



---

**Forschungszentrum Karlsruhe**  
Technik und Umwelt

---

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA 6190

# **Messungen an PZT-Keramiken**

**S. Müller**

Institut für Materialforschung

**März 1999**

---



**FORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE**

Technik und Umwelt  
Wissenschaftliche Berichte

**FZKA 6190**

# **Messungen an PZT-Keramiken**

**S. Müller**

Institut für Materialforschung

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

1999

**Als Manuskript gedruckt**  
**Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor**  
**Forschungszentrum Karlsruhe GmbH**  
**Postfach 3640, 76021 Karlsruhe**  
**Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft**  
**Deutscher Forschungszentren (HGF)**  
**ISSN 0947-8620**

## **Zusammenfassung**

Im vorliegenden Bericht werden Experimente an kommerziellen hart- und weich-PZT-Keramiken beschrieben.

An polarisierten und nichtpolarisierten, kleinen prismenförmigen Proben, wurden unter anderem folgende Eigenschaften bestimmt:

- ferroelastisches Verhalten
- ferroelektrisches Verhalten
- elektrisches und mechanisches Ermüdungsverhalten.

Ein besonderer Schwerpunkt der Arbeit lag auch auf der Beschreibung der angewandten Meßtechniken. Deshalb wurde dem Ultraschall- und dem Schallemissionsverfahren viel Platz eingeräumt. Diese Techniken haben gezeigt, daß sie zum besseren Verständnis des „Innenlebens“ der Piezo-Keramiken beitragen können und als Diagnosemethoden für Ermüdungsschädigung geeignet sind.

## **Measurements on PZT-Ceramics**

### **Abstract**

In this report experiments on commercial hard- and soft-PZT-ceramics are described. On poled and unpoled, small prism form specimens the following properties were determined:

- ferroelastics behaviour
- ferroelectrics behaviour
- electrical and mechanical tiring behaviour

A special main focus of this work was also on the description of the used measurement technics. Therefore a large place was taken for the ultrasonic- and the acoustic emission testing method. These technics have showed, that this methods can give a better view of the „inside live“ of the piezo-ceramics and that they are suitable as a diagnose method for fatigue damage.

<b><u>Inhalt:</u></b>	<b>Seite</b>
<b>1.</b> Allgemeines	1
<b>2.</b> Untersuchte Werkstoffe, Proben	1
<b>3.</b> Ferroelastisches Verhalten	2
<b>3.1</b> Meßeinrichtungen und –methoden	2
<b>3.2</b> Versuchsergebnisse, Druckbelastung	4
<b>3.3</b> Zug-Druck Versuch an PIC 151	5
<b>4.</b> Ferroelektrisches Verhalten	6
<b>4.1</b> Versuchsaufbau, Meßeinrichtungen	6
<b>4.2</b> Polen von PZT-Keramiken	7
<b>4.3</b> Messen der dielektrischen Hysterese	7
<b>4.3.1</b> Meßschriebe	8
<b>4.4</b> Messen der mechanischen Deformationen beim elektrischen Umpolen	9
<b>4.4.1</b> Meßschriebe	9
<b>5.</b> Messen von dielektrischen Größen	10
<b>5.1</b> Meßeinrichtung, Berechnung	10
<b>5.2</b> Abhängigkeit der Dielektrizitätsgröße von einer überlagerten Druckspannung	10
<b>5.3</b> Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätsgröße	11
<b>6.</b> Schallemission (SE) und andere Effekte bei Ermüdungstests	11
<b>6.1</b> SE-Meßeinrichtung	12
<b>6.1.1</b> Funktionstest	13
<b>6.2</b> SE bei mechanischer Belastung	13
<b>6.3</b> SE bei elektrischer Belastung	15
<b>6.3.1</b> Begleitende Effekte; Vergleich; Polarisierungsstrom-Barkhausensignal	15
<b>6.3.2</b> SE vom Umpolen bis zum Ermüdungsbruch	17
<b>6.3.3</b> Änderungen von $I_p$ und $E_c$ bei der Ermüdung	20
<b>7.</b> Ultraschall (US)-Messungen an PZT-Keramik	21
<b>7.1</b> US-Meßeinrichtung	22
<b>7.2</b> Meßverfahren für longitudinale Schallgeschwindigkeit $c_l$	22
<b>7.3</b> Meßergebnisse für $c_l$ an lastfreien Proben	22
<b>7.4</b> Verlauf von $c_l$ während der mechanischen Belastung	23
<b>7.5</b> Verlauf von $c_l$ beim elektrischen Umpolen	24
<b>7.6</b> Meßverfahren für transversale Schallgeschwindigkeit $c_t$	25
<b>7.7</b> Y-Modul aus $c_l$ und $c_t$	27
<b>7.8</b> Änderung der Schalldämpfung durch Mikrorißbildung in der Probe	28
<b>8.</b> Lebensdauermessungen	31
<b>8.1</b> Druckschwellversuch	31
<b>8.2</b> Zug-Druck(=Wechselast)-Versuch	32
<b>9.</b> Schlußbemerkungen	33
<b>10.</b> Literatur	33

# 1. Allgemeines

Im Rahmen unseres Forschungsprogramms "Verformungs- und Schädigungsverhalten von piezokeramischen Werkstoffen" werden verschiedene Untersuchungen und Modellberechnungen im IMF-II durchgeführt.

Ziel dieser Untersuchungen ist es, zusätzlich zu den Herstellerangaben für die Werkstoffe, eigene erweiterte Kenntnisse zum Verhalten der verschiedenen Kenngrößen und Schädigungsmechanismen unter mechanischer, elektrischer und thermischer Belastung zu erarbeiten.

Im vorliegenden Bericht werden hierzu Beiträge aus Experimenten an hart- und weich-PZT-Werkstoffen vorgestellt und die dazugehörige Meßtechnik erläutert.

# 2. Untersuchte Werkstoffe, Proben

Unsere Untersuchungen wurden an kommerziell verfügbaren Werkstoffen, einem "harten" und einem "weichen" PZT der Fa. PI-Ceramic durchgeführt.

Tab. 1 zeigt einen Auszug aus dem PI-Datenblatt mit einigen Kenndaten dieser Keramiken. Ein „hartes“ Material, wie PIC 141, weist u.a. höhere mechanische Güten auf und wird deshalb z.B. für Ultraschalleistungssender eingesetzt.

Ein „weiches“, wie das PIC 151, weist eine höhere remanente Polarisierung auf und wird z.B. für Ultraschallsensoren und in Aktoren eingesetzt.

Kenndaten der Werkstoffe	hart			weich	
	PIC 131	PIC 140	PIC 141	PIC 151	PIC 165
Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	7,85	7,60	7,80	7,80	7,70
Curietemperatur [°C]	265	330	275	250	320
DK $\frac{\epsilon_{33}^0}{\epsilon_0}$ $\frac{\epsilon_{11}^0}{\epsilon_0}$	600 1300	1200 680	1300 1500	2100 1980	1700 1500
dielekt. Verlustfaktor tan $\delta$ [ $\times 10^{-4}$ ]	10	10	5	15	15
spez. el. Widerstand [ $\Omega \cdot \text{cm}$ ]	$10^{12}$	$10^{10}$	$10^{10}$	$10^{11}$	$10^{11}$
Kopplungsfaktoren $k_p$ $k_{33}$ $k_{31}$	0,52 0,83 0,29	0,50 0,60 0,25	0,58 0,68 0,31	0,62 0,69 0,34	0,60 0,69 0,34
mech. Güte	1500	350	1500	120	80
Frequenzkonstanten [Hzm] $N_p$ $N_1$ $N_2$ $N_3$	2100 1700 1900 2000	2200 1880 1800 2100	2200 1610 1925 2050	2100 1500 1880 1950	2100 1410 1880 1960
Piezoel. Ladungskonstanten [ $\times 10^{-12} \text{mV}^{-1}$ ] $d_{31}$ $d_{33}$ $d_{15}$	-70 200 440	-60 200 265	-115 330 475	-210 450 580	-140 310 450
Piezoel. Spannungskonstanten [ $\times 10^{-9} \text{VmN}^{-1}$ ] $g_{31}$ $g_{33}$	-13,2 37,7	-8,5 28,2	-10,4 27,9	-11,5 22,8	-12,0 27,5
Elastizitätskonstanten [ $\times 10^{12} \text{m}^2 \text{N}^{-1}$ ] $S_{11}^E$ $S_{33}^E$	10,8 10,0	11,7 11,7	12,8 13,0	15,0 19,0	13,2 18,7
Alterungsraten [% pro Zehndeckade] $C_1$ $C_2$	+0,02 -0,02	+0,03 -0,01	+0,03 -0,01		

## Proben:

Die Testproben wurden nach unseren Angaben hergestellt und in nicht polarisiertem oder polarisiertem (= metallisiertem) Zustand angeliefert.

Experimentiert wurde mit drei Probengeometrien nach Abb. 1. Die Polarisationsrichtungen für die polarisierten Proben waren bei den kurzen Proben 1 und 2 in Längsrichtung und bei den langen Stäbchen 3 in Dickenrichtung von 3 mm gewählt worden (siehe Pfeilrichtungen). Die aufgeklebten Hülsen bei Probenform 2 dienten der Einspannung für Wechselbelastung (Zug-Druck).

**Tabelle 1:**  
PZT-Werkstoffe der Fa.PI-Ceramic

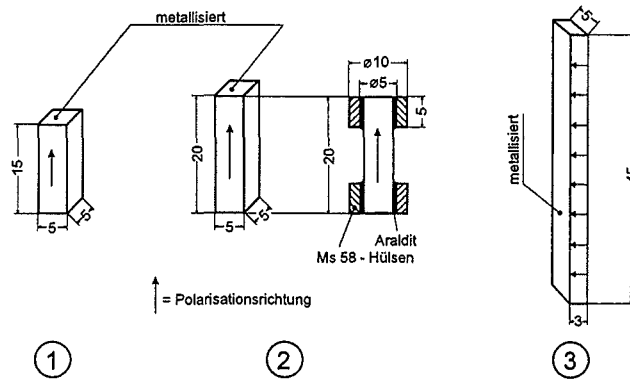


Abb. 1: Benutzte Probenformen

### 3. Ferroelastisches Verhalten

Für den Aufbau eines elektromechanischen Materialmodells ist das Verhalten bei mechanischer Belastung (mechanische Depolarisation) von besonderem Interesse. Grundlegende Arbeiten hierzu sind von Schäufler in /1/ an gleichwertigen PZT-Materialien beschrieben worden. Dort sind druckinduzierte Domänenprozesse für verschiedene Ausgangssituationen beschrieben. Für den einfachsten Fall der ungepolten Keramik gibt er folgenden, in Abb. 2 wiedergegebenen, Verlauf des Druckes  $T$  über der Stauchung  $S$  an. Gleichzeitig zeigt er mit Symbolen schematisch die Domänenorientierungen an. Hierbei ist der Domänenprozeß dem linearen elastischen Verhalten überlagert. Es ist auch ersichtlich, daß nach dem Entlasten eine remanente Stauchung der Keramik übrigbleibt. Eine Erweiterung der Versuche für die Zug-Druck Belastung wird ebenfalls aufgezeigt.

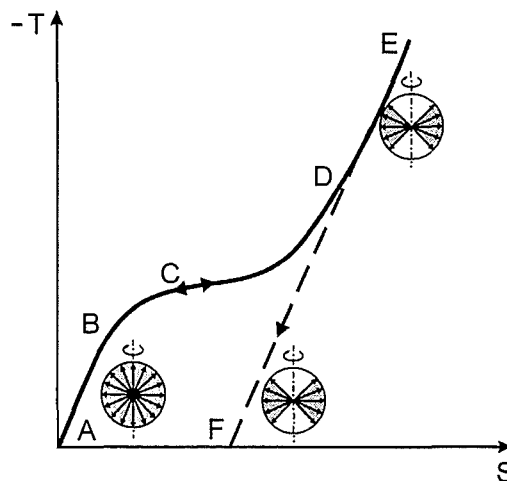


Abb. 2: Erwarteter Verlauf des Druckers  $T$  über der Stauchung  $S$ , nach /1/

Bevor die eigenen Versuche besprochen werden, sollen zunächst die hierfür benutzten Einrichtungen und Meßmethoden beschrieben werden.

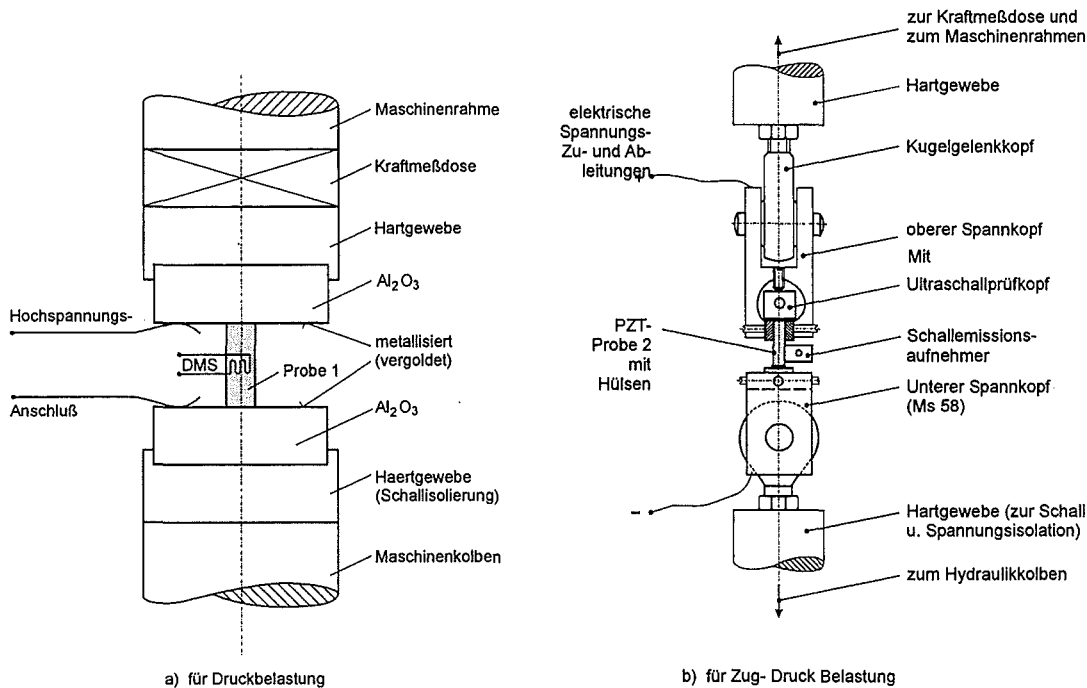
#### 3.1 Meßeinrichtungen und -methoden

Die Versuche wurden an einer servohydraulischen Prüfmaschine mit 63 kN Nennkraft, kraft- bzw. dehnungsgesteuert durchgeführt.



Ein Versuchsaufbau für Druckbelastung ist in Abb. 3a schematisch dargestellt. Die Probe befindet sich hierbei zwischen zwei jeweils einseitig metallisierten (vergoldeten)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Scheiben. Über die Metallisierungen an den Scheiben kann die Zu- oder Ableitung der Ladungen von den Probenenden erfolgen.

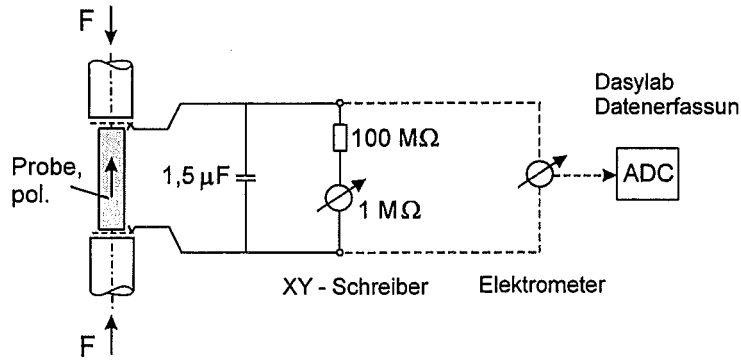
Eine weitere Vorrichtung für die Wechselbelastung (Zug-Druck) mit Probenform 2 ist in Abb. 3b gezeigt. Die Proben sind hierbei über die aufgeklebten Messing-Hülsen in die kardamisch gelagerten, isoliert aufgehängten, Messing-Aufnahmeköpfe befestigt. Über die Aufnahmeköpfe ist es weiterhin möglich, eine elektrische Spannung anzulegen bzw. abzugreifen. Weitere Sensoren können, wie ersichtlich, an die Probe angebracht werden.



