

비정질 $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ 리본의 중성자 조사에 따른 자기적 특성변화

김효철 · 홍권표

한국원자력연구소, 대전 305-353

김철기

선문대학교 물리학과, 충남 336-840

유성초

충북대학교 물리학과, 청주 361-763

(2000년 2월 14일 받음, 2000년 4월 13일 최종 수정본 받음)

비정질 $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ 리본에서 중성자 조사 후 X선 회절, 상온에서의 자기이력곡선, 자화의 온도의존성 그리고 복소 투자율 측정하고, 결함에 의한 자기 특성과 관련하여 분석하였다. 중성자 조사량은 열 중성자(n_{th})와 고속 중성자(n_f)가 각각 $6.95 \times 10^{18} n_{th} \text{ cm}^{-2}$ 과 $4.56 \times 10^{16} n_f \text{ cm}^{-2}$ 이었다. 중성자 조사된 시료의 X-선 회절상의 변화는 보이지 않았다. 중성자 조사 후, 복소 투자율의 자기이완특성에서 자벽운동에 의한 부분은 감소하였고, 자화회전에 의한 자기이완 주파수는 좀더 높은 주파수 영역으로 이동하였는데, 이는 pinning력이 증가된 것을 반영한다. 자기이력곡선에서는 중성자 조사 후의 softness는 좋아지는 한편 포화자화값은 감소되는 것을 볼 수 있었으며, Curie 온도가 감소하는 결과가 나왔다. 자기 softness 향상은 자화회전에 의한 것이라 여겨진다.

I. 서 론

중성자 조사에 따른 자기적 특성 변화는 이미 60년대 이전부터 연자성 물질을 주축으로 학문적인 관점에서 많이 진행되어졌다[1-3]. 그리고 80년대 이후로는 비정질 및 초미세결정합금에 대한 중성자 조사 후 자기적 특성변화에 관한 연구가 계속 진행되어지고 있으며[4-9], 또한 실용적인 측면에서는 가동중인 원자로를 구성하는 압력용기에 대한 고속 중성자의 지속적인 노출에 의해 발생되는 중성자 조화취화(neutron irradiation embrittlement)에 관련된 부분에서 원자로 압력용기의 전전성 평가를 위한 하나의 방법으로 연구되고 있다[10,11].

중성자 조사 후 자기적 특성 변화는 Curie 온도(T_c)[5], 투자율[6,7], 자기이력곡선[8], 베스브우어 스펙트럼[9], Barkhausen noise[10] 등에서 다양하게 나타나며, 물질의 특성에 따라 중성자 조사 효과가 조금씩 다르게 나타난다. 이러한 자기적 특성의 변화는 중성자 조사에 의한 구조적인 변화 및 결함(vacancy, interstitial)을 일으키고, 이에 따른 내부 응력의 증가에 따른 자구운동 변화에 의해 나타나게 된다.

비정질 시료에서의 초기 투자율 스펙트럼으로부터 자벽

운동과 자화회전에 의한 이완(relaxation) 특성을 분리할 수 있으며, 이들 이완 특성은 내부 응력 및 외부 응력(external stress)에 의한 국소적인 자기이방성 및 pinning 특성을 반영하는 것으로 알려지고 있다[12,13].

본 실험에서는 비정질 $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ 리본시료에 중성자를 조사시킨 후 복소 투자율을 측정하여 중성자 조사 전, 후의 자벽운동과 자화회전에 대하여 분석하고, 자기이력곡선, 자화의 온도의존성의 변화를 자구운동 변화와 관련하여 분석하였다.

II. 실험

본 실험에 사용된 시료는 $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ 이며, 두께는 25 μm 이고, 크기는 반경 3 mm의 디스크 형태와 4 mm \times 25 mm, strip 형태의 두 가지 형태로 가공하여 사용하였다.

중성자는 한국원자력연구소의 하나로에서 조사하였는데, 중성자 flux는 열 중성자(n_{th})와 고속 중성자(n_f)가 각각 $2.68 \times 10^{13} n_{th} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 과 $1.76 \times 10^{11} n_f \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 이며, 이에 대응하는 총 중성자량은 $6.95 \times 10^{18} n_{th} \text{ cm}^{-2}$ 과 $4.56 \times 10^{16} n_f \text{ cm}^{-2}$ 였다.

