

비정질 Fe₈₇Zr₇B₆ 합금의 중성자 조사량에 따른 자기적 특성변화

김경섭* · 김효철 · 유성초

충북대학교 자연과학대학 물리학과

(2005년 1월 27일 받음, 2005년 2월 4일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 비정질 시료 Fe₈₇Zr₇B₆에 중성자를 조사시킨 후 자기화의 온도의존성, X-ray 회절과 복소 투자율을 측정하여 중성자 조사 전, 후의 자기적 특성 변화를 보았으며, 다양한 중성자 조사량에 따른 복소 투자율과 자기이력곡선을 측정하여 중성자 조사량에 따른 자구벽 운동과 자기화 회전을 보았다. 실험결과 중성자 조사에 의한 자구벽 운동은 감소하였으며, 자기화 회전은 증가 한 것을 볼 수 있었다. 또한, 자기이완 주파수는 자구벽 운동의 경우 증가하였으며, 자기화 회전에 의한 이완 주파수는 감소하였다. 자기이력곡선의 결과 중성자 조사 후 포화 자기화 값이 감소하는 것을 볼 수 있었는데 이러한 실험 결과로부터 중성자 조사 후 생긴 결함에 의해 자구벽 운동은 억제되었으며, 자기화 회전부분은 증가 한 것을 알 수 있었다.

주제어 : 중성자 조사, 자구벽 운동, 자기화 회전, 자기 이완

I. 서 론

중성자 조사(neutron irradiation)에 따른 자기적 특성 변화는 이미 60년대 이전부터 연자성 물질을 주축으로 학문적인 관점에서 많이 진행되어졌다[1-3]. 그리고 80년대 이후로는 비정질(amorphous) 및 초미세 결정(nanostructure) 합금에 대한 중성자 조사 후 자기적 특성 변화에 관한 연구가 계속 진행되어 지고 있으며[4-13], 또한 실용적인 측면에서 가동중인 원자로를 구성하는 압력용기(reactor pressure vessel steel)에 대한 고속 중성자(fast neutron)의 지속적인 노출에 의해 발생하는 중성자 조사취화(neutron irradiation embrittlement)에 관련된 부분에서 원자로 압력용기의 건전성 평가를 위한 하나의 방법으로 연구되고 있다[14-18].

중성자 조사 후 자기적 특성 변화는 Curie 온도[5-7], 투자율[8-9], 자기이력곡선[10-12], 뫼스바우어(Mossbauer)[13-14], Barkhausen noise[16-18]등 다양하게 나타나며, 물질의 특성과 중성자 조사량에 따라 중성자 조사 효과가 조금씩 다르게 나타나게 된다. 이러한 자기적 특성의 변화는 중성자 조사에 의한 구조적인 변화(structure modification) 및 결함(vacancy, interstitial atom)으로 인한 내부 응력(internal stress)의 증가에 따른 자구운동 변화에 의해서 일어난다. 비정질 시료에서의 복소 투자율 스펙트럼으로부터 자구벽 운동(domain wall motion)과 자기화 회전(rotational magnetization)에 의한 자기이완(magnetic relaxation)으로 분리할 수 있으며[15-18], 이들 이완 특성은 내부 응력 및 외부응력 (external stress)에 의한 국소 이방성(local anisotropy) 및 pinning 특성을 반영하는

것으로 알려져 있다.

본 연구에서는 비정질 시료 Fe₈₇Zr₇B₆에 중성자를 조사시킨 후 자기화의 온도의존성, X-ray 회절과 복소 투자율을 측정하여 중성자 조사 전, 후의 자기적 특성 변화를 보았으며, 다양한 중성자 조사량에 따른 복소 투자율과 자기이력곡선을 측정하여 중성자 조사량에 따른 자구벽 운동과 자기화 회전을 알아보았다.