**Abb. 3:** Versuchsaufbauten (schematisch) an servohydraulischer Prüfmaschine

Die Messung der Probendehnung bzw. -Stauchung erfolgte am vorteilhaftesten und genauesten mit direkt auf die Probenseitenflächen geklebten kleinen Dehnmeßstreifen (DMS). Der elektrische Widerstand des DMS sollte dabei so hoch als möglich und die Betriebsspannung so gering wie möglich gewählt werden, damit sich wegen der schlechten Wärmeleitfähigkeit der PZT-Keramik eine genügend niedrige Temperaturlage ausbilden kann. Es wurde mit  $350 \Omega$  DMS-Widerständen, einer Brückenspeisespannung von 1 V und einer Trägerfrequenz von 5 kHz gearbeitet. Zu beachten ist, daß das hohe Dipolmoment der Proben auf den DMS zurückwirkt und eine sehr große Leitungsimpedanz vortäuscht, die vor der Messung unbedingt am Verstärker kompensiert werden muß.

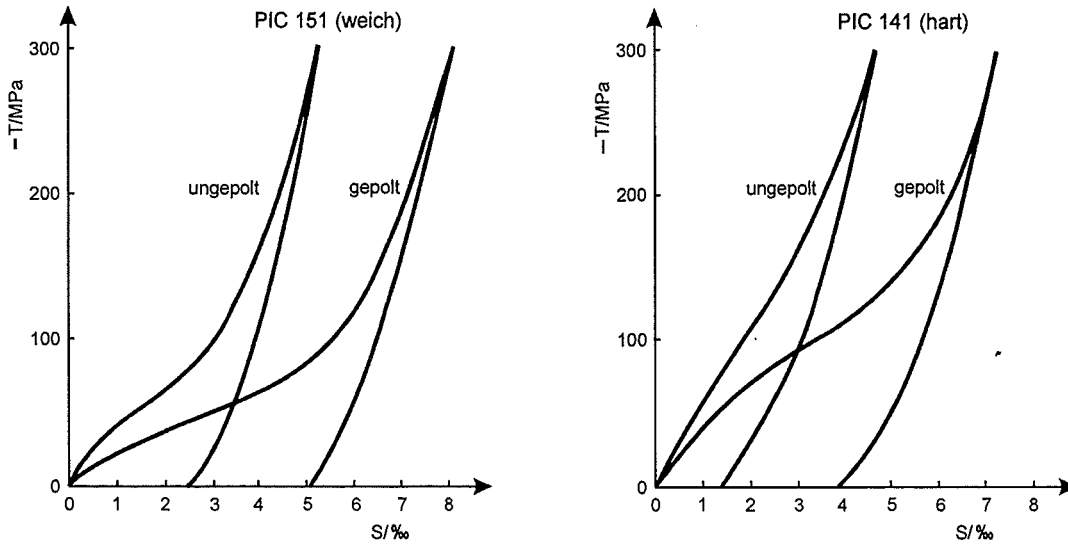
Die Domänenorientierungen beim Belasten einer gepolten Probe bewirken eine Änderung der Polarisierung. Die Messung der Polarisationsänderung  $\Delta P$  erfolgte in einer Parallelschaltung eines großen Kondensators mit der Probe, siehe Schaltbild 1. Der Meßwiderstand sollte möglichst groß sein, damit während der Belastungszeit kein Abfall eintritt. Noch stabiler kann die Ladung mit einem Elektrometer gemessen werden.



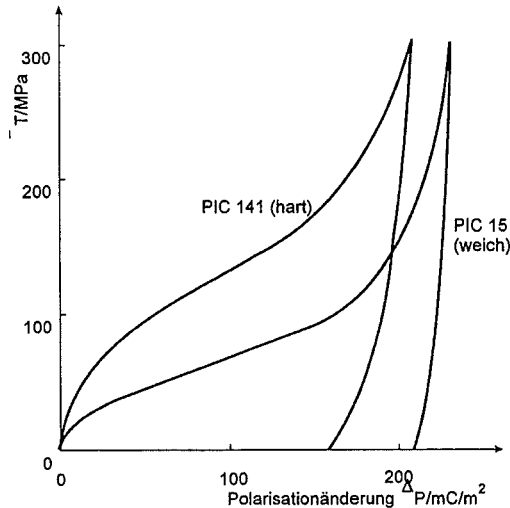
**Schaltbild 1:** Für das Messen der Polarisationsänderung  $\Delta P$  während der Belastung

### 3.2 Versuchsergebnisse, Druckbelastung

Die Messungen des ferroelastischen Verhaltens an den kurzen Proben (Form 1), gepolt und ungepolt, sind im folgenden aufgezeigt:



**Abb. 4 u. 5:** Druck  $T$  über der Stauchung  $S$  für gepoltes und ungepoltes PIC 151 und 141



**Abb. 6:** Druck  $T$  über der Polarisationsänderung  $\Delta P$  für PIC 141 und 151

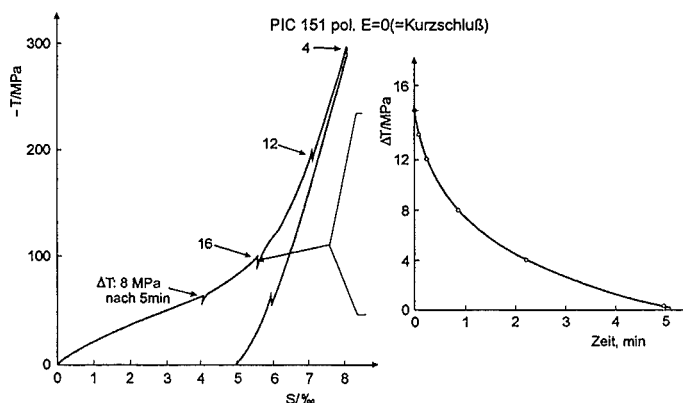
Während in der Abb. 4 die Verläufe des Druckes  $T$  über die Stauchung  $S$  für das weiche PZT gepolt und ungepolt gezeigt sind, sind in der Abb. 5 diese Verläufe für das harte PZT gezeigt. In Abb. 6 sind die Verläufe der Polarisationsänderungen für die gepolten Proben dargestellt. Aus den Verläufen ist zu erkennen, daß

- die gepolten Proben eine größere Stauchung (ca. Faktor 2) gegenüber den nichtgepolten aufweisen
- das "weiche" Material 151 in beiden Fällen die größere bleibende Stauchung und die größere Polarisationsänderung gegenüber dem "harten" 141 aufweist.

Weiterhin haben die Experimente gezeigt, daß

- bei weiteren Belastungszyklen die Stauchungs- und Polarisationsänderungen deutlich geringer sind und laufend abnehmen
- bei Haltezeiten, z.B. nach dem 1. Zyklus, die Proben wieder langsam "wachsen", also Kriechvorgänge sichtbar werden
- die Vorgänge geschwindigkeitsabhängig sind; die gefahrene Geschwindigkeit betrug hier ca. 5 min. pro Zyklus.

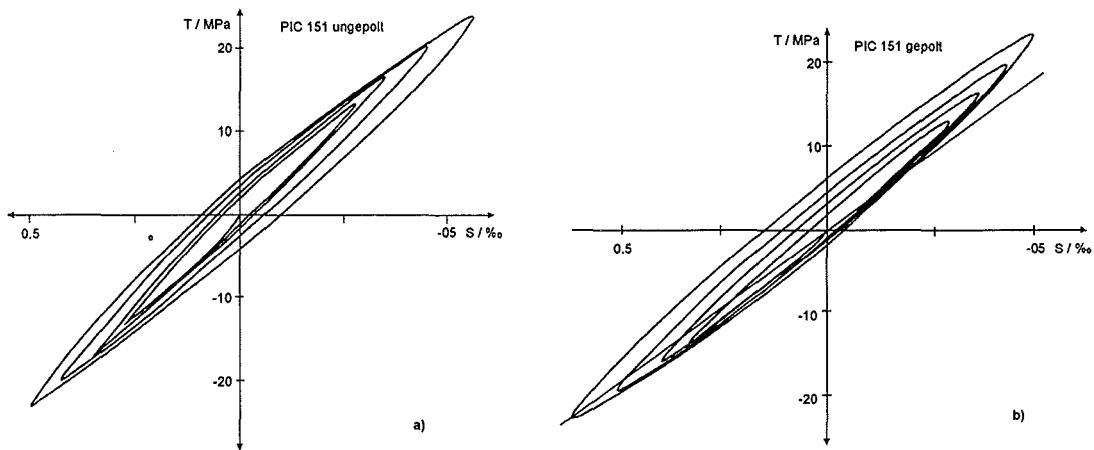
Die Geschwindigkeitsabhängigkeit läßt sich besonders gut bei einer dehnungsgesteuerten Belastung mit Haltezeiten beobachten: Abb. 7 zeigt einen dehnungsgesteuerten Versuch mit den Abfällen der Kraft in den Haltezeiten für das "weiche" Material 151 und den Kraftabfall in einer Haltepause über der Zeit.



**Abb. 7:** Dehnungsgesteuerter Versuch mit Haltezeiten und dem Spannungsverlauf während einer Haltezeit

### 3.3 Zug-Druck-Versuch an PIC 151

Mit der Versuchseinrichtung nach Abb. 3b wurde das Verhalten einer gepolten und nichtgepolten Probe (Form 2) aus dem „weichen“ PIC 151 untersucht. Die Abb. 8a und b zeigen die erhaltenen Ergebnisse. Nach einer Neukurve formieren sich die Kurven jeweils zu Hystereseschleifen, wobei bei der gepolten Probe (b) größere Stauchungen und bei der nichtgepolten (a) deutlich höhere Dehnungen sichtbar werden. Die Belastungen sind hier jedoch höchstens bis zur Zugfestigkeit möglich. Die Dehnung ist bei der ungepolten Probe (a) bei ca. 30 MPa auf der Zugseite ca. 20 % größer als die Stauchung auf der Druckseite. Dieses Verhalten ist auch in [2] beschrieben. Die gleichzeitig mitgemessenen Schallgeschwindigkeits- und -dämpfungsänderungen werden später besprochen.



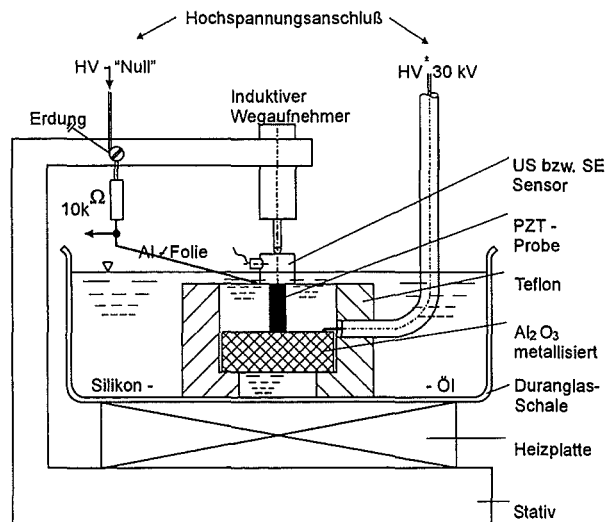
**Abb. 8:** Ferroelastisches Verhalten bei Zug - Druck Belastung von PIC 151 gepolt und ungepolt, Kräfte zyklisch, steigend

#### 4. Ferroelektrisches Verhalten

Unter ferroelektrischem Verhalten soll hier die Reaktion der Proben beim Anlegen eines elektrischen Feldes ohne gleichzeitiges mechanisches Belasten verstanden werden. Untersucht wurden das Polen und das Ermitteln von Hysterese- und Ausdehnungskurven.

##### 4.1 Versuchsaufbau, Meßeinrichtungen

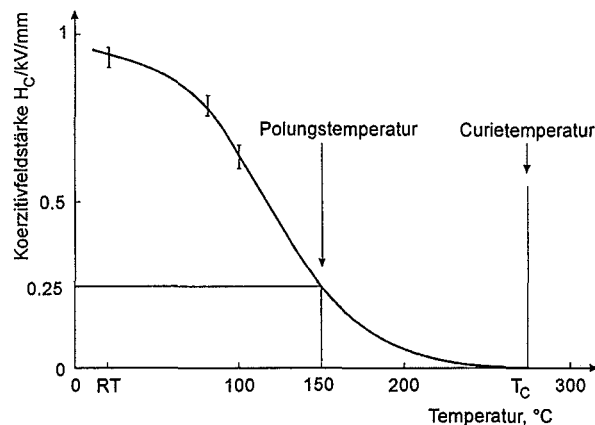
Für diese Messungen wurde ein Versuchsaufbau aus temperatur- und spannungsfesten Werkstoffen, eingelegt in einen mit Silikonöl gefüllten Glasbehälter, nach Abb. 9 erstellt. Ersichtlich ist daraus: Die Lage der Probe, die bipolare Hochspannungszuführung, ein Strommeßwiderstand, eine Heizplatte, ein Ausdehnungsmesser und noch weitere Meßeinrichtungen wie Ultraschallsensor und Schallemissionsempfänger, auf die später eingegangen wird.



**Abb. 9:** Aufbau für das Polen und elektrische Ermüden von PZT – Proben mit div. Meßeinrichtungen. Maximale Betriebstemperatur ca. 150°C

## 4.2 Das Polen von PZT-Keramik

Da die Proben, wie oben erwähnt, auch fertig gepolt gekauft wurden, war das eigene Polen nichtgepolter Proben oder von über dem Curie-Punkt getemperten Proben als Kontrollfunktion und als Ermüdungstest beim Umpolen von Interesse. Die Kontrolle sollte klären, welche remanenten Polarisierungen bei einer maximalen Feldstärke von 2 kV/mm (Gerätelimit 30 kV) erreichbar sind und bei welchen Temperaturen dies der Fall ist. Außerdem konnten so z.B. bereits gedrückte Proben nach einem Tempern neu polarisiert und damit wiederverwendbar gemacht werden.



**Abb. 10:** Koerzitivfeldstärke über der Temperatur für PIC 151

Nach [3] nimmt die Koerzitivfeldstärke  $H_c$  mit steigender Temperatur ab. Eigene Messungen an PIC 151 haben dies bestätigt, siehe Abb. 10. Versuchstechnisch wurde deshalb bei einer maximalen Temperatur von ca. 140 °C gepolt. Die Vorgehensweise hierbei:

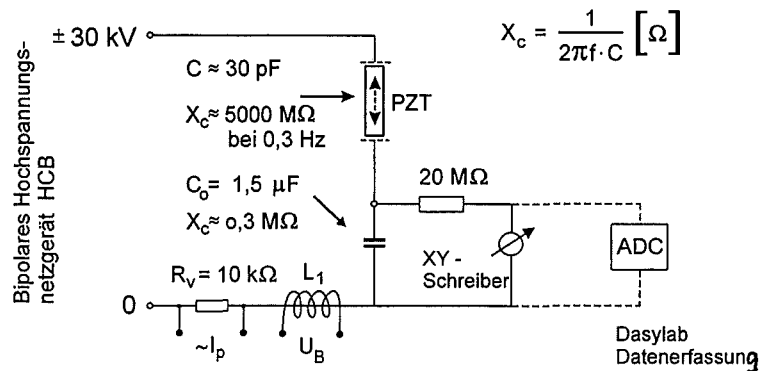
- Nach Erreichen der Temperatur die Hochspannung langsam auf den Maximalwert von 30 kV  $\approx$  2 kV/mm hochfahren
- Ca. 10 min. halten
- Bei noch weiterhin anliegender Hochspannung, die Öltemperatur auf Raumtemperatur absenken
- Danach die Spannung langsam auf Null zurückregeln.

Die mit diesem Verfahren erreichten remanenten Polarisierungen lagen im Mittel, auch noch nach 24 Stunden, für das PIC 151 um ca. 8 % höher als der gepolte Anlieferungszustand des Herstellers (eine geringe Abnahme der Polarisierung war nur in den ersten Stunden zu beobachten).

