

다결정 미세입자 소각입계면에서의 전위밀도 확산

마정범*

(논문접수일 2011. 09. 20, 심사완료일 2011. 10. 07)

Dislocation Density Propagation adjacent to the Low Angle Grain Boundaries of Polycrystalline Materials

Jeong Beom Ma*

Abstract

Specialized large-scale computational finite-element and molecular dynamic models have been used in order to understand and predict how dislocation density emission and contact stress field due to nanoindentation affect inelastic deformation evolution scales that span the molecular to the continuum level in ductile crystalline systems. Dislocation density distributions and local stress fields have been obtained for different crystalline slip-system and grain-boundary orientations. The interrelated effects of grain-boundary interfaces and orientations, dislocation density evolution and crystalline structure on indentation inelastic regions have been investigated.

Key Words : Dislocation density evolution(전위밀도 진화), Grain boundary(입계경계), Nanoindentation(나노인덴테이션)

1. 서론

물리적 현상에 기반한 표현은 주요한 물리적 메커니즘을 설명할 수 있어야 하고, 이러한 물리적 메커니즘은 나노인덴테이션과 같은 미세 구조물에 대한 실험 혹은 해석을 통해 분석할 수 있다. 입계구조, 방위각 그리고 분포들은 기본적인 미세구조의 특성으로 결정체 금속, 합금 등의 변형의 시작과 진화, 파손 모드를 특징짓는다. 나노인덴테이션은 경도와 연성과 같은 재료의 물성을 예측하는데 사용되는 정제된 과정을 제시하였다. Suresh 등에 따르면⁽¹⁻³⁾, 가장 핵심적인 연구 분야 중 하나는 입계 영역 사이에서 입계전위밀도가 어떻게 생성, 방출, 투과 그리고 흡수되어 나노인덴테이션에 따른 결정립 재료의 비탄성 거동에 영향을 미치는지 결정짓는 것이다. 김수영 등은⁽⁴⁾ 스테인레스 강의 결정립 크기와 인장하중 유지시간을 변화시키

며 그에 따른 크리프 거동과 피로균열에 대하여 연구를 수행한 바 있다. 상이한 전위 메커니즘을 탐구하는 물리적 크기는 원자에서 연속체에 이르는 서로 다른 공간적, 시간적 수준을 포함하고 있다. 원자 혹은 분자 해석적 방법은 결함의 생성과 관련된 예측에 최적이라 할 수 있는 반면에, 미세구조 그리고 연속체에 기반한 방법은 생성된 결함이 어떻게 진화하고 다수의 전위가 어떻게 전위밀도로 발전되는지를 알아보는데 적합하다.

본 연구의 기본 목적은 전위밀도와 비탄성 변형모드가 결함 생성 단계 이후에 어떻게 진화하는지를 이해하고 예측하는데 있다. 분자역학(Molecular Dynamics: MD) 나노인덴테이션 해석에서 구한 변위선도를 미세구조에 기반을 둔 유한요소식에 적용하여 전위밀도의 진화와 결정립응집체에 있어서의 비균질 변형모드를 살펴보았다. 비탄성 전위밀도에 기반을 둔 다중슬립 결정립 구성방정식을 이용하여, 상관관계를 가진 재료

* 한양대학교 기계공학부 (jbma218@hotmail.com)
주소: 133-791 서울시 성동구 왕십리로 222

의 메커니즘에 대해 상세한 이해와 정확한 예측을 해보고 소각 입계 방위분포를 가진 면심입방 다중결정립응집체에서의 비균질 변형모드가 어떻게 영향을 받는지 알아보았다. 이 식에서 다중슬립 결정립 방정식과 전위밀도는 가동 전위밀도, 비가동 전위밀도에 대한 연성된 진화방정식으로 연결시켜 표현하였고, 온도에 따른 유동응력과 각 슬립계의 슬립속도를 통해 다중슬립 속도감응 결정 소성 구성식을 제안하였다. 이 진화방정식은 기존의 연구에서 입증된 물리적 관계, 일반적으로 입방 결정 금속의 전위 구조의 대표적인 특성인 생성, 상호작용, 소멸과 같은 전위활동의 열적 거동을 나타내는 것에 근거를 두고 있다⁽⁵⁾.

