

해석정밀형삽입원자방법에 의한 조밀룩방금속들의 포논상태밀도에 대한 연구

진학선, 정광별

위대한 수령 김일성동지께서는 다음과 같이 교시하시였다.

《우리는 원자력기술을 개발하고 원자력발전소를 건설하기 위한 문제를 자체의 기술, 자체의 힘으로 자력갱생하여 완성하여야 합니다.》(《김일성전집》 제62권 459페이지)

조밀룩방구조를 가지는 Be는 밀도가 Al의 약 2/3로서 매우 가볍고 녹음점이 비교적 높으며 비열이 크고 탄성상수가 대단히 크다. 또한 중성자흡수자름면적이 작고 산란자름면적이 비교적 크며 높은 온도에서도 역학적성질이 좋으므로 원자로의 감속재 및 반사체로 이용된다. Hf는 열중성자흡수자름면적은 그리 크지 않지만 공명에너지기령역에서 여러개의 흡수봉우리를 가지고있는것으로 하여 조종재료로서의 좋은 핵적특성을 가지며 가공성이 좋고 높은 온도의 물에 대한 내부식성으로 하여 원자로들에서 많이 이용된다.

원자로의 외피재로 개발된 마그녹스에는 Mg와 함께 Al과 Be가 첨가되며 Zr나 Mn도 첨가된다. 지르칼로이의 기본성분은 Zr이며 원자로용불수강으로 대표적인 니오비움불수강과 붕소불수강에는 Co, Ti와 같은 조밀룩방금속원소들이 많이 첨가된다.

이와 같이 조밀룩방금속들은 원자력분야에 많이 이용되고있으며 핵동력공업을 발전시키는데서 중요한 의의를 가진다.

조밀룩방금속들의 포논상태밀도를 결정하면 비열, 데바이온도, 그루나이젠상수, 열팽창계수들을 비롯한 물성값들을 계산할수 있다.[3]

우리는 해석정밀형삽입원자방법과 결정동력학적방법을 결합하여 조밀룩방금속들의 포논상태밀도를 계산하는 한가지 방법을 제기하였다.

결정동력학적방법으로 조밀룩방구조에 대하여 주어진 파수벡토르에서 포논주파수를 계산하는 기본관계식들은 선행연구[1]에서 제기되였다.

포논상태밀도를 계산할 때 파수벡토르 q 가 취할수 있는 값은 평등분포이며 룩방구조의 대칭성을 고려하면 계산해야 할 부분은 전체 제1브릴루앵구역의 $1/2 \times 1/6 \times 1/2 = 1/24$ 이다. 이것을 공간적으로 보면 그림 1에서와 같은 3각기둥부분(비가약구역)이다.

이 구역에서 평등분포된 6만~15만개의 점들에 대한 포논주파수값들을 통계적처리하여 포논상태밀도곡선을 얻는다. 이때 매 점에 대응하는 포논주파수값들이 6개이므로 포논주파수값은 조밀룩방금속에 대하여 36만~90만개에 달한다.

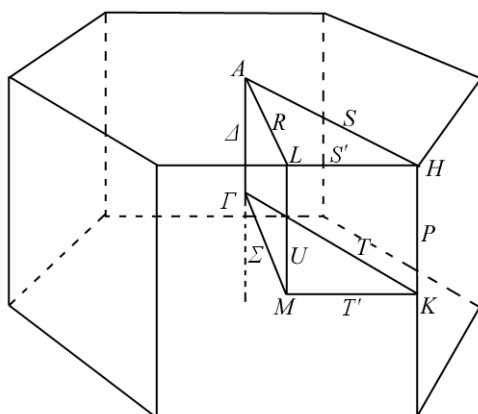


그림 1. 조밀룩방구조에 대한 제1브릴루앵 구역과 비가약구역

조밀 룽방금속에 대한 해석정밀형삽입원자방법의 기본방정식들은 다음과 같다.[1, 2]

$$E_{\text{tot}} = \sum_{i=1}^n E_i, \quad E_i = F(\rho_i) + \frac{1}{2} \sum_j \phi(r_{ij}) + M(P_i)$$

여기서 E_{tot} 는 계의 총에네르기, n 은 계안의 총원자수, E_i 는 i 번째 원자의 결합에네르기, ρ_i 는 기타 모든 원자가 i 번째 원자가 있는 위치에 만드는 전자밀도, $F(\rho_i)$ 는 1개의 원자를 전자밀도가 ρ_i 인 결정체속에 삽입하는데 드는 에네르기, $\phi(r_{ij})$ 는 두 원자사이의 2체포텐살, $M(P_i)$ 는 수정항이다.

