

Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energie- und Klimaforschung
Elektrochemische Verfahrenstechnik (IEK-3)

Einfluss fehlpassungsinduzierter Spannungsfelder auf den Transportprozess bei ionischer Leitfähigkeit

Johannes Keppner

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 335

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-95806-171-2

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Literaturübersicht	3
2.1	Schichtdickenabhängige Messungen der Grenzflächeneinflüsse auf die ionische Leitfähigkeit	5
2.1.1	Leitfähigkeitsänderung in Einzelschichten	6
2.1.2	Leitfähigkeitsänderung in Multischichten	9
2.2	Fazit	12
2.3	Motivation der vorliegenden Arbeit	14
3	Theoretische Überlegungen	15
3.1	Ionen transport in Festkörpern - Yttriumstabilisiertes Zirkoniumdioxid	15
3.1.1	Eigenschaften von Zirkoniumdioxid ZrO_2	15
3.1.2	Eigenschaften von Yttriumstabilisiertem Zirkoniumdioxid YSZ	16
3.1.3	Ionische Transportprozesse: Leitfähigkeit und Diffusion	18
3.2	Beschreibung von Grenzflächen zwischen Festkörpern	20
3.2.1	Beschreibung von Korngrenzen	20
3.2.2	Beschreibung heteroepitaktischer Grenzflächen	23
3.3	Modelle zur Beschreibung der ionischen Leitfähigkeit und Diffusion in Grenzflächen	28
3.3.1	Beschreibung von Raumladungszonen	29
3.3.2	Beschreibung der Leitfähigkeit in Korngrenzen und Versetzungen	31
3.4	Modell zur Beschreibung der ionischen Leitfähigkeit als Funktion der Grenzflächen- spannung	33
3.4.1	Beschreibung der Spannung und Dehnung in kolumnaren Dünnschichten	33
3.4.2	Beschreibung der ionischen Leitfähigkeit als Funktion der Grenzflächen- spannung	37
3.4.3	Bestimmung der Grenzflächenausdehnung mittels Röntgendiffraktometrie	40
3.5	Modellsystem zur Bestimmung des Einflusses von Spannungsfeldern auf die Grenz- flächenleitung	42

4	Verwendete Methoden	45
4.1	Die Gepulste Laser Deposition PLD zur Herstellung orientierter Multischichten . . .	45
4.1.1	Beschreibung der Nukleation und des Wachstums dünner Schichten	47
4.1.2	Beschreibung des Wachstums dicker Schichten	47
4.1.3	Vor- und Nachteile der PLD	48
4.2	Strukturuntersuchungen mittels Röntgendiffraktometrie XRD	49
4.2.1	Beschreibung der Bragg-Brentano-Geometrie	50
4.2.2	Bestimmung der Textur einer Probe	50
4.3	Strukturuntersuchungen mittels Elektronenmikroskopie	52
4.3.1	Beschreibung der Rasterelektronenmikroskopie REM	52
4.3.2	Beschreibung der Transmissionselektronenmikroskopie TEM	53
4.4	Messung der ionischen Leitfähigkeit mittels elektrochemischer Impedanzspektroskopie EIS	55
5	Experimentelle Arbeiten	58
5.1	Präparation der Targets für die PLD	58
5.2	Präparation der Multischichten per PLD	58
5.3	Bestimmung der Schichtdicke der Einzellagen im REM	59
5.4	Bestimmung der Struktur und Textur der Multischichten mittels Röntgenbeugung .	61
5.5	Bestimmung der ionischen Leitfähigkeit mittels Elektrochemischer Impedanzspektroskopie	61
6	Strukturuntersuchungen der SE_2O_3/YSZ-Multischichten	63
6.1	Strukturuntersuchung der Proben aus der Abscheidung bei hoher Substrattemperatur und Laserenergie	63
6.1.1	Struktur der Y_2O_3 /YSZ-Multischichten	64
6.1.2	Struktur der Er_2O_3 /YSZ-Multischichten	67
6.2	Strukturuntersuchung der Proben aus der Abscheidung bei niedriger Substrattemperatur und Laserenergie	69
6.2.1	Struktur der Sc_2O_3 /YSZ-Multischichten	69
6.2.2	Struktur der Er_2O_3 /YSZ-Multischichten	72
6.2.3	Struktur der Dy_2O_3 /YSZ-Multischichten	74
6.3	Texturcharakterisierung der SE_2O_3 /YSZ-Multischichten	77
6.3.1	Textur der Proben aus der Abscheidung bei hoher Substrattemperatur und Laserenergie	77
6.3.2	Textur der Proben aus der Abscheidung bei niedriger Substrattemperatur und Laserenergie	80
6.4	Diskussion der Ergebnisse der Struktur- und Texturuntersuchungen	82
6.4.1	Diskussion der Textur	82
6.4.2	Diskussion der Halbwertsbreiten	86
6.4.3	Bestimmung der Grenzflächenausdehnung der SE_2O_3 /YSZ-Multischichten	86