대부분의 다중결정 구성방정식은 일반적으로 전위밀도, 슬립 투과, 흡수를 포함하고 있지 않다. 이들의 영향은 입계 방위각, 구조 혹은 입계간 응력 불균형에 따라 생성될 수도 있다. 본 연구에서는 입계 효과를 경계영역에 적용하여 슬립, 전위밀도 투과에 대하여 살펴보았다.

2. 이론

2.1 다중슬립 결정소성 구성방정식

본 연구에서 사용한 결정소성 구성방정식은 Kao 등에 의해 개발된 것을 기초로 하였다⁽⁵⁾. 이 방정식에서 변위구배는 탄성 요소와 비탄성요소로 나누어진다고 가정하였다. 속도구배 $V_{i,j}$ 를 대칭(총괄변형률텐서 D_{ij})과 비대칭 부분(총괄스핀텐서 W_{ij})으로 나누게 되면

$$V_{i,j} = D_{ij} + W_{ij} \quad (1)$$

로 표현할 수 있다. 총괄변형률텐서(D_{ij})와 총괄스핀텐서(W_{ij})는 각각 탄성요소와 소성요소로 분리되며⁽⁵⁾, 여기서 비탄성 부분은 결정 슬립률 향으로 정의된다.

$$D_{ij}^p = P_{ij}^{(\alpha)} \dot{\gamma}^{(\alpha)}, \quad W_{ij}^p = w_{ij}^{(\alpha)} \dot{\gamma}^{(\alpha)} \quad (2)$$

여기서 α 는 전체 12개 슬립계에 대한 합을 나타내고, $P_{ij}^{(\alpha)}$ 와 $w_{ij}^{(\alpha)}$ 는 단위 수직성분과 단위 슬립벡터를 정의하는 2차 텐서이다. 변형률속도에 종속되는 비탄성방정식에서 슬립률은 분해 전단응력과 기준전단응력 그리고 제품근에 비례하는 식으로 표현된다⁽⁶⁾.

2.2 국부 전위밀도 구조

재료의 파손모드에 대한 전위 거동, 상호작용, 투과에 대한 좀 더 근본적인 이해를 하기 위해 결정 소성 구성방정식을 각 결정의 전위 구조를 국부적으로 나타내는 내부변수로 사용하여 유도하였다. 특히, 가동전위밀도($\rho_m^{(a)}$)와 비가동전위밀도

($\rho_{im}^{(a)}$)를 구성방정식의 내부변수로 적용하였다. 연성재료의 비탄성 변형에서 미세구조의 특성은 전위의 생성과 동적회복에 의해 지배된다. 재료가 변형될수록 비가동 전위는 각 결정에 축적되고 이러한 전위는 가동전위의 진화를 방해하는 요소로 작용하게 된다. 그러므로, 비가동 및 가동 전위밀도는 가동전위의 연속적인 비가동화로 인해 연성된다.

각 슬립계에서 기준전단응력은 비가동전위밀도의 함수로 주어진다. 여기서 적용되는 기준전단응력은 비가동전위밀도의 제품근에 비례하는 기준응력과 관계를 갖는 전통적인 형태를 수정한 것으로 식 (3)과 같이 표현되며,

$$\tau_{ref}^{(a)} = \tau_y^{(a)} + Gb \sum_{\xi=1}^{12} \alpha_{\xi} \sqrt{\rho_{im}^{(\xi)}} \quad (3)$$

여기서 G 는 전단탄성계수, b 는 Burger 벡터의 크기, $\tau_y^{(a)}$ 는 정적항복응력, $\alpha_{\xi} (\xi=1,12)$ 는 일반적으로 일정한 값을 갖는 상호작용계수이다.

