

Multi-scale simulation of drying process for porous materials using molecular dynamics (part 3: multi-scale simulation)

S.M. Baik and Y. T. Keum^{*,†}

Department of Precision Mechanical Engineering, Graduate School in Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

^{*}Division of Mechanical Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

(Received June 15, 2005)

(Accepted July 1, 2005)

Abstract In this study, the numerical simulation of drying processes for porous materials is performed by employing the hierarchical multi-scale modeling and the nano-scale material properties obtained from the molecular dynamics simulation. The multi-scale simulation system is set up using pre- and post-processors and the drying process of electric porous ceramic insulator is simulated. The temperature, moisture, residual stress, and displacement distributions are compared with those based on homogenized properties.

Key words Porous materials, Drying process, Molecular dynamics, Homogenization method, Multi-scale simulation, Atomic structure, Gel structure, Porosity

분자동역학을 이용한 다공성 물질 건조공정 멀티스케일 시뮬레이션(3부: 멀티스케일 시뮬레이션)

백성민, 김영탁^{*,†}

한양대학교 일반대학원 정밀기계공학과, 서울, 133-791

^{*}한양대학교 기계공학부, 서울, 133-791

(2005년 6월 15일 접수)

(2005년 7월 1일 심사완료)

요약 건조공정 중인 다공성 물질의 물성은 재료의 비균질성 즉 전위, 입자, 입계, 균열, 기공과 같은 미시적인 결함 인자들의 영향을 받는다. 따라서 다공성 물질의 건조공정을 전산 시뮬레이션하기 위해서는 연속체 스케일과 원자 스케일 해석 그리고 스케일별 해석 한계 극복이 요구된다. 본 연구에서는 분자동역학 시뮬레이션으로 계산한 나노스케일 물성을 연속체 스케일 해석에 연계하는 계층적 멀티스케일 시스템을 구축하고, 다공성 세라믹 애자의 건조공정을 전산 시뮬레이션 하였다. 해석 결과, 온도, 습도, 변형률 그리고 응력 분포를 기존의 결과들과 비교하여 검증하였다.

1. 서론

다공성 물질을 건조하거나 습한 환경에 노출시키면 열과 수분이 외부로 전달된다. 열 및 수분 전달로 인한 온도 및 습도의 변화는 물질 체적을 변화시켜 수열 응력을 유발시킨다. 즉 다공성 제품의 품질은 외양뿐만 아니라 건조공정 시의 온도, 습도, 응력, 변형률 등의 공정 변수에 크게 영향을 받는다. 최근까지도 다공성 물질의 생산 공정은 다수의 공정 변수를 갖는 복합공정이기 때문에

이들의 영향을 정량적으로 평가하는 것은 매우 까다로운 현장 경험에 기초한 기술자의 노하우에 의존해 왔다. 또한 이런 공정 변수들은 재료의 비균질성 즉 전위, 입계, 균열, 기공과 같은 미시적인 결함과도 연관되어 있기 때문에 다공성 물질의 건조공정을 해석하기 위해서는 연속체 스케일과 원자 스케일 해석을 동시에 수행할 수 있는 멀티스케일 시뮬레이션이 요구된다.

현대의 진보된 컴퓨터 처리속도와 용량에도 불구하고 원자 스케일 해석만으로는 원자수의 제한을 극복할 수 없기에 재료의 거시적 물성이나 거동을 해석할 수 없다. 그 해결책으로 미국의 National Nanotechnology Initiative 보고서[1]는 신소재 전산모사의 중요 도구로서 멀티스케일 시뮬레이션(multi-scale simulation)을 들고 있다. 이

[†]Corresponding author

Tel: +82-2-2220-0436

Fax: +82-2-2298-6194

E-mail: ytkeum@hanyang.ac.kr

는 현재의 하드웨어 기술만으로도 신소재의 물성에 대한 예측이 가능한 소프트웨어적 돌파구로 여겨지고 있기 때문이다. 따라서 이에 대한 기술 개발은 선진국에서도 새로이 시도되고 있는 전산모사 방법으로, 신소재 개발의 가이드라인을 제시하여 물성을 예측하고 합성하는 새로운 패러다임이 될 수 있으리라 기대하고 있다.

