

# EXPERIMENTELLER AUFBAU ZUR MESSUNG DER ENERGIEFREISETZUNGSRATE FÜR RISSWACHSTUM IN PZT UNTER ELEKTROMECHANISCHER LAST

H. Jelitto, F. Felten und G. A. Schneider

Arbeitsbereich Technische Keramik, Technische Universität Hamburg-Harburg

*(angenommen für den Tagungsband des 37. DVM-Arbeitskreises Bruchvorgänge, TUHH, 2005)*

**Zusammenfassung:** In 4-Punkt-Biegung wird in längs gepolten und angekerbten PZT-Biegestäbchen ein makroskopischer Riss mit Hilfe einer eigens entwickelten Apparatur kontrolliert getrieben. Zusätzlich zur mechanischen Last wird ein elektrisches Feld parallel bzw. antiparallel zur Polungsrichtung angelegt. Dies stellt eine für die Anwendung von piezo- bzw. ferroelektrischen Keramiken typische Belastung dar. Um die verschiedenen Anteile zur totalen Energiefreisetzungsrates zu bestimmen, werden mit einer speziellen Technik simultan die mechanische sowie die piezoelektrische Compliance (Nachgiebigkeit), als auch die Kapazität der Probe als Funktion der Risslänge aufgenommen. Die Ableitung dieser Größen nach der Rissfläche ermöglicht erstmals die Berechnung sämtlicher Anteile der totalen Energiefreisetzungsrates auf der Basis eines einzelnen Biegebruchversuchs. Der Schwerpunkt liegt hier auf der Präsentation der Messmethode.

**Stichwörter:** 4-Punkt-Biegung, Risswachstum, Energiefreisetzungsrates, PZT, Nachgiebigkeit

## EXPERIMENTAL SET-UP TO MEASURE THE ENERGY RELEASE RATE FOR CRACK GROWTH IN PZT UNDER ELECTROMECHANICAL LOADING

**Abstract:** Four-point-bending V-notched specimens of PZT poled parallel to the long axis are fractured under conditions of controlled crack growth in a custom-made device. In addition to the mechanical loading an electric field is applied parallel or anti parallel to the poling direction. This is a typical loading condition for the application of piezo- and ferroelectric ceramics, respectively. To determine the different contributions to the total energy release rate the mechanical and piezoelectric compliance as well as the electrical capacitance of the sample are acquired continuously with a special technique as a function of the crack length. The derivation of the data with respect to the crack surface allows calculating all parts of the total energy release rate on the basis of a single bending experiment for the first time. The main focus here is the presentation of the experimental method.

**Keywords:** 4-point-bending, crack growth, energy release rate, PZT, compliance

## Einleitung

Piezo- und ferroelektrische Keramiken besitzen breite Anwendungsfelder, wie z. B. in der Automobilbranche oder der Medizin, in Bereichen wie Sensorik, Aktorik oder Ultraschallanwendungen. Deshalb ist die Untersuchung des Bruchverhaltens und wegen der angestrebten langen Lebensdauer auch speziell das unterkritische Risswachstum von besonderem Interesse. Hierzu wurde eigens eine extrem starre 4-Punkt-Biegeapparatur entwickelt, die kontrollierte Bruchversuche ermöglicht. Eine ebenfalls speziell entwickelte Elektronik und Datenanalyse ermöglicht die simultane Messung aller Parameter zur Bestimmung der totalen Energiefreisetzungsrate unter gleichzeitiger mechanischer und elektrischer Belastung der Probe. Die Apparatur wurde bereits für kontrolliertes Risswachstum entlang leitender und nichtleitender Risse in PZT-Bulkmaterial als auch entlang Metall-Keramik-Grenzflächen in PZT-Stapelaktoren eingesetzt. Diese Veröffentlichung soll in erster Linie die experimentelle Methode und ihre wesentlichen Eigenschaften beschreiben. Die Ergebnisse werden detailliert in separaten Publikationen vorgestellt [1–5].

