auf das elektrische Feld hervorgehoben wird. Deutlich erkennbar ist die Art der Entladung in Abbildung 7.14(a), so nimmt der Ohm'sche Ladungsmechanismus deutlich schneller ab, als das SCLC Ladungsverhalten. Zudem unterscheiden sich die Abbildungen 7.14(a) und 7.14(b) dahingehend, dass die Materialparameter anhand der Grenzwerte aus den Literaturangaben geändert wurden. Die einzelnen materialspezifischen Parameter der ferroelektrischen Schicht zu den jeweiligen Leitungsmechanismen haben einen starken Einfluss auf das Verhalten des Leckstroms. Hierbei sei angemerkt, dass der Materialparameter  $\xi_c$  des SCLC Mechanismus aus mehreren Parametern zusammengesetzt ist, sodass hier eine weitere Abhängigkeit vorhanden ist, welche zu untersuchen wäre.



**Abbildung 7.14:** Entladung bei unterschiedlichen Materialparametern  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  für Ohm'schen Ladungstransport und SCLC Ladungstransport anhand eines quadratischen Gebiets.

## 7.2 Zweidimensionale Nanogeneratorsimulationen mit Leckstromdichte

Das Beispiel des symmetrischen Nanogenerators beschreibt eine zweidimensionale Struktur aus dem Inneren des favorisierten Nanogeneratormodells. Der Ausschnitt ist periodisch im Nanogenerator vorhanden, Randeﬀekte werden nicht beruck­sichtigt. Nachfolgende Berechnungen werden im ebenen Verzerrungszustand durchgefuhrt. Auf Grundlage von vorab gewahlten Materialparametern und Annahmen ist die vorliegende Arbeit darauf ausgelegt, ein Modell aufzuzeigen, anhand dessen Vorbemessungen durchgefuhrt werden konnen. Das weiterfuhrende Ziel ist die Ermittlung einer elektrischen und mechanischen Grenzlast. Hierfur dienen numerische Simulationen unter den aufgefuhrten Annahmen, bevor kostenintensive Versuche durchgefuhrt werden mussen.

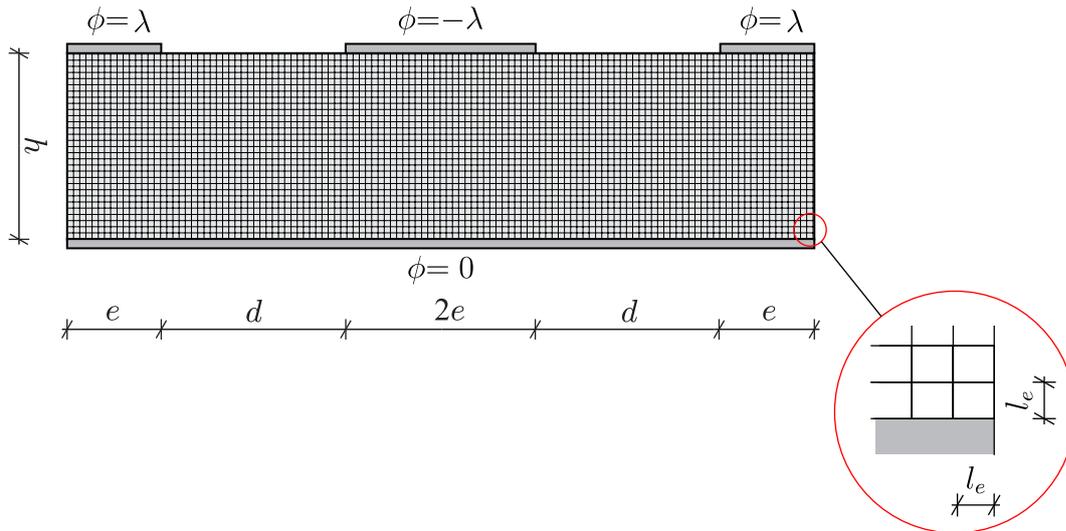
Die ersten Beispiele bestehen vorerst nur aus dem ferroelektrische Material und den Elektroden. In Abhangigkeit des elektrischen Potentials wird fur unterschiedliche Geometrien eine zyklische Belastung berechnet, die mit dem idealen Nanogeneratorauschnitt, ohne Leitungsmechanismen, verglichen wird. Ziel dieser Simulationen als Vordimensionierung ist es die maximal ertragbaren Lastwechselzahlen unter Annahme einer weiterhin bestehenden Funktionalitat des Nanogenerators mit Hinblick auf die Auswertung einer elektrischen Grenzlast zu erhalten. In der vorliegenden Arbeit werden fur die Leitungsmechanismen bestimmte Parameter der Leitfahigkeiten fur  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  angesetzt, die es experimentell anhand kleinerer Materialproben vorab zu ermitteln gilt. Fur die hier aufgefuhrten Simulationen werden  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  aus Literaturangaben angesetzt.

Bevor eine zyklische Belastung (Hysterese) auf das Modell aufgebracht werden kann, wird eine Evolution mit kurzfristiger Belastung des elektrisches Potentials und nachfolgender Entwicklung der Polarisationsdomanen berechnet. So wird gewahrleistet, dass eine Polarisationsstopologie entsteht, die fur die Funktion des Nanogenerators notig ist.

Das untersuchte Modell ist in Abbildung 7.15 dargestellt. Die Hohe des ferroelektrischen Materials betragt fur jede untersuchte Geometrie  $h = 100 \text{ nm}$ , die Lange der oberen Elektroden ist mit  $e = 50 \text{ nm}$  angesetzt. Variabel verbleibt der Abstand  $d$  zwischen den Elektroden:  $d/h = 100/100$ ,  $d/h = 50/100$  und  $d/h = 200/100$ . Das Finite-Elemente Netz ist aus 9-Knoten Elementen aufgebaut, so dass sich 30 Elemente uber die Steckle von  $100 \text{ nm}$  befinden.

Fur jede Geometrie wird eine Evolution durchgefuhrt, um darauf aufbauend das Modell zyklisch zu belasten. Wahrend der Evolution des anfanglichen Polungszustands ist die Belastung an den oberen Elektroden kurzzeitig  $\hat{\phi} = 0.1$  bzw.  $\hat{\phi} = -0.1$ . Die untere Elektrode ist geerdet und hat das elektrische Potential

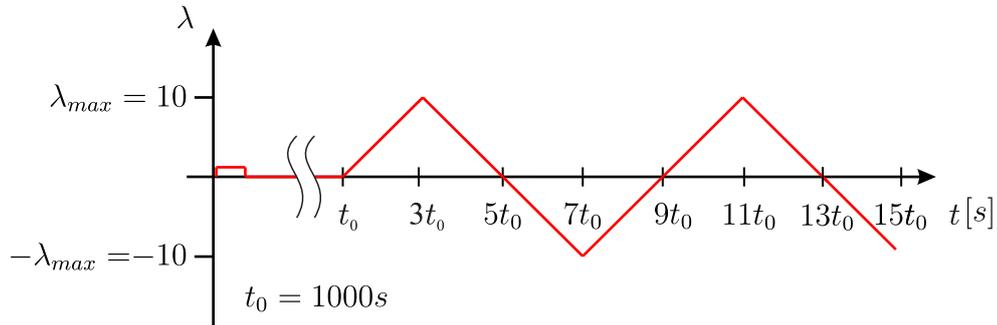
$\hat{\phi} = 0$  vorgegeben. Es wird hierbei nur ein Ausschnitt aus dem Generatormodell betrachtet, weshalb periodische Randbedingungen, links und rechts, angesetzt werden. Es wird gewährleistet, dass die Freiheitsgrade durch jeweilige Kopplungen gleiche Werte an den Rändern annehmen. Die untere Elektrode wird zudem gegen vertikale Verschiebung gehalten.



**Abbildung 7.15:** System und Belastung der Evolution unter elektrischer Belastung mit  $e = 50 \text{ nm}$  und  $h = 100 \text{ nm}$ ,  $d \in \{50 \text{ nm}; 100 \text{ nm}; 200 \text{ nm}\}$ .

Die anschließend ablaufende Hysterese wird mit der Sägezahnbelastung aus Abbildung 7.16 für das elektrische Potential an den oberen Elektroden berechnet. Das maximale elektrische Potential  $\hat{\phi}_{max} = \pm \lambda_{max}$  wird für unterschiedliche Hysteresen variiert. In der Abbildung 7.16 ist die Belastungskurve für das elektrische Potential von  $\lambda_{max} = \pm 10$  angegeben. Im Anschluss an die Evolution wird ab  $t_0 = 1000 \text{ s}$  die Hysterese gestartet. Das Maximum der Belastungsfunktion wird bei  $3t_0 = 3000 \text{ s}$  erreicht. Ein Zyklus der Sägezahnbelastung ist zum Zeitpunkt  $t = 9000 \text{ s}$  vollendet und wird von neuem gestartet.

Die nachfolgenden Abschnitte beschreiben jeweils für die angegebene untersuchte Geometrie die numerischen Ergebnisse. Die Steuerung erfolgt jeweils an den oberen Elektroden, die untere durchgehende Elektrode ist geerdet. Die maximale Größe des elektrischen Potentials ist zu den Materialparametern der Leitfähigkeit ein weiterer Parameter der Simulationen und ihre Auswirkung wird für gewählte Werte aufgezeigt. Ziel ist es ein Modell aufzuzeigen, anhand dessen unter zusätzlicher Berücksichtigung von Leitungsmechanismen eine Funktionsfähigkeit des Nanogeneratormodells gewährleistet werden kann, bis die Polarisationsdomänen in einen metastabilen Zustand kippen.

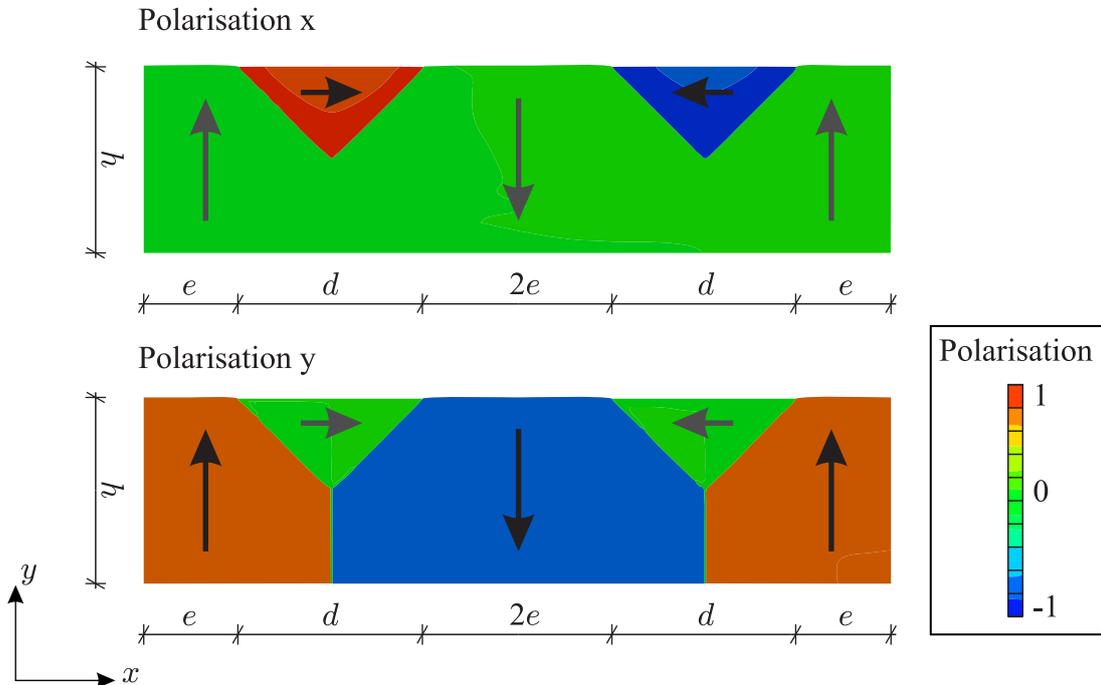


**Abbildung 7.16:** Belastung der Hysterese unter zyklischer elektrischer Belastung nach Entwicklung der Polarisationsdomänen.

**7.2.1 Steuerung über das elektrische Potential**  
- Verhältnis  $d/h=100/100$  -

**Evolution**

Nach der Evolution für die Geometrie  $d/h=100/100$  stellt sich eine Domänentopologie wie in Abbildung 7.17 ein. Die Pfeile deuten die Richtung der Polarisation innerhalb der Domäne an. Die sich einstellende Polarisationstopologie ist aus  $90^\circ$



**Abbildung 7.17:** Domänentopologie nach der Evolution für die Geometrie  $d/h=100/100$ .

und  $180^\circ$  Domänenwänden aufgebaut. Die Polarisationsdomänen stehen senkrecht

auf den Elektroden und verlaufen parallel zum freien Rand und den periodischen Randbedingungen.

Im Anschluss an die Evolution werden ab dem Zeitpunkt  $t_0 = 1000$  Hystereseberechnungen gestartet. Diese werden für unterschiedliche Maximalwerte für das elektrische Potential  $\hat{\phi}_{max}$  in mehreren Zyklen nacheinander durchlaufen. Die Berechnungen des idealen Nanogenerators werden aktiv abgebrochen, da sie keinen Aufschluss über eine elektrische Grenzlast liefern, sofern keine Leckströme, Defekte oder Sonstiges berücksichtigt werden.

Diese Hystereseberechnungen des idealen Nanogenerators werden mit den Hysteresebelastungen bei zusätzlicher Berücksichtigung von Ohm'schen und SCLC Leitungsmechanismus verglichen.

Als Parameter der Berechnungen werden die Maximalwerte der Belastungsfunktionen und die Materialparameter  $\Gamma_c$  und  $\xi_c$  für die Leitungsmechanismen Ohm und SCLC variiert. Ziel der Berechnungen ist es die Größe der maximalen Belastung abzuschätzen, die ohne ein Umklappen der Polarisierung einen metastabilen Zustand möglich ist.

### Hysterese ideales Ferroelektrikum

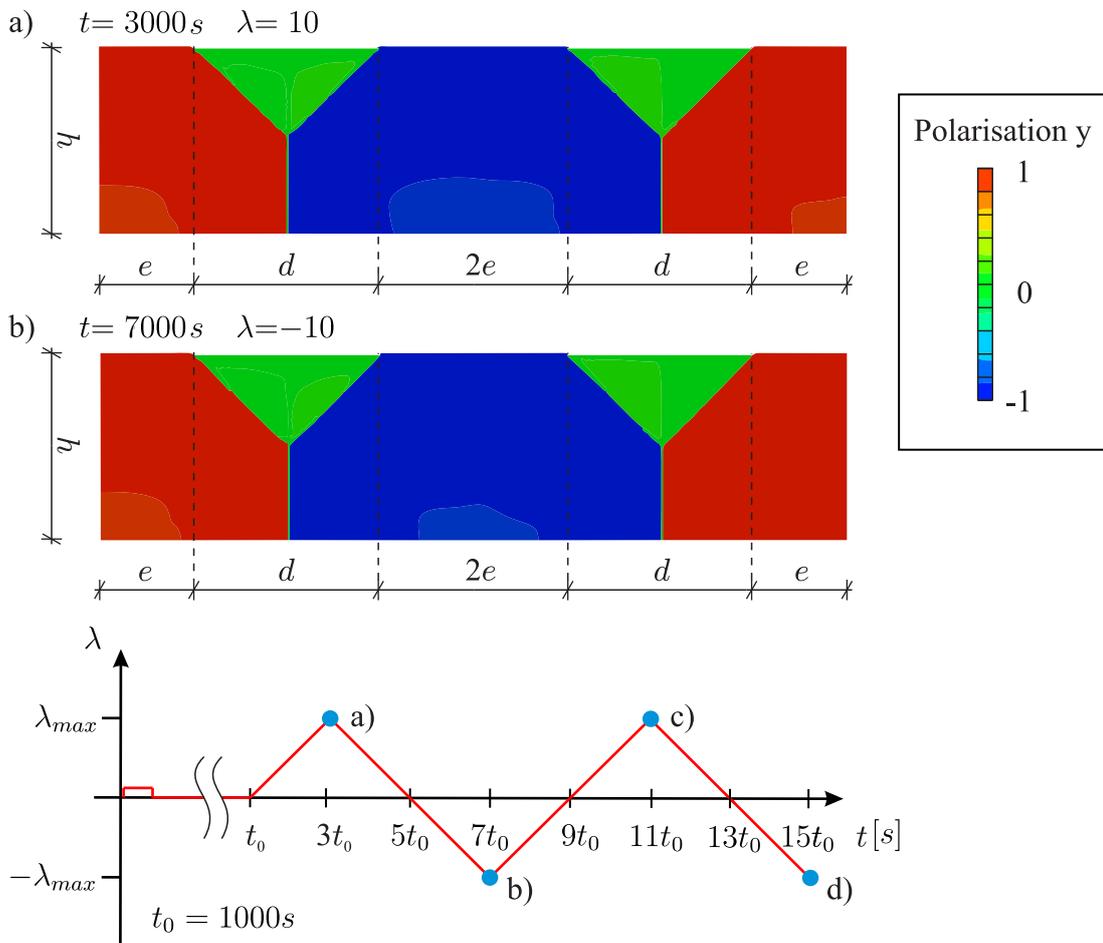
Eine Hysterese für einen idealen Nanogenerator liefert die vertikale Polarisationsdomänen in Abbildung 7.18.

Die Polarisationsdomänen verändern sich nur minimal. Der Wurzelpunkt der  $90^\circ$  und  $180^\circ$  Domänenwänden wandert im Verlauf eines Belastungszyklus in vertikaler Richtung. Die Polarisierung bleibt zwischen den Elektroden stets horizontal und im Bereich der Elektroden ist die Polarisierung vertikal angeordnet.

### Hysterese mit Ohm'schen Leitungsmechanismus

Unter der Annahme einer charakteristischen Leitfähigkeit des Ohm'schen Leitungsmechanismus von  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$  stellt sich jeweils an ausgewählten Belastungssituationen der Hysterese die Domänentopologie in Abbildung 7.19 ein. Das maximale elektrische Potential beträgt  $\hat{\phi}_{max} = 10$ .

Ersichtlich ist, dass sich durch die Annahme von zusätzlichen Leitungsmechanismen eine vertikale Polarisierung neben den Elektroden einstellt. Ladungen wandern in die Bereiche mit hohem elektrischem Feld, d. h. in die Nähe der Elektrodenränder. Die Flächenanteile der Polarisierung in vertikaler und horizontaler Richtung der Simulationen mit Ohm'schem Leitungsmechanismus und dem perfekten Nanogenerator werden in Abbildung 7.20 gegenübergestellt. Allgemein sind die Schwankungen der Polarisationswerte während der Hysteresezyklen bei der Simulation des perfekten Nanogenerators deutlich geringer. Durch den zusätzlich



**Abbildung 7.18:** Domänentopologie an ausgewählten Belastungssituationen während der Hysterese für die Geometrie  $d/h=100/100$  ohne Leckströme bei einem maximalen Lastfaktor  $\lambda_{max} = 10$  für das elektrische Potential  $\hat{\phi}$ .

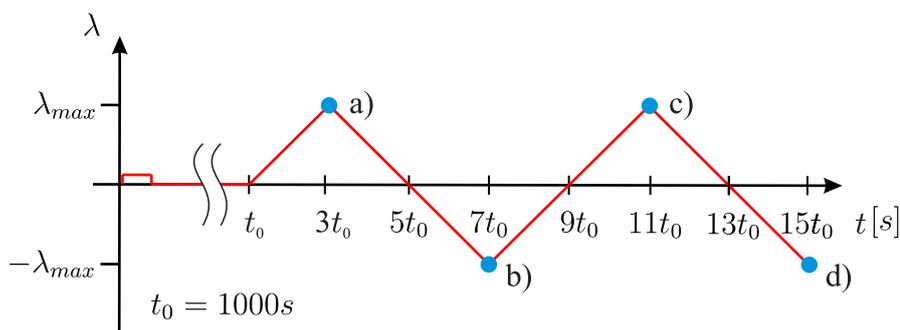
berücksichtigten Ohm'schen Leitungsmechanismus wird die jeweilige Amplitude der Schwingungen der Polarisation während der Hysteresezyklen größer, zugleich ändert sich der Mittelwert, um den die Schwankungen auftreten. Die horizontalen Polarisationsanteile sind bei Berücksichtigung von Ohm'scher Leitung deutlich geringer, während die Anteile der vertikalen Polarisation im Mittel zunehmen.

Generell entstehen wegen der verstärkten Ausprägung der vertikalen Polarisation  $P_y$  neben den Elektrodenrändern bei Berechnungen mit Leitungsmechanismen kleinere Wert für die horizontalen Polarisationsanteile  $P_x$ . Das zyklische Belastungsverhalten ist in den Polarisationsdomänen ebenfalls erkennbar. Abbildung 7.21(a) zeigt den dimensionslosen Leckstrom, hier am Beispiel der oberen linken Elektrode, während der zyklischen Belastung. Aufgrund der Übersichtlichkeit wird hier nur ein Ausschnitt der Hysterese gezeigt. In Abbildung 7.21(b) ist für den gleichen Ausschnitt die zeitlich aufintegrierte Ladung dargestellt. Der

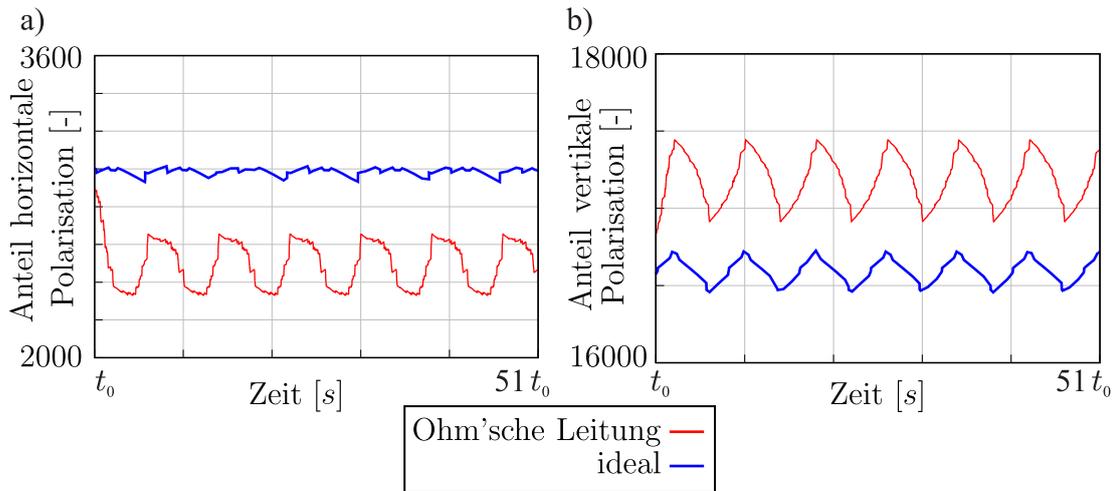
Leckstrom verhält sich entsprechend der Belastungsfunktion des elektrischen Potentials. Die Ladung stellt die zeitliche Integration des Leckstroms dar. Für die Ladung ist eine negative Steigung erkennbar, wenn die Leckstromdichte im negativen Bereich ist. Zeitgleich mit dem Anstieg des elektrischen Potentials steigt auch die Leckstrom an. Die zeitliche Entwicklung im Verlauf der integrierten Ladung steigt ebenfalls an. Wird das Maximum des Belastungszyklus erreicht, nimmt der Wert des elektrischen Potentials und des Leckstroms ab. Im Verlauf der Ladung befindet sich ein Wendepunkt, nimmt aber weiterhin zu, bis der Leckstrom den Wert null erreicht hat und die Polung des elektrischen Potentials umkehrt. Die negative Polung des elektrischen Potentials bedeutet eine Abnahme der Ladung. Der Leckstrom verhält sich entsprechend der Belastungsfunktion für das elektrische Potential, da diese direkt aus ihr berechnet wird.

