

전기-기계적으로 연성된 재료의 분극역전 거동에 대한 유한요소 모델링

김 상 주*

(2000년 10월 30일 접수, 2001년 8월 23일 심사완료)

Finite Element Modeling of Polarization Switching in Electro-Mechanically Coupled Materials

Sang-Joo Kim

Key Words: FEM(유한요소법), Electro-Mechanical Coupling(전기-기계적 연성), Polarization Switching(분극역전), Ferroelectric Ceramics(강유전 세라믹)

Abstract

A finite element model for polarization switching in electro-mechanically coupled materials is proposed and applied to predict the switching behavior of a two-dimensional ferroelectric ceramic. A complicated micro-structure existing in the material is modeled as a continuum body and a simple 3 node triangle finite element with nodal displacement and voltage degrees of freedom is used for a finite element analysis. The elements use nonlinear constitutive equations, switching criterion and kinetic relation, for representation of material response at strong electric and stress fields. The polarization state of the material is represented by internal variables in each element, which are updated at each simulation step based on the proposed constitutive equations. The model reproduces strain and electric displacement hysteresis loops observed in the material.

1. 서 론

전기-기계적으로 연성이 된 강유전 세라믹의 경우 어떤 임계값 이상의 전기적 또는 기계적 하중이 작용할 때 기계적 변형이 과도하게 발생하면서 전기적으로는 분극의 방향이 반전되는 특성을 가진다. 이를 분극역전(polarization switching)이라고 하는데 이로 인해 강유전 세라믹이 여러 형태의 지능 시스템과 MEMS 또는 각종 기억소자 등에 광범위하게 이용되고 있다.

PZT, PLZT 등 최근 관심의 대상이 되는 강유전 세라믹의 경우 상온에서의 격자 구조는 정

방형이다. 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 방향을 가질 수 있다. 외부 자극이 있을 경우 6개의 분극 방향 중에서 가장 낮은 에너지 상태에 대응하는 분극 방향을 가지도록 양이온이 이동하게 되며 그 결과 단일 격자에서의 분극역전이 발생하게 된다. 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

* 회원, 서울시립대학교 기계정보공학과

E-mail : sjk@uos.ac.kr

TEL : (02)2210-2757 FAX : (02)2248-5110

모여서 그 결정립 내부에 복잡한 미세 구조 (micro structure)를 형성한다. 외부에서 자극이 작용할 때 결정립 내의 분역구조는 분역들의 상대적인 질량비를 변화시키는 방식으로 가장 낮은 에너지 상태에 대응하는 구조로 변하게 되며 그 결과 실험에서 관찰되는 거시적 전체-전기변위 이력선도가 형성된다.⁽¹⁾

다결정 세라믹에서의 분극역전에 대한 유한요소 모델링이 최근 다양하게 시도되었다. Hwang 등⁽²⁾은 각 결정립을 하나의 유한요소로 이상화하고 결정립이 항상 한 개의 분역으로 이루어져 있다고, 즉 분극의 방향이 결정립 내에서 일정하다고 가정하였다. 그 결정립에서 전체 응력이 일정한 조건을 만족할 때 분극의 방향이 가장 낮은 에너지에 대응하는 방향으로 순식간에 변하게 된다고 가정하여 결정립의 거동을 결정하였다. 전체 세라믹의 거동은 개개의 결정립의 거동을 더하여 구한다. 그러나 실제로는 결정립이 항상 한 개의 분역만으로 이루어져 있지 않으며, 또 분극역전은 외부 자극의 변화에 대응하여 점진적으로 발생하게 된다. 이러한 문제점을 보완하기 위하여 Huo와 Jiang⁽³⁾은 결정립을 연속체로 이상화하고 결정립에서 발생하는 분극역전 과정을 그 결정립 안에 존재하는 분역들의 질량비의 변화로 나타내는 방법을 제안하였다. 그러나 강유전체의 전기-기계적 연성 거동에 대한 모델링을 수행하지 않았고 따라서 인가전계에 대응한 나비형상의 이력선도를 예측하지 못하였다. Kim^(4,5)은 강유전체로 이루어진 1차원 막대에서 한 두 개의 분극역이 이동하여 분극역전이 진행될 때 막대의 거동을 예측할 수 있는 모델을 제시하였지만 유한요소모델의 개발에 이르지 못하는 못하였다.

