

Ab initio 방법을 이용한 베릴륨 결합 에너지 및 베릴륨 내의 수소 거동 연구

김동규^{1*}, 김성렬², 김희문², 김용은¹, 홍권표², 안상복²

¹충북대학교, 충청북도 청주시 서원구 충대로 1

²한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 989번길 111

*kdg0080@kaeri.re.kr

1. 서론

핵융합 과정에서는 일반수소, 중수소, 삼중수소, 헬륨, 중성자, 양성자 등이 핵융합로 내부에서 발생한다. 특히 삼중수소는 융합로 내벽재료에 침투하여 방사능폐기물 처리시 삼중수소 제거를 필요로 하며 제거방법으로는 가열방법을 통한 수소방출을 이용하고 있다.

따라서 이러한 융합로 재료 및 폐기물들의 삼중수소 거동 및 확산에 대한 연구가 이루어지고 있으며 여러 시험 및 계산에 의한 결과물들이 도출되고 있다. 본 연구에서는 융합로의 주재료인 베릴륨내 삼중수소의 거동을 알아보하고자 Ab-initio 계산방법을 적용하여 여러 가지 에너지를 계산해 보았다.

2. 본론

2.1 계산 이론

VASP(Vienna Ab initio Simulation Package)는 양자역학적 분자 동역학 시뮬레이션 패키지로 슈뢰딩거 방정식과 밀도 범함수 이론(DFT)을 기반으로 운영하는 전산코드이며 본 연구에서는 이 코드를 이용하여 계산을 수행하였다.

격자구조의 에너지 계산은 수많은 원자와 전자, 이온들 사이의 에너지 상호작용을 양자역학으로는 직접 풀 수가 없기 때문에 근사를 사용하여 계산을 간략하게 만들어야 한다. 원자핵과 전자의 계산은 원자핵이 전자보다 상대적으로 매우 무겁기에 전자에 대해서 정지해 있는 것으로 볼 수 있고 이는 Born-oppenheimer 근사식으로 나타낸다[1]. 전자와 전자간의 상호작용은 전자를 전자구름으로 가정하여 근사한 밀도 범함수 이론(DFT)을 통해 근사하여 전자밀도함수로 나타낸다. 전자간 상호작용에 의해 서로 위치가 맞교환 되는 과정에서 발생하는 전자교환에너지 역시 고려해야 한다[3]. 각각의 근사된 에너지는 슈뢰딩거 방정식에서 퍼텐셜 에너지에 적용되어 계산한다.

2.2 계산 방법

VASP 계산에 필요한 매개변수는 INCAR로 입력되는 초기에너지, POSCAR파일로 입력되는 격자구조와 격자상수, KPOINT파일로 입력되는 브릴루앵 영역(Brillouin zone), POTCAR파일로 입력되는 전자밀도이다. 격자상수를 정의하기 위해서 베릴륨의 결정격자인 육방정계(HCP)를 구성하는 최소 단위 기본격자 구조(Unit Cell)를 설정하고 이 기본격자에 대하여 가장 낮은 에너지를 가지는 구조를 최적화 과정을 통해 만들고, 만들어진 기본 격자구조가 가지는 격자상수를 계산에 사용하였다. Fig. 1에서 보듯이 최적화하여 얻은 격자상수는 $a=2.28 \text{ \AA}$, $c=3.58 \text{ \AA}$ 이다.

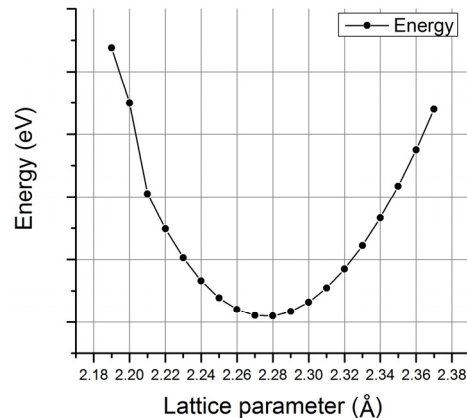


Fig. 1. Energy of the unit cell of the lattice parameter.

브릴루앵 영역은 격자구조에서 각 역격자점의 수직 이등분선에서 만들어진 영역에서 첫 번째로 만들어지는 영역이다. 제1 원리의 계산은 수직 이등분선이 첫번째로 만들어지는 영역에서 행해진다[4]. 이 영역은 역 격자지점에서 추출된 점(K-point)으로 표현되며 각 격자당 계산에 사용할 영역을 지정해 준다.