시료의 구조적인 변화를 보기 위하여 $CuK\alpha$ 선을 사용하여 $30^\circ\sim90^\circ$ 범위에서 X-선 회절(X-ray diffraction) 실험을 하였다. 복소 투자율, $\mu^*(f) = \mu'(f) - j\mu''(f)$ 은 임피던스분석기(HP 4192A)를 이용하여 10 kHz~10 MHz의 주파수 범위에서 측정하였다. 솔레노이드 코일을 이용하여 외부 교류자기장 $h(t) = h_0 e^{j\omega t}$ 을 주었으며, h_0 를 일정하게 유지하기 위해 솔레노이드에 흐르는 일정한 크기의 전류를 인가하였다. 생성된 교류자기장에 대해 시료에 의해서 변하는 인덕턴스 $L(\omega)$ 와 dc저항 $R(\omega)$ 을 주파수에 따라서 측정하여 식 (1)을 이용해 투자율로 환산하였다.

$$\begin{aligned}\mu''(f) &= \{L(f) - L_0(f)\} / L_0(f) \\ \mu''(f) &= \{R(f) - R_0(f)\} / L_0(f)\end{aligned}\quad (1)$$

그리고 디스크 형태로 제작한 시료를 사용하였으며, 시료의 길이 방향으로 상온에서의 자기이력곡선과 자화의 온도의존성($300\sim700$ K)은 시료진동형자력계(Vibrating Sample Magnetometer : VSM)를 이용하여 측정하였다.

III. 결과 및 고찰

3.1. X-선 회절 측정

중성자 조사에 따른 구조적인 특성변화를 보기 위한 X-선 회절 실험결과는 그림 1에 나타내었다. 그림 1(a)의 비정질 시료의 경우 전형적인 비정질 상을 의미하는 halo패턴이 나타났으며, 조사 후의 시료에서, 그림 1(b)에서 보는 바와 같이 조사 전의 상태와 변화가 없었다. 조사량, $4.56 \times 10^{16} n_p \text{ cm}^{-2}$ 의 중성자 조사에 의한 구조 변화는 X-선 회절 상에서는 볼 수 없을 정도로 미미하였다.

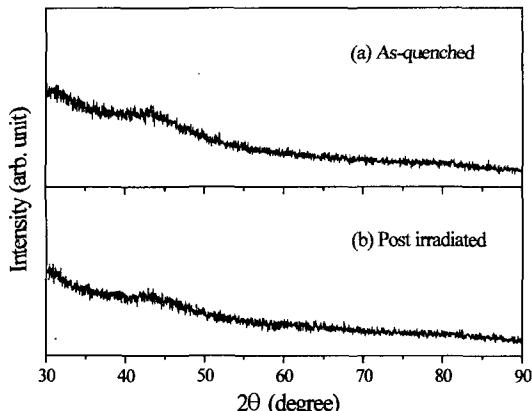


Fig. 1. X-ray diffraction in (a) as-quenched and (b) post irradiated samples.

3.2. 투자율 스펙트럼

그림 2(a)와 (b)는 비정질 시료에서 다양한 교류자장 크기, h_0 에 따른 복소 투자율 스펙트럼의 실수 (μ') 부분과 허수 (μ'') 부분을 나타낸다. 2.34 mOe 이하의 교류자기장을 가해 주었을 때의 스펙트럼은 전형적인 Debye 형태의 주파수 특성을 보이고 있다. 교류자기장을 5 mOe 이상 증가시켰을 경우 상대적으로 낮은 주파수 영역에서의 복소 투자율의 실수 (μ') 부분과 허수 (μ'') 부분이 증가되는 것을 볼 수 있다. 이로부터 외부 교류 자기장이 크기가 증가하면서 낮은 주파수 영역에서 또 다른 자기이원이 생긴다는 것으로 볼 수 있으며, 결과적으로 복소 투자율 $\mu^*(f)$ 은 두 개의 자기이원이 겹쳐진 것임을 알 수 있다.