총괄전위밀도($\rho^{(a)}$)는 가동전위밀도($\rho_m^{(a)}$)와 비가동전위밀도($\rho_{im}^{(a)}$)로 구성된 것으로 가정하였다. 또한 변형률이 증가하는 동안 비가동전위밀도속도($\dot{\rho}_{im}^{(a)+}$)가 발생하거나, 소멸된다($\dot{\rho}_{im}^{(a)-}$)되는 것으로 가정하였다. 가동전위밀도에 대해서도 동일한 가정을 적용하여 가동전위밀도가 생성($\dot{\rho}_m^{(a)+}$)과 소멸($\dot{\rho}_m^{(a)-}$)되는 것으로 하였다. Kameda 등이 적용한⁽⁶⁾ 가동 및 비가동전위밀도의 생성 및 소멸에 관련된 식을 이용하여 전위의 생성, 상호작용, 포획, 회복을 평균적 개념으로 적용한 비선형연속방정식 (4)를 적용하였고, 이 식은 가동전위밀도와 비가동전위밀도의 진화과정을 표현할 수 있다.

$$\frac{d\rho_m^{(a)}}{dt} = \dot{\gamma}^{(a)} \left(\frac{g_{sour}}{b^2} \left(\frac{\rho_m^{(a)}}{\rho_m^{(a)}} \right) - \frac{g_{minter}}{b^2} \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) - \frac{g_{immob}}{b} \sqrt{\rho_{im}^{(a)}} \right) \quad (4)$$

$$\frac{d\rho_{im}^{(a)}}{dt} = \dot{\gamma}^{(a)} \left(\frac{g_{minter}}{b^2} \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) + \frac{g_{immob}}{b} \sqrt{\rho_{im}^{(a)}} - g_{reac} \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \rho_{im}^{(a)} \right)$$

g 로 표현된 4개의 상수는 가동전위밀도와 비가동전위밀도의 생성 및 소멸을 표현하는 상수이다. k 는 볼츠만 상수, H 는 활성화 엔탈피이며, 식 (4)를 통해서 전위활동의 포획과 회복은 열적거동과 관계있음을 알 수 있다⁽⁶⁾.

2.3 분자역학 해석과 유한요소 모델링

Embedded Atom Method(EAM)를 이용하여 다결정 Au에

대한 연구가 진행되었다⁽⁷⁾. 하중-변위 입력에 따른 분자역학 나노인덴테이션 해석결과로부터 접촉과 인덴테이션에 관련된 상이한 변위선도를 사용하였다⁽⁷⁾. 이 변위선도를 최대 압입깊이로 평균화 하였으며, 분자역학의 결과를 시편 높이로 평균화하여 변형률을 일치시켰다. 이 변형률을 유한요소모델의 정규화된 깊이를 결정하는데 사용하였다. 이 변형률 정보를 통해 변위 이력을 접촉반경의 함수로 나타내 분자역학 해석의 하중-변위 선도와 유사한 로딩, 언로딩 특성을 반영하였다.

유한요소해석을 위해, 총괄변형률텐서(D_{ij})와 소성변형률텐서(D_{ij}^p)는 결정재료의 응력상태를 지속적으로 갱신하였다⁽⁷⁾. 소성변형률텐서를 계산하기 위해 분해전단응력의 시간변형량과 응력상태를 사용하여 각 슬립계에 대한 연성된 비선형미분방정식을 구하여 식 (5)에 나타내었다.

식 (5)의 유도과정에서 격자뒤틀림은 모든 3개 직교방향의 탄성스핀함수로 가정하였으며, 가동 및 비가동전위밀도에 대한 진화식 식 (4)를 갱신하는데 사용된다.

$$\dot{\tau}^{(\alpha)} = 2\mu \left(P_{ij}^\alpha D_{ij} - P_{ij}^\alpha \left[\sum_{\beta=1}^{12} P_{ij}^\beta \dot{\gamma}_{ref}^{(\alpha)} \left(\frac{\tau^{(\beta)}}{\tau_{ref}} \right)^{\frac{1}{m}} \right] \right) \quad (5)$$

