

## 팽창성 점토광물 내 층간수의 확산특성분석을 위한 수치해석학적 방법

### Introduction of Numerical Analysis Method for Calculation of Diffusion Property in Interlayer Water of Expansible Clay Mineral

최 정 해(Jung-Hae Choi) · 채 병 곤(Byung-Gon Chae) · 전 철 민\*(Chul-Min Chon)

한국지질자원연구원 지구환경연구본부 지질재해연구실  
(Geologic Environment Division, Geologic Hazards Department, KIGAM, 124 Gwahang-no,  
Yuseong-gu, Daejeon 305-350, Korea)

**요약** : 최근 물질의 특성과 구조를 해석하기 위해서 수치해석학적 모델과 컴퓨터 시뮬레이션이 많이 사용된다. 이러한 관점에서 물질의 미세구조를 해석하는 데 있어 분자동역학 해석법은 매우 유용한 방법이다. 이번 연구에서는 점토광물에 대한 확산계수 및 점착력과 같은 물리화학적 특성을 계산하기 위한 수치해석학적 방법을 소개한다. 이번 연구에서 지질학적으로 심부에 위치하는 포화된 점토광물과 물을 포함한 점토광물에 대한 특성을 분자동역학을 이용해서 계산하고 균질화해석법을 활용하여 점착력과 같은 외부조건에 따라 결정되는 점토광물의 확산거동을 해석하였다. 그 결과 수치해석에 의한 해석결과 값과 기존의 실내 투수실험에 의한 결과 값이 매우 흡사한 결과를 보인다는 것을 알 수 있다. 이는 여러 가지 복합적인 조건하에서의 점토광물의 물리화학적 거동을 해석하는 데 수치해석학적 방법이 매우 유용하게 사용될 수 있다는 것을 의미한다.

**주요어** : 분자동역학, 균질화해석법, 점토광물, 확산계수, 점착력

**ABSTRACT** : The numerical modeling and simulation have been used increasingly as tools for examining and interpreting the bulk structure and properties of materials. The use of molecular dynamics (MD) simulations to model the structure of materials is now both widespread and reasonably well understood. In this research, we introduced the numerical method to calculate the physico-chemical properties such as a diffusion coefficient and a viscosity of clay mineral. In this research, a series of MD calculations were performed for clay mineral and clay-water systems, appropriate to a saturated deep geological setting. Then, by using homogenization analysis (HA), the diffusion coefficients are calculated for conditions of the spatial distribution of the water viscosity associated with some configuration of clay minerals. This result of numerical analysis is quite similar to the previous experimental results. It means that the introduced numerical method is very useful to calculate the physico-chemical properties of clay minerals under various environmental conditions.

**Key words** : molecular dynamics simulation, homogenization analysis, clay mineral, diffusion coefficient, viscosity

\*Corresponding author: +82-42-868-3226, E-mail: femini@kigam.re.kr

## 서 언

점토광물은 지질학, 토양학 및 토목공학분야에서 흔히 사용되는 학술용어인 점토와 뚜렷이 구분되는 용어로서, 입자 크기의 개념이 아닌 광물의 결정구조에 바탕을 둔 분류의 개념이며 정의이다. 점토광물은 수산화알루미늄규산염으로서 층상규산염 광물에 해당되며 점토 중 가소성을 가지며 건조 및 소성 시에 굳어지는 광물로 정의한다(Guggenheim and Martin, 1995). 모든 층상규산염 광물은 Si-O로 결합된 사면체와 Al-O로 결합된 팔면체, 이 두 개의 기본 구조단위로 구성된다. 사면체는 Si (또는 Al)에 4개의 산소가 배위되며 세 개의 모서리가 이차원적으로 연결된 육각환형이 평면으로 결합되어 사면체판을 구성한다. 팔면체는 Al (또는 Mg, Fe) 양이온을 O 또는 OH가 팔면체 배위를 하는데, 이들의 능이 이차원적으로 공유되어 팔면체판을 구성한다. 이때 팔면체 배위는 양이온의 전하에 따라 전기적 중성을 이루기 위하여 양이온-음이온비가 달라진다. 양이온의 전하가 2가인 경우와 3가인 경우에 따라서 삼팔면체와 이팔면체로 구분된다. 점토광물은 이러한 사면체판과 팔면체판이 1:1층형 또는 2:1층형으로 결합된 구조로서 광물분류의 중요한 기준이 된다. 스�멕타이트는 단위포당 충전하가 0.2~0.6범위를 가지는 2:1층형 층상규산염광물로서 층간에 물분자를 포함할 수 있는 특징이 있다. 스�멕타이트는 다시 삼팔면체형의 사포나이트 아족과 이팔면체형의 몬모릴로나이트 아족으로 분류되며, 몬모릴로나이트 아족은 주로 몬모릴로나이트( $R_{0.33}^+(Al_{1.67}Mg_{0.33})Si_4O_{10}(OH)_2$ , 여기서 R은 층간양이온)와 바이델라이트( $R_{0.33}^+Al_2(Si_{3.67}Al_{0.33})O_{10}(OH)_2$ )를 두 단종으로 하여 중간 화학조성으로 산출된다(Brindley, 1980).

2:1층형인 스�멕타이트족 점토광물의 층간 결합은 층간수(interlayer water)를 가지는데 이 층간에 존재하는 물의 양은 점토광물의 건조단위 중량 및 여러 물리화학적 요건에 따라서 변화를 하게 된다(Mitchell and Soga, 1992). 이와 반대로 1:1층형인 카올린족의 경우는 층간에 층간수가 존재하지 않고 직접적인 이온결합으로 층간의 결합이 형성된다. 따라서 층간수의 존재에 따른 팽창현상(swelling)이 존재하지 않고 함수량이 작아짐에 따라서 매우 높은 강도 값을 보이는 특성을 가지고 있다.

