

2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

중성자 조사에 의한 원자로 압력용기강의 강자성 공명연구

**Ferromagnetic Resonance of the Neutron Irradiated
Reactor Pressure Vessel Steel**

박승식, 박덕근, 조영환, 박완수
한국원자력연구소
대전시 유성구 덕진동 150

요약

진동시료형자력계(VSM) 및 강자성공명 방법을 이용하여 A 508 Cl-2 원자로 압력용기강의 자기적 특성을 실험하였다. 흡수공명선을 분석한 결과 비조사시편과 조사시편 간에 많은 차이가 있었으며 분광학적 분리인자 및 포화자화 값을 Smith and Beljers theory을 이용하여 계산하였다. 계산된 포화자화값은 진동시료형자력계(VSM)의 측정값과 비교하였다.

Abstract

The change of magnetic properties was investigated in the irradiated specimens of A 508 Cl-2 pressure vessel steel using ferromagnetic resonance(FMR) and vibrating-sample magnetometer(VSM) techniques. The resonance absorption curves showed the large difference between the un-irradiated and irradiated steel. The spectroscopic splitting factor g and effective magnetization were calculated by the Smith and Beljers theory. Its saturation magnetization was compared with VSM value.

1. 서론

원자력발전소의 원자로 압력용기는 원자로의 가동시 고온 및 고압에서 높은 에너지 준위를 갖는 중성자가 압력용기 재료의 결정격자와 충돌함으로써 강도, 경도의 증가 및 연성과 인성 등의 파괴 저항성이 감소되는 조사 취화 현상을 겪게된다. 이러한 조사효과를 평가하기 위해 기계적 시험외에 최근 자성 측정법에 의한 재료의 기계적 성질이나 미세구조를 비파괴적 방법으로 평가하고자 하는 많은 연구가 수행되고 있다. 이는 재료의 응력상태, 입자크기, 탄소함유량[1], 전위, 석출물의 크기 및 분포 등에 따른 Barkhausen noise(BN)나 보자력 같은 자성 변수들의 민감함에 기인한다. 본 연구에서는 기존의 평가방법인 M-H hysteresis 측정과 함께, 추가로 이제까지 거의 시도되지 않았던 ferromagnetic resonance(FMR)실험을 통해 중성자 조사 전, 후의 자기적 특성 변화를 분석하고자 하였

다.

강자성공명은 강자성체가 서로 수직한 배열을 한 DC 자기장과 마이크로파 사이에 놓일 때 DC 자기장에 의해 세차운동하는 전자스핀의 세차진동 수와 마이크로파의 진동수가 일치할 때 일어나는 공명현상으로 1946년 Griffith[2]에 의해 Fe, Co, Ni, 합금박막에 대해 최초로 관측되었으며 1947년에 W. A. Yager 및 R. M. Bozorth 등에 의해 그 실험사실이 확증되었고, C. Kittel[3]에 의해 반자장 및 결정 자기 이방성을 고려한 이론적 기반이 마련되었고 강자성체의 미세자기구조를 밝힐 수 있는 분광학적 분리인자, 포화자화, 이방성자기장 및 자화의 현상론적 감쇠인자 등을 구할 수 있다.

이러한 강자성 공명실험을 통해 합금 박막의 결정화, 스핀파공명, 편면이방성 등에 대한 미세자기구조에 대한 연구가 꾸준히 이루어지고 있다.

2. 이론

강자성공명에서 자화의 운동방정식으로부터 얻어진 공명자기장에 대한 Smit-Beljer의 일반식은 다음과 같다.

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{M^2 \sin^2 \theta} (E_{\theta\theta} E_{\phi\phi} - E_{\theta\phi}^2) \quad (1)$$

공명 진동수 ω_r 을 기술해주는 일반식은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \omega_r &= \gamma H_{eff} \\ &= \frac{\gamma}{M \sin \theta} \sqrt{E_{\theta\theta} E_{\phi\phi} - E_{\theta\phi}^2} \end{aligned} \quad (2)$$

여기서 ω 는 마이크로파의 각진동수, 자기회전비 $\gamma \equiv g \frac{e}{2mc}$ 이다. 포화자화 M_s 와 일축 이방성 상수 K_u 에 의해 시편의 자유밀도 E는 다음과 같이 표현된다.

$$\begin{aligned} E &= -M_s H \sin \theta \cos(\phi_H - \phi) \\ &\quad + 2\pi M_s^2 \sin^2 \theta \sin^2 \phi - K_u (\sin^2 \theta \sin^2 \phi - 1) \end{aligned} \quad (3)$$

첫째 항은 Zeeman 에너지 밀도이고 둘째 항은 반자장에 의한 에너지 밀도이며 셋째 항은 시편면에 수직한 방향인 Y축 방향으로 자화용이축을 갖는 일축이방성 자기장의 에너지 밀도이다. 식(1)에 식(3)을 대입하고 자화의 평형조건을 고려하여 풀면

$$\begin{aligned} \left(\frac{\omega_r}{\gamma}\right)^2 &= H_r^2 \cos^2(\phi_H - \phi_o) \\ &\quad + H_r H_k' \cos(\phi_H - \phi_o) (3 \sin^2 \phi_o - 1) \\ &\quad + (H_k')^2 \sin^2 \phi_o (2 \sin^2 \phi_o - 1) \end{aligned} \quad (4)$$

이 된다.