Der Verlauf des Polens (=Orientieren und Einfrieren der Domänenlagen in den Kristalliten) ist in den nachfolgend beschriebenen Abbildungen jeweils als "Neukurve" mit eingezeichnet. Die bleibende Polarisierung = remanente Polarisation  $P_r$ , ist dabei ebenfalls dargestellt. Entsprechendes gilt für die mechanischen Deformationen, dargestellt in den späteren Schmetterlingskurven.

## 4.3 Messen der dielektrischen Hysterese

PZT-Materialien weisen ein ähnliches Hystereseverhalten wie die Ferromagnetika auf. Auch die Begriffe sind sinngemäß übernommen worden. Das Messen wurde mittels der Vorrichtungen nach Abb. 9 und dem Schaltbild 2 (vereinfachte Sawyer-Tower-Schaltung [4]) durchgeführt.



**Schaltbild 2:** Für das Messen der Polarisation  $P$  (zur Aufnahme von dielektrischen Hysteresekurven), des Polarisierungsstromes  $I_p$  und der Barkhausen-Spannung  $U_B$

Die Hochspannung wurde dabei bipolar mit  $\pm 30$  kV und dreieckförmiger Ansteuerung mit  $\approx 0,3$  Hz an die Probe angelegt. Für diese Frequenz sind die Impedanzen  $X_c$  der Probe (die auch als Kondensator angesehen werden kann) und die des Ladekondensators  $C$  im Schaltbild eingetragen. Für die Berechnungen der Polarisationsgrößen sind die Spannungsteilverhältnisse am Ausgang zu berücksichtigen. Die gemessenen Spannungsgrößen stehen dabei mit den Polarisierungen in direktem Zusammenhang. Die Ladung  $Q$ , die beim Umpolen in der Probe verschoben wird, lädt den Kondensator  $C_o$  auf die Spannung  $U$  auf.

Es gilt: 
$$Q = C \cdot U \quad [\text{Coulomb}] \quad (1)$$

Die Polarisation  $P$  an den Endflächen  $A$  der Probe ist dann Ladung pro Fläche:

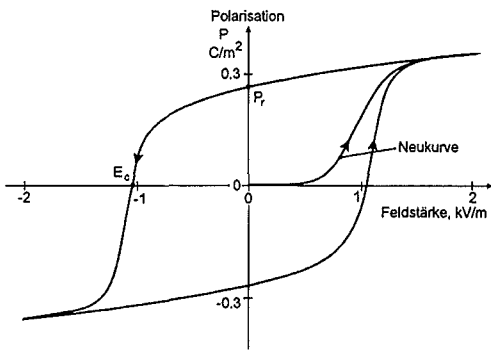
$$P = \frac{C \cdot |U|}{A} \quad [\text{C/m}^2] \quad (2)$$

Die Feldstärke  $E$  an der Probe mit der Länge  $l$  ergibt sich aus

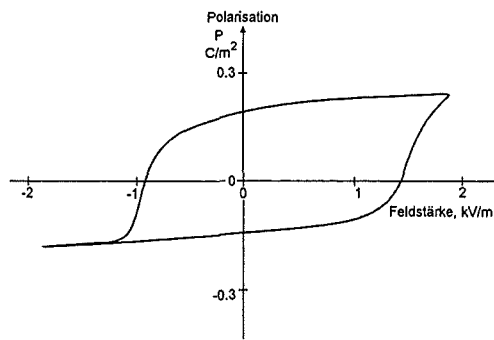
$$E = \frac{U}{l} \quad [\text{kV/mm}] \quad (3)$$

### 4.3.1 Meßschriebe

Ein Beispiel einer gemessenen Hysteresekurve für das "weiche" Material 151 zeigt die Abb. 11; und für das "harte" die Abb. 12. Aufgezeigt ist jeweils neben einer "Neukurve" der Verlauf der Polarisation  $P$  über der angelegten Feldstärke  $E$ . Die Feldstärke, bei der die Polarisation Null wird, heißt Koerzitivfeldstärke  $E_c$ . Die Koerzitivfeldstärke ist auch ein Maß für "hart" oder "weich". Ein "hartes" Material mit höherer Koerzitivfeldstärke ist stabiler gegen depolarisierende Faktoren. Ein "weiches" Material weist eine höhere remanente Polarisation  $P_r$  und eine geringere Koerzitivfeldstärke auf.



**Abb. 11:** Hysteresekurve für PIC 151, 0,3 Hz



**Abb. 12:** Hysteresekurve für PIC 141, 0,3 Hz

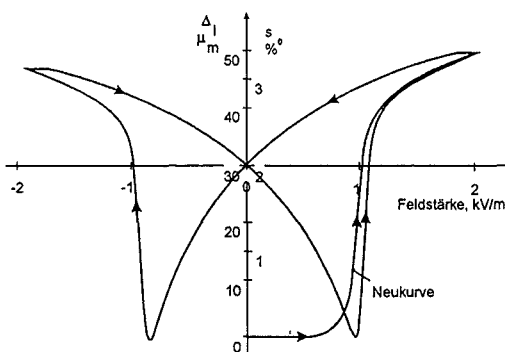
Während die Abb. 11, für das "weiche" Material, fast eine symmetrische Form der Hysteresekurve  $P(E)$  ausweist, zeigt die Abb. 12 für das "harte" eine starke Unsymmetrie. Diese hängt wahrscheinlich von der Zusammensetzung des Materials ab und bedeutet, daß bei der "harten" Probe die Domänenumklapp-Prozesse bei Raumtemperatur und den zur Verfügung stehenden Feldstärken von 2kV/mm noch nicht vollständig ablaufen können, bzw. eine innere verbleibende Feldstärke der Ursprungspolarisation diese Unsymmetrie bewirkt.

#### 4.4 Messen der mechanischen Deformation beim elektrischen Umpolen

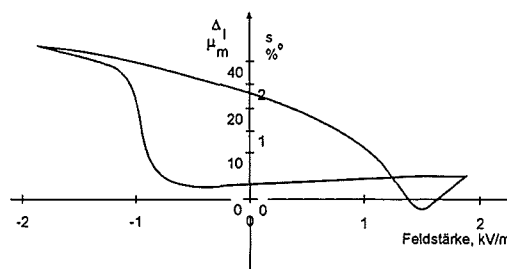
Mit dem in Abb. 9 gezeigten induktiven Wegaufnehmer über der Probe können während der Umpolprozesse gleichzeitig die Längenänderungen der Proben erfaßt werden. Beim vollständigen Umpolzyklus entsteht denn wegen der Vorzeichenunabhängigkeit der Ausdehnung eine um die Feldstärke 0 symmetrische Deformationskurve, die wegen ihrer Form auch als "Schmetterlingskurve" bezeichnet wird.

##### 4.4.1 Meßschiebe

Die Abb. 13 zeigt diese Schmetterlingskurve für das weiche und die Abb. 14 für unser hartes PZT. Aufgetragen sind jeweils die gemessene Deformation  $S$  direkt in  $\mu\text{m}$  bzw. als Dehnung in  $\%$  über der Feldstärke  $E$ .



**Abb. 13:** Deformationskurve für PIC 151, 0,3Hz



**Abb.14:** Deformationskurve für PIC 141, 0,3Hz

Der Verlauf der Neukurve und der weitere Ablauf ist mit Richtungspfeilen eingezeichnet. Auch hier ist, wie schon bei den Hystereseschleifen, beim "weichen" PZT ein symmetrischer und beim "harten" ein unsymmetrischer Verlauf erkennbar.

## 5. Messen von dielektrischen Größen

Eine wichtige Kenngröße eines piezoelektrischen Materials ist die relative Dielektrizitätszahl  $\epsilon_r$ . Sie kennzeichnet das Dipolmoment eines Kristalls. Diese elektrische Kenngröße steht jedoch auch mit den mechanischen Größen in Wechselwirkung, sie ist auch temperaturabhängig.

### 5.1 Meßeinrichtung, Berechnung

Die relative Dielektrizitätsgröße  $\epsilon_r$  wird aus einer Kapazitätsmessung errechnet. Gemessen wurde mit der HP-Impedanzbrücke 4263A mit den üblichen Kleinsignalwerten von 1V bei 1000 Hz Sinus.

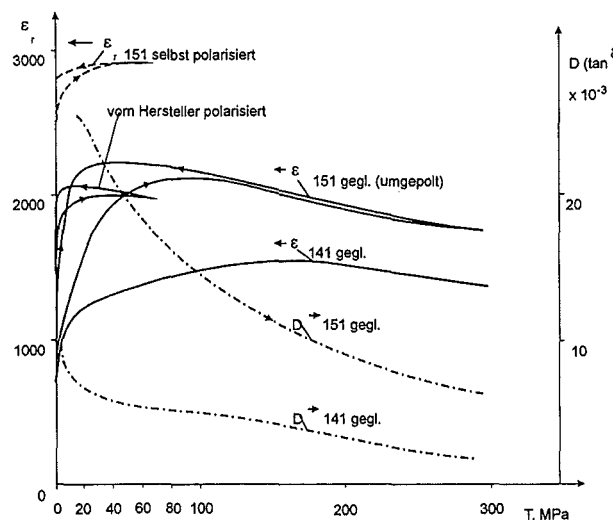
Der von der Brücke gemessene Kapazitätswert  $C_p$  wurde nach folgender Beziehung in  $\epsilon_r$ -Werte umgerechnet:

$$\epsilon_r = \frac{t \cdot C_p}{A \cdot \epsilon_0} \quad (4)$$

- t = Probendicke in [m]
- $C_p$  = gemessene Kapazität in [F]
- A = Probenstirnfläche in [m<sup>2</sup>]
- $\epsilon_0$  = absolute Dielektrizitätskonstante mit  $8,85 \cdot 10^{-12}$  [F/m]

### 5.2 Abhängigkeit der Dielektrizitätsgröße von einer überlagerten Druckspannung

Die  $C_p$  Werte wurden hier in der Druckvorrichtung nach Abb. 3 gemessen und daraus wiederum  $\epsilon_r$  errechnet.



**Abb. 15:** Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_r$  und  $\tan \delta$  bei Druckbelastung für PIC 151 und 141

Abb. 15 zeigt den Verlauf der relativen Dielektrizitätsgröße  $\epsilon_r$  und des Verlustwinkels  $\tan \delta$  für das weiche und harte PZT über der Druckspannung T. Die Pfeile kennzeichnen den Be- und Entlastungspfad für  $\epsilon_r$ . Es wurden geglühte (= nichtpolarisierte) Proben, und im oberen Teil der Abb. sichtbar, zwei gepolte Probe aus PIC 151 un-



terschiedlicher Polarisierung untersucht. Es sind deutliche Hystereseerscheinungen sichtbar. Die Start- und die Endwerte fallen auch nicht zusammen. Die letzteren sind jeweils höher. Die sichtbaren Maximalwerte von  $\epsilon_r$  sind für das weiche Material früher (bei ca. -80 MPa) als bei dem harten (bei ca. -150 MPa) erreicht, sie liegen auch insgesamt höher. Die selbst gepolte Probe aus dem weichen Material liegt nochmals deutlich höher im  $\epsilon_r$ -Wert als die vom Hersteller gepolte. Der Verlustfaktor  $\tan \delta$  fällt von Beginn der Belastung an, er ist für das harte Material 141 geringer, seine Änderung über der Belastung kleiner.

### 5.3 Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätsgröße

Die Temperaturabhängigkeit von  $\epsilon_r$  wurde an einer gepolten Probe (Form 3) aus PIC 151 in einem mit Silikonöl gefüllten Badthermostaten und an den Proben angelöteten Ableitdrähten mit Hilfe der HP-Impedanzmeßbrücke ermittelt. Abb. 16 zeigt den Verlauf von  $\epsilon_r$  bis ca. 160°C. Es ist ein starkes Ansteigen der Werte ab ca. 60 °C zu erkennen. Das Maximum wird nach [5] bei der Curie-Temperatur von ca. 250°C liegen. Der  $\tan \delta$  nimmt, wie ersichtlich, ebenfalls stark zu.

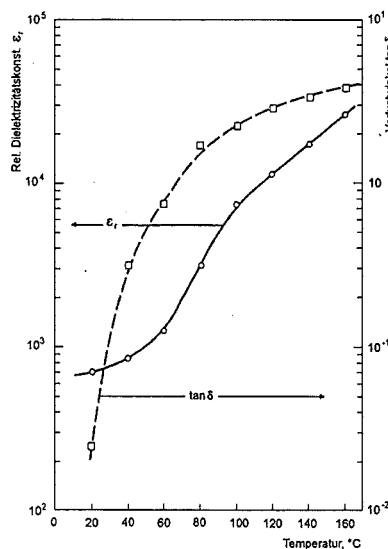


Abb. 16:  $\epsilon_r$  und  $\tan \delta$  als Funktion der Temperatur für PIC 151 polarisiert (Probenform 3)

## 6. Schallemission (SE) und andere Effekte bei Ermüdungstests

Eine der klassischen Anwendungen von PZT-Keramik sind die Schallaufnehmer oder Sender in der zerstörungsfreien Materialprüfung. Die SE-Messung gehört in diesen Bereich. Schallemission entsteht bei den verschiedensten Prozessen in einem Werkstoff, z.B. bei:

- Plastischer Verformung
- Phasenumwandlung
- Rißbildung und Rißfortschritt
- Reibungsvorgängen, auch an Rißflanken
- Umpolvorgängen z.B. in PZT-Keramiken, hier noch verbunden mit mechanischen Deformationen

Die Aufnahmetechniken für SE-Signale werden heute fast ausschließlich in digitaler Form ausgeführt. Dies bedeutet, daß über Grenzwerte und Signallängen diskrete Einzelereignisse detektiert und verarbeitet werden.

Die Verarbeitung eines Signals berücksichtigt verschiedene Eigenschaften und kann diese einzeln extrahieren. Die bekanntesten Größen sind:

- Amplitude
- Schwingungen pro Ereignis (Counts)
- Energie
- Frequenz

Dabei wirken sich die Übertragungseigenschaften der Kette aus Aufnehmer, Vorverstärker und Verstärker auf das Ergebnis aus. Beim Vergleichen von SE-Ergebnissen müssen deshalb die Aufnehmereigenschaften und Einstellparameter bei der Signalverarbeitung berücksichtigt werden.

Im Rahmen von Funktionstests eines Aufbaus empfiehlt eine EWGAE-Norm, /6/, deshalb Kalibrierungen mit definierten Schallquellen elektrischer oder mechanischer Art durchzuführen. Im Nachfolgenden ist der einfache Bleistiftminentest aufgezeigt.

Dieser Test kann jedoch nicht die Schwierigkeit auflösen, die auftritt, wenn eine sehr dichte Signalfolge herrscht, die das Gerät nicht mehr als Einzelereignis isolieren und verarbeiten kann. Das Signal sieht dann wie kontinuierliches Rauschen aus.

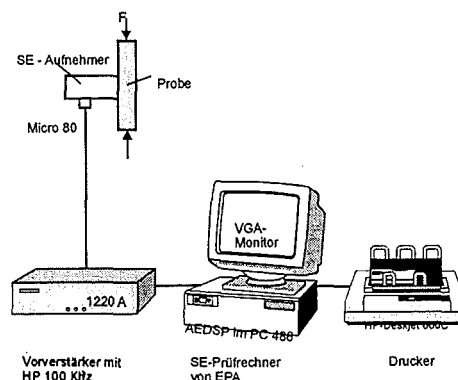
Bei kontinuierlichem Rauschen über dem Grenzwert besteht die Gefahr, daß das Aufnahme Fenster nicht abschließt. Dabei werden zu wenig „Ereignisse“ (da die Anzahl jetzt von der Fensterlänge abhängt) detektiert. Diese kann manuell überwacht werden, wenn auch z.B. das Zeitsignal dargestellt wird und auch die Energien im „Rahmen“ bleiben.

## 6.1 SE-Meßeinrichtung

Für die SE-Messung wurde eine Zweikanal-Meßeinrichtung der Fa. PAC verwendet. Die gesamte Kette ist schematisch im Blockschaltbild Schaltbild 3 gezeigt. Eingezeichnet und vorwiegend verwendet wurden:

- Micro 80 – Aufnehmer, der bei 800 kHz eine geringe Überhöhung in der Übertragungscharakteristik aufweist;
- Vorverstärker des Types 1220 A, Einstellung breitbandig: 100 kHz – 2 MHz;
- Hauptverstärker auf Karte AEDSP
- Drucker z.B. HP-Deskjet 660C.