이번에 소개하는 수치해석학적 방법은 점토광물

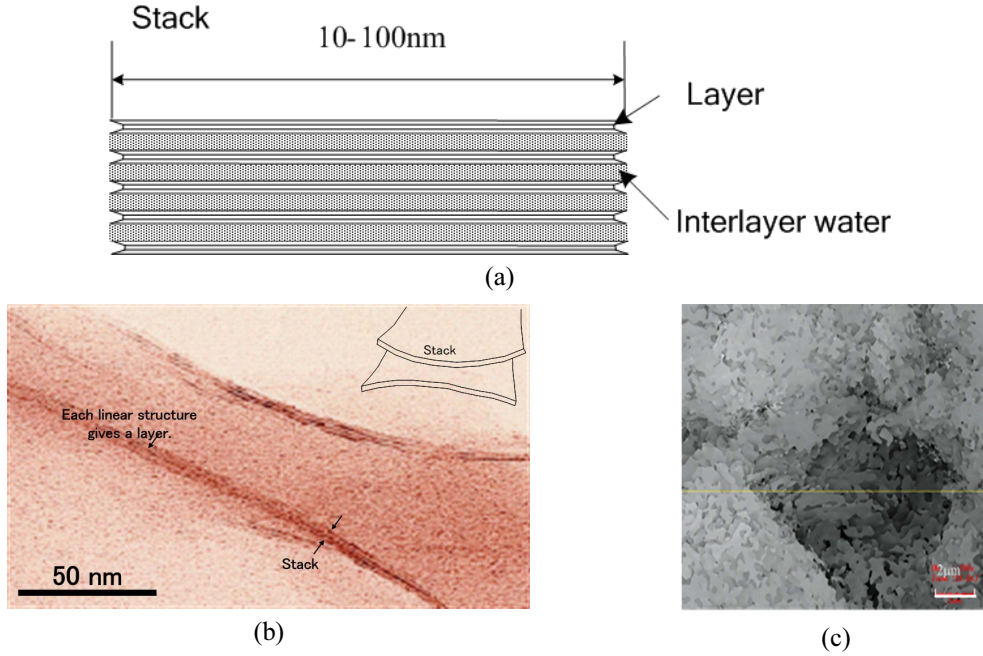
의 미시적인 물리화학적 특성을 분석하기 위해서 분자동역학 방법을 활용하여 미시적인 스케일의 물리화학적 특성 값을 계산하였고 이 값을 거시적인 물리화학적 값으로 활용하기 위해서 여러 분야에서 활용되고 있는 균질화 해석법을 활용하였다. 특히 본 연구에서는 다양한 균질화 해석법 가운데 2-scale 균질화 해석법(Choi *et al.*, 2009; Ichikawa *et al.*, 1999)을 활용하였다. 2-scale 균질화 해석법은 미시적인 스케일의 특성 값을 활용하여 중간 단계(meso scale)를 거치지 않고 직접적으로 거시적인 스케일의 특성 값을 계산하는 방법으로 scale factor 값을 활용하여 거시 스케일의 값을 수치해석을 통해서 직접 계산할 수 있다(Ichikawa *et al.*, 1999). 이는 전통적인 실험에 의한 방법을 통해서 계산되는 점토광물의 특성 값에 비해서 보다 정확하고 신뢰성 있는 값을 제공받을 수 있으며 현실적으로 제어할 수 있는 극한적인 물리화학적 조건하에서도 수치해석적인 방법을 활용하여 점토광물의 거동에 영향을 줄 수 있는 물리화학적인 특성 값을 얻을 수 있는 장점이 있을 것으로 기대된다. 따라서 본 연구에서는 팽창성 점토광물의 여러 가지 물리화학적 특징(점착력, 확산계수 등)에 대한 값을 전통적인 실험에 의한 방법을 통하지 않고 수치해석을 통해서 보다 정확하고 신뢰성 있는 값을 산출하고 이러한 방법론을 제시하는 데 그 목적이 있다.

## 연구방법

### 분자동역학 해석

점토광물은 1:1층 혹은 2:1층의 단위구조층이 규칙적으로 적층된 스택(stack)의 집합체로서, 이러한 층상 및 적층 구조는 투과전자현미경(TEM)이나 주사전자현미경(SEM)을 비롯한 여러 고해상도의 전자현미경을 통해서 관찰이 가능하다(그림 1). 특히 미세한 파장(488 nm의 파장을 가지는 Ar-레이저)을 가진 레이저를 활용한 현미경인 Confocal laser scanning microscope (CLSM)를 통해서 점토광물의 구조를 관찰할 수 있으며, 표면에 반사되어 돌아오는 특성을 활용하여 디지털 영상을 취득한다.

본 연구에서는 점토광물의 단위중량에 따른 투수특성을 분석하기 위해서 스�멕타이트족 가운데 바이델라이트(heidellite)를 대상으로 투수특성을 수치해석적 방법을 이용해서 분석하였다. 본 수치해석방법은 분자동역학 방법과 2-scale 균질화 해



**Fig. 1.** Micro structure and macro structure of expandable clay mineral ((a) : schematic view of beidellite, (b) : TEM picture of beidellite, (c) : SEM picture of beidellite).

석을 활용하여 분석하는 방법으로서 먼저 분자동역학 해석법을 이용하여 물분자의 확산계수를 산출하고 이를 다시 균질화 해석법에 적용하여 거시적인 규모의 투수특성을 분석하였다(Choi *et al.*, 2009; Ichikawa *et al.*, 1999; Kawamura *et al.*, 1999). 본 연구에 사용된 분자동역학 프로그램은 연속체 역학에서 많이 사용되고 있는 포트란 프로그램을 활용하여 아래에 설명된 수식을 바탕으로 제작되었다. 분자동역학에서의 물질의 물리화학적 특성을 분석하는 데는 시간에 따른 분자의 이동에 대한 위치를 분석하고 이를 활용하여 물리화학적 특성을 계산하는 것이다. 본 프로그램 역시 pico scale의 시간 변화에 따른 분자의 위치를 계산하고 이를 활용하여 물리화학적 특성 값을 계산한다. 따라서 분자동역학 프로그램은 미시구조에 대한 정확한 특성 값을 계산하는 데 있어서 여러 분야에서 많이 활용되고 있다.