II. 실험방법

중성자 조사(neutron irradiation)는 한국원자력 연구소(Korea Atomic Energy Research Institute)의 하나로(HANARO : High-flux Advance Neutron Application Reactor)에서 수행하였으며, 조사 전 시료를 Flux monitoring 시료와 함께 알루미늄 foil로 시료를 포장해서 내부용기에 넣고 밀봉하였다. 내부용기는 중성자 조사시 온도가 올라가는 것을 방지하기 위하여 12개의 구멍을 낸 외부 용기에 넣어서 조사공에서 조사하였다. Flux monitoring 시료는 Fe wire와 Cd-tubing을 사용하였으며, HPGe 방사능 계측기(EG & G ORTEC, GEM-25185)를 이용하여 중성자 flux를 식 1을 이용하여 계산하였다.

$$\Phi = \frac{A}{N\sigma[1 - \exp(-\lambda t_i)]\exp(-\lambda T_c)} \quad (1)$$

A : 방사능 (dps), λ : 붕괴정수 (ln2/t_{1/2}), N : 표적 원자수, σ : 방사화 단면적, t_i : 조사시간, T_c : 냉각시간

계산으로 나온 열중성자(thermal neutron, n_{th}: E < 0.1 eV) flux 와 속중성자 (fast neutron, n_f: E > 1.0 MeV) flux에 총

*Tel: (043)261-3327, E-mail: kkim@chungbuk.ac.kr

조사시간을 곱하면 fluence를 구할 수 있다. 복소 투자율 측정은 시료를 솔레노이드(solenoid) 안에 넣은 뒤 임피던스 분석기 (Impedance Analyzer)를 사용하여 측정하였으며, 측정하는 동안 솔레노이드에 일정한 전류가 흐르도록 하였다. 실험은 전류 주파수를 5 Hz~13 MHz 까지 변화를 주며 측정하였다.

복소 투자율 계산은 솔레노이드(solenoid)에 생성되는 교류 자기장에 의해서 변하는 인덕턴스 $L(\omega)$ 과 직류저항 $R(\omega)$ 를 주파수에 따라 측정하여 식 2에 의해 복소 투자율의 실수부분, μ' 과 허수부분, μ'' 을 얻어냈다. 여기서 $L_0(\omega)$ 와 $R_0(\omega)$ 는 시료를 넣지 않았을 때의 측정값이다.

$$\begin{cases} \mu'(\omega) = \frac{L(\omega)}{L_0(\omega)} \\ \mu''(\omega) = \frac{\{R(\omega) - R_0(\omega)\}}{2\pi f L_0(\omega)} \end{cases} \quad (2)$$

자기이력곡선은 시료 진동형 자력계 (Vibrating Sample Magnetometer : VSM)를 이용하여 측정하였다.

III. 실험결과

중성자 조사에 따른 구조적인 특성변화를 보기 위한 X선 회절 실험결과는 비정질 시료의 경우 전형적인 비정질 상을 의미하는 halo패턴이 나타났으며, 조사 후의 시료에서도 역시

조사 전의 상태와의 차이를 볼 수 없었다. 따라서 중성자 조사($4.56 \times 10^{16} n_f/cm^2$)에 의한 구조 변화는 X선 회절상에서 관찰할 수 없었다. Fig. 1과 Fig. 2는 시료에 중성자를 조사시킨 후에 측정된 복소 투자율 실수 부분과 허수 부분의 스펙트럼이다. 조사효과 (irradiation effects) 또는 조사손상 (irradiation damage)이란, 높은 에너지를 갖고 있는 입자를 물질에 조사시켰을 경우 입사 입자와 물질 내 원자와의 상호 작용에 의해 일어나는 물질의 성질 변화를 말한다. 만일 입사된 입자의 에너지가 높아서 물질내의 원자에게 전달되는 에너지가 충분히 크다면 본래의 자기 위치에 튕겨 나온 원자는 입사된 입자와 같은 기능을 할 수 있게 되므로 다른 원자와 계속적으로 충돌(knock-on atom)하여 많은 수의 원자들이 본래의 자기에 위치에서 벗어나게 된다. 이러한 방사선에 의한 원자의 재배열의 성격은 방사선의 종류에 따라 달라진다. 예를 들어 중성입자인 중성자는 높은 에너지에 의해 큰 투과력을 가지고 있다. 이것이 물질에 입사되면 중성자는 고체의 원자와 충돌하기까지 상당히 긴 거리를 움직일 수 있다. 따라서 중성자 충돌은 조사된 시편에 다소 광범위하게 분포한 점 결함(point defects)을 생성하게 된다. 중성자 조사에 의한 이러한 점 결함은 격자원자가 자기위치에서 튕겨져 나가 격자 위치가 빈, 공공(vacancy)과, 튕겨 나간 원자가 다른 원자사이의 빈 공간에 침입하여 들어간, 원자간 원자 (interstitial atom)등으로 구별 할 수 있다. 중성자 조사에 의한 역학적 변화는 자성체 물질일 경우 자기적 성질에도 영향을 준다. 탈