Abbildung 7.22 zeigt die komplette Hysterese mit Ohm'schen Leitungsmechanismus, des zugehörige Leckstroms und der integrierten Ladung an der oberen linken Elektrode.

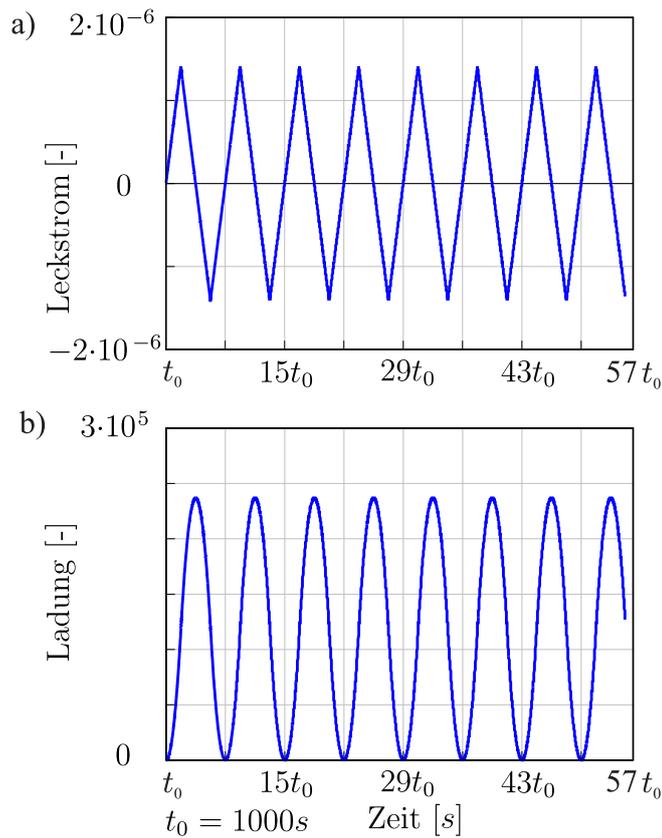
Weitere Berechnungen mit gewählten charakteristischen Leitfähigkeiten von  $\Gamma_c = 10^{-8} (1/\Omega m)$  und  $\Gamma_c = 10^{-12} (1/\Omega m)$  zeigen, dass der Materialparameter der Leitfähigkeit für den linearen Leckstrom nach Ohm nur einen geringen Einfluss auf die Polarisationsdomänen hat. So sind zwischen den charakteristischen Leitfähigkeit von  $\Gamma_c = 10^{-8} (1/\Omega m)$  und  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$  keine nennenswerte Unterschiede beim Anteil der Polarisation in vertikaler oder horizontaler Richtung zu vermerken, ebenso beim Vergleich von  $\Gamma_c = 10^{-12} (1/\Omega m)$  zu  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$ .



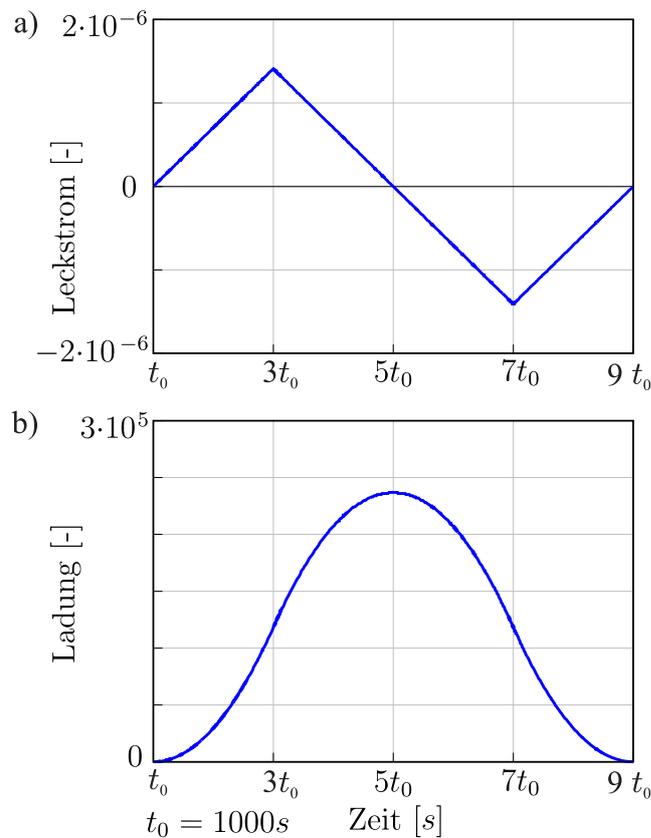
**Abbildung 7.19:** Domänen-topologie an ausgewählten Belastungssituationen während der Hysterese für die Geometrie  $d/h=100/100$  mit Ohm'scher Leitung  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$  bei einem maximalen Lastfaktor  $\lambda_{max} = 10$  für das elektrische Potential  $\hat{\phi}$ .



**Abbildung 7.20:** Vergleich der positiven Polarisationsanteile  $P_x$  und  $P_y$  der Geometrie  $d/h=100/100$ . Ohm'sche Leitung mit  $\Gamma_c = 10^{-10}$  ( $1/\Omega m$ ) und idealer Nanogenerator.



**Abbildung 7.22:** Leckstrom und integrierte Ladung exemplarisch an der oberen linken Elektrode während der gesamten Hysterese für die Geometrie  $d/h=100/100$ , Ohm'sche Leitung mit  $\Gamma_c = 10^{-10}$  ( $1/\Omega m$ ) bei einem maximalen Lastfaktor  $\lambda_{max} = 10$  für das elektrische Potential  $\hat{\phi}$ .



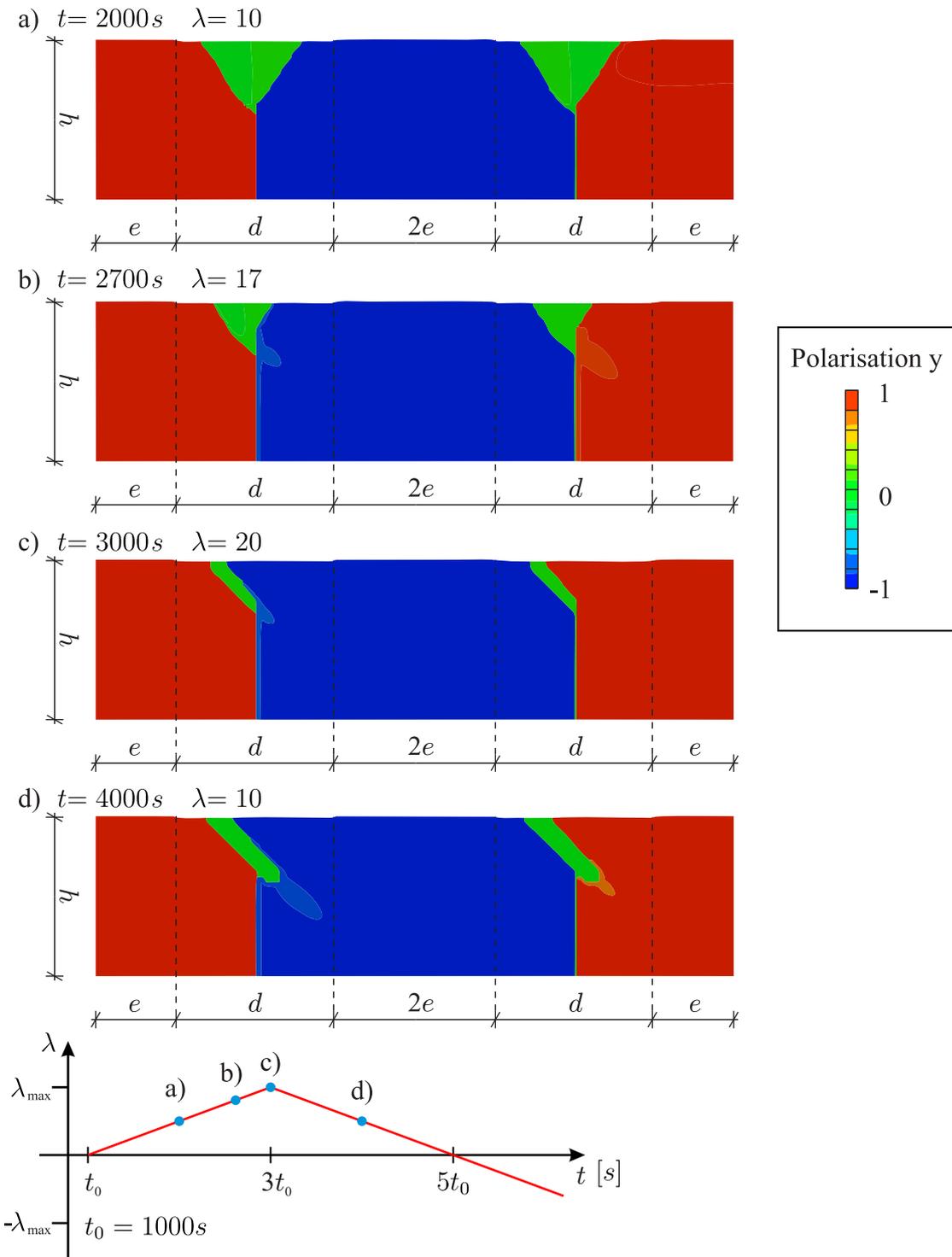
**Abbildung 7.21:** Leckstrom und integrierte Ladung an der oberen linken Elektrode während des ersten Lastzyklus für die Geometrie  $d/h=100/100$ , Ohm'scher Leitung  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$ .

Bei erhöhter Lastwechselzahl ist kein Sperrklinkeneffekt oder Aufstauen von Ladungen erkennbar. Anzumerken ist, dass die Konvergenz des Modells von der Zeitschrittweite abhängt und diese bei einer höheren charakteristischen Leitfähigkeit geringer gewählt werden sollte, um als Vorbemessung eine maximale Lastwechselzahl zu erhalten.

Die bisherigen Berechnungen wurden bis zu einem elektrischen Potential von  $\phi_{max} = 10$  berechnet. Bei Untersuchungen mit Hystereseberechnungen mit einem maximalen elektrischen Potential von  $\phi_{max} = 20$  ist der Leckstrom vom Ohm'schen Leitungsmechanismus bereits zu groß, sodass die Polarisationsdomänen nicht mehr zurückgehen. Eine Funktionalität des Nanogenerators ist somit nicht mehr gegeben. In Abbildung 7.23 sind unterschiedliche Stadien der vertikalen Polarisationsdomäne aufgeführt. Abbildung 7.23(a) ist zum Zeitpunkt eines Lastfaktors von  $\lambda = 10$ . Eine weiterer Steigerung des elektrischen Potentials zum Stadium (c) zeigt, dass die Domänen bereits zu weit in den Bereich zwischen die Elektroden gewandert sind. Zu diesem Zeitpunkt wird das maximale elektrische

Potential der zyklischen Belastung aufgebracht. Nach Stadium (c) wird das elektrische Potential reduziert, allerdings entwickeln sich die Domänen nicht wieder zurück. Die Polarisationsstopologie ist verlorengegangen.

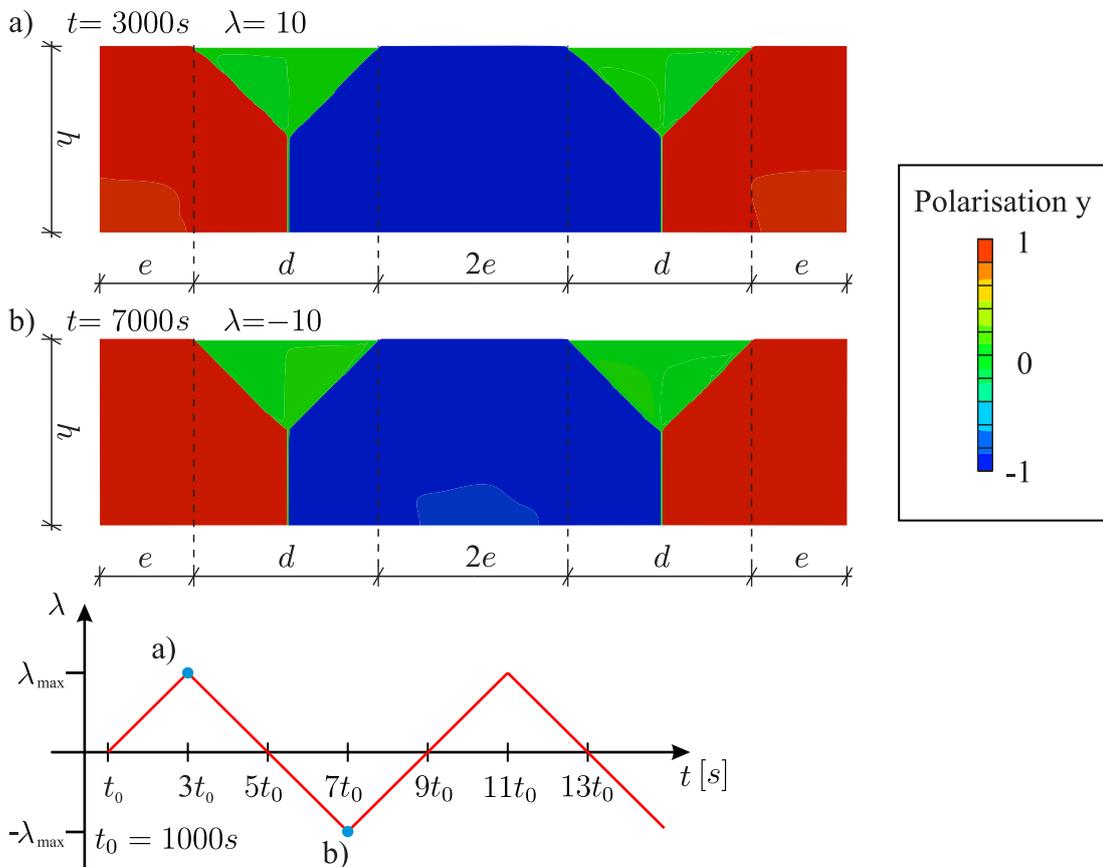
Da ein symmetrischer Ausschnitt und auch eine symmetrische Belastung des Modells simuliert wurde, ist für die Funktionalität des Nanogenerators eine symmetrische Domänentopologie erforderlich.



**Abbildung 7.23:** Domänentopologie an ausgewählten Belastungssituationen während der Hysterese für die Geometrie  $d/h=100/100$  mit Ohm'scher Leitung  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$  bei einem maximalen Lastfaktor  $\lambda_{max} = 20$  für das elektrische Potential  $\hat{\phi}$ .

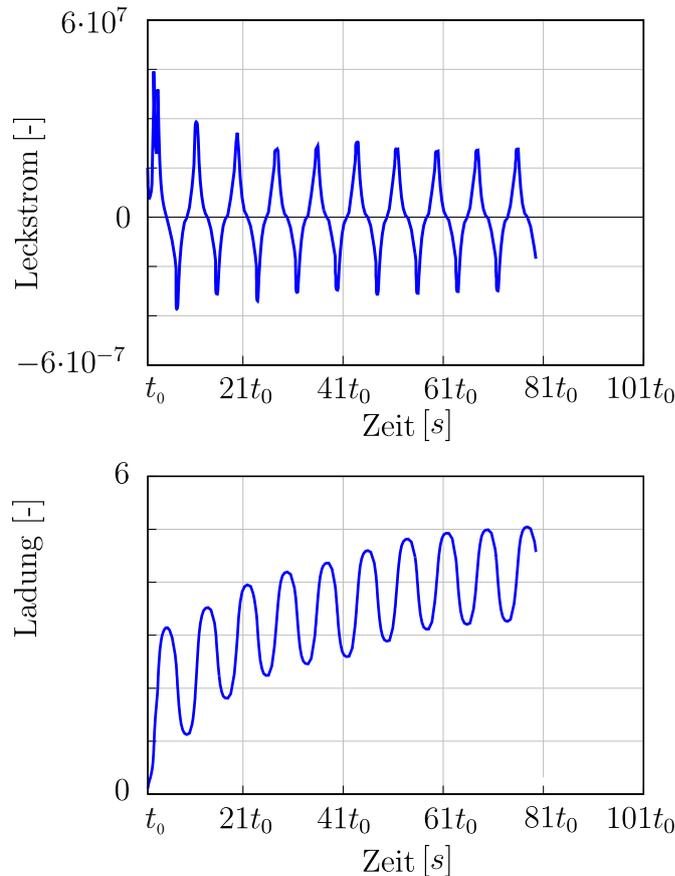
### Hysterese SCLC Leitungsmechanismus

Die nachfolgenden Simulationen basieren auf der Verwendung des SCLC Leitungsmechanismus. Diese Simulationsergebnisse wurden für ein maximales elektrisches Potential von  $\phi_{max} = 10$  ermittelt. Unter der Annahme von des Materialparameters  $\xi_c = 10^{-8} m/Vs$  stellt sich jeweils an ausgewählten Belastungssituationen der Hysterese die Domänentopologie in Abbildung 7.24 ein. Die Auswertung des Leckstroms und der daraus integrierten Ladung für die obere linke Elektrode ist in Abbildung 7.25 exemplarisch dargestellt



**Abbildung 7.24:** Domänentopologie an ausgewählten Belastungssituationen während der Hysterese für die Geometrie  $d/h=100/100$  mit SCLC Leitung  $\xi_c = 10^{-8} m/Vs$  bei einem maximalen Lastfaktor  $\lambda_{max} = 10$  für das elektrische Potential  $\hat{\phi}$ .

Deutlich ist, dass ein Sperrklinkeneffekt (engl.: ratcheting effect) auftritt. Der Leckstrom hat die Zick-zack Form der Hysteresebelastung beibehalten, jedoch wird deren Polarisierungsschwingbreite (doppelte Amplitude) und der Mittelwert der Schwingungen mit höherer Lastwechselzahl immer kleiner. Die Ladung hingegen baut sich immer weiter auf. Eine Abnahme zu null ist zwischen den Hysteresezyklen nicht mehr gegeben.

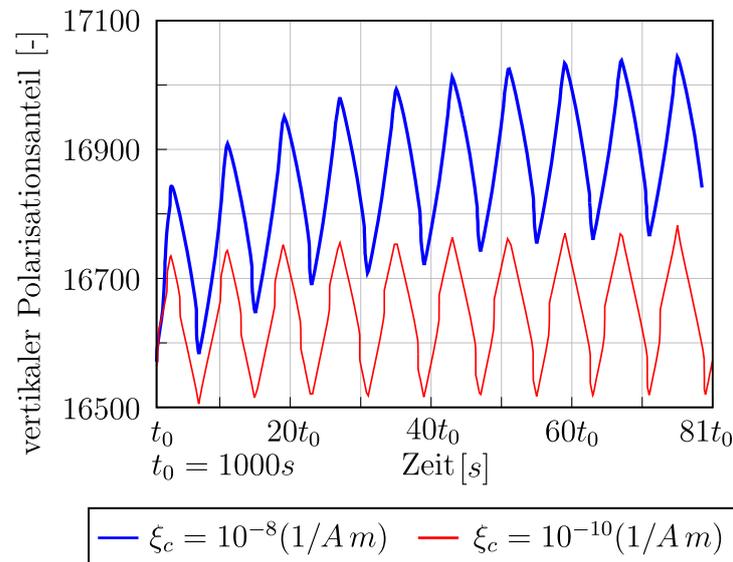


**Abbildung 7.25:** Leckstrom und integrierter Ladung exemplarisch an der oberen linken Elektrode während der Hysterese für die Geometrie  $d/h=100/100$  mit SCLC Leitung  $\xi_c = 10^{-8} m/Vs$  bei einem maximalen Lastfaktor  $\lambda_{max} = 10$  für das elektrische Potential  $\hat{\phi}$ .

Eine Variation der Leitfähigkeit für den SCLC Leitungsmechanismus liefert bei einer Erhöhung der Leitfähigkeit einen erhöhten Leckstrom. Zudem sind die erreichbaren Lastwechsel deutlich geringer. Die Beispiele wurden mit einer Zeitschrittweitenanpassung berechnet. Allerdings ist anzumerken, dass je größer die Leitfähigkeit gewählt wird, desto rechenintensiver ist die Simulation, da es kleinere Zeitschrittweiten bedarf. Die Ausprägung des Sperrklinkeneffektes ist deutlicher erkennbar, sofern mit einer höheren Leitfähigkeit gerechnet wird. Bei niedrigen Leitfähigkeiten ist der Effekt zwar vorhanden, doch im direkten Vergleich zu größeren Leitfähigkeiten nicht so stark ausgeprägt.

Leitfähigkeiten mit  $\xi_c = 10^{-5} m/Vs$  bis  $\xi_c = 10^{-3} m/Vs$  wurden berechnet, allerdings kippt hierbei die Domänentopologie bereits nach 2 Lastzyklen in einen metastabilen Zustand und es ist keine Funktionalität des Nanogenerators mehr gegeben. Der Materialkennwert  $\xi_c$  ist bereits zu groß, sodass sich Ladungen an

den Elektrodenenden sammeln und zu einem raschen Anstauen der vertikalen Polarisationsdomäne führen. Die vertikalen Polarisationsdomänen bauen sich stetig weiter auf, bis hin zu einem Umklappen der Domänen. Der Sperrklinkeneffekt ist umso dominanter erkennbarer, je größer die charakteristische Leitfähigkeit ist. Für eine geringere Leitfähigkeit von  $\xi_c = 10^{-10} \text{ m/Vs}$  steigen die vertikalen Polarisationsanteile und die Ladung zwar auch geringfügig an, allerdings ist die Bewegung der Domänen so gering, dass kein Umklappen die Folge ist. Der Vergleich der Leitfähigkeiten von  $\xi_c = 10^{-8} \text{ m/Vs}$  und  $\xi_c = 10^{-10} \text{ m/Vs}$  auf die Polarisationsanteile ist in Abbildung 7.26 dargestellt. Die Zahlenwerte ergeben sich aus der Normierung mit den Materialparametern aus den Anhängen A und C. Die Anteile der Polarisation werden hier über die entsprechenden Flächen aufaddiert, wobei hier die dimensionslosen Einheiten beachtet werden.