지금까지 점토광물의 물리화학적 특성을 분석하는데 있어서는 일반적으로 실험적인 방법을 활용해서 값을 계산하는데, 이는 점토광물의 특성상 매우 불량한 결정성에 의해서 어려운 점이 있다. 그러나 이번에 소개하는 분자동역학해석법은 어떤 결정체가 그 고유의 interatomic potential function

이 존재한다면 그 결정체의 물리화학적 특성 값을 정확하게 계산할 수 있다는 장점이 있다(Choi *et al.*, 2009; Ichikawa *et al.*, 1999; Leed and Pantano, 2003; Du and Cormack, 2004). 분자동역학 해석에서의  $i$ 번째 분자의 시간의존성 이동에 대한 것은 뉴턴의 운동방정식에 의해서 계산된다.

$$m_i \frac{dv_i}{dt} = F_i \quad (1)$$

여기서  $m_i$ 는  $i$ 번째 분자의 질량,  $v_i$ 는  $i$ 번째 분자의 속도,  $F_i$ 는  $i$ 번째 분자에 작용하는 힘이다.

$i$ 번째 분자에 작용하는 힘  $F_i$ 는  $i$ 번째와  $j$ 번째 분자 사이에서 작용하는 potential function  $U_{ij}$ 에 의해서 다음의 식과 같이 계산된다.

$$F_i = \sum_{i(i \neq j)} F_{ij}, F_{ij} = -\nabla U_{ij} \quad (2)$$

두 분자간의 interaction은 두 분자 간의 kawamura potential model에 의해서 다음과 같이 제시된다(Kawamura *et al.*, 1999).

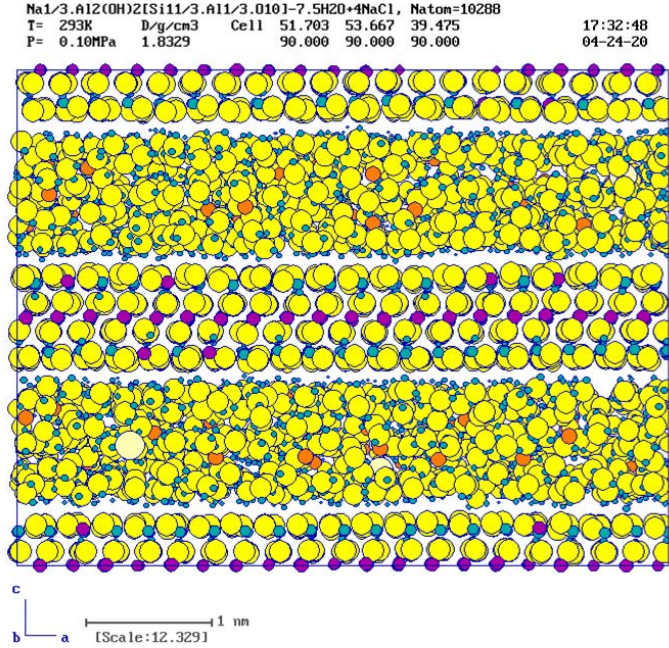


Fig. 2. Snap shot of MD simulation model for beidellite.

$$\begin{aligned}
 U_{ij}(r_{ij}) = & \frac{z_i z_j e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} - \frac{c_i c_j}{r_{ij}^6} + f_0(b_i + b_j) \exp\left[\frac{a_i + a_j - r_{ij}}{b_i + b_j}\right] \\
 & + D_{1ij} \exp(-\beta_{1ij} r_{ij}) + D_{2ij} \exp(-\beta_{2ij} r_{ij}) \\
 & + D_{3ij} \exp[-\beta_{3ij}(r_{ij} - r_{3ij})^2]
 \end{aligned} \quad (3)$$

여기서 오른쪽 항들은 각각 Coulome, van der Waals, short range repulsion 과 radial covalent 항들에 해당된다. 위 식 (2)는 두 가지 물체에 대한 물체력을 계산한 것으로 물과 같은 3가지의 물체에 대한 물체력을 계산하는 데는 어려움이 있다 (Kawamura *et al.*, 1999). 본 연구에서는 이러한 어려움을 해결하기 위해서 3가지 물체에 대한 물체력을 kawamura potential model에 의해서 다음과 같이 제시하였다.

$$\begin{aligned}
 U_{ijk}(\theta_{ijk}, r_{ji}, r_{jk}) = & f_k [1 - \cos\{2(\theta_{ijk} - \theta_o)\}] (k_i k_j)^{1/2} \\
 k_i = & \frac{1}{\exp\{g_r(r_{ij} - r_m)\} + 1}
 \end{aligned} \quad (4)$$

여기서  $r_{ij}$ 는 i-j분자 사이의 거리,  $\theta_{ijk}$ 는 i-j-k분자간의 결합 각도이다. 그 외 다른 요소들은 몇 종류의 oxide crystal에 대한 물리적인 특성 값에 의해서 계산된 값들이다. 이 식들이 가지는 의미는 시간에 따른 분자의 위치와 그에 따른 물체력을 계

산하여 다음 시간간격에 대한 분자의 위치를 예측하고 물체력을 계산한다. 이런 식의 계산법에 의해서 미세구조 내에서 일어나는 물질의 이동에 대한 정확한 계산을 할 수 있다. 이번 연구에서는 수천 개의 분자들에 대한 3차원 점도광물과 물에 대한 모델을 만들어서 계산에 활용하였다(그림 2).