일반적으로 자구벽이 자화회전에 비하여 낮은 영역에서 자기이원이 일어난다. 따라서 두 개의 자기이원에서의 낮은 주파수 영역은 자벽 운동에 의한 것이고, 높은 주파수 영역에서 자기이원은 자화회전에 의한 것이다[12]. 자구운동은 역학적인 감쇠조화 진동계로 유추하여 설명될 수 있으며[14], 이에 대한 자기이원은 이상적인 Debye형으로 나타난다[15]. 본 실험에서 측정된 결과는 아래와 같이 두 개의 이상적인 Debye형 자기이원의 합으로 나타낼 수 있다.

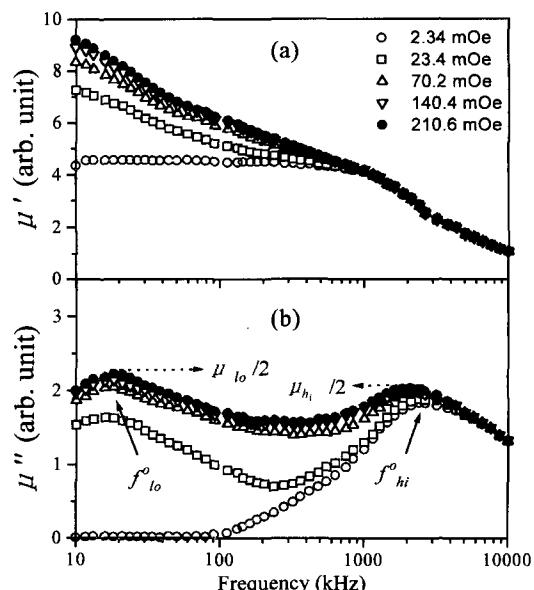


Fig. 2. Real (a) and imaginary (b) parts of complex permeability spectra at various ac field (h_0) in as-quenched sample.

$$\mu^*(f) = \mu'(f) - j\mu''(f)$$

$$= 1 + \frac{\mu_{lo}(h_0)}{1 + (f/f_{lo}^0)^2} + \frac{\mu_{hi}(h_0)}{1 + (f/f_{hi}^0)^2}$$

$$- j \left(\frac{\mu_{lo}(h_0)(f/f_{lo}^0)}{1 + (f/f_{lo}^0)^2} + \frac{\mu_{hi}(h_0)(f/f_{hi}^0)}{1 + (f/f_{hi}^0)^2} \right) \quad (2)$$

$$\mu_{lo}, \mu_{hi} \propto \frac{1}{\alpha} \quad (3)$$

$$f_{lo}^0, f_{hi}^0 \propto \alpha \quad (4)$$

여기서, α 는 원자내의 결합에 의한 응력에 기인하는 것으로, 자구운동에 대한 pinning력을 나타낸다. μ_{lo} 와 f_{lo}^0 는 낮은 주파수 영역의 투자율 크기와 이완 주파수이며, μ_{hi} 와 f_{hi}^0 는 상대적으로 높은 주파수 영역의 투자율 크기와 이완 주파수를 나타낸다. 그림 2(a) 와 (b)에서 보면 낮은 주파수 영역에서 자구운동에 의한 μ_{lo} 와 f_{lo}^0 는 교류자기장의 크기에 따라 변하였으며, 자화회전에 의한 μ_{hi} 와 f_{hi}^0 는 변하지 않는다는 것을 알 수 있다.

그림 3(a)와 (b)는 중성자 조사($4.56 \times 10^{16} n_i, \text{cm}^{-2}$) 후의 투자율 스펙트럼을 나타낸 것이다. 그림 3(a)의 비정질 시료와 중성자 조사 된 시료의 투자율 스펙트럼을 비교해 보면 중성자 조사 후 낮은 주파수 영역의 투자율(μ_{lo})이 감

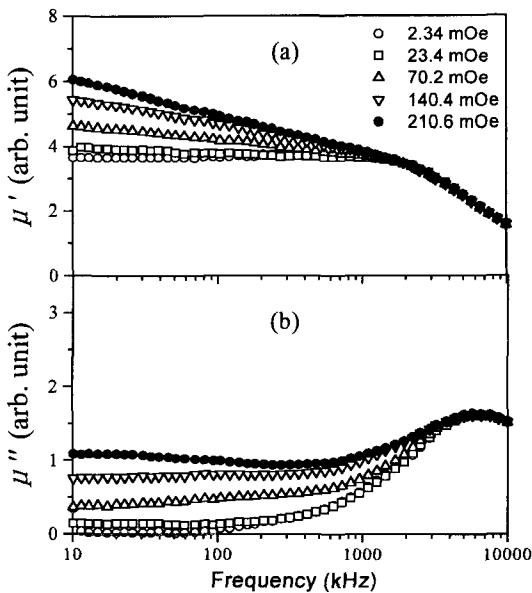


Fig. 3. Real (a) and imaginary (b) parts of complex permeability spectra at various ac field (h_0) in post irradiated sample.