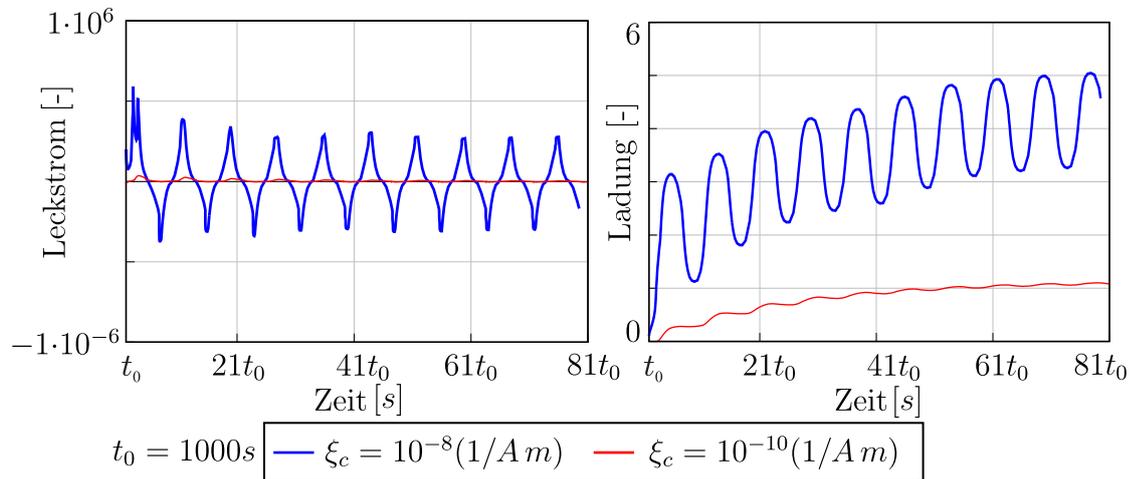


**Abbildung 7.26:** Einfluss unterschiedlicher Werte für die charakteristische SCLC Leitfähigkeit  $\xi_c$  auf den vertikalen Polarisationsanteil,  $\xi_c = 10^{-8} \text{ m/Vs}$  und  $\xi_c = 10^{-10} \text{ m/Vs}$ .

Die direkte Gegenüberstellung des Leckstroms und Ladungen für die Leitfähigkeiten  $\xi_c = 10^{-8} \text{ m/Vs}$  und  $\xi_c = 10^{-10} \text{ m/Vs}$  ist in Abbildung 7.27 dargestellt. Die Schwingungen bei der Leitfähigkeit von  $\xi_c = 10^{-10} \text{ m/Vs}$  beim Leckstrom sind bereits so gering, dass sie kaum erkennbar sind. Ebenso verhält sich der Graph der Ladung über die Zeit. Zwar ist auch hier ein Sperrklinkeneffekt erkennbar, aber der klingt sehr schnell ab und die Domänenkonstellation bleibt konstant. Es bleibt hierbei immer eine Funktionalität des Generators erhalten.

Abschließend von dieser Untersuchung lässt sich sagen, dass eine Funktionsfähigkeit des Nanogenerators durch die Leitfähigkeit stark beeinflusst wird. Der

Einfluss des Ohm'schen Leckstroms ist nicht so prägnant wie die SCLC Formulierung. Somit ist bereits für die SCLC Simulationen bei einer geringen Belastung frühzeitig erkennbar, ob eine Umsetzbarkeit des Nanogenerators durchführbar ist.

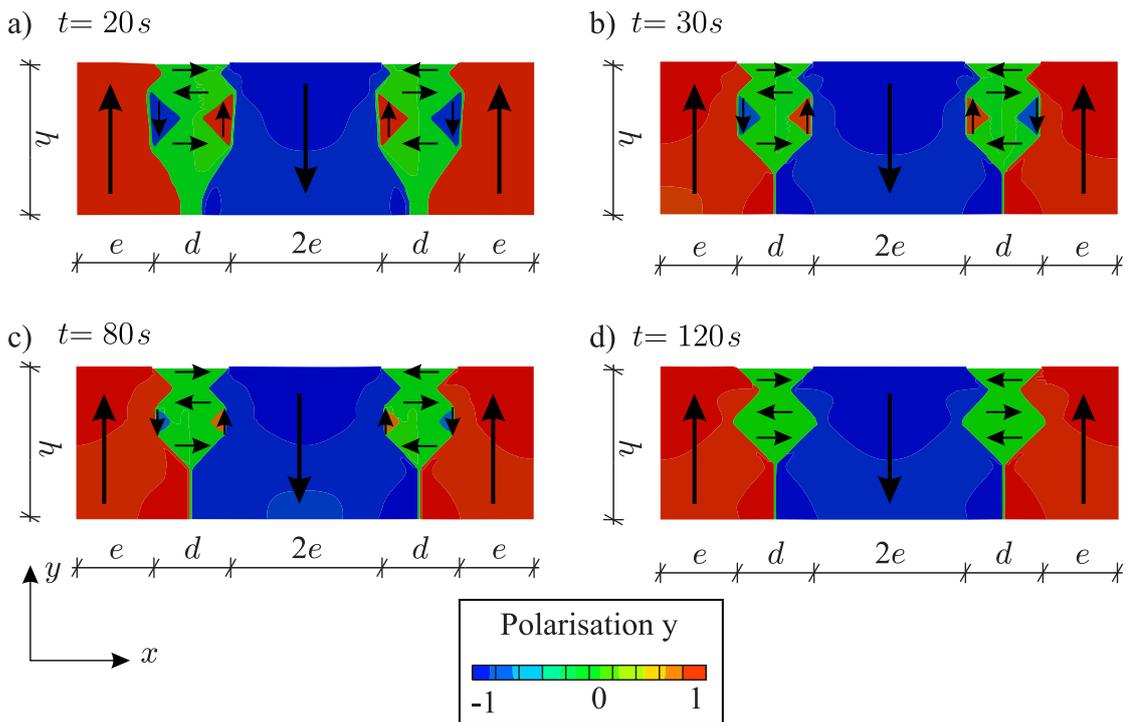


**Abbildung 7.27:** Einfluss unterschiedlicher Werte für die charakteristische SCLC Leitfähigkeit  $\xi_c$  auf die Leckstromdichte und Ladung,  $\xi_c = 10^{-8} m/Vs$  und  $\xi_c = 10^{-10} m/Vs$ .

### 7.2.2 Steuerung über das elektrische Potential - Verhältnis $d/h=50/100$ -

#### Evolution

Die Evolution der Geometrie mit  $d/h=50/100$  liefert die in Abbildung 7.28 dargestellten Stadien. Zu Beginn sind große Bereiche unterhalb der oberen Elektroden bereits vertikal ausgerichtet und es beginnt sich im Bereich der unteren Elektrode eine  $180^\circ$  Domänenwand auszubilden. Allerdings entstehen zwischen den Elektroden ebenfalls kleinere Domänen, die mit  $90^\circ$  Domänenwänden aufgebaut sind, siehe Abbildung 7.28(a). Im weiteren Verlauf der Evolution bauen sich die kleineren vertikalen Domänen auf mittlerer Höhe des Ferroelektrikums zwar ab, Abbildung 7.28(b) und (c), aber die horizontalen Domänen verbleiben. Es folgen in Abbildung 7.28(d) die Evolutionspolarisationsdomänen, die als Grundlage für die Hysteresebelastungen dienen.

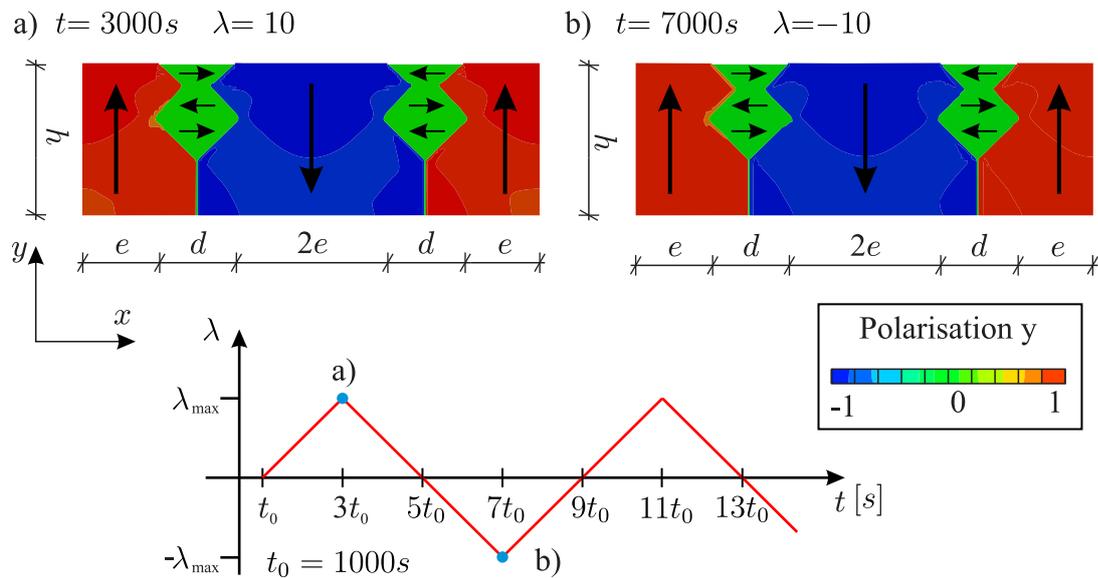


**Abbildung 7.28:** Evolutionsstadien der vertikalen Polarisation zur Geometrie  $d/h=50/100$ . Die Pfeile zeigen zusätzlich die horizontalen Polarisationsdomänen an.

Inwieweit die entstandene Polarisationstopologie eine Funktionsfähigkeit des Nanogenerators gewährleistet, wird in den nachfolgenden untersuchten Hystereseanalysen analysiert.

### Hysterese - ideal und Ohm'sche Leitung -

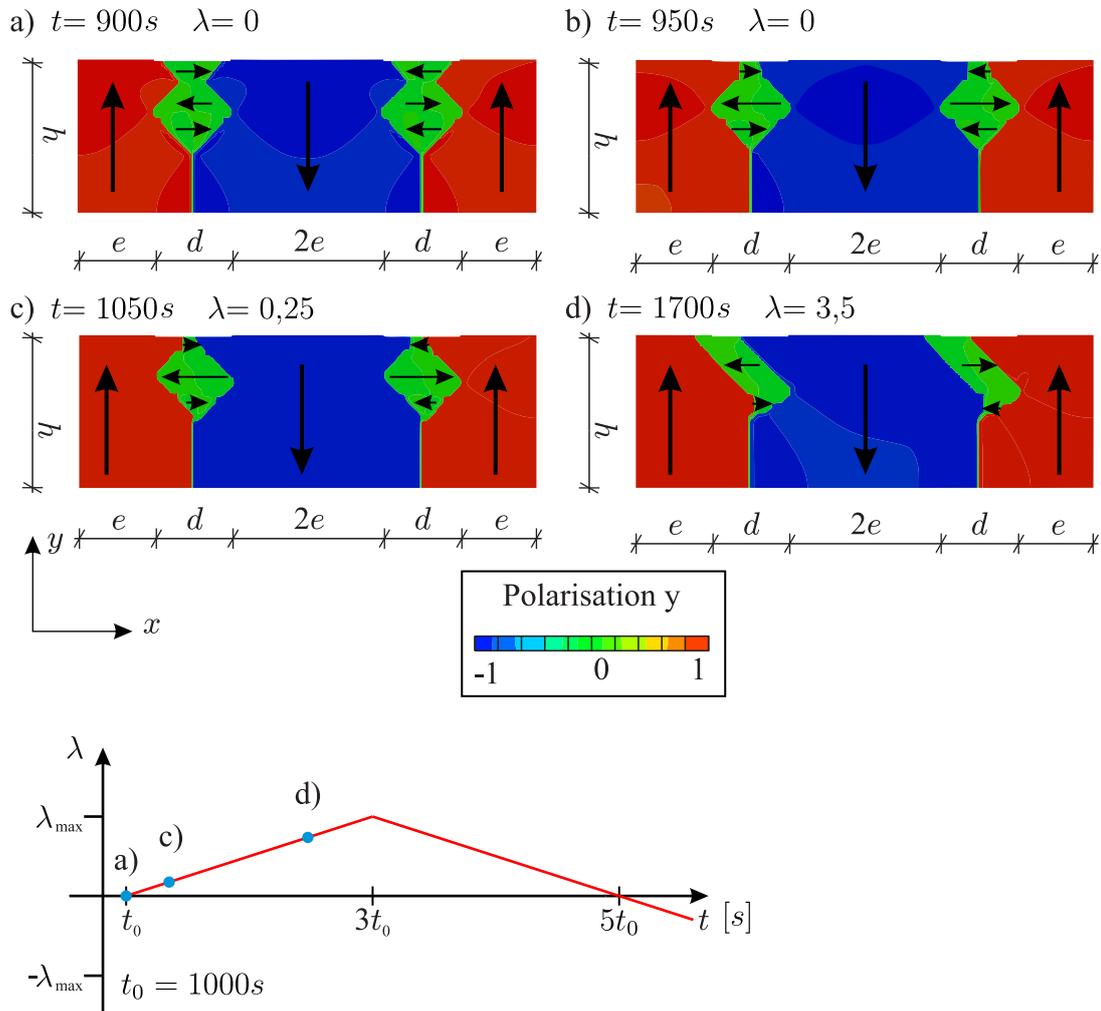
Nachfolgend werden die Hysteresen des idealen Nanogenerators und der zusätzlichen Verwendung des Ohm'schen Leitungsmechanismus für eine maximale Belastung von  $\hat{\phi}_{max} = 10$  verglichen. In Abbildung 7.29 ist die jeweilige Domänenkonstellation für entsprechende Belastungen ohne Leitungsmechanismen angegeben. Hierbei sind keine Veränderungen erkenntlich, welche die Funktionalität des Nanogenerators hindern würden. Während der Evolution wird die Polarisation ohne Leitfähigkeit ausgeführt. Nach der Evolution wird für einen kurzen Zeitschritt von ca. 20 Sekunden die Leitfähigkeit zusätzlich betrachtet, aber das elektrische Potential ist weiterhin  $\phi = 0$ . Erst ab  $t_0 = 1000$  s wird die zyklische Belastung des elektrischen Potentials aufgebracht und somit die Leitfähigkeit unter zyklischer Beanspruchung untersucht.



**Abbildung 7.29:** Domänentopologien der vertikalen Polarisation für die Hysteresebelastung zur Geometrie  $d/h=50/100$  ohne Leitungsmechanismen. Die Pfeile zeigen zusätzlich die horizontalen Polarisationsdomänen an.

Im Vergleich hierzu ist in Abbildung 7.30 die Polarisation unter Verwendung des Ohm'schen Leitungsmechanismus für eine maximale Belastung des elektrischen Potentials von  $\hat{\phi}_{max} = 10$  dargestellt.

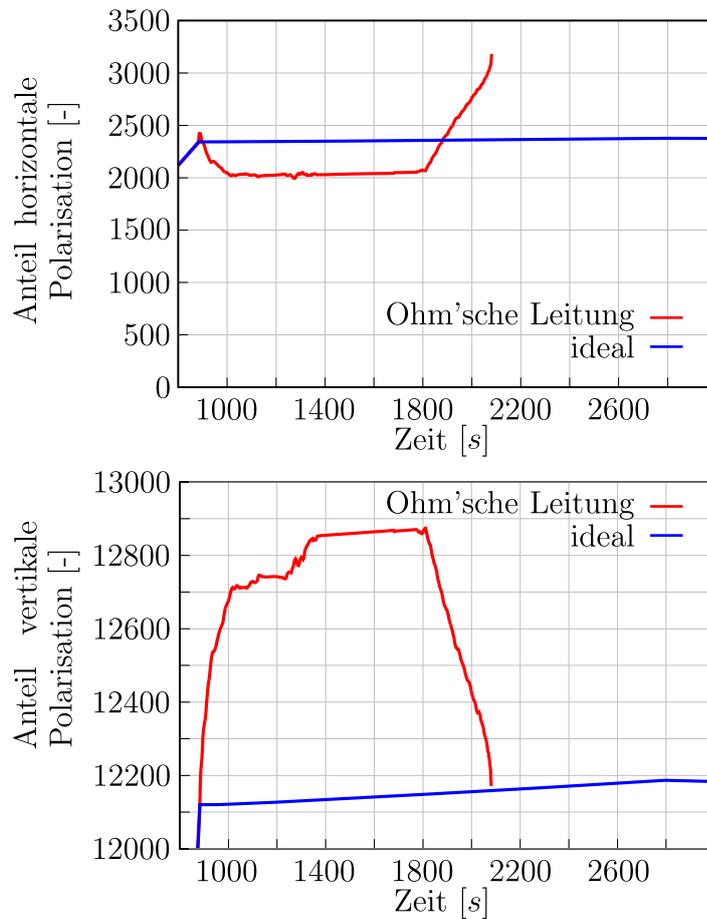
Ersichtlich ist, dass bereits zu Beginn der Hysterese in Abbildung 7.30(a) und (b) keine vollständige Symmetrie der Polarisation vorliegt. Dies sind Zeiten, bei denen noch keine Laststeigerung durch das elektrische Potential vorliegt, allerdings der Ohm'sche Leitungsmechanismus berücksichtigt wird. Die Verengung der Polarisationsdomänen zwischen den Elektroden ist allein auf die Leitfähigkeit des



**Abbildung 7.30:** Domänen topologien der vertikalen Polarisation der Hysteresebelastung zur Geometrie  $d/h=50/100$  mit dem Ohm'schen Leitungsmechanismen und einer Leitfähigkeit von  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$ . Die Pfeile zeigen zusätzlich die horizontalen Polarisationsdomänen an.

Materials zurückzuführen. Im Verlauf der Hysterese ist bereits bis zu einer Zeit von  $t = 1700$  keine Umsetzbarkeit für das Prinzip des Nanogenerators gegeben, siehe Abbildung 7.30(d). Die Elektroden sind demnach zu nah beieinander, sodass die Polarisationsdomänen sich gegenseitig stark beeinflussen.

Der Vergleich der Polarisationsanteile in horizontaler und vertikaler Richtung der Hysteresen ohne Leitungsmechanismus und dem Ohm'schen Leitungsmechanismus sind in Abbildung 7.31 dargestellt. Die Polarisation ist wie bereits bei den vorherigen Simulationen durch den zusätzlich berücksichtigten Leckstrom zum perfekten Nanogenerator verschoben. Allerdings ist eine starke Veränderung des Verlaufs bei ca.  $t = 1800s$  erkennbar. Dies führt zu einem Verlust der stabilen



**Abbildung 7.31:** Anteile der Polarisation in horizontaler und vertikaler Richtung der Hysteresebelastung mit  $\lambda_{max} = 10$  für die Geometrie  $d/h=50/100$ . Für den Ohm'schen Leitungsmechanismus wurde eine Leitfähigkeit von  $\Gamma_c = 10^{-10}$  ( $1/\Omega m$ ) angesetzt.

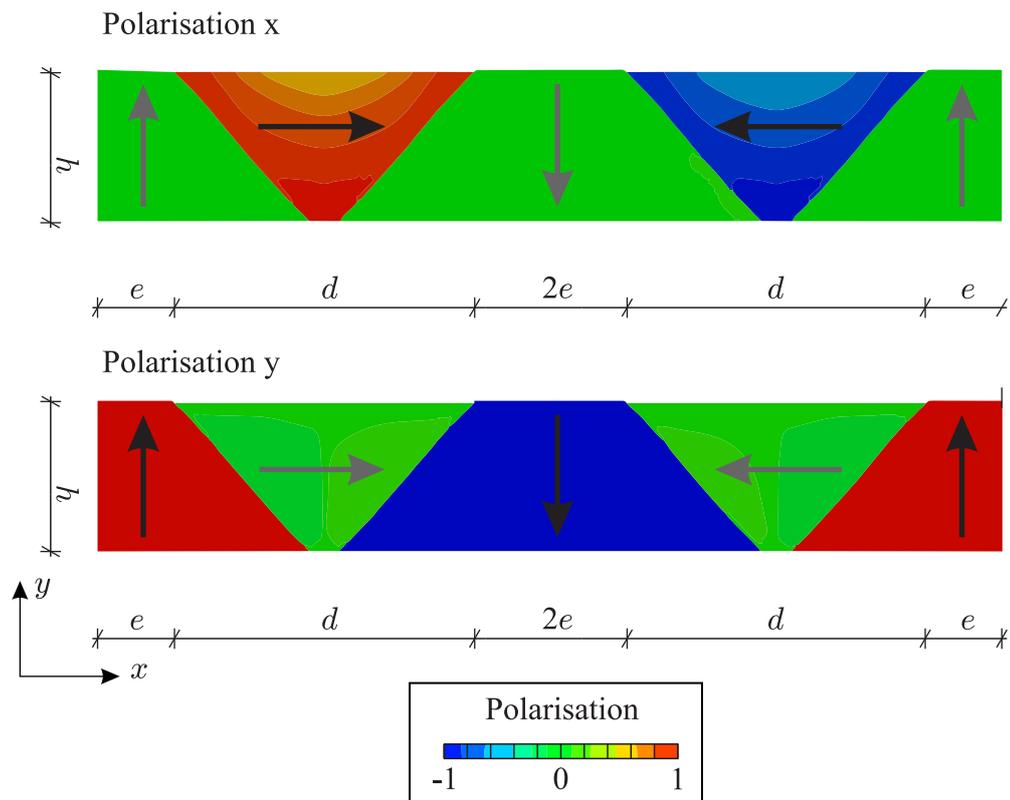
Domänentopologie und definiert somit eine elektrische Grenzlast. Zu beachten ist, dass diese Grenzlast selbst alleine nicht aussagekräftig ist, da die Polarisationstopologie ebenfalls auszuwerten ist. Zum Zeitpunkt des Eintretens der elektrischen Grenzlast ist bereits keine Funktionsfähigkeit mehr gegeben.

