

<학술논문>

DOI:10.3795/KSME-A.2010.34.1.61

인장하중을 받을 때 PZT 웨이퍼의 크립 거동: 실험과 모델링[§]

김 상 주*[†] · 이 창 환**

* 서울시립대학교 기계정보공학과, ** 한국과학기술정보연구원

Creep Behavior of a PZT Wafer Under Tensile Stress: Experiments and Modeling

Kim Sang-Joo*[†] and Lee Chang-Hoan**

* Department of Mechanical and Information Engineering, University of Seoul

** Korea Institute of Science and Technology Information

(Received August 10, 2009 ; Revised October 7, 2009 ; Accepted November 17, 2009)

Key Words : PZT Wafer(PZT 웨이퍼), Tensile Load(인장하중), Creep(크립), Domain Switching(도메인 스위칭), Normal Distribution(정규분포), Constitutive Model(구성 모델)

초록 : 두께방향으로 분극처리되어 있는 상업용 PZT 웨이퍼가 폐쇄회로와 개방회로의 두 가지 전기적 경계조건에서 길이 방향으로 일정한 크기의 인장하중을 받는다. 하중과정 동안 두께 방향으로의 전기밀도와 평면내 변형률의 시간에 따른 변화를 측정한다. 두 가지 전기적 경계조건에서의 서로 다른 거동 특성을 시편 내부에서 발생하는 전기장과 분극역전 현상으로 설명한다. 마지막으로 관측된 크립 거동을 예측하기 위한 정규분포 형식을 가지는 자유 에너지 함수를 도입하고 모델의 예측과 실험결과를 비교한다.

Abstract: A commercially available soft PZT wafer that is poled in thickness direction is subjected to longitudinal tensile stress loading in both short and open-circuit conditions. Variations of electric displacement in thickness direction and in-plane strains are measured over time during the loading. Different material responses in the two electrical boundary conditions are explained by the effects of piezoelectrically produced internal electric field on linear material moduli and domain switching mechanisms. Finally, a free energy model of normal distribution is introduced to explain the observed creep behavior, and its predictions are compared with experimental observations.

1. 서 론

PZT 또는 PLZT 같은 페로브스카이트 타입 압전재의 거시적인 비선형 거동은 재료 내부에서 발생하는 미시적인 분역 스위칭에 기인한다. 압전재의 비선형 거동에 대한 실험 및 모델링 연구는 재료학자나 물리학자들로부터 시작하여 최근에는 역학적 지식에 기반을 둔 응용역학자들에 의하여 이루어지고 있다.

응용역학자들의 연구는 압전재에 대한 연속체 관점에서의 구성모델의 개발과 수치해석 도구의 개발을 목적으로 이루어졌으며 현재까지 다양한 연구자들에 의하여 상당한 성과가 얻어졌다.⁽¹⁻⁶⁾ PZT 류의 압전재의

경우 상온에서는 주로 정방향 격자 - 또는 조성비에 따라 정방향 격자와 사방향 격자의 혼합상태 -로 존재하며 외부에서 기계적 또는 전기적 하중이 작용할 때 분역들 사이에 스위칭이 발생하게 된다. 기계적 하중만이 작용할 때는 비 180 도 스위칭만이 발생하지만 전기장이 작용할 때는 비 180 도 스위칭과 180 도 스위칭이 혼합하여 발생한다고 알려져 있다. 두 유형의 스위칭의 특성은 서로 다르다고 알려져 있지만 현재까지 이들의 거동 특성에 대한 별개의 구성모델의 개발에 대한 본격적인 연구가 이루어지지는 않고 있다.

