

압전재료의 비선형 전기-기계적 거동: 구성방정식과 전산모사

Nonlinear electromechanical behavior of piezoelectric materials: constitutive equations and numerical simulation

김 상 주*
Kim, Sang-Joo

ABSTRACT

Piezoelectric solids such as PZT and PLZT have been widely used as sensors or actuators for various smart structural systems. The main problem occurring in the applications is that a larger and larger actuation force is required to maximize the function of the system. This naturally leads to local concentrations of electric or stress fields near crack tips or geometric irregularities and thereby results in a nonlinear behavior of the system. Hence, it becomes more important to predict the nonlinear behavior of piezoelectric solids. In this paper we investigate the micro-mechanism of nonlinear behavior in piezoelectric materials and propose constitutive equations. The calculation results obtained from an associated finite element program are shown to be qualitatively consistent with experiments.

1. 서 론

PZT나 PLZT 같은 압전체는 여러 가지 유형의 작동기나 감지기의 핵심소재로 이용되고 있다. 압전체를 작동기에 응용하는데 있어서의 문제점은 압전체를 이용한 작동기가 상대적으로 작은 작동력을 내고 있다는 점이다. 충분히 큰 작동변위를 내기 위해서 작동기에 과도한 전계를 인가할 때 또는 균열이 존재하거나 구조적인 불연속성이 존재할 때 압전체 내부에는 전기장이나 응력이 일정부위에 과도하게 집중된다. 그 결과 그 부분에서 재료가 비선형적으로 거동하게 되며 압전체의 재료성질이 변하게 되어 초기에 예측한 대로 작동기가 작동하지 않을 수도 있다.

전기-기계적으로 연성이 된 압전 세라믹의 경우 어떤 임계값 이상의 전기적 또는 기계적 하중이 작용할 때 기계적 변형이 과도하게 발생하면서 전기적으로는 분극의 방향이 바뀌는 특성을 보이는데 이를 분극반전(polarization switching)이라고 한다. 분극반전이 가능한 압전체를 특히 강유전체(ferroelectrics)라고 부른다. PZT, PLZT 등 최근 관심의 대상이 되는 강유전 세라믹의 경우 상온에서의 격자 구조는 정방형이다. 정방형 격자에서는 중앙에 있는 양의 전하를 띠는 이온은 외부에서 전기적 또는 기계적 하중이 작용하지 않을 경우 동일한 에너지 상태에 대응하는 6개의 서로 다른 위치에 놓일 수 있다. 즉 외부 자극이 없을 경우 6개의 서로 다른 분극 방

* 정회원 · 서울시립대학교 기계정보공학과, 교수

향을 가질 수 있다. 외부 자극이 있을 경우 6개의 분극 방향 중에서 가장 낮은 에너지 상태에 대응하는 분극 방향을 가지도록 양이온이 이동하게 되며 그 결과 단일격자에서의 분극반전이 발생하게 된다. 강유전 정방형 격자에 전기적 또는 기계적 하중이 작용하여 분극이 변하게 되는 과정을 Fig. 1에 간략하게 보였다.

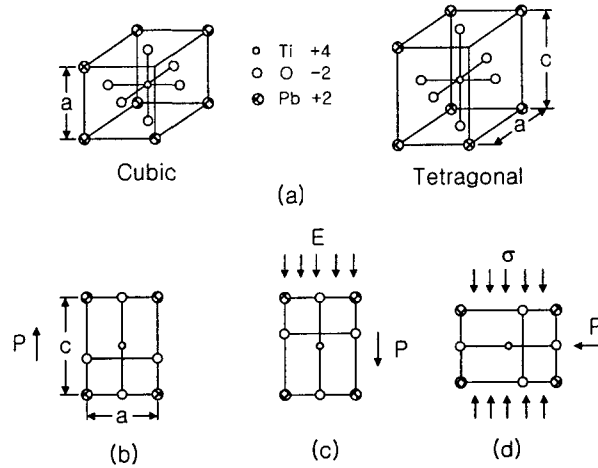


Fig. 1. Schematic diagram for polarization switching.

