

분자동역학에 기반한 멀티스케일 해석을 이용한 탄소나노튜브/고분자 복합재료의 특성 규명

Characterization of CNT/Polymer Nanocomposites using MD-based Multiscale Method

유수영* · 양승화** · 조맹효***

Yu, Suyoung · Yang, Seunghwa · Cho, Maenghyo

요약

본 논문에서는 동일한 체적분율을 가지는 탄소나노튜브 나노복합재의 기계적 특성을 규명하였다. 동일한 chirality를 가지는 서로 다른 크기의 탄소나노튜브를 이용하여 탄소나노튜브의 크기가 복합재의 물성에 미치는 영향을 규명하였다. 복합재료의 분자동역학의 결과 탄소나노튜브의 길이방향의 물성은 크게 증가하나, 전단특성의 물성 강화효과를 나타나지 않았다. 이는 통해 탄소나노튜브와 기지재료 사이의 상호작용력이 복합재료의 전단력을 전달하고, 변형을 유지할 만큼 강하지 않다는 것을 확인하였다. 이와 같은 분자동역학 결과를 바탕으로 멀티스케일 모델을 개발하여 복합재료에서 나타나는 현상을 묘사하였다. 제안된 멀티스케일 모델을 이용하여 다양한 조건의 복합재료에 대한 특성 예측이 가능하다.

keywords : CNT, nanocomposites, Multiscale simulation, Molecular dynamics

1. 서론

탄소나노튜브는 아톰들간의 강한 상호작용력과 완벽한 격자구조로 인하여 최대 1TPa의 강한 영률, 뛰어난 전기전도성 등을 가지는 물질이다. 따라서 탄소나노튜브를 강화재로 포함하는 고분자복합재료의 경우 향상된 기계적 특성, 열 특성, 전기전도성 등 다기능성을 가진다고 알려져 있으며, 이를 규명하기 위하여 다양한 연구가 진행되고 있다. 원자 수준의 분석을 통하여 탄소나노튜브와 고분자재료 사이의 거동, 복합재 내부에서 강화효과가 발생 원리 등이 규명되어 왔다(Zhu, 2007; Valavala, 2009). 또한 나노복합재료의 경우 동일한 체적분율을 가지는 복합재에서 강화재의 크기가 작아질수록 물성이 강화되는 효과를 규명되었다(Cho, 2007).

본 연구에서는 분자동역학 시뮬레이션을 통하여 서로 다른 크기의 탄소나노튜브를 포함한 복합재를 구성하여 탄소나노튜브의 지름 변화가 복합재의 기계적 물성 변화에 미치는 영향을 살펴보고, 탄소나노튜브와 고분자 기지재료의 경계영역에서 나타나는 원자 거동을 분석함으로써 복합재의 강화효과가 발생하는 원인을 규명한다. 또한 분자동역학에서 도출된 결과를 기반으로 크기효과를 묘사할 수 있는 멀티스케일 모델을 개발하고, 이를 통하여 다양한 조건을 가지는 탄소나노튜브/나일론6 복합재의 기계적 물성을 예측한다.

* 학생회원 · 서울대학교 기계항공공학부 박사과정 sinvi428@snu.ac.kr

** 정회원 · 서울대학교 기계항공공학부 박사과정 fafa77@snu.ac.kr

*** 정회원 · 서울대학교 기계항공공학부 교수 mhcho@snu.ac.kr

2. 분자동역학 모델 및 결과

2.1. 모델 구성

탄소나노튜브의 크기가 복합재료의 기계적물성에 미치는 영향을 규명하기 위하여 서로 다른 크기의 탄소나노튜브를 포함한 네 종류의 모델을 구성하였다. 복합재료의 기지재료로는 무정형상태(amorphous state)의 나일론6가 사용되었으며, 강화재료는 zig-zag 탄소나노튜브를 사용함으로써 chirality의 영향을 제한하였다. 또한 탄소나노튜브의 크기를 제외한 탄소나노튜브의 체적분율 등 기계적 물성에 영향을 미칠 수 있는 조건을 모두 동일하게 유지하였다. 각 방향으로 주기경계조건이 부여되었으며, 탄소나노튜브는 무한히 긴 형태로 가정하였다. 각 원자들의 상호작용을 묘사하기 위하여 PCFF forcefield를 사용하였다. 구성된 복합재료 모델의 형상과 자세한 구성정보는 그림1과 표 1을 통하여 확인할 수 있다.