더 먼 린접원자를 고려하면 해석수정형삽입원자방법에서 조밀 룽방구조에 대한 삽입원자방법포텐살의 기본함수들은 다음과 같다.

$$F(\rho) = -F_0[1 - \ln(\rho / \rho_e)^n](\rho / \rho_e)^n, \quad f(r) = f_e(n_e / r)^6,$$

$$M(P) = \alpha[1 - \exp(-(\ln |P / P_e|)^2)], \quad \phi(r) = \sum_{j=-1}^6 k_j (r / r_1)^j$$

여기서 $\rho = \sum_m f(r_m)$, $P = \sum_m f^2(r_m) \frac{r_{mx}^2 + r_{my}^2 + \beta r_{mz}^2}{r_m^2}$, $f(r_{ij})$ 는 j 번째 원자가 i 번째 원자가 있는 위치에 만드는 전자밀도이다.

조밀 룽방금속에 대하여 우리가 제기한 쌍포텐살형태는 다음과 같다.[2]

$$\phi(r) = \begin{cases} \sum_{j=-1}^5 k_j (r / r_1)^j & r \leq r_5 \\ \sum_{j=0}^7 l_j (r / r_5 - 1)^j & r_5 < r \leq r_c \\ 0 & r > r_c \end{cases}$$

조밀 룽방금속들에 대하여 5개의 독립적인 탄성상수들이 있으므로 5개의 방정식들을 얻는다. 4개의 독립적인 탄성상수(C_{11} , C_{12} , C_{33} , C_{44})에 대한 방정식들과 2개의 평형조건방정식, 1개의 결합에네르기방정식을 련립하여 $k_0 \sim k_5$, α 를 결정할수 있다. 탄성상수들이 β 에 관하여 비선형적으로 변하므로 C_{13} 에 대한 방정식은 선형방정식조에 포함되지 않는다.

조밀 룽방금속의 입력파라메터들은 표 1과 같다.

표 1. 조밀 룽방금속의 입력파라메터

| 금속 | a/nm | c/nm | E_c/eV | E_{1f}/eV | C_{11}/GPa | C_{12}/GPa | C_{13}/GPa | C_{33}/GPa | C_{44}/GPa | E_{bh}/eV | E_{fh}/eV |
|----|---------------|---------------|-----------------|--------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|--------------------|--------------------|
| Be | 0.228 56 | 0.358 32 | 3.32 | 1.11 | 292.3 | 26.7 | 25.9 | 246 | 162.5 | 0.068 | — |
| Co | 0.249 70 | 0.406 90 | 4.39 | 1.35 | 295 | 159 | 111 | 335 | 71 | — | 0.005 0 |
| Hf | 0.319 46 | 0.505 11 | 6.44 | 1.80 | 181 | 77 | 66 | 197 | 55.7 | 0.059 | — |
| Mg | 0.320 94 | 0.521 05 | 1.51 | 0.58 | 59.3 | 25.7 | 21.4 | 61.5 | 16.4 | 0.031 | — |
| Re | 0.276 00 | 0.445 80 | 8.03 | 2.30 | 616 | 273 | 206 | 683 | 161 | — | 0.163 6 |
| Ru | 0.270 57 | 0.428 16 | 6.74 | 1.85 | 563 | 188 | 168 | 535 | 181 | — | 0.075 5 |
| Sc | 0.330 80 | 0.526 70 | 3.90 | 1.15 | 99.3 | 39.7 | 29.4 | 107 | 27.2 | — | 0.050 1 |
| Ti | 0.295 06 | 0.467 88 | 4.85 | 1.50 | 160 | 90 | 66 | 181 | 46.5 | 0.070 | — |
| Y | 0.364 74 | 0.573 06 | 4.37 | 1.25 | 77.9 | 28.5 | 21.0 | 76.9 | 24.31 | — | 0.044 0 |
| Zr | 0.323 12 | 0.514 77 | 6.25 | 1.70 | 144 | 74 | 67 | 166 | 33.4 | — | 0.061 0 |

에너지차계산값을 실험값이나 다른 계산값에 맞추어 k_{-1} 을, C_{13} 의 실험값에 맞추어 β 를, Rose방정식곡선에 기초하여 n 을 결정한다. k_{-1} , β , n 을 결정한 후 7개의련립방정식을 풀어 $k_0 \sim k_5$ 와 α 를 결정한다.

우리는 선행연구[2]에서와는 달리 Be에 대한 입력파라미터에서 포논분산의 주파수최대값이 실험결과에 비하여 커지는것을 고려하여 C_{13} 의 값을 14로부터 25.9로 조정하였다. 다른 금속들에 비하여 이 값(14)은 상대적으로 매우 작는데 C_{13} 의 값을 14로부터 25.9로 조정하면 결합에너지-환산거리곡선계산결과와 Rose방정식곡선과의 불일치성을 평가하는 부정합도 $\Delta S[2]$ 의 값을 7.27로부터 0.19로 낮출수 있다. 이와 같이 Be에 대한 삽입원자방법포텐셜의 모형파라미터를 다시 결정하였다.