2.4 입계 계면 영역

입계 계면은 다결정응집체의 기계적, 물리적 특성을 결정하는데 많은 역할을 한다. 대부분의 입계 계면 해석 모델의 경우 입계면을 1차원 강체벽으로 가정하지만 입계형태, 구조, 경계면의 부조화를 정확하게 반영하지 못하였다. 본 연구에서는 입계영역을 주변의 벌크 결정립과 다른 구조 및 물성을 갖는 것으로 가정하였으며, 이 입계층을 결정영역으로 하여 상이한 방위각을 가지도록 하였다. 슬립투과와 임피던스를 분석할 수 있는 운동학적 개념을 입계영역에 적용하였다. 이 개념은 경계영역에서 회전하는 슬립계의 분석을 기본으로 하고 있으며, 변형률이 증가하여 슬립과 전위밀도의 호환여부에 따라 투과 혹은 축적을 묘사하는데 사용하였다⁽⁹⁾.

3. 나노인덴테이션의 계층적 모델링

3.1 MD해석모델과 미세구조해석 FE모델 연계

분자역학(MD) 해석은 핵생성현상을 예측하는데 기본이라 할 수 있다. 그러나, MD 모델링 기법은 공간과 시간적 제약으로 인해 핵생성 단계 이후의 미세구조를 관측하거나 이해하는데는 제약이 따른다.

이러한 제약조건을 극복하기 위하여 2.3절에서 언급한 바 있는 스케일링 기법을 적용하였다. 변형률의 스케일불변 특성을 이용하여 미세구조 유한요소해석 모델의 결정크기, 압입깊이, 시편크기를 결정하는데 적용하였다. 분자역학 모델과 유한요

소해석 모델에서의 스케일링 요소를 Table 1에 나타내었다. 정규화된 압입자의 크기와 압입깊이, 변형률을 동일하게 적용함으로써 두 해석모델 간의 계층적 구조를 완성하였다. 유한요소 해석 모델은 임의의 소각입계를 갖는 Au로 설정하였다.

소각입계를 갖는 시편에 대하여 압입위치를 변화 시키면서 압입해석을 실시하였다. Fig. 1에서와 같이 압입자의 압입위치가 벌크결정립의 가운데 위치한 경우(model 1: 방위각 15°)와 입계면 바로 위에서 압입하는 경우(model 2: 방위각 15°), 소각입계의 임의 방위각을 상이하게 하고 압입은 벌크결정립 가운데에 적용한 경우(model 3: 방위각 30°)에 대해 해석을 실시하였으며, Au 결정립의 물성치는 참고문헌⁽⁸⁾과 동일하게 적용하였다. 각 경우에서 스케일링 기법에 따라 해석 모델에 적용될 결정립의 크기를 계산하였으며, 이를 기준으로 하나의 결정립을 압입하기 위한 깊이(9%)를 결정하였다. 동일한 압입깊이(9%)에 대한 응력, 전위밀도를 인덴테이션 위치와 방위각 변화에 따른 거동을 통하여 고찰하였다.

3.2 미세구조 FE해석 모델의 타당성

계층적 모델에 대한 신뢰성을 검증하기 위하여 동일한 스케일링 개념을 적용한 단결정 Au를 압입한 경우에 대한 해석모델의 결과와 실험에서의 결과를 경도값을 비교함으로써 유효성을 입증하였으며⁽⁸⁾, 본 연구에서와 동일한 압입깊이에 대한 인덴테이션을 실시한 결과를 Table 2에 정리하였다. 경도 값은 약 2.0GPa로 근사한 값을 나타냈으며, 그 결과를 실험에서 구한 경도값과 비교하였을 때 오차범위 내에서 잘 일치하고 있음을 알 수 있다.

실험과 해석결과의 차이는 Berkovich 압입자를 실험에서 사용하였고, 상대적으로 두꺼운 시편을 사용하여 압입깊이가 커짐에 따라 경도 값이 증가하였다고 사료되며, 경도 계산시 적용한 접촉면적의 계산법에 따른 차이에서 발생한 것으로 판단된다⁽⁸⁾.