## 2-Scale 균질화 해석법

본 연구에서는 투수계수 산정을 위해서 분자동역학 방법을 통해 계산된 물성값을 2-scale 균질화 해석법의 입력값으로 활용하여 거시적인 스케일의 물질에 대한 투수계수를 산출하였다. 이번 연구에서 사용된 방법은 비압축성 유체의 흐름에 대한 경우를 가정하여 Stoke의 방정식(Ichikawa *et al.*, 1999)을 다음의 식과 같이 활용하였다.

$$\begin{aligned}
 \rho \left( \frac{\partial V_i^e}{\partial t} + V_j^e \frac{\partial V_i^e}{\partial x_j} \right) = & \quad (5) \\
 - \frac{\partial P^e}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \eta \frac{\partial V_i^e}{\partial x_j} \right) + f_i & \text{ in } \Omega_f \\
 \frac{\partial V_i^e}{\partial x_i} = 0 & \text{ in } \Omega_f
 \end{aligned}$$

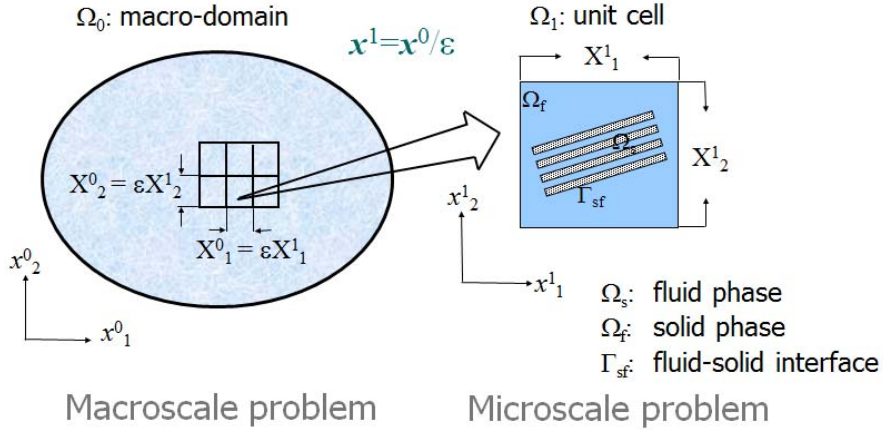


Fig. 3. Schematic figure of 2-scale homogenization analysis method.

여기서  $\rho$ 는 밀도이며  $V_i^\epsilon$ 은 영역  $\Omega_f$ 내에서의 물의 속도,  $P^\epsilon$ 는 압력,  $f_i$ 는 물체력,  $\eta$ 는 물의 viscosity이다. 그러나 우리는 여기서 steady state를 가정하여 계산을 하기 위해서 좌변의 두 번째항 ( $V_j \partial V_i / \partial x_j$ )을 0으로 가정을 한다. 그리고 이 식에서 사용될 viscosity는 분자동역학 해석법을 통해서 계산하며  $\epsilon$ 은 스케일 effect를 나타내며 다음과 같이 표현된다.

$$X^1 = \frac{X^0}{\epsilon} \quad (6)$$

여기서  $\epsilon \ll 1$ 이며  $X^0$ 와  $X^1$ 에 관한 설명은 아래 그림 3과 같다.

또한 2-scale 좌표의 특성상 다음과 같이 미분을 할 수 있다.

$$\frac{\partial}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i^0} + \frac{1}{\epsilon} \frac{\partial}{\partial x_i^1} \quad (7)$$

위 식 (5)에 스케일 effect 인자인  $\epsilon$ 을 활용하여  $P^\epsilon$ 과  $V_i^\epsilon$ 에 대한 섭동이론을 적용하여 전개하면 다음의 식 (8)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} V_i^\epsilon(x) &= \epsilon^2 V_i^\epsilon(x^0, x^1) + \epsilon^3 V_i^\epsilon(x^0, x^1) + \dots \\ P^\epsilon(x) &= P^0(x^0, x^1) + \epsilon P^1(x^0, x^1) + \dots \end{aligned} \quad (8)$$

여기서  $V_i^\alpha$ 와  $P^\alpha$ 는  $X^1$ 에 대한 주기함수로서 다음의 식과 같이 나타낼 수 있다.

$$\begin{aligned} V_i^\alpha(x^0, x^1) &= V_i^\alpha(x^0, x^1 + X^1) \\ P^\alpha(x^0, x^1) &= P^\alpha(x^0, x^1 + X^1) \end{aligned} \quad (9)$$

여기서  $X^1$ 은 그림 4에 보는 것과 같이 미시 스케일의 unit cell의 크기이다.

위 식 (7)과 (8)을 식 (4)에 대입하여 전개하면  $\epsilon^{-1}$ term의  $p^0$ 는 거시스케일 좌표인  $x^0$ 에만 의존한다는 사실을 알 수 있다. 그리고  $\epsilon^0$  term은 식 (4)에 의해서 다음의 식과 같이 표현되어진다.

$$-\frac{\partial P^1}{\partial x_i^1} + \frac{\partial}{\partial x_j^1} \left( \eta \frac{\partial V_i^0}{\partial x_j^1} \right) = \frac{\partial P^0}{\partial x_i^0} - f_i \quad (10)$$

그리고 식 (7)과 (8)을 식 (5)의 두 번째 식에 대입하게 되면

$$\begin{aligned} \epsilon^1 \text{ term} : \quad & \frac{\partial V_i^0}{\partial x_i^1} = 0 \\ \epsilon^2 \text{ term} : \quad & \frac{\partial V_i^0}{\partial x_i^0} + \frac{\partial V_i^1}{\partial x_i^1} = 0 \end{aligned} \quad (11)$$

각 term은 위 식 (11)과 같이 된다.