입력파라미터들을 리용하여 계산한 모형파라미터들은 표 2와 같다.

표 2. 조밀육방금속의 모형파라미터

| 금속 | k_{-1}/eV | k_0/eV | k_1/eV | k_2/eV | k_3/eV | | |
|----|--------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|--|--|
| Be | 303 | -1 360.300 9 | 2 516.636 7 | -2 458.873 3 | 1 338.522 3 | | |
| Co | 306 | -1 356.870 1 | 2 481.983 3 | -2 397.465 9 | 1 289.280 6 | | |
| Hf | 270 | -1 181.109 4 | 2 133.392 7 | -2 040.695 7 | 1 090.750 5 | | |
| Mg | 104 | -455.025 9 | 821.366 6 | -783.925 4 | 417.325 7 | | |
| Re | 572 | -2 462.561 1 | 4 359.932 0 | -4 071.896 4 | 2 118.777 9 | | |
| Ru | 377 | -1 635.048 3 | 2 920.084 6 | -2 760.020 5 | 1 459.796 6 | | |
| Sc | 192 | -810.868 1 | 1 408.208 5 | -1 290.011 5 | 658.241 3 | | |
| Ti | 266 | -1 182.098 2 | 2 169.455 2 | -2 105.064 9 | 1 138.203 3 | | |
| Y | 175 | -737.925 5 | 1 281.434 7 | -1 176.232 6 | 602.772 3 | | |
| Zr | 231 | -995.210 2 | 1 770.005 9 | -1 666.001 0 | 875.436 0 | | |

| 금속 | k_4/eV | k_5/eV | α/eV | β/eV | n | F_0/eV |
|----|-----------------|-----------------|--------------------|-------------------|------|-----------------|
| Be | -384.872 7 | 45.659 4 | -0.229 8 | 1.14 | 0.32 | 2.21 |
| Co | -365.888 5 | 42.811 6 | 0.013 8 | -1.23 | 0.58 | 3.06 |
| Hf | -308.800 1 | 36.160 0 | 0.016 6 | -0.93 | 0.32 | 4.64 |
| Mg | -117.488 9 | 13.665 3 | -0.038 4 | 3.77 | 0.75 | 0.93 |
| Re | -582.975 6 | 66.310 9 | 0.090 5 | -0.55 | 0.39 | 5.73 |
| Ru | -410.099 1 | 47.813 5 | -0.229 1 | 1.21 | 0.58 | 4.89 |
| Sc | -177.520 4 | 19.778 8 | -0.147 1 | 1.76 | 0.70 | 2.75 |
| Ti | -324.938 2 | 38.251 2 | 0.030 4 | -0.94 | 0.48 | 3.35 |
| Y | -163.629 9 | 18.388 6 | -0.127 6 | 2.36 | 0.55 | 3.12 |
| Zr | -243.444 3 | 27.982 3 | 0.006 2 | -1.02 | 0.53 | 4.55 |

해석정밀형삽입원자모형포텐셜로 계산한 조밀육방금속들의 포논상태밀도는 그림 2와 같다.

그림 2에서 보는바와 같이 모든 조밀육방금속들의 포논상태밀도는 중간-마감부분에서는 전반적으로 높고 중간과 마감부분에 2개의 봉우리가 있다. 또한 마감부분에서 급격히 감소하다가 완만하게 작아지는 특성이 나타난다.

Be와 Ru에서는 중간-마감부분사이에서 높은 봉우리가 나타나며 Mg와 Zr에서는 론문 계산결과와 선행연구결과가 비교적 잘 일치한다.