Table 1 Scaling of MD simulations to FE model

	MD	FE
No. of Grains	15	15
Grain Size	12nm	0.003mm
Indenter Diameter	8nm	0.002mm
Max. Depth	2nm	0.0005mm
Normalized Length (Width/Height)	1.667	1.667
Normalized Indenter Size	0.667	0.667
Normalized Depth	0.25	0.25
Strain	0.056	0.056

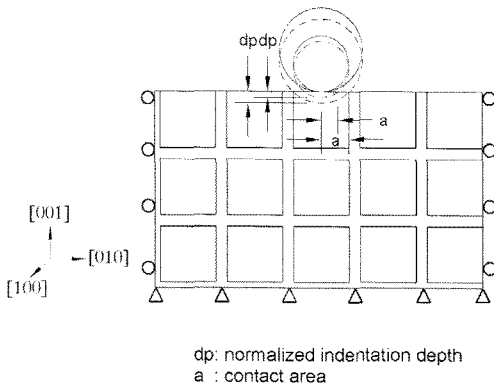


Fig. 1 Schematic model for FE analysis

Table 2 Hardness comparison with experiments (9%)

strain	model 1 ⁽⁸⁾	model 2 ⁽⁸⁾	Ref. ⁽²⁾	Ref. ⁽¹⁰⁾
9%	1.6	1.8	2.0 ± 0.6	2.05 ± 0.62

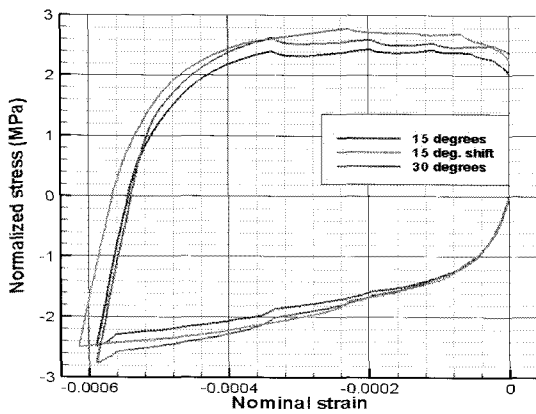


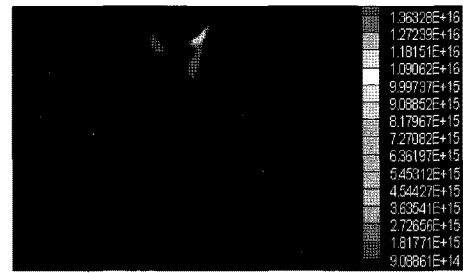
Fig. 2 Stress-strain curves (9%)

3.3 압입위치에 따른 결과

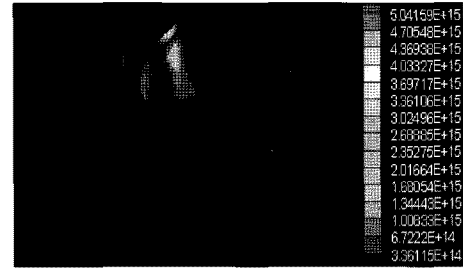
세 가지 모델에 대한 압입 해석을 실시하여 압입과정 중의 응력-변형률 선도를 Fig. 2에 나타내었다. 각각의 경우 로딩과 언로딩 과정 중에 일시적인 언로딩 현상이 나타는데 이는 상이한 슬립계 사이에서 슬립현상이 초기화되면서 발생하는 것으로 사료되며, 실험결과와 잘 일치하였다⁽⁷⁾.

압입과정 중에서 전위밀도가 어떠한 슬립계를 중심으로 전위되는지를 살펴본 결과 각 해석모델 별로 서로 상이한 슬립계가 활발한 활동을 하였음을 알 수 있었다. Model 1의 경우 슬립계 5, Model 2의 경우 슬립계 9, Model 3의 경우 슬립계 4가 가장 활발하였다. 이는 압입과정 중에서 비가동전위밀도가 가장 큰 경우의 슬립계의 데이터를 비교한 것으로 동일한 소각입계 조건인 경우 압입위치에 따라, 또한 방위각의 변화에 따라 전위밀도의 진화에 기여하는 큰 슬립계가 변화됨을 알 수 있었다.