일반적으로 물체력  $f$ 는 거시 스케일 영역에서 존재하고 식 (10)에서 보는 바와 같이  $x^0$ 의 함수로서 존재한다. 따라서 변수분리법을 활용하여  $p^1(x^0, x^1)$ 과  $V_i^0(x^0, x^1)$ 을 표현하면 다음 식 (12)와 같이 나타낼 수 있다.



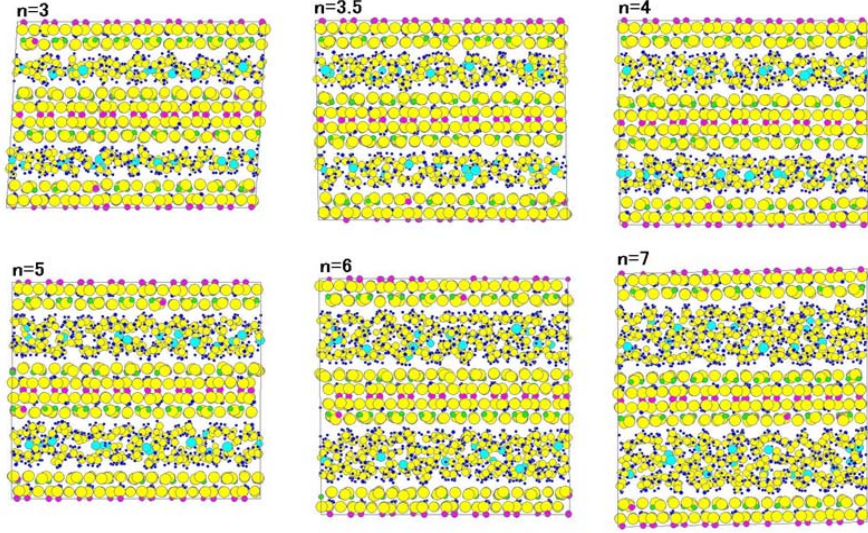


Fig. 4. Number of interlayer water according to density.

$$V_i^0(x^0, x^1) = - \left[ \frac{\partial P^0(x^0)}{\partial x_j^0} - f_j(x^0) \right] v_i^j(x^1) \quad (12)$$

$$P^1(x^0, x^1) = - \left[ \frac{\partial P^0(x^0)}{\partial x_j^0} - f_j(x^0) \right] p^j(x^1)$$

위 식 (12)를 식 (10)과 (11)에 대입하면 우리는 최종적으로 미시 스케일에서의 비압축 stoke 방정식을 구할 수 있다.

$$-\frac{\partial p^k}{\partial x_i^1} + \frac{\partial}{\partial x_j^1} \left( \eta \frac{\partial v_i^k}{\partial x_j^1} \right) + \delta_{ik} = 0 \quad \text{in } \Omega_{1f} \quad (13)$$

$$\frac{\partial v_i^k}{\partial x_i^1} = 0 \quad \text{in } \Omega_{1f}$$

여기서  $v_i^k(x^1)$ 과  $p^k(x^1)$ 는 속도와 압력에 대한 특성함수들이다.

앞서 언급한 것과 같이 주기적인 조건에서 식 (13)을 풀면 미시 스케일 영역의 복잡한 geometry를 반영하는 특성함수를 구할 수 있다. 마이크로 영역 내에서의 식 (12)의 속도에 대한 적분 평균을 다음 식과 같이 정하고 Darcy의 법칙(Ichikawa *et al.*, 1999)을 산출하면 식 (14)와 같이 나타낸다.

$$\widetilde{V}_i^0(x^0) = \langle V_i^0(x^0, x^1) \rangle \quad (14)$$

$$= -K_{ij} \left[ \frac{\partial P^0(x^0)}{\partial x_j^0} - f_j(x^0) \right]$$

$$K_{ij} \equiv \langle v_j^i(x^1) \rangle = \frac{1}{|\Omega_{1f}|} \int_{\Omega_{1f}} v_j^i(x^1) dx^1$$

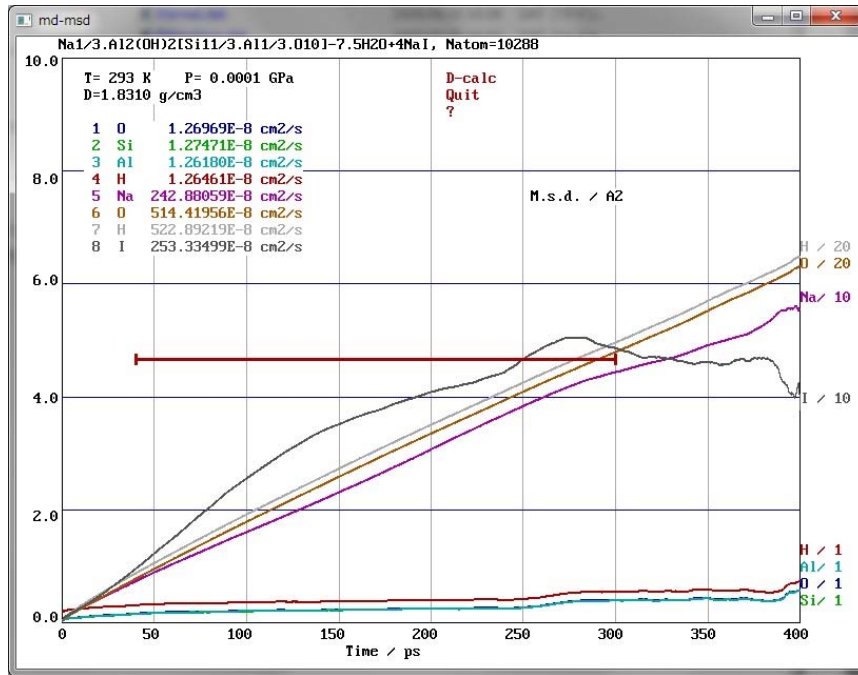
여기서  $|\Omega_{1f}|$ 는 미시 스케일 영역  $\Omega_1$ 의 체적이며  $\langle \cdot \rangle$ 은 미시 스케일 영역에서의 평균을 나타내는 표현이다. 여기서 식 (11)은 미시 스케일과 거시 스케일 사이에서의 물질보존(mass conservation)의 관계를 나타내고 있다. 위 식 (14)와 식 (11)을 활용하면 최종적으로 다음의 식 (15)와 같이 거시 스케일의 비압축 투수공식을 유도할 수 있다.

