

비정질에서 양성자 조사에 따른 초기 감수율 이완 특성

¹김철기 · ¹김호철 · ²윤석수 · ³박덕근 · ³홍준화 · ³지세환

¹선문대학교 물리학과, 충남 336-840

²안동대학교 물리학과, 경북 760-749

³한국원자력 연구소, 대전 305-353

(1998년 3월 4일 받음, 1998년 4월 10일 최종수정본 받음)

비정질 $Fe_{81}B_{13.5}Si_{3.5}C_2$ 에서 싸이클로트론을 이용하여 양성자를 조사시키고, 자기 감수율의 주파수 특성을 측정하였다. 초기 감수율 스펙트럼은 전형적인 Debye 형이며, 이완 주파수는 3 MHz 정도로 측정되었다. 자구회전에 의한 저주파 감수율은 양성자 조사에 따라 감소하였으나 고주파 감수율은 증가하였다. 조사량에 따른 감수율 이완 주파수 증가는 조사에 의해 국소결함에서 자구회전에 대한 pinning 력 증가에 의한 것으로 설명되었다.

I. 서 론

중성자, 양성자 조사 및 이온 주입에 의한 전·자기 및 역학 특성 측정 연구는 70년대에는 학문적인 관점에서 수행되었고[1], 90년대에 들어서 원자로 관련부품의 중성자 조사 손상 평가를 위한 실용적인 중요성에 의해 그 연구가 수행되고 있다[2, 3]. 가동중에 원자로는 항상 고속중성자에 노출되어 이로 인한 조사취화(embrittlement)는 천이온도의 상승 및 파괴저항성의 감소 등의 역학 특성 뿐만 아니라 전기저항, 포화자화, 메스바우 스펙트럼, 격자결함 특성을 반영하는 바크하우젠 신호, 항자력 등의 전·자기특성이 민감하게 변하는 것으로 측정되었다[2, 3].

중성자 조사는 재료의 격자원자를 천이시켜 interstitial 과 vacancy에 의한 격자 결함을 유발시킬뿐만 아니라 전자 상태도 변화시킨다. Bulk 재료의 경우 조사 손상 평가의 중요성에 의해 각국 원자력 관련 연구소를 중심으로 자기특성 측정연구가 체계적으로 추진되고 있다. 이에 비해 비정질에서 조사효과에 관한 연구는 미미하지만 자기 이력특성, 메스바우 스펙트럼 등의 자기특성과 역학특성을 중심으로 일부 수행되었다. 비정질에서 열처리후 역학 특성 변화가 중성자 조사에 의해 추가적인 구조결함에 의해 다시 회복되는 것으로 측정되었다[4]. 이와 유사하게 나노 결정에서 중성자 조사가 국소적으로 비정질화를 유발시켜 역학적인 ductility를 회복시키는 것으로 알려져 있다[5]. 그러나 비정질과 나노 결정에서 추가적인 구조결함이 자벽운동에 대한 pinning 역할을 하기 때문에 조사량에 따라 포화자화 및 항자력이 변하는 것으로 알려져

있으나[6] 이들에 대한 정량적인 이론은 정립되지 않은 실정이다.

자성체의 비선형 특성에 의해 자기 감수율이 물질 특성과 외부 조건에 따라 달라지지만, 외부자기장이 0인 초기 상태의 자기 감수율은 재료의 특성을 반영하는 변수가 된다. 본 연구에서는 비정질 $Fe_{81}B_{13.5}Si_{3.5}C_2$ 에서 싸이클로트론을 이용하여 양성자를 조사시키고, 초기 자기 감수율의 주파수 특성을 측정하여 자구 동역학과 관련하여 분석하였다.