Der Hauptverstärker befand sich auf einer PC-Einsteckkarte und wurde über einen PC 486 mit der MISTRAS-Software betrieben.



**Schaltbild 3:** Anordnungsschema für die Schallemissionsprüfung

### 6.1.1 Funktionstests

Vor den Versuchen wurde mit "Kalibriertests" die Funktion der Meßkette, die Ankopplung des SE-Sensors und die Größen von Energie und Amplitudenwerten überprüft. Ein Beispiel ist der Bleistiftminentest, in Anlehnung an /6/, in Abb. 17. Die Anordnung ist aus der Skizze ersichtlich. Die Einzelbilder eines Tests "Bruch einer Bleistiftmine" zeigen

- eine große gedämpfte Schwingung in (2)
- zwei Ereignisse mit fast 100 dB Amplitude (1)
- hohes Leistungsdichtespektrum (4) mit Max. bei 700 kHz und
- eine Energie (3) von ca. 600 Einheiten.

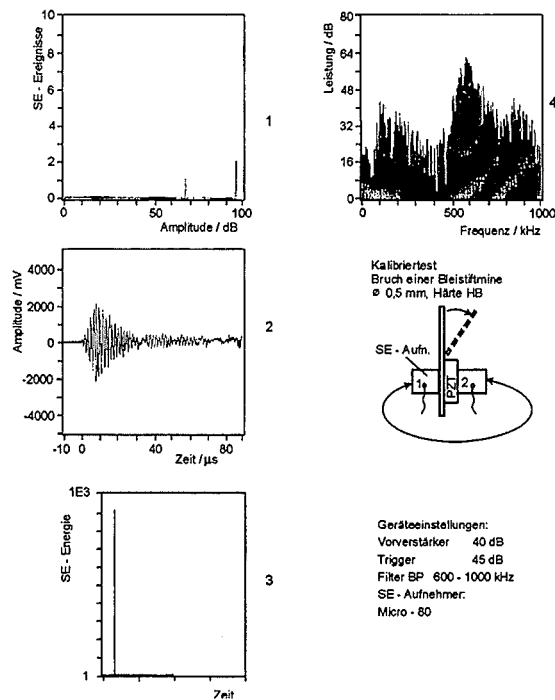


Abb. 17: Kalibriertest der SE - Geräteketten

### 6.2 SE bei mechanischer Belastung

Bei Belastung emittiert die PZT-Keramik bereits bei kleinen Kräften SE. Abb. 18 zeigt den 1. und 2. Belastungstest (bis -50 MPa) für das harte Material 141.

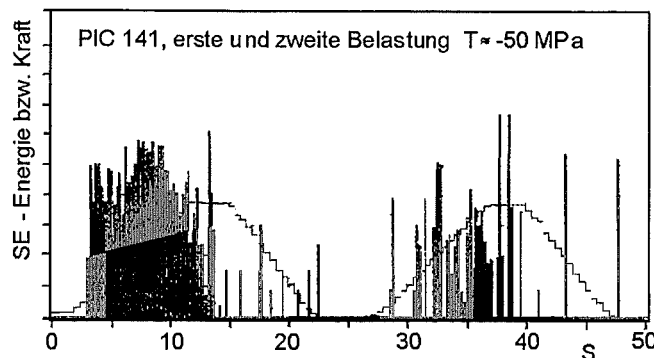
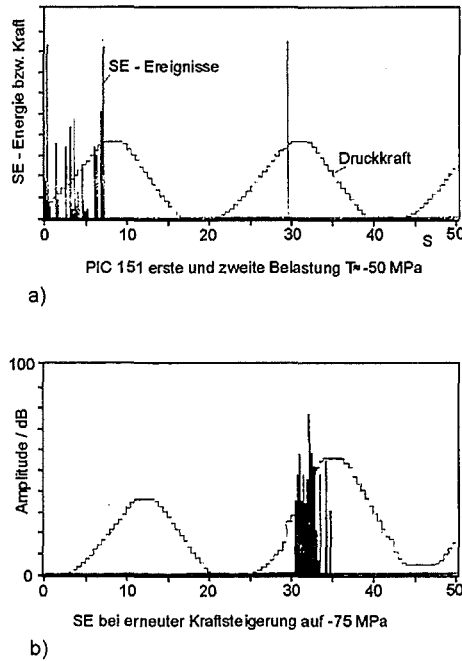


Abb. 18: SE bei geringer mechanischer Belastung an PIC 141

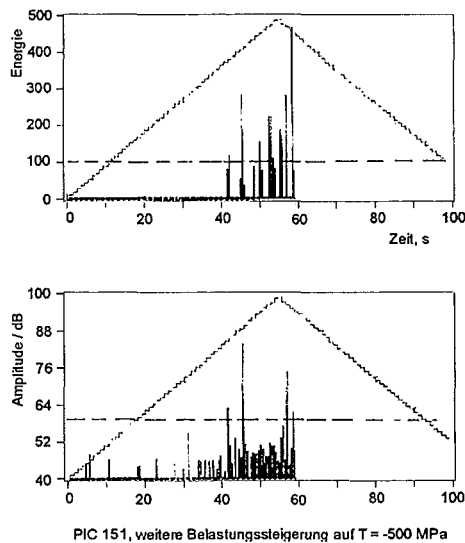
Gezeigt ist der Verlauf der Energie über der Zeit, wobei der Kraftverlauf mit eingeblendet ist. Im Bild ist ein deutlicher Unterschied der SE-Energie zwischen erster und zweiter Belastung sichtbar. Dieser Effekt ist auch von der plastischen Verformung bei

Metallen als "Kaiser-Effekt" bekannt: Erst nach dem Überschreiten der ersten Kraft treten wieder SE-Ereignisse auf. Besonders deutlich ist dieses in Abb. 19 bei weichem PZT sichtbar.



**Abb. 19:** SE bei geringer mechanischer Belastung (Kaiser – Effekt sichtbar), PIC 151

Im oberen Bild sind hier die Energien, im unteren die Amplituden dargestellt. Nach Beginn der Kraftabsenkung werden keine Ereignisse mehr sichtbar. Wird die Belastung weiter gesteigert, wie in Abb. 19b auf -75 MPa, treten wieder Ereignisse auf, wobei diese in der Amplitudendarstellung (b) zum erstenmal 70 dB überschreiten. In der konventionellen SE-Prüfung von Keramik sind bei diesen 70 dB bereits deutliche Rißzuwächse konstatiert worden. Noch deutlicher wird diese Grenze überschritten, wenn die Belastung weiter auf -500 MPa gesteigert wird, dargestellt in Abb. 20. Darin sind jetzt nach den Definitionen von oben deutliche Rißereignisse detektiert: Amplituden von fast 80 dB und Energiewerte von über 100 Einheiten.



**Abb. 20:** SE jetzt mit sichtbaren Burst – Ereignissen, PIC 151, T bis-500 MPa  
Energie > 100, Amplitude > 60 dB

Weitere Messungen, dort bei Zug-Druck Belastung (Ermüdung), sind im Kap. 8.3 gezeigt.

Zur sichereren Identifizierung eines Reißereignisses mittels SE wurde hier eine Redundanz von Amplitude und Energie betrachtet, um Fehlimpulse, die z.B. durch elektromagnetische Einstreuungen entstehen, ausschließen zu können:

Elektromagnetische Einstreuungen sind durch hohe Amplituden, aber Schwingungen sehr kurzer Dauer (Nadelpicks) und deshalb ohne Anzeige in der Energie gekennzeichnet. Diese Art von Ereignissen treten besonders bei der nachfolgend beschriebenen Art der elektrischen Belastung beim Umpolen auf. Hierbei klappen ganze Bereiche von Domänen um  $2 \times 90^\circ$  oder  $180^\circ$ . Die Änderungen der Polarität läuft dabei als elektromagnetische Welle sehr schnell ab, zu vergleichen mit einem atmosphärischen Blitz. Die von einem solchen "Blitz" im PZT verursachten Schwingungen mit ihren piezoelektrischen Wechselwirkungen in den Kristalliten werden dann wesentlich später, als "Donner", bedingt durch die Körperschalllaufzeiten, vom Aufnehmer registriert. Eine gute Trennung zwischen Schädigungs- (Donner-) und Umpol- (Blitz-) Ereignissen wäre wünschenswert, ist jedoch nicht immer durchführbar.

Eine Möglichkeit dazu bieten die Einstellungen bei den "Front-End-Filtern". Mit diesen können Begrenzungen verschiedener Art eingestellt werden. Bei nicht zu dichter Ereignisfolge kann z.B. damit erreicht werden, daß nur solche Signale, die mehr als zwei Überschwinger (Counts) aufweisen, das SE-Ereignis triggern und dieses erst dann weiter verarbeitet wird. Bei allzu großer "Blitzfolge" fallen diese jedoch vermehrt auch in die geöffneten Zeitfenster der SE hinein und beeinflussen damit wieder die Auswertbarkeit.

### **6.3 SE bei elektrischer Belastung**

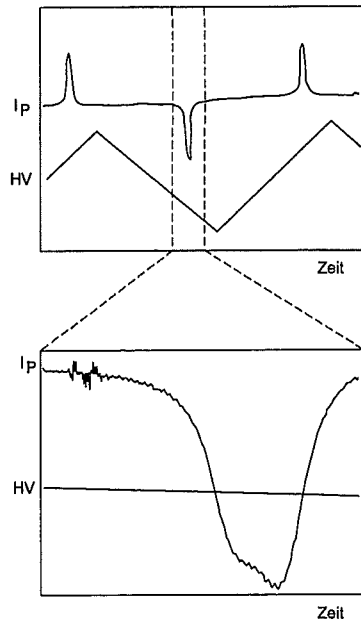
Legt man an eine PZT-Keramik eine elektrische Spannung (siehe auch Kap. 4.2), so richten sich die Domänen aus, und die Probe deformiert sich. Dieser Vorgang ist nicht nur von SE sondern auch von einem Verschiebestrom  $I_p$  durch die Probe und von Spannungsblitzen beim Umpolen begleitet.

Will man die elektromagnetischen Ereignisse, die "Blitze" selbst, erfassen, so kann man dieses vorteilhafter mit einer kleinen Induktionsspule, angeordnet in Probennähe, bewerkstelligen.

Das dabei erhaltene Induktionssignal wird im nachfolgenden, in Analogie zum magnetischen Fall, auch als "Barkhausen-Signal" bezeichnet. Es gibt Auskunft über das Umklappen der "Weißen Bezirke", der Domänen, in den Kristalliten.

#### **6.3.1 Begleitende Effekte; Vergleich: Polarisierungsstrom – Barkhausen-Signal**

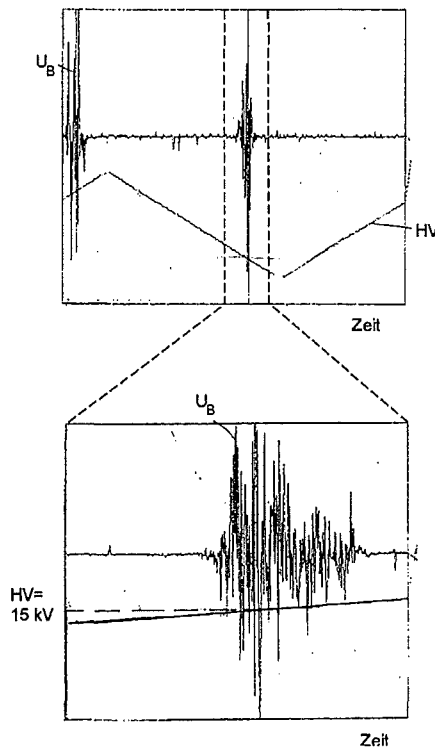
Der Polarisierungsstrom  $I_p$  kann aus dem Spannungsabfall an dem Reihenwiderstand  $R_v$  (siehe Schaltbild 2) und das Barkhausen-Rauschen  $U_B$  an der Spule  $L_1$  abgegriffen werden. Der Strom  $I_p$  und die Rausch-Spannung  $U_B$  zeigen ein Maximum in der Nähe der Koerzitivfeldstärke  $E_c$ . Der Strom  $I_p$  ist in Abb. 21 mit zwei unterschiedlichen Zeitauflösungen gezeigt. Die bipolare Hochspannung wird dabei, wie im oberen Bild ersichtlich, zwischen +30 kV und -30 kV variiert.



**Abb. 21:** Strom  $I_p$  beim Umpolarisieren von PIC 151, HV=Hochspannung

Jeweils bei den Koerzitivfeldstärken sind die positiven oder negativen Peaks des Verschiebestromes  $I_p$  sichtbar. Im vergrößert dargestellten Signal sind noch zusätzlich kleinere überlagerte Schwingungen zu erkennen, außerdem haben die Anstiegs- und die Abfallflanke unterschiedliche Steigungen (Hystereseerscheinungen?).

Abb. 22 zeigt die mit der kleinen Spule  $L_1$  aufgenommenen Signale. Die Spule als Empfänger zeigt dabei Stromänderungen als Induktionssignal an. Diese schnellen Änderungen können mit den Spannungssprüngen beim Umpolen, auch als „Barkhausen-Rauschen“ bekannt, zusammenhängen. Weitere Messungen hierzu sollen folgen.



**Abb. 22:** Barkhausen Rauschspannung  $U_B$  beim Umpolarisieren von PIC 151, HV=Hochspannung

### 6.3.2 SE – vom Umpolen bis zum Ermüdungsbruch

Das Umpolen von PZT-Keramik wird beispielhaft am weichen Werkstoff PIC 151 betrachtet. (Was außer der SE die Ermüdung des Materials auch noch sichtbar macht, wird später besprochen.)

Wird an einer PZT-Probe zyklisch eine Feldstärke  $E$ , größer als die Koerzitivfeldstärke  $E_c$ , angelegt, so bewirkt das im Spannungsanstieg und besonders beim Umpolarisieren starke SE-Aktivität. Wird der Vorgang mehr als 5 mal wiederholt, so findet bereits eine mechanische Schädigung statt, erkennbar an den Amplitudenwerten über 60 dB. Diese nimmt deutlich mit der Zyklenzahl zu, bis sie schließlich zu sichtbaren Rissen führt, von denen dann auch das Auseinanderbrechen der Probe ausgeht.

In den folgenden Abbildungen sind die wichtigsten SE-Größen bei diesem Vorgang in 4 Schritten bis zum Bruch der Proben aufgezeigt. Dargestellt sind, ausgenommen beim ersten Zyklus, jeweils 3 vollständige Umpolungen in 60 sec. und zwar in:

Abb. 23 SE-Größen bei den ersten Zyklen

Abb. 24 SE-Größen nach 12 Zyklen

Abb. 25 SE-Größen nach 144 Zyklen, sichtbare Risse

Abb. 26 SE-Größen nach 2500 Zyklen, Probenbruch

Die Abbildungen untergliedern sich jeweils in 9 Diagramme a) bis i). Diese zeigen:

- a) Ereignisse über Amplitude und Zeit
- b) Counts über der Zeit, eingeblendet: Verlauf der Hochspannung HV
- c) Signalform über der Zeit
- d) Signalleistungsdichte über der Frequenz
- e) Ereignisse über der Mittelfrequenz und Zeit
- f) Amplituden über der Zeit; eingeblendet: Verlauf der HV
- g) Energie (Summendarstellung) über der Zeit
- h) Feldstärke über der Zeit, eingeblendet: Energie
- i) Anzahl der Signal-Überschwinger über der Feldstärke (= Hochspannung  $\pm 30$  kV).

Bei diesen Aufnahmen mußten, um Übersteuerungen zu vermeiden, (siehe auch 6.2 Filterungen) die Amplitudenwerte zwischen 55 und 80 dB eingegrenzt werden.

Trotz dieser Einschränkungen sind deutliche Änderungen der SE Größen über der Zyklenzahl ersichtlich. Diese Änderungen in den Diagrammen a) bis i) sind:

Zu a) Die Anzahl der Ereignisse und die Höhe der Amplitude nehmen deutlich mit der Zyklenzahl zu. Besonders aussagefähig ist die Zunahme der Amplitudenwerte im Bereich von 60 - 80 dB für die hohen Zyklenzahlen, in Abb. 26 sichtbar. So hohe Amplituden stehen für starke Rißvergrößerungen.

