

KAERI/AR-602/2001

기술현황분석보고서

중성자소각산란 이용기술

- 재료과학을 중심으로

Application of Small Angle Neutron Scattering to  
Materials Science and Engineering

KAERI

한국원자력연구소

# 제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 2001년도 원자력연구개발 중장기 계획의 연구로이용기술과제 중 중성자빔이용연구 과제의 "중성자소각산란이용기술(재료과학을 중심으로)"의 기술현황분석보고서로 제출합니다.

2001 7.

주 저 자 : 성 백 석  
공 저 자 : 박 덕 근  
          : 이 창 희  
          : 한 영 수

# 요 약 문

## I. 제 목

중성자소각산란 이용기술  
- 재료과학을 중심으로

## II. 연구 개발의 목적 및 내용

중성자소각산란(Small Angle Neutron Scattering, SANS)기술은 재료내에서 1 ~ 400nm 정도의 크기를 갖는 조성이나 밀도의 불균일성을 조사하는데 이용되는 기술로 생체분자, 폴리머체인, 마이셀 등의 고분자구조분석, 세라믹재료와 금속재료내의 미세 석출물의 크기와 구조분석, 재료내의 미세 기공분석, 그리고 원자로재료의 조사거동 분석 등 광범위한 분야에 응용되고 있다. 최근에는 생명공학과 나노기술의 발전과 더불어 세계적으로 그 이용범위가 더욱 확대되는 추세에 있으며 국내에서도 원자로 재료, 고분자 등의 분야에서 SANS 장치를 이용한 연구에 대해 기대수요가 급증하고 있다.

하나로 CN 수평공에 설치된 SANS 장치는 재료내 1 ~ 100nm 정도의 크기를 갖는 불균일성(구조, 결함, 석출물 등)을 조사할 수 있으며, 현재 성능 시험이 진행 중에 있어 2001년 중반에는 일반 이용자에게 빔 타임을 제공할 예정이다. 본 기술현황보고서는 중성자 소각산란에 의한 고분자 연구동향 기술보고서(KAERI/AR-502/98)에 이어서 재료공학 관점에서의 SANS의 기본이론, 실험 방법 및 재료분야에서의 SANS 응용 기술 현황을 제시함으로써, 후일 하나로 SANS 장치가 완성되면 재료 공학 이용자들이 보다 효율적으로 활용할 수 있도록 하였다.

## III. 연구개발 결과

본 기술현황보고서는 SANS의 기본 이론, 실험 방법 및 해석방법에 대해서 소개하고, 재료분야에서의 SANS 응용 기술에 대한 최신 연구 동향을 소개하였다. SANS에 의한 재료의 상분리, 전위밀도, 미세구조, 원자력 재료에서의 방사선 조사 손상 연구를 소개함으로써 향후 재료 연구 개발 방향을 제시하는데 도움이 되도록 하였다.

# SUMMARY

## I. Project Title

Application of Small Angle Neutron Scattering to Materials Science and Engineering

## II. Objective and Contents of the Project

Small angle neutron spectrometer(SANS) is becoming very useful tool for the investigation of microstructures of 1nm nearly to 400nm in size in wide range of materials such as porous media, polymers, ceramics, metals, etc. Recently as the nano- and bio-technology have been developed rapidly, the SANS techniques is becoming more important tools for the understanding of the nano-sized materials and soft matters which are strongly linked to industrial applications. Domestic users who want to study microstructural morphology of metals, polymers and nano-sized materials by using SANS techniques are also rapidly increasing.

The small angle neutron spectrometer(SANS) has been installed at CN beam port of HANARO reactor. After commissioning it will be opened to internal and external users in mid 2001. This report, followed by a previous report(KAERI/AR-502/98) entitled "A review on the study of polymer properties by Small Angle Neutron Scattering", reviewed basic theory of SANS and recent trends of various materials studied by using SANS techniques for the materials researchers. We also wish to review the feasibility of small angle studies for materials research at the HANARO and to help possible beam time users for their experimental consideration.

## III. Result of the Project

This report reviewed basic theory of SANS, experimental methods, and basic analysis methods. Some SANS studies on materials such as phase separation, dislocation, defects in semiconductor, radiation damage in metallic materials, etc. were introduced. we wish to help internal and external materials researchers for their experimental consideration in materials science fields on HANARO SANS.

# CONTENTS

Chapter I. Introduction .....	11
Chapter II. Basic theory of SANS .....	14
Section 1. Differential coherent scattering cross section .....	14
Section 2. Two-phases model .....	15
Section 3. Scattering function for special cases .....	16
Section 4. General properties of scattering function .....	18
Section 5. Size distribution .....	20
Section 6. Inter-particle interaction .....	21
Section 7. Experiment and Data analysis .....	22
Chapter III. SANS Applications .....	28
Section 1. Phase Separation .....	28
Section 2. Dislocations .....	33
Section 3. Magnetic Alloys .....	35
Section 4. Defects in Semiconductor .....	40
Section 5. Flux Lines in Type II Superconductors .....	42
Section 6. Radiation Damage .....	44
Chapter IV Result .....	64
References .....	65

# 목 차

제 1 장 서 론 .....	11
제 2 장 SANS의 기본이론 .....	14
제 1 절 SANS 에서의 산란 단면적 .....	14
제 2 절 2상(two-phase) 모델 .....	15
제 3 절 특별한 경우의 산란함수 .....	16
1. 구형입자 .....	16
2. 타원입자 .....	17
3. 원통형 입자 .....	17
제 4 절 산란함수의 일반적인 특징 .....	18
1. $Q=0$ 에 외삽 .....	18
2. 적분된 강도 .....	18
3. Guiner 근사 .....	19
4. Porod 근사 .....	19
제 5 절 크기분포 효과 .....	20
제 6 절 입자간 간섭 .....	21
제 7 절 실험 및 data 해석 .....	22
1. 절대산란강도 보정과 규격화 .....	26
제 3 장 SANS의 응용 .....	28
제 1 절 SANS를 이용한 재료의 상(phase)분리 연구 .....	28
1. 비정질 합금 .....	28
2. 합금에서의 상 분리 .....	30
3. 합금에서의 석출물 조사 .....	31
제 2 절 SANS를 이용한 전위밀도 연구 .....	33
제 3 절 SANS를 이용한 상용 미세구조 연구 .....	35

1. 개 요 .....	35
2. Magnetic Alloys .....	37
제 4 절 SANS를 이용한 반도체내의 결함 연구 .....	40
제 5 절 SANS를 이용한 초전도체의 미시장 분포 연구 .....	42
제 6 절 SANS를 이용한 조사손상기구 연구 .....	44
1. 개 요 .....	44
2. 압력용기재료에서의 조사손상기구 연구 .....	44
가. Matrix 손상 .....	49
나. 조사로 인해 유기된 석출 .....	50
다. Defect Cluster .....	57
3. SANS를 이용한 핵융합로 재료 연구 .....	58
가. Voids .....	60
나. He 기포 .....	62
제 4 장 결론 및 전망 .....	64
References .....	65

## 그림 목 차

Fig. 1. General Features of Small Angle Scattering from a Dilute Particle-like Microstructure. ....	20
Fig. 2. Plots of scattering, interference functions and their product as a function of $QR_s$ according to the different densities .....	22
Fig. 3. Schematic sketch of neutron small-angle scattering equipment .....	23
Fig. 4. Spin-correlation length in amorphous $Fe_{91}Zr_9$ as a function of temperature derived from SANS measurements. ....	29
Fig. 5a,b. $Fe_{60}Cr_{40}$ : $T_a=515^\circ C$ , at the early stage of decomposition. (a) Log-log plot. (b) Scaled function .....	31
Fig. 5c,d. $Fe_{60}Cr_{40}$ : $T_a=540^\circ C$ , at the late stage of decomposition. (a) Log-log plot. (b) Scaled function .....	31
Fig. 6. Neutron(1) and X-ray(2) small-angle scattering intensity due to precipitates in an $Al_{0.91}Zn_{0.09}$ alloy. ....	33
Fig. 7. Dislocation densities in single and polycrystals determined by neutron scattering. ....	34
Fig. 8. Anisotropic magnetic small-angle scattering from a cold-worked Ni single crystal for fixed $Q$ , .....	35
Fig. 9. Scattering Geometry with the angle $\theta$ and $\phi$ used in Fig. 8. ....	35
Fig. 10. Mean precipitate diameter (a) and volume fraction (b) for maraging steel aged for ten hours at temperature from 400 to 600°C .....	36
Fig. 11. Contour lines of the correlation function of the magnetization, as deduced from scattering at a Ticonal X sample in the magnetized and the demagnetized state. ....	39
Fig. 12. Magnetization of single-domain particles in the virgin state, for high external field, and after removal of the field, for crystal anisotropy	

and for shape anisotropy. Scattering patterns are shown for constant.	39
.....	
Fig. 13. Small-angle scattering from Co precipitates in Cu. $\chi$ is the ratio and is plotted vs $\overline{\chi R_g}$ , where $\overline{\chi R_g}$ is the average radius of gyration =160Å for curves 2 and 3. ....	40
Fig. 14. SAXS results for Xe-irradiated a-Si:H(logarithmic scales). ....	41
Fig. 15. (a) Experimental setup of the 'parallel' arrangement. ....	43
Fig. 16. Comparison of the flux-line velocity determined by neutron diffraction. ....	44
Fig. 17. SANS pattern of weld metal HG with high content of Cu after different pre-treatments (as-received, irradiated, and annealed). ....	45
Fig. 18. Size distribution of the scattering defects for base metal GG with high content of Cu after different pre-treatments (as-received, irradiated, and annealed after irradiation) ....	46
Fig. 19. Size R (left scale), chemical composition parameter $B=\sqrt{R}-1$ (0) and volume fraction $c$ ( $\square$ ) of clusters in irradiated A533-B steel: 0.002 (a) and 0.3 (b) wt.% Cu ....	48
.....	
Fig. 20. Change in SANS integrated intensity of irradiated samples versus the radiation induced change of Vickers hardness; ....	48
Fig. 21. Differential neutron scattering cross sections as a function of for unirradiated(open symbols) and irradiated(closed symbols) steels JFL, JPA, JPE, JPG, and JPH. ....	50
Fig. 22. Volume fraction-particle size distributions derived by maximum entropy methods. ....	51
Fig. 23. The distributions of spot analysis for the residual matrix copper contents in irradiated steels; (a) JPA, (b) JPB, (c) JPC, (d) JPD, (e) JPG, and (f) JPH. ....	53
Fig. 24. Analysis of matrix copper contents using improved techniques of large area scans and spot sampling for the high-copper plate JPA6; ....	55

Fig. 25. The total volume fraction (precipitate+microvoid) dependence of the yield stress change in the model plates JPA-JPH after about 14 mdpa at 290°C. ....	55
Fig. 26. The total volume fraction (precipitate+microvoid) dependence of the hardness change in the model plates JPA-JPH after about 14 mdpa at 290°C. ....	56
Fig. 27. The precipitate volume fraction dependence of the matrix damage compensated yield stress change in plates JPA and JPD-JPH after about 14 mdpa at 290°C ....	56
Fig. 28. The precipitate volume fraction dependence of the matrix damage compensated hardness change in plates JPA and JPD-JPH after about 14 mdpa at 290°C ....	57
Fig. 29. Scattering intensity for an irradiated aluminum single crystal with voids. Data are taken with different sample-detector distances. ..	58
Fig. 30. Experimental layout of SANS experiments on MANET steel: two-dimensional intensity contours without (a) and with (b) magnetic field. ....	59
Fig. 31. MANET steel annealed 2h at 700°C: SANS curve (nuclear signal) (a), size distribution of precipitates as ....	59
Fig. 32. (a) SANS curve of Al single crystal irradiated at $2 \times 10^{20}$ n/cm <sup>2</sup> (●) and $7 \times 10^{20}$ n/cm <sup>2</sup> (○), (b) The corresponding of voids. ....	60
Fig. 33. Contour line calculated for an irradiated Al single crystal containing faceted voids. ....	61
Fig. 34. One octant of a truncated octahedral void. ....	61
Fig. 35. Size distributions of the bubbles in 58Ni and 60Ni matrices as obtained by SANS and TEM. ....	62
Fig. 36. Size distribution of He bubbles as obtained from SANS after annealing at 1073K 2h (1), 6.75h (2) and 50h (3)]. TEM pictures are inserted to show the aspect of the two populations of He bubbles. ....	63

## 표 목 차

Table 1. Comparison with SAXS and SANS .....	24
Table 2. Summary of precipitate data with and without a microvoid matrix damage component. ....	52

## 제 1 장 서 론

국내 유일의 고효율 중성자원인 연구용 원자로인 하나로(HANARO, 열출력 30MW)는 지난 95년 2월에 첫 임계에 도달된 후에 단계적인 출력운전 시험을 거쳐 현재 설계출력의 약 80% 수준으로 운전되고 있으며, 현재 하나로 중성자 빔을 이용하여 물리, 원자력, 재료과학, 화학, 생명공학 등의 광범위한 연구분야의 기초 및 응용연구를 수행할 수 있도록 하나로 7개의 수평공에 상호 보완적인 중성자 빔 이용 연구 설비를 일부 운영중이거나 설치(또는 계획) 중에 있다. 이중 소각산란 중성자 분광장치(Small Angle Neutron Spectrometer)는 최근에 국내의 원자로 재료, 고분자 등의 관련분야에서 연구수요가 급증함에 따라 '95년부터 하나로 CN 수평공에 설치하여, 현재 성능시험 중에 있으며, 2001년 후반부에는 일반 이용자에게 빔 타임을 제공할 수 있을 것이다.

소각중성자산란(Small-Angle Neutron Scattering, SANS)은 다양한 재료 내에서 크기가 1 ~ 400nm인 구조와 불균일성을 조사하는 강력한 도구로 평가받고 있다. 특히 방사선조사에 의한 재료의 미시거동, 자성 재료 내에서 자기 특징들을 조사하는데 유용한 도구가 되고 있으며, 고분자 및 생체 시스템 분야의 미시구조를 연구하는데 있어서도 기존의 소각 X-선 산란(Small-Angle X-ray Scattering, SAXS)보다 우수한 도구로 인정되고 있다.

또한 중성자는 원자핵과 상호작용하고 또한 스핀(spin)을 가지고 있어 인접의 전자들과도 상호 작용할 뿐만 아니라 투과력도 높아, 단지 원자핵 주변의 전자들과 상호 작용하는 X-선을 이용하는 경우 보다 다양한 실험기법 사용하여 광범위한 재료특성을 연구할 수 있기 때문에 널리 이용되고 있다. 일반적으로 중성자의 특성을 X-선과 간략하게 비교 요약하면 다음과 같다.

- 1) 중성자는 X-선 보다 더 깊이 물질을 투과하므로 bulk 시편을 사용할 수 있다.
- 2) X-선의 산란진폭은 원자번호에 따라 증가하며, 또한 원자핵 주변의 전자들에 의해 산란되므로 산란각에 따라 산란 강도가 감소한다. 이에 반하여 중성자의 산란은 원자핵에 의해 산란되므로 산란각에 따라 일정한 산란강도를 가지며, 산란진폭도 각 원소에 따라 불균일하게 변하고, 각 원소의 동위원소들간의 산란강도 차이를 얻을

수 있다. 또한 어떤 원소는 음(-)의 산란진폭을 가지고 있다. 따라서 주기율표에서 인접원소들로 구성된 합금의 경우에 대해서도 중성자는 높은 산란 대비(scattering contrast)를 가지며, 반면 X-선은 인접 원소들의 산란대비가 부족하여 인접 원소들 간의 정보를 정확히 얻기가 힘들다.

- 3) 중성자의 산란대비는 동위원소를 치환함으로써 쉽게 변화시킬 수 있으므로, 재료의 특성이 변하지 않는 조건에서 표지된 원소를 동위원소로 치환하여 구조분석에 이용할 수 있다. 예를 들어 고분자나 생체재료에서 H를 D로 치환하여 표지된 분자의 구조를 분석하는 기법은 중성자산란에 널리 이용되고 있다.
- 4) 열중성자의 에너지는 X-선에 비하여 매우 작기 때문에 재료에 포획되지 않으면 재료에 손상을 주지 않는다.
- 5) 결정 재료에서 긴 파장의 중성자를 적절히 선택함으로써 통상의 X-선을 사용할 때 탐지 가능한 산란단면적의 범위를 제한하는 다중 Bragg산란(multiple Bragg scattering)효과를 피할 수 있다.

위와 같은 다양한 특성으로 SANS는 무기재료, 금속합금, 고분자 및 생체물질에서 콜로이드 등 광범위한 연구에 이용되고 있다. 특히 합금에서의 기계적 강도, 자성재료에서의 보 자력, 초전도체에서의 임계전류, 유리에서의 광학적 성질 등 다양한 재료에서의 불균일성을 조사하는 데에서 중성자의 선택적 산란 성질은 강력한 도구 인정받고 있다. 또한 SANS는 몇 개의 원자간격 정도의 거리로부터 1  $\mu\text{m}$  에 이르는 넓은 범위에 걸쳐 재료의 불균일성(즉, 위치나 구성의 무질서, 점 결함의 결함이나 집합체, 여러 가지 상이한 상의 차이, 밀도나 농도 또는 자기적 성질의 차이 등)을 조사하는 유용한 도구로 평가받는다. 금속이나 합금에서의 성질 등은 대개 그들의 미세구조에 의존하며, 많은 경우에 있어서 바람직한 미세구조는 열역학적인 평형 상태로부터 벗어나 있는 경우가 많으며, 이들 미세구조를 연구하기 위하여 투과전자현미경(TEM), 주사형터널현미경(STEM) 등의 여러 가지 도구가 사용되고 있으나, 이들은 미세 조직에 대하여 직접적이나 국소적인 부분에 대하여 매우 제한된 정보를 제공한다. 그러나 SANS는 bulk 시료를 사용함으로써 이들 결함의 분포에 대하여 광범위한 정보를 얻을 수 있으므로 위와 같은 결과와 상호 보완적인 해석을 통해 재료 특성의 연구를 보다 심도 있게 수행할 수 있다.