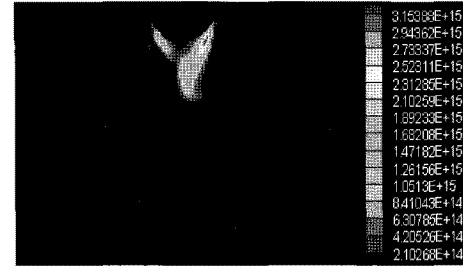
각 해석 모델에 대해 하나의 결정립을 압입하는 최대 압입깊이(9%)에서의 비가동전위밀도 값을 분석하여 그 결과를 Fig.



(a) Model 1



(b) Model 2



(c) Model 3

Fig. 3 Immobile dislocation density at maximum indentation depths (9%)

3에 나타내었다.

그림에서 보는 바와 같이 동일한 압입깊이에 대하여 방위각이 상대적으로 작은(15°) 소각입계의 벌크입자에 압입한 경우(Model 1) 압입자의 우측 하단 면에서 가장 큰 비가동전위밀도가 국부적으로 나타남을 알 수 있었다. 압입을 결정립계 면 위에서 실시한 경우(Model 2)와 방위각이 큰 경우(30°: Model 3)의 비가동전위밀도는 Model 1의 경우보다 적게 나타났으며 압입자 주변의 결정립에 다소 넓게 분포됨을 알 수 있었다. Model 2의 경우 벌크결정립간의 입계면에 압입을 함으로써 경계면에서의 전위밀도 진화 및 투과가 Model 1에 비해 용이하지 않았던 것으로 판단되며, Model 3의 경우 방위각이 커짐에 따라 슬립계의 슬립현상이 상대적으로 적게 나타난 것으로 판단된다. Fig. 3의 비가동전위밀도분포를 통해 총괄전위밀도의 진화에 있어 나노인덴테이션의 효과를 알 수 있으며, 최대 압입깊이에서의 분포도를 통해 가장 활발한 슬립계를 알 수 있었다. 각 해석 모델에 대해 총괄비가동전위밀도에서 가장 활발한 슬립계가 전체 전위밀도 진화과정에서 차지하는 비중은 계산 결과 약 40% 이상임을 알 수 있었다. 이 결과로부터 전위밀도는 로딩과정 중에 계속적으로 축적됨을 알 수 있다. 또한, Fig. 4에

나타난 바와 같이 언로딩과정 중에도 비가동전위밀도가 증가하는 것을 통해 압입되는 부근에서 공간적으로 전위밀도가 축적되고 있음을 알 수 있다. 이는 전위밀도가 언로딩 중에도 소멸되는 것이 아니라, 축적되거나 입계면 영역에 흡수되고 있음을 의미한다.

4. 결론

다중슬립결정 비탄성 구성방정식은 온도와 연성된 가동 및 비가동전위밀도로 표현되었으며, 이를 통해 연성 변위모드와 이의 원인이 되는 나노인덴테이션 및 입계영향과 함께 다중결정립응집체에 있어서의 전위밀도 진화에 대하여 살펴보았다. 나노인덴테이션 변위곡선은 분자역학 결과를 적용하였으며, 전위밀도 생성을 계산할 수 있는 유한요소모델을 단결정립에 적용하여 경도값 비교를 통하여 검증하였다. 검증된 결과를 통해 소각입계 방위각을 가진 재료에 대한 압입해석을 통해 입계영역에서의 전위밀도 진화에 대해서도 고찰하였다. 이 결과를 바탕으로 향후 다양한 입방구조를 가진 다중결정립에 대한 압입해석모델의 개발이 요구되며, 결정립 크기에 따른 비균질 변위 모드에 대한 연구가 진행되길 바란다.