$$\frac{\partial \widetilde{V}_i^0}{\partial x_i^0} = 0 \quad (15)$$

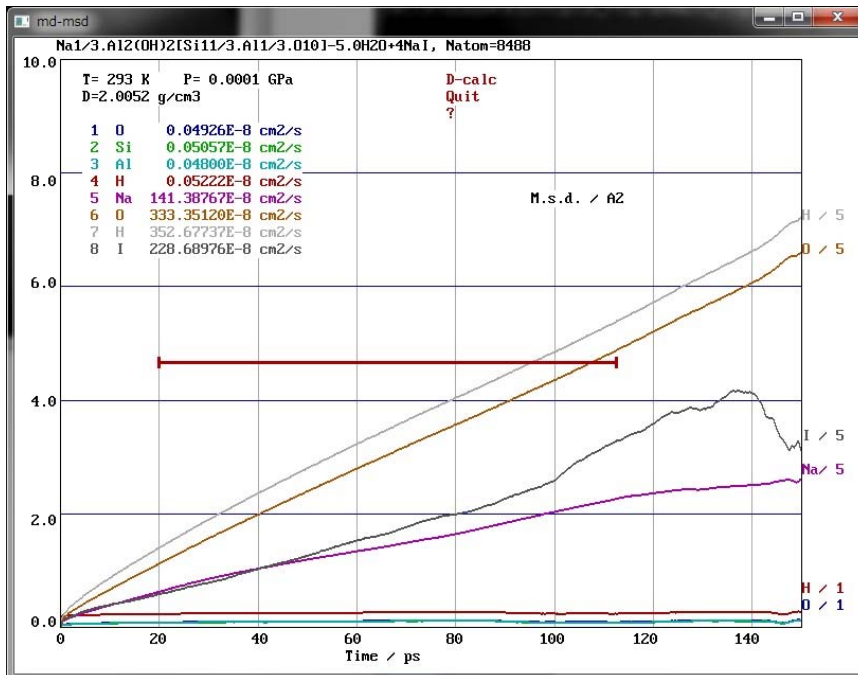
$$\Rightarrow -\frac{\partial}{\partial x_i^0} \left[ -K_{ij} \left\{ \frac{\partial P^0(x^0)}{\partial x_j^0} - f_j(x^0) \right\} \right] = 0$$

일반적으로 고전적인 Darcy's law는 다음의 식 (16)과 같이 표현된다.

$$\widetilde{V}_i^* = -K_{ij}^* \frac{\partial \phi}{\partial x_j^0}, \quad \phi = \frac{p}{\rho g} + \zeta \quad (16)$$



(a)



(b)

Fig. 5. The results of MD simulation ((a) : 5 interlayer water layers, (b) : 7.5 interlayer water layers).

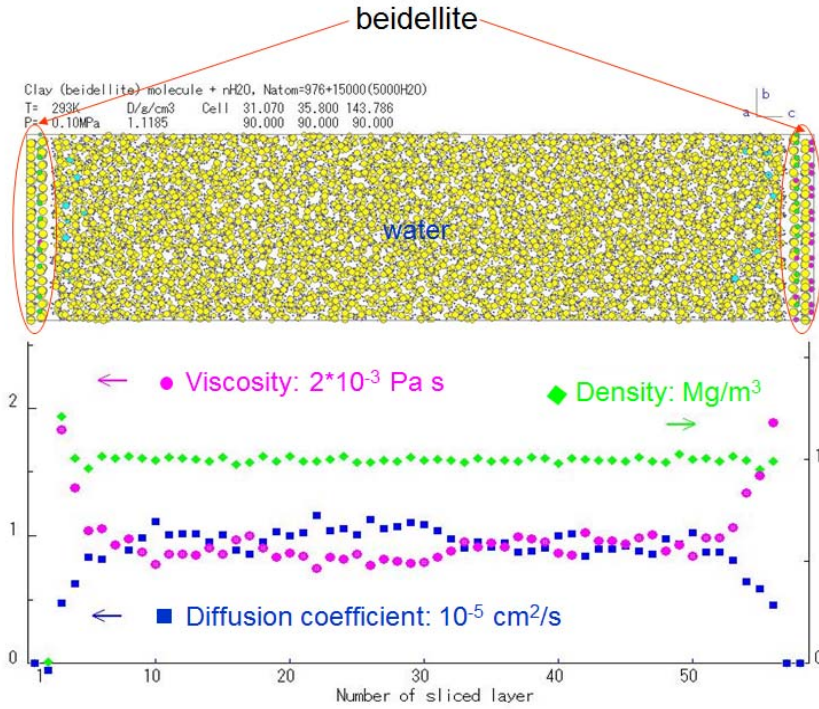


Fig. 6. Variation of viscosity and diffusion coefficient in interlayer water of beidellite.