Auf eine Auswertung mit dem SCLC Leitungsmechanismus wird verzichtet. Die Umsetzbarkeit des in dieser Arbeit vorgestellten Nanogeneratormodells ist bereits bei der linearen Leckstromformulierung für diese Geometrie nicht mehr gegeben. An den Elektrodenspitzen sammeln sich Ladungen, die sich schnell gegenseitig beeinflussen und zu einem Aufbauen der vertikalen Polarisation führen, sodass die Polarisationstopologie bereits im ersten Lastzyklus in einen metastabilen Zustand übergeht.

### 7.2.3 Steuerung über das elektrische Potential - Verhältnis $d/h=200/100$ -

#### Evolution

Nach der Evolution hat sich für die Geometrie mit doppeltem Abstand zwischen den Elektroden eine Domänentopologie wie in Abbildung 7.32 zu sehen ist eingestellt.



**Abbildung 7.32:** Domänentopologie nach der Evolution für die Geometrie  $d/h=200/100$ .

Ersichtlich ist bei dieser Geometrie, dass sich die Polarisierungstopologie ohne  $180^\circ$  Domänenwände einstellt. Es liegen nur  $90^\circ$  Domänenwände vor. Die Anteile der horizontalen Polarisationsdomänen sind deutlich größer im Vergleich zur Geometrie  $d/h=100/100$ . Zu beachten ist, dass die Länge der oberen Elektroden  $e$  stets die gleiche ist wie bei den anderen untersuchten Geometrien. Lediglich der Abstand zwischen den Elektroden wurde verändert, wobei somit das nominelle elektrische Feld beeinflusst wird. Die untere Elektrode ist durchlaufend und immer geerdet.

### Hysterese - ideal und Ohm'sche Leitung -

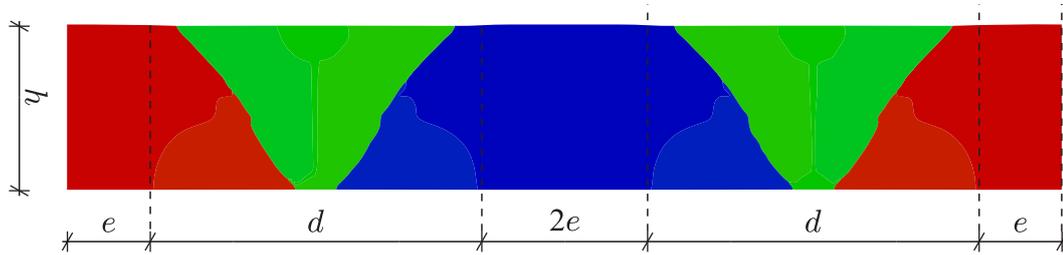
Der ideale Nanogenerator ohne jegliche Leckstromformulierung zeigt ein analoges Verhalten wie bei der Geometrie  $d/h=100/100$ . Die Polarisationsdomänen bewegen sich nur sehr leicht. Die Analyse der Polarisationsanteile liefert eine Funktionsfähigkeit des Modells.

Bei Betrachtung zusätzlicher Leitungsmechanismen ist bereits beim Ohm'schen Mechanismus mit einer charakteristischen Leitfähigkeit von  $\Gamma_c = 10^{-10} (1/\Omega m)$  und einer maximalen Belastung von  $\phi_{max} = 10$  keine Funktionalität des Nanogenerators mehr gegeben. Die Polarisationsdomänen in unterschiedlichen zeitlichen Stadien sind in Abbildung 7.33 dargestellt. Es bilden sich zusätzliche Ladungen an den Elektrodenrändern, die dafür sorgen, dass die Polarisation dort anwächst. Die Polarisationsdomänen in vertikaler Richtung sind bereits bei einem elektrischen Potential von  $\lambda = 4,5$  bei  $t = 4500 s$  nicht mehr symmetrisch angeordnet. Es bilden sich zusätzliche Bereiche horizontale Polarisation in mittlerer Höhe des Nanogeneratorschnitts. Im Gegensatz zur Geometrievariante  $d/h = 50/100$  ist der Einfluss an den Elektrodenspitzen geringer, weshalb sich hier nur ein Entstehen der vertikalen Polarisation aufgrund der anstauenden Ladungen zu verzeichnen ist. Allerdings klappt die Polarisationstopologie in der Mitte des ferroelektrischen Materials um. Hier ist der Abstand zwischen den Polarisierungen angemessen, um ein Minimum des Energiepotentials anzustreben.

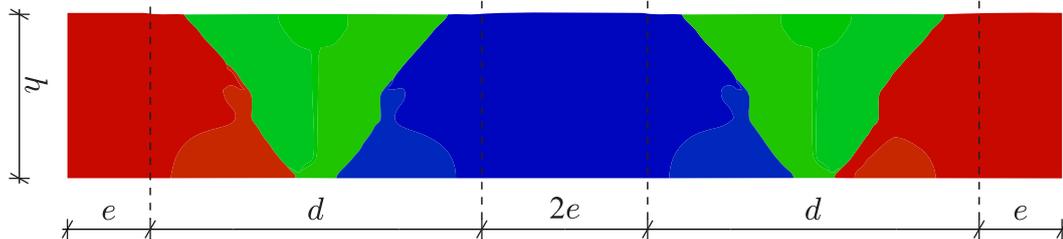
Aus den vorherigen Untersuchungen der verschiedenen Geometrien ( $d/h=100/100$  und  $d/h=50/100$ ) ist bekannt, dass einerseits eine Reduktion des elektrischen Potentials, andererseits eine Variation der Leitfähigkeit Abhilfe schaffen kann, um eine Domänentopologie zu erhalten, die einen Gebrauch des Nanogenerators gewährleistet. Somit ist die Funktionalität des Generators durch eine entsprechende Geometrieänderung oder eine geeignete Wahl der Materialparameter zu justieren. In diesem Fall ist eine elektrische Grenzlast bereits erreicht, sobald die Domänentopologie keine Symmetrie mehr aufzeigt. Anzumerken ist, dass die Zeitschrittweite, welche in die Leckstromformulierung eingeht, eine wichtige Größe bei den Simulationen ist. Wird sie zu klein gewählt, sind die Berechnungen sehr zeitintensiv, wird sie zu groß gewählt, wird keine Konvergenz mehr erreicht und die Simulationen liefern keine plausiblen Ergebnisse mehr.

Auf eine Auswertung mit dem SCLC Leitungsmechanismus wird für die Geometrie  $d/h=200/100$  in dieser Arbeit verzichtet.

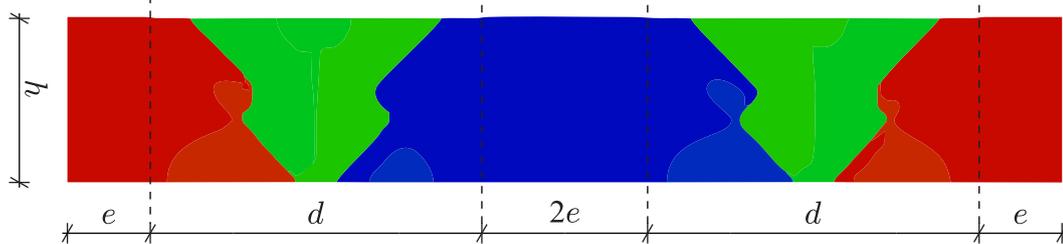
a)  $t_0 = 1000\text{ s}$   $\lambda = 0$



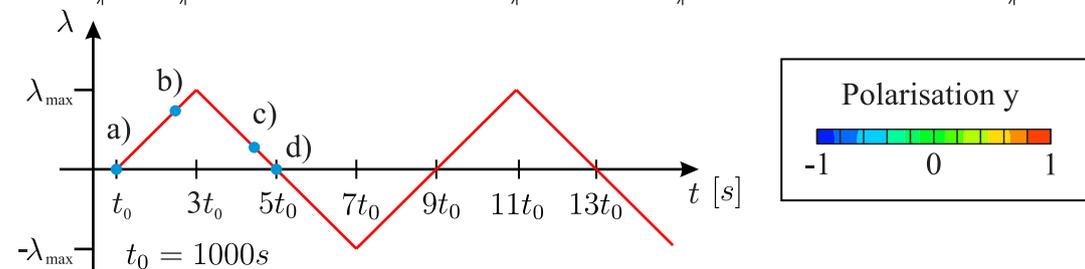
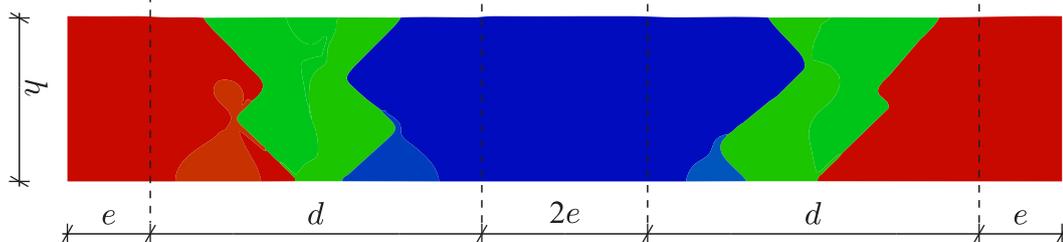
b)  $t = 2500\text{ s}$   $\lambda = 7,5$



c)  $t = 4500\text{ s}$   $\lambda = 2,5$



d)  $t = 4900\text{ s}$   $\lambda = 0,5$

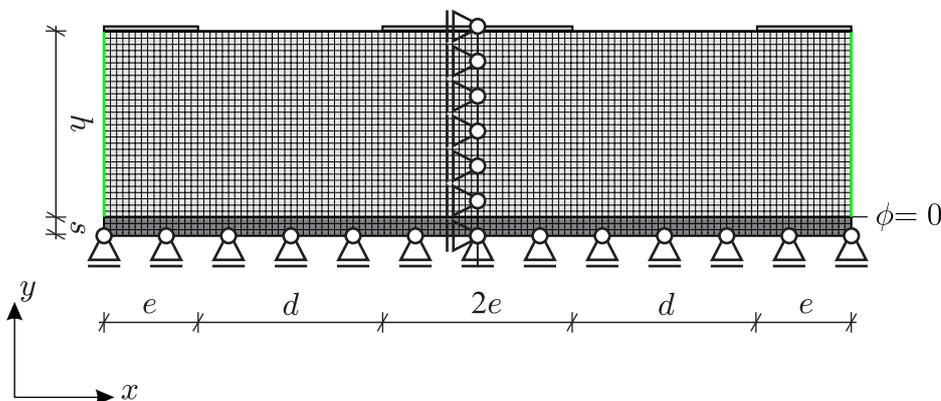


**Abbildung 7.33:** Domänen-topologie während der Hysterese mit Ohm'schen Leitungsmechanismus für die Geometrie  $d/h=200/100$  und  $\phi = 10$ . a)  $t = 1000$ ; b)  $t = 2500$ ; c)  $t = 4500$  und d)  $t = 4900$ .

#### 7.2.4 Steuerung über die Verzerrung im Substrat - Verhältnis $d/h=100/100$ -

Der Nanogenerator wird anhand von mechanischen gleichmäßigen Deformationen angeregt. Diese Vibrationen folgen einer zyklischen Abfolge und werden im Substrat über die Verzerrung  $\varepsilon_V$  berücksichtigt.

Die Beispiele mit zusätzlicher Substratverzerrung werden nachfolgend nur für die Geometrievariante  $d/h=100/100$  durchgeführt. Es werden die ideale Nanogeneratorstruktur, ohne jegliche Leitungsmechanismen, mit dem Ohm'schen Leitungsmechanismus verglichen. Die charakteristische Leitfähigkeit wird bei diesen Beispielen zu  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/(\Omega m)$  angesetzt. Das System und die Randbedingungen sind in Abbildung 7.34 dargestellt. Die Schichtdicke des Substratmaterials kann variiert werden. In dieser Arbeit wird sie zu  $s = 1/10$  der Schichtdicke des Substrats angenommen. Der E-Modul für das Substrat beträgt  $E = 1000$  und die Querkontraktion  $\nu = 0,3$ . Es wird nur die zyklische Verzerrung  $\varepsilon_V$  berücksichtigt. Die Randbedingung an den oberen Elektroden wird mit einem sehr kleinen Wert für das elektrische Potential berücksichtigt. Somit sind die oberen Elektroden quasi kurzgeschlossen. Über eine Länge von  $100 \text{ nm}$  sind 30 9-Knoten Elemente verteilt, über die Schichtdicke des Substrats liegen 3 Elemente mit gleicher Ansatzordnung vor.



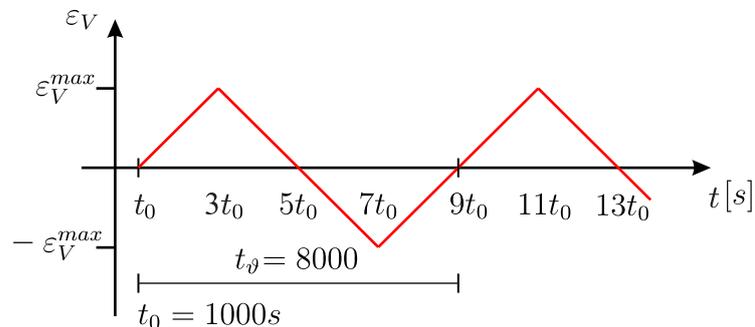
**Abbildung 7.34:** Schematische Darstellung des Systems mit dessen Randbedingungen und Kopplungen (grün) für die Geometrie  $d/h=100/100$  und zusätzlichem Substratmaterial.

Da ein Ausschnitt aus dem Inneren des Nanogenerators simuliert wird, sollen sich keine Randeﬀekte einstellen. Dies wird durch Kopplungen der Freiheitsgrade verhindert. Zum einen werden die Ränder links und rechts des Ferroelektrikums für die Freiheitsgrade  $u_y$ ,  $P_x$ ,  $P_y$  und  $\phi$  miteinander gekoppelt, vergleichbar mit den vorherigen Beispielen. Die Polarisationsdomänen stellen sich entsprechend ein.

Zum anderen werden die horizontalen Verschiebungen  $u_x$  an der jeweiligen Seite des Ferroelektrikums mit der Verschiebung des Substrats gekoppelt. So wird gewährleistet, dass unter zyklischer Belastung des Substrats eine gleichmäßige Verformung in die ferroelektrische Schicht eingebracht wird. Zusätzlich wird im Hinblick auf die nachfolgenden Hysteresen und deren zyklische Substratverzerrung eine horizontale Lagerung in Systemmitte angesetzt. Dies ergibt eine gleichmäßige Verzerrung in  $x$ -Richtung des Modells.

Die aufgeführten Annahmen dienen zur grundlegenden Untersuchung der Umsetzbarkeit und Überprüfung der Funktionalität des Nanogeneratorschnitts. Die Funktionalität wird vorrangig durch die stabile Polarisationsstopologie bestimmt. Geringfügige Schwankungen der Polarisationsdomänen sind zulässig, sofern die allgemeine Topologie nicht durch ein Umklappen in einen metastabilen Zustand verändert wird.

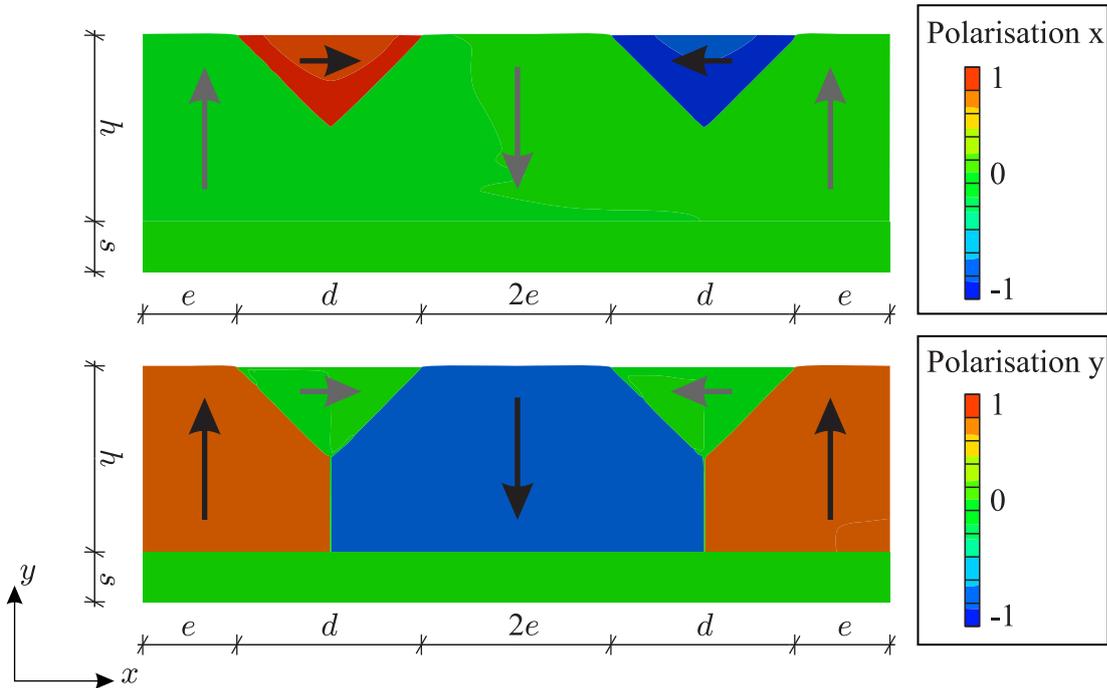
Nach der Evolution wird eine Hysterese mit definierter zyklischer Substratverzerrung berechnet. Die zyklische Verzerrung  $\varepsilon_V$  folgt einer Sägezahnfunktion nach Abbildung 7.35. Die Periodenlänge wird zu  $t_\vartheta = 8t_0$  gewählt. Die Verzerrungsamplitude  $\varepsilon_V^{max}$  wird variiert und deren Einfluss auf die Polarisationsdomänen diskutiert.



**Abbildung 7.35:** Belastungsfunktion der zyklischen Verzerrung, welche im Substrat aufgebracht wird.

## Evolution

Während der Evolution wird keine Verzerrung, sondern nur kurzzeitig ein elektrisches Potential an den oberen Elektroden aufgebracht. Die untere Elektrode bleibt während der Evolution und den anschließenden Hysteresen geerdet, hier ist das elektrische Potential  $\phi = 0$ . Wie bei den vorangegangenen Beispielen wird die Polarisationsstopologie für den idealen Nanogenerator, ohne Leitungsmechanismen, ermittelt. Die sich einstellende Polarisationsstopologie ist in Abbildung 7.36 dargestellt.

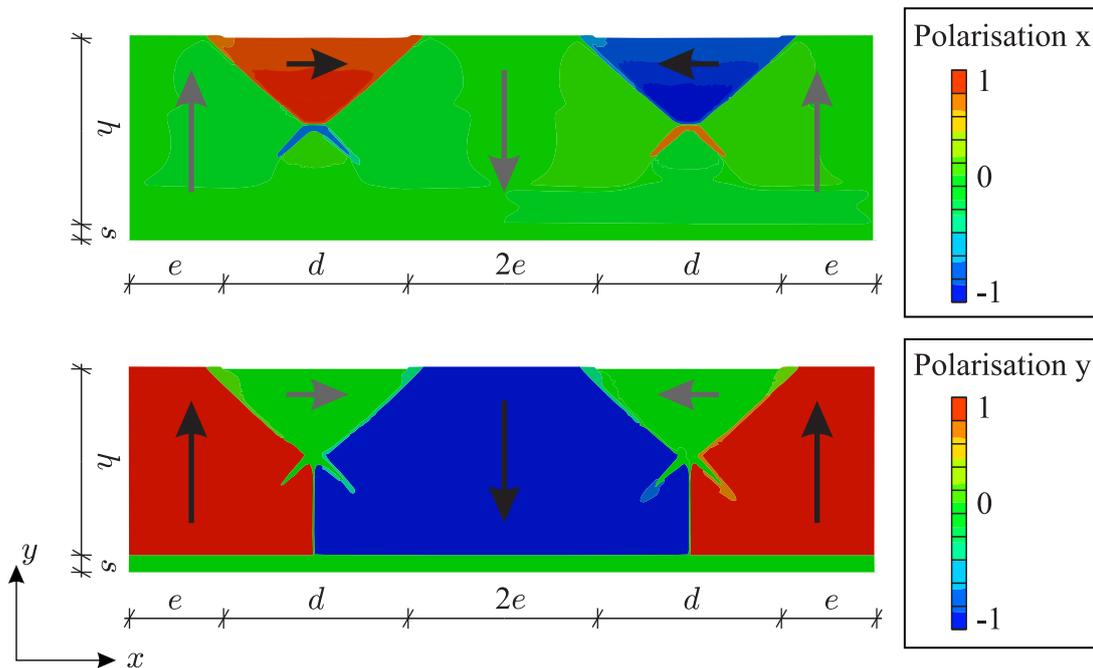


**Abbildung 7.36:** Domänentopologie für die Geometrie  $d/h=100/100$  nach der Evolution mit zusätzlichem Substrat.

### Hysterese für eine maximale Substratverzerrung von $\varepsilon_V^{max} = 1$

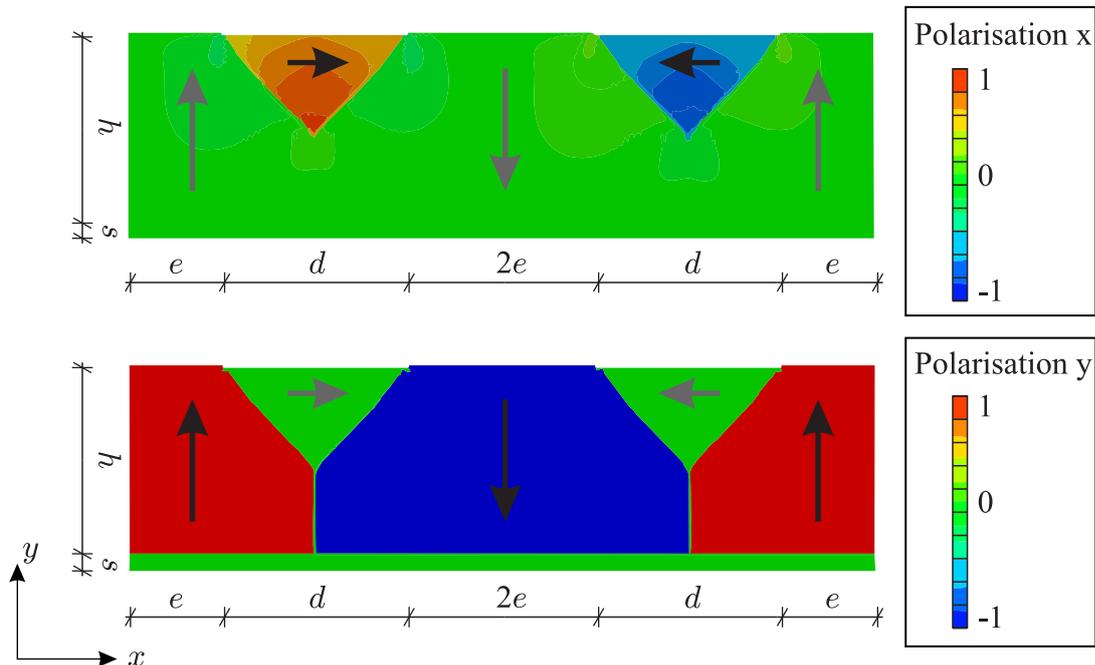
Diese nachfolgende Hysteresebelastung wird mit einer maximalen Verzerrung von  $\varepsilon_V^{max} = 1$  und der Periodenlänge  $t_\vartheta = 8 t_0$  nach Abbildung 7.35 berechnet. Exakte Daten für die Substratverzerrung liegen nicht vor. In dieser Arbeit wird auf Werte zurückgegriffen werden, welche nur zur allgemeinen Untersuchung des Nanaogeneratorverhaltens unter Betrachtung der Verzerrung und gleichzeitig wirkendem Leitungsmechanismus beitragen.

