

일반화된 해석정밀형삽입원자방법에 의한 Zr의 포논분산특성연구

진학선, 리준일

원자로에서 이용되는 금속재료들의 특성들을 모의계산하는 방법을 확립하는것은 원자력공업을 새로운 과학적도태우에 올려세우는데서 중요한 의의를 가진다. 해석수정형삽입원자방법[7]을 개선하여 제기된 해석정밀형삽입원자방법[5]을 일반화하면 순금속 및 합금재료의 특성연구[1-4]에서 구조에 관계없이 한가지 형식의 2체포텐셜을 리용하는것으로 하여 모의의 정확성과 효과성이 높아진다.

론문에서는 일반화된 해석정밀형삽입원자방법에 기초하여 원자로에서 연료봉외피재료로 리용되는 조밀룩방금속인 Zr의 포논분산특성에 대하여 고찰하였다.

1. Zr에 대한 일반화된 해석정밀형삽입원자방법포텐셜

체심립방금속, 조밀립방금속, 조밀룩방금속들에 대하여 보편적으로 적용되는 일반화된 해석정밀형삽입원자방법의 2체포텐셜형식은 다음과 같다.

$$\phi(r) = \begin{cases} \sum_{i=0}^4 k_i \left(\frac{r}{r_a} \right)^i + k_5 \left(\frac{r}{r_a} \right)^6 + k_6 \left(\frac{r}{r_a} \right)^{-1} + k_7 \left(\frac{r}{r_a} \right)^{-12} & (r \leq r_b) \\ \sum_{j=0}^7 l_j \left(\frac{r}{r_b} - 1 \right)^j & (r_b < r \leq r_c) \\ 0 & (r > r_c) \end{cases} \quad (1)$$

여기서 r_a 는 살창상수 a 가 입력파라메터와 같은 경우 기준으로 설정하는 린접원자들사이의 거리로서 체심립방금속, 조밀립방금속인 경우 제1린접거리, 조밀룩방금속들에서는 살창상수로 설정한다. 이때

$$r_a = fa \quad (2)$$

라고 하면 가장 안정한 구조를 반영하는 파라메터 f 는 Zr에 대하여 1로 된다. r_b 에서의 강화된 련속원활조건으로부터 얻어지는 $l_j (j=0 \sim 3)$ 와 $k_j (j=0 \sim 7)$ 사이의 관계식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} l_0 &= k_0 + k_1 s + k_2 s^2 + k_3 s^3 + k_4 s^4 + k_5 s^6 + k_6 / s + k_7 / s^{12} \\ l_1 &= k_1 s + 2k_2 s^2 + 3k_3 s^3 + 4k_4 s^4 + 6k_5 s^6 - k_6 / s - 12k_7 / s^{12} \\ l_2 &= k_2 s^2 + 3k_3 s^3 + 6k_4 s^4 + 15k_5 s^6 + k_6 / s + 78k_7 / s^{12} \\ l_3 &= k_3 s^3 + 4k_4 s^4 + 20k_5 s^6 - k_6 / s - 364k_7 / s^{12} \end{aligned} \quad (3)$$

r_c 에서의 강화된 련속원활조건으로부터 얻어지는 $l_j (j=4 \sim 7)$ 와 $l_j (j=0 \sim 3)$ 사이의 관계식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned}
l_4 &= -\frac{35l_0}{d^4} - \frac{20l_1}{d^3} - \frac{10l_2}{d^2} - \frac{4l_3}{d}, & l_5 &= \frac{84l_0}{d^5} + \frac{45l_1}{d^4} + \frac{20l_2}{d^3} + \frac{6l_3}{d^2}, \\
l_6 &= -\frac{70l_0}{d^6} - \frac{36l_1}{d^5} - \frac{15l_2}{d^4} - \frac{4l_3}{d^3}, & l_7 &= \frac{20l_0}{d^7} + \frac{10l_1}{d^6} + \frac{4l_2}{d^5} + \frac{l_3}{d^4}
\end{aligned}
\quad (4)$$

웃식들에서 s 와 d 는 다음과 같다.

$$s = \frac{r_b}{r_a}, \quad d = \frac{r_c}{r_b} - 1 \quad (5)$$

2체포텐셜의 절단반경 r_c 와 전자밀도함수의 절단반경 r_{cf} 는 각각 다음과 같이 설정된다.

$$r_c = k_c r_a, \quad r_{cf} = k_{cf} r_a \quad (6)$$

이 절단반경들의 차이는 구조에너지를의 체적에 따르는 변화의 연속원활성을 보장한다.

웃식들에서 a 는 입력파라미터, $k_j (j=0\sim7)$, f , s , k_c , k_{cf} 는 구조에 관계없이 매 금속에 대응하는 모형파라미터로 된다. 이밖에도 살창상수, 결합에너지 E_c , 단빈살창점결합형성에너지 E_{1f} , 독립적인 탄성상수들인 C_{11} , C_{12} , C_{13} , C_{33} , C_{44} 가 입력파라미터로 되며 매 금속들에서 체심립방구조, 조밀립방구조, 조밀육방구조들사이의 구조에너지차들이 입력파라미터로 된다.