소하는 것으로 나타났으며, 이는 중성자 조사 후 자구운동은 감소한다는 것을 의미한다. 중성자 조사된 시료의 높은 주파수 영역에서 나타나는 자기이완 주파수(f_{hi}^0)는 비정질 시료의 자기이완주파수(2.5 MHz) 보다 좀더 높은 주파수 영역(5 MHz)으로 이동한 것을 볼 수 있었으며, 또한 낮은 주파수 영역의 자기이완 주파수(f_{lo}^0)도 18.6 kHz에서 20.4 kHz으로 이동한 것을 볼 수 있었다.

중성자 조사 후 초기투자율이 감소된 것을 볼 수 있는데, 이것은 식 (3)에서 나타낸 것처럼 중성자 조사에 의해 생긴 결함에 의한 pinning력 증가에 의한 것으로 사료된다. 중성자 조사 후 자기이완주파수 증가 역시 식 (4)에서 나타낸 것처럼 조사에 의한 원자 이동 및 결함의 증가로 인한 pinning력의 증가로 인한 것이라 여겨진다.

3.3. 자기이력곡선 및 자화의 온도 의존성

비정질 시료와 중성자조사 된 시료의 자기이력곡선의 변화를 그림 4에 나타내었다. 중성자 조사된 시료의 자기이력곡선을 보면 조사 전의 시료보다 softness가 증가하며, 포화 자화 값은 감소하는 것을 볼 수 있었다. 그러나 보자력(H_c)과 잔류자화(M_r) 변화는 볼 수 없었다. 3.2절의 자구운동과 비교해 볼 때 자기 softness는 자벽운동보다 자구회전에 기인한 것으로 사료된다.

그림 5는 자화의 온도의존성을 보여주는데, Curie 온도는 중성자 조사 후의 시료가 중성자 조사전의 시료에 비하여 5 K 정도 내려가는 것을 보였다. Curie 온도의 감소는 중성자 조사된 시료내의 단거리 질서 변화로 인하여 Fe-Fe 원자간 교환상호작용(exchange interaction)의 변화로 인한 것이라 여겨진다.

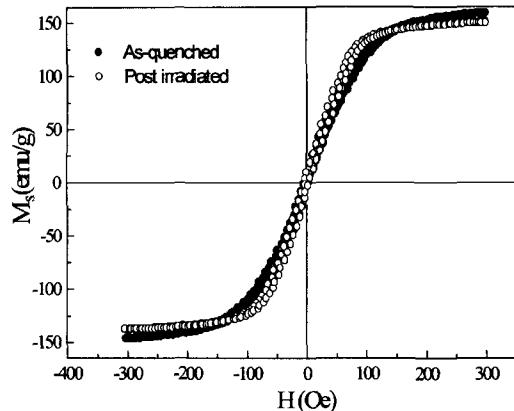


Fig. 4. Hysteresis loops at room temperature for as-quenched (●) and post irradiated (○) sample.

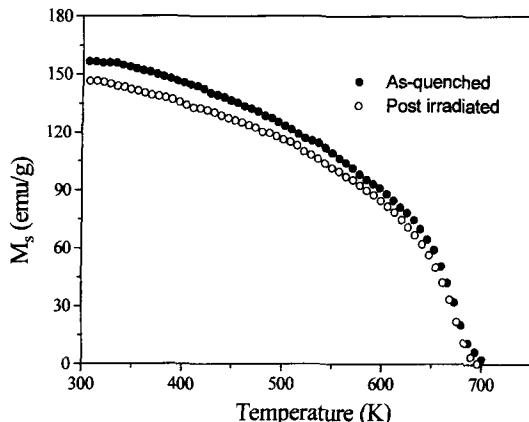


Fig. 5. Temperature dependence of the saturation magnetization for as-quenched (●) and post irradiated (○) sample.