여기서  $\phi$ 는 총 수두,  $\frac{p}{\rho g}$ 는 압력수두,  $\zeta$ 는 수두차,  $g$ 는 중력상수값이다. 식 (15)에서 보이는  $K_{ij}^*$ 는 C-permeability라고 부르며, 다음 식 (17)과 같이 균질화 해석법에 의해 산출된 투수계수와 관계가 있다.

$$K_{ij}^* = \varepsilon^2 \rho g K_{ij} \quad (16)$$

### 연구결과 및 토의

#### 분자동역학 해석

본 연구에서 소개된 분자동역학 해석에서 사용된 물질은 바이텔라이트로서 2:1 층상구조를 가지고 있으며 각층 사이에는 층간수가 존재한다. 이 층간수는 바이텔라이트의 건조밀도에 따라 달라지며 밀도가 낮을수록 층간수의 분자수는 많아진다. 이러한 건조밀도에 따라 달라지는 층간수의 양을 이용하여 층간수 내외 스택 간에 존재하는 외부수 내의 물 분자에 대한 점착력과 확산계수를 산출하

였다. 이렇게 산출된 점착력과 확산계수는 일반적인 투수실험이나 점착력 실험에서 얻어지는 결과에 비해 미세구조와 주변의 환경조건을 매우 정밀하게 재현할 수 있기 때문에 정확하고 신뢰성 있는 값을 가지게 된다. 그림 4는 이러한 밀도에 따라서 달라지는 층간수를 보여준다.

일반적으로 건조밀도가 1.6 이상일 때는 층간수는 3~5층의 구조를 가지고 있으며, 건조밀도가 1.2~1.6 사이의 값을 가지면 층간수의 수는 5~7층의 구조를 가지는 것이 보편적이다(Ichikawa et al., 1999). 층간수의 수가 많다는 것은 물 분자의 이동이 원활하다는 것을 의미하며 이것은 물의 속도에 영향을 주는 점착력(viscosity)과 확산계수에 밀접한 관계를 나타내고 있다. 밀도에 따른 물 분자의 분자동역학 해석 결과 값은 그림 5에 나타나 있다. 이번 연구에서는 물 층이 5개의 층과 7.5개의 층에 대한 각각의 경우를 모두 계산하였다. 그 결과 5개의 물 층을 가지는 경우 물의 확산계수는 약  $3.42 \times 10^{-6}$  값을 보이고 7.5개의 물 층을 가지는 경우 물의 확산계수는  $5.18 \times 10^{-6}$  값을 보이는 것으로 나타났다. 이 결과에 따르면 물 층의 개수



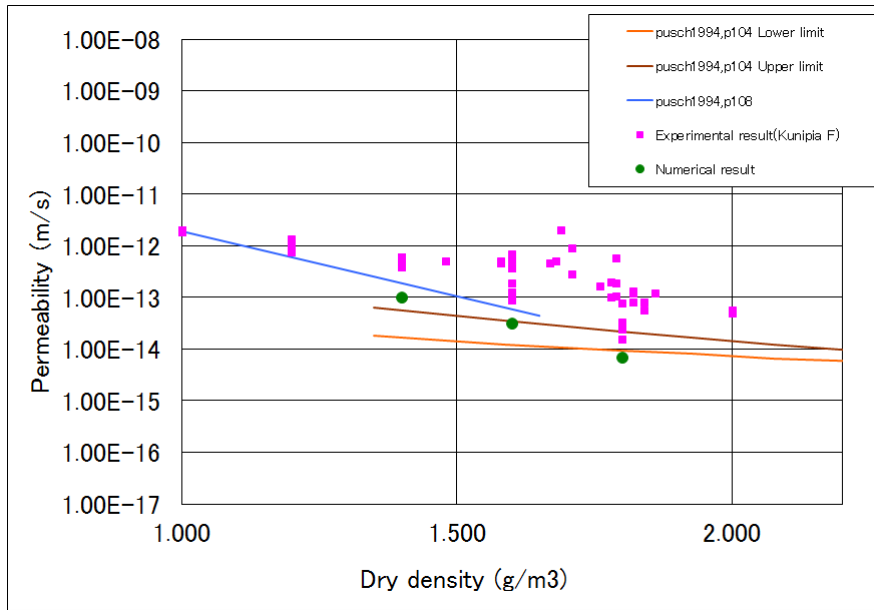


Fig. 7. Comparison of numerical analysis and experiment.

가 증가할수록 물의 확산계수 값은 앞서 설명한 바와 같이 증가한다는 것을 알 수 있다.

그림 6은 바이델라이트 표면에서 거리에 따른 층간수가 아닌 외부수(bulk water)의 점착력과 확산계수의 변화를 보여주는 그림이다. 이는 분자동역학 해석에서 사용되는 층간수의 값과 더불어 일반적으로 포화된 물(외부수)에서의 확산계수와 점착력을 계산하기 위함이다. 이를 통해서 바이델라이트의 표면에서 멀어질수록 확산계수는 증가하고 점착력은 반대로 감소한다는 것을 확인하였다. 즉, 물 층의 개수가 10층을 넘어가게 되면 점착력은 물 층의 수가 증가함에 따라서 급격히 감소하는 모습을 보이고 있으며 물 층의 수가 10층을 넘어서게 되면 거의 변화를 보이지 않는 것으로 나타난다. 또한 이와 반대로 확산계수는 물 층의 수가 증가함에 따라서 급격히 증가하게 되고 역시 물 층의 수가 10층을 넘어서게 되면 거의 변화를 보이지 않는 것으로 나타난다. 이는 물 층의 수가 적으면 적을수록 표면에 대한 마찰력이 커지게 되고 이는 점착력의 증가와 확산계수의 감소로 이어진다. 다시 말해서 물 층의 수가 많을수록 물 분자의 이동은 훨씬 쉬워지게 되고 이는 물의 이동에 있어서 큰 영향을 미친다는 것을 설명한다.