Zu b) Die Counts (Anzahl der Schwingungen pro Ereignis) vergrößern sich ebenfalls, eine Häufung ist im Bereich der Umpolfeldstärke zu erkennen, besonders in Abb. 26.

Zu c) Die Signalform des jeweils letzten Ereignisses zeigt entsprechend nur zufällige Zustände in Höhe und Schwingungszahl an. Das Signal in Abb. 26 zeigt z.B. viele und damit hochfrequentere Schwingungen an.

Zu d) Die Leistungsdichte ( $\sim U^2$ ) des ebenfalls nur letzten Ereignisses läßt mit steigender Zyklenzahl eine nur leichte Tendenz zu höheren Frequenzen erkennen. In Abb. 26 z.B. bis ca. 1000 Hz.

Zu e) Hier ist ebenfalls die Zunahme der Ereignisse über der Zyklenzahl sichtbar (beachte Ordinatenmaßstab!) Ein Anstieg der Mittel-Frequenz ist jedoch nicht zu erkennen.

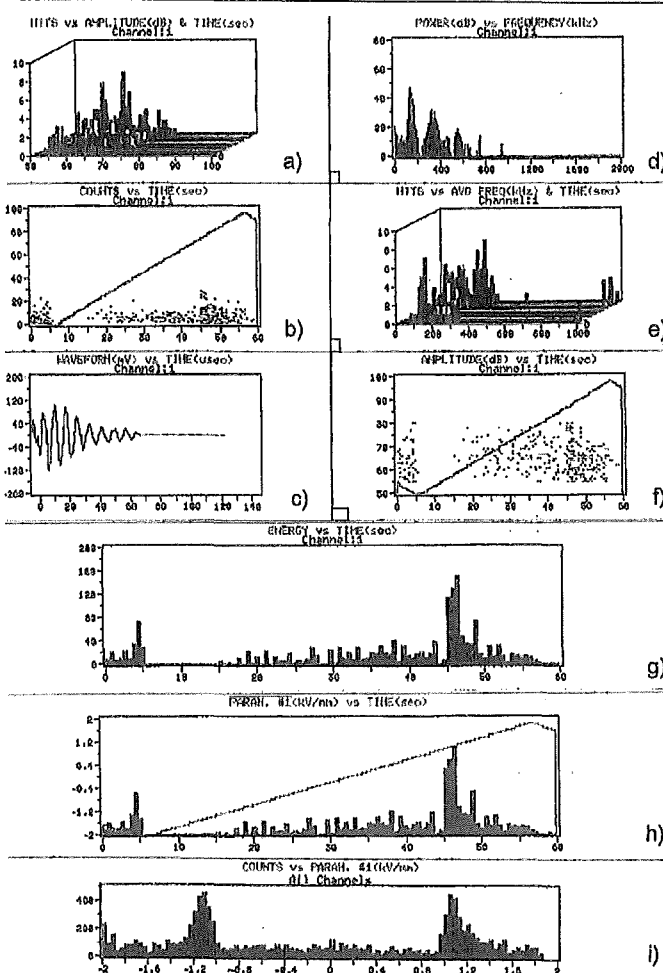


Abb. 23 SE bei den ersten Umpolzyklen

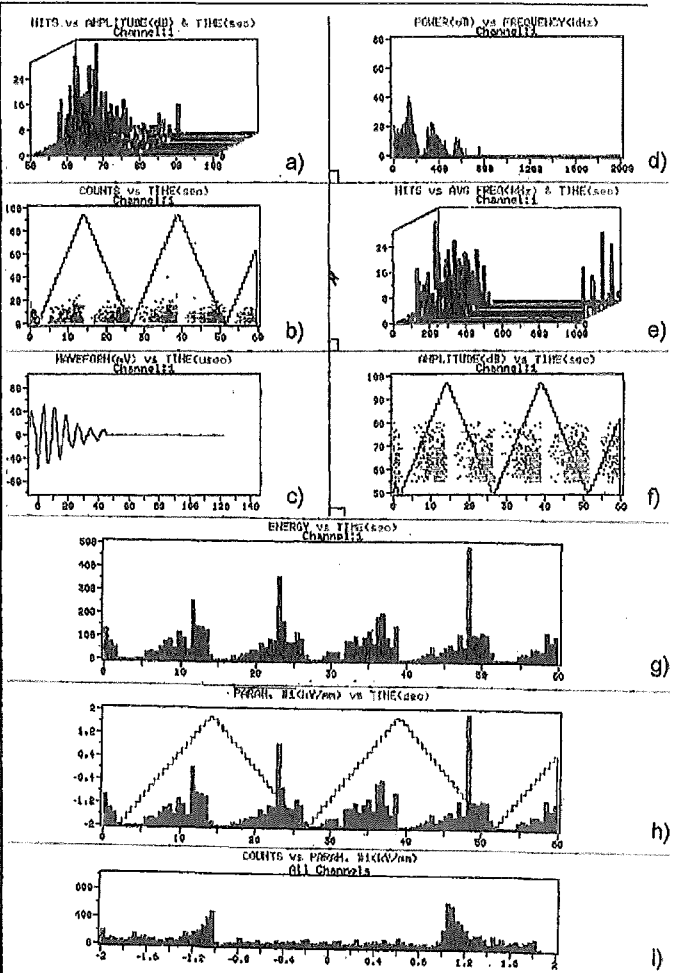


Abb. 24 SE-Größen nach 12 Zyklen

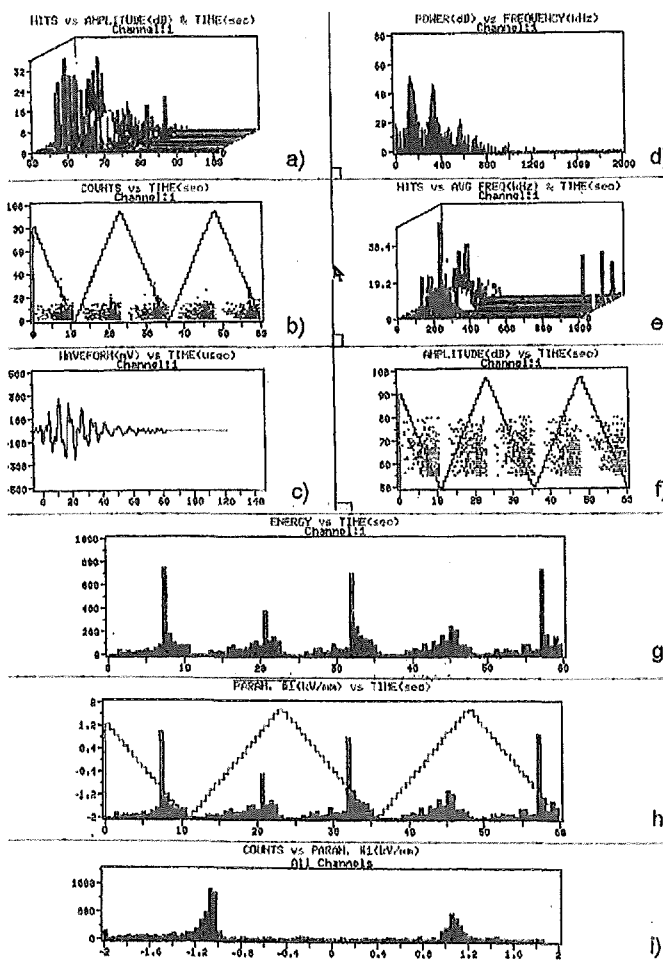


Abb. 25 SE-Größen nach 144 Zyklen

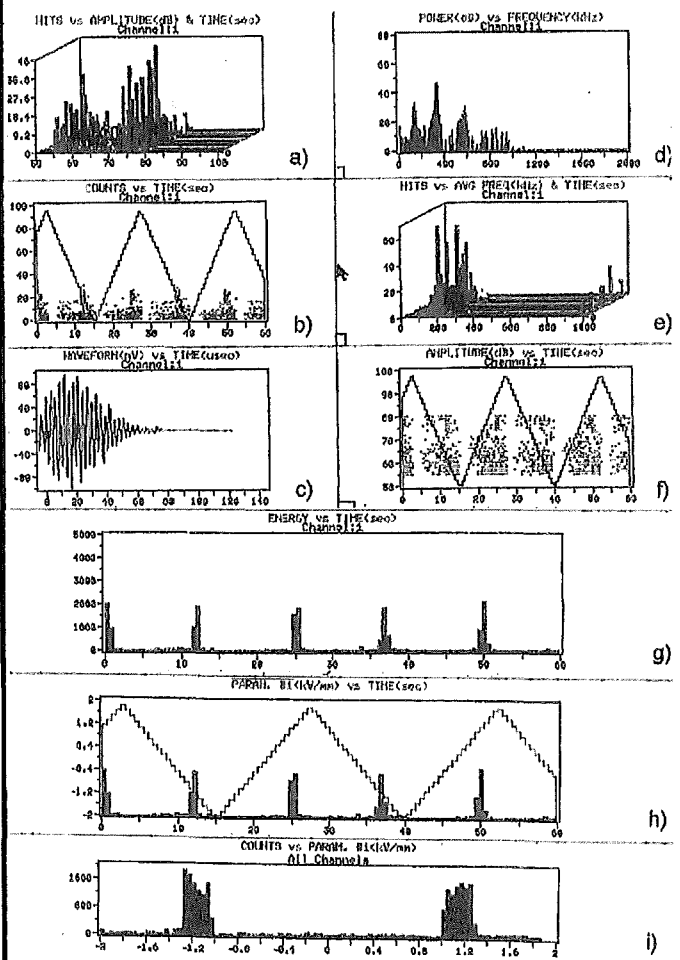
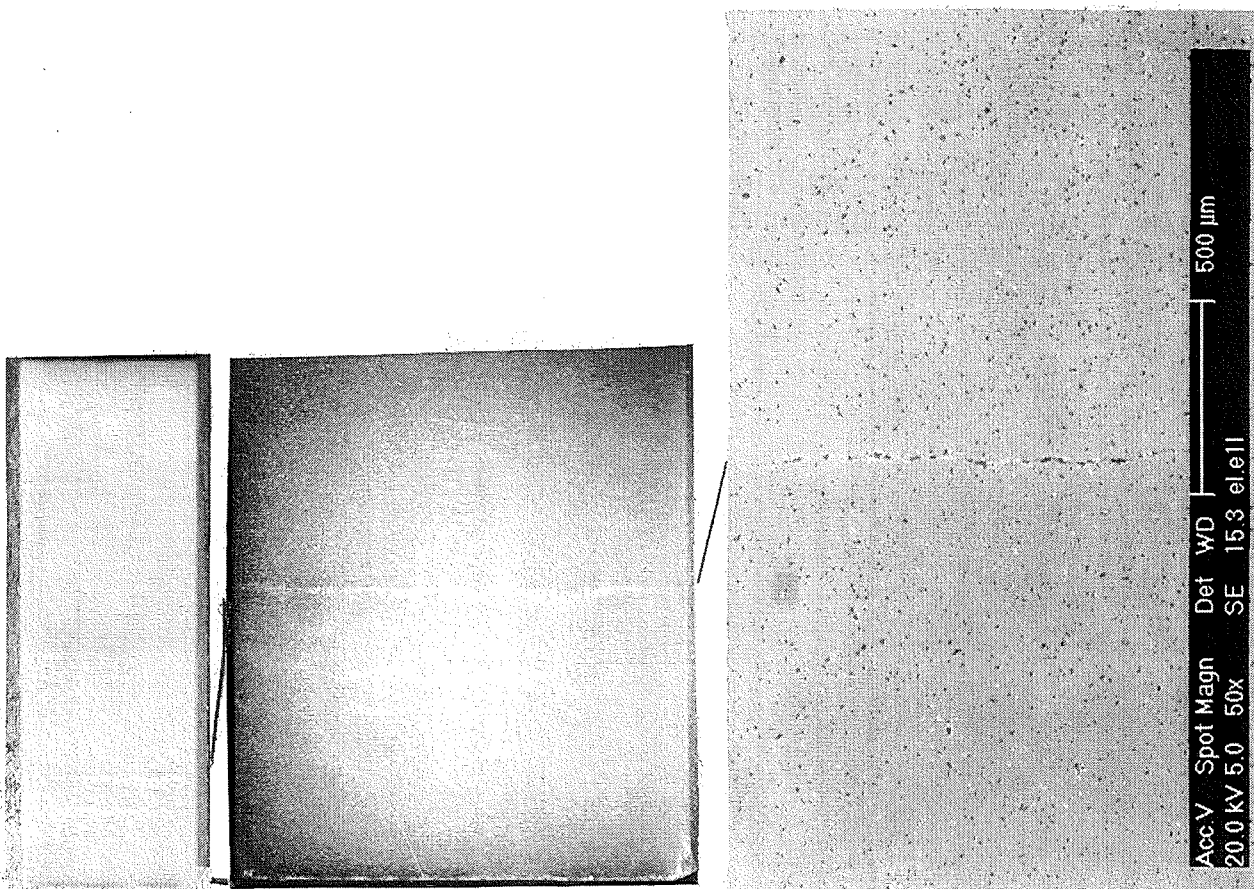


Abb. 26 SE nach 2500 Zyklen, Probenbruch



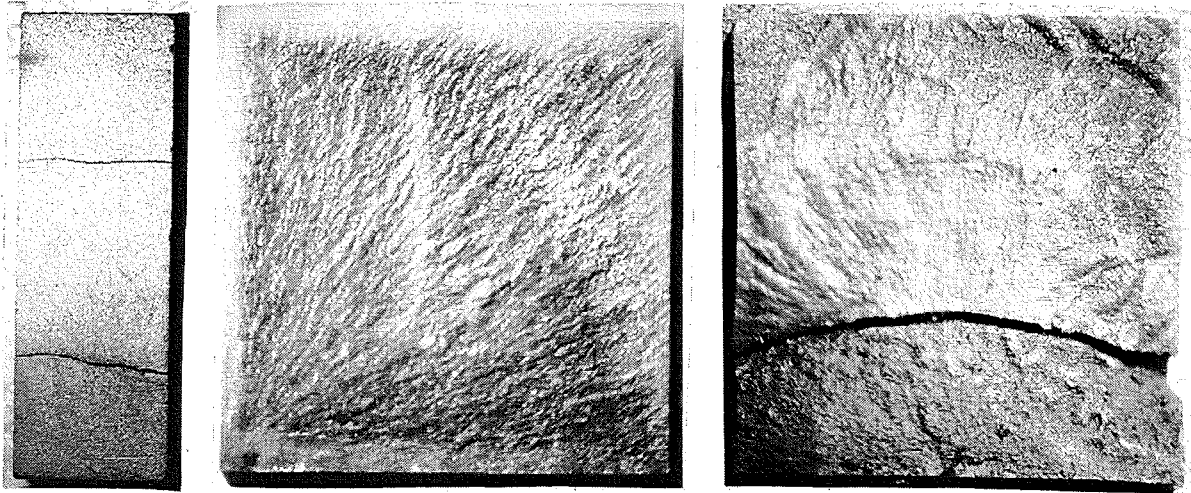
- Zu f) Eine andere Darstellung der Amplituden (Dot-Darstellung) aus den Ereignissen, eingeblendet wieder der Verlauf der Feldstärke. Eine deutliche Zunahme der Ereignisfolge mit steigender Feldstärke bei jedem Zyklus ist zu erkennen. Nach dem Überschreiten der Feldstärkemaxima sind jeweils abrupt einsetzende Ereignispausen sichtbar.
- Zu g) Die Energiesummenwerte steigen deutlich mit der Zyklenzahl. Die sichtbaren Maxima ändern sich dabei aus Abb. 23 bis 26, von 160 auf 2000. Die Energiesummen sind deshalb der interessanteste Indikator für einen Rißfortschritt.
- Zu h) Aufgetragen ist hier die Feldstärke ( $\pm 2$  KV/mm) über der Zeit; eingeblendet die Energien aus g). Sichtbar wird, daß die Energiehäufungen, immer deutlicher mit der Zyklenzahl, nur noch bei der Umpolfeldstärke von ca. 1,1 kV/mm auftreten.
- Zu i) Die Anzahl der Counts (Summendarstellung) steigt, wie ersichtlich, über der Zyklenzahl an. Die beiden Maxima bilden sich dabei wieder bei der Feldstärke von  $\pm 1,1$  kV/mm. Die Summen steigen dabei, aus Abb. 23 bis 26, von ca. 400 auf bis ca. 1800.
- Auch diese Darstellung zeigt deutlich, wo im Feldstärkenverlauf der eigentliche Rißfortschritt stattfindet: In der Nähe der beiden Umpolfeldstärken der PZT-Keramik.