본 논문에서는 두께방향으로 분극처리가 되어 있는 PZT 웨이퍼에 일정한 크기의 인장하중을 길이방향으로 인가하였을 때 두께방향의 전기밀도와 면내 변형률의 시간에 따른 변화를 측정하고자 한다. 여러 가지 크기의 인장하중이 각각 개방회로(open circuit)와 폐쇄회로(short circuit)의 조건에서 인가되며 그 때의 전기밀도와 변형률의 변화가 계측된다. 동시에 측정된 크립거동을

§ 이 논문은 2009 년도 재료 및 파괴부문 춘계학술대회 (2009. 4. 23-24, 제주대) 발표논문임

† Corresponding Author, sangjookim@gmail.com

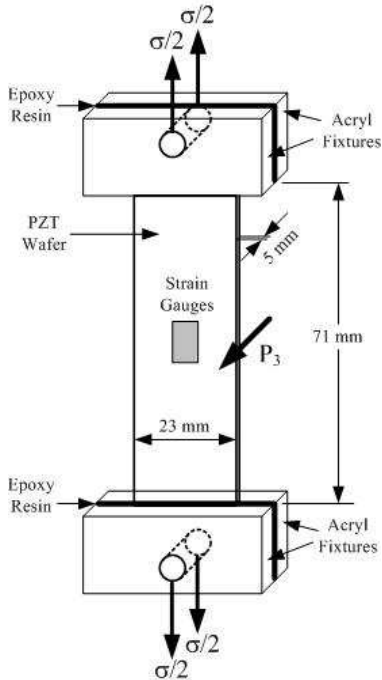


Fig. 1 Experimental set up for measuring the creep behavior of a PZT wafer under tensile stress

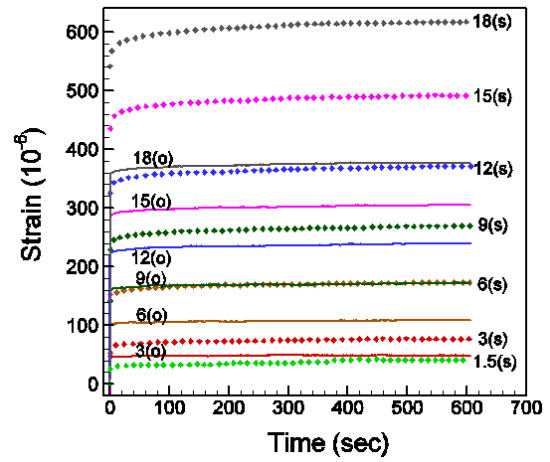
예측하기 위한 구성모델이 제시되고 구성모델의 예측과 실험결과를 비교하고 정성적/정량적인 해석을 시도한다.

2. 실험

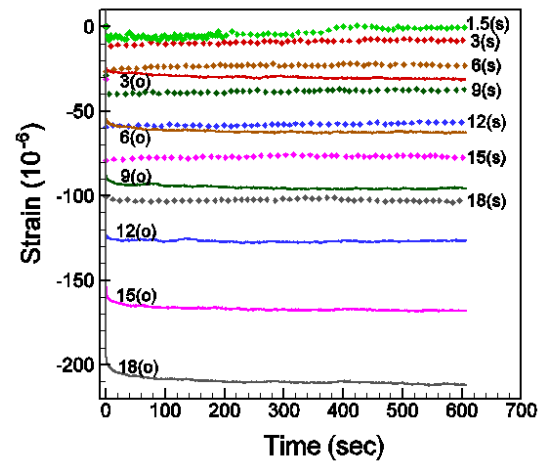
두께 방향으로 분극 처리되어 있는 PZT 웨이퍼의 양 끝을 아크릴 구조물을 이용하여 고정시키고 구멍에 삽입된 봉 구조물을 이용하여 일정 크기의 인장하중을 작용시킨다(Fig. 1 참조). 인가되는 인장응력의 크기는 1.5, 3, 6, 9, 12, 15, 18 MPa의 7가지이며 두께 방향의 전기적 경계조건은 개방 및 폐쇄회로의 두 가지 경우에 대하여 두께 방향의 전기밀도 및 면내 변형률의 시간에 대한 변화가 측정된다.

변형률은 웨이퍼에 부착된 스트레인 게이지를 이용해서 측정하며 전기밀도는 Sawyer-Tower 회로를 이용하여 간접적인 방법으로 측정한다. 단, 개방회로의 경우 전기밀도 측정이 불가능하므로 전기밀도는 폐쇄회로의 경우에만 측정된다. 측정된 크립 거동결과는 Fig. 2에 보인 바와 같다.

