Fe-1.0Cu 합금에서 HVEM조사에 의한 조사결함의 직선운동
One Dimensional Motion of Radiation Defects in Fe-1.0%Cu Alloy under HVEM Irradiation

권상철, 조해동, 이소연, 김주학, 김홍희
한국원자력연구소 원자력재료기술개발부

1. 서론

2002년부터 원자력중장기 연구의 일환으로 조사결함에 대한 양전자 소멸 수명 측정, SANS, TEM 및 다양한 비파괴적 방법을 사용하여 조사손상의 기구를 파악하는 연구가 진행되고 있다. 하나로를 이용한 중성자 조사 및 가속기에 의한 이온 조사 방법을 사용하여 조사결함을 생성시켜 분석하였으나, 중성자 조사의 경우 다양한 조사량의 조건을 얻기 어렵고, 시료의 방사화로 인한 제약조건이 있으며, 가속기 조사의 경우 TEM 분석 시료의 제작이 어려운 단점을 갖고 있다. 또한 중성자 조사시료나 가속기 조사 시료는 일회성으로 조사량의 변화를 주기 위하여서는 많은 조사시험이 필요하다.

그러나 HVEM을 사용할 경우, 고에너지 전자빔 조사조건에서 실시간으로 조사결함의 거동을 관찰할 수가 있다. 한국기초과학지원연구원에서 1.25 MeV의 HVEM을 2004부터 국내에서도 사용이 가능하게 됨으로써. Fe-1.0%Cu합금에서 조사결함의 조사량에 따른 조사결함의 생성을 분석하여 왔다. 특히 다른 분석 방법을 이용하는 경우에는 조사후의 최종 결함에 의한 미세구조를 관찰하지만, HVEM을 이용함으로써 각 결함의 상호작용과 변화과정을 알 수 있기 때문에 최종의 미세구조와의 관계를 이해할 수 있다. 1차 분석에서 국내 처음으로 전위 loop의 이동현상을 화면상으로 관찰 할 수 있었다. 그러나 동영상 확보를 위한 video recording이 되지 않아 그에 대한 분석의 기회를 가질 수 없었다. 이번 2005년 1/4분기 시험에서 동영상을 확보할 수 있게 됨으로써 그 분석 결과를 설명하고자 한다.

HVEM에 의한 전자밤조사에서 전위 loop의 이동을 관찰한 결과를 제한적이지만 다수 발표된 바가 있다[1-3]. 그러나 그 이동 기구에 대하여 확실하게 밝혀진 바가 없다. 이번 분석결과로 전위 loop의 이동에 대한 기구를 밝힐 수는 없지만 그에 관한 연구가 국내에서도 가능하다는데 우선 의의를 둘 수 있다. 앞으로 추가 분석을 통하여 결함의 밀도와 주변 loop와의 거리 및 시료에서의 위치 등을 분석함으로써 그 기구를 밝히고자 한다.

2. 실험 방법

시료는 2004년에 조사량에 따른 조사결함 생성 및 성장 거동을 확인한 바 있는 Fe-Cu합금을 사용하였다[4]. Fe-1%Cu를 목표로 하여 용융, 단조, 압연, 850℃에서 5시간 가열 후, 수냉시킨 것과 500℃에서 30시간 진공에서 ageing한 시료 두 종류로 두께 1 mm의 박판과 얻었다. 성분분석으로 Cu 0.99%, O 370 ppm, 기타 불순물은 100 ppm 이하인 Fe 1.0%의 합금을 확인할 수 있었다. 미세조직을 관찰하여 수냉시킨 시료에서는 Cu 석출물이 없는 것을 확인하였다. 연마 및 polishing 하여 두께를 50-70 ㎛로 하였다. TEM 시편을 제작한 후, 5% perchloric acid + 95% methanol을 사용하여 -45℃에서 thinning하였다. HVEM 분석은 1.25 MeV에서 2.6×10^{19} e /s · ㎠ (4.2×10^{-4} dpa/s)로 조사시키면서 실시간으로 전위 loop의 거동을 관찰하였다. 수냉으로 Cu를 과포화 시킨 시료(B8)는 빔 방향을 [111]로, ageing시료(M6)는 [001]방향으로 관찰하였다. 전자빔 조사에 의한 시료의 온도 상승효과를 계산으로 계산한 결과, 무시할 수 있음을 확인하였다. Loop의 이동 상태를 파악하기 위하여 video recording 장치를 사용하였으며, image acquisition 속도는 60매/초이었다.