다결정 세라믹의 경우 각 결정립(grain)의 결정축의 방향은 서로 다르며 한 결정립 내에는 일반적으로 6개의 서로 다른 방향의 분극이 존재한다. 결정립 내에서 동일한 분극 방향을 가지는 미세한 영역을 분역(domain)이라고 하며 이러한 6개의 서로 다른 분극방향을 가지는 분역들이

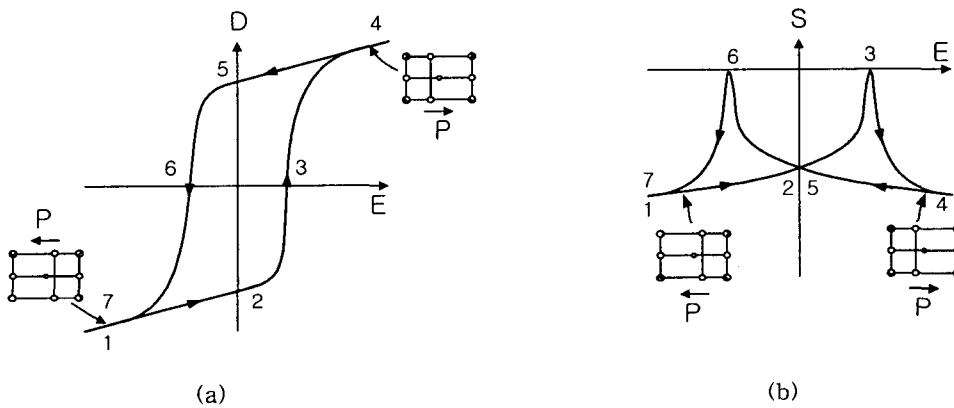


Fig. 2. Schematic (a) electric field-electric displacement and (b) electric field-transverse strain responses.

모여서 그 결정립 내부에 미세한 분역구조를 형성한다. 외부에서 전기적 또는 기계적 하중이 작용할 때 결정립 내의 분역구조는 분역들의 상대적인 질량비를 변화시키는 방식으로 가장 낮은 에너지 상태에 대응하는 구조로 변하게 되며 거시적으로는 실험에서 관찰되는 전계-전기변위 이력 선도가 형성된다[1]. 전형적인 전계-전기변위 이력선도와 전계-변형률 선도가 Fig. 2에 보여져 있다.

최근 다결정 세라믹에서의 분극반전에 대한 구성방정식과 유한요소 모델링이 다양하게 시도되었다[2,3,4,5]. 본 논문에서는 먼저 다결정 세라믹을 구성하는 각 결정립에 존재하는 분역의 특성을 결정하는 자유 에너지 함수를 도입한다. 도입된 에너지 함수로부터 해당 분역에 대한 전계, 분극밀도, 응력, 변형률 사이의 관계식을 구할 수 있다. 미세한 분역들로 이루어진 거시적 연속체 질점(macroscopic continuum particle)을 도입하고 연속체 질점의 특성을 질점을 구성하는 분역들이 질점과 동일한 전계와 응력을 받는다는 가정으로부터 결정한다. 각 분역에 대한 Gibbs 자유 에너지를 구한 후 새로운 분역이 생성되어 분극반전이 시작하는 조건식과 분극이 반전되는 속도를 결정하는 속도식을 제시한다. 주어진 구성방정식을 기반으로 유한요소 프로그램을 개발한 후 2차원 강유전체에 적용하여 모델의 응답을 구한다.

2. 구성 방정식

2-1 자유 에너지 함수

결정립을 구성하는 각 분역의 특성이 다음과 같은 자유 에너지 함수에 의해서 결정된다고 가정한다. i 번째 분역에 대한 자유 에너지 함수는

$$\rho\psi_i(\mathbf{D}_i, \mathbf{S}_i) = \frac{1}{2} \chi_i^S (\mathbf{D}_i - \mathbf{D}_i^S) \cdot (\mathbf{D}_i - \mathbf{D}_i^S) + \frac{1}{2} \mathcal{C}_i^P (\mathbf{S}_i - \mathbf{S}_i^S) \cdot (\mathbf{S}_i - \mathbf{S}_i^S) + \mathbf{H}_i^T (\mathbf{D}_i - \mathbf{D}_i^S) \cdot (\mathbf{S}_i - \mathbf{S}_i^S) \quad (1)$$