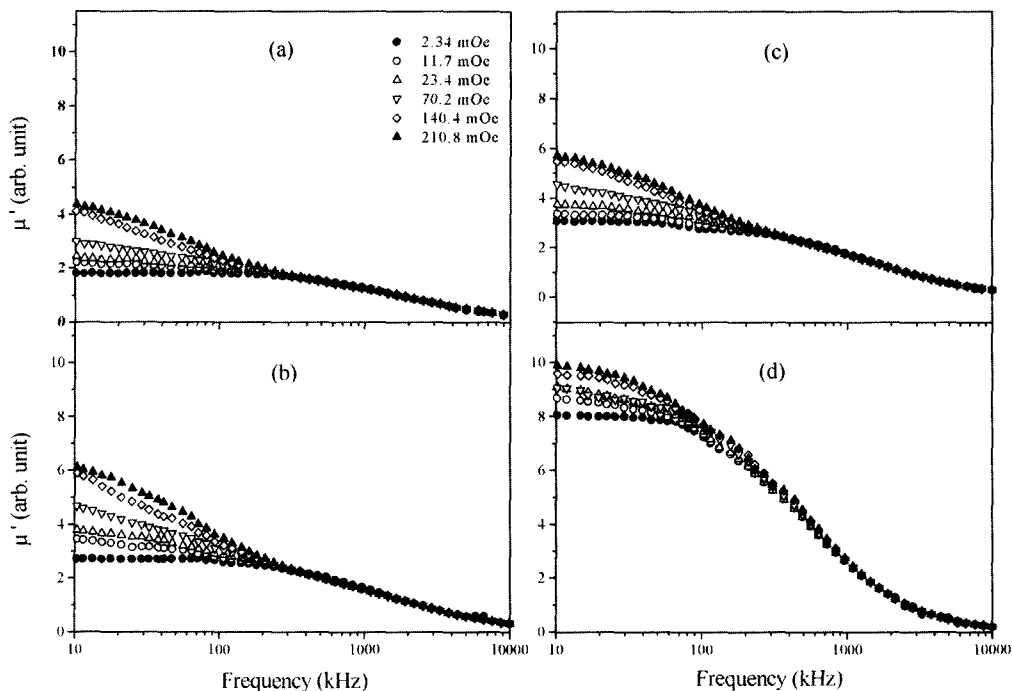


Fig. 1. The real parts of the neutron irradiated samples with various fluence (a) as-quenched (b) 1.92×10^{14} , (c) 2.63×10^{15} and (d) $4.85 \times 10^{16} n_f/cm^2$.

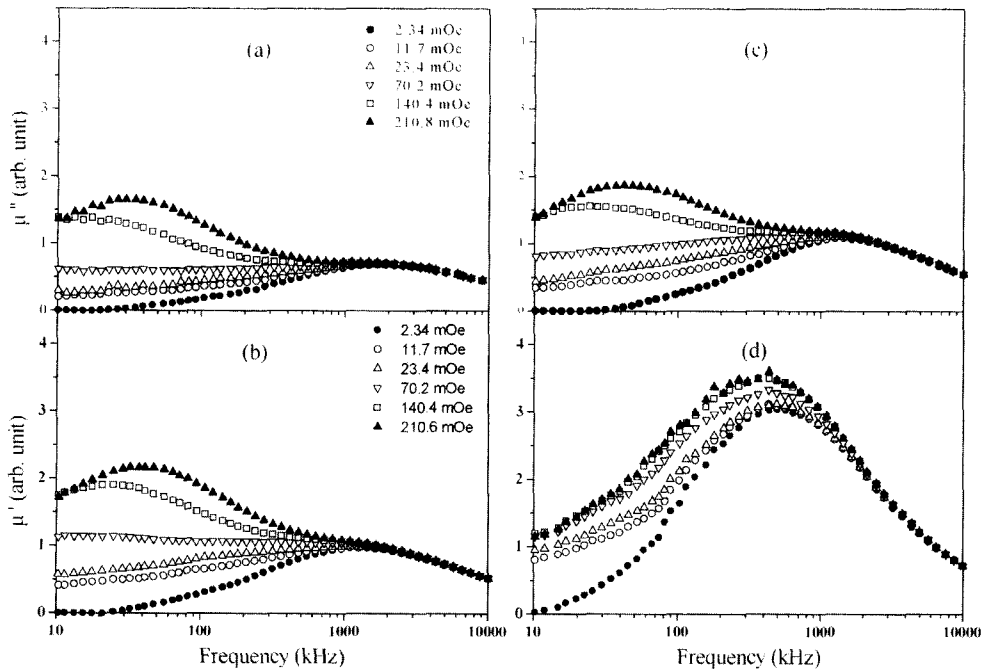


Fig. 2. The imaginary parts of the neutron irradiated samples with various fluence (a) as-quenched (b) 1.92×10^{14} , (c) 2.63×10^{15} and (d) $4.85 \times 10^{16} n/cm^2$.