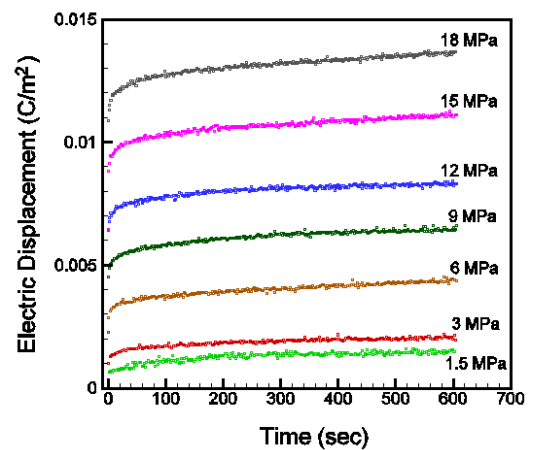
Fig. 2에서는 일정한 인장응력에서 변형률이나 전기밀도의 값이 초기에 급격하게 변하다가 시간이 흐름에 따라 점차 일정한 값에 수렴하는 모습을 볼 수 있다. 변형률이나 전기밀도의 수렴값은 하중이 증가함에 따라 비례적으로 증가함을 알 수 있으며 전기적 경계조건에 따라 변형률의 값이 차이가 있음을 알 수 있다.



(a) Longitudinal strain



(b) Transverse strain



(c) Electric displacement in thickness direction

Fig. 2 Measured strains and electric displacement over time under various magnitudes of longitudinal tensile stress, the numbers representing the magnitudes of stress in MPa and the letters (o) and (s) open and short-circuit conditions, respectively

길이방향 변형률의 경우 (s)라고 표시된 폐쇄회로에서의 측정값이 (o)라고 표시된 개방회로에서의 변형률 값에 비하여 상당히 크지만, 폭 방향 변형률의 경우 그 크기가 개방회로에서 더 크다는 것을 알 수 있다. 회로 조건에 따른 길이 및 폭 방향으로의 측정 변형률의 차이는 시편 내부에 발생하는 내부전기장의 존재와 관련되어 있다. 개방회로에서는 시편의 두께에 수직인 두 면이 전기적으로 연결되어 있지 않으며 그로 인하여 전기밀도가 변할 때 표면전하가 발생하게 된다. 표면전하로 인하여 두께방향으로 내부 전기장이 발생하는데, 이 내부 전기장은 기존 분극을 지지하는 방향으로 작용하며 압전계수와 분역스위칭 과정에 영향을 미치게 된다. 즉, 내부 전기장은 두께방향의 분역들이 길이 방향으로 스위칭 하는 것을 방해하며 그 결과 길이방향의 변형률이 폐쇄회로에 비하여 작은 값을 가지게 된다. 또한 초기에 폭 방향으로 좀 더 경사졌던 분역들이 인장하중을 받으면서 폭 방향으로 완만하게 경사각이 감소하면서 스위칭을 하게 되므로 개방회로에서는 폭 방향으로 상대적으로 많은 수축을 하게 된다.

마지막으로 폭 방향 변형률 그래프를 보게 되면 초기 감소 후 변형률의 점진적인 변화가 회로상태에 따라 서로 다르다는 것을 볼 수 있다. 개방회로에서는 횡방향 변형률이 초기에 대폭 감소한 후에 시간에 따라 변형률이 더 감소하는 모습을 보인다. 인장하중이 계속 존재하는 상황에서 시간에 따른 시편 폭의 점진적인 감소는 일반적으로 이해되는 부분이다. 그러나 폐쇄회로에서는 이와 반대의 경향을 관찰할 수 있다. 즉, 초기에 변형률이 크게 감소한 후에 시간이 흐름에 따라 어떤 일정한 수렴값을 향하여 점진적으로 변형률이 증가하는 모습을 볼 수 있다. 특히, 폐쇄회로에서 1.5 MPa의 응력이 작용할 때는 일정시간이 흐른 후 시편의 폭이 인장하중이 작용하기 전의 원래 시편 폭보다 커지는 모습을 볼 수 있다. 이는 정성적으로 초기 변형률의 감소 후 두께 방향의 분역들이 점진적으로 길이 방향으로 스위칭 하면서 발생하는 현상으로 설명할 수 있다. 자세한 사항은 참고문헌⁽⁷⁾을 참조하기 바란다. 본 연구에서는 이러한 현상을 스위칭 여기 음의 프와송 효과 (Switching-induced negative Poisson effect)라고 이름을 붙이기로 한다.