이다. 여기서 χ_i^S 는 일정한 변형률에서의 역유전감수율 텐서 (inverse dielectric susceptibility tensor)를, \mathcal{C}_i^P 는 분극밀도가 일정할 때 탄성 강성 텐서(elastic stiffness tensor)를, \mathbf{H}_i 는 압전 텐서(piezoelectric tensor)를 나타낸다. 또 \mathbf{D}_i^S 와 \mathbf{S}_i^S 는 각각 자발 분극벡터(spontaneous polarization vector)와 자발 변형률 텐서(spontaneous strain tensor)를 나타낸다. 위 첨자 T 는 전치 텐서(transpose tensor)를, 아래 첨자 i 는 i 번째 분역을 나타내며 문자 밑의 막대 표시는 그 문자가 텐서 또는 벡터임을 뜻한다.

전계강도 \mathbf{E}_i 와 응력 \mathbf{T}_i 는 자유에너지 함수 ψ_i 에 $\mathbf{E}_i = \rho(\partial\psi_i/\partial\mathbf{D}_i)$ 와 $\mathbf{T}_i = \rho(\partial\psi_i/\partial\mathbf{S}_i)$ 를 적용하여 구할 수 있다. 즉

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_i &= \chi_i^S (\mathbf{D}_i - \mathbf{D}_i^S) + \mathbf{H}_i (\mathbf{S}_i - \mathbf{S}_i^S), \\ \mathbf{T}_i &= \mathcal{C}_i^P (\mathbf{S}_i - \mathbf{S}_i^S) + \mathbf{H}_i^T (\mathbf{D}_i - \mathbf{D}_i^S). \end{aligned} \quad (2)$$

유한요소 정식화를 수행하기 위해서 전기변위 \mathbf{D}_i 와 응력 \mathbf{T}_i 를 전계강도 \mathbf{E}_i 와 변형률 \mathbf{S}_i 로 표현할 필요가 있다.

$$\begin{aligned} \mathbf{D}_i &= \boldsymbol{\epsilon}_i^S \mathbf{E}_i + \boldsymbol{\epsilon}_i (\mathbf{S}_i - \mathbf{S}_i^S) + \mathbf{D}_i^S, \\ \mathbf{T}_i &= \mathcal{C}_i^E (\mathbf{S}_i - \mathbf{S}_i^S) - \boldsymbol{\epsilon}_i^T \mathbf{E}_i. \end{aligned} \quad (3)$$

여기서 ϵ_i^s 는 변형률이 일정할 때 유전율 텐서(permittivity tensor)를, e_i 는 압전 텐서(piezoelectric tensor)를, ϵ_i^E 는 전계가 일정할 때 탄성강성 텐서를 나타낸다.

분극반전은 높은 에너지 상태에 있는 분역이 주어진 에너지 장벽을 극복하여 낮은 에너지 상태의 분역으로 전환하는 과정이라고 볼 수 있다. 따라서 i 번째 분역에 대한 단위 부피 당 Gibbs 자유에너지 g_i 를 도입한다.

$$g_i(\mathcal{D}_i, \mathcal{S}_i) = \rho \psi_i(\mathcal{D}_i, \mathcal{S}_i) - \mathbf{E}_i \cdot \mathcal{D}_i - \mathcal{T}_i \cdot \mathcal{S}_i. \quad (4)$$

$$g_i(\mathbf{E}_i, \mathcal{T}_i) = -\frac{1}{2} \mathcal{D}_i^T \mathbf{E}_i \cdot \mathbf{E}_i - \frac{1}{2} \mathcal{S}_i^E \mathcal{T}_i \cdot \mathcal{T}_i - \mathcal{D}_i^T \mathbf{E}_i \cdot \mathcal{T}_i - \mathbf{E}_i \cdot \mathcal{D}_i^s - \mathcal{T}_i \cdot \mathcal{S}_i^s \quad (5)$$

2-2 미세역학 (Micromechanics)

한 결정립에는 일반적으로 다수의 분역들이 존재하여 복잡한 분역구조를 형성하고 있으며 외부에서 작용하는 자극에 따라 분역구조가 변화하게 된다. 외부자극의 변화에 따른 분역구조의 변화를 세밀하게 모델링 하기는 어려우며 그 대안으로 분역보다는 크지만 결정립보다는 작은 연속체 질점(continuum particle)을 도입한다. 일반적으로 정방형 강유전체에서 한 연속체 질점은 6개의 서로 다른 분역들로 이루어져 있으며 질점을 구성하는 분역들의 질량비는 항상 (6)을 만족하여야 한다.