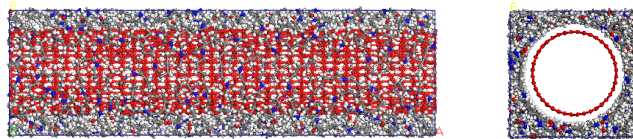


그림 1 CNT/나일론6 복합재 모델

표 1 시뮬레이션 모델 구성정보

CNT	CNT diameter [Å]	Nylon6 chain No.	Cell length[A]		Volume fraction [%]
			transverse	longitudinal	
(10,0)	7.38	9	13.89	80.94	30
(15,0)	11.74	16	18.52		
(20,0)	15.56	26	23.61		
(25,0)	19.57	38	28.55		

2.2. 분자동역학 시뮬레이션 결과

conjugation gradient 방법론을 사용하여 구성된 모델의 포텐셜 에너지를 최소화하였으며, 이후 300K에서의 NPT ensemble 시뮬레이션을 통해 모델을 안정화하였다. 이후 Parrinello와 Rahman에 의해 제안된 fluctuation 방법론(Parrinello, 1980)을 통하여 기계적 물성을 예측하였다. 첫 번째 단계로, 탄소나노튜브에 의한 강화효과를 도출하기 위한 사용된 재료의 특성을 측정하기 위하여 동일한 시뮬레이션 방법을 사용하여 탄소나노튜브의 물성을 예측하였다. 표 2를 통하여 탄소나노튜브가 길이방향으로 강한 기계적 특성을 가지는 것을 확인할 수 있으며, 크기가 작아질수록 물성이 증가하는 것을 확인할 수 있다.

표 1 탄소나노튜브의 기계적 물성 (단위:GPa)

CNT	E_L	E_T	G_L	G_T	$E_{\text{나일론6}}$	$G_{\text{나일론6}}$
(10,0)	949	60.5	318	21.7	2.9	1.05
(15,0)	798	44	349	17.23		
(20,0)	675	18.6	315	8.82		
(25,0)	585	15.2	292	7.38		

이와 같은 탄소나노튜브를 기반으로 구성된 복합재의 물성은 표 2와 같다. CNT의 강한 길이방향의 영률

로 인하여 복합재 역시 강화된 물성을 보인다. 하지만 (20,0)과 (25,0) 탄소나노튜브의 경우 단면방향의 영률은 나일론6의 영률에 비해 작은 값을 보인다. 또한 길이방향의 전단계수 역시 나일론6에 비해 작은 값을 가짐을 확인할 수 있다. 이와 같은 결과는 복합재에 변형을 부여할 경우, 기지재료의 변형을 발생하지만 내부에 포함되어 있는 탄소나노튜브의 경우 변형이 발생하지 않는다는 사실을 의미한다. 이는 탄소나노튜브와 기지재료 사이의 경계면의 상호작용력이 매우 낮아 경계면에서 변형 에너지를 전달하지 못하기 때문이다. 탄소나노튜브 경계면의 전달력을 강화하여 복합재의 물성을 효율적으로 증가시키기 위해서 탄소나노튜브와 기지재료 사이의 공유결합 생성하는 방법, 또는 탄소나노튜브와 강한 상호작용력을 가지는 물질을 이용한 표면처리를 하는 방법 등을 활용할 수 있다.

표 2 탄소나노튜브/나일론6 복합재의 기계적 물성 (단위:GPa)

복합재	E_L	E_T	G_L	G_T
(10,0)	308	4.46	0.58	1.37
(15,0)	259	4.33	0.87	1.25
(20,0)	214	2.72	0.76	0.75
(25,0)	184	2.75	0.75	0.76

3. 해석결과의 분석

3.1. 모델 구성

분자동역학 시뮬레이션을 통하여 탄소나노튜브의 약한 경계면의 물성이 전체 복합재에 영향을 미치는 사실을 규명하였다. 경계의 물성을 반영하는 미세역학(micromechanics) 모델을 구성하기 위하여 강화재, 경계영역, 기지재료 등 다양한 상(phase)을 고려하는 multi inclusion 모델(Hori, 1993)을 사용하였다. multi inclusion 모델에서 복합재의 기계적물성은 다음과 같이 정의된다.

$$\mathbf{C} = \mathbf{C}_{\text{inf}} \left[\mathbf{I} + (\mathbf{S} - \mathbf{I}) \left(\sum_{r=1}^N f_r \Phi_r \right) \right] \left[\mathbf{I} + \mathbf{S} \left(\sum_{r=1}^N f_r \Phi_r \right) \right]^{-1} \quad (1)$$

$$\Phi_r = \left[(\mathbf{C}_{\text{inf}} - \mathbf{C}_r)^{-1} \mathbf{C}_{\text{inf}} - \mathbf{S} \right]^{-1} \quad (2)$$