3. 모델링

페로브스카이트 타입 압전재의 비선형 거동에 대한 구성모델로서 각 단결정체에 대한 자유에너지 함수를 도입하고 다결정 압전재의 거동을 구성 단결정체의

거동으로부터 계산하는 방법이 자주 사용되었다. 식 (1)은 n 번째 단결정체에 존재하는 6 개의 배리언트에 대한 전기변위벡터 \mathbf{D} 와 변형률텐서 \mathbf{S} , 그리고 온도 θ 의 함수로 주어진 자유에너지 함수 $\psi_{na}(\mathbf{D}, \mathbf{S}, \theta)$ 이다. $\chi_{na}^{S,\theta}$ 는 일정 변형률과 일정한 온도에서의 역전기감수율(inverse dielectric susceptibility tensor), $\mathbf{c}_{na}^{D,\theta}$ 은 일정 전기밀도와 온도에서의 탄성텐서, $\mathbf{c}_{na}^{D,S}$ 는 일정 전기밀도와 변형률에서의 비열(specific heat), \mathbf{H}_{na}^θ 는 일정한 온도에서의 압전텐서, \mathbf{f}_{na}^D 는 일정 전기밀도에서의 열압력텐서(thermal pressure tensor), \mathbf{t}_{na}^S 는 일정 변형률에서의 열전텐서(pyroelectric tensor)를 나타낸다. 위첨자 R 은 잔여량(remnant quantity)을, 위첨자 T 는 전치텐서를 나타낸다.

$$\rho\psi_{na}(\mathbf{D}, \mathbf{S}, \theta) = \left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{2} \chi_{na}^{S,\theta} (\mathbf{D} - \mathbf{D}_{na}^R) \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{D}_{na}^R) + \frac{1}{2} \mathbf{c}_{na}^{D,\theta} (\mathbf{S} - \mathbf{S}_{na}^R) \cdot (\mathbf{S} - \mathbf{S}_{na}^R) \\ + \rho \mathbf{c}_{na}^{D,S} [(\theta - \theta_0) - \theta \ln(\theta / \theta_0)] \\ + \mathbf{H}_{na}^{\theta T} (\mathbf{D} - \mathbf{D}_{na}^R) \cdot (\mathbf{S} - \mathbf{S}_{na}^R) \\ + \mathbf{f}_{na}^D \cdot (\mathbf{S} - \mathbf{S}_{na}^R) (\theta - \theta_0) + \mathbf{t}_{na}^S \cdot (\mathbf{D} - \mathbf{D}_{na}^R) (\theta - \theta_0) \end{array} \right. \quad \text{for } \alpha = 1, 2, \dots, 6, \quad (1)$$

외부에서 전계나 응력이 작용할 때 헬름홀츠 에너지 대신 다음과 같이 주어지는 깁스 에너지 함수를 이용하는 것이 편리하다.

$$g_{na}(\mathbf{D}, \mathbf{S}; \mathbf{E}, \mathbf{T}, \theta) = \rho\psi_{na}(\mathbf{D}, \mathbf{S}, \theta) - \mathbf{E} \cdot \mathbf{D} - \mathbf{T} \cdot \mathbf{S}. \quad (2)$$