본 논문에서는 먼저 주어진 결정립에 존재하는 분역의 특성을 결정하는 Helmholtz 자유 에너지 함수를 도입한다. 도입된 에너지 함수로부터 해당 분역에 대한 전체, 분극밀도, 응력, 변형률 사이의 관계식을 구할 수 있다. 미세한 분역들로 이루어진 거시적 연속체 질점 (macroscopic continuum particle)을 도입하고 연속체에서의 지배방정식을 질점을 구성하는 분역들이 질점과 동일한 전체와 응력을 받는다는 가정으로부터 구한다. 각 분역에 대한 Gibbs 자유 에너지를 구한 후 새로운 분역이 생성되어 분극역전이 시작하는 조건식과 분극이 반전되

는 속도를 결정하는 속도식을 제시한다. 가상일의 원리를 이용하여 유한요소 정식화를 수행한 후에는 적절한 수치해석과정을 제시한다. 개발된 프로그램을 2차원 강유전체에 적용하여 모델의 응답을 구한다.

2. 기본 이론

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

$$\begin{aligned} \rho\psi_i(\boldsymbol{d}_i, \boldsymbol{S}_i) = & \\ & \frac{1}{2} \boldsymbol{x}_i^S (\boldsymbol{d}_i - \boldsymbol{d}_i^s) \cdot (\boldsymbol{d}_i - \boldsymbol{d}_i^s) \\ & + \frac{1}{2} \boldsymbol{c}_i^P (\boldsymbol{S}_i - \boldsymbol{S}_i^s) \cdot (\boldsymbol{S}_i - \boldsymbol{S}_i^s) \\ & + \boldsymbol{H}_i^T (\boldsymbol{d}_i - \boldsymbol{d}_i^s) \cdot (\boldsymbol{S}_i - \boldsymbol{S}_i^s) \end{aligned} \quad (1)$$

이다. 여기서 \boldsymbol{x}_i^S 는 일정한 변형률에서의 역유전감수율 텐서 (inverse dielectric susceptibility tensor)를, \boldsymbol{c}_i^P 는 분극밀도가 일정할 때 탄성강성 텐서(elastic stiffness tensor)를, \boldsymbol{H}_i 는 압전 텐서(piezoelectric tensor)를 나타낸다. 또 \boldsymbol{d}_i^s 와 \boldsymbol{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 \boldsymbol{E}_i 와 응력 \boldsymbol{T}_i 는 자유에너지 함수 ψ_i 에 $\boldsymbol{E}_i = \rho(\partial\psi_i/\partial\boldsymbol{d}_i)$ 와 $\boldsymbol{T}_i = \rho(\partial\psi_i/\partial\boldsymbol{S}_i)$ 를 적용하여 구할 수 있다. 즉

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}_i &= \boldsymbol{x}_i^S (\boldsymbol{d}_i - \boldsymbol{d}_i^s) + \boldsymbol{H}_i (\boldsymbol{S}_i - \boldsymbol{S}_i^s), \\ \boldsymbol{T}_i &= \boldsymbol{c}_i^P (\boldsymbol{S}_i - \boldsymbol{S}_i^s) + \boldsymbol{H}_i^T (\boldsymbol{d}_i - \boldsymbol{d}_i^s). \end{aligned} \quad (2)$$

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

$$\begin{aligned} \underline{D}_i &= \underline{\epsilon}_i^S \underline{E}_i + \underline{e}_i (\underline{S}_i - \underline{S}_i^s) + \underline{d}_i^s, \\ \underline{T}_i &= \underline{c}_i^E (\underline{S}_i - \underline{S}_i^s) - \underline{e}_i^T \underline{E}. \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \underline{E}_i &= \underline{E}, \\ \underline{T}_i &= \underline{T}. \end{aligned} \quad (7)$$

여기서 $\underline{\epsilon}_i^S$ 는 변형률이 일정할 때 유전율 텐서(permittivity tensor)를, \underline{e}_i 는 압전 텐서(piezoelectric tensor)를, \underline{c}_i^E 는 전계가 일정할 때 탄성강성 텐서를 나타낸다.