멀티스케일 시뮬레이션의 대표적인 연구로 Abraham[2]은 분자동역학과 FEM(finite element method)을 이용하여 silicon slab의 microcrack 전파에 대한 연구를 하였다. Gumbsch와 Ortiz 등[3, 4]은 재료의 미시적, 거시적 구조나 거동을 해석하기 위해서 LS(lattice simulation)와 FEM을 연계한 멀티스케일 시뮬레이션을 제시하고, 재료의 크랙진행 및 파괴거동을 시뮬레이션 하였다. Ichikawa 등[5-7]은 비균질 클레이(clay) 재료의 확산계수 및 점성 등과 같은 미시적 물성을 분자동역학으로 계산하고, 미시적 물성을 거시적 물성으로 확장하기 위해서 균질화법을 제시하였다. 이 멀티스케일 시뮬레이션을 이용하여 실험으로 구하기 어려운 긴 시간 경과에 따른 재료의 물성변화를 예측하고, 그 응용으로 고준위 방사성 폐기물의 차폐물질로 사용될 수 있음을 연구하였다. 이와 같이 멀티스케일 시뮬레이션에 대한 다양한 연구가 수행되고 있지만, 아직 그 응용분야가 제한적이며 활발한 연구가 진행되고 있다.

본 연구에서는 분자동역학으로 건조과정 중인 다공성 물질의 나노스케일 구조를 해석하고 얻은 나노 물성과 균질화법으로 마이크로스케일 구조를 해석하여 얻은 거시적 물성을 서로 연계한 계층적 멀티스케일 해석 시스템을 구축하였다. 이를 통해 다공성 세라믹 애자의 건조공정을 전산 시뮬레이션하고 구한 온도, 습도, 변형률 그리고 응력 분포를 기존의 결과들과 비교하여 고찰하였다.

2. 멀티스케일 시뮬레이션

2.1. 멀티스케일 모델링

현대의 진보된 컴퓨터 처리속도에서 불구하고 1023개 이상의 원자들로 구성되는 연속체 모델의 거시적 물성 해석에는 원자 스케일 해석을 사용하기 어렵다. 그리고 원자 스케일 물질은 표면적의 영향이 질량의 영향보다 크며, 질량의 불연속적인 현상 등이 나타나기 때문에 연속체적 접근법만으로는 원자들 간의 거동 및 물성 그리고 나노 구조를 해석하기에 한계가 있다[8, 9].

본 연구에서는 원자 모델을 해석할 수 있는 분자동역학과 연속체 모델을 해석하는 유한요소법을 서로 연계한 멀티스케일 모델을 사용하여 다공성 물질 중 세라믹 애자의 건조공정을 시뮬레이션하였다. Fig. 1은 계층적 멀티스케일 모델링의 개략도를 나타낸 것이다. 매크로스케일의 애자는 마이크로스케일 관점에서 보면 pore-solid 구조로 이루어져 있고, 다시 pore-solid 구조를 나노스케일 관점에서 보면 겔 구조로 이루어져 있다. 겔 구조는 원자로 구성되어 있다.

이를 위하여 균질화법의 코드를 건조과정 시뮬레이션 시스템에 적용하였다. 해석하고자 하는 다공성 물질의 실험적인 결과로부터 비균질성을 나타내는 미시적 구조를 묘사할 수 있는 해석모델을 생성하고 이 모델로부터 예측한 균질화된 탄성계수를 사용하여 건조공정을 거시적인 스케일에서 시뮬레이션하였다. 시뮬레이션의 결과와 다공성 제품의 응력분포와 변형형상을 해석하여 일반적인 물성치로 해석한 결과와 비교, 분석하였다. 또한 미시적 구조의 응력분포와 변형형상도 해석하여 제시하였다.

그러나 균질화법만으로는 크기효과(size effect)를 반영

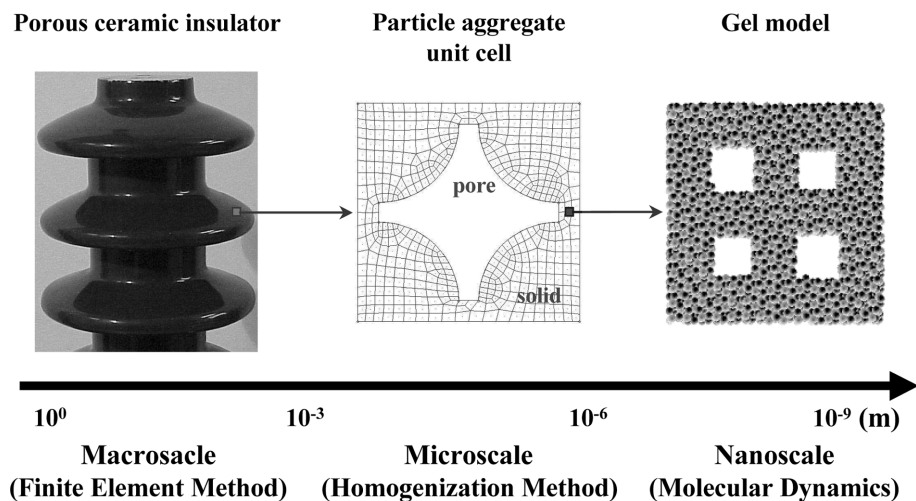


Fig. 1. Schematic view of hierarchical multi-scale modeling.