여러가지 물성들을 모의계산할 때 리용되는 입력 및 일반화된 해석정밀형삽입원자방법포텐셜모형파라미터들은 표와 같다.

표. 모의계산에 리용되는 입력 및 일반화된 해석정밀형삽입원자방법포텐셜모형파라미터

a/nm	b/nm	c/nm	f	s	k_c	k_{cf}	E_c/eV	k_0	k_1	k_2
0.323 12	0.323 12	0.514 77	1	1.7	2	2.2	6.25	-820.501 2	1 422.254 5	-1 274.517 5
k_3	k_4	k_5	k_6	k_7	α	β	γ	n	F_0	η
604.685 2	-128.116 8	2.970 9	193	0	0.006 02	-1.03	1	0.53	4.55	4.48

* f , s , k_c , k_{cf} , n , β , γ , η 는 무분량, F_0 , α , k_i 의 단위는 eV

표에 주어진 파라미터들을 리용하여 평가한 탄성상수들은 입력파라미터값과 완전히 일치한다. 체심립방구조와 조밀육방구조사이의 구조에너지차의 모의계산결과는 0.061eV로서 실험결과[7]인 0.076eV에 가까운 값으로 된다. 이 결과는 선행연구[5]의 계산결과와 완전히 일치하며 해석수정형삽입원자방법의 계산결과 0.017 9eV에 비하여 실험결과와의 일치정도에서 훨씬 개선되었다. 면심립방구조와 조밀육방구조사이의 구조에너지차의 모의계산결과는 0.005 2eV로서 실험결과 0.076eV, 선행연구의 계산결과 0.017eV와 크게 차이 나지만 해석수정형삽입원자방법[7]의 계산결과 0.004 9eV와 거의 일치하며 실험결과와의 일치정도에서 조금 개선되었다.

주어진 파라미터들에 의하여 해석정밀형삽입원자방법으로 모의계산된 살창상수의 변화에 따르는 조밀육방금속 Zr의 구조에너지변화곡선은 그림 1과 같다. 또한 로즈관계식[6]

$$\begin{aligned}
E &= -E_c(1+a^*)\exp(-a^*) \\
a^* &= \eta(a/a_0 - 1)
\end{aligned}$$

에 의하여 살창상수의 변화에 따르는 구조에너지변화곡선을 평가하였다.(그림 1)

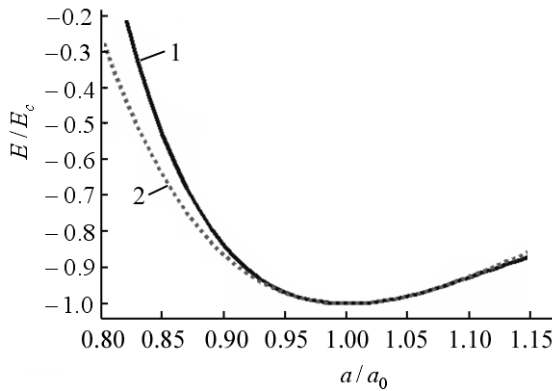


그림 1. 살창상수의 변화에 따르는 조밀육방 금속 Zr의 구조에너지변화곡선
1-계산결과, 2-로즈관계식곡선[6]

결정살창의 제1브릴루앵구역과 그것의 비가약구역은 그림 2와 같다. 결정구조의 대칭성과 주기성으로부터 비가약구역에서의 포논분산특성만을 고찰하여 전체 결정에서의 포논분산특성을 평가할 수 있다.

Zr의 포논분산곡선을 얻기 위하여 제1브릴루앵구역의 $(000) \rightarrow (110)$, $(110) \rightarrow (100)$, $(100) \rightarrow (000)$, $(000) \rightarrow (001)$, $(001) \rightarrow (111)$, $(111) \rightarrow (000)$ 방향을 따라 포논주파수들을 평가하였다.(그림 3) 여기서 파수벡토르들은 매 성분은 해당 방향에서 매 벡토르성분의 제일 큰 값으로 나눈어진 값들이다. 즉 포논주파수값들은 제1브릴루앵구역에서 그림 2에 표시된 점들인 Γ , K, M, Γ , A, H, Γ 들을 차례로 연결하는 선분들을 따라 계산되었다. 비교평가하기 위하여 $(000) \rightarrow (110)$, $(100) \rightarrow (000)$, $(000) \rightarrow (001)$ 방향의 실험결과[7]를 함께 주었다. 계산결과 결정살창진동의 비조화특성이 크게 나타나는 큰 포논주파수들을 제외하고 실험결과와 잘 일치한다.