분극역전은 높은 에너지 상태에 있는 분역이 주어진 에너지 장벽을 극복하여 낮은 에너지 상태의 분역으로 전환하는 과정이라고 볼 수 있다. 따라서 i 번째 분역에 대하여 다음과 같은 퍼텐셜 에너지 함수를 도입할 필요가 있다.

$$G_i(\underline{d}_i, \underline{S}_i; \underline{E}, \underline{T}) = \rho \psi_i(\underline{d}_i, \underline{S}_i) - \underline{E} \cdot \underline{d}_i - \underline{T} \cdot \underline{S}_i. \quad (4)$$

퍼텐셜 에너지 함수의 극한값은 단위 부피 당 Gibbs 자유에너지 $g_i(\underline{d}_i, \underline{S}_i)$ 와 일치한다.

$$g_i(\underline{d}_i, \underline{S}_i) = \rho \psi_i(\underline{d}_i, \underline{S}_i) - \underline{E}_i \cdot \underline{d}_i - \underline{T}_i \cdot \underline{S}_i. \quad (5)$$

2.2 평균화

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

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

여기서 m_i 는 i 번째 분역의 질량비를 나타낸다. 질점의 성질은 질점을 구성하는 분역의 성질로부터 구할 수 있다. 본 논문에서는 질점에 작용하는 전계와 응력이 그 질점을 구성하는 분역들에 동일하게 작용한다고 가정하기로 한다. 즉

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

$$\begin{aligned} \phi &= \sum_{i=1}^6 m_i \phi_i, \\ \underline{D} &= \sum_{i=1}^6 m_i \underline{D}_i, \\ \underline{S} &= \sum_{i=1}^6 m_i \underline{S}_i. \end{aligned} \quad (8)$$

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

$$\begin{aligned} \text{div } \underline{D} &= 0, \\ \text{div } \underline{T} &= \underline{0}. \end{aligned} \quad (9)$$

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

$$\begin{aligned} (\underline{D}^+ - \underline{D}^-) \cdot \underline{n} &= 0, \\ (\underline{T}^+ - \underline{T}^-) \underline{n} &= \underline{0}. \end{aligned} \quad (10)$$

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

$$\underline{E} = -\text{grad } \phi. \quad (11)$$

전기 퍼텐셜은 결정립이나 요소의 경계면에서 연속적이어야 한다. 즉

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

2.3 분극역전 조건식과 속도식

지금까지 다결정 세라믹의 결정립을 구성하는 분역들의 거동을 결정하는 구성방정식으로서 자유 에너지 함수를 도입하였다. 또 결정립에서의 분극역전 거동을 효과적으로 모사하기 위하여 복잡한 분역구조를 연속체로 이상화하고 분역들로 이루어진 거시적 연속체 질점을 도입하였다. 이제 연속체로 이상화된 결정립에서의 분극역전 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 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 $i \rightarrow j$ 분극역전에서 j 번째 분역의 질량의 증가율을 나타낸다. 그러므로 열역학 2 법칙으로부터 g_i 가 g_j 보다 클 때 두 분역 사이에 분극역전이 진행된다면 i 번째 분역이 j 번째 분역으로 반전되어야 한다는 것을 알 수 있다.

식 (14)는 분극역전이 진행될 경우 그 진행 방향을 가르쳐 준다. 그러나 분극역전이 언제 시작되는지를 가르쳐 주지는 않으며 이에 대한 구성방정식으로서 분극역전 조건식이 필요하다. 형상기억합금이나 강유전체와 같이 상전이를 하는 재료에 대한 실험결과로부터 또는 단결정 강유전체에서의 분극역전에 관한 실험결과로부터 분극역전이 시작되는 전계강도의 임계값이 존재한다는 것을 알 수 있다. 따라서 $i \rightarrow j$ 분극역전은 드라이빙력 f_{ij} 가 일정한 값 f_{nucl} 에 도달할 때 발생한다고 가정할 수 있다. 즉

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

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 에너지와 관련된 분역이 생성된다고 가정한다.