Die Abbildung 7.37 zeigt die horizontalen  $P_x$  und vertikalen  $P_y$  Polarisationsdomänen des idealen Nanogenerators nach Dehnung des Substrats. Nach einer Kompression stellen sich die Polarisationsdomänen, wie in Abbildung 7.38 dargestellt, ein. Die Polarisation ist eine zeitabhängige Größe im Modell des Ferroelektrikums, daher sind hier die maximalen Polarisationszustände dargestellt, die sich jeweils nach Dehnung oder Kompression einstellen, der Zeitpunkt ist nicht immer zur Zeit der maximalen Dehnung oder Kompression, sondern zeitlich versetzt nachläufig. Eine Dehnung des Substrats verursacht ein Umklappen am Kontaktpunkt der  $180^\circ$  und  $90^\circ$  Domänenwände. Die anschließende Kompression führt wieder zu einem Schließen der vertikalen Polarisationsdomänen. Zusätzlich wandern die  $90^\circ$  Domänenwände unter die oberen Elektroden, sodass die Bereich der horizontalen Polarisation sich in  $x$ -Richtung ausweiten.



**Abbildung 7.37:** Horizontale und vertikale Polarisationsanteile des idealen Nanogenerators für eine maximale Verzerrung von  $\varepsilon_V^{max} = 1$ , Dehnung.

Die Polarisationsdomänen unter Dehnung und Leitfähigkeit sind in Abbildung 7.39 dargestellt. Zwischen den  $180^\circ$  Domänenwänden entstehen kleine Bereiche mit horizontaler Dehnung, welche unter Kompression wieder geschlossen werden, siehe Abbildung 7.40. Die Kompression führt zu einer Depolarisation im Bereich der horizontalen Polarisationsdomäne zwischen den oberen Elektroden, da die Polarisation in Dickenrichtung konsequent zu null gesetzt wurde. Im dreidimensionalen Nanogenerator wird sich die Polarisation in Dickenrichtung zusätzlich verändern. Im Bereich der  $180^\circ$  Domänenwände stellen sich unter Dehnung horizontalen Polarisationen ein, die zum Umklappen zur vertikalen Polarisation gezwungen werden. Abbildung 7.41 stellt die positiven Flächenanteile der Polarisation des idealen Nanogenerators mit denen des Nanogenerators mit Ohm'schem Leitungsmechanismus gegenüber. Als Leitfähigkeit wird  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/\Omega m$  angesetzt. Es sei angemerkt, dass eine Variation der Leitfähigkeitswertes  $\Gamma$  zu veränderten Ergebnissen führt. Unter gegebener Belastung ist die Polarisationschwingbreite beim Ohm'schen Leitungsmechanismus deutlich geringer im Vergleich zum idealen Nanogenerator. Der Mittelwert der Polarisationschwingungen ist erhöht. Anhand des zusätzlich berücksichtigten Leitungsmechanismus sammeln sich Ladungen an den Elektrodenenden an und führen zu einer Verminderung der Polarisation in horizontaler Richtung, siehe Abbildung 7.41(a). Aufgrund der sich einstellenden Depolarisationsbereiche zwischen den Elektroden sind die Anteile der horizontalen Polarisationsanteile unter Berücksichtigung von Dehnung und Kompression



**Abbildung 7.38:** Horizontale und vertikale Polarisationsanteile des idealen Nanogenerators für eine maximale Verzerrung von  $\varepsilon_V^{max} = -1$ , Kompression.

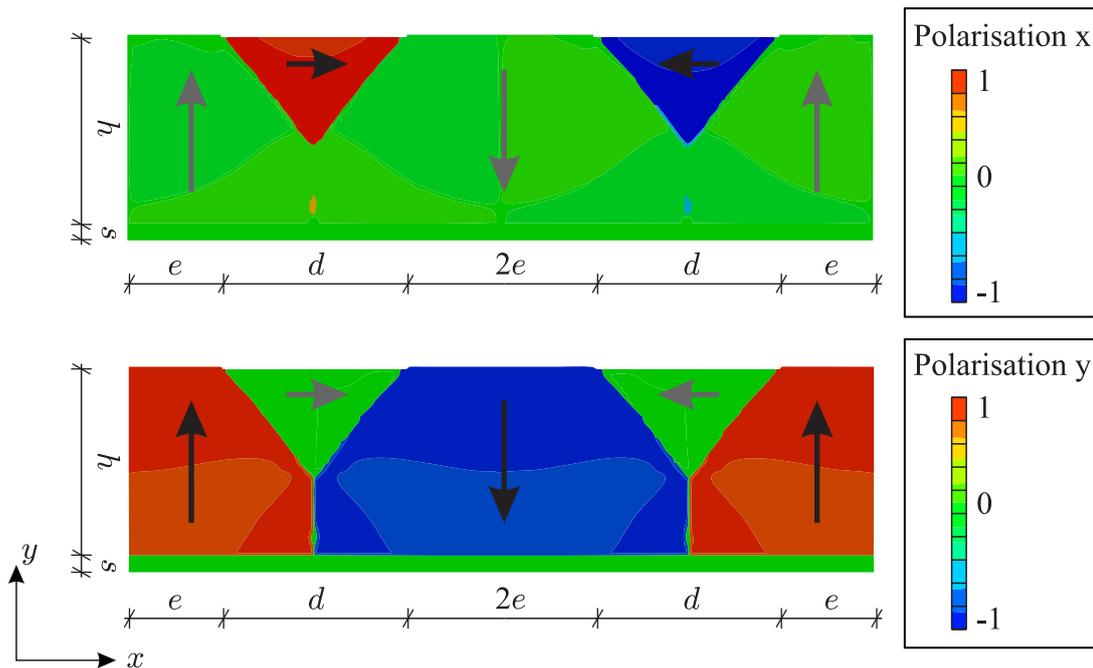
im Substrat stärker beeinflusst, sofern eine Leitfähigkeit berücksichtigt wird. Eine Variation der vertikalen Polarisationsanteile bei Berücksichtigung der Dehnungs- und Kompressionszustände ist nur schwach vorhanden, siehe Abbildung 7.41(b).

### Hysterese für eine maximale Substratverzerrung von $\varepsilon_V^{max} = 0,5$

Im folgenden Beispiel wird eine geringere zyklische Verzerrung  $\varepsilon_V^{max} = 0,5$  über das Substrat in das Ferroelektrikum übertragen. Die Leitfähigkeit beträgt weiterhin  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/\Omega m$  und die Periodenlänge ist unverändert mit  $t_\vartheta = 8 t_0$ . Verglichen werden nachfolgend die Polarisationsdomänen und -anteile der Verzerrungsfunktionen mit  $\varepsilon_V^{max} = 0,5$  und  $\varepsilon_V^{max} = 1$ .

Zunächst folgt eine Auswertung bezüglich der Verzerrungsamplitude von  $\varepsilon_V^{max} = 0,5$ . Die geringe Dehnung von führt dazu, dass keine Depolarisation zwischen den oberen Elektroden entsteht. Die Energie der Verzerrung zu gering, um die Einheitszellen zum Umklappen zu bewegen. Durch den zusätzlich berücksichtigten Leitungsmechanismus sammeln sich Ladungen an den Elektrodenenden und führen hier erneut zu einer Aufweitung der vertikalen Polarisationsdomänen. Unter Dehnung werden die vertikalen Polarisationsanteile nicht wieder verringert, sondern steigen im Verlauf der Lastwechsel weiter an.

Die Substratdehnung reicht nicht aus um die hier entstandenen vertikale Polari-



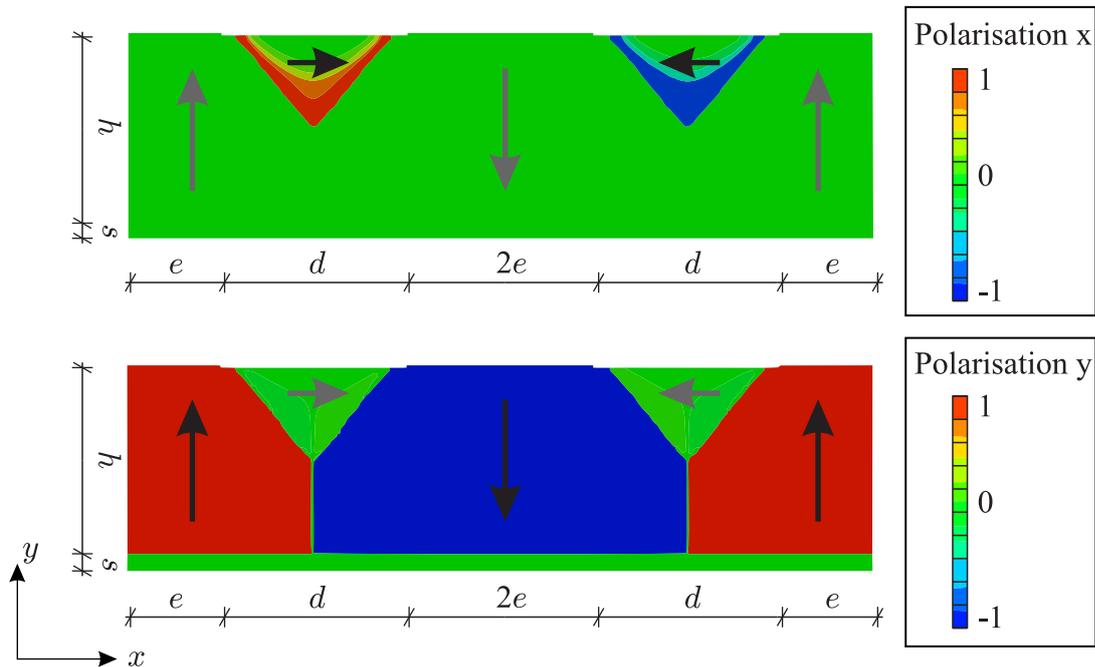
**Abbildung 7.39:** Polarisationsanteile  $P_x$  und  $P_y$  mit Ohm'schen Ladungstransport  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/\Omega m$  für eine maximale Verzerrung von  $\varepsilon_V^{max} = 1$ , Dehnung.

sation in eine horizontale Richtung zu zwingen und somit einen Ladungsausgleich zu schaffen. Die Leitfähigkeit des Ohm'schen Leitungsmechanismus ist im Vergleich zur eingebrachten Verzerrung zu groß, sodass der Leitungsmechanismus überwiegt oder zumindest einen Ausgleich zwischen den Polarisationsdomänen schafft.

In Abbildung 7.42 werden die vertikalen Polarisationszustände für steigende Lastwechselzahlen nach dem jeweiligen Kompressionsvorgang dargestellt. Erkennbar ist eine Zunahme der vertikalen Polarisation zwischen den oberen Elektroden, bedingt durch die Leitfähigkeit, nicht durch die Substratkompression. Denn bereits in den ersten Schritten nach der Evolution, in denen die zyklische Belastung noch nicht aufgebracht wurde, sondern nur die Leitfähigkeit betrachtet wird, lagern sich bereits freie Ladungen an den Elektrodenrändern an, die zu der zusätzlichen vertikalen Ausprägung der Polarisationsdomänen führen.

In Abbildung 7.43 werden Beispiele mit Ohm'scher Leitung und den Verzerrungen  $\varepsilon_V^{max} = 1$  und  $\varepsilon_V^{max} = 0,5$ . Nach Einsetzen der zyklischen Verzerrungen bleiben die vertikalen Polarisationsanteile nahezu konstant, während die horizontalen Anteile abgebaut werden. Die Polarisationschwingbreiten sind aufgrund der geringeren Verzerrung schwächer ausgeprägt.

Nach der jeweiligen Kompression findet keine Depolarisation zwischen den oberen Elektroden statt. Die Leitfähigkeit wirkt der Depolarisation entgegen. Auf eine



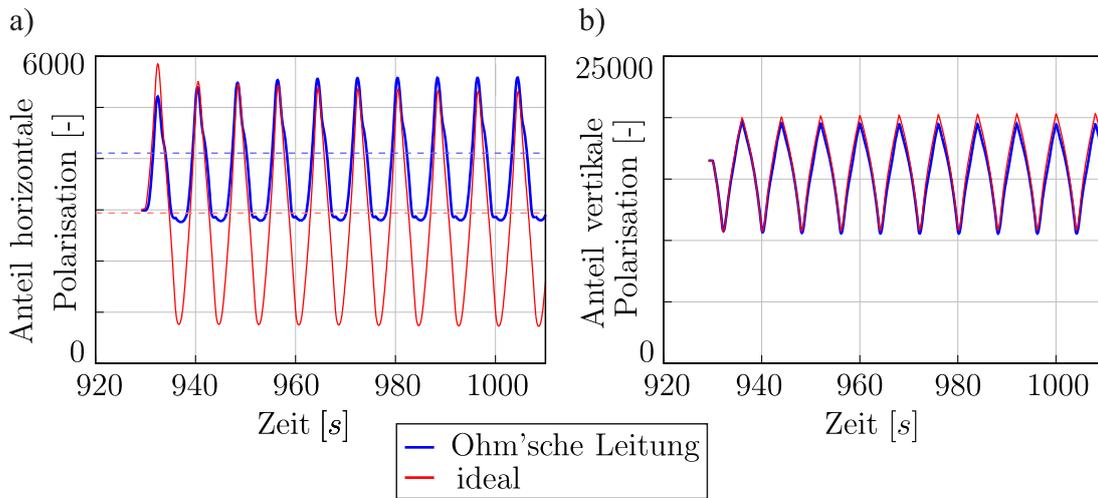
**Abbildung 7.40:** Polarisationsanteile  $P_x$  und  $P_y$  mit Ohm'schen Ladungstransport  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/\Omega m$  für eine maximale Verzerrung von  $\varepsilon_V^{max} = -1$ , Kompression.

Darstellung der horizontalen Polarisationsdomänen wird an dieser Stelle verzichtet. Die horizontalen Polarisationsdomänen nehmen in ihrem Ausmaß ab, aber die Polarisationsrichtung bleibt stets erhalten und ist bereits in der Abbildung 7.36 nach der Evolution mit ihrer Richtung dargestellt.

Eine Variation der Leitfähigkeit  $\Gamma_c$  wurde für dieses Beispiel nicht weiter untersucht. Aus den vorherigen Kapiteln ist bekannt, dass eine geringere Leitfähigkeit hier Abhilfe schaffen kann. Es konnte gezeigt werden, dass der Einfluss der Leitfähigkeit insbesondere bei der Wahl des Einsatzbereichs des Nanogenerators beachtet werden muss. So ist die Geometrie und die Einsatzmöglichkeit durch die Leitfähigkeit des ferroelektrischen Materials begrenzt und muss entsprechend den Vorbemessungen gewählt werden. Unter Betrachtung des Einsatzes und der vorgegebenen Geometrie können vorab Simulationen durchgeführt werden. Hierbei lassen sich mögliche Leitfähigkeiten des favorisierten Materials angeben, sodass stets eine Funktionalität gegeben ist. Das Leitfähigkeit des ferroelektrischen Materials zu bestimmen wird experimentell durchgeführt.

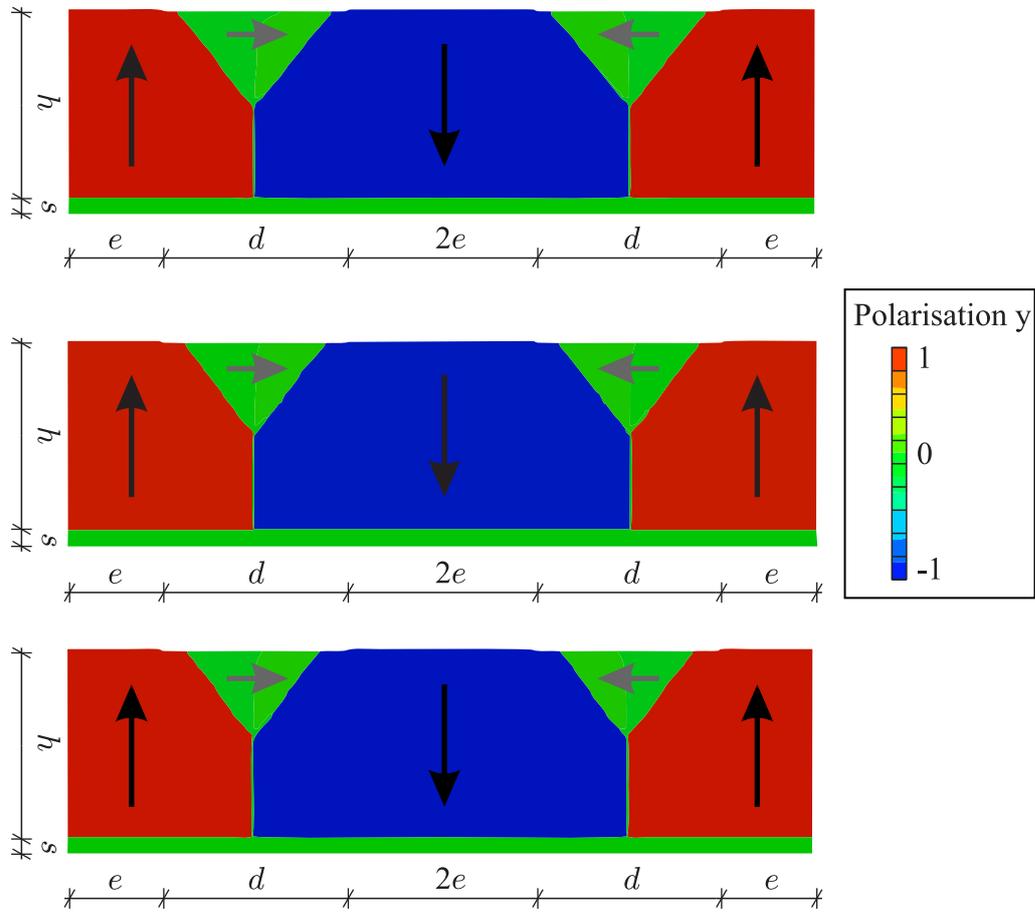
### Hysterese für eine maximale Substratverzerrung von $\varepsilon_V^{max} = 1,1$

Die Berechnung für eine Verzerrungsamplitude von  $\varepsilon_V^{max} = 1,1$  zeigen eine stärkere Ausprägung der horizontalen Polarisationsanteile im Bereich der vorherrschenden  $180^\circ$  Domänenwände und eine größere Depolarisationszone im Bereich

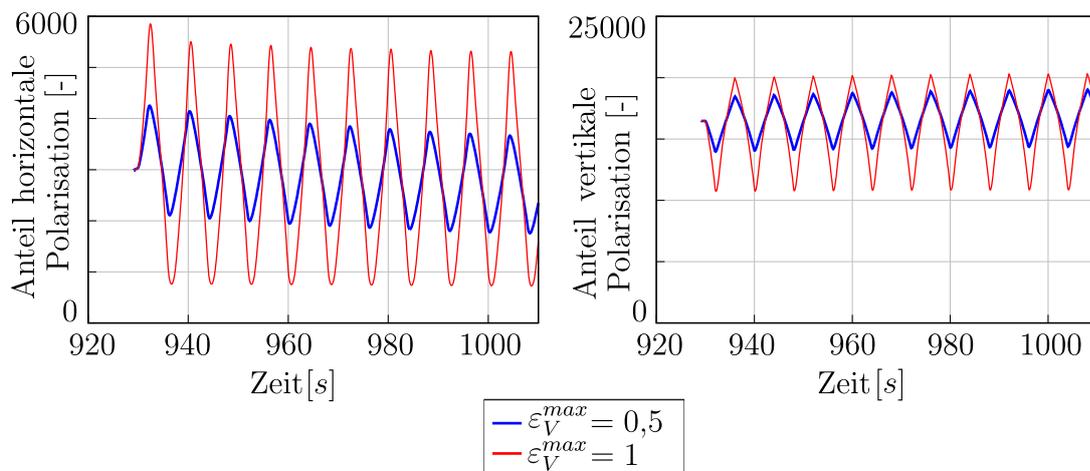


**Abbildung 7.41:** Vergleich der horizontalen und vertikalen Polarisationsanteile des idealen Nanogenerators mit dem Ohmschen Leitungsmechanismus  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/\Omega m$  für eine maximale Verzerrung von  $\varepsilon_V^{max} = 1$ .