## Theoretischer Hintergrund

Das Messprinzip basiert auf der erweiterten Irwin-Kies-Relation, die erstmals von Suo auf der Basis eines linear elastischen Ansatzes vorgestellt wurde [6]. Daraus lassen sich alle Anteile der totalen Energiefreisetzungsrate  $G_{tot}$  ableiten. Seien  $\Pi$  die insgesamt gespeicherte potentielle Energie,  $A$  die Rissfläche,  $F$  die Kraft und  $V$  die anliegende elektrische Spannung, so erhalten wir für  $G_{tot}$ :

$$G_{tot} = -\left(\frac{\partial \Pi}{\partial A}\right)_{F,V} = \frac{V^2}{2} \frac{\partial C_e}{\partial A} + \frac{F^2}{2} \frac{\partial C_m}{\partial A} + FV \frac{\partial C_p}{\partial A} \quad (1)$$

Der erste Summand auf der rechten Seite der Gleichung entspricht der in einem Kondensator gespeicherten Energie, der zweite ist analog die elastisch gespeicherte Energie und der dritte entspricht dem Mischterm aufgrund der piezoelektrischen Kopplung. Um  $G_{tot}$  zu berechnen, werden die Kapazität  $C_e$ , die mechanische Compliance  $C_m$  und die piezoelektrische Compliance  $C_p$  während des Biegebruchversuches als Funktion der Risslänge bestimmt, basierend auf den folgenden Gleichungen:

$$C_e = \left(\frac{\partial Q}{\partial V}\right)_F, \quad C_m = \left(\frac{\partial \Delta}{\partial F}\right)_V, \quad \text{und} \quad C_p = \left(\frac{\partial Q}{\partial F}\right)_V = \left(\frac{\partial \Delta}{\partial V}\right)_F \quad (2)$$

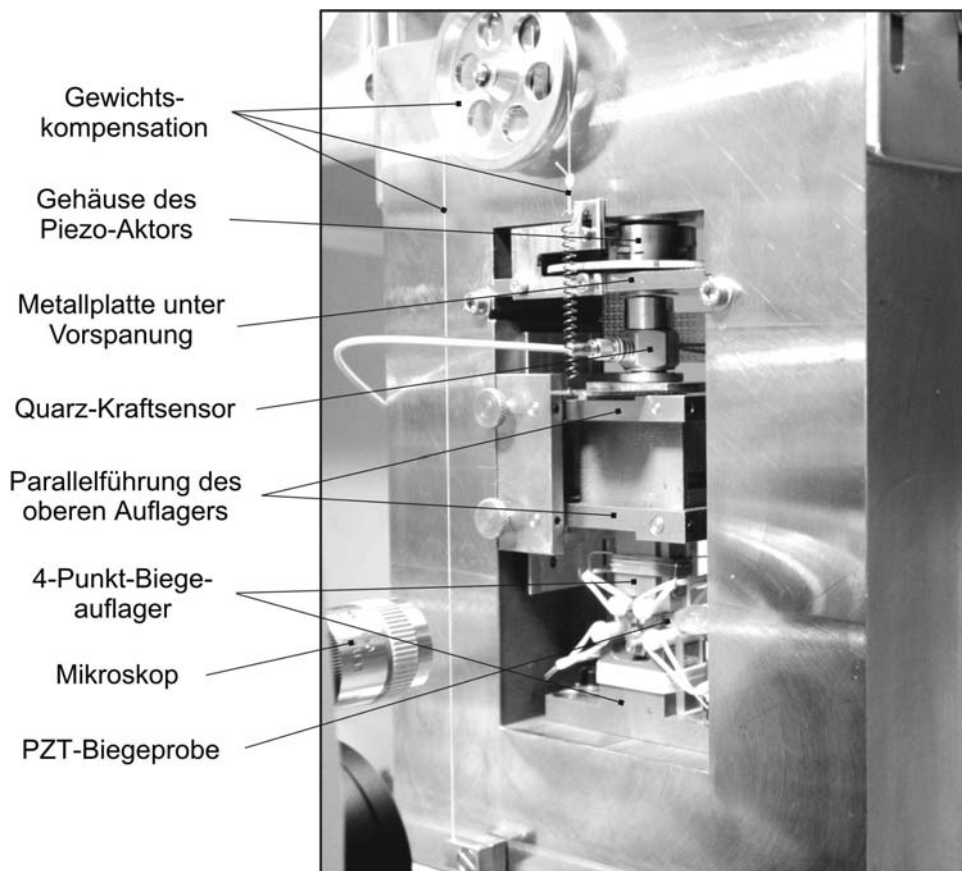
Es sind  $Q$  die elektrische Ladung auf der Probe und  $\Delta$  die Verschiebung an den Punkten der Krafteinleitung. Man erkennt, dass sich  $C_p$  auf zwei Arten experimentell bestimmen lässt. Ersten kann für konstante Spannung  $V$  bei einer Änderung der auf die Probe wirkenden Kraft  $dF$  die Ladungsverschiebung  $dQ$  gemessen werden. Zweitens lässt sich bei einer Änderung der Spannung um  $dV$  die Verschiebung  $d\Delta$  bestimmen, wobei die Kraft konstant gehalten werden muss. Im vorliegenden experimentellen Aufbau wurden beide Methoden realisiert, allerdings nur die erste verwendet, da sie einfacher durchzuführen ist.