II. 이론적 배경

외부 자기장하에서의 자화는 물질 특성뿐만 아니라 자기장 세기 및 주파수 등의 변수에 의존한다. 교류자기장 $H(t) = H_0 e^{j\omega t}$ 에 의한 자화는 자기손실에 의해 위상각 δ 가 생기며, 자기 투자율 및 감수율은 아래식으로 주어진다[7].

$$\mu = \frac{B_0 e^{j(\omega t - \delta)}}{H_0 e^{j\omega t}} = \mu_0 [1 + \chi(\omega)]$$

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) - j\chi''(\omega) \quad (1)$$

여기서 실수부분 χ' 을 교류 감수율, 허수부분 χ'' 을 자기 손실이라 한다.

자화는 미시적으로 자벽운동과 자화회전의 두 기구(mechanism)에 의해서 이루어지며, 이러한 자화는 구조 결함과 상호작용에 의해 결정된다. 자벽운동의 경우

결함에서 pinning에 의해 가역적인 자벽 힘 (bowing) 또는 비가역적인 자벽운동이 일어난다. 국소적인 자구 또는 90° 자구는 외부 자기장에 의해 회전이 일어나는데, 이러한 자화 기구의 주파수 특성은 자기 이완시간에 의해 결정된다. 자기 이완 특성을 나타내는 복소 자기 감수율은 자성체내에서의 막스웰 방정식의 해로부터 다음과 같이 Debye 완화모델로 나타낼 수 있다[8].

$$\chi(\omega) = \chi_x + \frac{(\chi_o - \chi_x)}{1 - j\omega/\omega_o} = \chi_x + \frac{(\chi_o - \chi_x)}{1 + (\omega/\omega_o)^2} - j \frac{(\chi_o - \chi_x) \omega/\omega_o}{1 + (\omega/\omega_o)^2} \quad (2)$$

여기서 ω_o 는 자화의 이완 주파수로 이완시간 τ_o 의 역수이다. 그리고 χ_o 는 χ' 의 저주파수 극한값으로 dc 감수율이며, χ_x 는 고주파수 극한에서의 χ' 의 극한값에 해당한다.

Fig. 1은 식 (2)에서 $\chi_o = 4\chi_x$ 인 경우의 주파수 스펙트럼을 보여준다. 자화가 위상차없이 자기장의 변화를 충분히 따라오는 주파수 범위에서, 즉 $\omega \ll \omega_o$ 인 경우, 교류 감수율은 주파수에 독립인 χ_o 값을 보이게 되며 손실은 거의 생기지 않게 된다. 주파수가 증가하여 ω_o 에 접근하면 자화가 변하는 자기장에 뒤처지게 되며 이때 교류 감수율은 감소하고 국소적으로 발생하는 미소 와전류에 의해 손실값은 증가하게 되며 $\omega = \omega_o$ 에서 최대가 되게 된다. 주파수가 매우 커져서 $\omega \gg \omega_o$ 를 만족하는 범위에서 손실은 다시 감소하며 $\chi'(\omega) = \chi_x$ 로 된다.

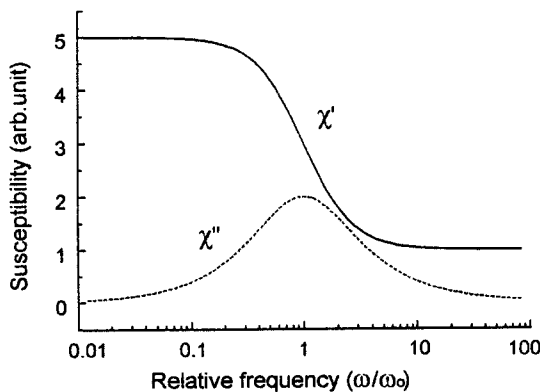


Fig. 1. Spectrum of Debye type magnetic relaxation.