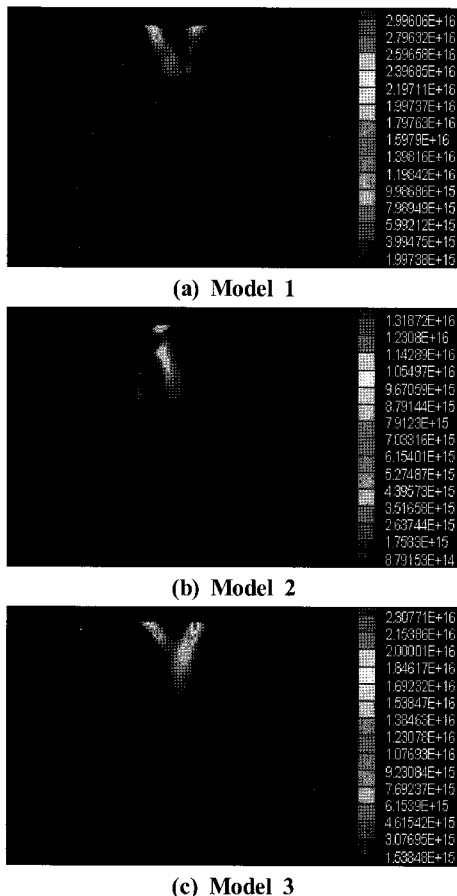


Fig. 4 Immobile dislocation density at unloading stage (9%)

참고 문헌

- (1) Suresh, S., Nieh, T.G., and Choi, B.W., 1999, "Nano-indentation of Copper Thin Films on Silicon Substrates," *Scripta Materialia*, Vol. 41, No. 9, pp. 951~957.
- (2) Gerberich, W. W., Tymiak, N. I., Grunlan, J.C., Horstemyer, M. F., and Baskes, M. I., 2002, "Interpretations of Indentation Size Effects," *J. of Applied Mechanics-Transactions of the ASME*, Vol. 69, No. 4, pp. 433~442.
- (3) Hasnaoui, A., Derlet, P. M., and Van Swygenhoven, H., 2004, "Interaction between Dislocations and Grain Boundaries under an Indenter - a Molecular Dynamics Simulation," *Acta Materialia*, Vol. 52, No. 8, pp. 2251~2258.
- (4) Kim, S. Y., Kim, M. J., Rho, Y. H., and Lim, B. S., 2000, "The Effect of Tensile Hold Time on the Fatigue Crack Propagation Property and Grain Size on the Creep Behavior in STS 316L," *KSMTE, Spring Conference*, pp. 373~378.
- (5) Zikry, M. A., and Kao, M., 1996, "Inelastic Microstructural Failure Mechanisms in Crystalline Materials with High Angle Grain Boundaries," *J. of Mech. Phys. Solids*, Vol. 44, No. 11, pp. 1765~1798.
- (6) Kameda, T., and Zikry, M. A., 1998, "Intergranular and Transgranular Crack Growth at Triple Junction Boundaries in Ordered Intermetallics," *Int. J. of Plasticity*, Vol. 14, No. 8, pp. 689~702.
- (7) Schall, J. D., and Brenner, D. W., 2004, "Atomistic Simulations of the Influence of Pre-existing Stress on the Interpretation of Nanoindentation Data," *J. of Materials Research*, Vol. 19, No. 11, pp. 3172~3180.
- (8) Ma, J. B., Zikry, M. A., Ashmawi, W. M., and Brenner, D. W., 2007, "Hierarchical Modeling of Nanoindentation and Microstructural Evolution of F.C.C. Gold Aggregates," *J. of Materials Research*, Vol. 22, No. 3, pp. 627~643.
- (9) Ma, J. B., and Zikry, M. A., 2009, "Nanoindentation and Microstructural Evolution of Polycrystalline Gold," *J. of Materials Research*, Vol. 24, No. 3, pp. 1093~1104.
- (10) McCann, M. M., and Corcoran, S. G., 2004, "Nanoindentation Behavior of Gold Single Crystals," *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* Vol. 795, U8.30.1, 2004.