한 해석이 불가능하고 원자스케일에서의 거동을 해석하기 위하여 기존의 FEM 해석방법 외에 추가적인 연구가 필요하다. 최근에 이와 관련된 다양한 연구가 시도되고 있지만 해석이 가능한 조건이 제한적이므로 본 연구에서는 분자동역학법과의 연계를 통하여 원자스케일에서의 거동을 해석하고 크기효과를 반영하여 해석 결과에 타당성을 부여하고 응용 분야를 확대하였다.

2.2. 미시적/거시적 물성

다공성 물질의 미시적 거동 및 물성을 구하기 위해서 원자로 이루어진 겔 구조를 원자 겔 모델로 만들고 분자동역학 시뮬레이션을 수행하였다. 그 결과 겔 구조의 미시적 특성을 고려한 탄성계수를 계산할 수 있었다 [10]. 그러나 분자동역학을 이용하여 구한 물성은 나노스케일 물성으로서 매크로/마이크로스케일의 유한요소 해석에 바로 대입하여 사용할 수 없다. 따라서 미시적 물성과 거시적 물성을 연결하는 방법으로 균질화 이론 [11]을 이용하였다. 탄성계수를 원자스케일로부터 계산하고 균질화법을 이용하여 마이크로스케일에서 다공성 물질의 구조를 다시 해석하여 거시적인 해석을 위한 탄성특성을 예측하였다. 분자동역학법을 이용하여 다공성 물질을 해석하기 위해서 우선 재료의 원자구조를 이상화하여 가상적인 재료 모델링을 하였다. 그러나 원자의 종류와 개수 그리고 구조를 결정하고 전산 처리할 단위계를 구성하는 것은 매우 어려운 문제이므로 이는 실험적으로 보고된 결과를 분석하여 해석 단위계를 생성하였다.

겔 모델의 탄성계수를 마이크로스케일 모델(*particle aggregate unit cell*)의 균질화 탄성계수 계산에 삽입하면 유한요소 해석에서 사용할 수 있는 거시적 탄성계수가 완성된다. 이렇게 구한 탄성계수는 건조공정 중 나타나는 미시적 물성 변화를 고려한 애자의 탄성계수가 된다. 균질화법의 이론 전개 및 마이크로스케일 모델의 응용은 참고문헌 [11]에 자세히 설명되어 있다.

원자와 분자의 거동을 정확하게 모사하기 위해서 포텐셜 함수에 대한 연구를 수행하였다. 현재 다양한 금속 및 다공성 물질의 포텐셜 함수에 대한 연구 결과가 보고되어 있지만 이들을 본 연구에 직접 사용하기에는 부적합했다. 따라서 기존에 보고된 포텐셜 함수를 참고하여 연구에 필요한 포텐셜 함수를 유도하였다.

분자동역학법과 균질화법을 결합하여 탄성계수를 수식화하고 건조공정의 멀티스케일 시뮬레이션 시스템을 개발하고 다양한 스케일 조건에서 다공성 제품의 응력 분포 및 변형형상을 해석하고 비교하였다. 이로써 거시적인 물성뿐만 아니라 미시적인 물성을 모두 구할 수 있었다.

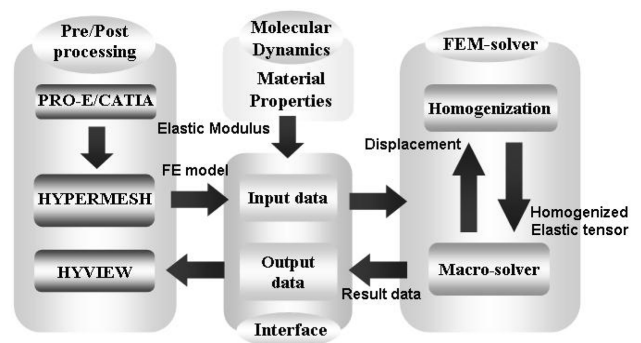


Fig. 2. Multi-scale simulation system for the drying process of porous materials.