$$0 \leq m_i \leq 1, \quad \sum_{i=1}^6 m_i = 1. \quad (6)$$

여기서 m_i 는 i 번째 분역의 질량비를 나타낸다. 연속체 질점을 구성하는 각 분역들은 (2) 또는 (3)에 주어진 바와 같이 선형거동을 한다. 그러나 과도한 외부하중이 작용할 경우 분극이 반전되어 분역들의 질량비가 변하게 되며 그 결과 연속체 질점은 외부 하중에 대하여 비선형적으로 거동하게 된다. 구성 분역들의 성질로부터 연속체 질점의 거동특성을 결정하는 방법으로 다양한 미세역학적 방법이 제안되었다. 본 논문에서는 질점에 작용하는 전계와 응력이 그 질점을 구성하는 분역들에 동일하게 작용한다고 가정하여 질점의 특성을 구하기로 한다[2,3,9]. 즉

$$\mathbf{E}_i = \mathbf{E}, \quad \mathcal{T}_i = \mathcal{T}. \quad (7)$$

여기서 \mathbf{E}_i , \mathcal{T}_i 는 질점을 구성하는 i 번째 분역에 작용하는 전계강도와 응력이며, \mathbf{E} 와 \mathcal{T} 는 질점에 작용하는 평균 전계와 평균 응력이다. 질점의 평균 자유에너지 ψ , 평균 분극밀도 \mathcal{D} , 평균 변형률 \mathcal{S} 는 다음과 같이 주어진다.

$$\psi = \sum_{i=1}^6 m_i \psi_i, \quad \mathcal{D} = \sum_{i=1}^6 m_i \mathcal{D}_i, \quad \mathcal{S} = \sum_{i=1}^6 m_i \mathcal{S}_i. \quad (8)$$

결정립 내부의 분역구조를 연속체로 이상화 한 후에는 그 연속체에 적용될 기본 방정식으로서 쿨롱의 법칙(Coulomb's law)과 기계적 힘의 평형이 다음과 같이 주어진다.

$$\text{div } \underline{D} = 0, \quad \text{div } \underline{T} = \underline{\Omega}. \quad (9)$$

여기서 \underline{D} 는 평균 전기변위벡터를, \underline{T} 는 평균 응력텐서를 나타낸다. 결정립간 또는 유한요소간 경계에서는 전기변위와 응력이 다음과 같은 연속조건식을 만족하여야 한다.

$$(D^+ - D^-) \cdot \mathbf{n} = 0, \quad (T^+ - T^-) \mathbf{n} = \Omega. \quad (10)$$

여기서 \mathbf{n} 은 경계면에 수직한 벡터이며 $(\cdot)^+$ 는 벡터 \mathbf{n} 이 지시하는 쪽에서 경계면으로 다가갈 때 해당 물리량의 극한값을 뜻하며 유사하게 $(\cdot)^-$ 는 그 반대쪽에서 경계면으로 접근할 때 그 물리량의 극한값을 나타낸다. 평균 전기장도 E 는 전기 퍼텐셜 함수 ϕ 로부터 다음과 같이 구할 수 있다.

$$E = -grad \phi. \quad (11)$$

전기 퍼텐셜은 결정립이나 요소의 경계면에서 연속적이어야 한다. 즉

$$\phi^+ - \phi^- = 0. \quad (12)$$

2.3 분극반전 조건식과 속도식

지금까지 다결정 세라믹의 결정립을 구성하는 분역들의 거동을 결정하는 구성방정식으로서 자유 에너지 함수를 도입하였다. 또 결정립에서의 분극반전 거동을 효과적으로 모사하기 위하여 복잡한 분역구조를 연속체로 이상화하고 분역들로 이루어진 거시적 연속체 질점을 도입하였다. 이제 연속체로 이상화된 결정립에서의 분극반전 거동에 대한 구성방정식이 필요하다. 먼저 i 번째 분역의 Gibbs 에너지 g_i 와 j 번째 분역의 Gibbs 에너지 g_j 의 차이를 f_{ij} 라고 하면 드라이빙력 f_{ij} 는

$$f_{ij} = g_i - g_j \quad (13)$$

로 주어진다. 열역학 2 법칙이 본 모델에 적용될 경우 다음과 같은 식으로 표현된다는 것을 보일 수 있다.