## Experimenteller Aufbau

Die verwendeten 4-Punkt-Biegeauflager (Fraunhofer-Institut für Werkstoffmechanik, Freiburg) erfüllen die ASTM-Norm [7] und sind in einem sehr steifen einteiligen Rahmen montiert, um kontrolliertes Risswachstum zu ermöglichen.

Die Kraft wird manuell über ein mechanisches Getriebe und eine Schraube, die senkrecht durch den oberen Querholm des Rahmens verläuft, übertragen. Eine Metallplatte, die unter Vorspannung steht, beseitigt Setzungseffekte im Gewinde dieser Schraube und erhöht damit die Steifigkeit der Apparatur. Die grundsätzliche Idee dazu stammt von Fett et al. [8]. Von der Vorspannplatte wird die Kraft auf einen Quarz-Kraftsensor übertragen und von dort auf die Halterung der oberen Rollenaufleger, welche durch ein Parallelogrammgestänge nahezu spiel- und reibungsfrei geführt werden. Ein Wegaufnehmer ist im unteren Querholm des Rahmens integriert und misst die Verschiebung über eine spezielle mechanische Konstruktion direkt von den oberen Rollen des Auflagers, d. h. direkt am Kraftangriffspunkt. Abbildung 1 zeigt den mechanischen Aufbau.

Zwischen der oberen Schraube zur Kraftaufbringung und der Vorspannplatte ist ein flacher Piezo-Aktor positioniert, der mit einer Frequenz von 5 Hz und einer Elongationsamplitude von ca. 30 nm die Kraft geringfügig und sinusförmig moduliert.