3. 결과 및 고찰

1차분석에서와 비슷하게 약 0.02 dpa에서부터 전위 loop가 나타나기 시작하였다. 약 0.1 dpa에서 loop의 밀도는 포화상태를 이루었다. 아직 결함의 종류를 확인하지는 않았지만, 실온에서는 SIA(self interstitial atom)가 vacancy 보다 활동이 활발하기 때문에 거의가 interstitial type이라고 생각된다. 특히 Cu는 vacancy를 trap하기 때문에 그만큼 interstitial loop가 생성될 확률이 높다[6].

직경 2 nm이상의 cluster가 직선 이동하는 것을 동영상을 통하여 확인이 가능하였다. 시료 B8에서는 그림 1과 같이 약 60° 간격의 3방향으로 클러스터가 이동하였다. 이것은 빔의 방향과 DP분석결과에 의하면 {110}면에서 <111>방향으로 전위가 이동하였음을 보여준다. 일반적으로 전위동력학에 의하면 Frank loop는 sessile이며 고온에서 climb이나 다른 전위와의 상호작용에 의하여 prismatic으로 변하는 경우 이동이 가능한 것으로 알고 있다. 즉, Burgers vector방향으로 전위가 이동함으로써 소성변형을 전제로하기 때문이다.

어떤 cluster는 그냥 사라지기도 하고, 이동란 후 사라지는 것도 있다. 이것은 시편의 표면으로 클러스터가 이동하여 사라진 것으로 해석할 수 있다.

이동거리는 <111>방향으로의 이동과 빔방향과의 각도를 고려하여 계산 할 경우 약 10 nm이하가 되는 것으로 보여지며, 10 nm 정도 이동하는 것은 육안으로 관찰이 쉽다. 그 이동속도는 약 10-40 nm/sec로 추정된다.

Cluster중에는 그림 2와 같이 이동하였다가 원래 자리로 되돌아오는 back-and-forth

이동을 하는 것도 있었다. 이것은 주변의 cluster와의 상호 작용으로 설명할 수 있다고 본다. 이웃하고 있는 cluster의 성장 및 이동으로 back-and-forth 이동을 하고 있는 cluster에 척력 및 인력을 교대로 가하는 것으로 보인다.

이러한 cluster의 이동은 일단 주변의 응력구배로 인하여 발생한다고 보여 진다. 초기 클러스터의 농도가 적을 때는 별로 관찰할 수 없으나, 어느 정도 생성량이 많아지면 활발하기 때문이다. 정상적인 격자내에 cluster가 있으면 이 cluster는 압축응력을 받을 것이다. 따라서 이러한 cluster가 주변에 많게 되면 결국 cluster에 가하는 응력은 크게되고 일정 크기가 되면 이동을 한다고 볼 수 있다. 그렇지만, 아직도 Frank loop의 Burgers vector는 plane에 수직방향으로 기존의 전위이동이론에 의하면 sessile이다. Cluster의 이동을 Kiritani[7]는 bundle crwodion mechanism으로 설명하고 있다. 일반 전위론으로는 설명이 어렵다는 것을 전제로 클러스터를 [111] 방향의 crwodion이 많이 모인 것으로 가정한다는 것이다. Wirth등[8]이 10개 atom 정도의 crwodion의 이동을 분자동력학으로 모사하여 interstitial의 이동에 필요한 energy를 계산한 결과 0.04 eV로 매우 작다. Bundle crwodion mechanism으로 가능하다고 보고, crwodion의 이동에 필요한 driving force가 주변의 cluster와의 관계에서 작용한다고 할 때, TEM 시편과 같은 얇은 시료에서는 충분히 가능하다고 생각된다. 그러나 TEM시료가 아닌 일반 시료에서도 가능하리라고 보기는 어렵다. 주변 matrix가 실온에서 cluster의 이동을 억제할 것이기 때문이다. 이에 대한 충분한 고찰은 cluster 주변의 응력관계를 계산하여야 가능하리라고 본다. Cluster의 이동이 쉽게 일어나는 점을 감안할 때, 두께가 큰 일반 시료에 응력을 가할 경우에는 cluster의 이동이 가능하다고 생각된다.

일반 조사재 시료에 변형을 주게 되면 국부적으로 조사결함이 사라지는 dislocation channeling 현상을 관찰 할 수 있다. 아직 dislocation channeling에 대한 기구가 명확히 밝혀지지 않았으나, cluster의 직선 이동 즉, 이동의 용이성으로 설명이 가능할 것이다. 외부 응력으로 <111>방향의 척력을 가하게 되면 cluster는 쉽게 이동하여 grain boundary 또는 표면에서 사라지게 될 것이기 때문이다. 이러한 조건의 전위가 이동하는 영역에서 cluster는 사라지게 되고 그렇지 않은 영역에서는 전위가 결함으로 인하여 이동이 어렵게 되면 국부적으로 변형이 발생할 것이고, 따라서 재료의 취화가 발생할 것이다.