일단 j 번째 분역이 i 번째 분역으로부터 생성된 후에는 $i \rightarrow j$ 분극역전이 진행되는 속도를 결정하는 구성방정식으로서 소위 분극역전 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 $i \rightarrow j$ 분극역전과 관련된 재료상수이다. \dot{m}_{ij} 이 $i \rightarrow j$ 분극역전 속도를 나타내므로 당연히 $j \rightarrow i$ 분극역전의 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 분극역전 속도식을 실제 계산에 적용할 때 주의해야 할 점이 있다. 분극역전 조건식을 만족하는 모든 유한요소 에식 (16)이 적용될 때 세라믹 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 필요하며 구체적인 수치해석과정은 다음 장에서 논하기로 한다.

3. 유한요소 정식화 및 수치해석과정

이제 2 장에서 주어진 구성방정식을 기반으로 하여 계산에 적용될 유한요소 방정식을 유도하고 적절한 수치 해석 과정을 제시한다. 유한요소 방정식은 가상일의 원리를 이용하여 구할 수 있다. 요소내의 변위 $\{u\}$ 와 전기 퍼텐셜

ϕ 는 행렬기호를 이용하면

$$\begin{aligned} \{u\} &= [N_u]\{u_N\}, \\ \phi &= \{N_\phi\}^T\{\phi_N\} \end{aligned} \quad (18)$$

이다. 여기서 $\{u_N\}$ 와 $\{\phi_N\}$ 은 각각 요소의 절점 변위와 절점 퍼텐셜이며 $[N_u]$ 와 $\{N_\phi\}$ 는 각각 변위와 퍼텐셜의 형상함수이다. 요소 내의 변형률 $\{S\}$ 과 전계장도 $\{E\}$ 는 변위와 퍼텐셜을 미분하여 구한다. 즉

$$\begin{aligned} \{S\} &= [B_u]\{u_N\}, \\ \{E\} &= -[B_\phi]\{\phi_N\}. \end{aligned} \quad (19)$$

행렬 $[B_u]$ 와 $[B_\phi]$ 는 형상함수 행렬 $[N_u]$ 와 $\{N_\phi\}$ 을 미분하여 구한다. 가상일의 원리로부터 다음과 같은 유한요소 방정식이 얻어진다.

$$\begin{aligned} [K_{uu}]\{u_N\} + [K_{u\phi}]\{\phi_N\} &= \{F\} + \{F_s\}, \\ [K_{\phi u}]\{u_N\} + [K_{\phi\phi}]\{\phi_N\} &= \{Q\} + \{Q_s\} + \{C\}. \end{aligned} \quad (20)$$

여기서 $[K_{uu}]$ 와 $[K_{\phi\phi}]$ 는 각각 탄성강성 행렬과 유전강성 행렬을, $[K_{u\phi}]$ 와 $[K_{\phi u}]$ 는 압전강성 행렬을 나타내며 다음과 같다.

$$\begin{aligned} [K_{uu}] &= \int_V [B_u]^T [c^E] [B_u] dV, \\ [K_{u\phi}] &= \int_V [B_u]^T [e]^T [B_\phi] dV, \\ [K_{\phi u}] &= \int_V [B_\phi]^T [e] [B_u] dV, \\ [K_{\phi\phi}] &= - \int_V [B_\phi]^T [\epsilon^S] [B_\phi] dV. \end{aligned} \quad (21)$$

식 (20)에서 우변의 벡터 행렬들은 하중벡터를 나타내며 다음과 같이 주어진다.