그리고 근사된 전자밀도는 일반 그라데이션 근사식(GGA)을 사용하였다. 이는 격자구조 전반에 대한 특성에 대해서 국소밀도근사(LDA) 더 안정된 에너지를 알려준다[5]. VASP와 같이 제공되는 UltraSo

ft vanderbilt PseudoPotentials (USPP)를 사용해 GGA로 근사된 퍼텐셜 준위의 에너지범위를 낮은 값으로 안정시킨 근사구조를 사용한다[6].

계산에 사용되는 베릴륨 결정격자는 Fig. 2와 같이 36개의 원자로 구성되는 육방정계(HCP) 초격자 구조를 사용했다. 이 구조에서 원자 하나를 제거하여 결함에너지를 구하여 Ref[6]와 비교하였다.

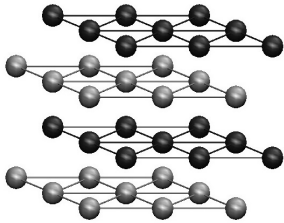


Fig. 2. 36 atoms composed of HCP Supercell.

빈격자점(Vacancy site)에 위치한 수소 동위원소의 위치 설정은 빈격자점의 경우 완성된 36개 초격자점에서 육방정계의 중심 격자점에 1개의 수소 동위원소를 설정 하였고, 격자 간극(Interstitial site)에 위치한 수소 동위원소는 육방정계의 격자 간극에 1개의 수소 동위원소 위치하였다.(Fig. 3 참조)

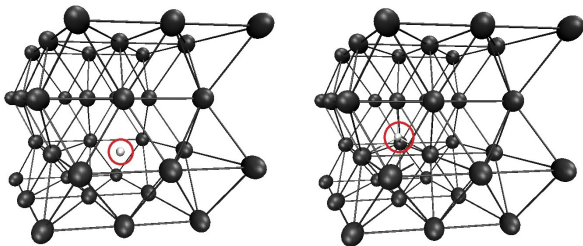


Fig. 3 . Hydrogen positions of Supercell (circle), vacancy sites (left), interstitial sites (right).

2.3 계산 결과

36개로 이루어진 초격자 구조(Supercell)에서 계산된 에너지와 그 결함에너지, 결함격자점에 위치한 수소 동위원소별 에너지, 격자 간극에 위치한 수소 동위원소별 에너지를 Table 1, 2에 나타내었다.

Table 1. calculated for a 36 atoms super-cell

	Energy
36 atom cell	-134.574 eV
Ref[6]	-134.525 eV
Vacancy EN	0.99 eV
Ref[6]	0.98 eV

Table 2. hydrogen isotopes in vacancy sites of Supercell

	total Energy
H	-131.896 eV
D	-131.896 eV
T	-131.896 eV

Table 3. hydrogen isotopes in interstitial sites of Supercell

	total Energy
H	-136.043 eV
D	-136.043 eV
T	-136.043 eV

본 결과에서는 수소에 대한 동위원소별 에너지차이는 거의 없는 것으로 나타났다. 그러나 빈격자점의 공간이 수소보다 매우 커서 여러 수소원자를 추가하여 계산할 필요가 있다.

3. 결론

계산 결과 베릴륨 36개로 초격자 구조에 위치한 수소 동위원소 간의 에너지 차이는 보이지 않았다. 그러나 이번 연구에서는 빈격자점나 격자 간극에 위치한 고려하여 계산을 실행하였고 빈격자점이나 격자 간극의 공간과 수소원자의 크기차이 고려하지 않았기 때문에 향후 빈격자점 공간과 수소 원자의 크기 차이를 적용한 초격자 모델을 구성하여 다시 계산하여 에너지 차이를 연구할 예정이다.

4. 참고문헌

- [1] M. Born and R. Oppenheimer Annalen der Physik, vol.389, Issue 20, 457.
- [2] P. Hohenberg, W. Kohn. Phys. Rev. 136, B 864.
- [3] W. Kohn, L. J. Sham Phys. Rev. 140, A1133
- [4] F. Bolch Phys. Rev. 52 555 (1929).
- [5] N. A. W. Holzwarth and Y. Zeng, Phys. Rev. B 51, 13653 1995.
- [6] M. G. Ganchenkova and V. A. Borodin Phys. Rev. B 75, 054108.