## 2-Scale 균질화 해석

균질화 해석에서는 분자동역학법을 활용한 계산에서 산출된 층간수 및 외부수에 존재하는 물 분자들의 점착력과 확산계수를 입력인자로 활용하여 거시적인 스케일의 관점에 대한 계산을 실시하였다. 본 균질화 해석에서는 자연상태에 존재하는 점토광물과 가장 비슷한 조건을 고려하여 계산하기 위해 바이델라이트의 건조밀도 조건을 1.4, 1.6, 1.8 g/m<sup>3</sup>로 설정을 하고 2-scale 균질화 해석을 실시하였다. 2-scale 균질화 해석에 사용된 scale factor ( $\epsilon$ )는  $10^{-7}$ 이다. 이 scale factor는 미시 스케일과 거시 스케일의 차이를 나타내는 것으로 단위의 차이로 간주할 수 있다. 즉  $10^{-7}$ 이 의미하는 것은 거리 단위에서  $10^{-7}$ 이 차이가 난다는 것을 의미한다. 다시 말해, nano scale에 대한 cm scale까지의 scale factor를 의미하며, 그 결과는 다음 그림 6에서 보는 바와 같다.

본 수치해석에 사용된 스�멕타이트족의 바이델라이트는 실험에 의해 투수특성을 분석한 경우가 매우 적어 기존의 실험 값과 수치해석 결과 값을 비교하는 것이 사실상 매우 어렵다. 따라서 이번 연구에서는 바이델라이트와 매우 흡사한 성질을 가지는 스�멕타이트족의 스�멕타이트의 기존 실험 값들과 수치해석에서 나온 계산 값을 비교하였다. 그

결과, 수치해석의 결과는 건조밀도가 증가함에 따라 바이델라이트 내의 투수계수는 감소한다는 사실을 확인할 수 있다. 이는 Pusch가 1994년 스멕타이트를 사용하여 실제 실내투수실험을 한 결과와 비교했을 때 큰 차이를 보이지 않는 것으로 나타났다(Pusch, 1994). 또한 일본에서 생산되는 쿠니피아 F(스멕타이트)를 활용한 기존의 실험결과와 비교했을 때도 매우 흡사한 결과를 보이고 있다는 사실을 확인하였다. 이러한 결과는 분자동역학 해석에서 얻은 값을 바탕으로 한 균질화해석이 매우 좋은 결과를 보여주고 있으며 실제 거시적인 스케일의 물질에 대한 투수특성을 분석하는 데 있어서 매우 유용한 방법임을 입증하였다.

### 결 론

본 연구는 점토광물의 물리화학적 특성을 분석하기 위해 지금까지 사용된 전통적인 실험적 방법에서 벗어나 수치해석학적 방법을 도입하여 계산하는 것을 소개하고 직접 팽창성 점토광물의 투수 특성을 소개된 수치해석학적 방법을 동원해 계산한 연구이다. 수치해석학적 방법은 두 가지의 방법을 융합하여 계산하는 것으로 분자동역학 계산과 균질화해석 계산법을 활용한 방법이다. 바이델라이트 내에 존재하는 층간수의 확산계수 및 점착력을 계산하기 위한 분자동역학 해석결과는 층간수의 수가 적어짐에 따라 확산계수는 감소하고 이와 반대로 점착력은 증가한다는 사실을 확인하였다. 그리고 외부수의 경우 물 층이 10층을 넘어가게 되면 확산계수와 점착력에 있어서 변화는 거의 없이 일정한 값을 나타낸다는 것을 확인하였다.

분자동역학에서 나온 결과 값을 활용한 거시 스케일에서의 특성을 분석하기 위한 균질화해석 계산법의 결과는 기존의 실험 결과 값과 비교했을 때 매우 흡사한 결과를 보인다는 것을 확인하였다. 이는 지금 소개하는 수치해석학적 방법을 통해서 점토광물의 물리화학적 특성을 분석하는 것이 매우 효과적이며 실험에서 재현할 수 없는 극한조건의 외부환경에 대한 물리화학적 특성을 분석하는 데 있어서도 많은 기여를 할 것으로 기대한다.

### 사 사

본 연구는 한국지질자원연구원의 주요사업인 ‘광산개발에 따른 지질환경재해 확산제어 기술 개발’과제의 지원을 받아 수행되었습니다.

### 참고문헌

- Brindley, G.W. (1980) Order-disorder in clay mineral structures: in *Crystal Structures of Clay Minerals and their X-ray Identification*, G. W. Brindley and G. Brown, eds., Monograph No. 5, Mineralogical Society, London, 125-196.
- Choi, J.H., Anwar, A.H.M.F., Kawamura, K., and Ichikawa Y. (2009) Transport Phenomena in kaolinite clay: Molecular simulation, homogenization analysis and similitude law, *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 33, 687-707.
- Du, J. and Cormack, A.N. (2004) The medium range structure of sodium silicate glasses: a molecular dynamics simulation. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 349, 66-79.
- Guggenheim S. and Martin R.T. (1995) Definition of clay and clay mineral. Joint report of the AIPEA nomenclature and CMS nomenclature committees. *Clays Clay Minerals*, 43, 255-256.
- Ichikawa, Y., Kawamura, K., Nakano, M., Kitayama, K., and Kawamura, H. (1999) Seepage and consolidation of bentonite saturated with pure- or salt-water by the method of unified molecular dynamics and homogenization analysis, *Engineering Geology*, 60, 127-138.
- Kawamura, K., Ichikawa, Y., Nakano, M., Kitayama, K., and Kawamura, H. (1999) Swelling properties of smectite up to 90 °C: in situ X-ray diffraction experiments and molecular dynamics simulations, *Engineering Geology*, 54, 75-79.
- Leed, E.A. and Pantano, C.G. (2003) Computer modeling of water adsorption on silica and silicate glass fracture surfaces, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 349, 66-79.
- Mitchell, J.K. and Soga, K. (1992) *Fundamentals of Soil Behavior*. Wiley: New York, 1-82.
- Pusch, R. (1994) *Waste Disposal in Rock*. Elsevier: Amsterdam, 108p.

접수일(2012년 11월 27일), 수정일(1차 : 2012년 12월 21일), 게재확정일(2012년 12월 24일), 책임편집위원 : 손병국