3. 수치해석

3.1. 해석 시스템

다공성 물질 건조공정의 온도, 습도, 응력, 변형률 해석 유한요소법은 Keum 등 [10]의 연구로부터 도입한 것으로 멀티스케일 모델링의 거시적(마이크로-매크로 스케일) 해석을 담당하며, 이 연속체 스케일 해석을 위한 시뮬레이션 시스템의 타당성 및 유용성은 검증된바 있다 [12].

Fig. 2은 멀티스케일 시뮬레이션 시스템의 구성도이다. 본 시스템은 크게 전처리, 미시적/거시적 해석모듈, 후처리로 나눌 수 있다. 전처리에서는 해석 대상인 다공성 물질의 미시적 구조와 제품의 3차원 축대칭 형상을 Pro-E/Catia로 모델링하고 단면데이터를 받아 Hypermesh에서 유한요소 메쉬를 생성한 후, 전처리 인터페이스 모듈에서 미시적/거시적 해석모듈의 입력 데이터를 만드는 과정을 수행한다.

미시적 해석모듈인 Homogenization은 전처리에서 얻어진 입력데이터를 받아서 재료의 미시적 구조를 해석하여 균질화 탄성계수를 계산하고 거시적 해석모듈로 보낸다. 일반적으로 탄성계수는 상수 상태로 주어지는데 본 연구의 탄성계수는 겔 공극률에 따른 함수식으로 표현함으로써 해석 시간동안 미시적 물성 변화를 반영하게 된다.

거시적 해석모듈은 전처리에서 입력데이터를 받아 열 및 습도전달의 유한요소 해석을 수행한다. 온도-습도장 해석은 경계조건을 시간과 위치에 따라 달리 부여할 수 있고, 상변화 과정 중의 잠열의 효과를 고려할 수 있다. 온도 및 습도분포는 주응력분포 및 변형해석을 위하여 응력장의 입력데이터로 사용되어 진다. 응력장 해석은 온도구배 및 습도구배에 의한 습열응력과 변형형상을 해석하는 유한요소 해석모듈로써 응력장 해석을 위한 재료의 거동은 열습도 탄성 거동(hygrothermoelastic behavior)으로 간주하고 해석한다 [12].

후처리는 해석결과를 후처리 퓌름으로 전환해주는 후처리 인터페이스 모듈과 해석결과를 가시화하기 위한 HyView로 구성된다.

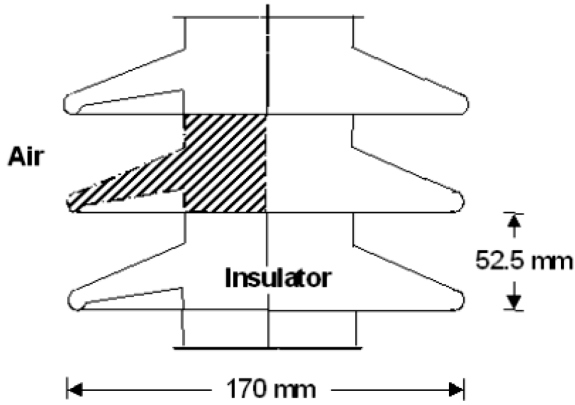


Fig. 3. Schematic view of porous ceramic insulator.

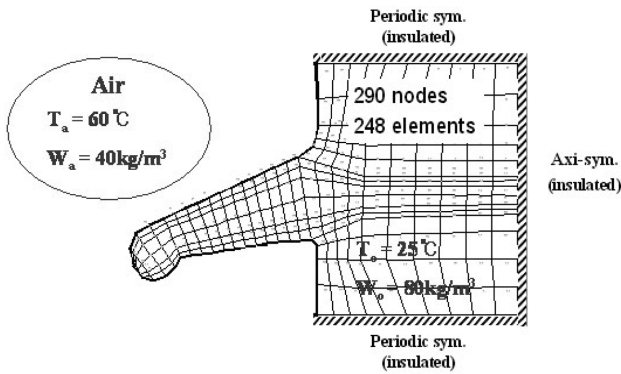
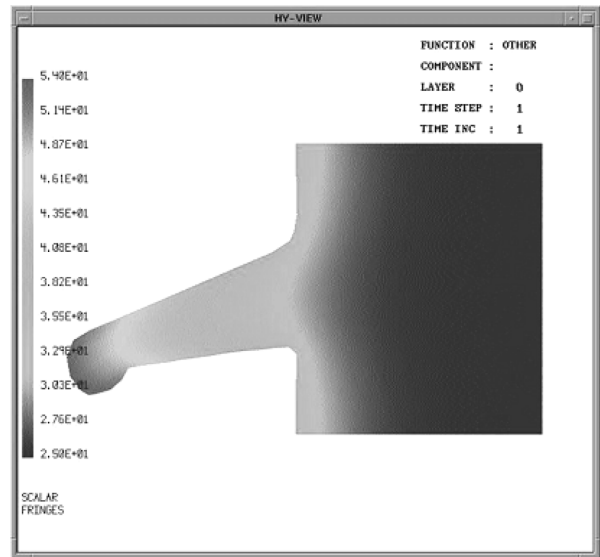