본 연구에서는 Fig. 2에 보인 크립 거동을 모델링하기 위하여 단결정에서 각 배리언트들의 깁스 에너지가 평균값 g_{na0} 에 대하여 정규분포를 한다고 가정한다. 정규분포에 대한 가정은 재료 내부의 여러 가지 결함이나 입계 등의 존재로 인하여 각 배리언트들의 에너지가 동일한 값을 가지지 않고 통계적으로 분산된 값을 가진다고 판단하기 때문이다. 주어진 전계 \mathbf{E} , 응력 \mathbf{T} , 온도 θ 에서 깁스 에너지의 평균값 g_{na0} 은 $\mathbf{E} = \rho \partial \psi_{na} / \partial \mathbf{D}$ 와 $\mathbf{T} = \rho \partial \psi_{na} / \partial \mathbf{S}$ 을 (2)에 대입하고 (1)을 이용하여 구할 수 있다. 깁스 에너지의 정규분포는 Fig. 3에서처럼 항아리 형상의 에너지 우물로 나타낼 수

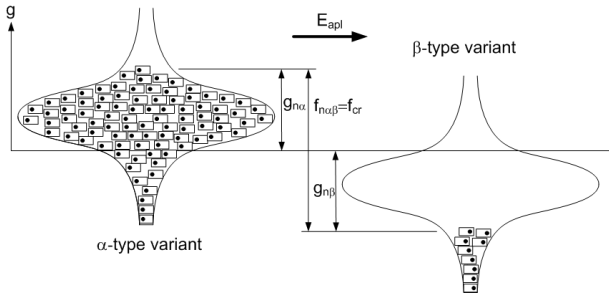
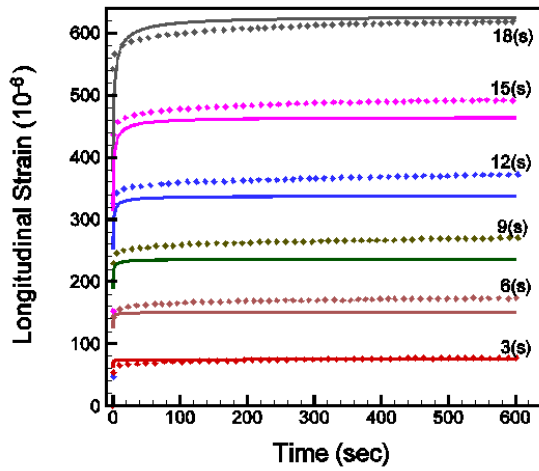
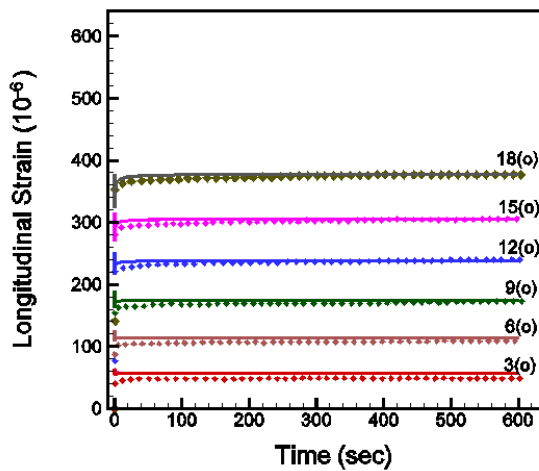