$$f_{ij} \cdot \dot{m}_{ij} \geq 0. \quad (14)$$

여기서 \dot{m}_{ij} 는 $i \rightarrow j$ 분극반전에서 j 번째 분역의 질량의 증가율을 나타낸다. 그러므로 열역학 2 법칙으로부터 g_i 가 g_j 보다 클 때 두 분역 사이에 분극반전이 진행된다면 i 번째 분역이 j 번째 분역으로 반전되어야 한다는 것을 알 수 있다. (14)는 분극반전이 진행될 경우 그 진행방향을 가르쳐 준다. 그러나 분극반전이 언제 시작되는지를 가르쳐 주지는 않으며 이에 대한 구성방정식으로서 분극반전 조건식이 필요하다. 형상기억합금이나 강유전체와 같이 상전이를 하는 재료에 대한 실험결과로부터 또는 단결정 강유전체에서의 분극반전에 관한 실험결과로부터 분극반전이 시작되는 전기장도의 임계값이 존재한다는 것을 알 수 있다. 따라서 $i \rightarrow j$ 분극반전은 드라이빙력 f_{ij} 가 일정한 값 f_{nuct} 에 도달할 때 발생한다고 가정할 수 있다. 즉

$$f_{ij} \geq f_{nuct} \quad \text{for the onset of } i \rightarrow j \text{ polarization switching} \quad (15)$$

둘 이상의 분역이 존재할 경우 모든 가능한 분역들의 에너지 중에서 가장 낮은 에너지와 현재 존재하는 분역들의 에너지 중에서 가장 높은 에너지와의 차이가 위 식을 만족할 때 가장 낮은 에너지에 대응하는 분역이 생성된다고 가정한다.

일단 j 번째 분역이 i 번째 분역으로부터 생성된 후에는 $i \rightarrow j$ 분극반전이 진행되는 속도를 결정하는 구성방정식으로서 소위 분극반전 속도식이 필요하다. 형상기억합금이나 강유전체에서의 상전이 과정에 대한 연속체 모델로부터 본 논문에서는 다음과 같은 속도식을 제안한다.

$$\dot{m}_{ij} = \begin{cases} R_{ij}(f_{ij} + f_{cr}) & \text{for } f_{ij} \leq -f_{cr}, \\ 0 & \text{for } -f_{cr} \leq f_{ij} \leq f_{cr}, \\ R_{ij}(f_{ij} - f_{cr}) & \text{for } f_{ij} \geq f_{cr}. \end{cases} \quad (16)$$

여기서 $R_{ij} (>0)$ 와 $f_{cr} (>0)$ 는 $i \rightarrow j$ 분극반전과 관련된 재료상수이다. \dot{m}_{ij} 이 $i \rightarrow j$ 분극반전 속도를 나타내므로 당연히 $j \rightarrow i$ 분극반전의 속도 \dot{m}_{ji} 는 $\dot{m}_{ji} = -\dot{m}_{ij}$ 이다. 따라서 j 번째 분역의 증가율 \dot{m}_j 은 다음과 같다.

$$\dot{m}_j = \sum_{i=1, i \neq j}^6 \dot{m}_{ij}. \quad (17)$$

위에서 제시한 분극반전 속도식을 실제 계산에 적용할 때 주의해야 할 점이 있다. 분극반전 조건식을 만족하는 모든 유한요소에 (16)이 적용될 때 강유전체 전체의 Gibbs 에너지가 증가하는 현상을 볼 수 있으며 이는 열역학 2 법칙에 위배된다. 따라서 속도식을 적용할 때 전체 세라믹의 에너지가 최소로 되는 상태를 찾는 추가의 노력이 필요하다.