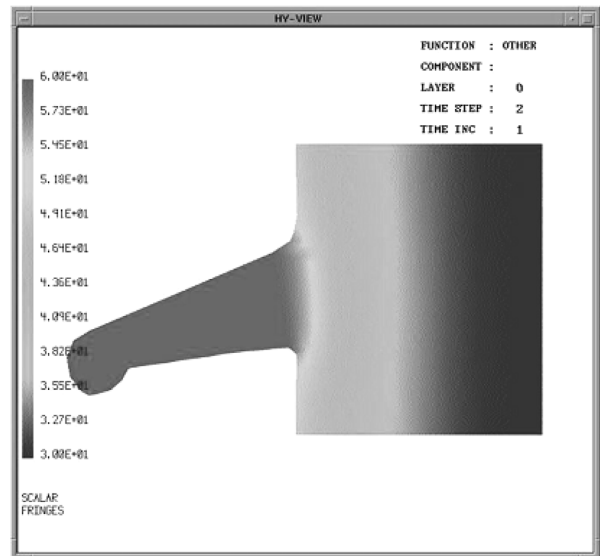
Fig. 4. Finite element mesh, initial condition, and boundary condition for simulating the drying process of porous ceramic insulator.

3.2. 유한요소 모델

본 연구에서는 균질화 물성에 기초한 유한요소법을 이용한 Keum 등[11]의 연구와 동일한 건조공정의 초기조건 및 경계조건을 사용하였다. 해석에 사용된 다공성 세라믹 애자의 거시적 유한요소 모델은 290개의 절점과 248개의 선형 사각형 요소로 이루어져 있다. Fig. 3는 애자의 개략도이고, 축대칭 부분을 음영처리 하였다. Fig. 4은 건조과정 시뮬레이션에 사용된 애자의 유한요소 모델과 초기조건 및 경계조건을 나타내었다. 초기에 애자의 내부 온도는 25°C, 습도는 80 kg/m³으로 균일한 상태이고, 향온, 향습로의 온도와 습도는 각각 60°C와



(a) After drying for 1 hour



(b) After drying for 5 hours

Table 1
Material properties of porous ceramic insulator

Material property	Value
Mass density	2000 kg/m ³
Volumetric heat capacity	1.214E+6 J/m ³ °C
Heat conduction	0.441 J/m°Csec
Heat-moisture diffusion	0.37E-7 kg°Csec
Moisture diffusion	0.667E-7 m ² /sec
Moisture-heat conduction	0.18 Jm ² /kgsec
Convective heat-transfer coefficient	20 W/m ² °C
Convective moisture-transfer coefficient	5.0E-6 m/sec
Thermo-gradient coefficient	0.56 kg/m ³ °C
Heat of phase change	2.5E+6 J/kg
Ratio of the vapour diffusion coefficient to the coefficient of the total diffusion of moisture	0.3
Thermal conductivity	0.34 W/m°C
Moisture conductivity	2.4E-7 m ² /sec
Elastic modulus	0.69E+11 Pa
Hygro expansion	0.4E-4 m ³ /kg
Thermal expansion	0.3E-6°C ⁻¹

Fig. 5. Temperature distribution of porous ceramic insulator.

40 kg/m³으로 유지된다. 그리고 애자의 초기 물성치는 Table 1에 정리하였다.

3.3. 온도-습도 해석

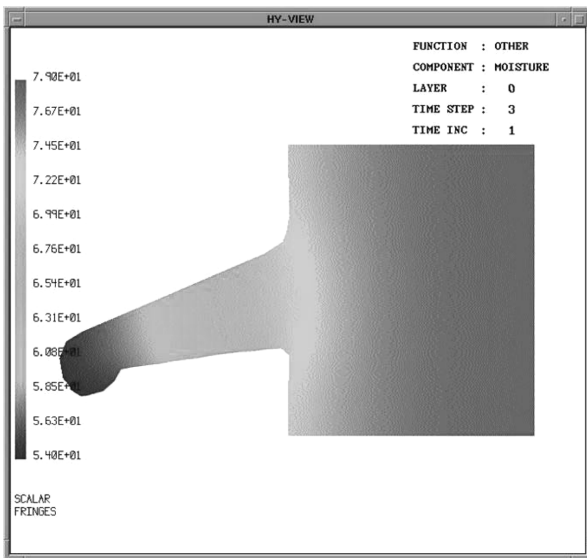
건조가 진행됨에 따라 향온, 향습로에 노출된 경계에서 애자 내부로 열 및 습도전달이 발생한다. Fig. 5의 (a)와 (b)는 각각 1시간과 5시간이 지난 후 애자의 온도 분포를 나타낸 것이다. 열전달은 외부에서 내부로 일어나고 있음을 알 수 있다. Fig. 6의 (a)와 (b)는 각각 1시간과 5시간이 지난 후 애자의 습도분포를 나타낸 것이다. 습도전달이 내부에서 외부로 일어나면서 애자 내부