자기장 주파수가 낮은 경우 자화는 자벽운동에 의해 이루어지고, 주파수가 증가함에 따라 자벽운동은 감쇠되고 자화회전에 의해서 이루어진다. 따라서 자벽과 자화회전의 자화기구에 따라 두 개의 이완 주파수가

있다는 것을 알수 있는데, 어느 경우든지 자구운동을 역학적인 감쇠 조화 진동계로 유추할 때 이완 주파수는 복원력에 해당하는 pinning력, $F_{pinning}$ 에 비례하는 것으로 알려져 있다[11].

$$F_{pinning} \propto k_p x \quad (3)$$

$$\omega_o \propto k_p$$

여기서 k_p, x 는 각각 진동계에서의 탄성상수 및 변위에 해당하는 변수를 나타내고, ω_o 는 자화의 이완 주파수를 나타낸다. 조사손상은 원자이동 및 핵종 변화외에 원자이동에 의한 결함밀도 증가 및 pinning력을 증가시키기 때문에 자화의 이완 주파수 ω_o 가 증가될 것임을 추정할 수 있다.

III. 실험

본 실험에 사용된 시료는 일본 금속 비정질사의 Fe₈₁B_{13.5}Si_{3.5}C₂ 로써 두께 25 μm, 그 크기는 18 mm × 23 mm 이었다. 시료는 전류밀도 10 μA/cm² 에서 16 MeV의 양성자 빔 사이클로트론으로 2~240 분간 조사시켰다. 빔에너지는 융합시 14 MeV 중성자 조사효과와 동등한 수준으로 선정하였으며, 최대 조사량은 0.36 × 10⁻² dpa (displacement per atom)이었다.

복소 자기 감수율 스펙트럼은 hp4192A 임피던스 분석장치를 이용하여 1 kHz~10 MHz의 주파수 범위에서 측정되었다. 시편을 둘러싼 사각 솔레노이드 코일은 등가적으로 직렬 연결된 R-L 회로로 간주되며 임피던스 분석장치는 주어진 주파수 f 에서 등가 R 과 L 값을 측정한다. 이때 시편의 감수율은 아래의 관계를 이용하여 얻었다.

$$\chi'(f) = [L(f) - L_o(f)] / L_o(f) \quad (4)$$

$$\chi''(f) = [L(f) - R_o(f)] / L_o(f)$$

여기서 $L_o(f)$ 와 $R_o(f)$ 는 시편이 없는 솔레노이드의 등가 R 과 L 값이다.

IV. 실험결과 및 분석

1. X-선 회절 측정

조사에 따른 구조 특성변화를 위해 측정된 X-선 회절 결과가 Fig. 2에 나타나 있다. 비조사 및 0.36 × 10⁻²

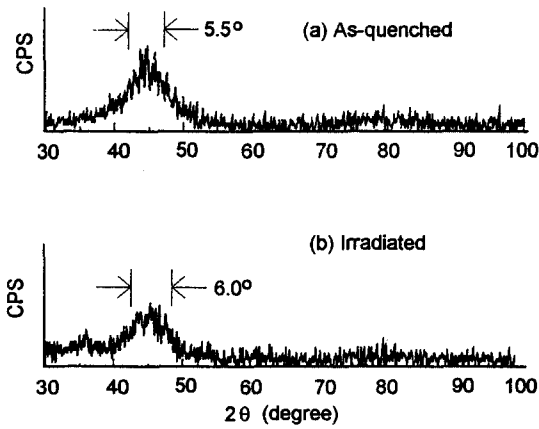


Fig. 2. X-ray diffraction for (a) as-quenched and (b) 0.36×10^{-2} dpa proton irradiated sample.

dpa 조사 시료에서 X-선 회절 peak의 전치폭(FWHM)이 5.5° 에서 6.0° 정도로 커졌다. 이는 양성자 조사에 의해 국소적인 구조결합이 증가된 것을 반영한다.