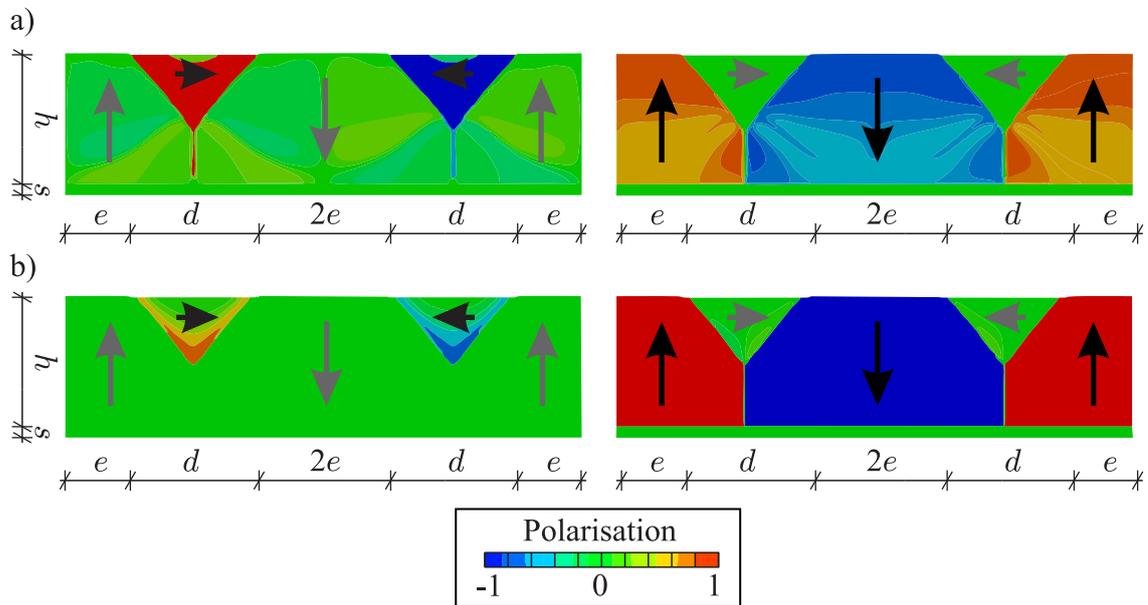
zwischen den oberen Elektroden. Generell ist eine Funktionalität des Generatorprinzips noch gegeben, da der Domänenzustand erhalten bleibt. Eine Steigerung der Verzerrung auf  $\varepsilon_V^{max} = 1,5$  führt zu einem Versagen des Ferroelektrikums. Dies bedeutet, dass die Domänetopologie nicht mehr nur um eine statische Position schwankt, sondern in der Mitte des Ferroelektrikums sich unter Dehnung horizontale Polarisationsdomänen ausbilden und kein Abbau dieser bei Kompression erfolgt. Es entsteht ein Umklappen der Domänetopologie in einen anderen, nicht mehr verwertbaren Zustand bereits bei erstem Dehnungsvorgang, siehe Abbildung 7.45. Nach einem durchlaufenen Zyklus der Belastung entwickelt sich die Domänetopologie nicht wieder in den Ausgangszustand zurück.



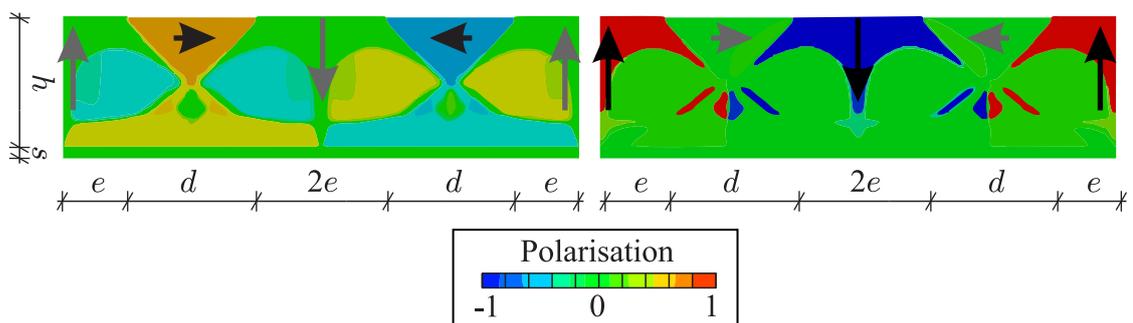
**Abbildung 7.42:** Vertikale Polarisationsanteile für eine maximale Verzerrung von  $\varepsilon_V^{max} = 0,5$  nach Kompression für verschiedene Lastzyklen.



**Abbildung 7.43:** Vergleich der Polarisationsanteile beim Ohm'schen Leitungsmechanismus unter maximaler Verzerrung  $\varepsilon_V^{max} = 0,5$  und  $\varepsilon_V^{max} = 1$ .



**Abbildung 7.44:** Domänentopologie, a) Dehnung und b) Kompression unter Verzerrungsamplitude  $\varepsilon_V^{max} = 1,1$  und der Ohm'schen Leitfähigkeit  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/(\Omega m)$ . Links horizontale Polarisationsdomänen, rechts vertikale Polarisationsdomänen



**Abbildung 7.45:** Domänentopologie für eine Verzerrungsamplitude  $\varepsilon_V^{max} = 1,5$  und der Ohm'schen Leitfähigkeit  $\Gamma_c = 10^{-8} 1/(\Omega m)$ . Links horizontale Polarisationsdomänen, rechts vertikale Polarisationsdomänen

## 8 Zusammenfassung und Ausblick

Mit wachsenden Ansprüchen an die Zuverlässigkeit von elektromechanischen Komponenten wird eine möglichst realitätsnahe Modellierung des komplexen Materialverhaltens angestrebt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein zweidimensionales Materialmodell formuliert und in ein Finite Elemente Programm implementiert. Somit kann das phänomenologische nichtlineare Materialverhalten ferroelektrischer Materialien mit Hinblick auf Leitungsmechanismen in Simulationen berücksichtigt werden.

Piezoelektrisches Energy Harvesting, das mechanische Energie aus der Umgebung erfasst und in elektrische Energie umwandelt, wird in dieser Arbeit numerisch untersucht. Zudem werden zwei Arten von Leitungsmechanismen implementiert und deren Einfluss auf die Funktionsfähigkeit des untersuchten Nanogeneratormodells analysiert. Im Rahmen dieser Arbeit wird zunächst das numerische Phasenfeldmodell und das Prinzip des in dieser Arbeit verwendete Nanogeneratormodell nach MÜNCH UND KRAUSS [54, 55, 65, 66] vorgestellt.

Mithilfe eindimensionaler Simulationen wird gezeigt, dass wesentliche Merkmale der Leitungsmechanismen mit den aus Literaturangaben veröffentlichten Versuchsergebnissen übereinstimmen. Die Verifizierung der Implementierung erfolgt mithilfe der Entladung eines Kondensatormodells und dem Vergleich mit der zugehörigen analytischen Lösung. Für einen ersten Eindruck in die zugrundeliegende mikroskopischen Vorgänge wurden die Umklappprozesse unter rein elektrischer Belastung diskutiert. Hierfür wurden die klassischen Hysteresekurven abgebildet.

Das präferierte Nanogeneratormodell beruht auf der bestimmten Anordnung der Materialien und insbesondere der Strukturierung der oberen Elektroden. Anhand einer elektrischen Belastung dieser Elektroden wird der Einfluss der Leitungsmechanismen auf die Polarisationsdomänen für unterschiedliche Geometrievarianten untersucht. Zusätzlich werden die Höhe des angelegten elektrischen Potentials und die angesetzten Leitfähigkeiten untersucht. Durch zusätzliche Betrachtung der Leitungsmechanismen sammeln sich neben den Elektrodenrändern Ladungen, die den Gradienten des elektrischen Feldes abbauen und dadurch eine vertikale Polarisation erzeugen. Insgesamt nimmt die vertikale Polarisation im untersuchten Generatorauschnitt zu und die horizontale Polarisation ab. Bei zyklischer elektrischer Belastung ist die maximale Beanspruchung des elektrischen Potentials und die Leitfähigkeit des Leitungsmechanismus sowie der Abstand zwischen den oberen Elektroden ausschlaggebend für die Funktionalität des Generators. Die Funktionalität wird anhand der Stabilität der Polarisationsdomänen und der Messung des Leckstromdichte während der Belastung erörtert. Für bestimmte geometrische Verhältnisse und unter Annahme spezieller Leitfähigkeiten der untersuchten Leitungsmechanismen tritt für gewählte maximale Potentialbe-

anspruchungen ein Sperrklinkeneffekt ein. Durch Änderung der Größenordnung der Leitfähigkeit, Geometrie oder Reduzierung des elektrischen Potentials kann die Funktion des Nanogenerators abgeschätzt werden. Untersuchungen mithilfe diesen Beispiels liefern eine elektrische Grenzlast als Vorbemessung für gewählte Parameter; Geometrie, Leitfähigkeit und elektrische Belastung.

Die Umwandlung des Nanogenerators von mechanischer Energie in elektrische Energie erfolgt mithilfe des Beispiels der zusätzlichen Substratverzerrung. Hierbei wird die Steifigkeit des Substrats über dessen Schichtdicke berücksichtigt und hat somit einen Einfluss auf die Polarisationsdomänen gezeigt. Allgemein haben die Leitfähigkeit, die Geometrie des Nanogeneratorschnitts, die Höhe der zyklisch aufgebracht Substratverzerrung und die Substratsteifigkeit Auswirkungen auf die Funktionalität des Nanogenerators. Es konnte eine Methode aufgezeigt werden, anhand derer eine mechanische Grenzlast ermittelt werden kann, sofern eigens gewählte oder vorab bestimmte Material- sowie Geometrieparameter angesetzt werden. Die Brauchbarkeit und Umsetzung des in dieser Arbeit vorgestellten Nanogeneratormodells kann somit frühzeitig untersucht werden, um entsprechende Anpassungen für Versuche und Ergebnisse abzuschätzen.

Anhand dieser numerischen Simulationen wird die Möglichkeit der Vorabschätzung von elektrischer und mechanischer Grenzlast mit jeweiligen Annahmen für die Leitfähigkeiten und daraus folgenden Anpassungsmöglichkeiten für die Geometrieverhältnisse aufgezeigt. Mit der vorliegenden Arbeit wurde aufgeführt, dass die Einflüsse von nichtlinearen Materialeigenschaften von Leitungsmechanismen von entscheidender Bedeutung sind. Nur mit deren Berücksichtigung ist eine realistische strukturmechanische Analyse und somit zuverlässige Aussage über den inneren Materialzustand möglich. Diese Modellberechnungen geben eine Möglichkeit zur numerischen Bestimmung einer elektrischen und mechanischen Grenzlast als Vorbemessung.

Es wurde im Detail gezeigt, wie das weitergeführte Modell zur Untersuchung der Leitungsmechanismen auf die Polarisationsbereiche angewendet werden kann. Aufbauend auf den durchgeführten Untersuchungen können Vergleiche zu experimentellen Daten gezogen werden. Zusätzlich können weitere Geometrievarianten, Beladungssituationen untersucht werden, die maßgeblich die Abschätzung der zu erwartenden Grenzlasten erlauben. Eine Erweiterung auf die dritte Raumrichtung und weitere Untersuchungen zur Domänentopologie bei einwirkender Substratverzerrung bieten außerdem Forschungsmöglichkeiten. Die Erweiterung auf die dritte Raumrichtung wurde in dieser Arbeit nicht untersucht, da hier der Fokus auf der Untersuchung des Einflusses des Materialparameters der Leitungsmechanismen lag. Der Einfluss wurde vorerst bei Auszügen des Nanogenerators untersucht, welche nicht durch Randeinflüsse oder geometrischen Störstellen beeinflusst wird. Die Randeinflüsse und die Erweiterung auf die dritte Raumrichtung sollten da-

her gekoppelt untersucht werden. Die Implementierung der elektrodenbegrenzten Leitungsmechanismen wurden in dieser Arbeit ausgeschlossen und kann in zukünftigen Arbeiten untersucht werden. Weiter wurde kein Risswachstum nach Überschreiten der mechanischen Grenzlast oder Ermüdungsverhalten untersucht.

Zusätzliches Forschungspotential besteht im Hinblick auf die Betrachtung von Defekten und dotiertem Ferroelektrikum. Bei der Dotierung wird das Einbringen spezieller Atome betrachtet, die unter anderem zu einem verstärkten Leckstrom führen können. Defekte, sogenannte Leerstellen im Atomgitter, können eine Bewegung von Atomen und damit einhergehend ein Entstehen von elektrischer Leitung begünstigen. AHLUWALIA ET AL. [2] haben den Prozess der Domänenumschaltung in Ferroelektrika unter Berücksichtigung von Defekten untersucht. Die Defekte wurden simuliert, indem ein inhomogenes elektrisches Feld aufgrund von zufällig angeordneten grobkörnigen Dipolen eingebracht wird. In wieweit die Polarisationsumschaltung durch zusätzliche Leckstrombetrachtung behindert wird und die Grenzlasten bezüglich dem elektrischen Feld und der mechanischen Dehnung sich verändern, gilt es in weiterer Forschung zu untersuchen.

Die Betrachtung zusätzlicher Korngrenzen, wie CHOUDHURY ET AL. in [22, 23] untersuchten, wurde in dieser Arbeit nicht berücksichtigt und ist Gegenstand weiterer Forschung. So könnte das vorliegende Modell auf polykristallines Verhalten angepasst werden. Zusätzlich ist das Schichtablösen ein weiterer Forschungsaspekt, der in der vorliegenden Arbeit nicht bearbeitet wurde, doch herstellungsbedingt Einfluss auf die Generatorfunktion hat. XIAO ET AL. [91] beschäftigten sich mit dem Eintreten von ablösenden Schichten, insbesondere am Materialübergang zwischen Elektroden und Ferroelektrikum und deren Einfluss auf die Domänentopologie. Bisher wurden in dem Modell aus dieser Arbeit keine Effekte diesbezüglich betrachtet, sodass dies eine weitere Möglichkeit bietet das vorliegende Modell zu erweitern.

Als weitere Forschungsthemen wären Risse, Hohlräume und Bruchverhalten zu untersuchen, wie u.a. in JIN ET AL. [45]. Hohlräume können bei der Fertigung der Nanogeneratoren entstehen, Risse während der Nutzung, sodass das Bruchverhalten von keramischen Strukturen zu beachten ist. Unter anderem haben HESCH ET AL. [33] und KUHN ET AL. [56] Phasenfeldmodelle für Risswachstum erarbeitet, welche auf das vorliegende Modell adaptiert werden könnten. Zudem ist stets auch ein Abgleich mit experimentellen Daten nötig, um das Materialmodell und weitere Untersuchungsaspekte entsprechend anzupassen.

## A Normierung des Phasenfeldmodells

Für das Phasenfeldmodell wird eine Normierung angewendet, sodass eine dimensionslose Darstellung vorliegt. Dadurch, dass alle Variablen durch eine charakteristische Größe dividiert werden, verringern sich die Größenordnungsunterschied zwischen den einzelnen Zahlenwerten. Dies ist für die FEM-Berechnungen hilfreich, um Rundungsfehler zu vermeiden. Für eine einheitenlose Form des Phasenfeldmodells werden grundlegende physikalische Größen mit folgenden Faktoren umgeformt: Koerzitivfeldstärke  $E_c = 2,18247 \cdot 10^7 \text{ V/m}$ , spontane Polarisation  $P_0 = 0,26 \text{ C/m}^2$ , spontane Dehnung  $\varepsilon_c = 0,0082$  und Mobilitätstensor  $\beta_{ij} = \beta \delta_{ij}$  in  $[(CVs)/m^3]$ . Der Faktor  $\beta$  wird zu 1 angenommen. Die normierten Größen werden mit  $\hat{\cdot}$  dargestellt. Um die Geometrie zu normieren, wird die Skala  $l_0 = 1 \text{ nm}$  genutzt. Die Normierungen des elektrischen Feldes  $\mathbf{E}$ , der Geometrie des Körpers  $\mathbf{X}$ , der elektrischen Polarisation  $\mathbf{P}$  sowie die mechanischen Verzerrungen  $\boldsymbol{\varepsilon}$  lauten somit:

$$\mathbf{E} \mapsto \hat{\mathbf{E}} := \frac{1}{E_c} \mathbf{E} \quad \mathbf{X} \mapsto \hat{\mathbf{X}} := \frac{1}{l_0} \mathbf{X}, \quad (\text{A1.1})$$

$$\mathbf{P} \mapsto \hat{\mathbf{P}} := \frac{1}{P_0} \mathbf{P}, \quad \boldsymbol{\varepsilon} \mapsto \hat{\boldsymbol{\varepsilon}} := \frac{1}{\varepsilon_c} \boldsymbol{\varepsilon} \quad (\text{A1.2})$$

Die Normierung der dielektrischen Verschiebung  $\mathbf{D}$  erfolgt mithilfe der Normierung der Permittivität des freien Raumes  $\hat{\kappa}_0$ :

$$\kappa_0 \mapsto \hat{\kappa}_0 := \frac{\kappa_0 E_c}{P_0}, \quad (\text{A1.3})$$

$$\mathbf{D} \mapsto \hat{\mathbf{D}} := \hat{\mathbf{P}} + \hat{\kappa}_0 \hat{\mathbf{E}} = \frac{1}{P_0} \mathbf{P} + \frac{\kappa_0 E_c}{P_0} \frac{1}{E_c} \mathbf{E} = \frac{1}{P_0} (\mathbf{P} + \kappa_0 \mathbf{E}) = \frac{1}{P_0} \mathbf{D} \quad (\text{A1.4})$$

Die Normierung der freien Helmholtzenergiedichte  $\hat{\psi}$  ist gegeben durch:

$$\psi \mapsto \hat{\psi} := \frac{\psi}{E_c P_0} \quad (\text{A1.5})$$

Somit ergibt sich für die normierte elektrische Enthalpie  $\hat{h}$ :

$$\begin{aligned} h := \psi - \mathbf{E} \cdot \mathbf{D} \mapsto \hat{h} &:= \frac{h}{E_c P_0} = \frac{\psi - \mathbf{E} \cdot \mathbf{D}}{E_c P_0} = \frac{\psi}{E_c P_0} - \frac{1}{E_c} \mathbf{E} \cdot \frac{1}{P_0} \mathbf{D} \\ &= \hat{\psi} - \hat{\mathbf{E}} \cdot \hat{\mathbf{D}} \end{aligned} \quad (\text{A1.6})$$

Die Normierung der Verschiebungen  $\hat{\mathbf{u}}$  ergeben sich zu:

$$\mathbf{u} \mapsto \hat{\mathbf{u}} := \frac{1}{\varepsilon_c l_0} \mathbf{u} \quad (\text{A1.7})$$

Mithilfe von Gleichung (A1.7) folgt für die Normierung der mechanischen Verzerrungen  $\hat{\boldsymbol{\varepsilon}}$ :

$$\hat{\boldsymbol{\varepsilon}} := \frac{\boldsymbol{\varepsilon}}{\varepsilon_c} = \text{Sym} \left[ \frac{1}{\varepsilon_c} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial \mathbf{X}} \right] = \text{Sym} \left[ \frac{\partial}{\partial \mathbf{X}} \left( \frac{1}{l_0 \varepsilon_c} \mathbf{u} \right) \right] \quad (\text{A1.8})$$

Die Symmetriebedingung für die Verzerrungen bleibt erhalten:  $\hat{\boldsymbol{\varepsilon}} = \text{Sym}[\partial\hat{\boldsymbol{u}}/\partial\hat{\boldsymbol{X}}]$ . Durch die oben aufgeführte Normierung des elektrischen Feldes  $\boldsymbol{E}$  ergibt sich das normierte elektrische Potential  $\phi$  zu:

$$\hat{\boldsymbol{E}} := \frac{1}{E_c} \boldsymbol{E} = -\frac{1}{E_c} \frac{\partial\phi}{\partial\boldsymbol{X}} = -\frac{\partial\phi}{\partial\hat{\boldsymbol{X}}} \left( \frac{\phi}{l_0 E_c} \right) = -\frac{\partial\hat{\phi}}{\partial\hat{\boldsymbol{X}}} \quad (\text{A1.9})$$

$$\phi \mapsto \hat{\phi} := \frac{\phi}{l_0 E_c} \quad (\text{A1.10})$$

Durch die Normierung der Enthalpie in Gleichung (A1.6) werden die Materialparameter  $a_i$ ,  $b_i$ ,  $c_i$ ,  $f_i$  und  $g_i$  in normierte Größen  $\hat{a}_i$ ,  $\hat{b}_i$ ,  $\hat{c}_i$ ,  $\hat{f}_i$  und  $\hat{g}_i$  überführt, siehe Tabelle 1.1. Tabelle 1.2 gibt einen Überblick über die Werte der normierten Größen.

$\hat{a}_i$	$\hat{b}_i, \hat{c}_i$	$\hat{f}_i$	$\hat{g}_i$
$\hat{a}_0 = \frac{a_0 P_0}{l_0^2 E_c}$			
$\hat{a}_1 = \frac{a_1 P_0}{E_c}$	$\hat{b}_1 = \frac{b_1 P_0 \varepsilon_0}{E_c}$	$\hat{f}_1 = \frac{f_1 P_0 \varepsilon_0^2}{E_c}$	$\hat{g}_1 = \frac{g_1 P_0^3 \varepsilon_0}{E_c}$
$\hat{a}_2 = \frac{a_2 P_0^3}{E_c}$	$\hat{b}_2 = \frac{b_2 P_0 \varepsilon_0}{E_c}$	$\hat{f}_2 = \frac{f_2 P_0 \varepsilon_0^2}{E_c}$	$\hat{g}_2 = \frac{g_2 P_0^3 \varepsilon_0}{E_c}$
$\hat{a}_3 = \frac{a_3 P_0^3}{E_c}$	$\hat{b}_3 = \frac{b_3 P_0 \varepsilon_0}{E_c}$	$\hat{f}_3 = \frac{f_3 P_0 \varepsilon_0^2}{E_c}$	$\hat{g}_3 = \frac{g_3 P_0^3 \varepsilon_0}{E_c}$
$\hat{a}_4 = \frac{a_4 P_0^5}{E_c}$	$\hat{c}_1 = \frac{c_1 P_0 \varepsilon_c^2}{E_c P_0}$	$\hat{f}_4 = \frac{f_4 P_0 \varepsilon_0^2}{E_c}$	
$\hat{a}_5 = \frac{a_5 P_0^7}{E_c}$	$\hat{c}_2 = \frac{c_2 P_0 \varepsilon_c^2}{E_c P_0}$	$\hat{f}_5 = \frac{f_5 P_0 \varepsilon_0^2}{E_c}$	
$\hat{a}_6 = \frac{a_6 P_0^5}{E_c}$	$\hat{c}_3 = \frac{c_3 P_0 \varepsilon_c^2}{E_c P_0}$	$\hat{f}_6 = \frac{f_6 P_0 \varepsilon_0^2}{E_c}$	

**Tabelle 1.1:** Normierung der Materialparameter für das Phasenfeldmodell.

$\hat{a}_i$	$\hat{b}_i, \hat{c}_i$	$\hat{f}_i$	$\hat{g}_i$
$\hat{a}_0 = 1$			
$\hat{a}_1 = -0.6683$	$\hat{b}_1 = 2.5414$	$\hat{f}_1 = 0.6636$	$\hat{g}_1 = -3.6615$
$\hat{a}_2 = -3.8056$	$\hat{b}_2 = 1.7427$	$\hat{f}_2 = 0.8413$	$\hat{g}_2 = 6.2742$
$\hat{a}_3 = 0.7892$	$\hat{b}_3 = 0.3994$	$\hat{f}_3 = -0.1706$	$\hat{g}_3 = -1.2164$
$\hat{a}_4 = 12.4421$	$\hat{c}_1 = 2.0499$	$\hat{f}_4 = 0.6873$	
$\hat{a}_5 = 368$	$\hat{c}_2 = 0.9717$	$\hat{f}_5 = 0.2133$	
$\hat{a}_6 = 0.1342$	$\hat{c}_3 = 2.5595$	$\hat{f}_6 = 0.4266$	

**Tabelle 1.2:** Werte der normierten Materialparameter für das Phasenfeldmodell.

## B Erweiterung der Leitungsmechanismen auf mehrere Dimensionen

In der Literatur werden die Leitungsmechanismen in eindimensionalen Formeln angegeben, [9, 14, 27, 32]. Um diese auch für mehrere Dimensionen zu implementieren, werden die in der Literatur angegebenen Formeln auf drei Dimensionen erweitert. Eine grundlegende Annahme hierbei ist die Isotropiebedingung, weshalb die eindimensionalen Gleichungen allgemein mit dem Term  $E_i/||E_i||$  erweitert und anschließend umgeformt werden. Es wird davon ausgegangen, dass in alle Raumrichtungen die gleiche Leckstromrate vorliegt und es keine Vorzugsrichtung gibt. Der Index  $i = 1, 2, 3$  gibt die Raumrichtung an.