의 습도가 점차적으로 감소함을 알 수 있다.

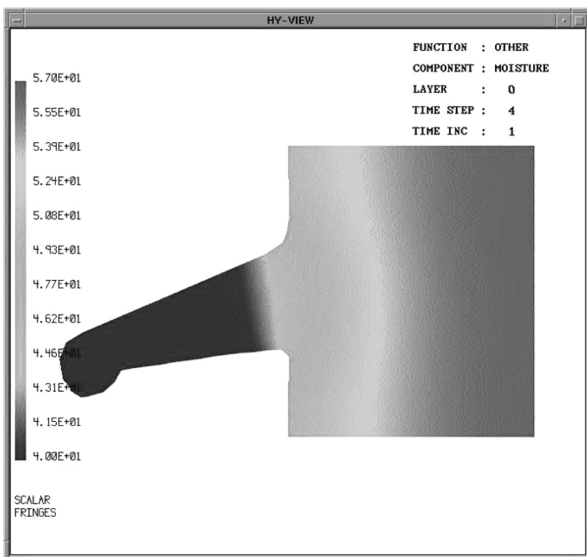
온도-습도 초기조건 및 경계조건은 Keum 등[11]의 연구와 동일하게 하였고, 분자동역학을 사용하여 구한 탄성계수가 온도 및 습도에 영향을 미치지 않기 때문에 기존의 결과와 동일함을 알았다.

3.4. 변형 및 응력 해석

Fig. 7(a)와 Fig. 8(a)는 건조 1시간 후의 주응력분포를 나타낸 것이다. 1시간이 지난 후 최대 주응력은 Keum 등[11]의 해석 결과 27 MN/m²이고, 본 연구의 해석 결과 45 MN/m²이다. 두 해석 결과는 유사한 응력분포 경

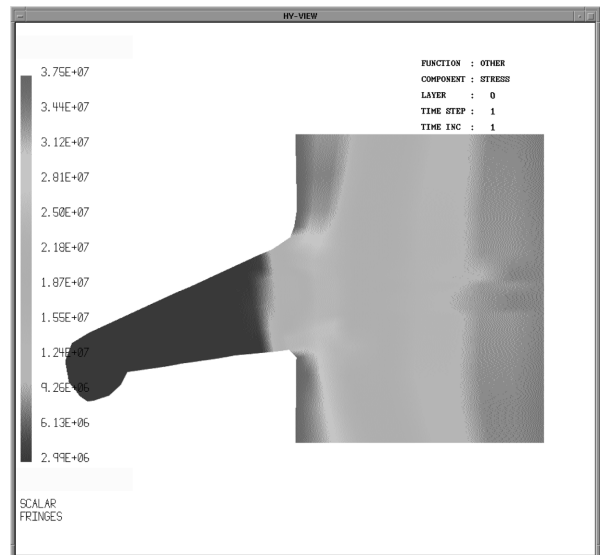


(a) After drying for 1 hour

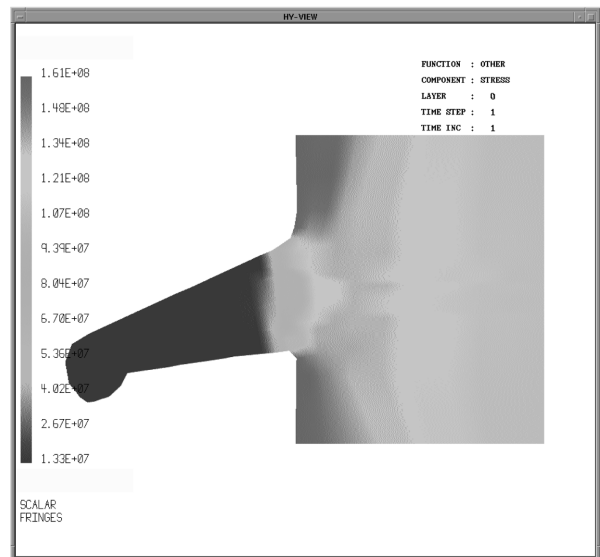


(b) After drying for 5 hours

Fig. 6. Moisture distribution of porous ceramic insulator.