한편, 박막(thin film)에 대해서는, H 가 박막의 면에 수직인 경우와 평행한 경우로 나누어서 생각할 수 있는데, 먼저 H 가 박막의 면에 수직인 경우, 즉 박막이 YZ-면에 놓여있는 경우를 고려하면, 공명 조건은 다음과 같다.

$$\omega_r = \gamma[H_r(\perp) - 4\pi M_s] \quad (5)$$

여기서 $H_r(\perp)$ 은 정자기장을 박막 시료면에 수직하게 인가할 때 나타나는 공명자기장이다. 한편, 박막이 XZ-면에 놓여있는 경우를 고려하면,

$$\left(\frac{\omega_r}{\gamma}\right)^2 = H_r(\parallel)[H_r(\parallel) + 4\pi M_s] \quad (6)$$

$$\therefore \omega_r = \gamma\sqrt{H_r(\parallel)[H_r(\parallel) + 4\pi M_s]}$$

과 같은 공명 조건을 얻을 수 있는데, $(\parallel)H_r$ 은 정자기장을 박막시료면에 평행하게 인가하면서 얻은 공명자기장이다. 따라서 식(5)와 식(6)에서 $H_r(\parallel)$ 와 $H_r(\perp)$ 을 대입하고 방정식을 풀면 분광학적 분리인자 g 와 M_s 값을 구할 수 있다.

3. 실험방법

본 실험에 사용된 시료는 SA 508 Cl. 3로 Table 에 나타내었다. 중성자 조사는 연구용 원자로에서 수행되었으며, 조사 온도는 288 °C, 조사량은 4.5×10^{19} n/cm² ($E \geq 1\text{MeV}$) 이었다.

Table I. Chemical composition of SA 508 Cl. 3 steel A, B.

Sample	C	Si	Ni	Mn	Cr	Mo	Cu	P	Al
A	0.18	0.08	0.77	1.40	0.15	0.53	0.06	0.005	<20ppm
B	0.21	0.24	0.92	1.36	0.21	0.49	0.03	0.007	0.022

재료의 자기이력곡선 및 강자성공명 측정을 위해 은 직경 3 mm 두께 0.1 mm 인 시료를 제작하였다. 자기이력곡선은 진동시료형자력계(Vibrating Sample Magnetometer, VSM)을 이용하여 상온에서 측정하였다. VSM은 감도가 0.01~100 emu/full scale이고 정밀도가 $\pm 1\%$ 인 LDT 9600을 사용하였다. 강자성 자기공명은 시료를 마이크로파의 주파수영역이 X-band(~ 9.7 GHz)인 Bruker-EDX Spectrometer를 이용하여 강자성 공명실험을 하였다. 시편은 자동각도조절장치와 연결된 석영봉에 부착하고 DC 자기장의 세기를 0 - 16.5 kG 까지 미분형 공명흡수선을 관측하였다. 이와 같은 방법으로 DC 자기장과 시편면이 만드는 각을 0. 에서 90. 가지 각도를 변화시켜가면서 그림 1과 같이 공명자기장(H_r)과 공명선평폭(ΔH)을 측정하였다. 자기구조를 분석하고 총자기모멘트에 대한 궤도 자기모멘트의 기여를 나타내는 분광학적 분리인자 g 와 시편의 포화자화를 계산하고 VSM의 포화자화값과 비교하였다.

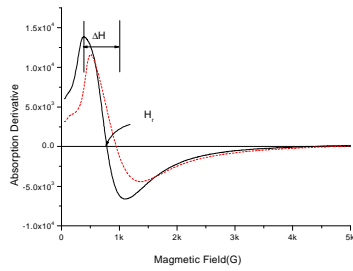


Fig 1. FMR spectrum measurement

4. 실험결과 및 고찰

Fig 2, Fig 3은 자기장을 $-6000 - 6000\text{Oe}$ 까지 증가시키면서 측정한 M-H hysteresis의 결과를 나타낸 그래프이다. 그림에서 보는 바와 같이 중성자 조사 후 포화자화 값은 같거나 약간 감소하는 결과를 보여주고 있다.

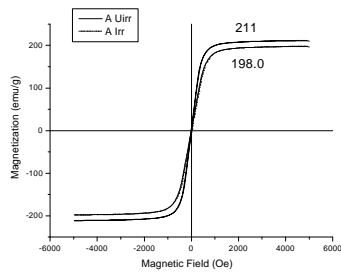


Fig 2. Hysteresis loops of specimen A

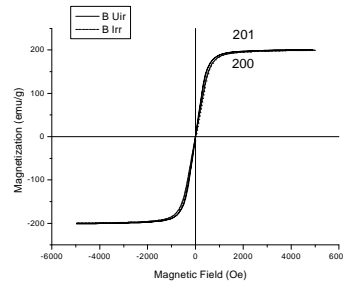


Fig 3. Hysteresis loops of specimen B

A, B시편에 대하여 중성자 조사 전 후의 FMR 실험을 수행하였고 조사전 후 시료에 따른 공명자기장(H_r)의 변화를 Fig 4, Fig 5에 나타내었다. 두 시편에서 조사 후 H_r 이 증가되었는데, 식 (6)에서 H_r 과 M_s 값은 서로 반비례하며 이는 VSM에 의해 측정된 포화자화 값의 감소와 일치함을 볼 수 있다.