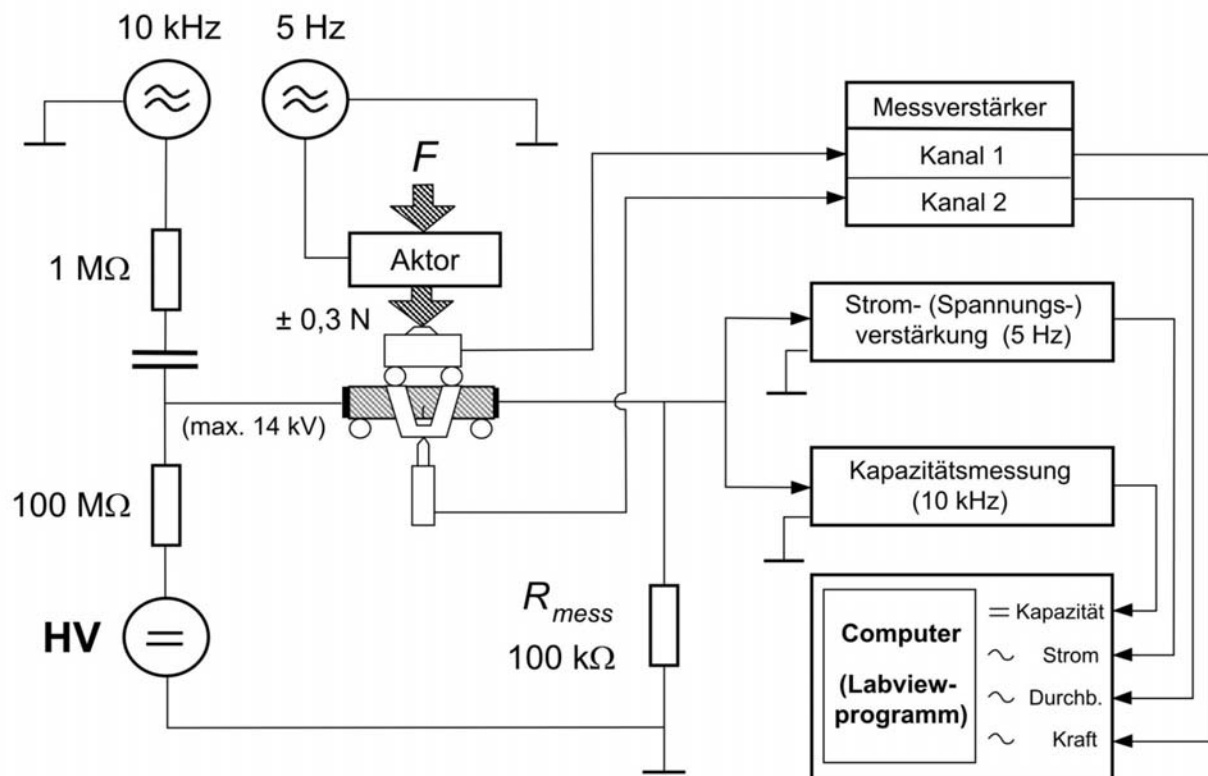


**Abbildung 1:** Mechanischer Aufbau. Die Parallelführung des oberen Auflagers wird so justiert, dass die beiden beweglichen Halterungen bei Rollenkontakt mit der Probe genau waagrecht stehen.

Ursprünglich sollten die entsprechend modulierten Signale von Kraft, Durchbiegung und elektrischer Ladung mit Hilfe von externen Lock-in-Verstärkern aufgenommen werden. Dann erwies sich jedoch die Implementierung dieses Lock-in-Prinzips in das Datenaufnahmeprogramm, das in LabView programmiert wurde, als weniger aufwendig und wesentlich effektiver. Hierbei werden die mit 5 Hz modulierten Messdaten über AD-Wandler in den Computer eingelesen und im Programm die Amplituden von Kraft, Durchbiegung und Strom durch Anpassung von Sinuskurven bestimmt. Aus den Gleichungen in (2) ergeben sich dann  $C_m$  und  $C_p$ .

Im Gegensatz dazu wird die Kapazität  $C_e$  über eine schwache Modulation der Hochspannung (10 kHz, 1,5 V Amplitude) direkt elektronisch ermittelt. Die 10 kHz-Variation des Stroms wird elektronisch gleichgerichtet, verstärkt, gefiltert und daraus nach entsprechender Kalibrierung ein Gleichspannungssignal als Maß für die Kapazität der Probe direkt in den Computer eingelesen. Das Blockschaltbild in Abbildung 2 verdeutlicht den elektronischen und mechanischen Aufbau.

Es sei erwähnt, dass die Entwicklung der Elektronik, basierend auf Operationsverstärkern, eine Herausforderung war. Winzige Änderungen der Ladung auf der Probe von weniger als 1 pC, sowie Kapazitätsänderungen in der Größe von 0,02 pF wurden unter Hochspannung von bis zu 14 kV gemessen. Die Ladungsbestimmung erfolgte durch analytische Integration des Stromsignals. Verständlicherweise benötigt die Elektronik einen gewissen Schutz vor elektrischen Überschlägen.



**Abbildung 2:** Schematischer Aufbau der Elektronik. Die Kapazität  $C_e$  wird direkt auf elektronischem Wege über eine geringfügige 10 kHz-Modulation der Hochspannung gemessen. Die Bestimmung von  $C_m$  und  $C_p$  erfolgt durch Einlesen der mit 5 Hz modulierten Strom-, Durchbiegungs- und Kraftsignale und anschließender Datenaufbereitung während der Messung.