6.5	Vergleich der Ergebnisse	93
6.6	Zusammenfassung	96
7	Leitfähigkeitsuntersuchungen der $\text{SE}_2\text{O}_3/\text{YSZ}$ - Multischichten	99
7.1	Leitfähigkeitsmessungen an Multischichten aus der Abscheidung bei hoher Substrattemperatur und Laserenergie	99
7.1.1	Schichtdickenverteilung in Multischichten aus der Abscheidung bei hoher Substrattemperatur und Laserenergie	100
7.1.2	Leitfähigkeit von $\text{Er}_2\text{O}_3/\text{YSZ}$ -Multischichten mit Y_2O_3 -Epitaxievermittler	100
7.1.3	Leitfähigkeit von $\text{Er}_2\text{O}_3/\text{YSZ}$ -Multischichten ohne Epitaxievermittler	107
7.2	Leitfähigkeitsmessungen an Multischichten aus der Abscheidung bei niedriger Substrattemperatur und Laserenergie	111
7.2.1	Leitfähigkeit von $\text{Sc}_2\text{O}_3/\text{YSZ}$ -Multischichten	112
7.2.2	Leitfähigkeit von $\text{Er}_2\text{O}_3/\text{YSZ}$ -Multischichten	116
7.2.3	Leitfähigkeit von $\text{Dy}_2\text{O}_3/\text{YSZ}$ -Multischichten	118
7.3	Fehlerbetrachtung der Leitfähigkeitsmessungen	120
7.4	Diskussion der Ergebnisse	121
7.4.1	Zuordnung der einzelnen Prozesse im Impedanzspektrum	121
7.4.2	Leitfähigkeitsänderung als Funktion der Schichtdicke in Proben aus der Abscheidung bei hoher Substrattemperatur und Laserenergie	123
7.4.3	Leitfähigkeitsänderung als Funktion der Schichtdicke in Proben aus der Abscheidung bei niedriger Substrattemperatur und Laserenergie	128
7.4.4	Diskussion des Korngrenzeinflusses auf die Leitfähigkeit	130
7.4.5	Diskussion der Aktivierungsenergie als Funktion der Schichtdicke	131
7.4.6	Vergleich der Ergebnisse	132
7.5	Zusammenfassung der Ergebnisse der Leitfähigkeitsmessungen	134
8	Diskussion und Vergleich der Ergebnisse	136
8.1	Bestimmung der Grenzflächenausdehnung	136
8.2	Vergleich des Einflusses des Kristallitdurchmessers auf Messgrößen	139
8.3	Diskussion weiterer Einflussgrößen auf das Mechanisches Spannungsmodell	141
8.4	Zusammenfassung	143
9	Zusammenfassung	144
	Abbildungsverzeichnis	149
	Tabellenverzeichnis	157
	Literaturverzeichnis	159

**Energie & Umwelt /
Energy & Environment
Band / Volume 335
ISBN 978-3-95806-171-2**