오래 전부터 SAXS는 SANS의 대용으로 사용되어 왔으며, 최근에는 방사광을 이용하는 기술로 인하여 분해능이 획기적으로 개선되어 강력한 도구로 발전되어왔다. 그러나

X-선은 물질에서의 높은 흡수성과 Bragg 절단(cut-off)을 초과하는 파장은 투과되지 않는 문제로 인하여 얇은 박막의 연구에 주로 이용되고 있다. 그러나 SANS는 파장이 0.4 ~ 2nm 정도인 중성자 빔을 사용하며, 투과력도 좋아 시료의 두께가 1-10 mm 정도가 되어도 문제가 없으며, 동시에 시료 캔(can)과 로(furnace)의 창(window)에서 일어나는 배경산란도 무시할 정도로 줄일 수 있어 온도, 압력, 자장 등의 다양한 시료환경조건에서의 측정이 가능하다. 또한 중성자 산란의 고유특성으로 자화의 국소적인 변화도 매우 민감하게 탐지할 수 있다. 따라서, 합금, 비정질, 복합재료 및 유리에서의 상 분리 및 분해 임계요동, 점 결합과 스피んの 결합, 전위배열, 기공 및 미세 결합, 조사손상 등 중성자 조사나 소성변형에 의하여 재료의 거시적 성질이나 미세구조가 변하는 원인을 밝히는데 SANS는 폭넓게 이용되고 있다.

SANS에 대한 연구로서 측정 및 응용에 관하여는 Schamtz[1], 재료과학의 적용에는 Gerold와 Kostortz[2], 조사손상에 대하여는 Albertini[3], 고분자에 대하여는 Higgins 와 Stein[4], 생물학의 적용에 대하여는 Jacrot 및 Stuhrmann[5]등에 의해 수행되어 졌으며, 최근에는 중성자소각산란실험을 통한 연구 영역이 더욱 확충되고 있는 추세이다.

본 보고서에서는 SANS 장치를 이용한 재료과학 분야의 연구동향 조사를 통하여 연구현황을 파악하고, 향후 연구 방향을 도출하는데 조금이나마 도움이 되고자 한다. 제 2 장에서는 SANS의 기본 이론과 data 해석방법에 대하여 기술하였으며, 제 3장에서는 반도체, 초전도체, 전위밀도 연구 및 조사손상 연구 등에 적용되는 재료과학 분야의 SANS 응용분야에 대하여 기술하였다.

## 제 2 장 SANS의 기본이론

소각산란(Small Angle Scattering, SAS) 이론에 대해서는 이미 Guinier와 Fournet[6] 등에 의해 상세하게 논의되었다. 소각산란이란 시료에 입사되어 산란된 산란벡터,  $Q(=4\pi\sin\theta/\lambda)$ 의 이동이 매우 작은 값을 가질 때의 산란, 즉 산란각  $\theta$ 가 아주 작은 영역에서의 산란을 말한다. 비정질재료에서의  $Q$ 는 산란함수  $S(Q)$ 의 첫 번째 최대값(first maximum)에 대응하며, Fourier 변환 이론에 의하면 낮은  $Q$  값을 가진 산란영역에서는  $Q_{\max}$ 가 실험에서 얻을 수 있는 최대의  $Q$  값 일 때  $d_{\min} \approx 2\pi/Q_{\max}$  범위까지 공간구조에 대한 상세한 정보를 얻을 수 있다. 예를 들어  $Q_{\max} = 0.3 \text{ \AA}^{-1}$ 은  $d_{\min} \approx 20 \text{ \AA}$ 에 대응하며, 이러한 실험 분해능 조건에서는  $d \geq 20 \text{ \AA}$  범위에서 개개의 결합 위치를 구별할 수 있다. 응집물질에서 산란중심의 이산적인 배열을 전 체적 ( $d_{\min}^3$ )에 대하여 평균하면 산란길이 밀도의 연속적인 분포로 나타나고,  $d_{\min}$ 보다 큰 거리에서 평균산란길이 밀도의 요동(fluctuations)은 산란벡터의 이동범위( $Q < Q_{\max}$ )에서 소각산란을 일으킨다. 이것은 SANS의 기본원리로 SANS에서는  $Q$ 의 범위에 따라 분석가능 범위가 결정된다. 따라서 산란벡터의 이동범위  $10^{-4} < Q < 0.1 \text{ \AA}^{-1}$ 에서는 길이 차원으로  $10 \sim 1000 \text{ \AA}$  정도의 구조적인 불균일성을 해석할 수 있으며, 응집물질에서의 이러한 불균일성은 원리적으로 구성성분의 요동과 결합에 의하여 야기된다.

### 제 1 절 SANS에서의 산란 단면적

입사빔이 조사되는 시료 내에  $N$ 개의 원자들이 존재하고, 이들에 의한 핵 산란을 고려할 때 산란벡터  $Q$ 에서의 간섭성 산란 단면적은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$dQ/d\Omega = (1/N) |\sum_R b_R \exp(iQ \cdot R)|^2 \quad (1)$$

여기서  $b_R$ 은 위치  $R$ 에 있는 원자의 간섭성 산란거리이다.  $b_R$ 을 평균한 산란길이 밀도  $\rho(r)$ 로 대치하면, 식 (1)은 다음과 같다.

$$dQ/d\Omega = (1/N) \left| \int_V \rho(r) \exp(iQ \cdot r) d^3r \right|^2 \quad (2)$$

여기서  $\mathbf{r}$ 은 연속적으로 변화하는 위치벡터이다.  $\rho(r)$ 은 시편의 전 체적에 대하여 평

균한 산란길이 밀도인  $\rho$ 로 표시하는 것이 편리하며 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$\rho(r) = \rho + \Delta\rho(r)$$

따라서 식(2)는 다음과 같다.

$$\begin{aligned} dQ/d\Omega &= (1/N) \left| \int_V [\rho + \Delta\rho(r)] \exp(iQ \cdot r) d^3r \right|^2 \\ &= (1/N) \left| \int_V [\Delta\rho(r)] \exp(iQ \cdot r) d^3r \right|^2 \end{aligned} \quad (3)$$

여기서 상수 값인  $\rho$ 의 Fourier 변환은  $\delta$ 함수이므로 표기에서 제외하였으며,  $\Delta\rho(r) = [\rho(r) - \rho]$ 는 구조적인 또는 구성성분의 불균일성에 기인한 논리적으로 평균된 산란길이 밀도에 대한 산란대비(scattering contrast)를 뜻한다.

## 제 2 절 2상(two-phase) 모델

산란길이 밀도가  $\rho_p = b_p/v_p$  인 균질한 입자를  $N_p$  개 포함하고 있는 시료가 산란 길이밀도  $\rho_m = b_m/v_m$  (여기서  $b_p, v_p$  와  $b_m, v_m$  은 입자와 매질 속에서 각각의 평균 산란길이와 입자체적이다)의 균질한 매질 속에 있다고 생각하면, 식 (3)은 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$dQ/d\Omega = (1/N) (\rho_p - \rho_m)^2 \left| \int_{V_i} \exp(iQ \cdot r) d^3r \right|^2 \quad (4)$$

여기서 적분은 모든 입자에 의하여 점유되고있는 체적  $V_i$  에 대하여 수행되며, 일반적으로 식 (4)는 입자 사이의 공간적이고 편향적인 상관관계 및 그들의 크기 분포효과를 포함한다.

만일 입자가 불균일하면  $\rho_p$  는  $\rho_p(r) = \rho_p + \rho_F(r)$  로 바꾸어 쓸 수 있다. 이때  $\rho_F(r)$ 은 입자내의 밀도요동이며 고분자나 생체물질 내에서는 흔히 존재한다. 여기서 우리는 종종 많은 요소를 포함하고 있는 산란계, 즉 체적  $V_p$  를 가진  $N$  개의 균일한 입자들에서 원자당 산란 단면적을 다음과 같이 간략하게 쓸 수 있다.

$$d\sigma/d\Omega(Q) = [V_p^2 N_p / N] (\rho_p - \rho_m)^2 |F_p(Q)|^2 \quad (5)$$

여기서  $F_p(Q)$  는 단일입자의 형상인자(form factor)이며,

$$F_p(Q) = (1/V_p) \int_V \exp(iQ \cdot r) d^3r \quad (6)$$

$F_p(0) = 1$  로 주어진다.

식 (5)에서 주어진 식은 입자간의 간섭효과가 무시한 경우로 입자간의 거리가 충분히 커 입자들간의 상호 작용이 없는 계에서만 만족한다. 입자간의 거리가 크지 않은 계, 즉 입자들간의 상호 작용이 존재하는 경우에는 식 (5)에 간섭항  $\Psi(Q)$ 를 포함시켜야 한다. 이것은 정적 쌍 상관함수(static pair correlation function)의 Fourier 변환으로 다음과 같이 주어진다.

$$\Psi(Q) = (1/N) \sum_i \exp iQ \cdot (r_{oi} - r_{oj}) \quad (7)$$

여기서  $r_{oi}$  와  $r_{oj}$  는 입자  $i$  와  $j$  의 중심의 위치벡터이다. 이를 식 (5) 와 (7)을 결합하면,

$$d\sigma/d\Omega(Q) = [V_p^2 N_p / N] (\rho_p - \rho_M)^2 |F_p(Q)|^2 |1 + \Psi(Q)|^2 \quad (8)$$

이 된다. 식 (7)은 입자들간의 간섭이 전혀 없는 희석(dilute) 시료라고 하면  $Q \neq 0$ 에서 0의 값을 가진다. 또한 식 (5)는 입자가 같은 방향으로 배열되어 있고 방향성 비등방성 입자계에게도 적용할 수 있으며, 이 비등방성 입자들이 무질서하게 흩어져 있으면,  $|F(Q)|^2$  은 모든 편향된 분포에 대하여 평균되어야 한다.

### 제 3 절 특별한 경우의 산란함수

소각산란에서의 산란함수는 입자의 모양에 따라 달라지며, 또한 실제 문제를 해결하는데 있어서 이러한 정보는 매우 중요하다. 제3절에서는 SANS 실험에서 주로 발견되는 다양한 모양의 산란체의 산란함수를 소개하여, 다음절에서 언급하는 다양한 근사법에 의한 데이터 해석법을 이해하는데 도움이 되고자한다. 단일입자의 산란함수  $S(QR)$ 은 형상 인자의 제곱으로 식(6)으로부터 다음과 같이 정의할 수 있다.

$$S(QR) = |F_p(Q)|^2$$

#### 1. 구형입자

반경  $R_s$  인 동일한 구형입자로 구성된 계의 산란함수는 잘 알려진 Rayleigh의 식[6]에 의하여 다음과 같이 주어진다.

$$S_s(QR_s) = [3(\text{Sin} QR_s - QR_s \text{Cos} QR_s) / (QR_s)^3]^2 \quad (9)$$

이 함수는  $QR \approx (n+1)$  에서 주기적인 peak를 가지며,  $QR_s = 0$  에서 최대값 1을 가진다. 그리고 그들의 peak 높이는  $(n+1)^{-4}$  에 비례하여 감소하며, 이러한 산란 pattern은 바이러스와 같은 구형생물 입자로부터 종종 관찰되며, 이러한 경우에는 쉽게 입자의 크기를 결정할 수 있다. 그러나 금속재료에서 다양한 크기를 가진 구형 결함들이 응집되어 존재하는 경우, 즉 입자들간의 간섭효과가 존재하는 경우에는 산란 단면적은

$$d\sigma/d\Omega(Q) = \left[ \frac{\langle V_p^2 \rangle N_p^2}{N} \right] (\rho_p - \rho_M)^2 \langle S^2(Q) \rangle I(Q)$$

로 쓸 수 있다. 여기서  $I(Q)$ 는 입자들의 공간 분포에 기인하는 간섭항이며, 입자  $N_p$  들이 무질서하게 분포되어 있다면  $I(Q)$ 는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$I(Q) = 1 - 3 \frac{3 \sin(QD_p) - QD_p \cos(QD_p)}{(QD_p)^3} = 1 - Z(QD_p)$$

여기서  $D_p$  는 입자들 사이의 평균거리이며, 이 함수의 최대치는 함수  $Z(QD_p)$ 가 최소가 될 때이며,  $QD_p = 5.76346$ 일 때 첫 번째 최소값을 갖는다. 즉 측정된 첫 번째 피크위치  $Q$ 에서 직접적으로 입자들 사이의 평균거리를 얻을 수 있다. 그러나 위의 결과는 dilute 계에서만 적용할 수 있으며, 응집된 입자계에서는 산란곡선의 경사도가 측정 피크 위치에 영향을 줄 수 있으므로 뒤에 언급하는 Guinier 근사식에 의해서 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$Q_p D_{av} = 5.76346 - (1.308 \pm 0.004) Q_p^2 R_g^2$$

여기서  $R_g$  는 Guinier 반경[6]이다.

## 2. 타원입자

축  $2a$ ,  $2a$ ,  $2av$ 를 가진 산란 타원체에서 산란함수는 다음의 형태를 가진다.

$$S_{e(Q)} = \int_0^{\pi/2} S_s [Q_{av} / (\sin^2 \alpha + v^2 \cos^2 \alpha)^{1/2}] \cos \beta d\beta \quad (10)$$

여기서  $\alpha = \arctan(v \tan \beta)$  이고  $S_s$  는 식 (9)에서 정의된 형태를 가진다.

## 3. 원통형 입자

반경  $r$  이고 길이  $2l$  인 원통형의 산란체의 산란 함수는

$$S_c(Q) = \int_0^{\pi/2} \frac{\sin^2(Ql \cos \beta)}{Q^2 l^2 \cos^2 \beta} \times \frac{4J_1(Qr \sin \beta)}{Q^2 r^2 \sin^2 \beta} \sin \beta d\beta$$

로 주어지며, 여기서  $J_1$  은 제 1차 Bessel 함수이다.

위에서  $1 \ll Ql$  및  $r \ll l$  일때,  $Qr \leq 1$ 인 조건에서의 산란함수는 Porod에 의해 다음과 같은 근사식[45]으로 기술할 수 있다.

$$S_{cyl}(Q) = (\pi/2Ql) \exp(-Q^2 r^2/4) = (\pi/2Ql) \exp(-Q^2 R_c^2/2) \quad (11)$$

여기서  $R_c^2 = r^2/2$  는 산란 단면적 회전반경이다.  $Ql \gg 1$  인 경우 무한히 얇은 막대로서

$S_{cyl}(Q) \approx \pi/(2Ql)$  로 주어지며 원통과 같은 평평한 디스크 ( $r \gg l$ ) 인 경우에는

$$S_{disc}(Q) \approx 2/(Qr)^2 \exp(-(Ql)^2/3) \quad (Ql \ll l \ll Qr \text{ 일 때}) \quad (12)$$

로 주어진다.

## 제 4 절 산란함수의 일반적인 특징

본 절에서는 산란함수의 일반적인 특성을 소개하여 실제 SANS 실험에서 얻어진 산란 함수로부터 얻을 수 있는 정보를 간단히 소개하기로 한다.

### 1. $Q=0$ 에 외삽

산란함수를  $Q=0$  까지 외삽하면, 원자당 산란 단면적은

$$d\sigma/d\Omega(0) = V_p^2 N_p / N (\rho_p - \rho_M)^2 \quad (13)$$

로 주어지며, 여기서  $|F_p(0)|^2 = 1$ 이다. 만약  $N_p=1$ ,  $(\rho_p - \rho_M) = \frac{Nb}{V_p}$  이라면 이 값으로부터

산란단면적  $Nb^2$ 를 얻을 수 있다. 따라서 이미 contrast 및 크기를 아는 시료에서는

$Q=0$ 에서의 산란으로부터  $N_p$ 의 값을 얻을 수 있다. 그러나 일반적으로  $V_p$ ,  $N_p$  및

$(\rho_p - \rho_M)$ 의 값들이 잘 알려지지 않은 경우에 있어서는 이들에 대한 해석을 위해서 보

다 추가적인 정보가 필요하다. 또한 생체물질에서는 매질의 산란밀도를 변화시켜가며 측

정함으로써 산란체의 산란밀도를 측정할 수 있다.

### 2. 적분된 강도

2 상 모델에서는 모든 Q값에 대해서  $d\sigma/d\Omega$  의 적분은

$$\int d\sigma/d\Omega dQ = Q(0) = 2\pi^3 c_p (1 - c_p) (\rho_p - \rho_M)^2 \quad (14)$$

로 주어지며, 여기서  $c_p = N_p V_p / V$  는 입자의 체적비이다.

### 3. Guinier의 근사[6]

입자의 모양의 입자가 무질서하게 배열되어 있는 계에서  $Qa$  의 값이 작을때의 산란 함수(여기서  $a$  는 입자의 길이차원을 표시한다)는 회전반경이라 불리는 기하학적 인자와 관계있다. 균일한 입자에서 회전반경은 다음 식으로 주어진다.

$$R_D^2 = (1/V_p) \int_{V_p} r_D^2 q(r_D) dr_D \quad (15)$$

여기서  $q(r_D)$  는 방향  $D$  에 수직하고 입자내부의 원점에서 거리  $r_D$  만큼 떨어진 입자의 교차하는 면적이다. 방향  $D$  는 입사벡터  $k_0$  에 수직한 면에 있다. 산란함수  $S(Q)$ , 여기서  $Q$  는  $k_0$ 와  $D$  에 의해서 정의되는 평면에 있으며, 다음과 같이 표현된다.

$$S(Q) = \exp(-Q^2 R_D^2)$$

무질서하게 배열되어있는 입자에 대하여 평균하면

$$S(Q) = \exp(-Q^2 R_D^2/3) \quad (16)$$

$$R_G^2 = (1/V_p) \int_V r^2 d^3r \quad (17)$$

반경  $R_s$ 의 구형입자에서 Guinier의 근사는  $R_G^2 = \sqrt{(3/5)}R_s$ 를 가진  $QR_G (< 1.2)$ 의 넓은 범위에서 타당하다. 회전타원체에 있어서 편원(oblate, 扁圓)( $v=0.24$ 까지)과 장구(prolate, 長球)( $v=1.88$ ) 양쪽에서 Guinier 근사는  $Q$ 의 높은 영역(엄밀히 산란함수의  $Q^6$ 항까지 일치한다)까지 타당하다.