2. 자구변화에 따른 자화율 스펙트럼

초기 자화율에 관여하는 자구동역학은 자구형태로부터 유추할 수 있다. 비정질에서 외부응력에 따른 자구형태는 자왜상수 λ_s 의 부호 및 크기에 의존한다[9]. 실험에 사용된 $Fe_{81}B_{13.5}Si_{3.5}C_2$ 의 자왜상수 $\lambda_s = 30 \times 10^{-6}$ 으로 수 MPa의 인장응력에서 리본 축과 각도를 이루고 있는 자구 부피가 현저히 줄어들고 180° 자구가 증가하는 것으로 알려져 있다[10]. Fig. 3(a) (b)는 인장응력 0, 4.7, 7.0, 11.7 MPa에서 자화율 $\chi'(f)$ 와 $\chi''(f)$ 스펙트럼을 그린 것인데, 이들은 Fig. 1의 전형적인 Debye 형인 것을 알 수 있다. Debye 형 주파수 특성에서 $\chi'(f)$ 의 감소 또는 $\chi''(f)$ 의 peak를 주는 이완 주파수가 3 MHz 정도로 측정되었다.

Fig. 3(a)에서 저주파에서의 χ' 는 식 (2)의 χ_0 값으로 추산할 수 있는데, 응력이 증가함에 따라 그 값이 감소하는 것을 볼 수 있다. 이는 응력에 의해 리본 축 방향으로의 180° 자구 부피가 증가한다는 사실로부터 180° 자벽운동은 pinning 또는 감쇠에 의해 그 영향이 미미한 것으로 추정된다. 따라서 리본 축과 각도를 이루고 있는 자구의 회전이 자화율의 주 기구(mechanism)가 되며, 응력에 의한 리본 축과 각도를 이루고 있는 자구의 부피 감소에 의해 χ_0 및 χ_∞ 가 감소하는 것으로 판단된다.

Fig. 3(b)에서 응력에 따라 $\chi''(f)$ 의 peak가 고주파

수쪽으로 이동하는 것을 알 수 있다. 자기이완 peak 주파수는 기여하는 자구종류, 측정 자기장 크기, 이방성 및 자구 운동에 대한 감쇠 등의 복합적인 함수로 주어지지만, 국소적으로 인가응력보다 강하게 pinning된 자구가 자화 회전에 기여할 수 있다. 따라서 응력에 따른 peak 주파수 이동은 식 (3)에 나타낸 것처럼 응력에 따라 pinning력이 강한 자구들의 운동에 의한 것으로 설명될 수 있다.

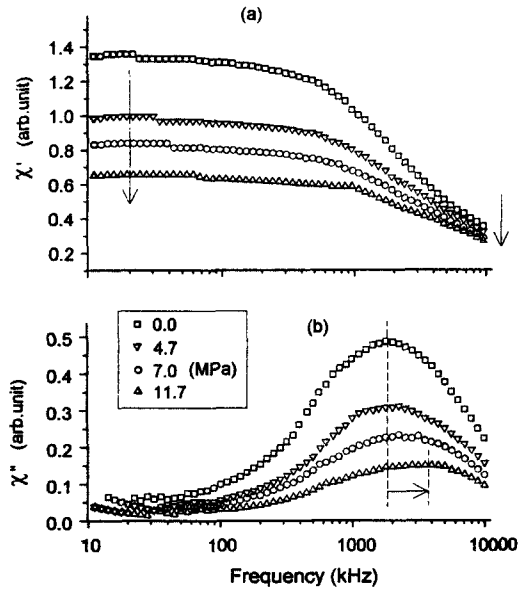


Fig. 3. Spectrum of initial susceptibility of (a) real χ' , and (b) imaginary χ'' parts under 0, 4.7, 7.0, 11.7 MPa applied tensile stress.

3. 조사에 의한 자화율 스펙트럼

Fig. 4(a)와 (b)는 각각 양성자 조사량에 따른 $\chi'(f)$ 와 $\chi''(f)$ 스펙트럼의 변화를 그린 것이다. 이들 역시 Debye 형이며, 완화 주파수가 3 MHz 정도임을 알 수 있다. Fig. 5는 Fig. 4(a)에서 저주파 및 10 MHz에서의 χ' 값, 즉, χ_0 와 χ_∞ 의 조사량 의존성을 그린 것이다. 본 실험에 사용한 솔레노이드형 코일 단면적이 시편의 단면적보다 크기 때문에 절대적인 감수율값은 아니지만, χ_0 는 조사량에 따라 감소하고 χ_∞ 은 증가하였다. 양성자 조사는 X-선 회절 측정을 통해 추정되듯이 결합 및 pinning력 증가를 야기시킨다. 따라서 양성자 조사에 따른 χ_0 의 감소는 pinning력이 큰 자구가 자화에 기여하지 못하기 때문이며, χ_∞ 의 증가는 결합에서 회전자구 부피비 증가에 의한 것으로 사료된다.