Die so ermüdete Probe wies nach 144 Zyklen bereits einige sichtbare parallel Anrißebenen auf; wie in der Abb. 27 gezeigt.



**Abb. 27:** Rißbildung nach ca. 144 Zyklen  $\pm 30$  kV

Ist die Probe, wie im oberen Fall, mechanisch nicht belastet, bleiben die Rißebenen weiter ineinander verhakt und die Probe wurde weiter bis 2500 Zyklen belastet. Erst nach dem Herausnehmen aus dem Ölbad brach die Probe auseinander. Eine Ansicht einer Bruchfläche ist in Abb. 28 gezeigt. Der Rißursprung an einer Ecke und einer Seitenfläche und die Wachstumsrichtungen sind zu erkennen.

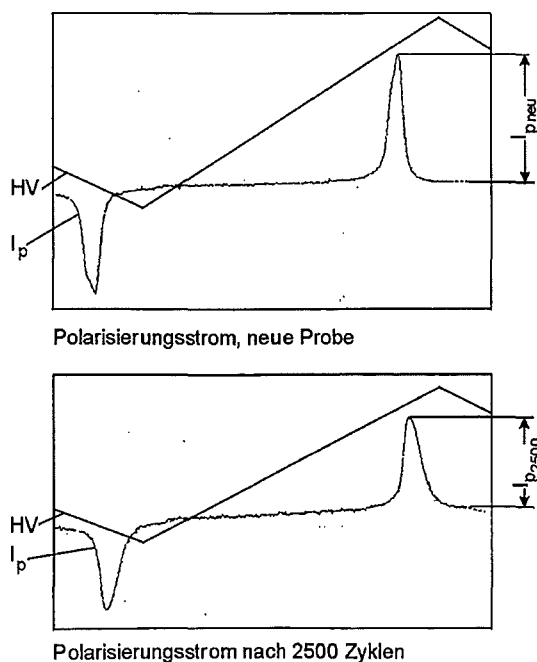


**Abb. 28:** Probe nach 2500 Zyklen; Bruchebenen und Ansicht auf Bruchflächen

### 6.3.3 Änderungen von $I_p$ und $E_c$ bei der Ermüdung

Während des zyklischen elektrischen Umpolens ändern sich auch der Polarisierungsstrom  $I_p$  und die Koerzitivfeldstärke  $E_c$ . Der Strom  $I_p$  zeigt dabei jeweils in der Nähe der Koerzitivfeldstärke sein Maximum.

Abb. 29 zeigt die Größen von  $I_p$  einer neuen Probe und nach 2500 Umpolungen.  $I_p$  hat demnach deutlich abgenommen, die vielen quer zum Verschiebestrom sich gebildeten Rißebenen haben die Ladungsverschiebungen offensichtlich behindert.



**Abb. 29:** Änderung des Polarisierungsstromes beim Umpol – Ermüden

Abb. 30 zeigt die Veränderungen an einer Schmetterlingskurve bei dieser Ermüdung. Es ist ein geringes Anwachsen der Koerzitivstärke  $E_c$  und eine geringe Abnahme der Längendehnungen  $S$  der Probe zu erkennen. Die Abnahme der Längenänderung bedeutet jedoch gleichzeitig eine Abnahme der Probenpolarisierbarkeit. Diese sind jedoch nicht so dramatisch, wie man sie am Lebensdauerende nach der Ermüdung erwartet hätte. Dies bedeutet auch, daß sich die innere Feldstärke und die Ladungsverschiebung von den Querrissen nicht stark behindern läßt.

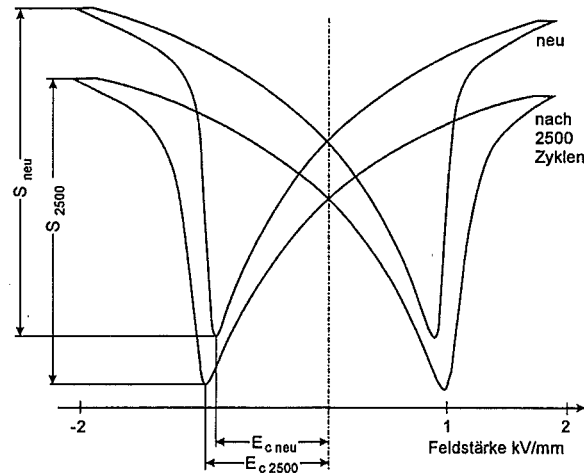


Abb. 30: Änderungen von  $E_c$  und  $S$  beim Umpol - Ermüden

## 7. Ultraschall (US)-Messungen an PZT-Keramik

Eine weitere interessante Möglichkeit den Polungszustand der Proben zu identifizieren, das Verhalten bei Belastung oder den Stand einer Schädigung zu beobachten, bietet das Messen der Schallgeschwindigkeit und -dämpfung mit dem Ultraschall.

Aus den Schallgeschwindigkeiten (2 Modi: longitudinale und transversale Schallgeschwindigkeit) kann bei isotropen Materialien auf deren elastische Eigenschaften geschlossen werden. Bei anisotropem (gepoltem) Material machen sich jedoch die Umwandlungen der Schalldruckwellen in innere Polarisierungswellen und kompliziertere Reflektionen, Phasendrehungen und Polarisierungen bemerkbar, die den Rückschluß auf elastische Eigenschaften quantitativ nicht mehr zulassen. Hier bleibt nur eine qualitative, aber besonders aufschlußreiche (was das "Innenleben" betrifft), Aussage übrig.

Bei der US-Messung wird ein kleiner Sender-Empfänger-Prüfkopf direkt oder über eine Vorlaufstrecke an die Probe angekoppelt. Beim Prüfen der Schädigung kann es wegen der hohen Dämpfung z.T. vorteilhafter sein Sende- und Empfangskopf getrennt anzukoppeln. Die Anordnung eines Ultraschallkopfes ist auch in Abb. 9 bei der elektrischen Umpolung und in Abb. 3b beim mechanischen Belasten gezeigt. Insgesamt wurden folgende US-Messungen durchgeführt:

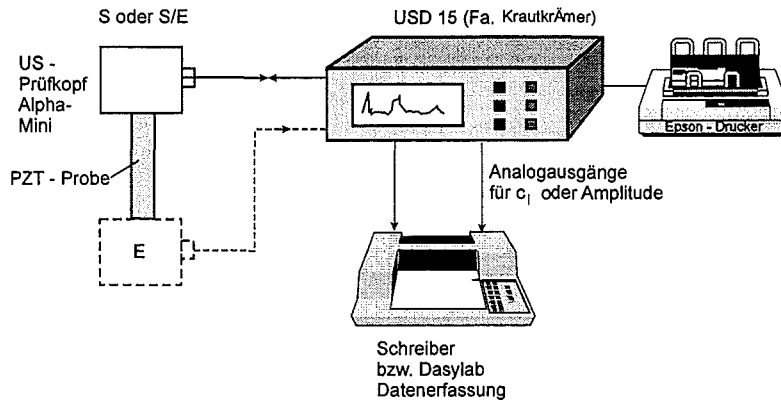
- US-Messungen an unbelasteten Proben:
  - Bestimmen der longitudinalen ( $c_l$ ) und transversalen ( $c_t$ ) Schallgeschwindigkeit
- US-Messungen bei Belastung:
  - Messungen von  $c_l$  bei mechanischer Belastung,
  - Messungen von  $c_l$  bei elektrischer Belastung.
  - Messung der Änderung der Schalldurchgangsdämpfung bei Rißbildung in der Probe.

Die Messung der Schalldurchgangsdämpfung ist ein sehr empfindlicher Indikator für eine Schädigung bzw. Mikrorißbildung in der Probe. Sie kann als relativer Abfall der

Rückwandechos, unabhängig von den Ankoppelverhältnissen des Aufnehmers, ermittelt werden. Weiteres hierzu auch in Kap. 8.3.

### 7.1 US-Meßeinrichtung

Die US-Meßeinrichtung ist schematisch im Schaltbild 4 gezeigt. Sie besteht aus einer Sende-Empfänger-Prüfkopf-Anordnung und einem Prüfgerät mit Bildschirmanzeige z.B. dem USD 15 der Fa. Krautkrämer. An das USD 15 können Drucker für den Bildschirminhalt bzw. Schreiber und Datenerfassungssysteme angeschlossen werden.



**Schaltbild 4:** Ultraschall – Maßeinrichtung, schematisch

### 7.2 Meßverfahren für longitudinale Schallgeschwindigkeit $c_l$

Die longitudinale Schallgeschwindigkeit  $c_l$  kann bei bekannter Dicke direkt aus der Laufzeit eines Rückwandechos ermittelt werden. Das USD führt dabei den Rechengang automatisch aus. In der Praxis wird dazu über zwei oder mehr Echos ein Meßbalken gelegt, vom Gerät wird dann eine Dicke angezeigt, die zur eingestellten Schallgeschwindigkeit in direkter Beziehung steht. Durch Verändern der Schallgeschwindigkeit, wird die Anzeige der Probendicke auf die tatsächliche Dicke eingestellt. Die Genauigkeit ist für Absolutmessungen dabei besser als  $\pm 0,2 \%$ . Für Messungen der relativen Geschwindigkeitsänderungen, z.B. bei mechanischer Belastung, ist zusätzlich die Empfindlichkeit von Interesse; diese liegt bei ca.  $0,01 \%$ .

### 7.3 Meßergebnisse für $c_l$ an lastfreien Proben

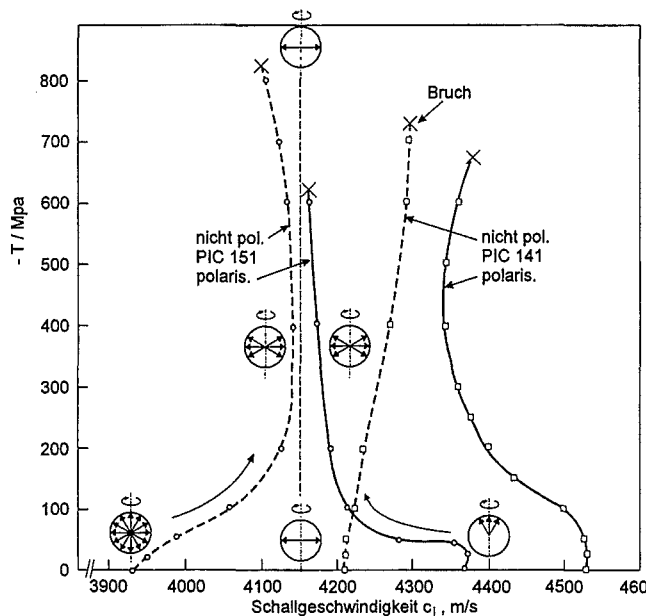
Die Tab. 2 zeigt die Ergebnisse der Schallgeschwindigkeiten für den nicht gepolten und den gepolten Zustand.  $\parallel$  = in Längs- bzw. Polungsrichtung,  $\perp$  = quer zur Längs- bzw. Polungsrichtung

Longitud. Schallgeschw. [m/s]	PIC 151		PIC 141	
	nicht polarisiert	polarisiert	nicht polarisiert	Polarisiert
$c_l \parallel$ neu	3920	4370	4224	4560
nach Belastung $c_l \parallel$ (600 MPa längs)	4125	4144	4307	4370
$c_l \perp$ neu	3920	3920	4224	4224
nach Belastung $c_l \perp$ (600 MPa längs)	3906	3940	4030	4175

**Tabelle 2:** Longitudinale Schallgeschwindigkeit im Neuzustand und nach einer Druck belastung der Proben in Längsrichtung

Wie ersichtlich ergeben sich beim gepolten (anisotropen) Zustand zwei unterschiedliche Geschwindigkeiten, abhängig ob mit oder quer zur Polungsrichtung, gemessen wurde. Entsprechend kann hier nicht auf die elastischen Eigenschaften geschlossen werden. Auffallend ist der große Anstieg von  $c_1$  in der Polarisationsrichtung von ca. 10 %. Dies bedeutet, daß die Schallgeschwindigkeit  $c_1$  gut zum Bewerten des Polungszustandes benutzt werden kann.

Die bleibende Änderung von  $c_1$  nach einer Druck-Belastung liefert ebenfalls einen Einblick in den Polungszustand. Während für die Höchstbelastungen die Werte mit in die Tab. 2 eingetragen sind, zeigt die Abb. 31 die Werte auch nach Zwischenentlastungen.

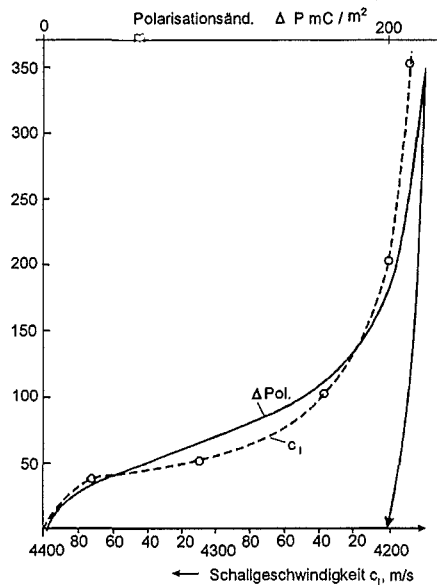


**Abb. 31:** Schallgeschwindigkeit  $c_1$ , nach Belasten auf  $-T$  (im entlasteten Zustand gemessen), Polarisationsänderungen für PIC 151 mit Symbolen dargestellt.

Die  $c_1$ -Werte der gepolten und ungepolten Proben nähern sich danach mit der Zunahme der vorher angelegten Belastung aneinander an. Da sich nach Abb.2 mit einer mechanischen Belastung auch  $90^\circ$  Domänenumklappprozesse einstellen, sind die Polarisation-Zustandsbildchen in die Abb. 31 als Beispiel für das PIC 151 mit eingezeichnet. Im Zwischenraum ist der vollständige Umklappzustand eingezeichnet. Dieser wird, wie ersichtlich, jedoch nicht ganz erreicht.

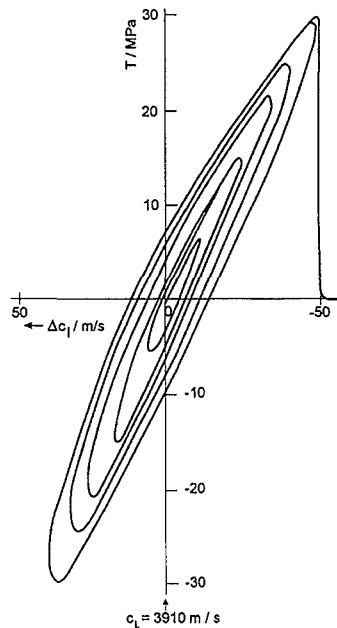
#### 7.4 Verlauf von $c_1$ während der mechanischen Belastung

Die Abb. 32 zeigt die Polarisations- und Schallgeschwindigkeitsänderung bei einer Druckbelastung von PIC 151. Es ist zu erkennen, daß die Verläufe sehr ähnlich bzw. fast deckungsgleich sind. Sie entsprechen auch dem Verlauf der Längenänderung (Stauchung) nach Abb. 4.



**Abb. 32:** Vergleich des Verlaufes von  $\Delta P$  und  $c_l$  an PIC 151

Die Abb. 33 zeigt Ergebnisse bei Zug- und Druckbelastung einer Probe aus PIC 151. Die Zugbelastung darf hier jedoch die Zugfestigkeit der Proben von ca. 30 MPa nicht überschreiten. Nach dem Durchlaufen einer "Neukurve" stellt sich auch hier eine Hystereseurve von  $c_l$ , ähnlich der bei den mechanischen Größen ein.