### 4. Porod 근사[45]

$Q$ 가 큰 산란영역,  $Qa \gg 1$  일 때에는 표면적  $A_p$ 를 가진 날카로운 경계의 균일한 입자에 대해 다음과 같이 기술할 수 있다.

$$S(Q) \approx 2\pi A_p / (V_p^2 Q^4) \quad (18)$$

여기서  $a$  는 입자의 가장 짧은 길이차원이다.

따라서 가능하면 충분히 넓은 Q영역에서의 SANS 실험을 수행하고 식 (9-18)에 주어진 여러 가지 정보를 조합하여 데이터를 해석함으로써 모양, 크기, 분포, 구성과 희박한 농도를 가진 균일한 matrix 내에 박혀서 흩어져있는 균일한 입자의 밀도 등을 평가하는 것이 가능하다(비체적이 1% 보다 작은 경우). 그러나 입자크기의 분포가 다중으로 흩어져 있거나 농도가 희박하지 않은 계(non-dilute system)에서는 간섭효과로 인하여 종종 data 형태가 복잡하게 된다. 그림 1은 전형적인 dilute SANS 실험 데이터의 형태와 Q영역에 따라 위에 언급한 산란함수 특성을 이용하여 얻을 수 있는 정보의 개략도를 보인 것이다.

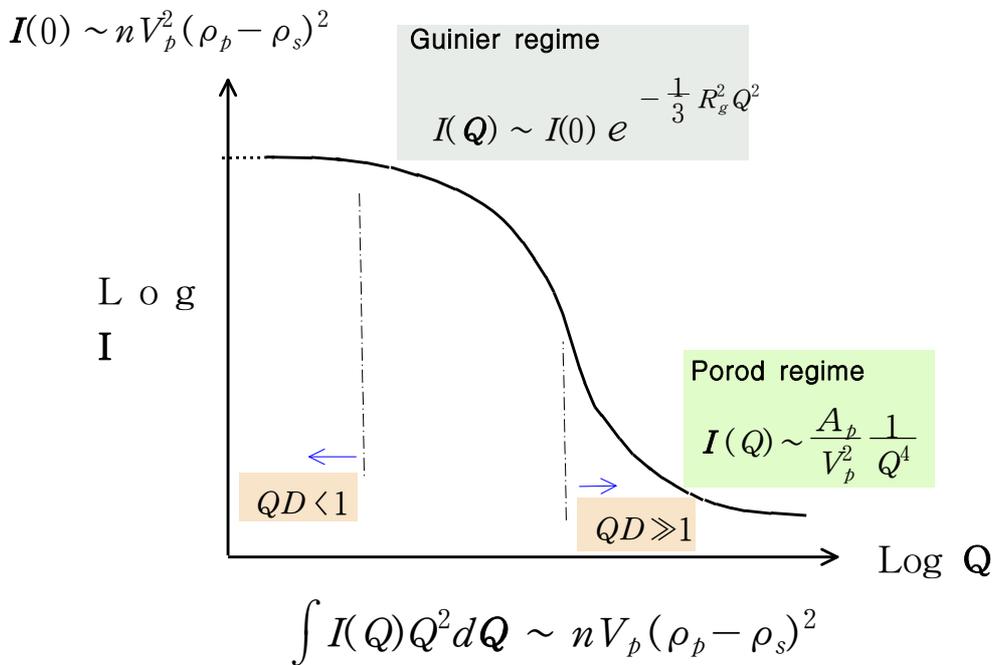


Fig. 1. General Features of Small Angle Scattering from a Dilute Particle-like Microstructure

### 제 5 절 크기분포 효과

동일하지 않은 입자에서의 산란은 만일 입자간의 간섭효과를 무시할 정도라면 간단하게 계산할 수 있다. 편향성이 없고 무질서하게 배열된 비동일 입자들의 산란함수는 다음과 같이 쓸 수 있다.

$$d\sigma/d\Omega(Q) = (1/N) \sum_{\nu} [V_{\nu}^2 N_{\nu} \Delta\rho_{\nu}^2] |F_{\nu}(Q)|^2 \quad (19)$$

여기서  $\nu$ 는 형상계수  $F_{\nu}$ 를 가진 입자의 표시이다. 그러한 입자계에서의 Guinier plot는 비구형 입자에서의 산란함수와 비슷한 곡률을 보여준다. 만일 Guinier 근사가 크기 분포에 있어서 가장 큰 입자들까지만 적용된다면, Guinier 표시에서 측정되는 산란곡선의 끝인 낮은  $Q$  값으로부터 결정되는 회전반경은 분포에 있어서 가장 큰 크기에 대응한다. 측정된 산란곡선으로부터 입자의 모양을 갖는 입자분포를 평가하는 일반적인 방법은 없으며, 합리적인 입자를 모델화해서 계산과 측정을 비교 평가하는 것이 보다 바람직하다. 구형 입자의 경우에 있어서도 넓은 입자크기 분포를 평가하는 것은 힘든 작업이다. Baur과 Gerold[108] 등은 Guinier 근사로 얻어지는  $R_G^2$  과 Porod 근사에서 얻어지는  $R_S^P$  에서 다음과 같은 상호관련성을 제시하였다.

$$R_G^2 = 3 \overline{R_S^8} / 5 \overline{R_S^6}, \quad R_S^P = \overline{R_S^3} / \overline{R_S^2}$$

여기서  $R_S$  는 입의 구형입자의 반경, bar는 크기분포의 평균을 나타낸다. 위식은 Guinier 근사식 식(16)의 전개에서  $Q^4$ 이상의 항을 무시하는 경우에 분명하며, 측정된  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  값을  $Q^2$ 의 함수로 plot 했을 때 꼭 직선임을 보여준다.

## 제 6 절 입자간 간섭효과

제 2절에서는 서술된 내용은 주로 입자들간의 간섭이 없는 경우이며, 일반적으로 시료내에 산란 입자의 체적비가 1%가 초과할 때 입자들간의 간섭효과는 중요하게 작용된다. 입자의 모양의 동일한 입자가 무질서하게 배열되어 있을 때 식 (8)은 간섭함수  $W_i(Q)$  로 나타낼 수 있다

$$d\sigma/d\Omega(Q) \propto [ \overline{|F_P(Q)|^2} - \overline{|F_P(Q)|}^2 + \overline{|F_P(Q)|}^2 W_i(Q) ] \quad (20)$$

여기서 bar는  $Q$  의 모든 방향에서의 평균을 의미하며,  $W_i(Q) [= \overline{\Psi(Q)} + 1]$ 은 간섭함수이다. 액정구조 등에서는 산란입자들간의 상호작용 포텐셜(interaction potential) 효과에 의한 열역학적 상호관계를 이 함수로부터 얻을 수 있다. 이러한 입자들간 최대 간섭효과는 SANS 곡선의 낮은  $Q$  값(일반적으로 Guinier 영역 안에 있는) 에서 현저하게 관찰되며, 구형입자들인 경우에  $\overline{|F_P(Q)|^2} = \overline{|F_P(Q)|}^2$  이므로, 산란 단면적은 다음과

같이 표시할 수 있다.

$$d\sigma/d\Omega(Q) = K_1 S_s(QR_s) W_i(Q, C_s) \quad (21)$$

여기서  $S_s(QR_s)$ 는 단일 입자의 산란함수이며,  $W_i(Q, C_s)$ 는 서로 다른 밀도  $C_s (= N_p V_p / V)$ 를 갖는 강체구에서의 간섭함수로 주어진다. 이러한 입자들간의 간섭효과를 여러 밀도값에 대한  $S_s(Q, R_s)$ ,  $W_i(Q, C_s)$ 와 그들의 곱 ( $S_s W_i$ )을  $QR_s$ 의 함수로 그림2에 나타내었다. 입자들간의 간섭 peak는 입자사이의 장거리 상호간섭이나 Guinier-Preston 영역과 같은 주기적인 밀도의 요동에 의하여 크게 영향을 받는다.

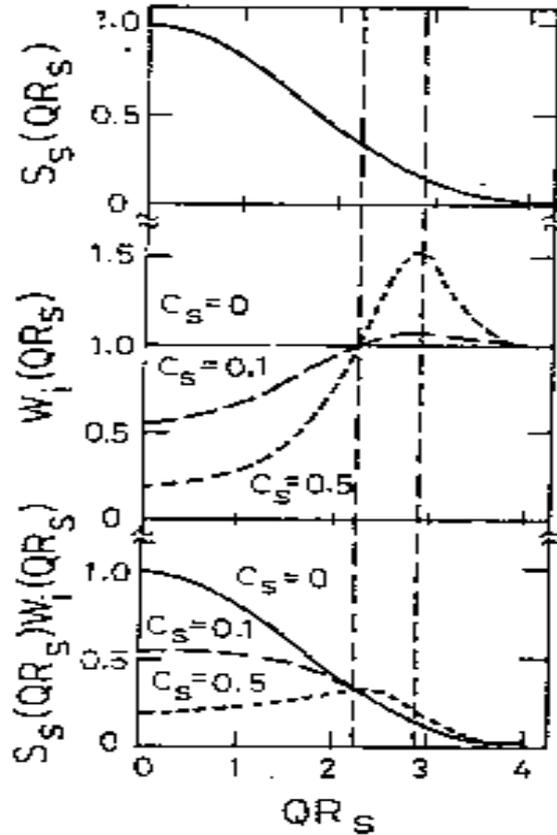


Fig.2. Plots of scattering, interference functions and their product as a function of  $QR_s$  according to the different densities.

## 제 7 절 실험 및 data 해석

중성자 소각산란 실험은 원자로에서 나오는 백색 중성자(white neutrons)를 중성자 속도 선별기(neutron velocity selector)나 이중 단결정 단색기(double crystal monochromator)를 사용하여 단색화하고, 이때 얻어진 중성자를 시료에 입사시켜 시료에서 산란된 중성자들을 2차원(또는 1차원) 위치 민감형 검출기를 이용하여 중성자 산란각의 함수로 측정하는 과정으로 이루어진다. 재료내에 큰 크기를 갖는 결함들을 보기 위해서는 낮은 Q영역에서의 실험데이터를 얻어야 한다. 즉 매우 작은 산란각에서도 신뢰할 수 있는 실험데이터를 얻기 위해서는 SANS장치의 빔 collimator에 의한 기하학적 분해능을 증가시키거나 또는 장파장을 이용하여야 한다. 그러나 아주 작은 Q 영역에서의 SANS 장치의 분해능은 장치의 기하학적 분해능이 우선하며, 보다 큰 Q 영역에서는 입사하는 중성자 파장의 분해능이 우선하므로 관찰하고자 하는 결함의 크기등을 고려하여 적절한 SANS 장치의 배치를 선정해야한다. 그림 3은 하나로 SANS 실험장치의 개략도를 나타낸 것이다. 하나로 SANS 장치는 높은 투과율 (>80%)을 갖는 중성자 속도 선별기를 이용하여 적절한 파장을 변화(4 ~ 20Å)시킬 수 있게 되어 있으며, 빔 collimator의 빔 개구와 시료와 검출기의 사이의 거리를 변화시켜 측정시 요구되는 장치 분해능과 산란강도를 얻도록 설계되었다. 이 장치로 측정할 수 있는 Q 영역은  $0.06\text{nm}^{-1} \sim 6\text{nm}^{-1}$ 로서 물질내의 불균일성의 크기가 1 ~ 100nm인 미시구조를 관찰 할 수 있다. 표1은 하나로 SANS 장치에서 다양한 배치에서 얻을 수 있는 분해능 및 시료위치에서의 중성자 속을 평가하여 요약한 것이다.

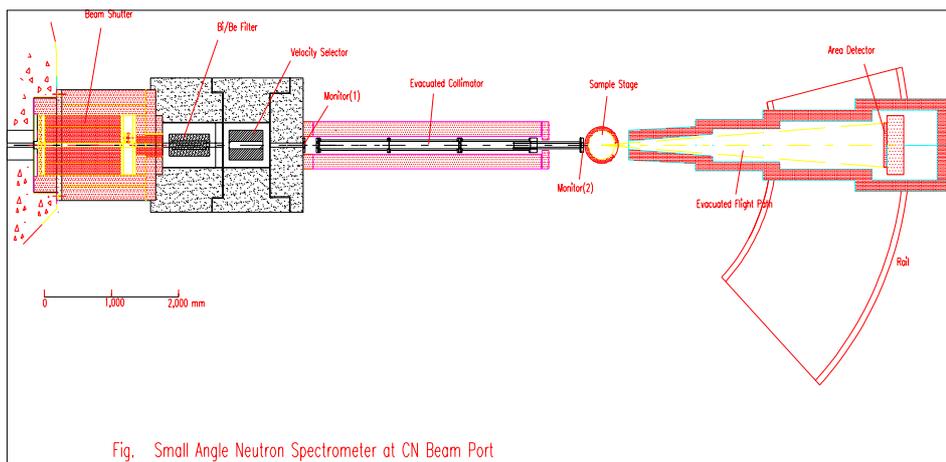


Fig. 3 Schematic sketch of neutron small-angle scattering equipment

Table 1. The Q range(with the beam centered on the detector), resolution, and neutron flux and current at the sample for the several configurations of HANARO SANS instrument with area detector of resolution  $\Delta_D = 5\text{mm}$ .

$D_1$ (mm)	$D_2$ (mm)	$L_1$ (m)	$L_2$ (m)	$\lambda$ range (Å)	Q range <sup>a)</sup> (Å <sup>-1</sup> )	$\sigma_Q$ at minimum Q(Å <sup>-1</sup> )	Neutron flux (n/cm <sup>2</sup> sec)	Neutron current (n/sec)
32	16	4.25	2.0	4.5~7.5	0.011 - 0.21	0.0033	1.1~6.3x10 <sup>5</sup>	2.3~12.0x10 <sup>5</sup>
32	16	4.25	4.25	4.5~7.0	0.0078- 0.10	0.0025	1.1~63.0x10 <sup>5</sup>	2.3~12.0x10 <sup>5</sup>
24	12	4.25	4.25	4.5~7.0	0.0060- 0.10	0.0019	6.6~35.0x10 <sup>4</sup>	7.5~40 x10 <sup>4</sup>
16	8	4.25	4.25	4.5~7.0	0.0044- 0.10	0.0015	2.9~15 x10 <sup>4</sup>	1.4~8.0x10 <sup>4</sup>

a) Estimated at detector resolution  $\Delta_D = 5\text{mm}$

SANS 실험에서는 앞서 언급한바와 같이 보고자 하는 재료의 불균일성의 크기에 따라 적절한 장치 분해능을 선정된 후 측정을 수행하여야 하며 보다 정밀한 해석을 위해서는 측정시에 물질구조의 이론적 근거를 바탕으로 직.간접적으로 실험데이터에 부가되는 인자들에 대한 정밀한 보정이 요구된다. 예를 들어 각 중성자 검출기 소자의 불균일성에 의한 각 세포(cell)들에 대한 불균일성, 계측 시스템의 본질성에 기인하는 전기적 잡음, 주변의 구조적인 원인에 의한 잡음들이 존재하며, 이러한 경우에는 일반적으로 비탄성 시료 또는 Cd 등과 같은 강력한 흡수재 시료를 이용하여 이들의 효과를 보정한다.

일반적인 SANS 측정은 위와 같은 원인에 의한 기여를 보정하기 위해서 기본적으로 다음의 3가지의 측정을 요구한다.

- (a)  $I_S(Q)$  : 용기 속에 있는 시편으로부터 산란된 강도
- (b)  $I_C(Q)$  : 빈 용기에서 산란된 강도
- (c)  $I_{BB}(Q)$ : 빔 서터 위치에 강력한 중성자 흡수재 카드뮴 판을 놓고 측정된 background 강도

용기를 필요로 하지 않는 시편에서는 두 번째 측정(b)은 시료가 장전되지 않은 open beam background에 의해 대치될 수 있다.

데이터 해석에는 시료( $T_S$ )과 빈 용기( $T_C$ )에서의 투과인자(transmission factor)를 보정해야 한다. 이들은 입사빔 방향  $2\theta_0 = 0$  에서의 시료 또는 용기가 있는 경우 또는 없는 경우의 측정 강도를 비교하여 실험적으로 결정할 수 있다. 일반적으로 면적 검출기가 사용될 때에는 직선 중성자 빔에 의한 과도한 계수들로 발생하는 불감시간(dead time)의 수정과 과도한 노출에 의한 검출기의 손상을 방지하기 위하여 중성자 빔 흡수체를 원점 앞에 놓여야 한다. 흡수체는 입사 빔의 기하학적인 그림자를 충분히 흡수할 만큼 큰 것을 설치하며, 측정 강도는 검출기의 중심 세포(cell)나 중심 세포 주위의 일정영역에서의 데이터를 합산하여 사용한다. 이 측정에는 얇은 시료의 경우에는 흡수와 비간섭성 산란에 의한 감소 효과를, 두꺼운 시료의 경우에는 다중 산란 효과를 특히 고려하여야 하며, 사전에 시료의 비간섭성 산란효과를 계산하거나 또는 중성자 투과율이 70%이상 되도록 시료의 두께를 만들어 이들에 대한 실험 오차를 최소화하도록 노력해야 한다.