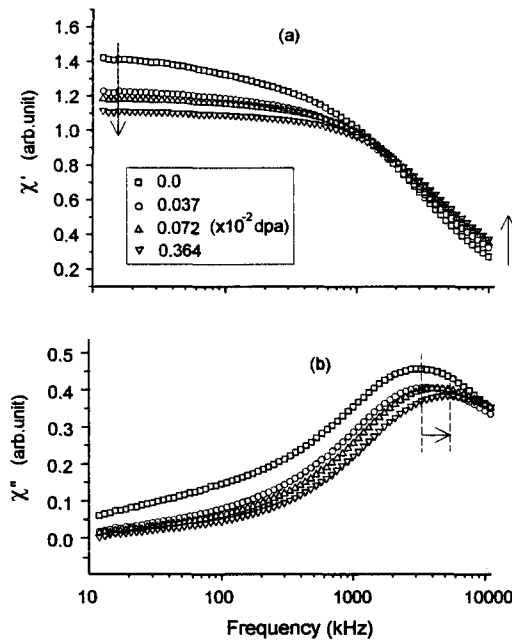


Fig. 4. Spectrum of initial susceptibility of (a) real χ' , and (b) imaginary χ'' parts for as-quenched, 0.037, 0.072, 0.36 ($\times 10^{-2}$) dpa proton dose.

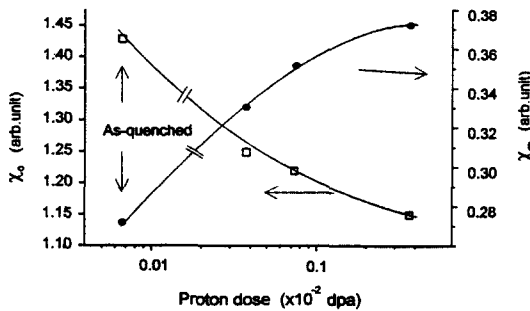


Fig. 5. Dependence of low and high frequency susceptibility (a) χ_0 , (b) χ_∞ on proton dose. (χ_∞ : measured at 10 MHz)

Fig. 4(b)에 나타낸 $\chi''(f)$ 스펙트럼을 보면 양성자 조사에 따라 peak가 높은 주파수 영역으로 이동할 뿐만 아니라 peak 값의 크기는 중성자 조사량에 따라 감소함을 알 수 있다. Fig. 6은 Fig. 4(b)에서 스펙트럼의 peak 주파수를 조사량의 함수로 나타낸 것인데, peak에 해당하는 이완 주파수가 조사량에 따라 증가하였다. 이 주파수 증가는 식 (3)에 나타난 것처럼 조사에 의해 자구 회전에 대한 pinning력 증가에 의한 것으로 사료된다.

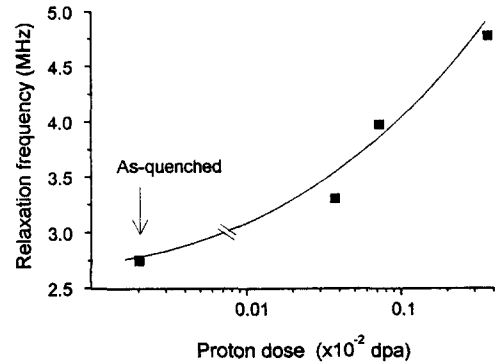


Fig. 6. Dependence of relaxation frequency f_0 on proton dose.