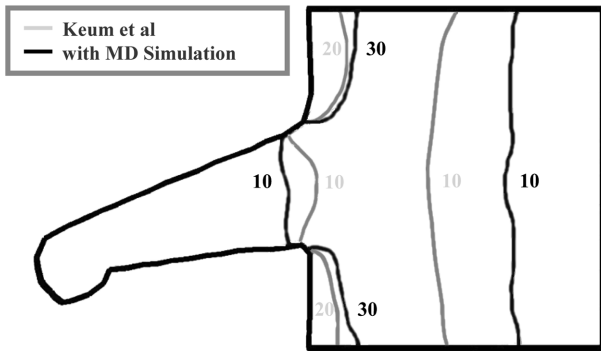


(a) After drying for 1 hour

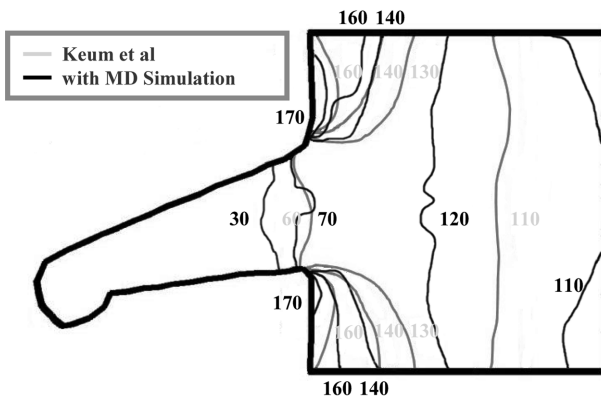


(b) After drying for 5 hours

Fig. 7. Principal stress distribution of porous ceramic insulator.



(a) After drying for 1 hour



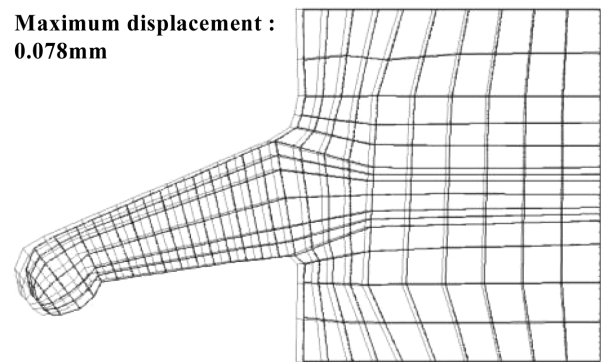
(b) After drying for 5 hours

Fig. 8. Comparison of the principal stress distribution of porous ceramic insulator between Keum *et al.* [1] and present result.

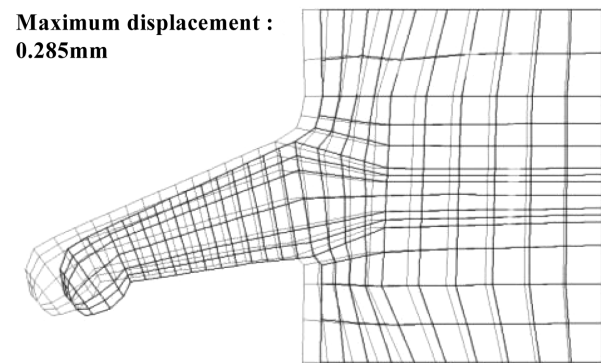
향을 나타내고 있다.

Fig. 7(b)와 Fig. 8(b)는 건조 5시간 후의 주응력분포를 나타낸 것이다. 5시간이 지난 후 최대 주응력은 Keum 등[11]의 해석 결과 130 MN/m^2 이고, 본 연구의 해석 결과 194 MN/m^2 이다. 두 해석 결과는 유사한 응력분포 경향을 나타내고 있으나, 본 연구의 해석 결과가 가파른 응력 변화 분포와 높은 응력 상태를 보여주고 있다. 그리고 해석 시간이 경과함에 따라 최대 잔유응력 값이 점점 차이를 보이는 것은 건조가 진행될수록 애자 내부의 수분 감소에 따른 수축으로 탄성계수가 빠르게 증가하기 때문으로 사료된다.