위와 같은 인자들을 모두 고려할 때 시료 또는 용기에 의해서 측정된 산란강도는 다음과 같이 얻을 수 있다.

$$I_S(Q) = I_S^T(Q) \cdot T_S + B(Q) \cdot T_S + I_{BB}(Q)$$

$$I_C(Q) = I_C^T(Q) \cdot T_C + B(Q) \cdot T_C + I_{BB}(Q)$$

여기서  $I_S^T(Q)$ 는 시편과 용기로부터 나온 진신호(true scattered signal) 이고  $I_C^T(Q)$ 는 빈 용기로부터 나온 신호이다. 또한 공기와 다른 background원에 의한 산란  $B(Q)$  효과를 고려한 background 산란강도는  $I_{B0}(Q) = I_{BB}(Q) + B(Q)$ 로 주어진다.

위의 관계식으로부터 묶은 용액속에 있는 생물학적 시료의 경우에는 용기와 용매의 합으로부터 측정되므로 순수한 시료에 의한 산란 강도는 다음과 같이 주어진다.

$$I_S^T(Q) - I_C^T(Q) = [[I_S(Q) - I_{BB}(Q)]/T_S - [[I_C(Q) - I_{BB}(Q)]/T_C] \quad (23)$$

또한 용기가 필요 없는 금속학적 시료의 경우에는

$$I_S^T(Q) = [[I_S(Q) - I_{BB}(Q)]/T_S] - [[I_{B0}(Q) - I_{BB}(Q)]/T_C] \quad (24)$$

$$\approx [[I_S(Q)/T_S] - I_{B0}(Q)$$

이 된다.

따라서 이와 같은 측정 결과로부터 시료에 대한 미시구조를 해석하기 위해서는 앞서 기술한 Guinier 근사법, Porod 근사법, Zero각 산란 외삽법, 입자간 상관 함수등 다양한 소각산란 함수의 특성을 이용하여 시료의 크기, 분포, 밀도, 상호작용 등의 상세한 정보를 얻을 수 있다. 그러나 보다 신뢰할 수 있는 정보를 얻기 위해서는 보다 정밀한 실험이 요구된다. 위에서 언급한 바와 같이 금속시료인 경우에는 시료의 70% 이상의 투과율을 갖도록 시료두께를 선택해야 하며, 생물학적 시료가 물속에 희석되어있는 경우에는 투과율이 통상적으로 50% 정도로 되도록 하여야 한다. 그리고 시료의 투과율 측정시에 측정 오차를 유발하는 비간섭성 산란에 의한 감쇄효과를 예측할 수 있어야 한다. 예를 들어 비간섭성 산란효과를 무시할 수 있는 시료로서의 전형적인 두께는 H<sub>2</sub>O의 경우 1 mm, D<sub>2</sub>O의 경우 10 mm 정도로 알려져 있다.

### 1. 절대산란강도 보정 및 규격화

시료로부터 얻은 산란 강도인  $I_s(Q)$ 는 매초당 셀(cell)의 카운트 수로 표현할 수 있으며 시료의 macroscopic cross section,  $d\Sigma/d\Omega$ 과는 다음의 식(25)로 표현된다.

$$I_s(Q) = \Phi_s A_s d_s T_{s+c} \frac{d\Sigma}{d\Omega} \Delta\Omega_d \epsilon_d \quad (25)$$

여기서  $Q = (4\pi/\lambda)\sin(\theta)$ 이며  $\Phi_s$ 는 시료위치에서의 flux,  $A_s$ 는 시료 면적,  $d_s$ 는 시료 두께,  $\epsilon_d$ 는 절대 검출기 효율, 그리고  $\Delta\Omega_d$ 는 시료에서 검출기 각 셀(cell)을 보는 solid angle을 나타낸다. 시료의 절대 cross section 값을 얻기 위해서는 같은 실험 조건하에서 표준(std 아래첨자 표시) 시료를 이용하여 아래와 같은 식을 이용한 기기 요소(instrumental factor)를 보정해주어야 한다.

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega} = \frac{I_s(Q)}{I_{std}(0)} \frac{d_{std}}{d_s} \frac{T_{std}}{T_{s+c}} \frac{d\Sigma_{std}(0)}{d\Omega} \quad (26)$$

보통 표준 시료는 강한 정방향 산란을 가지고 있는 물질을 사용하며 이 결과로부터 쉽게 Guinier법칙을 이용하여 산란 벡터가 0일 때의 세기를 구해 낸다. 일반적으로 표준 시료의 cross section이 알려져 있다고 가정할 수는 없으나 기기 요소와 함께 측정하여 결정할 수 있다. 따라서 검출기에 대한 solid angle만 계산하면 절대강도를 결정할 수 있게 된다. 이런 과정을 통해 얻을 수 있는 오차는 약 5-10%정도 이내로 결정된다.

여러 가지 표준시료는 SANS 장치 배열에 따른 분해능 및 산란강도에 따라 여러 가

지를 사용할 수 있다. 한 예로 물로부터 나오는 isotropic incoherent scattering은 절대 산란 강도를 검정하는 물질로 사용될 수 있으나, 이는 일차적인 표준시료를 보완하는 2차 표준시료로 간주된다. 따라서 물의 cross section을 구하기 위해서는 표준 1차 시료를 이용하여 이를 정확히 검정하여야 한다. 또한 1mm 물 cell에 의한 산란을 이용하여 다중 산란과 비탄성 산란에 대한 가능성에 대한 검정과 과장 의존도를 확인해야 한다.

## 제 3 장 SANS의 재료과학 응용

### 제 1 절 SANS를 이용한 재료의 상(phase)분리 연구

급냉 공정이나 다른 비평형 기술로 만들어진 비정질합금은 그들의 조성과 냉각조건에 의해 종종 100nm 이하의 크기로 분산된 새로운 상을 형성하는 경향이 있다. 만일 이러한 상 변화가 확산으로 조절된다면(diffusion controlled) 서로 다른 상들이 frozen in 될 수 있으며 이것들은 산란기법으로 분석할 수 있다. 또는 상 변태에 대한 시간 범위가 허용된다면 in-beam 기술로 운동학적(kinetic) 연구도 수행할 수 있다. Guinier[7] 는 처음으로 Al 합금에서의 상 분리에 SAS를 적용하였다. 그는 SAXS를 사용하여 Al 합금에서 석출경화의 첫 단계로서 매우 작은 간섭성의 석출물(Guinier preston zone)을 발견하였다. 그 이후로 SAS 는 많은 합금에서의 분해 과정을 조사하는데 사용되고 있다. 이 연구의 주요한 목적중의 하나는 어떻게 상 분해가 시작되는가를 이해하는 것이다.

#### 1. 비정질 합금

제조공정들을 조절하면 합금들은 비정질상태로 제조될 수 있으며 이 비정질 합금들은 새롭고 유용한 성질들을 제공한다. 이러한 성질들은 비정질 합금이 기본적으로 더 균질하고 등방적인 구조(grain 경계와 결정의 anisotropy가 없음)를 갖고 있기에 나타나며 SANS는 이러한 물질들의 균질성과 안정성을 평가할 수 있는 도구이다[8]. 대부분의 금속성 glass들은 용액으로부터 급격히 냉각시키든가 스퍼터링으로 제조된다. 제조공정의 특성으로 금속성 glass는 두께가 얇고(약 10-50 $\mu$ m) 표면 결함(거칠음, 산화막등)이 시료의 나머지 bulk부분보다 더 많은 상태로 제조되며 SANS 분석 결과에도 영향을 준다. Rodmacq등은[9] 급냉한 상태와 기계적으로 연마하거나 화학적으로 부식시킨(etching) 비정질 Pd<sub>80</sub>Si<sub>20</sub> 합금의 결과를 비교하였는데 SANS 세기는 열배이상 변화하였으며 표면처리(surface treatment) 정도에 따라 증가하였다. 시료와 그 주변과의 contrast를 변화시키기 위한 CH<sub>3</sub>OH-CD<sub>3</sub>OD 혼합체내에서 시료의 침투실험 결과에서도 급냉시킨 것과 표면 처리한 것은 서로 다른 결과를 보였으며, 이로부터 bulk와 표면사이의 거칠기, 배합물의 차이에 대한 SANS의 기여가 다른 것이 확인되었다.

자성시료에 대해서 SANS의 산란강도는 자구(magnetic domain)들과 시료의 불균질성에 의해 큰 영향을 받는다. Janot과 George는[10] 비정질 Fe<sub>70</sub>Cr<sub>5</sub>P<sub>15</sub>C<sub>10</sub> 합금에 대한

SANS 실험에서 산란각도의 98% 정도가 자기적 결함과 관련이 있다는 사실을 보였다. 그러므로 자성재료에 대한 SANS 측정시 여러 가지 영향들을 분리하기 위해서는 침투 (immersion)와 더불어 자기장을 가하는(application of magnetic field) 조건에서의 측정이 요구된다. Dubois등[11]은 as-received 그리고 열처리한  $Al_{70}Si_{17}Fe_{13}$  시료의 SANS 와 large-angle neutron diffraction 측정을 하였는데, 연구한 모든 경우에서 회전반경(radius of gyration)의 불변으로부터 시료의 초기 구조는 불균질 하였으며 강한 화학적 정렬도 (chemical order)를 가진 비정질상과 거의 순수한 Al영역으로 이루어져있다고 보고하였다. 초기에 Al 원자는 비이상적인(non ideal)위치에서 안정되어있었으며, 시료를 가열함에 따라 면심입방 Al의 Bragg peak들이 관측되었고 성분변화나 Al 영역의 성장은 없었다.

Rhyne등[12] 비정질  $Fe_{91}Zr_9$ 의 자기적 성질을 bulk의 자화측정과 SANS로 조사하였는데 그 결과는 많은 논의를 유발시켰다. SANS 측정결과 모든 온도에서 유한한 cluster 크기를 가짐을 알 수 있었다(그림 4). 스핀의 상관길이(correlation length)  $\xi$ 는 120K 이상에서는 Lorentzian Q 의존성으로부터, 120K 아래에서는 Lorentzian squared 의존성으로부터 유도하였다.(여기서  $Q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}$  이며,  $\theta$  는 산란각의 반,  $\lambda$  는 입사파장이다.) 200K 와 400K 사이에서 상관길이  $\xi$ 가 유한하며 상수인 것은 이 물질이 통상적인 강자성체가 아니라는 증거이지만 전형적인 re-entrant spin glass의 특징을 보여준다.

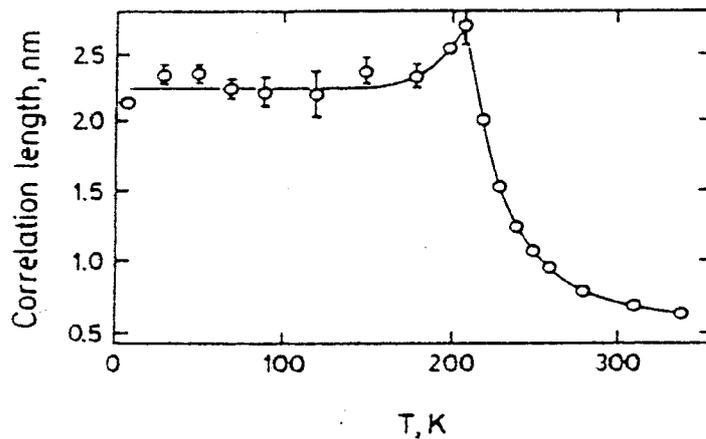


Fig. 4 Spin-correlation length in amorphous  $Fe_{91}Zr_9$  as a function of temperature derived from SANS measurements.(After Rhyne and Fish [12])

## 2. 합금에서의 상 분리

결정격자 내에서 상분해(간섭성 석출)의 초기단계에 대해서 두 가지 기구로 설명되고 있다. 스피노이달 온도,  $T_S$  라고 알려진 어떤 온도 이상에서(이때 Gibbs 자유에너지  $G$ 의 이차도함수가 양이다) 과포화된 고용체는 준안정 상태이므로 핵생성과 성장과정에 의하여 상분해가 일어난다.  $T_S$  아래에서는  $G$ 의 이차도함수가 음이 되므로 불안정한 고용체가되어 스피노이달 분해에 의하여 즉시 분리된다. 이는 임계값을 초과하는 과장을 가진 농도 요동진폭의 성장에 의하여 일어난다. 이상 Al-Zn 합금에서는 분해기구의 연구에서 흥미 있는 예들이 제시되었고 폭넓게 조사되었다[13-15]. 이 결과들은 온도가 증가할수록 ( $T > T_S$ ) 핵 생성과 성장과정에 의하여 분해가 진행되고, 반면 스피노이달 분해는 낮은 온도에서 일어난다고 하였다. 예를 들어 Al-6%Zn에서 한 기구에서 다른 기구로 이동하는데 자기 감수율, 전기저항, SAXS 와 SANS 의 측정 결과에 기반을 두고  $129 \pm 2$  °C 의 온도가 제시되었다.

시효시간의 함수로서 SANS 측정을 하면 분해의 동역학과 그것이 소둔 온도, 냉각률, 시효온도, 구성 등에 의존하는 정보를 알 수 있다. 스피노이달 분해의 초기단계에서 운동학에 대한 해석적인 분석은 Cahn[16]에 의하여 처음 제시되었다. Cahn의 선형이론에 의하면 성장률은 과장이 임계 과장의  $\sqrt{2}$  배일 때 최대가 된다. 특히 이 이론에 의하면 강도  $I(Q)$ 는 농도요동진폭에 비례하고 점  $Q = 2\pi/\Lambda_C$ (여기서 강도는 시간에 따라 변하지 않는다.) 일 때 0이 된다.

한편 Marro 등은[17] 뒤의 단계에서 시효시간  $t$  후의 산란함수  $S(q,t)$ 는 동적척도 거동을 따른다고 하였다.

$$S(q, t) = [q_1(t)]^{-3} \cdot F(q/q_1(t)) \quad (27)$$

여기서 척도함수  $F$ 는 시간에 무관하다. 그리고 특성 파수벡터  $q_1(S(q))$ (첫째능률)은 다음의 식에 따라 cluster 크기의 수승에 역비례 한다.

$$q_1(t) \propto t^{-\alpha}$$

이러한 척도거동은 액체 혼합물과 이원합금의 상분리 과정에서 관찰된다. 또한 뒤의 단계에서  $S(q, t)$ 는 큰  $q$ 에서  $q^{-4}$ 에 의존하며(Porod의 법칙), 석출물은 matrix와 명확한 경계를 가진다. 최근에  $Al_{93}Zn_7$  과  $Fe_{60}Cr_{40}$  합금에서 분리의 운동학은 pulse 중성자원을 사용한 SANS를 사용하여 폭넓게 조사되었는데[18], 두 단계의 분리가 관찰

되었다. 운동척도거동과 Porod의 법칙은 그림 5에 표시된 것처럼 초기단계에서는 성립하지 않고 뒤의 단계에서 성립한다. 그리고 높은  $q$  에서  $q^{-2}$  에 의존한다. 이 거동은 스피노이달 분해의 비선형 이론을 사용하여 잘 기술될 수 있다[19]. 따라서 석출물은 뒤의 단계에서 matrix 와 명확한 경계를 가지며, 반면 초기 단계에서 석출물은 아직 구성적 요동의 형태를 가진다.

### 3. 합금에서의 석출물 조사

Raynal, Schelten과 Schmatz등은[14] 전 석출물(pre-precipitate)을 가진 거의 동일하게 준비된 Al-Zn 시료에서 X-선과 중성자에 의한 산란을 비교하였다. X-선에 의한 결과와는 달리 중성자는 작은 산란각에 접근함에 따라 산란강도가 급격하게 감소하였다. (그림6)  $q \rightarrow 0$ 에서 산란 단면적은 무질서한 분포에서 기대값과는 달리 0.03 배이다. 많은 석출물을 포함하기에 충분할 정도로 석출물의 가운데에 반경  $R$ 인 구를 가정할 때 무질서한 분포에서 구의 중심이 임의의 위치에 있을 때와 비교하여 이 구에는 석출물의 엄격한 여분이 있다, 관측된 값 0.03 은 이 여분이 0.03 이라는 것을 의미한다. 결과적으로 높은 차수의 기하학적인 질서가 존재하며 절대적인 적분강도, 회전반경과 최대위치는 농도 범위 3.4에서 15% 까지 X-선과 중성자 산란이 잘 일치하고 있다.