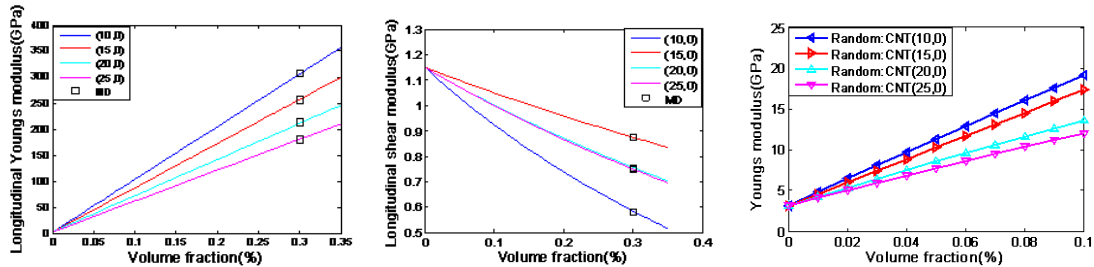
위 식에서 \mathbf{C} , \mathbf{I} , \mathbf{S} , f 는 각각 강성행렬, 단위행렬, Eshelby 행렬, 각 상의 체적비로 정의된다. 이 때, 경계영역의 강성행렬은 다음과 같은 식으로 정의될 수 있다. 여기서 최외각 상의 강성행렬, \mathbf{C}_{inf} 는 나노복합재의 강성행렬로 정의된다.

$$\mathbf{C}_i = \mathbf{C}_{\text{inf}} \left[\mathbf{I} - \left(f_i \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{C}_{\text{inf}}^{-1} \mathbf{C}_i \mathbf{S} - \mathbf{S} + \mathbf{I}) + \mathbf{S} \right)^{-1} \right] \quad (3)$$

$$\mathbf{B} = \mathbf{I} + (\mathbf{S} - \mathbf{I})(f_p \Phi_p + f_m \Phi_m) - \mathbf{C}_{\text{inf}}^{-1} \mathbf{C} (\mathbf{I} + \mathbf{S}(f_p \Phi_p + f_m \Phi_m)) \quad (4)$$

위의 식을 이용하여 다양한 부피비를 가지는 복합재의 물성 변화를 예측하였다. 기본 모델의 각 방향의

물성 변화를 통해, 탄소나노튜브의 체적비율이 증가함에 따라 복합재에 반영되는 경계영역의 특성이 강화됨을 확인할 수 있다. 또한, 탄소나노튜브가 복합재내에 방향성 없이 분산된 상태인 등방성 복합재 모델을 정의하고, 부피비에 따른 영률 변화를 살펴보았다.



(a) 길이방향의 영률 (b) 길이방향의 전단계수 (c) 랜덤하게 분산된 복합재의 영률

그림 2 CNT체적에 따른 물성 변화

본 연구에서 제안된 멀티스케일 모델을 통하여 분자동역학의 결과를 잘 묘사하였으며, 효율적으로 다양한 조건의 복합재 모델에 대한 물성 예측이 가능하다. 추후 연구를 통하여, 탄소나노튜브의 체적비가 낮은 복합재를 이용하여 탄소나노튜브의 크기가 기계적 물성에 미치는 영향을 예측하고, 탄소나노튜브의 표면처리 방법을 적용한 나노복합재에서 표면처리에 의한 경계영역의 물성의 향상 정도를 예측할 계획이다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단이 주관하는 국가지정연구실(No. R0A-2008-000-20109-0) 사업의 지원을 받아 수행되었습니다.

참고문헌

- Zhu R., Pan E. and Roy A.K. (2007) Molecular dynamics study of the stress-strain behavior of carbon-nanotube reinforced Epon 862 composites, *Mat'l. Sci. Eng. A*, Vol. 447, pp. 51-57.
- Valavala P.K., Clancy T.C., Odegard G.M., Gates T.S. and Aifantis E.C. (2009) Multiscale modeling of polymer materials using a statistics-based micromechanics approach, *Acta materialia*, Vol. 57, pp. 525-532.
- Cho M., Yang S. (2007) Atomistic simulations for the thermal and mechanical properties of CNT/polymer nanocomposites, 48th AIAA/ASME/ASCE/AHS/ASC SDM Conference, AIAA
- Parrinello M, Rahman A. (1980) Crystal structure and pair potentials: a molecular-dynamics study, *Physical Review Letters*, Vol. 45, pp 1196-1199.
- Hori. M., Nemat-Nasser S. (1993) Double inclusion model and overall elastic moduli of multi-phase composites, *Mech. Mat'l*, Vol. 14, pp. 189~206.