Fig. 9은 각각 1시간과 5시간이 지난 후 애자의 수축변형 형상을 나타낸 것이다. 변형의 정도가 작아 열배로 확대하여 나타내었다. 옅은 회색으로 표시된 부분이 초기형상이고, 검은색으로 표시된 부분이 변형된 애자의 형상이다. 최대 수축 변위는 1시간이 지났을 때 0.078 mm 이고, 5시간이 지났을 때 0.285 mm 이다. Keum 등[11]의 해석 결과는 각각 0.061 mm , 0.222 mm 이었다. 이렇게 두 해석의 최대 수축 변위가 차이를 보이는 것은 잔유응력의 차이 때문인 것으로 사료된다.



(a) After drying for 1 hour



(b) After drying for 5 hours

Fig. 9. Deformed shape of porous ceramic insulator.

4. 결 론

본 연구에서는 원자 스케일 해석으로 구한 다공성 물질의 미시적 물성과 균질화법으로 구한 거시적 물성을 이용하여 건조공정 중의 연속체 스케일 변수들과 원자 스케일 변수들의 변화를 고려한 계층적 멀티스케일 해석 시스템을 구축하고 다공성 세라믹 애자의 건조 공정을 전산 시뮬레이션하였다. 이러한 계층적 멀티스케일 해석 시스템의 구축 및 수치해석을 통하여

- 1) 나노스케일 물성 변화를 고려한 계층적 멀티스케일 시스템으로 다공성 세라믹 애자의 건조공정을 전산 시뮬레이션하면 정도 높게 변형 및 응력 해석이 가능하다.
- 2) 분자동역학 시뮬레이션을 이용하면 온도 변화에 따른 물성을 구할 수 있을 뿐만 아니라 공극 변화에 따른 다공성 물질의 기계적 특성을 구할 수 있다.

후 기

“이 논문은 2004년도 한국학술진흥재단의 지원에 의하여 연구되었음”(KRF-2004-041-D00374).

참 고 문 헌

- [1] “National nanotechnology initiative, the initiative and its implementation plan” (National Science and Technology Council, Subcommittee on Nano science, Engineering and Technology, U.S.A., 2000).
- [2] F.F. Abraham *et al.*, “Spanning the continuum to quantum length scales in a dynamic simulation of brittle fracture”, *Europhysics letters* 44[6] (1998) 783.
- [3] S. Kohlohoff, P. Gumbsch and H.F. Fischmeister, “Crack propagation in BCC crystals studied with a combined finite-element method and atomistic model”, *Philosophical Magazine: A* 64 (1991) 851.
- [4] M. Ortiz, A.M. Cuitino, J. Knap and M. Koslowski, “Mixed atomistic-continuum models of material behavior: the art of transcending atomistics and informing continua”, *MRS Bulletin* 26[3] (2001) 216.
- [5] Y. Ichikawa, K. Kawamura, M. Nakano, K. Kitayama and H. Kawamura, “Unified molecular dynamics and homogenization analysis for bentonite behavior: current results and future possibilities”, *Engineering Geology* 54 (1999) 21.
- [6] Y. Ichikawa, K. Kawamura, N. Fujii and Theramast Nattavut, “Molecular dynamics and multiscale homogenization analysis of seepage/diffusion problem in bentonite clay”, *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 54 (2002) 1717.
- [7] Y. Ichikawa, K. Kawamura, N. Theramast and K. Kitayama, “Secondary and tertial consolidation of bentonite clay: consolidation test, molecular dynamics simulation and multiscale homogenization analysis”, *Mechanics of Materials* (2003).
- [8] “Multi-scale finite element analysis of porous materials and components by asymptotic homogenization theory and enhanced mesh superposition method”, *Modeling Simulation Material Science Engineering* 11 (2003) 137.
- [9] “Role of atomic charge transfer on sintering of TiO₂ nanoparticles: Variable-charge molecular dynamics”, *Journal of Applied Physics* 88[10] (2000) 6011.
- [10] S.M. Baik and Y.T. Keum, “Multi-scale simulation of drying process for porous materials using molecular dynamics (part 2: material properties)”, *Journal of the Korean Crystal Growth and Crystal Technology* (2005) Submitted.
- [11] J.W. Oh, S.M. Baik and Y.T. Keum, “Multi-scale simulation of drying process for porous materials using molecular dynamics (part 1: homogenization method)”, *Journal of the Korean Crystal Growth and Crystal Technology* 14[3] (2004) 115.
- [12] Y.T. Keum, J.H. Jeong and K.H. Auh, “Finite-element simulation of ceramic drying processes”, *Modeling Simulation Material Science Engineering* 8[4] (2000) 542.