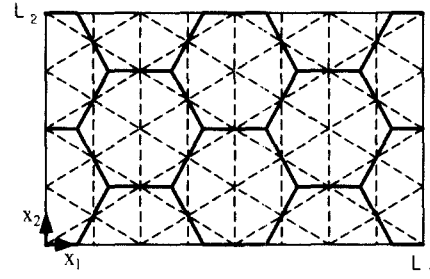


Fig. 1 Finite element meshes for a two-dimensional ceramic specimen

$$\begin{aligned} \{F\} &= \int_S [N_u]^T \{t\} dS, \\ \{F_s\} &= \int_V [B_u]^T [c^E] \{S^s\} dV, \\ \{Q\} &= - \int_S [N_\phi] q dS, \\ \{Q_s\} &= - \int_V [B_\phi]^T \{p^s\} dV, \\ \{C\} &= \int_V [B_\phi]^T [e] \{S^s\} dV. \end{aligned} \quad (22)$$

여기서 q 는 단위 면적 당 표면 전하량을, $\{t\}$ 는 표면에 작용하는 단위 면적 당 하중 벡터 행렬을 나타낸다.

컴퓨터 용량의 한계로 인해 93개의 결정립으로 이루어진 2차원 세라믹을 본 모델의 적용 대상으로 결정하였다. Fig. 1에 보인 바와 같이 각 결정립은 정육각형으로 이상화되고 12개의 일정변형률 삼각형 유한 요소로 구성되어 있다. 대칭성으로 인해 Fig. 1에 보인 바와 같이 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.

세라믹의 각 결정립에는 결정축 방향이 임의로 주어지게 되며 4개의 서로 다른 분극방향을 가지는 분역들이 복잡한 분역구조를 형성하고 있다. 이제 시간 t 때에 세라믹의 모든 요소에

서의 분역의 질량비를 알고 있으며 $x_2=L_2$ 에서의 퍼텐셜이 $\phi(t)$ 에서 $\phi(t+\Delta t)$ 까지 증가할 때 시간 $t+\Delta t$ 때의 각 요소에서의 분역의 질량비를 결정하기로 하자. $x_2=L_2$ 에 위치한 절점에서의 퍼텐셜이 변화하였으므로 유한요소 방정식 (20)을 풀어서 각 절점에서의 변위와 전기 퍼텐셜을 다시 구한다. 구한 변위와 퍼텐셜을 미분하여 전계강도와 응력을 구한 후 각 요소에서의 Gibbs 에너지를 구한다. 각 요소에서의 에너지를 합산하면 전체 세라믹 시편의 Gibbs 에너지를 알 수 있으며 이를 $g(0)$ 라고 표기한다. 여기서 괄호 안의 0는 어떤 요소에서도 분역의 질량비가 변하지 않았다는 것을 뜻한다. 다음에는 모든 요소를 각 요소 내 분역간 Gibbs 에너지 차이의 최대값 $(f_{ij})_{\max}$ 가 큰 순서대로 정리한 후 분극역전 조건식을 만족하는 요소의 수를 구한다. 예를 들어 N_{nucl} 개의 요소가 조건식을 만족한다고 하자. $(f_{ij})_{\max}$ 가 가장 큰 요소가 분극역전 하려는 경향이 가장 크다고 할 수 있으며 그 요소에 분극역전 조건식과 속도식을 적용하여 분역들의 질량비를 변화시킨다. 한 요소의 질량비가 변화하였으므로 그 요소의 평균 전기적 성질과 요소 주변 절점의 전하량이 변하게 되고 따라서 유한요소 방정식을 다시 풀어 절점 변위와 퍼텐셜을 다시 구하여야 한다. 구해진 값들을 이용하여 세라믹 시편의 전체 Gibbs 에너지를 구한 후 $g(1)$ 으로 표기한다. 괄호 안의 숫자 1은 오직 한 개의 요소에만 분극역전 조건식과 속도식이 적용되었다는 것을 뜻한다. 다음에는 $(f_{ij})_{\max}$ 가 큰 순서대로 두 개의 요소에 분극역전 조건식과 속도식을 적용하여 분역들의 질량비를 변화시킨 후 유한요소 방정식을 다시 풀어서 시편의 전체 Gibbs 에너지를 구한다. 그 값을 $g(2)$ 라고 하기로 한다. 이런 식으로 $g(N_{nucl})$ 까지 모두 $N_{nucl} + 1$ 가지의 상황에 대한 Gibbs 에너지를 구하게 된다. 이 중에서 가장 낮은 Gibbs 에너지에 대응하는 상태가 시간 $t+\Delta t$ 때의 세라믹의 상태라고 가정한다. 예를 들어 $g(n)$ 이 가장 작다면 $(f_{ij})_{\max}$ 가 가장 큰 n 개의 요소에서만 분극역전이 진행되어 질량비가 변하고 나머지 요소에서는 질량비의 변화가 없게 된다. 이제 시간 $t+\Delta t$ 때의 시편의 모든 요소에