### Ohm'sches Gesetz

Für das Ohm'sche Gesetz, mit  $\Gamma_c$  als die charakteristische elektrischen Leitfähigkeit, folgt aus der eindimensionalen Betrachtung:

$$J = \Gamma_c E \quad (\text{A2.1})$$

Nach Erweiterung auf mehrere Dimensionen folgt für die Stromdichte:

$$J_i = \Gamma_c ||E_i|| \frac{E_i}{||E_i||} = J_i = \Gamma_c E_i \quad (\text{A2.2})$$

### Space-charge-limited current

Für den SCLC Leitungsmechanismus, der in quadratischer Abhängigkeit zum elektrischen Feld ist,  $E^2 = ||E_i|| ||E_i||$ , werden zur Übersichtlichkeit die materiellen Koeffizienten zu einem einzigen Koeffizienten  $C$  zusammengefasst, der die charakteristischen Werte beinhaltet. Somit wird die eindimensionale SCLC Gleichung geschrieben als:

$$J = C (E)^2 = C ||E_i|| ||E_i|| \quad (\text{A2.3})$$

Die mehrdimensionale Leckstromformulierung wird zu:

$$J_i = C ||E_i|| ||E_i|| \frac{E_i}{||E_i||} = C ||E_i|| E_i \quad (\text{A2.4})$$

## C Normierung der Leckstrommechanismen

Das Phasenfeldmodell ist ein Modell mit normierten Größen. Dies hat zur Folge, dass auch die Leitungsmechanismen normiert implementiert werden müssen. Im Folgenden werden die einzelnen Mechanismen formell umgeformt, sodass eine normiert implementierte Formel als Ergebnis angegeben werden kann.

### Ohm'sches Gesetz

Für den Ohm'schen Leitungstransport ergibt sich aus der physikalischen Gleichung (A3.1) eine normiert Gleichung der Form (A3.2):

$$\mathbf{J} = \Gamma_c \mathbf{E} \quad (\text{A3.1})$$

$$\hat{\mathbf{J}} = \frac{\Gamma_c \mathbf{E}}{\kappa_0 E_c} \quad (\text{A3.2})$$

Der normierte Materialparameter für den Ohm'schen Leitungstransport lautet:  $\hat{\Gamma} = \Gamma_c \frac{1}{\kappa_0}$ . Nach erfolgter numerischer Berechnung kann aus den gewonnen Werten eine Rückrechnung auf physikalische Größe erfolgen:

$$\mathbf{J} = \hat{\mathbf{J}} E_c \kappa_0 \quad (\text{A3.3})$$

### Space-charge-limited current

Für den Leitungsmechanismus des SCLC erfolgt die Normierung von der physikalischen Gleichung (A3.4) zur normierten in Gleichung (A3.5):

$$\mathbf{J} = \frac{9}{8} \mu \kappa_0 \varepsilon_r \frac{1}{d} \|\mathbf{E}\| \mathbf{E} \quad (\text{A3.4})$$

$$\hat{\mathbf{J}} = \frac{9}{8} \frac{\mu E_c \kappa_0 E_c}{d P_0} \varepsilon_r \left\| \frac{\mathbf{E}}{E_c} \right\| \frac{\mathbf{E}}{E_c} \quad (\text{A3.5})$$

Eine Rückrechnung auf physikalische Größen erfolgt mittels:

$$\mathbf{J} = \hat{\mathbf{J}} P_0 \quad (\text{A3.6})$$

## D Zeitschrittweitensteuerung

Für die numerische Lösung nichtlinearer Probleme ist die Steuerung der Pseudozeitschrittweite von großer Bedeutung. Der hohe Rechenaufwand, welcher für die Lösung eines Problems meist proportional zu der Anzahl der benötigten Zeitschritte ist, kann durch eine geeignete Zeitschrittweitensteuerung reduziert werden. Gleichzeitig kann somit die Genauigkeit sowie die Robustheit des Verfahrens verbessert werden. Die Norm des Fehlkraftvektors der Newton-Iterationen, auch residuale Norm genannt, welche die Erfüllung der Gleichgewichtsbedingung angibt, ist ein möglicher Indikator für die Zeitschrittsteuerung. Treten in einem Zeitpunkt Nichtlinearitäten auf, so sind meist mehrere Iterationen notwendig und die residuale Norm wird im Verlauf der Iterationsschritte nur geringfügig vermindert. Es kann von Vorteil sein, die Größe des folgenden Pseudozeitschritts zu verändern, damit dann das Newton-Verfahren näher an der Lösung ist und somit schneller konvergiert. Hierfür werden Regeln definiert, die angeben, ab welchem Wert der residualen Norm eine Pseudozeitschrittweite innerhalb einer Newton-Iteration vergrößert oder verkleinert wird. In Anlehnung an die Zeitschrittweitensteuerung [54], wird diese in dieser Arbeit ebenfalls verwendet. Eine Zeitschrittweitensteuerung bei nichtlinearen Problemen hat ebenfalls in z.B. [76] Anwendung gefunden.

Vorab werden bestimmte Einstellungen vorgegeben, zum einen eine minimale und maximale Pseudozeitschrittweite,  $\Delta t_{min}$  und  $\Delta t_{max}$ . Zudem werden zwei Grenzwerte  $G_{R1}$  und  $G_{R2}$  für die Norm des Residuums festgelegt. Anhand dieser Grenzwerte werden die Kriterien abgeglichen und die Zeitschrittweite gegebenenfalls angepasst. Die beiden Grenzwerte bilden die Schranken innerhalb derer keine Zeitschrittweitenanpassung vorgenommen wird,  $G_{R1} < ||\mathbf{R}|| < G_{R2}$ . Im ersten Iterationsschritt wird keine Anpassung vorgenommen. Ab dem zweiten Iterationsschritt werden folgende Kriterien angewendet, anhand derer die Pseudozeitschrittweite gesteuert und eine neue Schrittweite bestimmt wird:

1. Kriterium für eine Erhöhung der Schrittweite:

Ist die Norm des Residuums geringer als der untere Grenzwert  $||\mathbf{R}|| < G_{R1}$ , so ist die bisherige Schrittweite zu klein gewählt und kann erhöht werden. Eine Erhöhung der Schrittweite erfolgt um 20%:

$$\Delta t_{neu} = 1,2 \Delta t_{alt}$$

2. Kriterium für eine Reduktion der Schrittweite:

Ist die Norm des Residuums größer als die obere Schranke  $||\mathbf{R}|| > G_{R2}$ , so ist die bisherige Schrittweite zu groß und muss verringert werden. Eine Reduktion der Schrittweite wird um 17% vorgenommen:

$$\Delta t_{neu} = \Delta t_{alt} / 1,2$$

3. Kriterium für einem Neustart der Iteration:

Sofern innerhalb einer vorab angegebenen Anzahl an maximalen Iterationsschritten keine konvergierte Lösung erreicht wird, erfolgt ein Abbruch. Ausgehend vom letzten auskonvergierten Schritt wird die Iterationsschleife mit einer neuen Schrittweite gestartet, wobei die Schrittweite halbiert wird:

$$\Delta t_{neu} = \Delta t_{alt}/2$$

Ziel ist es mit einer kleineren Schrittweite näher an die Lösung heran zu rechnen, damit keine großen Abweichungen zur exakten Lösung entstehen und demzufolge eine Konvergenz des Lösungspfades erreicht wird.

Mithilfe des Abbruchkriteriums kann das Ergebnis des aktuellen Zeitschritts erneut berechnet werden. Die Grenzwerte, mit denen die residuale Norm des Newtoniterationsschritts verglichen wird, können vom Benutzer individuell festgelegt werden. Ebenso kann vom Benutzer vorgegeben werden, inwieweit eine Erhöhung oder Reduktion des neuen Zeitinkrementes vorgenommen werden soll.

## Literatur

- [1] ACOSTA, M. / NOVAK, N. / ROJAS, V. / PATEL, S. / VAISH, R. / KORUZA, J. / ROSSETTI, G.A. / RÖDEL, J.: *BaTiO<sub>3</sub>-based piezoelectrics: Fundamentals, current status, and perspectives*. Applied Physics Reviews 4(4) (2017), S. 041305.
- [2] AHLUWALIA, R. / CAO, W.: *Influence of dipolar defects on switching behavior in ferroelectrics*. Physical Review B 63 (2000), S. 012103.
- [3] ALLIK, H. / HUGHES, T.J.R.: *Finite element method for piezoelectric vibration*. International Journal for Numerical Methods in Engineering 2 (1970), S. 151–157.
- [4] ALTENBACH, H.: *Kontinuumsmechanik*. Springer Vieweg, Berlin / Heidelberg, 2012.
- [5] AVILA, R.E. / CABALLERO, J.V. / FUENZALIDA, V.M. / EISELE, I.: *Charge transport and trapping in BaTiO<sub>3</sub> thin films flash evaporated on Si and SiO<sub>2</sub>/Si*. Thin Solid Films 348(1-2) (1999), S. 44–48.
- [6] BARGEL, H.-J. / SCHULZE, G.: *Werkstoffkunde*. VDI-Buch Springer, Berlin, 2005.
- [7] BATHE, K.-J.: *Finite-Elemente-Methoden*. Band 2, Springer Berlin, 2002.
- [8] BELYTSCHKO, T. / LIU, W. K. / MORAN, B. / ELKHODARY, K.: *Nonlinear finite elements for continua and structures*. John Wiley & Sons, 2014.
- [9] BENGUIGUI, L.: *Space charge limited currents in BaTiO<sub>3</sub> single crystals*. Solid State Communications 7(17) (1969), S. 1245–1247.
- [10] BERGLUND, C.N. / BAER, W.S.: *Electron transport in single-domain, ferroelectric barium titanate*. Physical Review 157(2) (1967), S. 358–366.
- [11] BERLINCOURT, D. / JAFFE, H.: *Elastic and piezoelectric coefficients of single-crystal barium titanate*. Physical Review 111(1) (1958), S. 143–148.
- [12] BETTEN, J.: *Kontinuumsmechanik*. Springer, Berlin, 2001.
- [13] BÖHLE, U.: *Phänomenologische Modellierung und Finite-Elemente-Simulationen von nichtlinearen elektromechanischen Vorgängen in ferroelektrischen Materialien*. Dissertation, Fakultät für Maschinenbau  $\dot{\cup}$  Institut für Keramik im Maschinenbau (IKM), Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, 1999.
- [14] BRZOWSKI, E. / CASTRO, M.S.: *Conduction mechanism of barium titanate ceramics*. Ceramics International 26(3) (2000), S. 265–269.
- [15] CAO, W. / BARSCH, G. R.: *Landau-Ginzburg model of interphase boundaries in improper ferroelastic perovskites of  $D_{4h}^{18}$  symmetry*. Physical Review B 41(7) (1990), S. 4334–4348.

- [16] CAO, W. / BARSCH, G. R. / KRUMHANSL, J. A.: *Quasi-one-dimensional solutions for domain walls and their constraints in improper ferroelastics*. Physical Review B 42(10) (1990), S. 6396–6401.
- [17] CAO, W. / CROSS, L.E.: *Theory of tetragonal twin structures in ferroelectric perovskites with a first-order phase transition*. Physical Review B 44(1) (1991), S. 5–12.
- [18] CAO, Y. / SHEN, J. / RANDALL, C. / CHEN, L.-Q.: *Effect of Ferroelectric Polarization on Ionic Transport and Resistance Degradation in BaTiO<sub>3</sub> by Phase-Field Approach*. Journal of the American Ceramic Society 97(11) (2014), S. 3568–3575.
- [19] CAO, Y. / SHEN, J. / RANDALL, C. / CHEN, L.-Q.: *Effect of multi-domain structure on ionic transport, electrostatics, and current evolution in BaTiO<sub>3</sub> ferroelectric capacitor*. Acta Materialia 112 (2016), S. 224–230.
- [20] CHEN, L.-Q.: *Phase-field models for microstructure evolution*. Annual Review of Materials Research 32(1) (2002), S. 113–140.
- [21] CHIU, F.-C.: *A review on conduction mechanisms in dielectric films*. Advances in Materials Science and Engineering 2014 (2014), S. 1–18.
- [22] CHOUDHURY, S. / LI, Y.L. / KRILL III, C. / CHEN, L.Q.: *Effect of grain orientation and grain size on ferroelectric domain switching and evolution: Phase field simulations*. Acta Materialia 55 (2007), S. 1415–1426.
- [23] CHOUDHURY, S. / LI, Y.L. / KRILL III, C.E. / CHEN, L.-Q.: *Phase-field simulation of polarization switching and domain evolution in ferroelectric polycrystals*. Acta Materialia 53(20) (2005), S. 5313–5321.
- [24] COVACI, C. / GONTEAN, A.: *Piezoelectric energy harvesting solutions: A review*. Sensors 20(12) (2020), S. 1–37.
- [25] DEVONSHIRE, A. F.: *XCVI. Theory of barium titanate: Part I*. The London, Edinburgh and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 40(309) (1949), S. 1040–1063.
- [26] DEVONSHIRE, A.F.: *Theory of ferroelectrics*. Advances in Physics 3(10) (1954), S. 85–130.
- [27] DU, H. / LIANG, W. / LI, Y. / GAO, M. / ZHANG, Y. / CHEN, C. / LIN, Y.: *Leakage properties of BaTiO<sub>3</sub> thin films on polycrystalline Ni substrates grown by polymer-assisted deposition with two-step annealing*. Journal of Alloys and Compounds 642 (2015), S. 166–171.
- [28] ERINGEN, A. C.: *Nonlinear theory of continuous media*. McGraw-Hill Series in Engineering Sciences McGraw-Hill, New York [u.a.], 1962.

- 
- [29] ERINGEN, A. C.: *On the foundations of electroelastostatics*. International Journal of Engineering Science 1(1) (1963), S. 127–153.
- [30] FLIESSBACH, T.: *Elektrodynamik: Lehrbuch zur Theoretischen Physik II*. Band 2, Springer-Verlag, 2012.
- [31] GERTHSEN, CHR. / MESCHEDE, D.: *Gerthsen Physik*. Springer Spektrum, Berlin, 2015.
- [32] GRINBERG, A.A. / LURYI, S. / PINTO, M.R. / SCHRYER, N.L.: *Space-charge-limited current in a film*. IEEE Transactions on Electron Devices 36 (1989), S. 1162–1170.
- [33] HESCH, CHR. / WEINBERG, K.: *Thermodynamically consistent algorithms for a finite-deformation phase-field approach to fracture*. International Journal for Numerical Methods in Engineering 99 (2014), S. 906–924.
- [34] HOFMANN, H.: *Werkstoffe in der Elektrotechnik*. Carl Hanser Verlag, München, 2018.
- [35] HOLZAPFEL, G.A.: *Nonlinear Solid Mechanics: A Continuum Approach for Engineering*. John Wiley & Sons, 2000.
- [36] HORNBOKEN, E. / EGGELER, G. / WERNER, E.: *Polymerwerkstoffe*. S. 403–446, Springer, Berlin, Heidelberg, 2017.
- [37] HU, H.-L. / CHEN, L.-Q.: *Computer simulation of 90 ferroelectric domain formation in two-dimensions*. Materials Science and Engineering: A 238 (1997), S. 182–191.
- [38] HU, H.-L. / CHEN, L.-Q.: *Three-dimensional computer simulation of ferroelectric domain formation*. Journal of the American Ceramic Society 81 (1998), S. 492–500.
- [39] HUBER, J.E. / FLECK, N.A. / LANDIS, C.M. / McMEEKING, R.M.: *A constitutive model for ferroelectric polycrystals*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids 47 (1999), S. 1663–1697.
- [40] HUGHES, T.J.R.: *The Finite Element Method*. Dover Publications Inc., 2000.
- [41] HUGHES, T.J.R. / PISTER, K.S.: *Consistent linearization in mechanics of solids and structures*. Computers & Structures 8 (1978), S. 391–397.
- [42] HWANG, S.C. / LYNCH, C.S. / McMEEKING, R.M.: *Ferroelectric/ferroelastic interactions and a polarization switching model*. Acta Metallurgica et Materialia 43 (1995), S. 2073–2084.
- [43] JACKSON, J.D.: *Classical electrodynamics*. Wiley, New York, 3. Auflage, 1999.
- [44] JAFFE, B. / COOK, W. R. / JAFFE, H.: *Piezoelectric ceramics*. Non-metallic solids Acad. Pr., London [u.a.], 1971.

- [45] JIN, Y.M. / WANG, Y.U. / KHACHATURYAN, A.G.: *Three-dimensional phase field microelasticity theory and modeling of multiple cracks and voids*. Applied Physics Letters 79 (2001), S. 3071–3073.
- [46] JOFFE, A.F.: *Physik der Halbleiter*. Akademie-Verl., Berlin, 2. Auflage, 1958.
- [47] KAMLAH, M.: *Ferroelectric and ferroelastic piezoceramics modeling of electromechanical hysteresis phenomena*. Continuum Mechanics and Thermodynamics 4 (2001), S. 219–268.
- [48] KAMLAH, M. / LISKOWSKY, A. C. / McMEEKING, R. M. / BALKE, H.: *Finite element simulation of a polycrystalline ferroelectric based on a multidomain single crystal switching model*. International Journal of Solids and Structures 42 (2005), S. 2949–2964.
- [49] KAY, H.F. / VOUSDEN, P.: *XCV. Symmetry changes in barium titanate at low temperatures and their relation to its ferroelectric properties*. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 40 (1949), S. 1019–1040.
- [50] KOMMER, CHR. / TUGENDHAT, T. / WAHL, N.: *Tutorium Physik fürs Nebenfach*. Springer, 2015.
- [51] KONTOSOS, A. / LANDIS, C. M.: *Computational modeling of domain wall interactions with dislocations in ferroelectric crystals*. International Journal of Solids and Structures 46 (2009), S. 1491–1498.
- [52] KONTOSOS, A. / LANDIS, C. M.: *Phase-field modeling of domain structure energetics and evolution in ferroelectric thin films*. Journal of Applied Mechanics 77(4) (2010), S. 041014.
- [53] KOWALSKY, W.: *Dielektrische Werkstoffe der Elektronik und Photonik*. Springer-Verlag, 2013.
- [54] KRAUSS, M.: *Entwurf und Finite-Elemente-Modellierung ferroelektrischer Nanostrukturen zur Transformation mechanischer Deformationen in elektrische Energie*. Dissertation, Institut für Baustatik - Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Karlsruhe, 2017.
- [55] KRAUSS, M. / MÜNCH, I. / LANDIS, C.M. / WAGNER, W.: *Phase-field simulation and design of a ferroelectric nano-generator*. In: *Behavior and Mechanics of Multifunctional Materials and Composites*, International Society for Optics and Photonics, 2011.
- [56] KUHN, C. / MÜLLER, R.: *A new finite element technique for a phase field model of brittle fracture*. Journal of Theoretical and Applied Mechanics 49 (2011), S. 1115–1133.