V. 결 론

비정질 $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ 에서 사이클로트론을 이용하여 양성자를 조사시키고, 초기 자기 감수율의 주파수 특성을 측정하였다. 양성자 조사에 따른 X-선 회절 peak의 전치폭(FWHM)의 증가는 조사에 의해 국소적인 구조 결함의 증가를 반영한다.

양성자 조사량에 따른 초기 감수율, $\chi'(f)$ 와 $\chi''(f)$ 의 스펙트럼은 전형적인 Debye 형이며, 주파수 특성에서 $\chi'(f)$ 의 감소 또는 $\chi''(f)$ 의 peak를 주는 이완 주파수가 3 MHz 정도로 측정되었다. 측정된 감수율에 대한 180° 자구의 기여는 미미하고, 리본 축과 각도를 이루고 있는 자구 회전이 주 기구(mechanism)인 것으로 추정된다. 저주파 감수율 χ_0 는 양성자 조사량에 따라 감소하였으나 고주파 감수율인 χ_∞ 는 증가하였다.

$\chi''(f)$ 스펙트럼의 peak 주파수, 즉 이완 주파수는 조사량에 따라 증가하였는데, 이는 조사에 의해 자구회전에 대한 pinning력 증가에 의한 것으로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 연구비 지원에 (과제번호 971-0210-046-2) 의한 것이며, 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

[1] G. J. Dienes, Studies in Radiation Effects in Solids, Gordon and Breach Science Publisher,

- (1969).
- [2] M. K. Devine, D. C. Jiles, P. K. Liaw, R. D. Rishel, and D. S. Drinon, *Rev. Prog. Quant. Eval.*, **12**, 1815 (1993).
- [3] D. G. Park, C. G. Kim, H. C. Kim, J. H. Hong and I. S. Kim, *J. Appl. Phys.*, **81**, 4125 (1997).
- [4] R. Gerling, F. P. Schimansky and R. Wagner, *Acta metall*, **35**, 1001 (1987).
- [5] I. Skorvanek, R. Gerling, T. Graf, M. Fricke and J. Hesse, *IEEE Trans. Mag.*, **30**, 548 (1990).
- [6] C. G. Kim, M. H. Jung, H. C. Kim, D. G. Park, and J. H. Hong, *Inter. Conf. Mag., Proceedings M2-40*, July, Australia, 1997.
- [7] C. W. Chen, *Magnetism and Metallurgy of Soft Magnetic Materials*, North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1977), Ch. 4.
- [8] R. S. Beach and A. E. Berkowitz, *J. Appl. Phys.*, **76**, 6209 (1994).
- [9] A. Siemko, H. K. Lachowicz, N. Moser, A. Forkl and H. Kronmuller, *J. M. M. M.*, **83**, 171 (1990).
- [10] D. Y. Kim, C. G. Kim, H. C. Kim and U. H. Sung, *J. Appl. Phys.*, **81**, 5811 (1997).
- [11] P. J. B. Clarricoats, *Microwave Ferrites*, Barnes & Noble, Inc., New York (1961), Ch. 4.

Effect of Proton Irradiation on the Spectrum of Initial Susceptibility in Amorphous Ribbon

¹C. G. Kim, ¹H. C. Kim, ²S. S. Yoon, ³D. G. Park, ³J. H. Hong and ³S. H. Jee

¹*Department of Physics, Sun Moon Univ., Chungnam, 336-840*

²*Department of Physics, An Dong Univ., Kyungbook, 760-749*

³*Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon, 305-353*

(Received 4 March 1998, in final form 10 April 1998)

The complex magnetic susceptibility of as-quenched and proton irradiated amorphous ribbons of $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ was measured in the frequency range 10 kHz~10 MHz. The frequency spectra of real and imaginary parts of susceptibility showed a typical Debye-type relaxation. Relatively high relaxation frequency, ~3 MHz observed in the present work suggested that domain rotation is involved in the relaxation process. The susceptibility at the low frequency decreased with the irradiation, while that at high frequency increased due to the increasing defect density. The relaxation frequency of domain rotation shifted toward higher frequency, due to the increasing pinning force against domain motion by the irradiation.