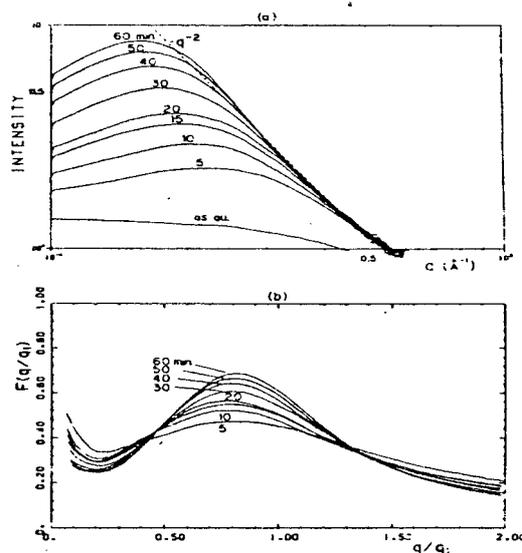


Fig. 5(a,b).  $Fe_{60}Cr_{40}$  :  $T_a=515^\circ C$ , at the early stage of decomposition. (a)

Log-log plot. (b) Scaled function  $[F(q/q_1) = q_1^3 S(q, t)]$  [18]

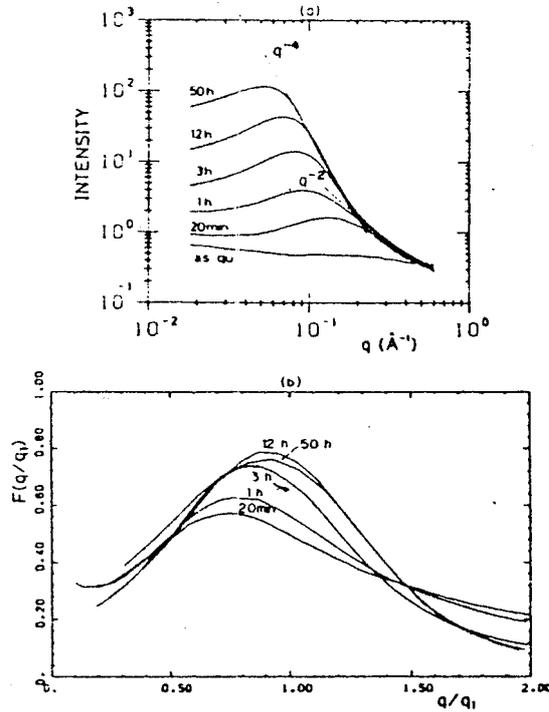


Fig. 5(c,d).  $Fe_{60}Cr_{40}$  :  $T_a=540^\circ C$ , at the late stage of decomposition. (a)

Log-log plot. (b) Scaled function [  $F(q/q_1) = q_1^3 S(q, t)$  ] [17]

절대강도의 비교에서는 석출물에 의하여 야기된 격자 비틀림을 고려하여야 한다. 여기서 대응하는 수정(correction)은 산란길이의 비에 의존한다. Al-Zn 합금에서는 석출물에서 12%의 원자부피가 줄어들면 X-선과 중성자의 산란단면적의 비는 14%가 차이가 난다. 탄성적으로 이방성인 주 격자에서, 격자 비틀림에 기인한 소각산란의 수정은 산란 벡터의 정렬에 의존한다. 점 결합에서 논의되는 이론은 이 경우에 직접 적용될 수 있다 [20-23]  $Al_{0.88}Zn_{0.12}$  합금의 중성자 반응에서 (transmutation) Clark 와 Mardon은[23] 이 합금의 석출과정이 단파장의 스피노이달 분해로 결론지었다.  $Al_{0.87}Mg_{0.43}$ 에서 Guinier Preston 영역에서 소각중성자산란은 Roth Roynal에 의하여 관찰되었다[24]. 현재까지는 이 합금계에서 성공적인 X-선 산란에 대하여는 보고된 바 없다. 3원계  $Al_{1-3x}Zn_{2x}Mg_x$ 에서 X-선과 중성자 산란을 결합한 연구는 Gerold와 협력그룹에 의하여 시작되어 X-선에 서 Al과 Mg, 중성자에서 Zn과 Mg는 거의 같은 산란 길이를 가지는 것으로 보고되었다.

이 결과로부터 석출물과 모재에서 Zn, Al 과 Mg 의 상대적인 비를 결정할 수 있다[25].

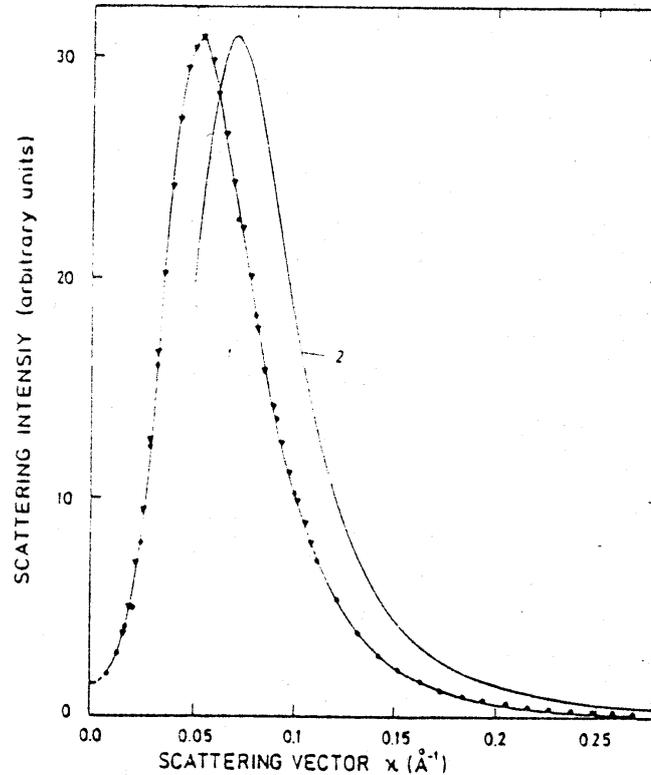


Fig. 6 Neutron(1) and X-ray(2) small-angle scattering intensity due to precipitates in an  $Al_{0.91}Zn_{0.09}$  alloy.[13] The ordinate scale is different for X-ray and neutron data.

## 제 2 절 SANS를 이용한 전위밀도 연구

냉간 가공된 금속에 X-선 산란에 의하여 관찰되는 전위밀도는 vacancy 집합체에 의한 산란으로 인하여 실제보다 훨씬 크게 나타난다. Beeman 그룹의[26] 연구에 의하여 이것은 이중 Bragg 산란 때문인 것으로 알려졌다. Atkinson 과 Lowde 등은[27] 긴 파장의 중성자를 사용함으로써 2중 Bragg 산란을 피할 수 있으며, 전위에 의한 약한 밀도의 변화로부터 나타나는 강도를 측정할 수 있다고 보고하였다. Seeger 와 Kroner는[28] 탄성이고 등방적인 매질에서 선형탄성이론을 사용하여 고립된 전위선으로부터 나타나는 산란 진폭을 유도하였다. 강자성 물질에서는 전위에 의한 탄성장은 자기탄성 결합에 의하여 자화의 요동을 가져온다. 길이 L인 직선전위에 의한 자기산란 단면적은 Kronmuller 등에 의하여 유도되었다[29].

그림 7은 단결정과 다결정에서 중성자 산란에 의하여 전위밀도를 결정하는 것을 보여준다. 그림 8에서 보듯이 자기산란(magnetic scattering)에서 비등방성은  $\sin^2\theta$  항에 의하여 결정된다. 일정한  $Q$  값에서 강도는 그림 9에서처럼  $\theta$ 와  $\phi$ 의 함수로 주어진다. 즉 A 축 주위로 결정을 회전시켜  $\phi$ 를 변화시킬 수 있다.

피로된 시편에서 SANS를 기술적으로 적용할 수 있다. Trenzinger[30]와 Schonauer[31]는 많은 하중 cycle을 가진 시료에서 산란강도의 증가를 관찰하였다. Pizzi와 Walter등은[32] 터빈 블레이드를 연구하여 가동시간에 따라 산란강도가 증가하는 것을 발견하였다. 중성자는 두꺼운 시료를 투과하기 때문에 산란 parameter와 피로정도 사이의 잘 확립된 관계를 재료의 비파괴 탐색에 이용할 수 있다.

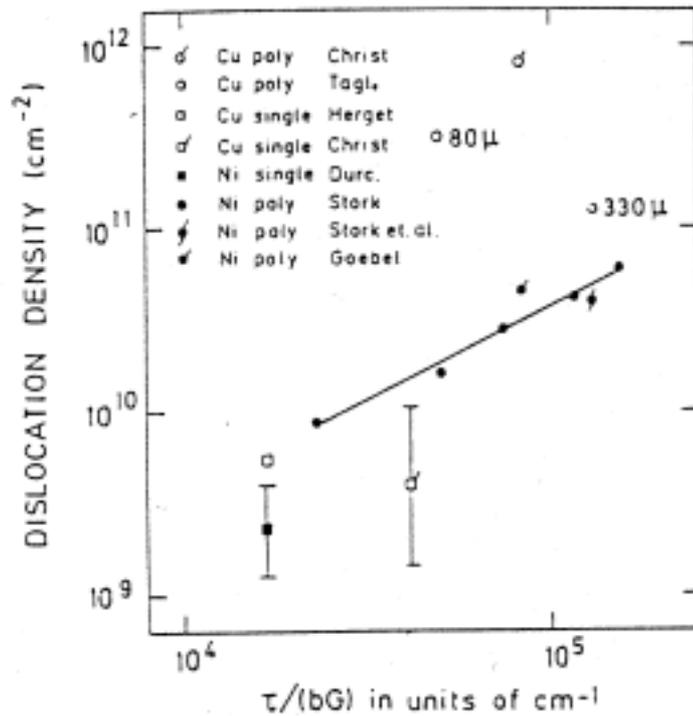


Fig. 7 Dislocation densities in single and polycrystals determined by neutron scattering *vs.*  $\tau/(bG)$ .  $\tau$  is the shear stress,  $b$  the Burgers vector and  $G$  the shear modulus (Christ, 1964; Taglauer, 1968; Herget, 1968, 1968; Durcansky, 1970; Stork, 1967; Stork, Christ & Schmatz, 1965; Gobel, 1966). t two points the grain sizes (80 and 330  $\mu\text{m}$ ) are quoted.

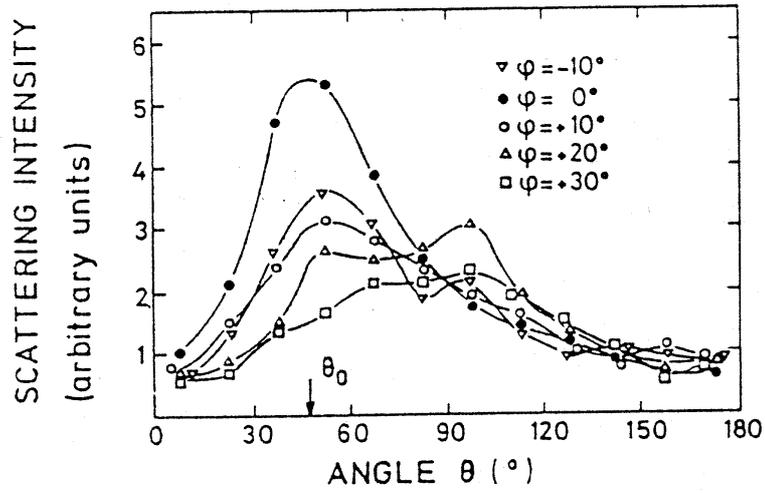


Fig. 8 Anisotropic magnetic small-angle scattering from a cold-worked Ni single crystal for fixed Q, The angle  $\theta$  and  $\phi$  are explained in Fig. 8.(Durcansky, 1970)

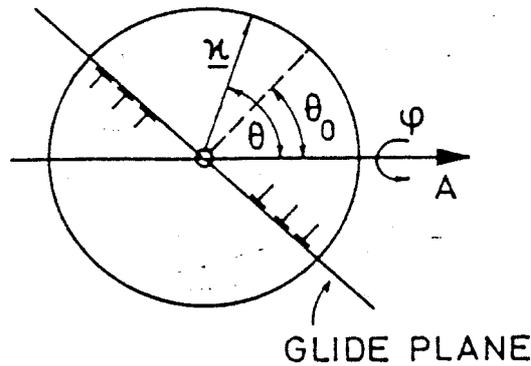


Fig. 9 Scattering Geometry with the angle  $\theta$  and  $\phi$  used in Fig. 8.  $\phi=0$  is shown, The incident wave vector is perpendicular to the plane of the drawing. The crystal is rotated around the axis A, which was chosen parallel to the magnetic field.

### 제 3 절 SANS를 이용한 상용합금의 미세구조 연구

#### 1. 개 요

상용합금들의 기계적, 화학적 그리고 자기적 성질은 그것들의 미세조직 특히 석출물

의 분포와 밀접한 관계가 있다. SANS는 비파괴적인 방법으로 이러한 석출물에 대한 정보를 알려준다. 그러나 둘 이상의 서로 다른 크기와 종류의 석출물들은 기술적인 열처리를 통해 의도적으로 만들어지므로 정확한 결과를 얻기 위해서 SANS 측정과 함께 TEM 분석과 같은 보충적인 정보들이 필요하다. 이론적으로 석출물의 크기분포는 TEM보다 SANS로 더 쉽게 얻을 수 있지만 SANS로 Al-Mg-Si 합금내의  $Mg_2Si$  석출물의 크기분포를 계산한 결과 넓은  $Q$  범위에 대해 다른 산란물질로부터 간섭이 없는 우수한 통계분포를 얻을 수 없다는 것이 보고되었다[32-33]. Fatemi등은[34] morphology가 다른 석출물이 존재할 때 SANS 분석의 문제점을 조사하였다. 그는 Ti-11.9Mo-6.0Zr-4.5Sn-0.15O<sub>2</sub> 내의  $\eta$ -phase 석출물에 대한 연구에서 SANS와 TEM 결과를 비교하여 타원체모양의 입자들 이외에 아주 높은 농도의 막대모양(rod shaped) 그리고 spindle 모양의 석출물이 관측되는 것을 보고하였다.

최근들어 SANS가 가장 자주 적용되는 두가지 중요한 합금계는 철(steel)계[36 - 40] Ni base 합금[41 - 44]이다. Boeuf등은 SANS를 이용하여 AISI 340 stainless steel내의  $M_{23}C_6$ (M=Fe,Cr)의 성장과 크기분포를 결정하고 TEM의 결과와 비교하였는데 bimodal 크기분포의 경우에서도 TEM 결과와 잘 일치하는 결과를 얻었다[38,39] 측정온도에서 magnetic phase를 가지는 합금에서는 magnetic 산란효과가 고려되어야만 한다. Magnetic 산란효과를 고려하여야만 contrast를 향상시킬 수 있고 자기장을 인가하여 서로 다른 석출물을 구분하는데 이용될 수 있으며 Bloch wall에 의한 굴절효과를 피할 수 있다[38,45]. Windsor등은[37] maraging steel(Fe-18Ni-13Co-3, 7Mo-1.5Ti, +Al,Cr,C)에서  $Ni_3Mo$ 인 것으로 추측되는 석출물의 성장을 관측하였고 이것의 직경이 10nm 보다 작을 때 경도가 가장 큰 것으로 보고하였다. 그림 10은 등시간적으로 시효된(isochronal aged) maraging steel에 대한 석출물의 크기와 부피분율 측정 결과이다. 약 480°C 이하에서 입자의 크기는 아주 작게 유지되었으며 부피분율(volume fraction)은 약 10%였고 입자간의 간섭 peak이 관측되었다. 부피 분율이 10%인 것은 거의 모든 Mo가  $Ni_3Mo$ 상에 석출되었다는 것을 의미한다.

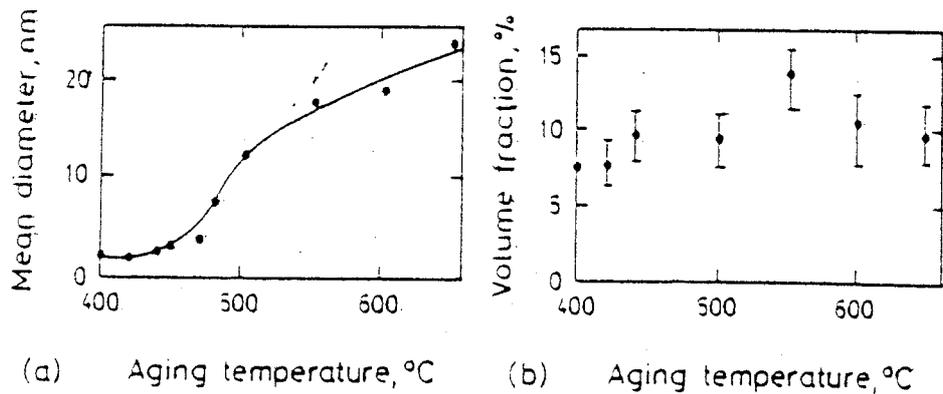


Fig. 10 Mean precipitate diameter (a) and volume fraction (b) for maraging steel aged for ten hours at temperature from 400 to 600°C (after Windsor et al.[37])

## 2. Magnetic Alloys

Diffuse scattering과 더불어 small-angle scattering을 이용한 자기합금에 대한 많은 실험적 연구가 수행되어왔다. 자기합금들은 미세조직의 영향으로 여러 가지 자화 특성을 나타내게 된다. 예를 들어 Pd host에 Fe불순물을 치환하면 host matrix내에 약 200개의 원자로 둘러싸인 자기moment가 유도된다[46]. 또한 Ni나 Fe안에 V나 Cr과 같은 불순물을 치환하면 10 내지 20개의 이웃원자들의 자화가 영향을 받게된다[47].  $Cu_{0.8}Ni_{0.2}$ 나 [48,49]  $Fe_{0.65}Ni_{0.35}$ 등과[50] 같은 높은 농도의 합금에서는, 비록 두 성분들이 random하게 분포된 것으로 추측되지만, 자화의 장과장 요동(fluctuation)이 관측되었다.  $Fe_{0.65}Ni_{0.35}$ 합금에 대한 산란은 약 100개의 원자들의 cell내의 자화의 cooperative breakdown에 기인하는 것으로 설명할 수 있다. 이는 국소적인 농도의 fluctuation의 결과로[51] breakdown은 Ni의 농도가 26%이하일 때 발생하는 것으로 사료된다. 이러한 cooperative 현상은 novel metal에서 3d 원소의 solution과 같은 spin glass 에서도 나타날 것으로 예상되며 이에 관한 neutron scattering연구도 현재 진행중이다.

자화의 장과장 fluctuation은 석출물 혹은 부분적으로 정렬된 영역을 가진 계에서 관측되었다. Maier는[52] Ti, Co, Ni, Al등으로 이루어진 hard magnetic 합금(Ticonal X)을 연구하였다. 이 합금내에 주기적인 사각형 단면을 가진 막대모양의 석출물을 사각격자로 형성시키고 막대는 막대의 축방향으로 자화시켰다. 이때 자기유도  $B$  에 수직인 산란벡터  $Q$  로 산란실험을 하여 자화된 그리고 자화되지 않은 상태에 대한 2차원 상관함수

(correlation function)  $\langle M_z(0)M_z(r) \rangle$  을  $|\tilde{M}^+|^2$  으로부터 유추하였다(그림 11). 여기서  $\tilde{M}$  는 국소자화  $M(r)$  의 Fourier 변환이고  $\tilde{M}^+$  는  $M(r)$  의 산란벡터  $Q$  에 수직인 성분이다. 자화되지 않은 시료에서의 자기상관함수(self-correlation function)는 단일 석출물에 대해 예상되는 결과와 거의 동일한 결과를 얻었다. 이로부터 자화는 random하게 막대와 평행하거나 반 평행한 방향이라는 사실을 알 수 있었다. 이는 비자화 상태에서 나란한 자화를 가진 bundle model과는 대조된다.