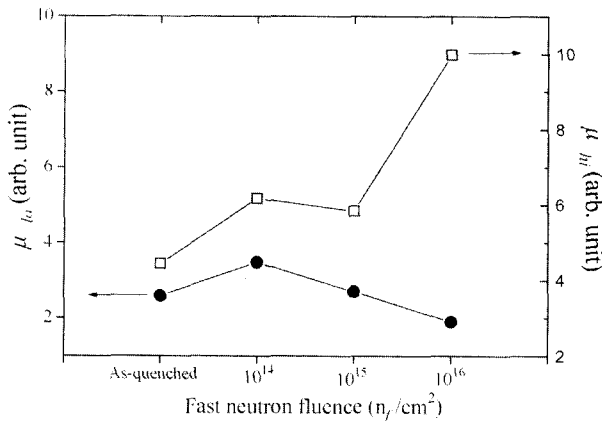


Fig. 3. Permeability from the domain wall motion (●) and the rotational magnetization (□).

자기화(demagnetization)된 상태의 자성체 물질에 중성자를 조사시켰을 경우 각각의 자구들은 서로의 방향차이가 바뀌어 지게되며, 또한 자구벽(domain wall)들은 점결합 및 점결합과의 상호작용에 의한 내부 응력(internal stress)의 변화로 외부 자기장을 가했을 경우 자구벽 운동은 감소하게 된다. Fig. 1과 2에서 보면 외부 교류 자기장을 5 mOe 이상 증가 시켰을 경우 상대적으로 낮은 주파수 영역에서의 복소 투자율의 실수 (μ') 부분과 허수 (μ'') 부분이 증가되는 것을 볼 수 있다. 이로부터 교류 자기장이 증가하면서 낮은 주파수 영역에서 또 다른 자기이완이 생긴다는 것으로 볼 수 있으며, 결과적으로 복소 투자율 $\mu^*(f)$ 은 두 개의 자기이완이 겹쳐진 것임을 알 수 있다. 일반적으로 자구벽이 자기화 회전에 비하여 낮은 영

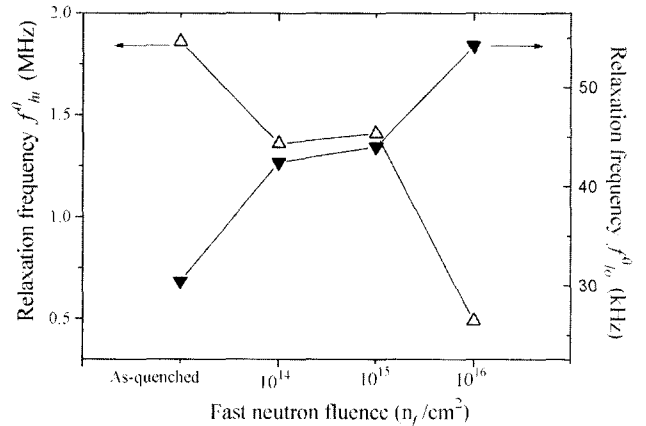


Fig. 4. Relaxation frequency of permeability spectra in the low (▼) and high (△) frequency regions.

역에서 자기이완이 일어난다. 따라서 두 개의 자기이완에서의 낮은 주파수 영역은 자구벽 운동에 의한 것이고, 높은 주파수 영역에서의 자기이완은 자기화 회전에 의한 것이다. Fig. 3과 Fig. 4는 복소 투자율 스펙트럼을 두 개의 자기이완으로 분리하여 각각의 자기이완 주파수와 투자율을 나타낸 것이다. Fig. 3에서 보면 중성자 조사량이 $\sim 10^{14}$ 일 때는 자구벽 운동에 의한 투자율이 조금 증가하였으나 조사량이 $\sim 10^{15}$ 이후 감소하는 것을 볼 수 있다. 이러한 자구벽 이동에 의한 투자율과 이완주파수가 $\sim 10^{14}$ 까지 증가하는 이유는 중성자 조사 시 조사공의 온도($\sim 150^\circ C$)에 의하여 내부 응력의 완화로 여겨지며, 중성자 조사량이 상대적으로 적어 결함에 의한 영향이 적기 때문이라고 생각된다. 그리고 중성자 조사량이 $\sim 10^{15}$