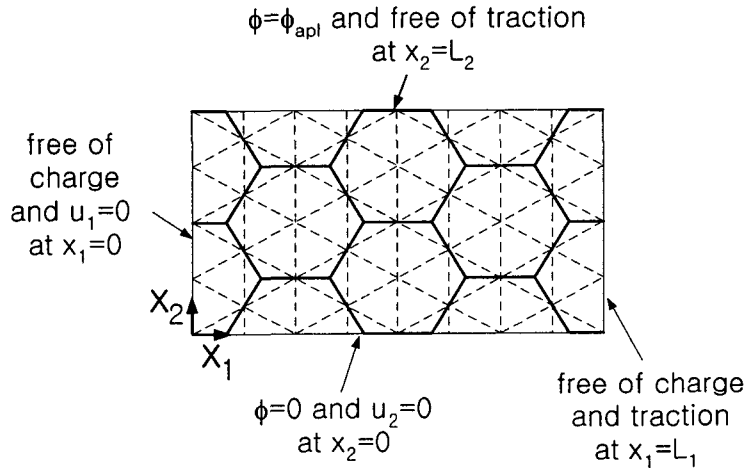


Fig. 3. Finite element meshes.

지금까지 주어진 구성방정식을 기반으로 하여 계산에 적용될 유한요소 방정식에 대한 유도과정은 Kim and Jiang(9)을 참조하기 바란다. 본 연구에서는 컴퓨터 용량의 한계로 인해 93 개의 결정립으로 이루어지며 수평방향으로는 $0 < x_1 < L_1$, 수직방향으로는 $0 < x_2 < L_2$ 에 위치한 2차원 세라믹을 본 모델의 적용대상으로 결정하였다. Fig. 3에 보인 바와 같이 각 결정립은 정육각형으로 이상화되고 12 개의 일정변형률 삼각형 유한 요소로 구성되어 있다. 대칭성으로 인해 전체 세라믹의 4분의 1에 대해서만 계산을 수행한다. 기계적인 경계조건은 다음과 같다. $x_1=0$ 에 있는 절점의 x_1 축 방향으로의 변위와 $x_2=0$ 에 있는 절점의 x_2 축 방향으로 변위가 구속된다. $x_1=L_1$ 과 $x_2=L_2$ 에서는 하중이 작용하지 않는다. 전기적으로는 $x_2=0$ 상의 모든 절점에서의 전기 퍼텐셜은 0 이고 $x_2=L_2$ 에서는 모든 절점에 퍼텐셜 $\phi(t)$ 가 주어진다. $x_1=0, L_1$ 에서는

전하가 존재하지 않는다.

3. 계산 및 결과

여기서는 2 장에서 제시된 기본 구성방정식을 기반으로 하여 2차원 $BaTiO_3$ 강유전체에 대한 모델의 응답을 계산하기로 한다. $BaTiO_3$ 에 대한 재료상수들은 Jaffe et al.[6]에서 구하거나 실험결과로부터 근사적으로 유추하였으며, 분극반전 속도식에서의 비례상수 R_{ij} 는 임의로 선택하였다. 또 분극반전 조건식에서의 임계상수 f_{nuc1} 과 속도식에서의 임계상수 f_{cr} 은 같다고 가정하였다. 인가되는 전계의 진폭은 1.5 MV/m, 진동수는 40 Hz 이고 시간에 따라 선형적으로 증가하거나 감소한다. 초기에 시편의 각 요소에서의 분극들의 질량비는 각각 0.25 이며 따라서 초기 시편의 분극밀도는 0 이다.

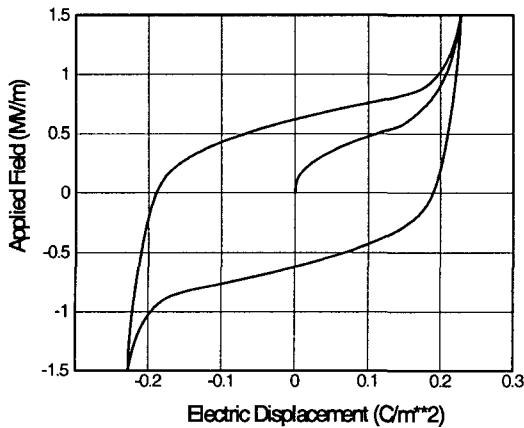


Fig. 4 The electric displacement-electric field response to an applied electric field