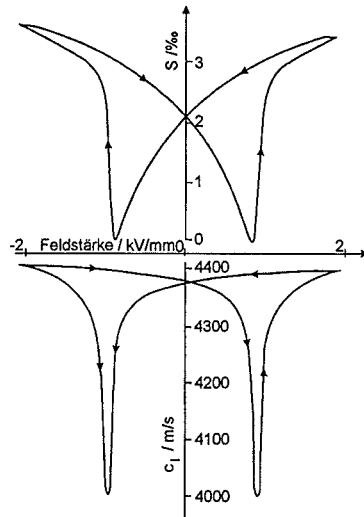


**Abb. 33:** Änderung der Schallgeschwindigkeit  $c_l$  bei Zug – Druck – Belastung einer nichtpolarisierten Probe aus PIC 151, Kräfte zyklisch steigend

### 7.5 Verlauf von $c_l$ beim elektrischen Umpolen

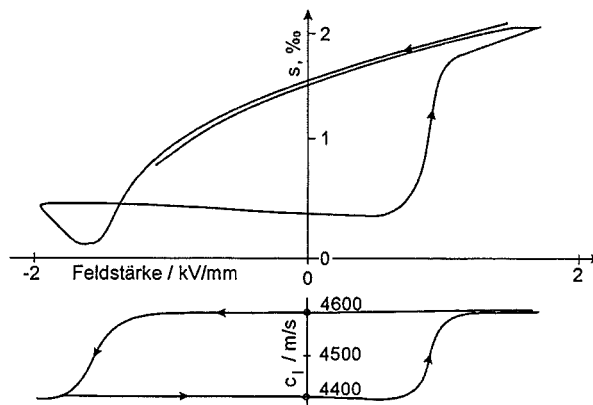
Wie im Kap. 4 beschrieben, werden beim Anlegen einer Feldstärke  $E$ , die größer als  $E_c$  ist, Umlappvorgänge der Domänenbereiche indiziert, die sich mit den gezeigten Hysterese- und Schmetterlingskurven beschreiben lassen. Während dieses Umpolvorganges wurde mit dem Aufbau nach Abb. 9 auch die Schallgeschwindigkeit mit aufgezeichnet.

Ein Ergebnis ist in Abb. 34 für das weiche PIC 151 dargestellt. In der oberen Bildhälfte ist die Längenänderung, in der unteren der Verlauf der Schallgeschwindigkeit  $c_l$  über der Feldstärke aufgetragen. Es ist zu erkennen, daß im Bereich von  $E_c$  auch die größte Änderung in der Schallgeschwindigkeit zu erkennen ist. Der gepolte Zustand weist dabei die höhere Schallgeschwindigkeit auf. Die Gesamtänderung beträgt wieder entsprechend den Zuständen gepolt – ungepolt ca. 10 %.



**Abb. 34:** Längenänderung  $S$  und Schallgeschwindigkeit  $c_l$  beim elektrischen Umpolen von PIC 151

Für das harte Material PIC 141 sieht der Verlauf wesentlich anders aus, er ist in Abb. 35 dargestellt. Wie am Verlauf der Dehnung zu erkennen, wird hierbei keine vollständige Umpolung erreicht. Dieses macht sich wahrscheinlich in dem anders aussehenden Verlauf von  $c_l$  bemerkbar. Der Hub für  $c_l$  beträgt hier nur noch ca. 5 %.



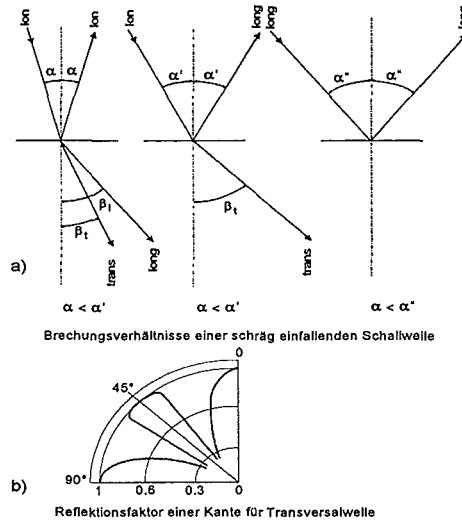
**Abb. 35:** Längenänderung  $S$  und Schallgeschwindigkeit  $c_l$  beim elektrischen Umpolen von PIC 141

## 7.6 Meßverfahren für die transversale Schallgeschwindigkeit $c_t$

Da für eine vollständige Beschreibung der elastischen Eigenschaften eines Materials auch der transversale Mod der Schallgeschwindigkeit mit eingeht, sollte dieser soweit als möglich auch immer mit gemessen werden. Das Anregen von Transversalwellen im Material ist jedoch wesentlich schwieriger. Sie können nur durch Schrägeinschallung erreicht werden. Dabei sind noch die Brechungsgesetze nach Snellius beim Übergang zwischen Prüfkopf und Probe, zu beachten. Die Tatsache, daß auch beide Modi long und trans gleichzeitig vorkommen können, siehe Abb. 36a, muß zu-

sätzlich betrachtet werden. Aus praktischen Gründen wird man versuchen den Zustand ohne long-Anteil einzustellen.

Bei der Schrägeinschallung ist man auf eine Reflexion aus einer Kante der Probe angewiesen, siehe Abb. 36b. Der günstigste Winkel liegt dabei bei  $45^\circ$ . Auf diesen Winkel hinziehend sind auch noch weitere Randbedingungen einzuhalten:



**Abb. 36:** Brechungsverhältnisse und Reflexionen an einer Kante

- Möglichst gleiche Schallimpedanz  $Z$  der beteiligten Materialien Koppelstab-Probe um die Eingangsreflexion so gering als möglich zu halten.
- Der Einschallwinkel  $\alpha$  soll größer  $\alpha'$  sein damit es in der Probe keine Longitudinalwellen, sondern nur noch Transversalwellen gibt.
- $\alpha$  soll dabei aber kleiner als der zweite Grenzwinkel  $\alpha''$  sein. Für größere Einschallwinkel als  $\alpha''$  existiert in der Probe weder eine Longitudinal- noch eine Transversalwelle.

Diese Bedingungen schränken die Auswahl an Koppelkörpern deutlich ein.

Die für unsere Proben benutzten und nach den obigen Bedingungen ausgewählten Koppelwerkstoffe und ihre Anstragwinkel sind in Tab. 3 dargestellt.

PZT-Werkstoff			Koppelstab		
		Imped. $Z$ $10^3 \cdot \text{Pas/m}$	Werkst.	Imped. $Z$ $10^3 \cdot \text{Pas/m}$	gewählter Anstrag $\angle \alpha$
PIC 151	nicht pol.	30576	PVC	3353	$57^\circ$
PIC 151	pol.	34086	Blei	24624	$50^\circ$
PIC 141	nicht pol.	22947	Plexiglas	2730	$60^\circ$
PIC 141	pol.	35568	Blei	24624	$50^\circ$

**Tabelle 3:** Koppelstabwerkstoffe, Impedanzen und Anstragwinkel für die verschiedenen PZT-Proben



Es ist daraus ersichtlich, daß die Schallimpedanz  $Z$  nicht in allen Fällen gut angepaßt werden konnte. Die Schallimpedanz  $Z$  eines Stoffes ergibt sich aus dem Produkt der longitudinalen Schallgeschwindigkeit  $c_l$  und der Dichte  $\rho$ .

$$Z = c_l \cdot \rho \text{ [Pas/m]} \quad (5)$$

Die so gemessenen Schallgeschwindigkeiten  $c_t$  sind ebenfalls in Tab. 4 eingetragen. Für den gepolten (anisotropen) Zustand sind die Werte, wie oben erläutert, nicht gültig und deshalb eingeklammert.

### 7.7 Elastizitätsmodul $Y$ aus $c_l$ und $c_t$

Der Elastizitätsmodul  $Y$  und Schubmodul  $G$  steht bei isotropen Materialien in direkter Beziehung zu der mit longitudinalen Wellen bestimmten Schallgeschwindigkeit  $c_l$  und der mit Transversalwellen bestimmten  $c_t$ . Die Querkontraktionszahl  $\nu$  ist ebenfalls direkt von diesen abhängig.

Die Beziehungen hierfür lauten:

$$G = \rho \cdot c_t^2 \quad \text{[Pascal]} \quad (6)$$

$\rho = \text{Dichte} \quad \text{[kg/m}^3\text{]}$

$$Y = \frac{(1+\nu)(1-2\nu)}{(1-\nu)} \rho c_l^2 \text{ [Pascal]} \quad (7)$$

Die Querkontraktionszahl  $\nu$  ergibt sich aus:

$$\nu = \frac{0,5(c_l/c_t)^2 - 1}{(c_l/c_t)^2 - 1} \quad (8)$$

Die Werte sind ebenfalls in Tab. 4 enthalten. Sie stimmen für das isotrope Material gut mit den Ergebnissen aus /7/ überein. Für den gepolten Zustand sind sie wiederum eingeklammert. Sie entsprechen damit nicht den mit anderen Verfahren ermittelten Werten. Die Gründe hierfür sind bereits in der Einleitung zu diesem Kapitel angedeutet:

	PIC 151		PIC 141	
	nicht polarisiert	polarisiert	nicht polarisiert	Polarisiert
$c_t$ (45°) [m/s]	1780	(2070)	2040	(2150)
$\nu$ (längs)		(0,3554)		(0,3579)
$\nu$ (quer)	0,3744	(0,3157)	0,3530	(0,3333)
Y-Modul [GPa] (längs)		(90,6)		(97,9)
Y-Modul [GPa] (quer)	68	(87,9)	87,8	(96,1)

**Tabelle 4:** Transversale Schallgeschwindigkeit  $c_t$  Querkontraktionszahl  $\nu$  und Y-Modul für PIC und 141

Die Schalldruckwelle bewirkt während des Messens an polarisierten, also anisotropen Proben, über die mechanisch-elektrische Wechselwirkung eine Beeinflussung

der Schallgeschwindigkeit. Ein Quantifizieren der elastischen Größen ist bis jetzt nicht möglich. Die Werte sind deshalb nur zur Information eingetragen.

### 7.8 Änderung der Schalldämpfung durch Mikrorißbildung in der Probe

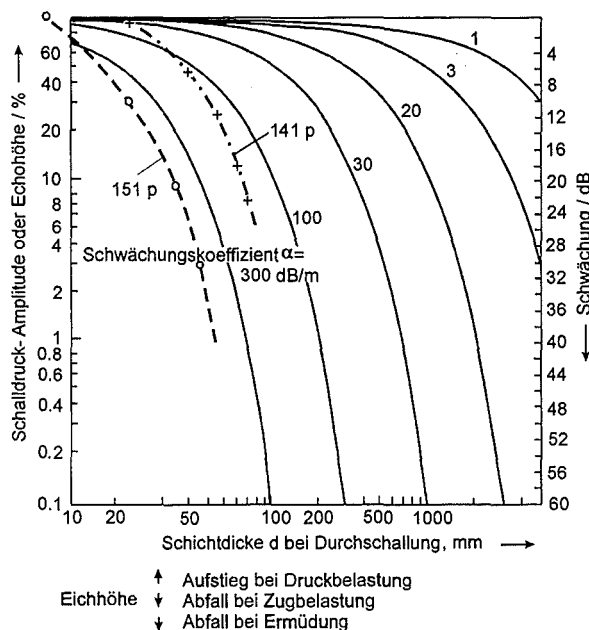
Beim Durchgang einer Schallwelle durch Materie erfährt diese eine Schwächung. Die Ursachen für die Schwächung sind Streuung und Absorption:

- Die Streuung beruht darauf, daß der Werkstoff nicht homogen ist (Grenzflächen, Risse, Einschlüsse, Poren usw.).
- Die Absorption bedeutet direkte Umwandlung von Schallenergie in Wärme; sie nimmt proportional mit der Frequenz zu.

Rechnerisch läßt sich der Schalldruckverlauf, der infolge der Schwächung abnimmt in Form einer Exponentialfunktion darstellen:

$$p = p_0 e^{-\alpha d} \quad (9)$$

$p_0$  und  $p$  sind die Schalldrücke zu Anfang und Ende einer Strecke  $d$  mit dem Schwächungskoeffizienten  $\alpha$ . Die Abb. 37 zeigt solche Schallschwächungskurven aus /8/ mit den eingezeichneten Verläufen für unsere PZT-Keramiken. Diese liegen, wie ersichtlich, bei den sehr hohen  $\alpha$ -Werten von bis zu 400 dB/m für das PIC 151. Bei Belastung und Ermüdung ändern sich diese Werte wie angegeben. Darauf beruht nun der Versuch aus diesen Änderungen Rückschlüsse auf Rißentstehung anzustellen. Die Korrelationen hierzu werden im nächsten Kapitel Ermüdung quantitativ mit aufgezeigt.



**Abb. 37:** Schallschwächung von PIC 151 und 141 bei 20 MHz ohne Belastung im Schaubild nach /8/

Hier soll nur der Meßvorgang an Hand eines Beispielles erläutert werden:

Die Abb. 38 zeigt drei Ausdrücke des USD15-Gerätes mit jeweils außerhalb der Belastungseinrichtung, also im entlasteten Zustand, gemessenen Größen:

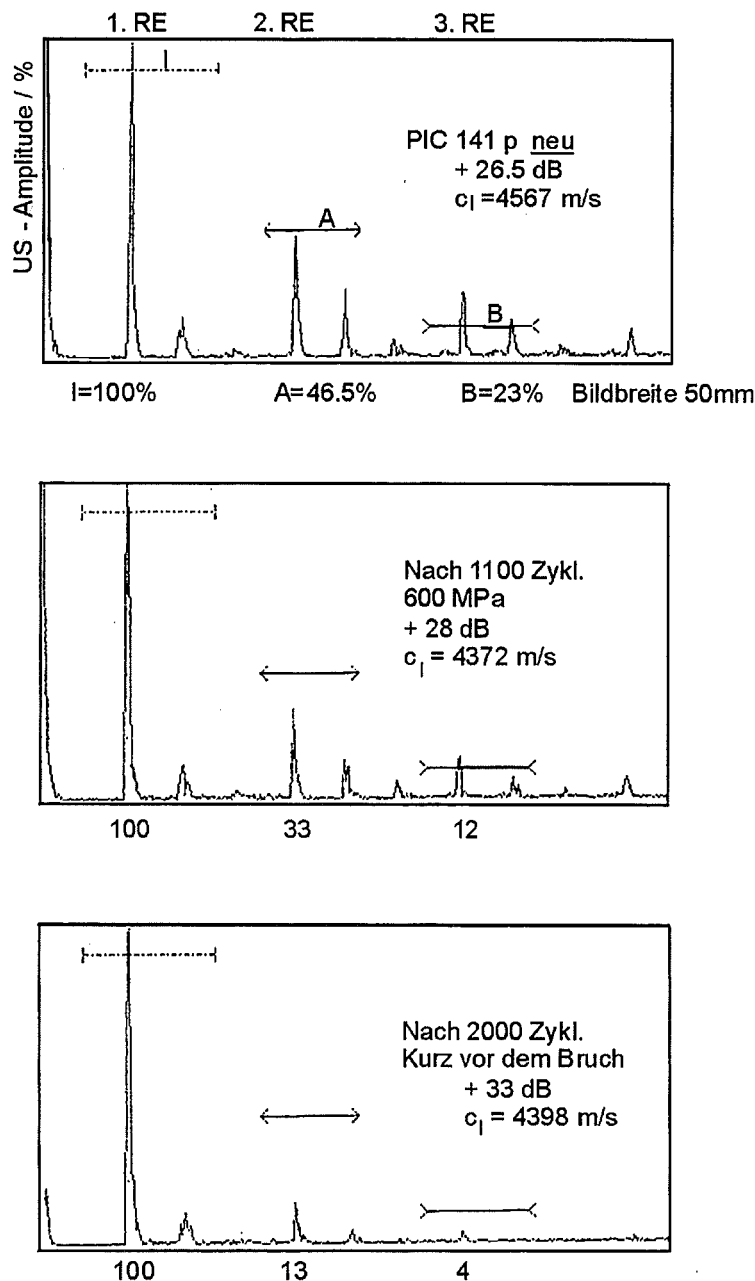
- Oben: 4 Folgen von Rückwandechosignalen (RE) mit 3 Meßblenden: I, A und B an einer 15 mm langen neuen Probe aus PIC 141. In der untersten Zeile sind die Amplitudenhöhen der 3 Blenden in % angegeben. Rechts im Bild sind

die Verstärkungswerte (26,5 dB) und die errechnete Schallgeschwindigkeit (4567 m/s) noch von Interesse.