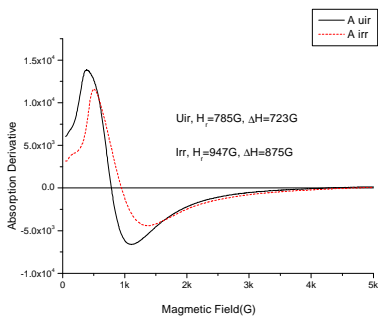


Fig 4. FMR spectra of Sample A

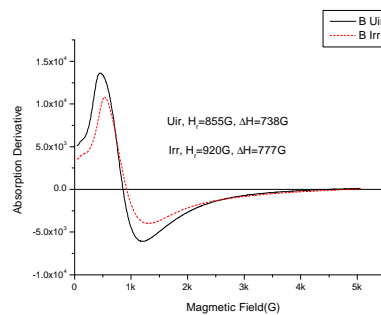


Fig 5. FMR spectra of Sample B

공명선폭(ΔH)의 경우에도 중성자 조사 후 시편 A, B 모두 증가됨을 알 수 있는데 고속의 중성자가 조사되면 재료내부에 점결함 등이 발생하게 되며 이들이 모여서 나노크기의 결함을 만들어 비균질화를 가져오고[4,5] 이러한 특성이 영향을 미치는 것으로 판단된다. 이러한 결과는 시편의 미세기공, 와전류, 내부자장, 비균질화된 상의 이방성에 의존한다는 문헌과 일치함을 알 수 있다.[6,7]

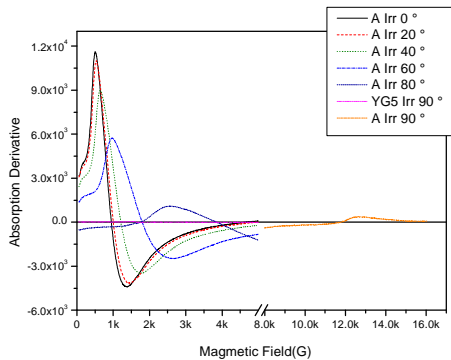


Fig 6은 시편의 공명자기장을 각도변화에 따라 나타내었다. 자기장의 각도가 시편표면의 90°에 가까울수록 반자장의 영향으로 공명자기장이 커짐을 알 수 있었다. 중성자 조사 후 시편 A에 대한 0°와 90°의 공명자기장 값을 식(5) 및 식(6)에 대입하여 분광학적 분리 인자와 유효자화를 구하였다. 그 결과 g 는 2.03, 포화자화 M_s 값은 115.3 emu/g 이었다.

Fig 6. FMR spectra of Sample A

for varying magnetic field angle 포화자화의 경우 VSM 측정값인 198 emu/g보다 낮게 나왔는데 중성자 조사에 의한 미세 결함, 압력용기 제조 등의 자기적 이방성이 포화자화 값에 영향을 미친 것으로 판단된다.

4. 결론

중성자 조사된 원자로 압력용기강을 강자성공명 방법에 의해 측정한 결과 공명자기장 (H_r)과 공명선폭(ΔH)은 조사하기 전과 비교해서 증가하였다. 공명자기장의 증가는 VSM에 의해 측정한 포화자화값의 감소와 일치함을 알 수 있었고 강자성 공명선폭을 비교해 볼 때 시료 전체적으로 자기적 비균일도가 증가함으로써 나타난 결과로 볼 수 있다. 중성자 조사 후 시편 A의 g 는 2.03, 포화자화 M_s 값은 115.3 emu/g이었다.

5. 참고문헌

[1] R. Ranjan, D. C. Jiles, P. K. Rastogi, IEEE Trans. Mag. **Mag-23**, 1869(1987)
 [2] C. J. H. E. Griffiths, Nature, 158, 670(1947)
 [3] C. Kittel, Phys. Rev. **71**, 270(1947)
 [4] Wei-Ja Shong, J.F. Stubbins and J.G. Williams, ASTM STP 1228 (1994) 215
 [5] R.A. Johnson and A.N. Orlov, "Physics of Radiation Effects in Crystals, Modern Problems in Condensed Matter Sciences, Vol. 13" (Elsevier Science Publishers, 1986)
 [6] R. S. Iskhakov, L. A. Chekanova, and E. A. Denisova, Phys. Solid State, 41, 416(1999)

[7] G. Balasubramanian, A. N. Tiwari, C. M. Srivastava, J Matl. Sci. 25, 1636(1990)