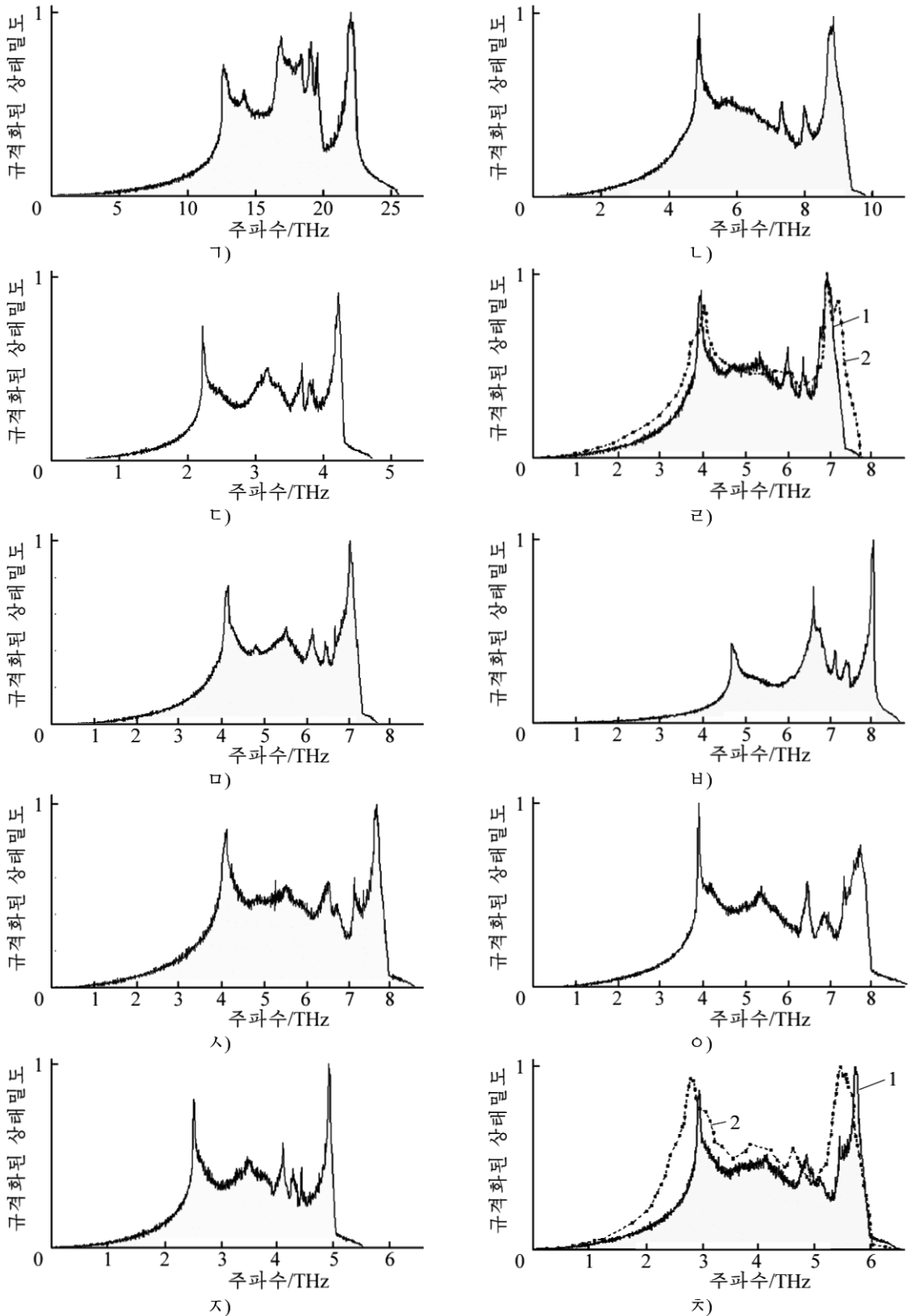


그림 2. 조밀육방금속들의 포논상태밀도

Γ) Be, Λ) Co, Γ) Hf, Δ) Mg, Δ) Re, Δ) Ru, Δ) Sc, Δ) Ti, Δ) Y, Δ) Zr; 1-계산결과, 2-선행연구결과[3]

맺는 말

해석정밀형삽입원자방법과 결정동력학적방법을 결합하여 조밀육방금속의 포논상태밀도를 계산하는 방법을 제기하였다. 제기한 방법으로 계산된 조밀육방금속들인 Be, Co, Hf, Mg, Re, Ru, Sc, Ti, Y, Zr의 포논상태밀도곡선들은 공통적인 특성을 가지며 실험결과와 선행연구결과는 잘 일치한다.

참고 문헌

- [1] 김일성종합대학학보(자연과학), 59, 2, 80, 주체102(2013).
- [2] H. Jin et al.; Applied Physics, A 120, 189, 2015.
- [3] 张邦维 等; 嵌入原子方法理论及其在材料科学中的应用, 湖南大学出版社, 259~298, 2003.

주체105(2016)년 11월 5일 원고접수

On the Phonon DOS of HCP Metals by Precise AEAM

Jin Hak Son, Jong Kwang Byol

We suggested a calculation method of the phonon DOS(Density Of State) for HCP metals by combining the precise AEAM (analytic embedded atom method) and the lattice dynamics method, and applied it to Be, Co, Hf, Mg, Re, Ru, Sc, Ti, Y and Zr.

Key words: precise AEAM, lattice dynamics, HCP metal, phonon DOS