이상일 때는 결합의 정도가 커짐에 따라 내부 응력에 의한 pinning 힘이 커져 투자율이 감소한 것이라고 여겨진다. 또한 높은 주파수 영역의 자기이완의 중성자 조사량에 따른 증가는 중성자 조사에 따른 자기화 회전의 부분이 증가했기 때문이라고 여겨진다. 일반적으로 자성체 물질에 외부자기장 (external field)을 증가 시켰을 경우 물질의 자기화값은 증가하다가 나중에 포화상태(saturation)에 이르게 되며, 이때를 위한 자기화값(saturation magnetization), M_s 라고 부른다. 이를 자기화과정(magnetization process)이라고 하며, 이것은 자구벽 이동(domain wall displacement)과 자기회전(rotation of the domain magnetization)에 의해서 일어난다. 자구벽의 크기는 스핀들 사이의 교환에너지와(exchange energy)와 이방성 에너지(anisotropy energy)에 의해서 결정되어 진다. 교환에너지는 이웃한 스핀들과 평행했을 때 가장 안정하여 자구벽의 크기가 커질수록 이들은 좀더 낮은 에너지 상태에 있게 된다. 반면에 이방성에너지는 자구벽의 크기가 커지면 에너지는 높아지게 되므로 자구벽의 크기가 적을수록 에너지는 낮은 상태가 된다. 따라서 자구벽의 크기는 교환에너지와 이방성에너지의 합의 최소가 되는 지점에서 자구벽의 크기가 결정되게 된다. Fig. 4 에서 보던 자기화 회전에 의한 자기이완 주파수는 중성자 조사전의 시료에 비하여 이완주파수가 $\sim 10^{14}$ 에서는 조금 증가하였으나 $\sim 10^{16}$ 일 때는 급격히 감소하는 것을 볼 수 있었으며, 자구벽 운동에 의한 자기이완 주파수는 $\sim 10^{14}$ 에서는 조금 감소하였으나 $\sim 10^{16}$ 일 때는 급격히 증가하는 것을 볼 수 있다. 자구벽 운동에 의한 자기이완주파수의 증가는 중성자 조사에 의한 결합이 증가하기 때문이라고 여겨진다. Fig. 5는 중성자 조사전과 후($4.85 \times 10^{16} n/cm^2$)의 자기이력곡선을 변화 보여준 것이다. 비정질 시료의 자기이력곡선과 비교하여 볼 때 중성자 조사량이 $\sim 10^{14}$, $\sim 10^{15}$ 일 때는 변화를 볼 수 없었으나, 조사량이 $\sim 10^{16} n/cm^2$ 일 때는 확실히 자기화 값이 감소하는 것을 볼 수 있었다. 그러나 보자력(H_c)

과 잔류 자화(M_r)의 변화는 볼 수 없었다.