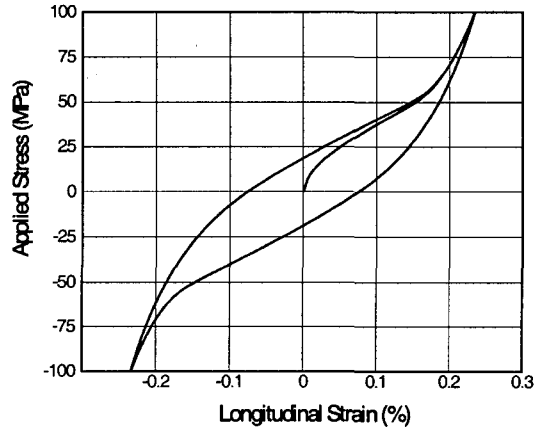


Fig. 5 The longitudinal strain-applied stress response to an applied stress

Fig. 4는 전계가 인가될 때 강유전체의 전기변위-전계 응답선도를 보여 주며 Jona와 Shirane[1], Hwang 등[2], Jaffe 등[6]에 보인 실험 결과들과 정성적으로 일치한다. Fig. 5는 진폭 100 MPa 이고 진동수가 20 Hz인 x_2 축 방향(수직방향)의 응력이 작용할 때 x_2 축 방향의 변형률의 변화를 보여 준다. Fig. 4에서 충분한 크기의 인장응력이 작용할 때 모든 결정립에서의 분극의 방향은 수직방향에 가깝도록 전환되며 반대로 압축응력이 작용할 경우 모든 분극이 응력에 수직인 방향으로 균일하게 분포하게 된다. 그 결과 기계적 응력에 의한 분극반전과정에서는 평균 분극밀도가 소멸된다. Fig. 4에 보인 계산 결과는 Lynch[7]나 Schäufele와 Härdtl [8]의 실험결과와 정성적으로 일치한다.

4. 결 론

본 논문에서는 압전체의 비선형 거동이 강유전체에서의 미시적 분극반전에 기인한다는 것을 설명하고 분극반전 현상에 대한 유한요소 모델을 제시한 후 모델의 응답을 계산하여 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다. 먼저 전기-기계적으로 연성된 재료에서의 상전이나 분극반전 거동에 적용될 수 있는 구성방정식을 제시하였다. 제시된 구성방정식은 자유 에너지 함수와 분극반전 조건식 및 속도식으로 구성되어 있다. 그 후 제시된 구성방정식을 기반으로 2차원 강유전 세라믹에 유한요소 해석을 수행하여 모델의 응답을 구하였다. 계산 결과는 본 모델이 강유전체의 분극반전, 즉 압전체의 비선형 거동을 예측하는데 이용될 수 있다는 것을 보여 주었다.

후 기

본 연구는 ADD-01-5-1 기초연구 과제의 지원을 받아 수행되었습니다.

참고 문헌

1. F. Jona and G. Shirane, 1962, *Ferroelectric Crystals*, Pergamon Press.
2. S. C. Hwang, C. S. Lynch, and R. M. McMeeking, 1995, "Ferroelectric/Ferroelastic Interactions and a Polarization Switching Model", *Acta Metallurgica Materialia*, 43, pp. 2073~2084.
3. Y. Huo and Q. Jiang, 1998, "Modeling of Domain Switching in Ferroelectric ceramics: an Example", *International Journal of Solids and Structures*, 35, pp. 1339~1353.
4. S. J. Kim, 2000, "A One-Dimensional Continuum Model for Thermoelectric Phase Transformations in Ferroelectrics", *International Journal of Solids and Structures*, 37, pp. 1145~1164.
5. 김상주, 1998, "강유전체의 열전거동에 대한 1차원 연속체 모델", 대한기계학회 추계학술대회 논문집 A, pp. 493~498.
6. B. Jaffe, W. R. Cook, and W. R. Jaffe, 1971, *Piezoelectric Ceramics*, Academic Press.
7. C. S. Lynch, 1996, "The effect of uniaxial stress on the electromechanical response of 8/65/35 PLZT", *Acta Materialia*, 44, pp. 4137~4148.
8. A. Schäufele and K. H. Härdtl, 1996, "Ferroelastic properties of lead zirconate titanate ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, 79, pp. 2637~2640.
9. S. J. Kim and Q. Jiang, 2002, "A finite element model for rate-dependent behavior of ferroelectric ceramics", *International Journal of Solids and Structures*, 39, pp. 1015-1030.