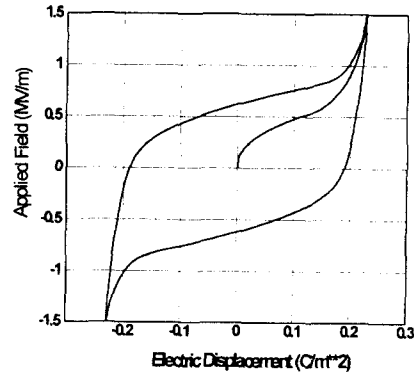


Fig. 2 The electric displacement-electric field response to an applied electric field

대한 질량비를 구하였으며 이를 바탕으로 시간 $t+2\Delta t$ 때의 세라믹의 모든 요소에서의 분역의 질량비를 유사한 방법으로 구할 수 있게 된다. 다음 장에서는 개발된 유한요소 모델과 수치 해석 과정을 이용하여 모델의 응답을 계산하기로 한다.

4. 계산 결과

여기서는 2 장에서 제시된 기본 구성방정식과 3 장에서의 유한요소모델 및 수치 해석 과정을 이용하여 2차원 $BaTiO_3$ 강유전체의 응답을 계산하기로 한다. $BaTiO_3$ 에 대한 재료 상수들은 Jaffe et al.⁽⁶⁾에서 구하거나 실험결과로부터 근사적으로 유추하였으며, 분극역전 속도식에서의 비례상수 R_{ij} 는 임의로 선택하였다. 또 분극역전 조건식에서의 임계상수 f_{nucl} 과 속도식에서의 임계상수 f_{cr} 은 같다고 가정하였다. 인가되는 전계의 진폭은 1.5 MV/m, 진동수는 40 Hz이고 시간에 따라 선형적으로 증가하거나 감소한다. 초기에 시편의 각 요소에서의 분역들의 질량비는 각각 0.25이며 따라서 초기 시편의 분극밀도는 0이다.

Fig. 2 는 전계가 인가될 때 강유전체의 전기변위-전계 응답선도를 보여 주며 Fig. 3은 변형률-전계 응답선도를 보여 준다. Figs. 2~3에 보인 계산 결과들은 Jona와 Shirane,⁽¹⁾ Hwang 등,⁽²⁾ Jaffe 등⁽⁶⁾ 에 보인 실험 결과들과 정성적

으로 일치한다. 참고로 Fig. 2에서 항전계(전기변위가 0일 때의 인가전계의 값)와 포화분극밀도의 크기는 각각 약 0.6 MV/m , 0.23 C/m^2 이지만 Jaffe 등⁽⁶⁾의 Fig. 5.14에 보인 BaTiO_3 세라믹에 대한 분극역전 선도에서는 각각 0.3 MV/m , 0.15 C/m^2 이다. 이러한 차이는 분극역전 선도의 형상이 주변온도와 인가전계의 크기 및 진동수에 의존하지만 그러한 실험조건이 모사과정에 정확히 반영되지 않았기 때문이라고 판단된다.