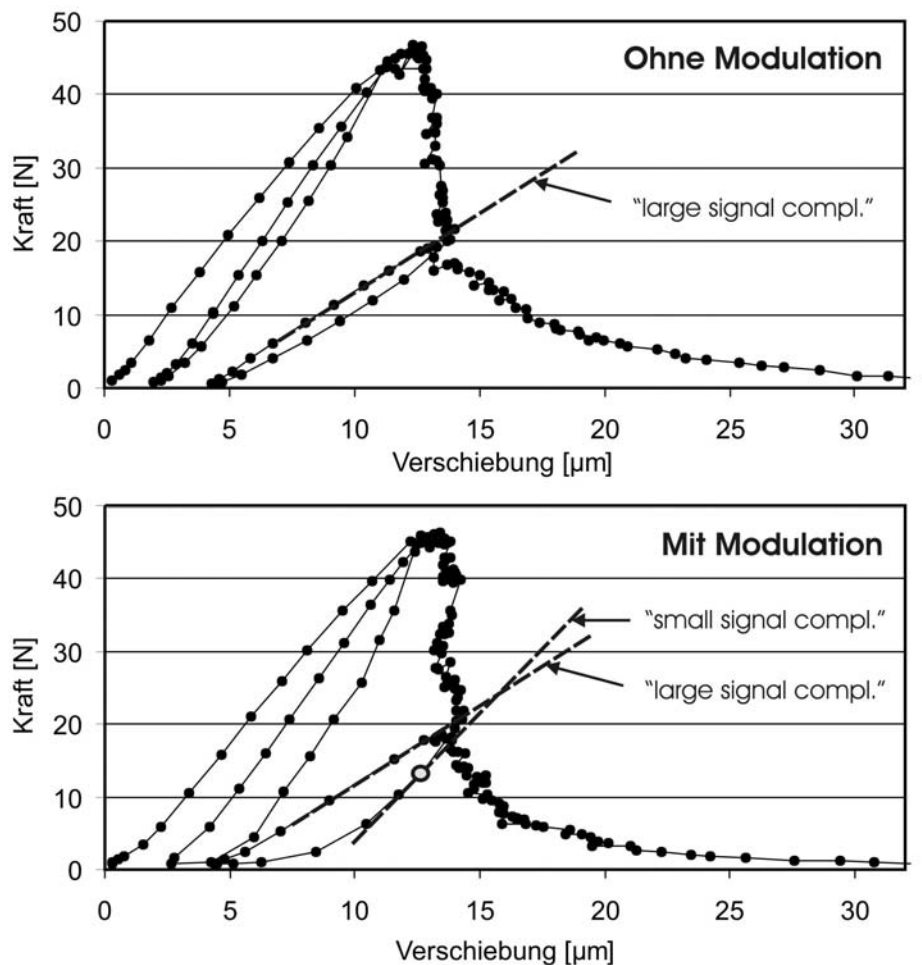
Insgesamt können für jede Risslänge  $a$  folgende Parameter simultan gemessen werden:  $F$ ,  $dF$ ,  $\Delta$ ,  $d\Delta$ ,  $dQ$  (5 Hz),  $a$  sowie  $V$ ,  $dV$  (10 kHz) und  $dQ^*$  (10 kHz). Aus  $dF$ ,  $d\Delta$  und  $dQ$  werden  $C_m$  und  $C_p$  während der Messung im Programm ermittelt, während aus  $dV$  und  $dQ^*$  die Kapazität  $C_e$  elektronisch bestimmt wird. Von letzteren Größen wird nur die Kapazität in den Computer eingelesen.

Aus den Ableitungen von  $C_m$ ,  $C_p$  und  $C_e$  nach der Risslänge bzw. der Rissfläche folgt die totale Energiefreisetzungsrate  $G_{tot}$ . Zusätzlich lässt sich die Bruchzähigkeit  $K_{IC}$  mit Hilfe der Kraft, der Risslänge und der elektrischen Spannung unter Berücksichtigung der piezoelektrischen Kopplung berechnen [9]. Eine Auswertung des Kraft-Verschiebungs-Diagramms erlaubt eine Bestimmung der insgesamt umgesetzten Energie und damit eine Abschätzung eines eventuell vorhandenen inelastischen Anteils, der z. B. durch Dissipationsprozesse an der Riss Spitze entsteht.