$\text{Cu}_{1-x}\text{Co}_x$  단결정( $x \approx 0.01$ )은 평균크기 100~1000Å 정도의 강자성 석출물을 가지고 있다. 이 물질에 대한 자기산란(magnetic scattering) 실험으로부터 많은 연구결과가 도출되었다[53]. 초기상태의 석출물( $\approx$ 반경 300Å)에 대한 핵, 자기산란 실험으로는 같은 회전반경(radius of gyration)을 가짐이 관측되었다. 특히 핵산란의 자기산란에 대한 비는 Co 석출물내의 균일한 자화에 대한 계산결과와 일치하였다. 자화 곡선에는 hysteresis가 관측되었으나 자기산란에서는 관측되지 않았다. 이는 결정대칭에 의한 이방성을 배제하고 형상이방성(shape anisotropy)을 선호한다는 뜻이며 그림 12에 도식적으로 표현하였다. 큰 입자에서는 외부 field가 영일 때 자기산란에 대한 핵산란의 비는  $Q$  에 강하게 의존한다(그림 13). 이는 석출물내이 자화는 비균질하다는 것을 의미하며 그림 13의 내부 그림은 실험적인 관측결과와 일치하는 배열을 보여준다.

부분적으로 정렬된 다결정  $\text{Ni}_3\text{Mn}$ 합금의 small-angle scattering을 관측하였는데 [54,55] 자기 산란이 정렬된 합금의 Curie온도(710K)에서 사라지므로 magnetic 이라 추정된다. 자기산란은 1:10의 축비로 늘어난 자기영역으로 설명할 수 있는데 그 영역들은 약 1,500개의 원자들로 되어있다. 이 scattering의 인가 자기장과 산란벡터  $Q$  의 방향에 대한 의존성은 아주 작았다. 이는 자화는 위에서 설명한 자기영역의 늘어난 축에 구속되어 있다는 뜻이다. 저온 측정에서도 matrix로부터의 자기산란을 볼 수 있었다. 높은 field에 대해서는 matrix가 균일하게 자화되므로 자기산란은 사라졌다. 산란실험으로부터 유추할 수 있듯이 외부 field가 영일 때는 늘어난 영역의 자화는 주변 matrix에 대한 방향을 내포하고있다.

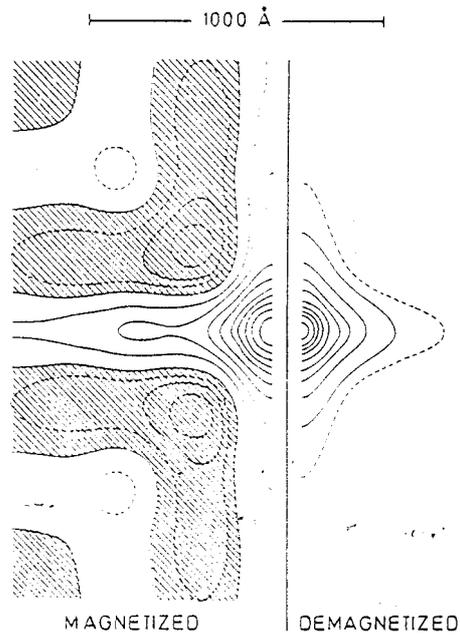


Fig. 11 Contour lines of the correlation function of the magnetization,  $\langle M_z(0)M_z(r) \rangle$  as deduced from scattering at a Ticonal X sample in the magnetized and the demagnetized state.  $z$  is the direction parallel to the rod-shaped precipitates.  $M_z$  is the component of the magnetization in this direction. In the shaded regions the correlation is below the average value. (after Maier[52])

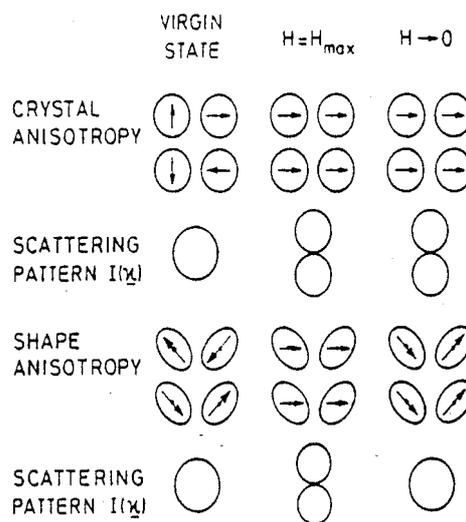


Fig. 12 Magnetization of single-domain particles in the virgin state, for high external field, and after removal of the field, for crystal anisotropy and for shape anisotropy. Scattering patterns  $I(\chi)$  are shown for constant  $\chi$ .

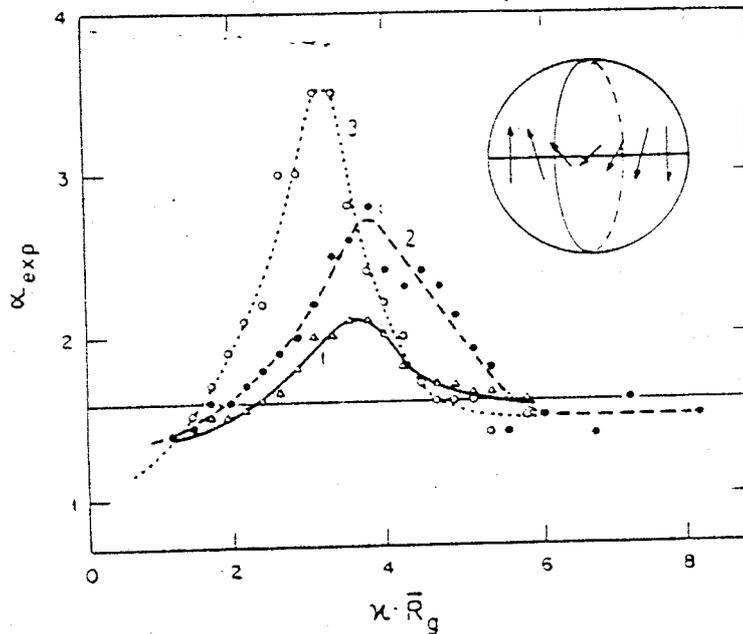


Fig. 13 Small-angle scattering from Co precipitates in Cu.  $\alpha_{exp}$  is the ratio  $[(d\sigma/d\Omega)_{mag} + (d\sigma/d\Omega)_{nucl}] / (d\sigma/d\Omega)_{nucl}$  and is plotted vs  $\chi \bar{R}_g$ , where  $\chi \bar{R}_g$  is the average radius of gyration.  $\bar{R}_g = 160 \text{ \AA}$  for curves 2 and 3. For uniform magnetization within the precipitates the experimental points should fall on the line  $\alpha = 1.66$ . (after Ernst et al. [53])

#### 제 4 절 SANS를 이용한 반도체내의 결함 연구

Bulk 반도체에 대해서는 결함에 대해 아주 정밀한 SANS 연구가 가능한데 이는 이들 물질이 보통 아주 순수하고 균질하기 때문이다. 따라서 Czochralski 법으로 육성한 Si 단결정 내의 비정질  $\text{SiO}_2$  형태로 된 산소의 trace impurity 석출물은  $\langle 100 \rangle$  방향에 나란한 입사 beam에 대해 아주 선명한 cross-like shape의 anisotropic SANS pattern을 보여준다. Takeda등[56]과 Messoloras등[57,58]은 수 nm 두께로  $\langle 100 \rangle$  방향으로 긴 모서리를 가진 모양의 석출물 판 시료의 산란 실험을 실시하여 그 부피율이  $10^{-6}$  이하임을 보고하였다.

a-Si:H(hydrogenated amorphous silicon)은 태양전지재료로 유망한 물질이다. Nondevice-quality a-Si:H에서 미소공공(microvoid)의 존재는 소각산란실험과 더불어 다른 종류의 실험들로부터 명백히 밝혀졌다[59,60]. Glow-discharge deposition 법으로 제작

한 device-quality a-Si:H시료에 대한 SAXS와 IR측정의 결과로부터 Mahan등은[59] 시료내에 평균직경 약 0.5 nm 의 microvoid가 존재하며 그들 각각 4~9개의 결합된 수소 원자들을 포함한다고 보고하였다. 이는 관측된 정도의 dangling-bond의 수를 줄이기에는 충분하지 않으며 따라서 어떤 재구성(reconstruction)이 가정되어야 한다. Fratzl등은[61] glow-discharge deposition으로 제작한 a-Si:H에 heavy-ion 가속기로부터 360MeV Xe-ion을 30 $\mu$ m 두께로 시료에 조사시켜 새로운 결합을 생기게 하였다. 이때 damage 분포는 시료내에서 균일하였다. 상온까지 온도를 올린 후 linear position-sensitive detector를 사용하여 SAXS측정을 실시하였다. 입사 beam방향주위로 이 detector를 회전시켰으나 산란 pattern의 anisotropy는 관측되지 않았으며 이로부터 손상영역(damage zone)은 완전히 겹쳐져 있다는 사실을 확인할 수 있었다[59]. 그림 14는 Fratzl의 실험 결과를 나타낸 것이다. 조사에 의해 생성된 결합cluster는 큰 SAS peak를 생기게 하는데 이 peak들은 높은 fluence에 대해 낮은  $Q$  값에서 나타난다. two-phase model을 근거로 하여 구한 값과 late-stage scaling에 대한 근사로부터 얻은 평균 void반경은 1.6~2.3 nm이며, 부피 분율은 약 5~13% 이었다[62]. 간섭 peak은 활성손상영역(active damage zone)의 평균 크기와 관련된 void들간의 선호하는 거리를 나타낸다. SAXS 실험만으로는 void들이 어떤 수소를 포함하는지를 결정하는 것은 불가능하다.

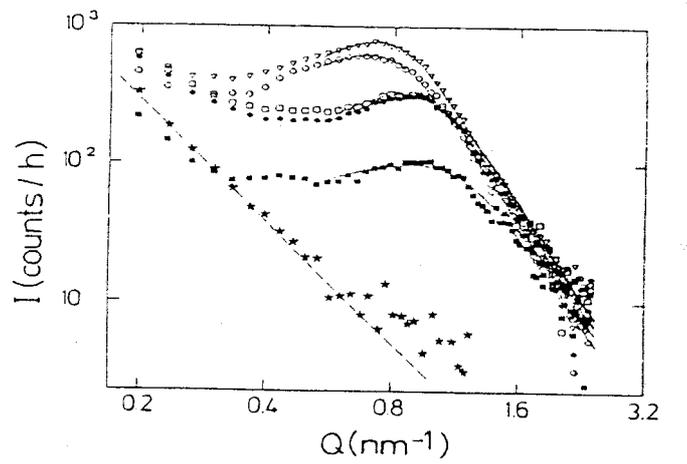


Fig. 14 SAXS results for Xe-irradiated a-Si:H(logarithmic scales). The broken line is a  $Q^{-3}$  fit for the scattering data(★) of the unirradiated sample. Fluences(in 10<sup>17</sup> Xe m<sup>-2</sup>): ■:1; ●:1.9; □:3.1; ○:4.4; ▽:4.5. (After Fratzl et al. [61])

## 제 5 절 SANS를 이용한 초전도체의 미시장(microscopic field) 분포 연구

SANS는 type-II 초전도체의 microscopic field distribution 분석에 유용한 실험적 도구이다. Schelten등은[63] SANS를 이용해 type-II 초전도체의 flux-line에 관한 조사를 하였다. 그들은 "parallel" arrangement(입사 중성자빔과 시료의 flux-line이 거의 나란하게 하는 실험방법)를 이용하여 수송전류(transport current)가 존재할 때 이상적인 type-II 초전도체의 flux flow 속도를 측정하였다. 실험장치를 그림 15에 도식적으로 나타내었다. 중성자빔  $n_0$ 는 빔과 거의 나란한 flux-line에 의해 Bragg각  $2\theta$  만큼 회절된다.  $H$ 는 인가 자기장이다. 만일 수송전류밀도  $j$ 가 flux-line 격자를 속도  $v_L$ 로 움직이게 한다면, 움직이는 frame에 대해 Bragg조건을 만족시키기 위해 시료를  $\Delta\phi$ 만큼 회전시켜야 한다. (그림 15(b)) 예상되는 flux-flow 속도  $v_L$ 은 4.2K에서 약  $1\text{ ms}^{-1}$ 이었다.  $v_0 = 440\text{ ms}^{-1}$  (파장  $\lambda = 9\text{ \AA}$ 인 중성자)인 조건에서  $\Delta\phi(=v_L/v_0)$ 는  $8'$ 이고 flux-line 격자가 거의 완전하면 관측될 수 있다. Schelten등의 실험에서는 수송전류의 반전에 대한 rocking curve의 shift로부터 각  $2\Delta\phi$ 를 결정하였다. rocking curve의 폭은 수송전류밀도가 증가함에 따라 증가하였으며 이는 flux-line들을 휘게 하는 수송 전류에 의한 field distortion 때문이다. 그림 16에  $B = 0.08\text{ Tesla}$ 일 때 측정된 flux-line속도와  $E/B$ 에 대한 그래프를 나타내었다. 여기서  $E$ 는 전류가 흐르는 시료에 가해지는 전기장이다. Lorentz 힘  $E = -v_L \times B$ 에 의하면,  $E/B$ 는  $v_L$ 이며 실험의 정밀도내에서 그림 16으로부터 구할 수 있다. rocking curve의 폭은 flux-line의 bending에 의해 조절되므로 이 평균값 주위에서의 속도분포는 구할 수 없었다.

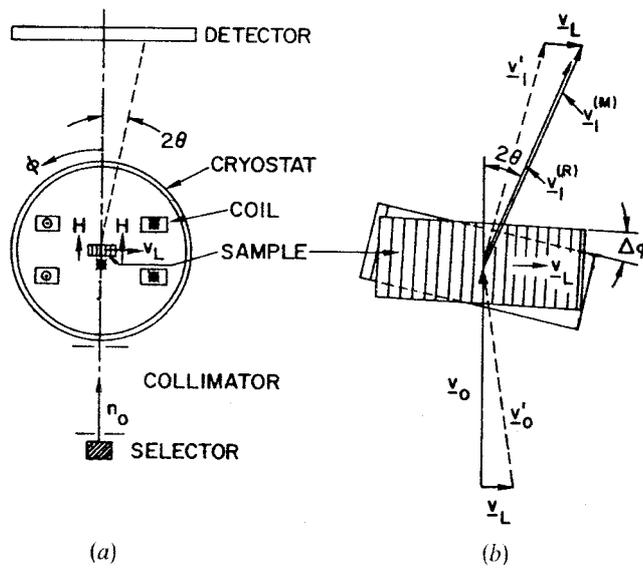


Fig. 15 (a) Experimental setup of the 'parallel' arrangement.  $H \approx B$  is the applied magnetic field,  $j$  is the transport current density,  $v_L$  is the flux-line velocity, and  $\phi$  is the rotation angle of sample and coils. (b) Diffraction of neutrons from a flux-line lattice at rest ( $v_0$  and  $v_1^{(R)}$ ) and in motion ( $v_0$  and  $v_1^{(M)}$ ). The vectors  $v_i'$  are the neutron velocities with respect to the moving lattice.

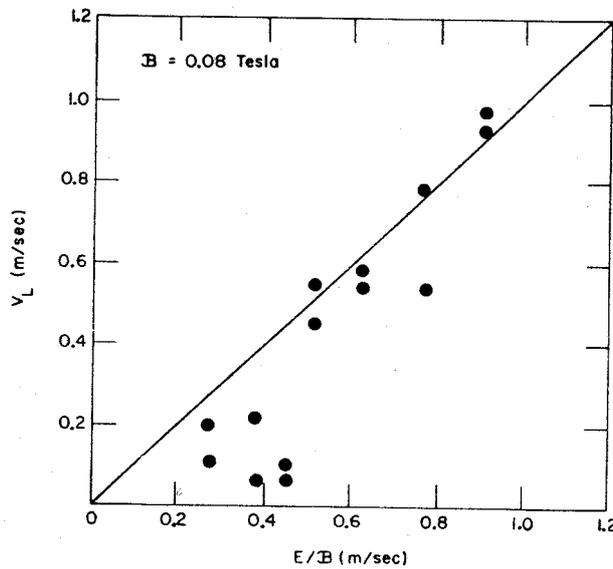


Fig. 16 Comparison of the flux-line velocity  $v_L$  determined by neutron diffraction (full circles) with the velocity  $E/B$  from the Lorentz-force equation.