이제 Figs. 2~3에 보인 거시적 거동들을 Fig. 4에 보인 바와 같이 분역들의 질량비의 변화를 이용하여 미시적으로 설명하기로 한다. 먼저 분극방향이 x_2 축에 좀 더 평행한 분역들, 즉 분극벡터가 x_1 축과 이루는 각도 θ 가

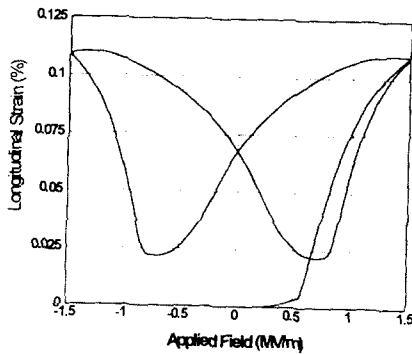


Fig. 3 The electric field-longitudinal strain response to an applied electric field

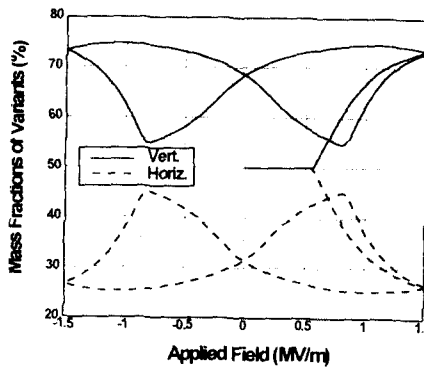


Fig. 4 Change of mass fractions in an electric field-induced polarization switching

$45^\circ < \theta < 135^\circ$ 또는 $225^\circ < \theta < 315^\circ$ 범위에 있는 분역들을 수직형 분역으로, 그리고 x_1 축에 좀 더 평행한 분역들, 즉 θ 가 $-45^\circ < \theta < 45^\circ$ 또는 $135^\circ < \theta < 225^\circ$ 범위에 있는 분역들을 수평형 분역으로 부르기로 한다. Fig. 4에서 위에 있는 실선은 수직형 분역들의 질량의 시편 전체의 질량에 대한 비율의 변화를 나타내며 아래에 위치한 파선은 수평형 분역들의 질량의 전체 시편의 질량에 대한 비율의 변화를 나타낸다. 수직형 분역의 질량비와 수평형 분역의 질량비의 합은 항상 1이며 50%에 해당하는 수평선에 대하여 대칭이 된다. Fig. 4에서 전계가 0에서 1 MV/m로 증가할 때 수직형 분역의 질량비는 70%에서 55%로 감소하며 수평형 분역의 질량비는 30%에서 45%로 증가하는 것을 볼 수 있다. 즉 전계가 0일 때 약 70%의 분역들이 $-x_2$ 축에 좀 더 평행한 분극방향을 가지다가 전계가 증가함에 따라서 그 분역들의 대부분이 x_1 축에 좀 더 평행한 분극을 가지는 수평형 분역이나 $+x_2$ 방향의 수직형 분역으로 전환하는 것이다. 그 결과 거시적으로 Fig. 2에 보인 바와 같이 x_2 축 방향의 전기변위는 대폭적으로 증가하게 된다. 반면 수평형 분역의 질량비는 증가하고 수직형 분역의 질량비는 감소하므로 Fig. 3에서와 같이 x_2 방향의 변형률은 감소하게 된다. 그 후 전계가 1 MV/m에서 1.5 MV/m 까지 증가하게 되면 수직형 분역은 약 75%로 증가하지만 수평형 분역은 다시 약 25%로 감소하게 된다. 이는 전계가 1 MV/m일

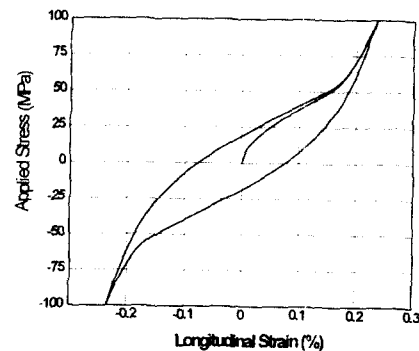


Fig. 5 The longitudinal strain-applied stress response to an applied stress

때 x_1 축에 평행하던 수평형 분역의 약 3분의 1이 전계가 증가함에 따라서 $+x_2$ 방향으로 분극방향을 전환한다는 것을 뜻한다. 따라서 전기변위는 전계가 0에서 1 MV/m로 증가할 때보다 소폭 증가하지만 수직변형률의 질량비가 대폭 증가하게 되므로 변형률도 급증하게 된다.