## Datenauswertung und Korrekturen

Je nach Art der Messung und des Probenmaterials müssen unterschiedliche physikalische Aspekte beachtet bzw. korrigiert werden:

1. Der Quarzsensord, der aufgrund seiner hohen Steifigkeit verwendet wird, weist eine elektronische Drift auf. Diese wird nach der Messung linear korrigiert.
2. Bei der Verwendung von PZT, welches bei Be- und Entlastung einen Hystereseeffekt zeigt, besteht ein Unterschied zwischen der Kleinsignal-Compliance  $C_{ms}$  (Messung mit 5 Hz-Modulation) und der Großsignal-Compliance  $C_{ml}$  (Messung durch komplette Entlastung der Probe, vgl. Abb. 3). Die Umrechnung von  $C_{ms}$  nach  $C_{ml}$  erfolgt mit einer quadratischen Funktion.
3. Die Apparatur selbst besitzt eine Compliance, bestehend aus einem Anteil in Reihenordnung und einem parallel zur Probe. Ersterer ist aufgrund der Rollenaufleger kraftabhängig. Beide Anteile werden bei der Auswertung berücksichtigt.
4. Ein Kraft-Offset muss berücksichtigt werden, da ein Teil des oberen Auflagers ständig auf der Probe lastet und der daraus resultierende Kraftanteil nicht mitgemessen wird. Außerdem erhöht der Wegaufnehmer durch den Andruck auf die oberen Auflager den gemessenen Kraftwert ein wenig.
5. Ggf. müssen inelastische Anteile in der Energiebilanz berücksichtigt werden.
6. Korrektur von  $C_e$ : In Gleichung (1) wird die Kapazität für konstante Kraft benötigt, während sie im Experiment bei konstanter Verschiebung gemessen wird. Die Korrektur ist auf der Basis konstitutiver Gleichungen exakt durchführbar.
7. Wenn man mit dem Riss nahezu die Rückseite der Probe erreicht, was experimentell möglich ist, kann es sein, dass die Bruchzähigkeit, die im Plateau der R-Kurve weitgehend konstant sein sollte, gegen Ende plötzlich steil ansteigt oder abfällt. Dies kann daran liegen, dass die aufsummierten Rissverlängerungen zum Schluss nicht genau die gemessene Probentiefe bzw. -höhe erreichen. Durch lineare Korrektur der gemessenen Risslängen, lässt sich dies beheben. In den meisten Fällen interessieren jedoch die extrem langen Risslängen nicht.



**Abbildung 3:** Kraft-Verschiebungs-Kurven für zwei verschiedene PZT-Biegestäbchen ohne und mit 5 Hz-Modulation. Jeweils zweimal wird vollständig entlastet. Es ist der Unterschied zwischen den Steigungen zu erkennen, die zur Großsignal- und zur Kleinsignal-Compliance gehören. Für ein rein elastisches Material wären beide Nachgiebigkeiten identisch. Die Großsignal-Compliance ist ohne und mit 5 Hz-Modulation etwa gleich groß. Die Tatsache, dass bei vollständiger Entlastung der Probe nicht der Koordinatenursprung erreicht wird, deutet auf inelastische Phänomene hin.

Diese Aspekte und Korrekturen werden detailliert und auch quantitativ behandelt werden [1].