- [57] LANDIS, C. M.: *Non-linear constitutive modeling of ferroelectrics*. Current Opinion in Solid State and Materials Science 8 (2004), S. 59–69.
- [58] LEE, K. Y. / KIM, D. / LEE, J.-H. / KIM, T. Y. / GUPTA, M. K. / KIM, S.-W.: *Unidirectional high-power generation via stress-induced dipole alignment from ZnSnO<sub>3</sub> nanocubes/polymer hybrid piezoelectric nanogenerator*. Advanced Functional Materials 24 (2014), S. 37–43.
- [59] LI, Z. / CHAN, S.-K. / GRIMSDITCH, M.H. / ZOUBOULIS, E.S.: *The elastic and electromechanical properties of tetragonal BaTiO<sub>3</sub> single crystals*. Journal of Applied Physics 70 (1991), S. 7327–7332.
- [60] LINES, M. E. / GLASS, A. M.: *Principles and applications of ferroelectrics and related materials*. The International Series of Monographs on Physics Clarendon Press, Oxford, 1977.
- [61] MANČIĆ, D. / PAUNOVIĆ, V. / VIJATOVIĆ, M. / STOJANOVIĆ, B. / ŽIVKOVIĆ, L.: *Electrical characterization and impedance response of lanthanum doped barium titanate ceramics*. Science of Sintering 40 (2008), S. 283–294.
- [62] MATEU, L. / MOLL, F.: *Review of energy harvesting techniques and applications for microelectronics*. In: *VLSI Circuits and Systems II*, SPIE, 2005.
- [63] MCMEEKING, R. M. / LANDIS, C. M.: *Electrostatic forces and stored energy for deformable dielectric materials*. Journal of Applied Mechanics 77(4) (2005), S. 581–590.
- [64] MOLINARI, A. / WITTE, R. / NEELISETTY, K. K. / GORJI, S. / KÜBEL, CHR. / MÜNCH, I. / WÖHLER, F. / HAHN, L. / HENGSBACH, S. / BADE, K. / HAHN, H. / KRU, R.: *Configurable resistive response in BaTiO<sub>3</sub> ferroelectric memristors via electron beam radiation*. Advanced Materials 32(12) (2020), S. 1907541.
- [65] MUENCH, I. / KRAUSS, M. / WAGNER, W. / KAMLAH, M.: *Ferroelectric nanogenerators coupled to an electric circuit for energy harvesting*. Smart Materials and Structures 21 (2012), S. 115026.
- [66] MÜNCH, I. / KRAUSS, M. / LANDIS, C.M. / HUBER, J.E.: *Domain engineered ferroelectric energy harvesters on a substrate*. Journal of Applied Physics 109 (2011), S. 104106.
- [67] PAN, R.K. / ZHANG, T.J. / WANG, J.Z. / MA, Z.J. / WANG, J.Y. / WANG, D.F.: *Rectifying behavior and transport mechanisms of currents in Pt/BaTiO<sub>3</sub>/Nb: SrTiO<sub>3</sub> structure*. Journal of Alloys and Compounds 519 (2012), S. 140–143.
- [68] PARK, K.-I. / LEE, S. Y. / KIM, S. / CHANG, J. / KANG, S.-J. L. / LEE, K. J.: *Bendable and transparent barium titanate capacitors on plastic substrates*

- for high performance flexible ferroelectric devices.* Electrochemical and Solid-State Letters 13(7) (2010), S. G57.
- [69] PARK, K.-I. / XU, S. / LIU, Y. / HWANG, G.-T. / KANG, S.-J. L. / WANG, Z. L. / LEE, K. J.: *Piezoelectric BaTiO<sub>3</sub> thin film nanogenerator on plastic substrates.* Nano Letters 10 (2010), S. 4939–4943.
- [70] PODGORNY, YURY / SIGOV, ALEXANDER / VOROTILOV, KONSTANTIN: *Once again on the hysteresis loop: leakage current consideration.* Ferroelectrics 573(1) (2021), S. 1–8.
- [71] RAJ, P. M. / XIANG, S. / KUMAR, M. / ABOTHU, I. R. / HWANG, J.-H. / LIU, Y. / YAMAMOTO, H. / TUMMALA, R.: *Leakage current suppression in solution-deposited barium titanate films on copper foils.* Journal of Materials Science: Materials in Electronics 23 (2012), S. 901–908.
- [72] RIKS, E.: *The application of Newton's method to the problem of elastic stability.* Journal of Applied Mechanics 39(4) (1972), S. 1060–1065.
- [73] ROSSI, D. / PECCHIA, A. / AUF DER MAUR, M. / LEONHARD, T. / RÖHM, H. / HOFFMANN, M.J. / COLSMANN, A. / DI CARLO, A.: *On the importance of ferroelectric domains for the performance of perovskite solar cells.* Nano Energy 48 (2018), S. 20–26.
- [74] SCHRADE, DAVID: *Microstructural modeling of ferroelectric material behavior.* Dissertation, Lehrstuhl für Technische Mechanik - Technische Universität Kaiserslautern, Kaiserslautern, 2011.
- [75] SCHULZ, K.: *Theorie und Finite-Elemente-Modellierung geometrisch und materiell nichtlinearer piezoelektrischer Schalenstrukturen.* Dissertation, Institut für Baustatik - Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Karlsruhe, 2010.
- [76] SCHWAAB, H.: *Nichtlineare Modellierung von Ferroelektrika unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit.* Dissertation, Institut für Angewandte Materialien - Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Karlsruhe, 2014.
- [77] SCHWAAB, H. / DELUCA, M. / SUPANCIC, P. / KAMLAH, M.: *Effect of the electric conductivity on the modeling of the poling process of ferroelectric components.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids 61 (2013), S. 504–516.
- [78] SEZER, N. / KOÇ, M.: *A comprehensive review on the state-of-the-art of piezoelectric energy harvesting.* Nano Energy 80 (2021), S. 105567.
- [79] SINGH, P. / ROUT, P.K. / SINGH, M. / RAKSHIT, R.K. / DOGRA, A.: *Thickness dependent charge transport in ferroelectric BaTiO<sub>3</sub> heterojunctions.* Journal of Applied Physics 118 (2015), S. 114103.

- [80] SU, Y. / LANDIS, C.M.: *Continuum thermodynamics of ferroelectric domain evolution: Theory, finite element implementation, and application to domain wall pinning*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids 55 (2007), S. 280–305.
- [81] SUN, J. / ZHENG, X.J. / YIN, W. / TANG, M.H. / LI, W.: *Space-charge-limited leakage current in high dielectric constant and ferroelectric thin films considering the field-dependent permittivity*. Applied Physics Letters 97 (2010), S. 242905.
- [82] TAYLOR, R.L.: *FEAP - Finite Element Analysis Program*. 2024 <http://projects.ce.berkeley.edu/feap/>.
- [83] TELLE, R. / SALMANG, H. / SCHOLZE, H.: *Keramik*. Springer, Berlin, 7. Auflage, 2007.
- [84] TIPLER, P.A. / MOSCA, G.: *Physik für Wissenschaftler und Ingenieure*. Spektrum Akad. Verl., Heidelberg, 2005.
- [85] TRITHAVEESAK, O. / SCHUBERT, J. / BUCHAL, CH.: *Ferroelectric properties of epitaxial BaTiO<sub>3</sub> thin films and heterostructures on different substrates*. Journal of Applied Physics 98 (2005), S. 114101.
- [86] WAGNER, W. / WRIGGERS, P.: *A simple method for the calculation of postcritical branches*. Engineering Computations 5(2) (1988), S. 103–109.
- [87] WANG, J. / SHI, S.-Q. / CHEN, L.Q. / LI, Y. / ZHANG, T.-Y.: *Phase-field simulations of ferroelectric/ferroelastic polarization switching*. Acta Materialia 52 (2004), S. 749–764.
- [88] WOLDMAN, A. Y. / LANDIS, C. M.: *Phase-field modeling of ferroelectric to paraelectric phase boundary structures in single-crystal barium titanate*. Smart Materials and Structures 25 (2016), S. 035033.
- [89] WRIGGERS, P.: *Nichtlineare Finite-Element-Methoden*. Springer-Verlag, 2001.
- [90] XIAO, Y. / BHATTACHARYA, K.: *A continuum theory of deformable, semiconducting ferroelectrics*. Archive for Rational Mechanics and Analysis 189 (2008), S. 59–95.
- [91] XIAO, Y. / SHENOY, V. B. / BHATTACHARYA, K.: *Depletion layers and domain walls in semiconducting ferroelectric thin films*. Physical Review Letters 95 (2005), S. 247603.
- [92] ZHANG, L. / REN, X.: *Aging behavior in single-domain Mn-doped BaTiO<sub>3</sub> crystals: Implication for a unified microscopic explanation of ferroelectric aging*. Physical Review B 73 (2006), S. 094121.
- [93] ZHANG, W. / BHATTACHARYA, K.: *A computational model of ferroelectric domains. Part I: model formulation and domain switching*. Acta Materialia 53 (2005), S. 185–198.

- [94] ZIENKIEWICZ, O.C. / TAYLOR, R.L.: *The Finite Element Method: Its Basis and Fundamentals*. Butterworth-Heinemann, 2013.

# Berichte des Instituts für Baustatik, Karlsruher Institut für Technologie

## Verzeichnis der bisher erschienenen Berichte:

- 51/1: Beitrag zur Ermittlung der zeitabhängigen Eigenspannungen in Verbundträgern, Dissertation, Hansjürgen Sonntag, 1951.
- 54/2: Beiträge zur Ermittlung der zeitabhängigen Spannungen in Verbundträgern, Dissertation, Eugen Müller, 1954.
- 54/3: Zur Statik räumlich gekrümmter Träger, Dissertation, Heinrich Bechert, 1954.
- 55/4: Bemessungsverfahren für Verbundträger, Dissertation, Günter Utescher, 1955.
- 57/5: Einflußfelder für die Hauptträgerschnittkräfte zweistegiger Plattenbalkensysteme, Dissertation, Otto Köller, 1957.
- 60/6: Beitrag zur numerischen Berechnung der Schnittkräfte von rechteckigen und schiefen randversteiften Platten, Dissertation, Klaus Stiglat, 1960.
- 61/7: Allgemeines und einheitliches Berechnungsverfahren für Verbundkonstruktionen aus Stahl und Beton, Dissertation, Herbert Wippel, 1961.
- 62/8: Beitrag zur Bemessung vorgespannter stählerner Fachwerkträger mit besonderer Berücksichtigung der Tragsicherheit, Dissertation, Wolfgang Heidecker, 1962.
- 63/9: Beitrag zur Berechnung der Schnittkräfte und Durchbiegungen von umfanggelagerten Rechteckplatten mit veränderlichem Querschnitt in einer Spannrichtung, Dissertation, Ernst Buchholz, 1963.
- 63/10: Der winkelrecht zu seiner Ebene belastete, kreisförmig gekrümmte Träger mit starrer Torsionseinspannung an den Auflagerpunkten, Dissertation, Hans Wittfoht, 1963.
- 63/11: Ein Verfahren zur Berechnung biegsamer rechteckiger Gründungsplatten mit elektronischen Rechengерäten, Dissertation, Artur Deninger, 1963.
- 64/12: Anwendung des Momentenausgleichsverfahrens für durchlaufende schiefwinklige Platten, Dissertation, Jahiclul Alum, 1964.

- 67/13: Beitrag zur Berechnung des Tragvermögens von Rahmentragwerken aus Stahl nach der Plastizitätstheorie II. Ordnung, Dissertation, Mieng-Siong Wang, 1967.
- 67/14: Zusammenwirken von biegesteifem Skelett und aussteifenden Wandscheiben in Hochhauskonstruktionen, Dissertation, Rolf Zickendraht, 1967.
- 68/15: Experimentelle Untersuchung von beliebig gelagerten Plattentragwerken mit Hilfe von elektrischen Analogieschaltungen, Dissertation, Werner Sitzler, 1968.
- 0/75 : Berechnung einfeldriger und durchlaufender Kastenträger unter Berücksichtigung der Querschnittsdeformation, Dissertation, J. Hanisch, 1975.
- 1/76 : Das Tragverhalten längsversteifter, vorverformter Rechteckplatten unter Axialbelastung nach der nichtlinearen Beultheorie (unter Berücksichtigung der orthotropen Struktur sowie einer elastischen Lagerung am Längsrand), Habilitationsschrift, Helmut Rubin, 1976.
- 2/78 : Traglastuntersuchungen ebener Rahmen aus Stahl unter Berücksichtigung teilplastischer Zonen, Dissertation, Ülgen Korkut, 1978.
- 3/79 : Traglastermittlung von räumlich belasteten Durchlaufträgern mit offenem, dünnwandigem Querschnitt bei beliebigem Werkstoffgesetz, Dissertation, Wolfgang Heil, 1979.
- 4/79 : Schnittgrößen im Verschneidungsbereich eines kreiszylindrischen Druckbehälters mit einem Stutzen beliebiger Länge, Dissertation, Kurt Schumer, 1979.
- 5/81 : Traglastberechnung räumlicher Rahmen aus Stahl- oder Leichtmetallprofilen mit dünnwandigen offenen Querschnitten, Dissertation, Theodor Ackermann, 1981.
- 6/83 : Berechnung orthotroper Rechteckplatten nach der nichtlinearen Elastizitätstheorie für beliebige Randbedingungen, Dissertation, Karl Morgen, 1983.
- 7/86 : Traglastermittlung räumlicher Stabtragwerke aus Stahl und Leichtmetall unter Berücksichtigung der Schubweichheit, Dissertation, Dietmar H. Maier, 1986.
- 8/89 : Bemessung von Raumbachwerken bezüglich ihrer Grenztragfähigkeit mit Hilfe der mathematischen Optimierung, Dissertation, Richard Harich, 1989.
- 9/89 : Quasi-Newton Verfahren und Kurvenverfolgungsalgorithmen für die Lösung nichtlinearer Gleichungssysteme in der Strukturmechanik, Forschungsbericht, Karl Schweizerhof, 1989.

- 10/90 : Finite Element Konzepte für schubelastische Schalen mit endlichen Drehungen, Dissertation, Heinrich Gebhardt, 1990.
- 11/91 : Theorie II. Ordnung des eben gekrümmten Stabes bei nicht richtungstreuen Kräften, Dissertation, Peter Brković, 1991.
- 12/91 : Nichtlineare Finite Element Berechnungen von Schalenträgwerken mit geschichtetem anisotropen Querschnitt, Dissertation, Rudolf Klarmann, 1991.
- 13/94 : Adaptive Finite Element Konzepte zur Analyse von Schalenträgwerken, Dissertation, Markus Baumann, 1994.
- 1 (1995) : Optimierung von Stockwerkrahmen aus Stahl mit biegesteifen und biegeweichen Rahmenknoten, Dissertation, Petra Höß, 1994, ISBN: 978-3-935322-00-3.
- 2 (1996) : Theorie und Numerik dünnwandiger Faserverbundstrukturen, Forschungsbericht, Friedrich Gruttmann, 1996, ISBN: 978-3-935322-01-1.
- 3 (1997) : Stabilität von Stahlzylindern mit unilateralen Randbedingungen bei statischen und dynamischen Beanspruchungen, Forschungsbericht, Klaus Knebel, 1997, ISBN: 978-3-935322-02-7.
- 4 (1998) : Eine einheitliche Finite-Element-Formulierung für Stab- und Schalenträgwerke mit endlichen Rotationen, Dissertation, Roland Sauer, 1998, ISBN: 978-3-935322-03-4.
- 5 (1999) : Finite-Element-Modellierung von Starrkörper- und Übergangsbedingungen in der Statik, Dissertation, Joachim Kugler, 1999, ISBN: 978-3-935322-04-1.
- 6 (2000) : Delaminationsanalysen von Faserverbundstrukturen mit der Methode der finiten Elemente, Dissertation, Wolfgang Sprenger, 2000, ISBN: 978-3-935322-05-8.
- 7 (2000) : Theorie und Numerik eines Volumen-Schalen-Elementes bei finiten elastischen und plastischen Verzerrungen, Dissertation, Sven Klinkel, 2000, ISBN: 978-3-935322-06-5.
- 8 (2001) : Theorie und Numerik für den Entwurf von vorgespannten Membrantragwerken, Dissertation, René Ziegler, 2001, ISBN: 978-3-935322-07-2.
- 9 (2005) : Ein inelastisches 3D-Versagensmodell für Beton und seine Finite-Element-Implementierung, Dissertation, Jan Schütt, 2005, ISBN: 978-3-935322-08-9.

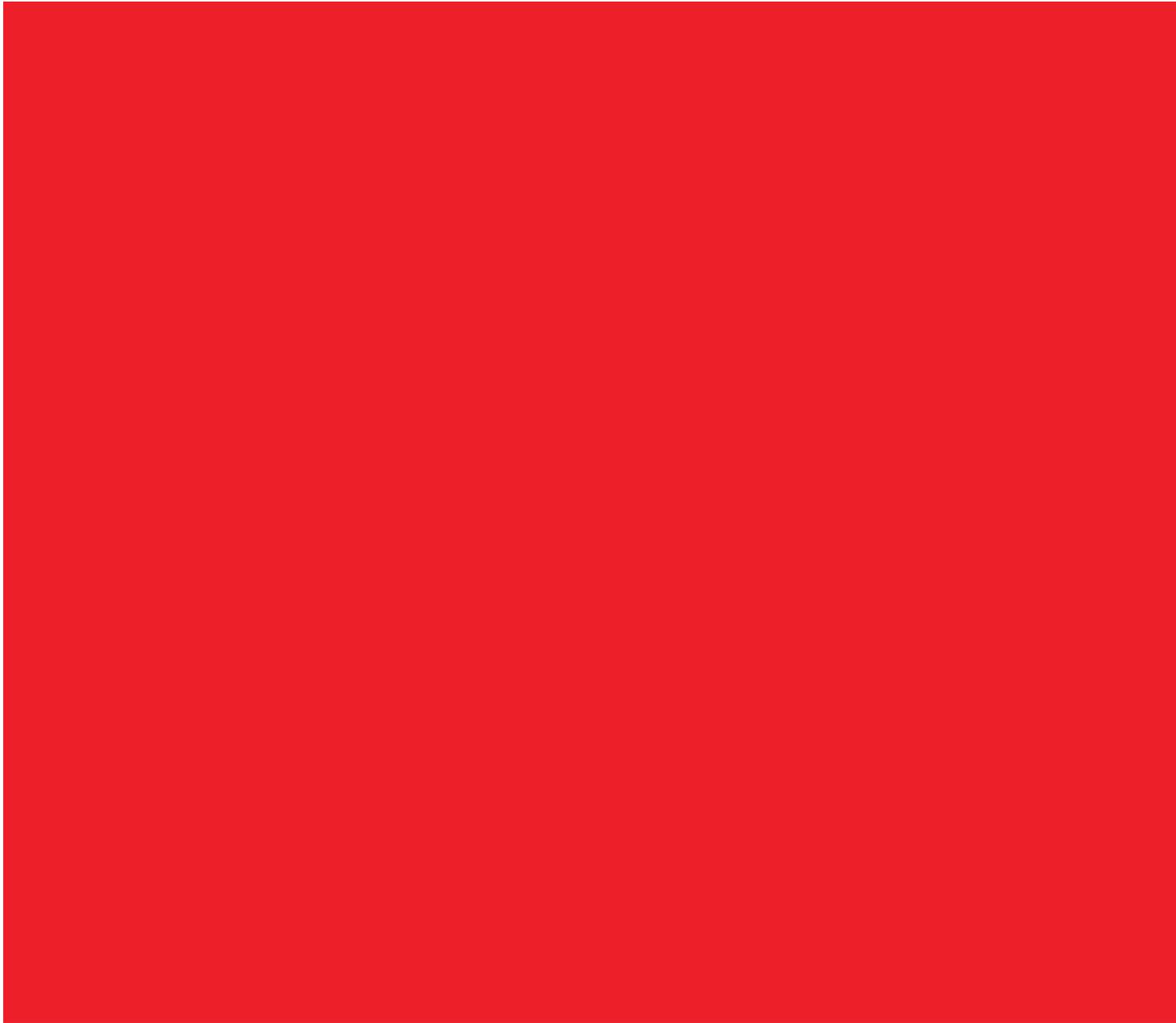
- 10 (2006) : Formfindung der Fließliniengeometrie für polygonale Platten im Traglastzustand, Dissertation, Jochen Wüst, 2006, ISBN: 978-3-935322-09-6.
- 11 (2006) : Nichtlineare Formulierung piezoelektrischer 3D-Stabstrukturen - Theorie und Finite-Element-Modellierung, Dissertation, Alexander Butz, 2006, ISBN: 978-3-935322-10-2.
- 12 (2007) : Nichtlineare Modellierung ferroelektrischer Keramiken und piezoelektrischer Strukturen – Analyse und Finite-Element-Formulierung, Habilitationsschrift, Sven Klinkel, 2007, ISBN: 978-3-935322-11-9.
- 13 (2007) : Ein geometrisch und materiell nichtlineares Cosserat-Modell – Theorie, Numerik und Anwendungsmöglichkeiten, Dissertation, Ingo Münch, 2007, ISBN: 978-3-935322-12-6.
- 14 (2008) : Magnetostriktive und piezoelektrische Materialien – Konstitutive Modellierung und Finite-Element-Formulierung, Dissertation, Konrad Linnemann, 2008, ISBN: 978-3-935322-13-3.
- 15 (2008) : Theorie und Numerik unidirektional verstärkter Faserverbundwerkstoffe: 3D Finite-Elemente-Untersuchungen der Faser-Matrix Mikroinstabilitäten, Dissertation, Jens Harich, 2008, ISBN: 978-3-935322-15-7.
- 16 (2009) : Finite Element Modeling of Intra- and Interlaminar Damage Growth in Composite Laminates, Dissertation, Claudio Balzani, 2009, ISBN: 978-3-935322-16-4.
- 17 (2010) : Theorie und Finite-Elemente-Modellierung geometrisch und materiell nichtlinearer piezoelektrischer Schalenstrukturen, Dissertation, Katrin Schulz, 2010, ISBN: 978-3-935322-17-1.
- 18 (2011) : Finite-Elemente-Formulierung mit abgestimmten Approximationsräumen für die Modellierung piezoelektrischer Stab- und Schalenstrukturen, Dissertation, Dieter Legner, 2011, ISBN: 978-3-935322-18-8.
- 19 (2014) : Nichtlineare elektromechanisch gekoppelte Viskoelastizität bei großen Verformungen am Beispiel dielektrischer Elastomere – Konstitutive Modellierung und Finite-Elemente-Formulierung, Dissertation, Alexander Büschel, 2014, ISBN: 978-3-935322-19-5.
- 20 (2014) : Duroplastische Kunststoffe mit Elastomerzusätzen - Konstitutive Modellierung und Finite-Elemente-Formulierung, Dissertation, Stefan Lacher, 2014, ISBN: 978-3-935322-20-1.
- 21 (2014) : Numerische Stabilitätsuntersuchung dünnwandiger Tragwerke unter dem Einfluss stochastischer Imperfektionen, Dissertation, Stefan Lauterbach, 2014, ISBN: 978-3-935322-21-8.

- 22 (2017) : Entwicklung robuster Ein- und Mehrskalen-Modelle zur Simulation von Delaminationsprozessen faserverstärkter Lamine, Dissertation, Tillmann Herwig, 2017, ISBN: 978-3-935322-22-5.
- 23 (2017) : Entwurf und Finite-Elemente-Modellierung ferroelektrischer Nanostrukturen zur Transformation mechanischer Deformationen in elektrische Energie, Dissertation, Matthias Krauß, 2017, ISBN: 978-3-935322-23-2.
- 24 (2018) : Entwurf und Finite-Elemente-Modellierung ferroelektrischer Nanostrukturen zur Transformation mechanischer Deformationen in elektrische Energie, Dissertation, Jonas Läufer, 2018, ISBN: 978-3-935322-24-9.
- 25 (2018) : Ein gemischtes FE-Modell zur Untersuchung des nichtlinearen Deformations- und Spannungsverhaltens schubweicher Lamine, Dissertation, Max Köpple, 2018, ISBN: 978-3-935322-25-6.
- 26 (2020) : Metaheuristische Form- und Systemoptimierung von Stabtragwerken mit Evolutionsstrategien, Dissertation, Alexander Keller, 2019, ISBN: 978-3-935322-26-3.
- 27 (2020) : Polymorphe Unschärfemodellierung in der nichtlinearen Strukturmechanik – Stabilität von Schalentragwerken, räumliche Variabilität und Metamodellierung, Dissertation, Marc Fina, 2020, ISBN: 978-3-935322-27-0.
- 28 (2023) : Physikalisch konsistente Modellierung von elastischem und plastischem Materialverhalten mit künstlichen neuronalen Netzen, Dissertation, Patrick Weber, 2023, ISBN: 978-3-935322-28-7.



# Lebenslauf

Name	Franziska Johanna Wöhler
Geburtsdatum	07.01.1990
Geburtsort	Eckernförde
2000–2009	Jungmannschule Eckernförde, Gymnasium Abitur
2009–2010	Au-Pair, Australien
2010–2013	Bachelorstudium des Bauingenieurwesens Karlsruher Institut für Technologie (KIT) Bachelorarbeit: Institut für Baustatik
2013	Auszeichnung der Bachelorarbeit mit dem Bilfinger Preis 2013
2013–2015	Masterstudium des Funktionalen und Konstruktiven Ingenieurbaus Karlsruher Institut für Technologie (KIT) Masterarbeit: ACS Australia, Melbourne, Australien
2016–2022	Wissenschaftliche Mitarbeiterin Karlsruher Institut für Technologie (KIT) Institut für Baustatik



**ISBN 978-3-935322-29-4**