## 제 6 절 SANS를 이용한 조사손상기구 연구

### 1. 개 요

중성자 조사에 의하여 원자로 압력용기는 인성이 감소되어 파괴저항성이 저하되는 조사 취화나 경도가 증가되는 조사경화가 일어난다. 이들 조사손상은 중성자 조사에 의하여 생성된 점 결함들이 모여서 결함의 모임(defect clusters) 들을 형성하고 이들이 전위의 움직임을 방해하기 때문에 일어난다. 또한 이들 점 결함의 모임들은 Cu 나 Ni, P 등과 잘 결합하기 때문에, RPV steel의 조사에 의한 경화(radiation hardening)와 그에 따른 취화는 Cu의 존재에 극도로 민감한 것으로 알려져 있다[64-67]. 그리고 Ni이나 P[65-68]와 같은 원소들도 조사손상에 많은 영향을 주는 것으로 알려져 있다. 조사로 인하여 향상된 확산과 Cu의 석출물 들이 전위들(dislocations)의 자유운동을 방해하기 때문에 조사경화나 취화가 일어난다는 것이 잘 알려져 있다. 그러나 Ni과 P의 구체적인 거동과 그들의 Cu와의 상호작용은 분명하지 않은 상태이다. 이들의 크기는 수 nm 정도로 전자현미경의 분해능보다 작은 수준이므로, 이들 석출물의 크기 및 분포 등을 결정하기 위해서는 SANS를 이용하여야 한다. 조사 환경 하에서 구조재료의 미세구조 특성을 조사하는 것은 현재뿐 아니라 미래의 기술에서도 아주 중요하다. SAS(특히 열중성자에 의한)는 RPV steel이나[70] "Next European Torus"용으로 개발한 steel의 연구에 유용하게 쓰이고 있다. 구조재료에 대한 SAS의 일반적인 문제점은 성분 분해로 인한 부산물, carbides, inclusion등을 포함하는 불균질한 reference state가 존재하여 SAS 신호에 큰 영향을 미쳐 조사에 의한 변화를 감지하기가 어렵다는 것이다. 따라서 이 구조재료의 안정성이나 미리 존재하는(pre-existing) 미세구조를 제어하는 어떤 확실한 사실이 요구된다, 즉, SAS의 타당한 평가를 하기 위해서는 다른 실험방법에 의한 정보가 필요하다.

### 2. 압력용기재료에서의 조사손상기구 연구

Boehmert등은[71] Russian VVER-440 type reactor의 미세구조와 불순물 함유량의 조사에 의한 구조손상에 대한 영향과 조사후 열처리에 의한 변화를 SANS 실험으로 연구하였는데 일반적으로 조사된 상태에서 SANS의 세기는 최대였으며 열처리 온도가 증가할수록 감소하였다. Cu 함유량이 높은 용접부위 금속(weld metal) 시편 HG의 경우를 그림 17에 나타내었다. Guinier plot이 넓은  $Q$  범위에 걸쳐 선형성을 보이지 않아 크기

분포는 Glatter 방법으로 분석하였다. 이 크기 분포는 물질의 전처리와 불순물 함유량에 크게 의존하였다. Cu 함유량이 높은 기저금속(base metal) 시편 GG에 대해서는 조사된 상태에서 반경 약 2nm에서 높은 peak으로 특징 지워지는 bimodal 크기 분포가 관측되었다(그림 18). 7~8nm 근처에서 관측되는 두 번째 peak는 앞의 것에 비해 아주 작았으며 조사나 열처리에 거의 영향을 받지 않았으나, Cu 함유량이 낮은 steel에서 더 뚜렷하게 관찰되었다[71]. 이 peak는 475°C에서 열처리하였을 때는 증가하였고, 550°C에서 열처리했을 때는 줄어들었으며 조사에는 큰 영향을 받지 않았다. 조사로 인하여 첫 번째 peak이 증가하였으나 Cu 함유량이 높은 steel에서는 크게 영향을 받지 않았다. 열처리를 함으로써 조사로 유기된 peak의 증가는 서서히 감소하여 사라졌는데 이는 550°C 정도의 충분히 높은 온도에서만 가능하였다. 용접부위 금속도 유사한 경향을 보였으며 열처리에 의한 효과는 더욱 뚜렷하였다.

이상의 결과로부터 Cr-Mo-V RPV steel내에서 조사 유도된 결함들의 존재는 명확히 밝혀지지 않았으나 조사로 인해 as-received 상태에서 이미 존재하였던 석출물의 핵형성과 성장조건이 변화하였다는 가정을 함으로써 설명될 수 있었다.

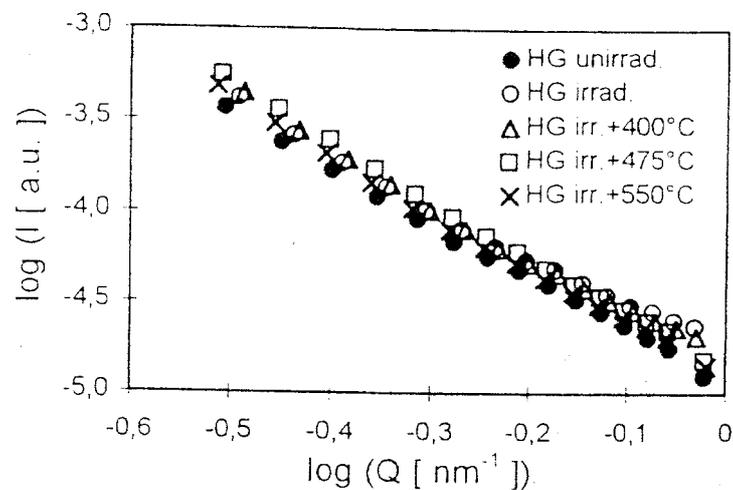


Fig. 17 SANS pattern of weld metal HG with high content of Cu after different pretreatments(as-received, irradiated, and annealed).

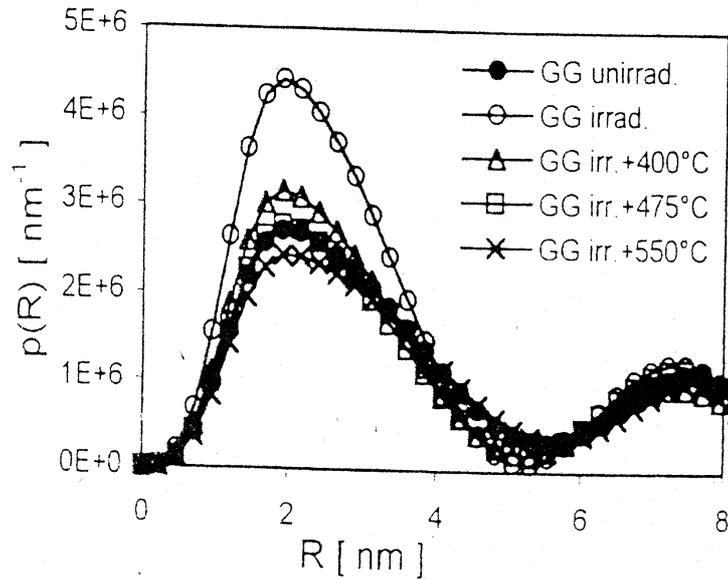


Fig. 18 Size distribution of the scattering defects for base metal GG with high content of Cu after different pre-treatments(as-received, irradiated, and annealed after irradiation)

또한 원자로압력용기 재료에서 핵산란 및 자기산란에 의한 SANS 기법은 고속중성자 조사와 조사후 소둔에 의한 재료의 성질변화를 연구하는데 사용된다. 이 경우 각각의 미세 조직적 결함들을 연구하는데 사용되는 방법은 조사량과 조사후 소둔에 따라 체계적으로 변할 수 있다. 또한 소둔 후의 이차조사도 고려될 수 있다. 조사에 의하여 생성되는 소각산란의 기여는 Cu-vacancy clusters로 확인되었다[70].

461K에서 고속중성자에 조사된 낮은 Cu 함량 (0.002 wt.%) 과 높은 Cu 함량 (0.3 wt.%)을 가지며, P 함량은 0.003에서 0.028wt.% 까지 변하는 A533-B 압력 용기강 재료의(시편은 부수어진 사피 시편으로부터 채취하였다) 중성자 조사효과를 SANS를 이용하여 연구하였다. 산란중심(void 와 Cu clusters)의 평균크기 R과 부피 분율에 미치는 P의 영향을 크기분포의 함수로서 그림 19(a) 와 19(b) 에 각각 나타내었다. 또한 cluster 화학 성분과 관련되는 parameter 의 값으로도 표시하였다.

낮은 함량의 Cu 강의 경우에 평균 크기 R은 일정한 반면 주목할만한 부피의 증가가 관찰되었으며, 이는 Cu 석출물의 밀도에 의존하는 것으로 분석된다. 또한 이 결과는 기계적 시험에 의한 강도의 증가와 관련되어 있는 것으로 분석되었다. 높은 함량의 Cu 의

경우 체적 비는 일정하나 R은 감소하고 결함의 미세구조는 세밀하게 된다.

다양한 종류의 철계 금속에서 조사에 의한 경화와 취화의 경우 Cu, Ni 및 P의 역할이 SANS를 이용하여 연구되었다[72]. 조사된 합금의 Vickers 경도는 voids, 석출물, clusters, 또는 전위루프와 같은 조사에 의하여 생기는 상이한 종류의 결함에 의하여 결정되며 경도 값에 대응하는 SANS의 집적된 강도 변화와 관련되어 있다. 이 결과는 그림 20에 나타나 있으며, 기계적 시험의 결과와 SANS 시험으로부터 얻어지는 parameter 사이에 근사적으로 선형관계가 발견된다.

Buswell등은[73] 조사로 유도된 RPV steel의 미세구조 변화와 경화기구(hardening mechanism)를 SANS, TEM, FEGSTEM(Field Emission Gun Scanning Transmission Electron Microscopy)등을 이용하여 연구하였다. 그 결과 low alloy RPV steel의 조사경화에는 두 가지 중요한 요소가 있음이 밝혀졌다[74-76]. 첫 번째는 조사되는 동안 만들어지는 점 결함(point defect)들의 밀집과 붕괴(clustering and collapse)의 결과로 나타나는 matrix손상인데 이는 순수한 금속 및 상용화된 steel 모두에서 발생한다. 두 번째로는 조사로 향상된 확산과 Cu를 포함하는 steel내의 불순물 Cu의 석출물에 기인한 요소이다.

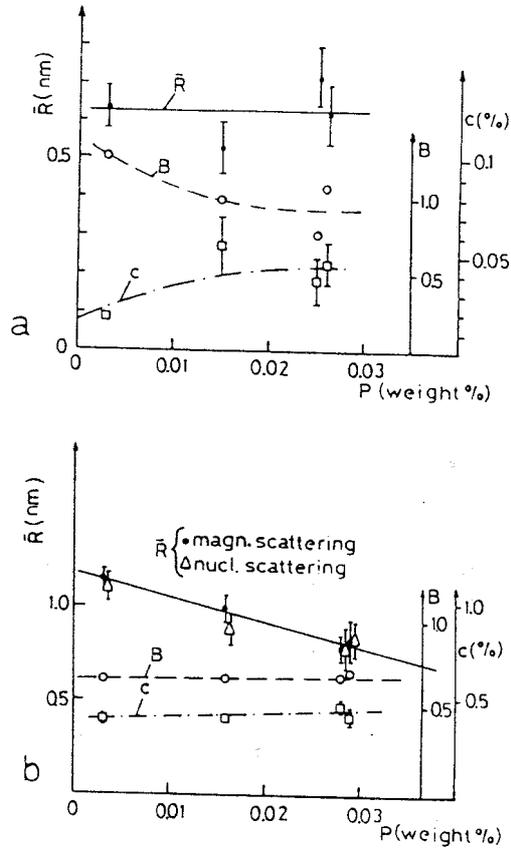


Fig. 19. Size  $R$  (left scale), chemical composition parameter  $B = \sqrt{R} - 1$  ( $\circ$ ) and volume fraction  $c$  ( $\square$ ) of clusters in irradiated A533-B steel: 0.002 (a) and 0.3 (b) wt.% Cu

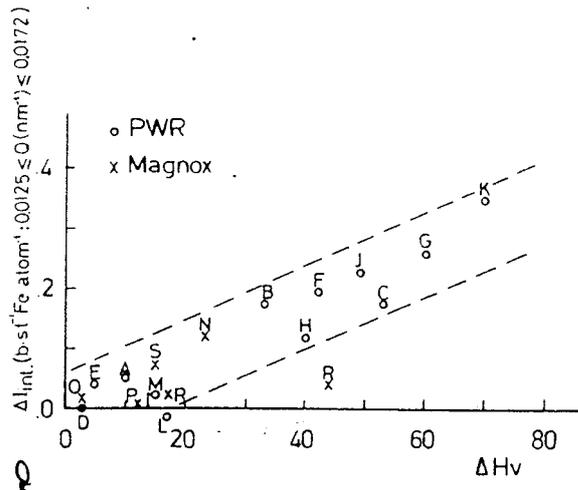


Fig. 20. Change in SANS integrated intensity of irradiated samples versus the radiation induced change of Vickers hardness; alloys A-K are model alloys with different Cu, Ni and p contents

### 가. Matrix 손상

RPV steel에서 matrix손상결함을 구분하는 작업은 전세계적으로 수행되고 있다. 그 결함들은 중성자로부터 유도된 cascade현상에서 남겨진 밀집된 점 결함들이거나 미소공공들(microvoids), 전위loop[77,78], 혹은 이들 모두의 집합일 수 있다. 이러한 특징들의 상대적인 비율은 조사된 물질의 종류와 조사온도에 따라 변화할 수 있다. 예를 들면, 질소안정화전위 loop(nitrogen-stabilized dislocation loop)들은 낮은 온도(200℃)에서 조사된 Si-killed mild steel에서 더 중요하며, 점 결함 집합체나 미소공공들은 높은 온도(300℃)에서 조사된 fully-killed low alloy steel에서 더 중요하다. 이러한 분석에서 matrix손상 결함들의 정확한 본질을 알 필요가 없으며 잘 알려진  $\sqrt{(dose)}$ 관계의 항으로[79] low-Cu steel의 기계적 성질 변화를 설명하는 것으로도 충분하다. 그러나 가능한 결함들은 SANS결과로부터 알 수 있다. matrix 손상 요소에 관한 정보는 low-Cu steel 시편 JPB, JPC와 JFL에서 얻은 결과로부터 알 수 있는데, 그림 21(a)는 자기장이 영일 때 비조사 및 조사한 단조된 시편 JFL 101의 미분산란 단면적 자료를 중성자 산란vector Q의 제곱에 대해 그린 그래프이다. 부피율-입자크기분포는 최대 엔트로피법[80,81]을 이용하여 유도하였고 그림 22(a)에 나타내었다. 이 분포는 임의의 중성자산란 contrast factor에 대해 계산한 것이며 핵 산란 및 자기산란에 의존하는 산란특징(scattering feature)의 본질은 고려하지 않은 것이다. 조사로 유도된 scattering feature의 A-ratio(핵산란 및 자기산란 합이 기여를 핵 산란의 기여로 나누어준 값)는 표 2에 나타냈으며 low-Cu steel에 대해서는 1.14에서 1.59정도의 범위 내에서 변화하였다. 평균 A-ratio는 1.43이었는데 이는 이 steel의 미소공공에 대한 예측값(~1.35)과 비슷하였다. 이는 미소공공 matrix 손상 요소의 존재를 나타내는 것이지만 최종적인 증거는 아니다. 미소공공을 가정하여 각 low-Cu steel에 대해 계산한 부피 분율을 표 2에 수록하였다. 부피 분율에는 현저한 변화가 있는데 이는 그 steel내의 P의 함유량과는 관계가 없었다. 이러한 차이는 아주 작은 scattering feature로부터 얻은 약한 중성자산란세기 분석에 있어서의 통계적인 불확실성을 나타낸다고 할 수 있다. 결과적으로  $7 \times 10^{-5}$  정도의 평균 부피율은 아주 신뢰성이 있는 값이며 이 값은 Cu를 함유하는 steel의 몇몇 중성자산란을 설명하는데 이용된다.

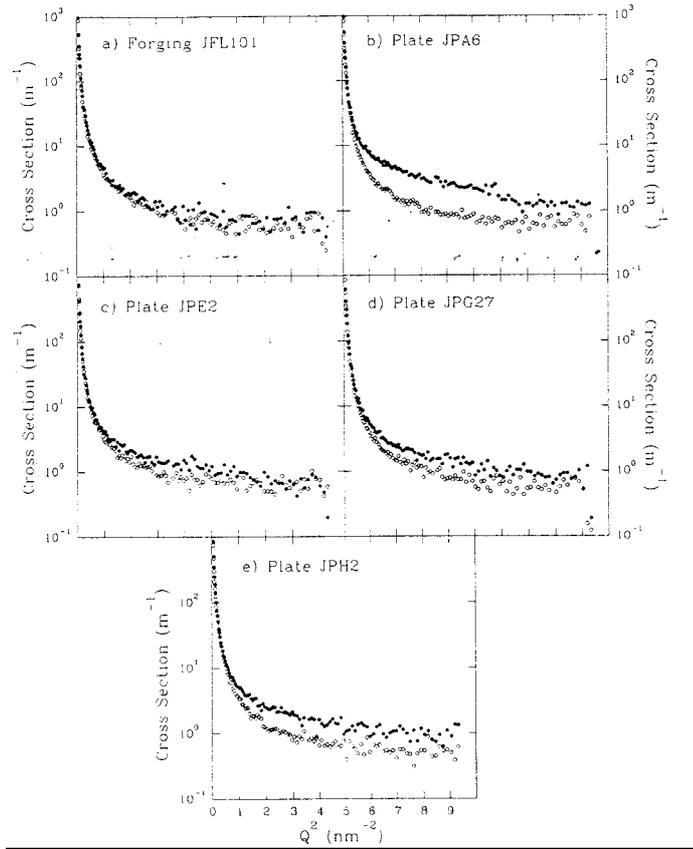


Fig. 21. Differential neutron scattering cross sections as a function of  $Q^2$  for unirradiated(open symbols) and irradiated(closed symbols) steels JFL, JPA, JPE, JPG, and JPH.

#### 나. 조사로 인해 유기된 석출

일반적으로 기계적성질 분석을 통해 합금에서 석출물에 의한 경화기여 정도를 분석할 수 있다. 압력용기재료에서는 14 mdpa에서 측정된 Cu-related hardening의 최대값의  $\frac{3}{4}$  정도가 Cu로 인한 경화에 기인하는 것으로 분석되었다. 이로부터 Cu 석출물의 양이 0.2~0.22 wt%, 잔류 matrix의 Cu함유량은 0.08~0.10wt%임을 알 수 있다. 이 사실은 FEGSTEM분석이 뒷받침되었을 때 SANS자료를 설명하는 기본자료로 사용된다. 그림 21(b)는 비조사 및 조사된 시편 JPA6의 zero-field SANS 미분산란 단면적과  $Q^2$  과의 관계를 나타낸 그래프이다. 임의의 scattering contrast factor에 대해 계산된 부피분율-입자크기분포는 그림 22(b)에 나타내었다. 조사로 인해 2 nm 직경의 scattering feature의 부피 분율이 크게 증가한 사실을 보여준다.