IV. 실험결론

실험결과 복소 투자율에 의한 스펙트럼은 전형적인 Debye 형태의 자기이완은 보이고 있으며, 두 가지의 자기이완을 볼 수 있었다. 상대적으로 낮은 주파수 영역의 자기이완은 자구벽 운동에 의한 것이며, 높은 주파수 영역의 자기이완은 자기화 회전에 의한 것이다. 중성자 조사에 의한 자구벽 운동은 감소하였으며, 자기화 회전은 증가 한 것을 볼 수 있었다. 또한, 자기이완 주파수는 자구벽 운동의 경우 증가하였으며, 자기화 회전에 의한 이완 주파수는 감소하였다. 자기이력곡선의 결과 중성자 조사 후 확실히 자기화 값이 감소하는 것을 볼 수 있었다. 이러한 실험 결과로부터 중성자 조사 후 생긴 결합에 의해 자구벽 운동은 억제되었으며, 자기화 회전부분은 증가 한 것을 볼 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 학술진흥재단 (KRF-2003-005-C00018) 의 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] Lewis R. Aronin, J. Appl. Phys., **25**(3), 344 (1954).
- [2] R. E. Alley, Jr., J. Appl. Phys. **30**(4), 284S (1959).
- [3] A. J. Schindler, E. J. Salkovitz and G. S. Ansell, J. Appl. Phys., **30**(4), 282S (1959).
- [4] R. Gerling and R. Wagner, J. Nuclear Mater., **107**, 311 (1982).
- [5] P. J. Grundy, G. A. Jones and S. F. H. Parker, IEEE Trans. Magn., **Mag-19**(5), 1913 (1983)
- [6] Ivan Škorvánek, B. Idzikowski, A. Zentko and E. Mosinewicz-Szablewska, phys. stat. sol. (a)**108**, 747 (1988).
- [7] A. Zentko, I. Škorvánek, V. V. Epmenko and V. D. Checherskii, phys. stat. sol. (a)**93**, K161 (1986).
- [8] R. D. Brown., J. R. Cost and J. T. Stanley, J. Appl. Phys., **55**(6), 1754 (1984).
- [9] Marcel Miglierini and Ivan Škorvánek, Mater. Sci. & Eng., **A147**, 101 (1991).
- [10] V. Hajko, A. Zentko, M. Timko and V. Hajko, Jr., phys. stat. sol. (a)**82**, K159 (1984).
- [11] F. P. Schimansky, R. Gerling and R. Wagner, Mater. Sci. & Eng. **97**, 173 (1988).
- [12] I. Škorvánek, and A. Zentko, phys. stat. sol. (a)**99**, 275 (1987).
- [13] Jozef Sitek, Ignác Tóth, Jarmilá Defmová and Peter Uváčik, Czechoslovak Journal of Physics, **47**(5), 523 (1996).
- [14] I. Škorvánek, R. Gerling, T. Graf, M. Fricke and J. Hesse, IEEE Trans. Magn. **30**(2), 548 (1993).

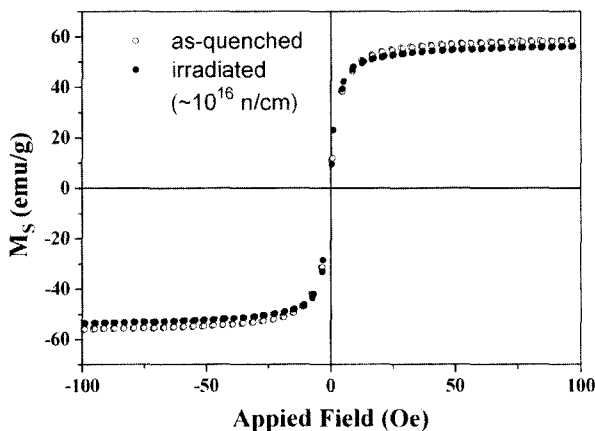


Fig. 5. Hysteresis loops at room temperature for as-quenched and post irradiated sample.

- [15] C. G. Kim, H. C. Kim, S. S. Yoon, D. G. Park and J. H. Hong, *J. Magn. Mag. Mater.*, **203**, 217 (1996)
- [16] Duck-Gun Park, Jun-Hwa Hong, Chi-Il Ok, Jang-Whan Kim and H. C. Kim, *IEEE Trans. Magn.*, **34**(4), 2036 (1998).
- [17] 이용곤, 김형상, 홍치유, 장기상, 유연봉, 한국자기학회지, **38**(5), 379(1998).
- [18] D. G. Park, C. G. Kim, J. H. Hong and I. S. Kim., *J. Appl. Phys.* **81**(8), 4125 (1997).
- [19] S. S. Yoon, C. G. Kim and H. C. Kim, *J. Magn. Magn. Mater.*, **203**, 235 (1999).

Neutron Irradiation Effects on the Magnetic Properties in Fe₈₇Zr₇B₆ Amorphous Alloy

Kyeong Sup Kim*, Hyo-Chol Kim, and Seong-Cho Yu
Chungbuk National University, Cheongju 361-763, Korea

(Received January 27 2005, in final form February 4 2005)

The Fe₈₇Zr₇B₆ amorphous alloy after neutron irradiation are studied hysteresis loop and complex permeability measurements. The total integration fluence of fast neutrons is varied from 1.92×10^{14} to $4.85 \times 10^{16} n_T \text{cm}^{-2}$. After neutron irradiation, the imaginary part of complex permeability in low frequency region decreased due to the decrease of wall motion, but the permeability in high frequency region increased due to the enhancement of rotational magnetization. The measurement of hysteresis loop showed the increase of magnetic softness, related to rotational magnetization, but saturation magnetization was decreased in neutron irradiation sample.

Key words : neutron irradiation, domain wall motion, rotational magnetization, magnetic relaxation