IV. 결 론

비정질 $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$ 리본에서 중성자 조사에 의한 자기적 특성 변화에 대한 연구를 수행하였다. X선 회절 실험에서는 별다른 변화를 볼 수 없었다. 투자율 스펙트럼은 전형적인 Debye 형태를 나타냈으며, 중성자조사 후 자벽운동은 감소하였고, 자화회전 이완 주파수는 높은 주파수 영역으로 이동하였는데, 이것은 중성자조사 후 자구의 pinning력에 의한 것이라 사료된다. 자기이력곡선에서는 중성자조사 후 softness가 증가하고, 포화 자화 값은 감소하였는데, 시료의 softness 증가는 자화회전에 의한 것이라고 여겨진다. 또한, 자화의 온도의존성 실험결과에서 Curie 온도가 감소하는 것을 볼 수 있었는데, 이는 중성자 조사 후 Fe-Fe 원자간 교환상호작용(exchange interaction)의

변화로 인한 것이라 여겨진다. 또한, 자기이력곡선과 투자율 스펙트럼 결과를 비교해보면, 시료의 softness 증가는 자화회전에 의한 것이라고 여겨진다.

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] R. D. Brown, J. R. Cost and J. T. Stanley, J. Appl. Phys., **55**(6), 1754(1984).
- [7] C. G. Kim, H. C. Kim, S. S. Yoon, D. G. Park and J. H. Hong., J. Magn. Magn. Mater., **203**, 217(1999).
- [8] Marcel Miglierini and Ivan Škorvánek, Mater. Sci. Eng. A, **147**, 101(1991).
- [9] Jozef Sitek, Ignác Tóth, Jarmila Defmováand Peter Uvášik, Czechoslovak Journal of Physics, **47**(5), 523 (1996).
- [10] Duck-Gun Park, Jun-Hwa Hong, Chi-Il Ok, Jang-Whan Kim and H. C. Kim, IEEE Trans. Magn., **34**(4), 2036(1998).
- [11] 이용근, 김형상, 홍치유, 장기상, 유연봉, 한국자기학회지, **38**(5), 379(1998).
- [12] S. S. Yoon, C. G. Kim and H. C. Kim, J. Magn. Magn. Mater., **203**, 235(1999).
- [13] I. Betancourt and R. Valenzuela, IEEE Trans. Magn., **33**(5), 3973(1997).
- [14] S. Chikazumi, Physics of Ferromagnetism (Oxford University Press Inc., New York, (1997), Ch. 18.
- [15] R. S. Beach and A. E. Berkowitz, J. Appl. Phys., **76**, 6209(1994).

Effect of Neutron irradiation in Fe₈₁B_{13.5}Si_{3.5}C₂ Amorphous Ribbon

Hyo Cheol Kim and Kwon Pyo Hong

IMEF department, Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon 305-600, Korea

Seong Cho Yu

Department of Physics, Chungbuk National University, Cheongju 361-763, Korea

Cheol Gi Kim

Department of Physics, Sunmoon University, Chung-nam 336-840, Korea

(Received 14 February 2000, in final form 13 April 2000)

The changes of magnetic properties in neutron irradiated Fe₈₁B_{13.5}Si_{3.5}C₂ amorphous ribbon were studied by X-ray diffraction, hysteresis loop, temperature dependence of magnetization and complex permeability. The fluences of thermal (n_{th}) and fast (n_f) neutron were $6.95 \times 10^{18} n_{th} \text{ cm}^{-2}$ and $4.56 \times 10^{16} n_f \text{ cm}^{-2}$, respectively. The changes of XRD profiles were not observable at the neutron irradiated sample. The complex permeability spectra showed that the permeability from domain wall motion decreased due to the increase of pinning force against domain motion by the neutron irradiation, and the relaxation frequency of rotational magnetization moved to higher frequency region. The measurement of hysteresis loop showed the increase of magnetic softness, related to rotational magnetization, but saturation magnetization was decreased in neutron irradiation sample. The Curie temperature was decreased in the neutron irradiated sample.