- Mitte: Die Zustände nach 1100 Belastungszyklen mit -600 MPa: Um den ersten Peak auf 100 % zu trimmen, wurde die Verstärkung auf 28 dB erhöht; die Geschwindigkeit wurde soweit erniedrigt, daß wieder die Probenlänge von 15 mm angezeigt wurde.

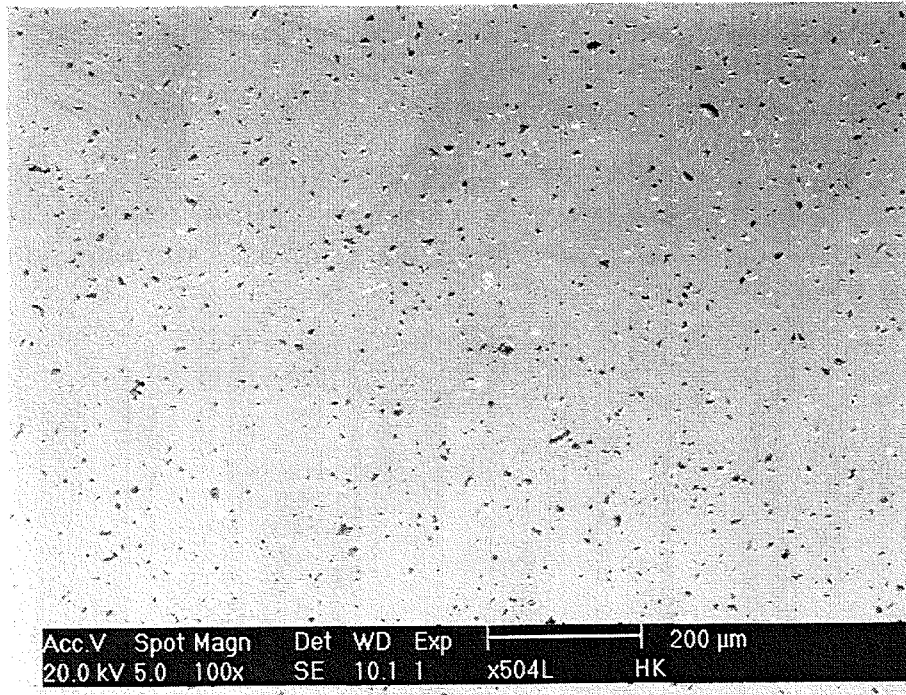
Ein Abfall des 2. und 3. RE ist deutlich zu erkennen.

- Unten: Die entsprechenden Abläufe nach 2000 Zyklen: Die Verstärkung wurde auf 33 dB erhöht, kurz nach Wiederanfahren der Druckermüdung ist diese Probe gebrochen.

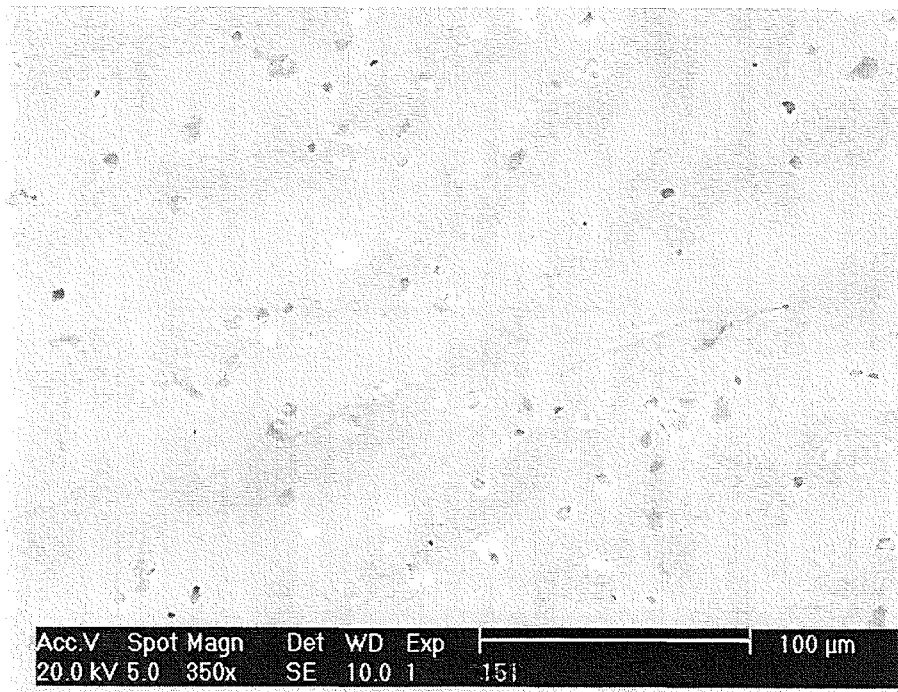


**Abb. 38:** Änderung der US – Dämpfung bei Ermüdung, Bei PIC 141p

Das Beispiel hat gezeigt, daß die US-Dämpfung ein Maß des Ermüdungszustandes sein kann. Die Mikrorisse selbst konnten jedoch noch nicht sichtbar gemacht werden. Schliffbilder (REM-Aufnahmen) Abb. 39 von ermüdeten und neuen Proben hierzu zeigen nur die großen und kleinen Poren der Keramikstruktur und Makrorisse.



a) Ausgangszustand



b) nach 3-maligem Belasten auf  $T \approx 600$  MPa, durchgehender Riß sichtbar

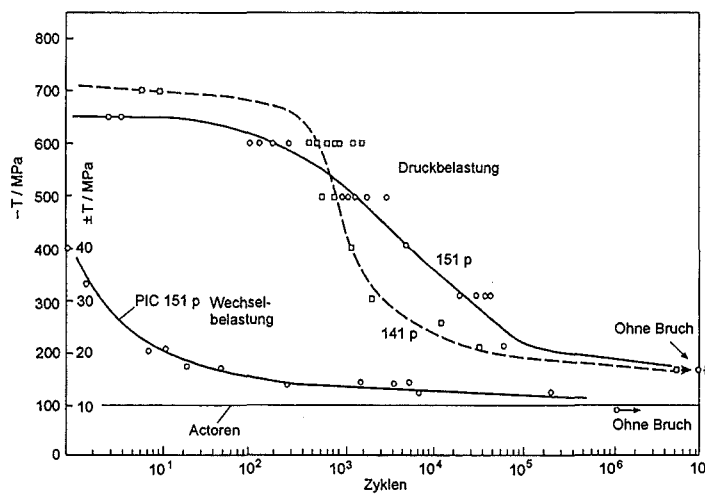
**Abb. 39:** REM-Aufnahmen von PIC 151 – Proben a) vor, b) nach der Belastung

## 8. Lebensdaueruntersuchungen

Die Lebensdaueruntersuchungen wurden durch zyklische Belastungen im Druckschwellbereich ( $R=0,1$ ) und als Zug-Druck-Wechselbelastung (ohne Mittellast) kraftgesteuert ausgeführt. Die Darstellung ist halblogarithmisch, auch als Wöhler-Schaubild bekannt, mit der Spannung  $T$  über der Zyklenzahl. Die Probenenden wurden dabei elektrisch kurzgeschlossen ( $E=0$ ).

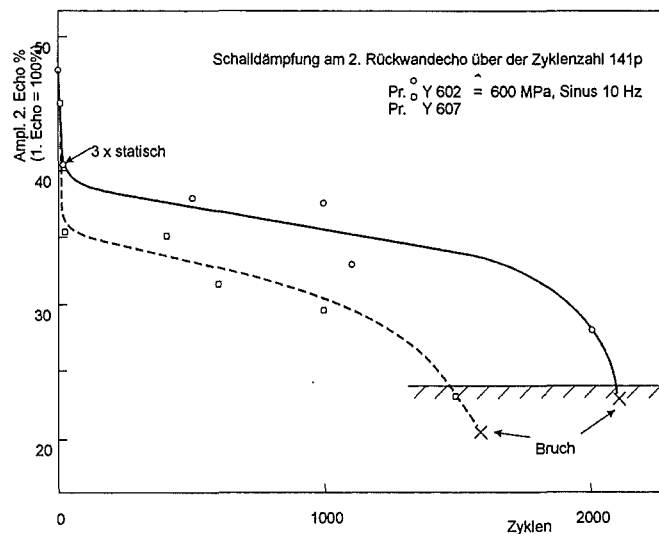
### 8.1 Druckschwellversuch

Die Abb. 40 zeigt die Wöhlerkurven für Druckbelastung an gepoltem PIC 151 und 141. Als Bruchkriterium wurde das Abplatzen von mindestens  $1/3$  der Probenecken (Höhe und Querschnitt) oder das längsseitige Aufspalten einer Probe herangezogen. Das Ergebnis zeigt eine fast gleiche Dauerstandfestigkeit von ca. 250 MPa für 151 und 141; und sehr hohe Druckfestigkeiten von ca. 600 bis 700 MPa.



**Abb. 40:** Wöhlerschaubild für PZT – Keramik; Druck- und Wechselbelastung

An zwei Proben mit einer mittleren Belastung von 600 MPa wurde die US-Dämpfung nach Kap. 7.8 mitgemessen. Abb. 41 zeigt die Verläufe der Amplituden über der Zyklenzahl. In beiden Fällen waren kurz nach dem Absinken der Amplituden unter 25 % die Proben gebrochen.



**Abb. 41:** Abnahme der Echohöhe bei Ermüdung (Rißbildung) an PIC 141 pol. an zwei Proben bei gleicher Belastung

## 8.2 Zug-Druck (=Wechsellast)-Versuch

Mit der Vorrichtung nach Abb. 3b war es möglich eine Probe weitgehend biegespannungsfrei auf Zug und Druck zu belasten. Die dazugehörige Probe ist die Form 2 mit aufgeklebten Messing-Hülsen. Diese Probe war nur aus PIC 151 vorhanden.

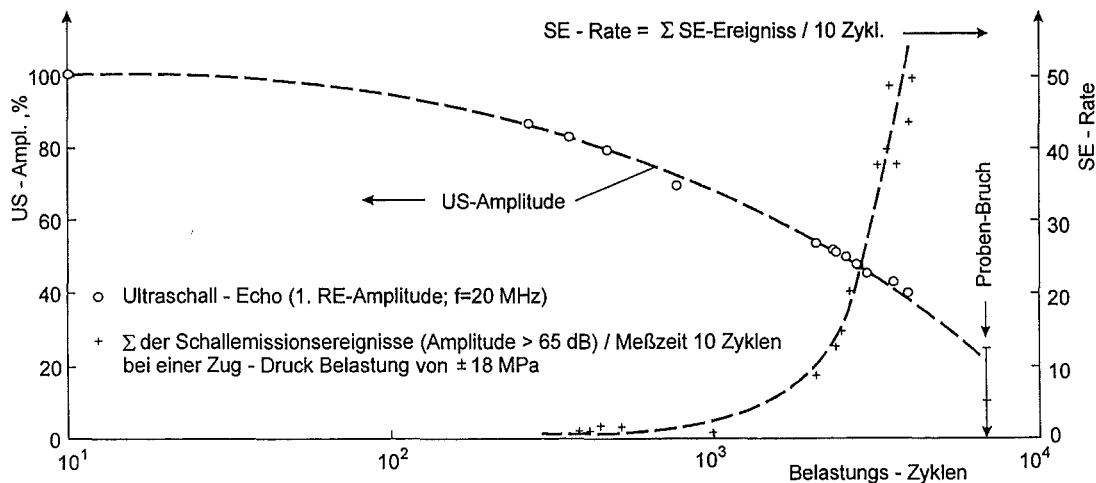
Die Ergebnisse sind ebenfalls in Abb. 42, jedoch mit 10fach kleinerer Spannungsachse eingezeichnet. Die Höchstbelastungen konnten hier, wie ersichtlich, nur bis ca. 30 MPa gesteigert werden, obwohl die Zugfestigkeit bei ca. 40 MPa liegt. Die ermittelte Dauerstandfestigkeit liegt hierbei wie ersichtlich nur bei ca. 11 MPa. Da reine Zugwechselbelastung ca. 2 mal höhere Werte liefert /9/, dürfte hier noch ein Rest von Biegung überlagert sein, bzw. sich der Druckeinfluß doch schon bemerkbar machen.

Bei diesen Versuchen war es zusätzlich möglich, mit 2 Aufnehmern an der Probe (siehe Abb. 3b)

- dem US-Sensor am oberen Probenende und einem
- SE-Sensor quer an der Probe

während der Belastungen zu messen. Die Messung wurde abwechselnd gestartet, weil der US-Sensor mit seinen Sendpeaks die SE-Signale überlagerte.

Die Abb. 42 zeigt das zusammengefaßte Ergebnis dieser Messungen bei einer mittleren Spannung von ca.  $\pm 18$  MPa. Während beim US die RE-Höhen abnehmen, s. auch Abb. 38 und 42, steigen bei der SE die Anzahl bruchrelevanter Ereignisse ( $>60$  dB) mit der Zyklenzahl bis zum Bruch steil an.



**Abb. 42:** Messungen bei einer Wechselbelastung (Ermüdung) einer PZT - Probe

Aus dem Vergleich beider Meßmethoden geht eindeutig die SE als der empfindlichere Indikator für das Bruchereignis hervor. Während jedoch der US-Dämpfungsstatus auch noch an einer entlasteten Probe ermittelt werden kann, benötigt die SE definitionsgemäß eine Spannung bzw. eine sich verändernde Spannung in der Probe zur Bewertung.

## 9. Schlußbemerkungen

Im vorliegenden Bericht wurden verschiedene Experimente am PZT-Keramik-Proben vorgestellt und viele Meßtechniken eingesetzt.

In Anbetracht der Fülle der angesprochenen Themen, war es jedoch nicht immer möglich, alle Gesichtspunkte ausreichend darzustellen, zu berücksichtigen bzw. Aussagen zur Meßgenauigkeit anzustellen. Weitere Messungen wären dazu nötig.

Bei dieser Gelegenheit möchte ich mich auch bei allen Mitarbeitern des IMF II für Anregungen und Diskussionsbeiträge bedanken. Mein besonderer Dank gilt Herrn G. Thun für das Applizieren der vielen Proben, Fr. Schweiger für die Schreifarbeiten und Fr. Mayer-Paulus für das Zeichnen und Einordnen der vielen Bilder.

## 10. Literatur

- /1/ Schäufele, A.: „Ferroelastische Eigenschaften von Blei-Zirkonat-Titanat-Keramiken“, VDI-Fortschrittsberichte, Reihe 5, Nr. 445, Mai 1996
- /2/ Fett, T., Müller, S., Munz, D., Thun, G.: „Nonsymmetrie in the deformation behaviour of PZT“, J. of Mat. Sci. Letters 17 (1998) 261-265
- /3/ Pardo, L., e.a.: „Lead Titanat Based Composition for Multilayer Actuators“, Proceedings IEEE Ultrasonics Symposium, San Antonio 1996, pp. 419-422
- /4/ Sawyer, C.B., Tower, C.H.: „Rochelle Salt as a Dielectric“: Phys. Rev. Bd. 35 (1930) S. 269-273
- /5/ Arnd, H., Hennig, P.: „Dilatometrische Untersuchungen an ferroelektrischer Keramik“, PI Keramik Lederhose, Mitteilung 1996
- /6/ Code for Acoustic Emission Examination, EWGAE. Reprinted form N.D.T. International, August 1981, IPC Publication
- /7/ Fett, T., Munz, D.: „Measurement of Young's moduli for PZT ceramics“, Forschungszentrum Karlsruhe, eingereicht bei J. Test. and Eval.
- /8/ Krautkrämer, J. und H.: „Werkstoffprüfung mit Ultraschall“ Springer-Verlag, Berlin 1980
- /9/ Fett, T. e.a.: Zugschwellermüdung an PZT-Keramik (persönliche Mitteilung), 1999