### Experimente und einige Ergebnisse

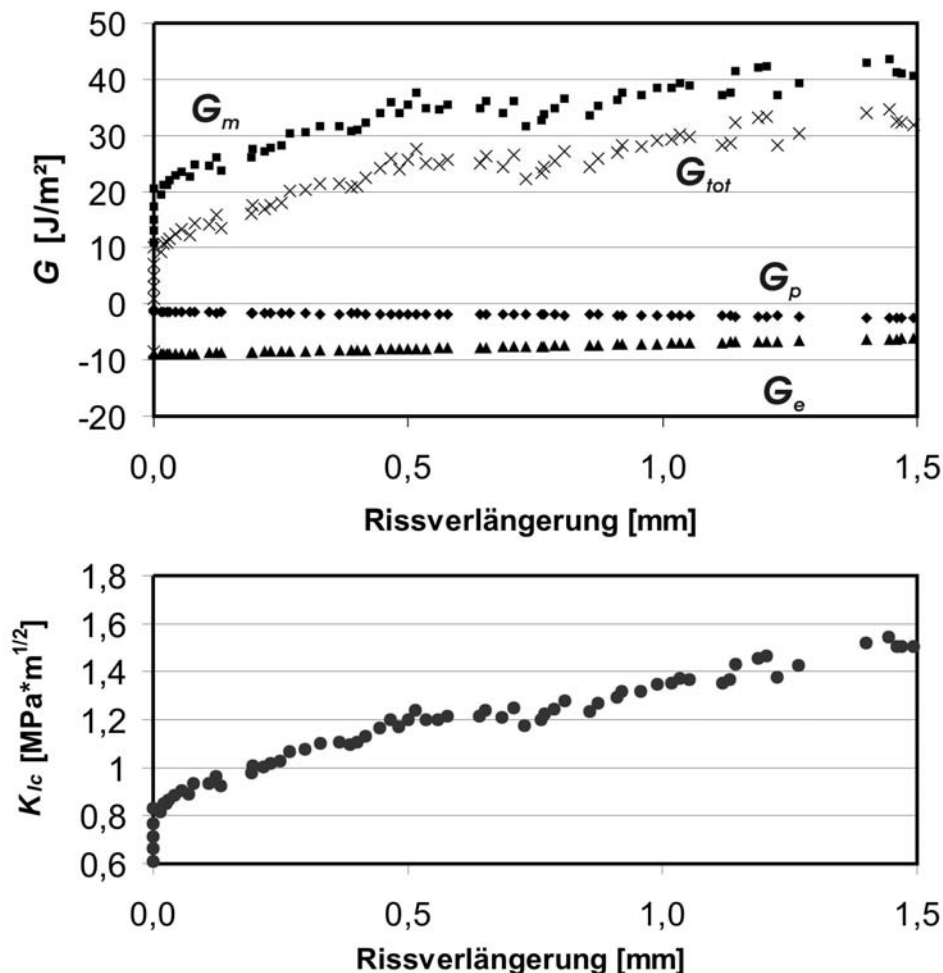
Bisher wurden folgende Experimente mit kontrolliertem Risswachstum durchgeführt:

1. Messungen an PZT (PIC 151) mit nichtleitendem Riss [1]. Ein Ergebnis ist, dass der Riss für elektrische Felder teildurchlässig ist, wobei die Tendenz mehr zum durchlässigen als zum undurchlässigen Riss geht. Dies wurde bereits zuvor bei rastersondenmikroskopischen Untersuchungen beobachtet [10].
2. Messungen an PZT (PIC 151) mit leitendem Riss [3]. Während bei nichtleitenden Rissen in PZT ein schwacher aber signifikanter Einfluss des elektrischen Feldes auf die Bruchzähigkeit besteht, ist im Fall des leitenden Risses der Einfluss des

Feldes relativ stark. Bei niedrigen Feldstärken scheinen positive elektrische Felder die Bruchzähigkeit zu erhöhen und negative Felder sie zu erniedrigen, wobei im letzteren Fall der Riss rein elektrisch getrieben werden kann.

3. Risswachstum in Metall-Keramik-Grenzflächen an den inneren Elektroden von Vielschichtaktoren [2, 4]. Zwei unterschiedliche Aktor-Typen wurden verwendet. Die Ergebnisse besagen unter anderem, dass der Riss in der Grenzfläche für elektrische Felder eher durchlässig als undurchlässig ist. Bei einem der Aktor-Typen ist die Bruchzähigkeit in der Elektrodengrenzfläche nur etwa halb so groß wie im PZT-Bulkmaterial. In diesem Fall ist kein inelastischer Anteil der Energiefreisetzung feststellbar, d. h. die Voraussetzungen der linear-elastischen Bruchmechanik sind mit sehr guter Näherung erfüllt (Modellierung in [4, 5]).