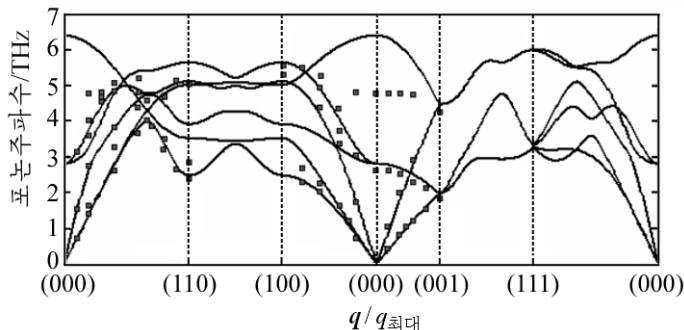


그림 3. Zr의 포논분산곡선
실선-계산결과, 점-실험결과[7]

a/a_0 의 값이 $[0.9, 1.1]$ 에 놓일 때 계산 결과는 로즈관계식곡선과 거의 일치하며 그 밖의 구간에서도 변화특성이 비슷하다. 웃식에서 a_0 은 입력파라미터로 주어지는 살창상수값이고 a 는 변화된 살창상수값이다.

2. 모의계산 및 결과분석

조밀육방금속들에 대한 해석정밀형압입 원자방법포텐셜에 의하여 주어진 파수벡토르에 대응하는 포논주파수들을 평가하는 방법은 선행연구[1]에서 제기되었다. 조밀육방

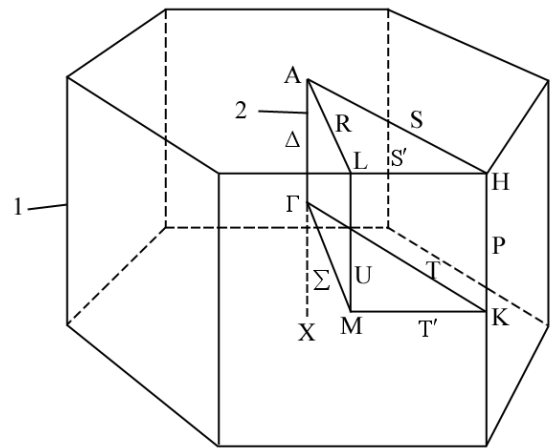


그림 2. 조밀육방결정살창에 대한 제1브릴루앵구역(1)과 비가약구역(2)

그림 2에 보여준 비가역구역에서 0.05nm^{-1} 의 간격으로 균일하게 분포된 1 789 896개의 점들에 대한 포논주파수값들을 계산하고 통계적처리를 하여 포논상태밀도곡선을 얻었다.(그림 4) 그림 2에서 선분 ΓK 의 길이는 $4\pi/3a$, ΓA 의 길이는 $\pi/2c$ 로서 각각 12.9636 , 6.1029nm^{-1} 이다.

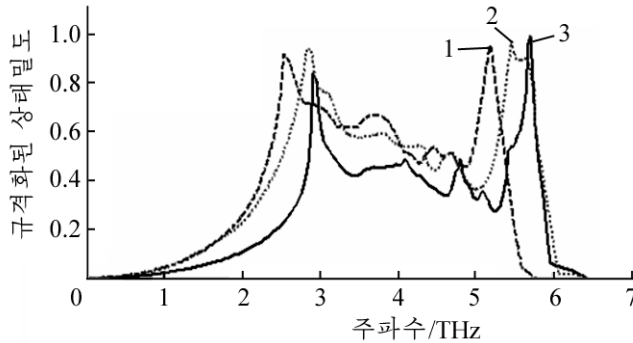


그림 4. Zr의 포논상태밀도곡선
1-선행연구[2], 2-실험결과[7], 3-계산결과

Zr에 대한 포논상태밀도곡선을 보면 중간-마감부분이 전반적으로 높고 중간과 마감에 2개의 봉우리가 있다. 또한 마감부분에서 급격히 감소하다가 완만하게 작아지는 특성이 있다.

Zr에 대한 계산결과는 선행연구[2]의 결과보다 실험결과[7]와 비교적 일치하며 특히 봉우리위치와 높이가 잘 일치한다.

맺는 말

- 1) 일반화된 해석정밀형압입원자방법을 적용하여 3개의 대칭방향에서 Zr의 포논분산곡선을 조화근사로 고찰하였다.
- 2) 일반화된 해석정밀형압입원자방법과 결정동력학적방법을 결합적용하여 Zr의 포논상태밀도를 고찰하였다.

참고 문헌

- [1] 김일성종합대학학보(자연과학), 59, 2, 80, 주체102(2013).
- [2] 김일성종합대학학보(자연과학), 63, 3, 79, 주체106(2017).
- [3] 김일성종합대학학보(자연과학), 63, 12, 72, 주체106(2017).
- [4] 김일성종합대학학보(물리학), 64, 1, 100, 주체107(2018).
- [5] H. Jin et al.; Applied Physics, A 120, 189, 2015.
- [6] J. H. Rose et al.; Phys. Rev., B 29, 2963, 1984.
- [7] 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, 259~296, 2003.

주체107(2018)년 12월 5일 원고접수

On Phonon Dispersion Property of Zr Metal by Generalized Precise AEAM

Jin Hak Son, Ri Jun Il

We simulated and calculated the phonon dispersion curve and the phonon DOS(density of state) of the HCP metal Zr by combining the precise AEAM(analytic embedded atom method) and the lattice dynamics method in harmonic approximation.

Key words: phonon dispersion, phonon density of state, harmonic approximation