Fig. 3 Normal distribution of Gibbs energy and thermodynamic driving force



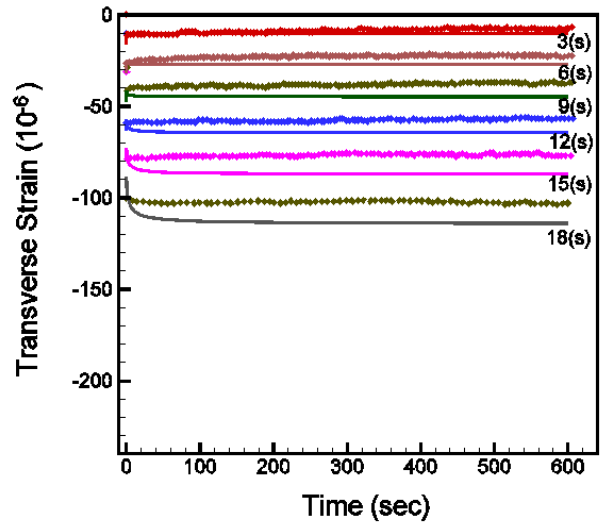
(a) Short circuit



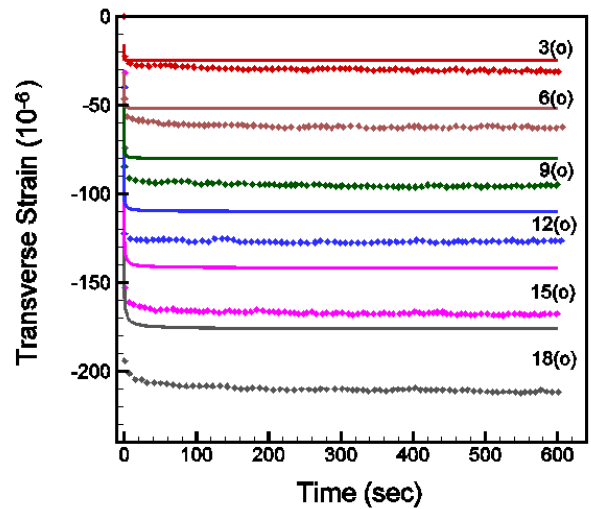
(b) Open circuit

Fig. 4 Comparison of measured (dashed lines) and predicted (solid) longitudinal strains in (a) short and (b) open-circuit conditions

있다. 스위칭 요소들은 외부 조건에 따라 에너지 우물들 사이에서 이동하게 되는데 이 때 항상 각 우물



(a) Short circuit



(b) Open circuit

Fig. 5 Comparison of measured (dashed lines) and predicted (solid) transverse strains in (a) short and (b) open-circuit conditions

들의 밑에서부터 우물을 채운다고 가정한다. n 번째 단결정체에서 초기에 모든 격자요소들이 α 번째 에너지 우물에 있다고 하자. 이때 동일한 형상의 β 번째 에너지 우물에는 격자요소들이 존재하지 않는다. 이 때 β 번째 에너지 우물에 우호적인 방향으로 전기장이 작용한다면 α 번째 우물은 에너지가 올라가는 반면 β 번째 에너지 우물은 에너지가 내려간다. 그 결과 두 개의 우물 사이의 에너지 차이가 커지게 되어 $\alpha \rightarrow \beta$ 스위칭이 발생하게 된다. 이 때 두 우물들에서 가장 높은 에너지 값의 차이를 열역학적 드라이빙력 $f_{n\alpha\beta}$ 이라고 하며 $f_{n\alpha\beta} = g_{n\alpha} - g_{n\beta}$ 를 이용

하여 구한다. 드라이빙력이 일정한 값에 도달할 때 스위칭이 발생하며 스위칭 속도는 드라이빙력의 함수로 주어진다 가정한다. 관련 사항은 참고문헌 [8]을 참조할 수 있다.

단결정체의 거동은 구성 배리언트들의 거동으로부터 다음과 같이 구할 수 있다.

$$\mathbf{D}_n = \sum_{\alpha=1}^6 x_{n\alpha} \mathbf{D}_{n\alpha}, \quad \mathbf{S}_n = \sum_{\alpha=1}^6 x_{n\alpha} \mathbf{S}_{n\alpha}. \quad (3)$$

여기서 $x_{n\alpha}$ 는 α 번째 배리언트의 질량비이며

$\sum_{\alpha=1}^6 x_{n\alpha} = 1$ 를 만족해야 한다. 다결정체는 단결정체의 집합이므로 다결정체의 거시적 거동은 단결정체의 거동으로부터 구할 수 있다. 본 연구에서는 다결정체의 거동을 나타내기 위해서 참고문헌 [9]에서 제시된 대표 부피요소 모델을 사용하기로 한다. N 개의 단결정체로 이루어진 대표 부피요소의 거동은 다음과 같이 구할 수 있다.

$$\bar{\mathbf{D}} = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \mathbf{D}_n, \quad \bar{\mathbf{S}} = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \mathbf{S}_n. \quad (4)$$

모델의 예측결과와 실험의 비교는 Fig. 4, 5 에 보인 바와 같다. 길이 방향 변형률의 경우 Fig. 4 에 보인 바와 같이 폐쇄 및 개방회로에서 모델이 실험값을 비교적 정확하게 예측하고 있었다. 그러나 횡변형률의 경우 개방회로에서 예측되는 변형률의 크기가 실험값보다 더 작게 나오는 오차가 있었다.