Abbildung 4 zeigt beispielhaft Energiefreisetzungsraten und eine R-Kurve für den Fall des nichtleitenden Risses in PZT. Die drei Anteile der totalen Energiefreisetzungsrates auf der rechten Seite von Gleichung (1) sind in dem Diagramm einzeln gegeben und ebenfalls deren Summe  $G_{tot}$ .



**Abbildung 4:** Oben: Energiefreisetzungsraten als Funktion der Rissverlängerung für ein PZT-Biegestäbchen mit nichtleitendem Riss bei einer elektrischen Last von 375 V/mm.  $G_e$ ,  $G_m$  und  $G_p$  repräsentieren die drei Summanden auf der rechten Seite von Gleichung (1) und ergeben addiert  $G_{tot}$ . Unten: Zugehörige R-Kurve, berechnet unter Berücksichtigung der piezoelektrischen Kopplung [9].

Die Ergebnisse werden ausführlich in separaten Veröffentlichungen präsentiert werden [1–5]. Die gegebene starre 4-Punkt-Biege-Apparatur wurde weiterentwickelt und ist inzwischen kommerziell erhältlich (EXAKT Vertriebs GmbH, Norderstedt).

## Schlussfolgerungen

Der beschriebene experimentelle Aufbau mit der realisierten Kleinsignal-Compliance-Methode ermöglicht, mit kontrolliertem Risswachstum in Piezo- und Ferroelektrika die unterschiedlichen Anteile der totalen Energiefreisetzungsrate vollständig zu erfassen. Dabei kommt insbesondere der Datenaufbereitung mit den erforderlichen Korrekturen eine besondere Bedeutung zu. Verschiedene Experimente wurden bereits erfolgreich durchgeführt.

## Danksagung

Herrn Christoph Häusler sind wir zu Dank verpflichtet für wertvolle Hinweise zur Datenauswertung. Ebenfalls danken wir der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die Förderung im Rahmen des Projektes "Rissausbreitung in Grenzflächen zwischen Piezokeramiken und Metallelektroden bei elektromechanischer Belastung: Experiment und Modellierung".

## Literatur

- [1] Jelitto, H., Felten, F., Swain, M., and Schneider, G. A.: Measurement of the total energy release rate for cracks in PZT under combined mechanical and electrical loading, submitted to J. Appl. Mech.
- [2] Jelitto, H., Häusler, D., Balke, H., and Schneider, G. A.: Interfacial fracture of piezoelectric multilayer actuators under electromechanical loading – Part I: Experiment, in preparation
- [3] Gehrig, F.: Bruchmechanische Untersuchung am leitenden Riss in PZT, Diplomarbeit, Technische Universität Hamburg-Harburg (2004), eine weitere Veröffentlichung in Vorbereitung
- [4] Häusler, C., Jelitto, H., Schneider, G. A., and Balke, H.: Interfacial fracture of piezoelectric multilayer actuators under electromechanical loading – Part II: Modelling, in preparation
- [5] Häusler, C., Jelitto, H., Balke, H., and Schneider, G. A.: Zur Bestimmung bruchmechanischer Kennwerte am Piezo-Aktor, Proceedings 37. Tagung des DVM-Arbeitskreises Bruchvorgänge, Technische Universität Hamburg-Harburg, 22./23. Febr. 2005
- [6] Suo, Z.: Mechanics concepts for failure in ferroelectric ceramics, Smart structures and materials, ASME 1991, AD-Vol. **24**/AMD-Vol. **123**, pp. 1 – 6
- [7] ASTM C1161-90, Philadelphia, USA
- [8] Fett, T., Munz, D., Thun, G., and Bahr, H.-A.: Evaluation of bridging parameters in aluminas from R-curves by use of the fracture mechanical weight function, J. Am. Ceram. Soc. **78** (4) (1995) pp. 949 – 951
- [9] Jelitto, H., Keßler, H., Schneider, G. A., and Balke, H.: Fracture behavior of poled piezoelectric PZT under mechanical and electrical loads, J. Europ. Ceram. Soc., accepted for publication
- [10] Schneider, G. A., Felten, F., and McMeeking, R. M.: The electrical potential difference across cracks in PZT measured by Kelvin Probe Microscopy and the implications for fracture, Acta mater. **51** (2003) pp. 2235 – 2241