Fig. 5는 진폭 100 MPa 이고 진동수가 20 Hz인 x_2 축 방향의 응력이 작용할 때 x_2 축 방향의 변형률의 변화를 보여 준다. 여기서는 $+x_2$ (또는 $+x_1$) 방향의 수직형(또는 수평형) 분역과 $-x_2$ (또는 $-x_1$) 방향의 수직형(또는 수평형) 분역의 질량비가 항상 같으며 따라서 시편 전체의 분극밀도는 항상 0이 된다. 그러나 수직형 분역의 질량비의 합과 수평형 분역의 질량비의 합이 상호간 변하면서 Fig. 5에서와 같은 이력선도를 그리게 된다. 현재 Fig. 5에 보인 계산결과를 정량적으로 비교할 만한 실험 결과는 없으나 정성적으로는 PZT 등에 대한 Lynch⁽⁷⁾나 Schäufele 와 Härdtl⁽⁸⁾ 등의 실험 결과와 일치한다.

5. 결 론

본 논문에서는 강유전체의 분극역전에 대한 유한요소 모델과 수치 해석 과정을 제시하고 모델의 응답을 계산하였으며 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

(1) 전기-기계적으로 연성된 재료에서의 상전이나 분극역전 거동에 적용될 수 있는 구성방정식을 제시하였다. 제시된 구성방정식은 Helmholtz 에너지 함수와 분극역전 조건식 및 속도식으로 구성되어 있다.

(2) 제시된 구성방정식을 기반으로 유한요소 정식화를 수행하였으며 적절한 수치 해석 과정을 제안하고 2차원 강유전 세라믹에 적용하여 모델의 응답을 구하였다. 그 결과 나비형상의 이력선도 등 강유전 세라믹의 실제 거동을 예측할 수 있음을 확인하였다.

(3) 본 모델을 이용하여 계산을 수행한 결과 분역들의 질량비의 변화가 세라믹의 거시적 응

답특성을 결정한다는 것을 보였다. 앞으로 분극역전 조건식과 속도식에 대한 이론적·실험적인 연구가 이루어져야 함을 확인하였다.

후 기

본 연구는 2000년도 서울시립대학교 교내학술연구비에 의하여 지원되었습니다.

참고문헌

- (1) Jona, F. and Shirane, G., 1962, *Ferroelectric Crystals*, Pergamon Press.
- (2) Hwang, S. C., Lynch, C. S. and McMeeking, R. M., 1995, "Ferroelectric/Ferroelastic Interactions and a Polarization Switching Model," *Acta Metallurgica Materialia*, Vol. 43, No. 5, pp. 2073~2084.
- (3) Huo, Y. and Jiang, Q., 1998, "Modeling of Domain Switching in Ferroelectric Ceramics: an Example," *International Journal of Solids and Structures*, Vol. 35, pp. 1339~1353.
- (4) Kim, S. J., 2000, "A One-Dimensional Continuum Model for Thermoelastic Phase Transformations in Ferroelectrics," *International Journal of Solids and Structures*, Vol. 37, pp. 1145~1164.
- (5) 김상주, 1998, "강유전체의 열전거동에 대한 1차원 연속체 모델," 대한기계학회 추계학술대회 논문집 A, pp. 493~498.
- (6) Jaffe, B., Cook, W. R. and Jaffe, W. R., 1971, *Piezoelectric Ceramics*, Academic Press.
- (7) Lynch, C. S., 1996, "The Effect of Uniaxial Stress on the Electromechanical Response of 8/65/35 PLZT," *Acta Materialia*, Vol. 44, pp. 4137~4148.
- (8) Schäufele, A. and Härdtl, K. H., 1996, "Ferroelastic properties of lead zirconate titanate ceramics," *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 79, pp. 2637~2640.