References

[1] K. H. Westmacott, A. C. Roberts, R. S. Barnes, Philos. Mag. 7 (1962) 2035.
[2] M. Kiritani, Proc. Int. Conf. High Voltage Electron Microscopy, Antwerp, 1980, p.196
[3] M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 206 (1993) 156.
[4] 권상철, 최광진, 조해동, 김주학, 김응선, 2004 추계전자현미경학회, 서울, 2004.

[5] M. Kiritani, Ultramicroscopy 29 (1991) 135.

[6] C. S. Becquart, C. Domain, J, C. van Duysen, J. M. Raulot, J. Nucl. Mat. 294 (2001) 274.

[7] M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 251 : 237-251, 1997.

[8] B. D. Wirth, G. R. Odette, D. Maroudas, G. E. Lucas, J. Nucl. Mater. 244(1997) 185.

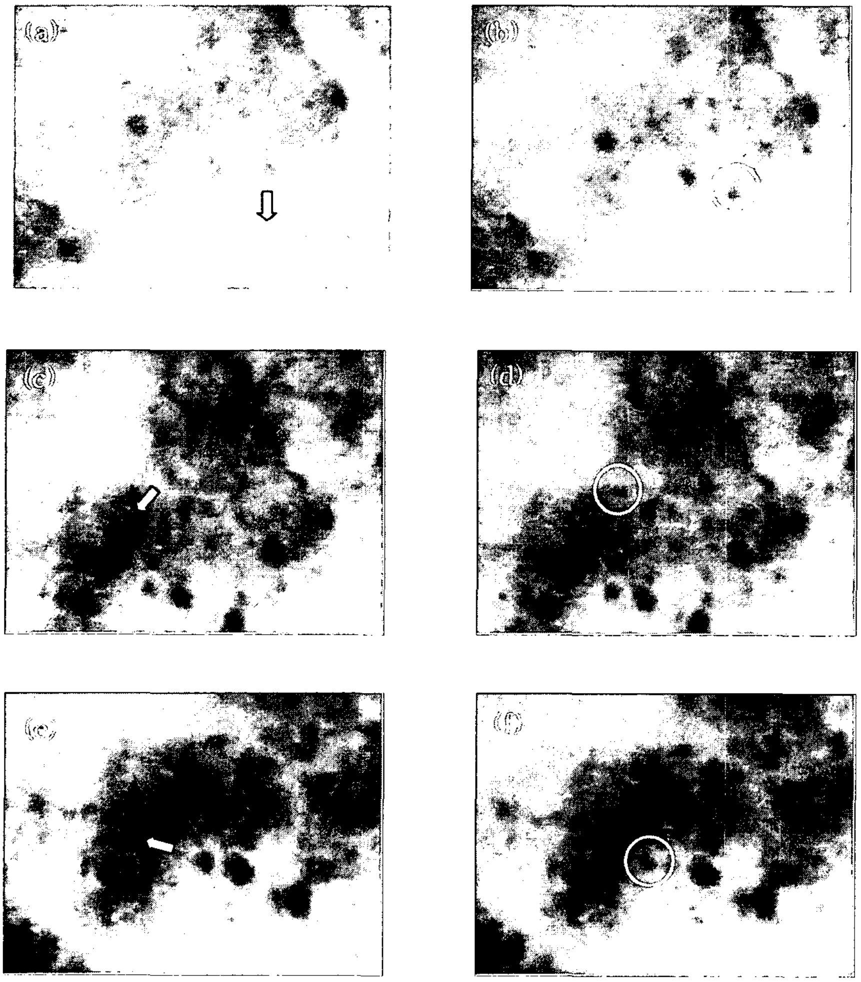

Fig. 1. One dimensional motion of a small defect cluster. (a), (c) and (e) : before the motion, (b), (d) and (f) : after the motion. An arrow indicates the direction.

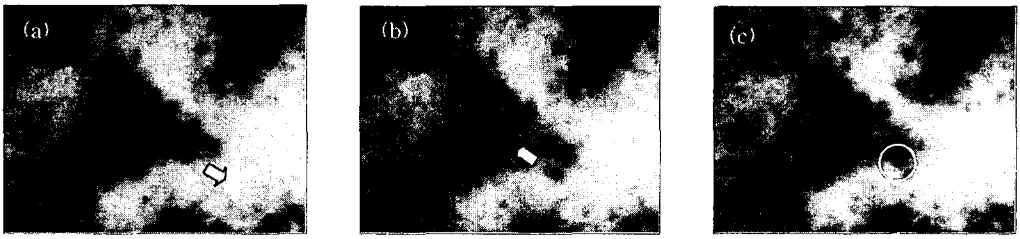

Fig. 2. Back-and-forth motion of a small defect cluster. Arrows indicate the direction.