4. 결 론

두께 방향으로 분극처리된 PZT 웨이퍼가 길이방향으로 일정한 크기의 인장하중을 받을 때 두께 방향으로의 전기밀도, 길이 및 폭 방향으로의 변형률의 시간에 따른 변화를 계측하였다. 인가된 인장하중의 크기는 재료의 취약한 성질 때문에 제한된 범위에서 주어졌다. 실험결과 전기적 경계조건에 따른 내부 전기장의 존재로 인해 재료의 크립거동이 뚜렷하게 다른 특성을 보였다. 특히 길이방향으로 인장하중이 작용할 때 시편의 폭이 증가하는 현상을 관찰하였으며 정성적으로 스위칭 현상을 이용하여 설명하였다. 본 연

구에서는 이러한 현상을 스위칭 여기 음의 프와송 효과라고 명명하였다. 압전재의 크립거동을 모델링하기 위하여 자유에너지 함수가 정규분포를 하고 있다고 가정하였으며 모델을 이용한 예측결과를 실험결과와 비교하였다. 모델의 계산 결과는 비교적 정확하게 관측된 실험을 예측할 수 있었다. 그러나 향후 전기장이 작용하는 환경에서의 크립거동을 예측하기 위해서는 본 연구에서 제시된 모델이 수정 보완되어야 할 것이며 현재 관련 연구가 진행중이다.

참고문헌

- (1) Smith R. C., Seelecke S. and Dapino M., 2006, "A Unified Framework for Modeling Hysteresis in Ferroic Materials," *J. Mech. Phys. Solids*, Vol. 54, pp. 785~811.
- (2) Kim S. J. and Seelecke S., 2007, "A Rate-Dependent Three-Dimensional Free Energy Model for Ferroelectric Single Crystals," *Int. J. Solids Struct.*, Vol. 44, pp. 1196~1209.
- (3) Srivastava N. and Weng G. J., 2006, "A Theory of Double Hysteresis for Ferroelectric Crystals," *J. Appl. Phys.*, Vol. 99, 054103.
- (4) Belov, A. Y. and Kreher, W. S., 2005, "Viscoplastic Behavior of Perovskite Type Ferroelectrics," *Mat. Sci. Eng. B*, Vol. 118, pp. 7~11.
- (5) Kamlah, M., Liskowsky, A. C., McMeeking, R. M. and Balke, H., 2005, "Finite Element Simulation of a Polycrystalline Ferroelectric Based on a Multidomain Single Crystal Switching Model", *Int. J. Solids Struct.*, Vol. 42, pp. 2949~2964.
- (6) Liu, Q. D. and Huber, J. E., 2006, "Creep in Ferroelectrics due to Unipolar Electrical Loadin," *J. Euro. Ceram. Soc.*, Vol. 26, pp. 2799~2806.
- (7) Kim, S. J. and Lee, C. H., 2009, "Creep Behavior of a Poled PZT Wafer Under Longitudinal Tensile Stress and Through Thickness Electric Field," *Int. J. Solids Struct.*, Vol. 46, pp. 716-725.
- (8) Kim, S. J., 2009, "Predictions of Tensile Creep Behavior of a PZT Wafer by Normally Distributed Free Energy Model," *Mech. Mat.* Vol. 41, pp. 1253~1263.
- (9) Kim S. J., 2007, "A Prediction of Rate-Dependent Behavior in Ferroelectric Polycrystals," *Mat. Sci. Eng. B.*, Vol. 141, pp. 34~42.