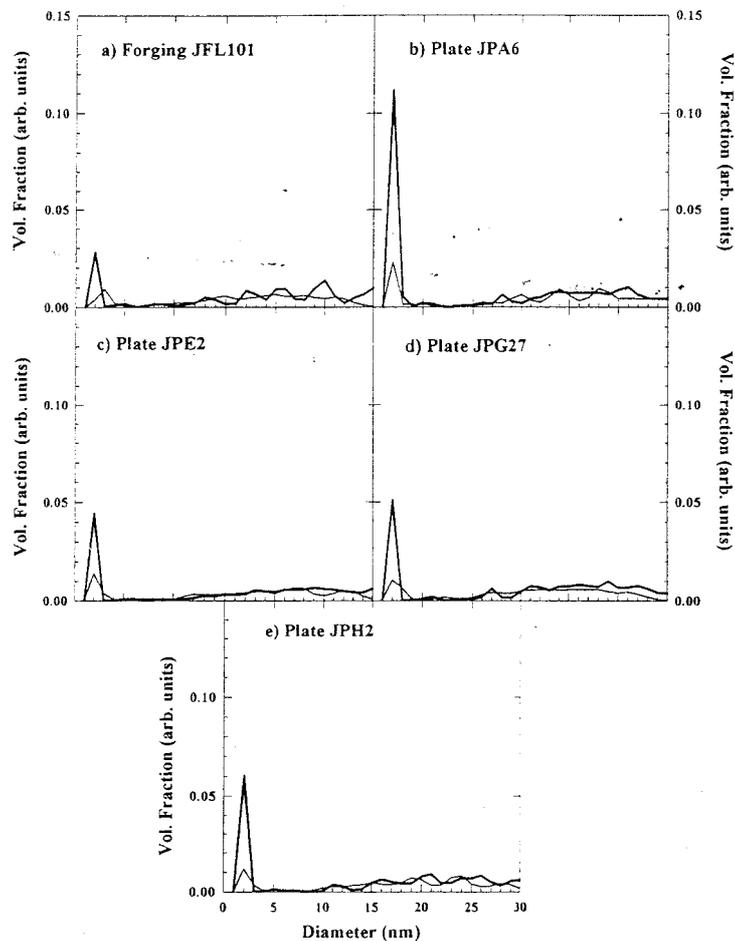


Fig. 22. Volume fraction-particle size distributions derived by maximum entropy methods, assuming an arbitrary scattering contrast factor, for steels JFL, JPA, JPE, JPG, and JPH (fine lines, unirradiated; bold lines, irradiated).

조사로 유도된 feature의 평균 A-ratio는 약 2.75였다. 그 비(ratio)는 통계적으로는 중요하지 않으나 약했으며 산란벡터  $Q$ 가 증가함에 따라 증가하였다. 평균값은 미소공공에 대한 값 1.35와 이 steel의 순수한 Cu 석출물에 대한 값 11.8의 중간정도였다. Ni과의 합금은 A-ratio를 증가시키는 반면 Mn과의 합금은 A-ratio를 감소시키며 그 둘다 포함된 Cu가 풍부한 석출물은 다른 연구결과에서 알 수 있다.[82,83,84,85] 산란벡터에 대한 A-ratio의 작은 변화는 다른 steel에 대한 결과에서와 같이[79] 미소공공이 석출물보다는 많거나 석출물 성분의 크기 의존성이 있다는 사실을 알려준다. 또한 TEM측정으로는 조사로 유도된 작은 석출물의 확실한 증거를 볼 수 없었지만 전위에 미량의(직경 10nm)

Cu가 풍부한 석출물은 볼 수 있었다. 이들은 stimulated post weld 열처리과정에서 생성된 것이라 판단된다.

Steel	Bulk composition (wt%)				SANS (A)	Vol. fract. microvoids	Ppt comp. (at%)			Vol. fract. CuMnNi ppt	Total vol. fract. m/voids + ppt	Matrix Cu (wt%)	$d_3^a$ (nm)	$N_m^b$ ( $m^{-3}$ )	$N_{CuMnNi}$ ( $m^{-3}$ )
	Cu	Ni	P	N (ppm)			Cu	Mn	Ni						
<i>Low-copper plates and forging</i>															
JPB27	< 0.01	0.78	0.017	5	1.59	$8.36 \times 10^{-6}$	-	-	-	-	< 0.01	2.01	$1.96 \times 10^{21}$	-	
JPC27	0.03	0.78	0.007	29	1.14	$7.62 \times 10^{-5}$	-	-	-	-	< 0.03	3.03	$5.24 \times 10^{21}$	-	
JFL101	< 0.01	0.72	0.004	7	1.56	$1.24 \times 10^{-4}$	-	-	-	-	< 0.01	2.09	$2.62 \times 10^{22}$	-	
<i>High-copper plate</i>															
JPA6	0.30	0.80	0.018	8	2.75	$7.0 \times 10^{-5}$	50	26	24	$3.46 \times 10^{-3}$	0.10	2.02	$1.62 \times 10^{22}$	$7.97 \times 10^{23}$	
JPA6	(repeat experiment at Saclay)				-	-	50	27	23	$3.55 \times 10^{-3}$	0.10	2.02	-	$8.17 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	$7.0 \times 10^{-5}$	60	24	16	$2.88 \times 10^{-3}$	0.10	1.98	$1.73 \times 10^{22}$	$7.13 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	-	57	26	17	$2.95 \times 10^{-3}$	0.11	1.98	-	$7.30 \times 10^{23}$	
<i>Medium-copper plates</i>															
JPD2	0.14	0.10	0.006	< 2	2.25	$7.0 \times 10^{-5}$	66	29	5	$4.61 \times 10^{-4}$	0.10	2.02	$1.63 \times 10^{22}$	$1.07 \times 10^{23}$	
JPE2	0.15	0.40	0.006	18	1.77	$7.0 \times 10^{-5}$	61	35	4	$5.38 \times 10^{-4}$	0.10	2.02	-	$1.25 \times 10^{23}$	
JPF3	0.14	0.59	0.020	9	1.91	$7.0 \times 10^{-5}$	66	29	5	$5.36 \times 10^{-4}$	0.11	2.00	$1.67 \times 10^{22}$	$1.28 \times 10^{23}$	
JPG27	0.16	0.79	0.017	6	(0.65) <sup>b</sup>	$7.0 \times 10^{-5}$	61	35	4	$6.03 \times 10^{-4}$	0.10	1.97	$1.74 \times 10^{22}$	$1.44 \times 10^{23}$	
JPH2	0.15	1.17	0.006	< 2	2.05	$1.4 \times 10^{-4}$	50	26	24	$5.75 \times 10^{-4}$	0.10	1.97	-	$1.26 \times 10^{23}$	
JRQ41	0.14	0.82	0.017	< 2	1.74	$7.0 \times 10^{-5}$	50	26	24	$5.76 \times 10^{-4}$	0.08	2.00	$1.67 \times 10^{22}$	$3.20 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	$7.0 \times 10^{-5}$	50	27	23	$1.34 \times 10^{-3}$	0.08	2.00	-	$3.57 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	$1.4 \times 10^{-4}$	34	34	32	$1.50 \times 10^{-3}$	0.10	2.00	$3.34 \times 10^{22}$	$2.95 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	$7.0 \times 10^{-5}$	36	36	28	$1.37 \times 10^{-3}$	0.10	2.00	$1.67 \times 10^{22}$	$3.12 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	-	32	39	29	$1.38 \times 10^{-3}$	0.10	2.00	-	$3.27 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	-	50	26	24	$1.37 \times 10^{-3}$	0.09	2.00	$1.68 \times 10^{22}$	$2.19 \times 10^{23}$	
-	-	-	-	-	-	-	50	27	23	$1.08 \times 10^{-3}$	0.08	2.00	-	$2.59 \times 10^{23}$	

<sup>a</sup> Volume weighted mean precipitate diameter.

<sup>b</sup> Data unreliable.

Table 2. Summary of precipitate data with and without a microvoid matrix damage component.

Fine spot sampling법을 사용하여 foil의 matrix Cu함유량을 FEGSTEM으로 분석한 결과를 그림 23에 나타냈다. 이 분석 결과는 0.15wt%이상에서 최소 Cu level이 넓게 퍼

저있음을 보여준다. 이는 그림 23(b), 23(c)와 비교된다. 자료의 변화는 X-ray acquisition time과 관련된 통계적인 효과와 조사하는 foil의 두께선택에 의한 것이다. 그러나 작은 Cu-rich 석출물의 수밀도가 높은 상태에서 matrix Cu의 함유량을 정확하게 결정하는 것은 어렵다.

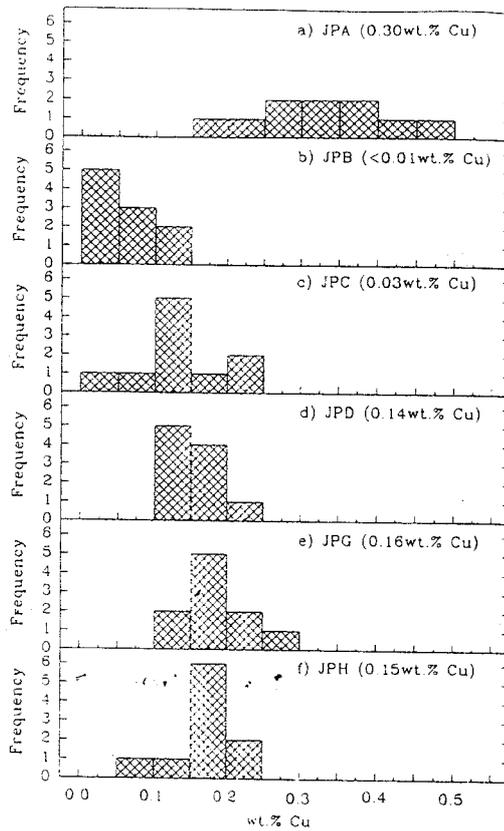


Fig. 24 The distributions of spot analysis for the residual matrix copper contents in irradiated steels; (a) JPA, (b) JPB, (c) JPC, (d) JPD, (e) JPG, and (f) JPH.

JPA에서는 matrix Cu값은 조사되지 않은 시편에서 조사된 경우보다 상당히 넓은 분포를 보여준다(그림 24(b)). 그림 24(c)는 770°C에서 6시간동안 열처리한 후 급냉한 상태에서 분석한 결과로 열처리한 시편은 그림 24(a), (b)에 비해 좁은 분포를 보인다. 그림 24의 결과는 비조사 및 조사된 JPA가 아주 작은 석출물이 높은 수밀도를 갖는 미세구조를 갖는다는 사실을 보여준다. As-received 그리고 열처리한 비조사 시편에 대한 입자크기 분포의 계산값의 비교를 하기 위하여 프랑스 Saclay에서는 SANS실험을 반복하였는데 열처리로 인하여 먼저 존재해있던 2 nm직경의 scattering feature가 사라지고 높은 수

밀도를 가진 더 작은 scattering feature로 바뀐다는 사실이 밝혀졌다.

조사로 유도된 Cu-rich 석출물에 의해 생성된 경화에 관한 현재의 모델들은[74 - 76] 석출물 부피 분율의 제공근 의존성을 포함한다. 이러한 관계는 본질적으로 혼한 미세 구조를 갖는 시편 JPA-H model plate에 대한 표 2의 data를 이용하면 검증할 수 있다. 그림 25와 26은 항복 응력과 경도변화를 조사 유도된 석출물과 가능한 미소공공의 총 부피 분율의 제공근에 대해 나타낸 그래프이다. 선형회귀분석을 위한 방정식은 각 그림에 표시되어있다. 그러나 항복 응력과 경도 data는 두 요소로부터의 기여를 포함하는데 각각 다른 hardening effectiveness를 가진다. 따라서 matrix 손상경화의 효과에 대한 data를 조정하고 잔류변화와 석출물의 부피분율 관계를 검증하는 것이 적절하다. 이 분석에서는 IAEA Phase 2 data로부터 유추된 14 mdpa에 대한 예측들은 matrix 손상요소에 기인하였다.

그림 27과 28은 잔류항복 응력과 경도변화를 조사 유도된 석출물의 부피율의 제공근에 대하여 그린 그래프이다. Data의 선형회귀분석을 위한 방정식은 각 그림에 표시하였다. 이 data는 Fisher와 Buswell모델[75]에 이용되었던  $\sqrt{(\text{석출물부피율})}$  관계를 보여주는데 경도변화가 일어나지 않는 문턱 부피율은 약  $2.2 \times 10^{-4}$  이었다. 그림 27의 항복 응력 방정식의 계수는 현재 이용하고있는 모델[75]보다 낮다. 그러나 이 계수들은 순수한 Cu 석출물과 비교했을 때 성분변화와 서로 다른 plate에서 석출물간의 hardening 효과의 차이 때문에 직접 이용할 수는 없다. 게다가 이 계수들은 시편 JPA plate의 기계적 성질에 관한 분석 data에서 영국에서 수행한 조사는 석출물의 "pre-peak"이 있었으므로 석출물의 최대 경도효과를 반영하지 못한다. 비록 경화효과를 정밀하게 결정하는 것은 불가능하였으나 합금화된 석출물의 hardening effectiveness는 순수한 Cu값의 50~90% 범위에서 변화하였다. 이것은 다른 열적 시효된(thermally aged) 합금모델[86]의 분석결과와 비교할만하다.

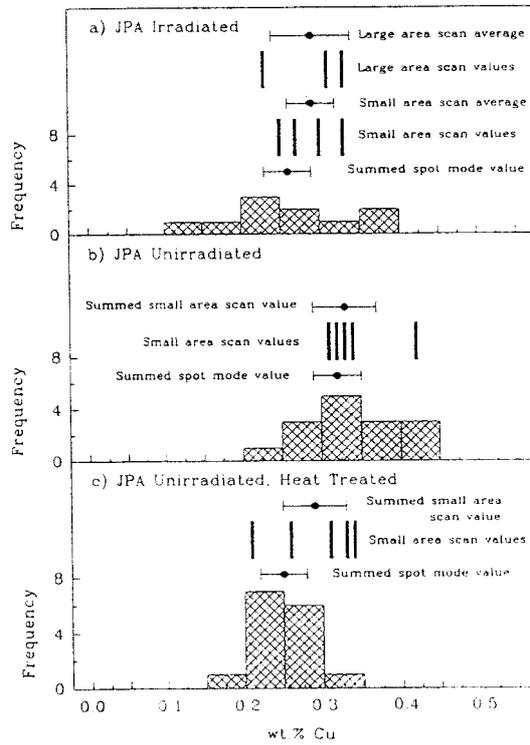


Fig. 24. Analysis of matrix copper contents using improved techniques of large area scans and spot sampling for the high-copper plate JPA6; (a) unirradiated, (b) as-received unirradiated condition, (c) unirradiated plate after additional heat treatment of 6h at 770°C, followed by water quenching, designed to maximize the amount of copper in solid solution.

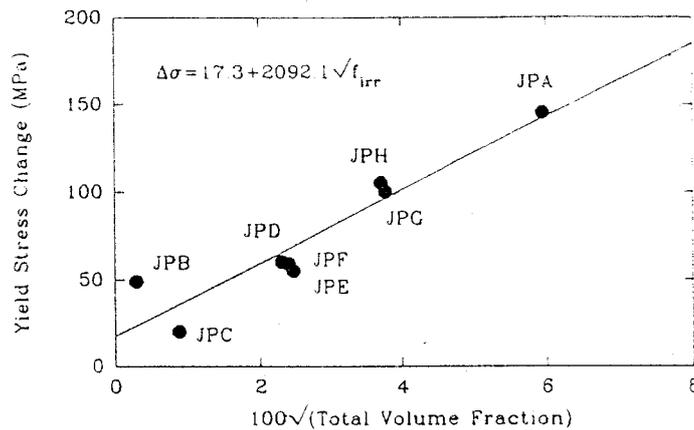


Fig. 25. The total volume fraction (precipitate+microvoid) dependence of the yield stress change in the model plates JPA-JPH after about 14mdpa at 290°C.

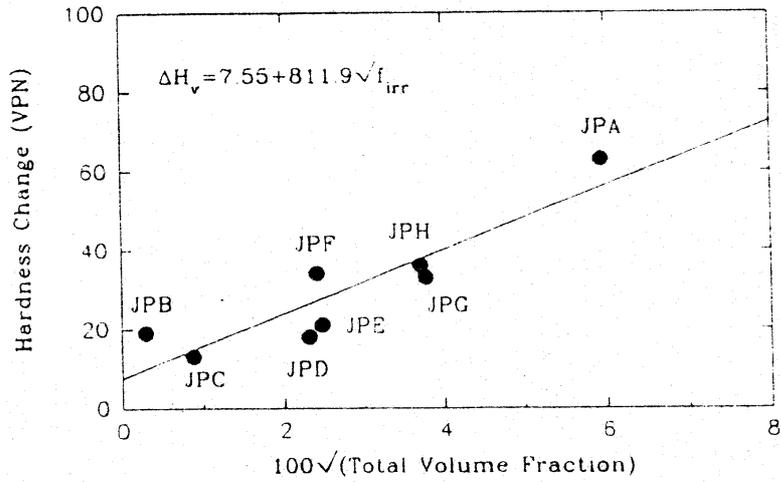


Fig. 26. The total volume fraction(precipitate+microvoid) dependence of the hardness change in the model plates JPA-JPH after about 14 mdpa at 290°C.

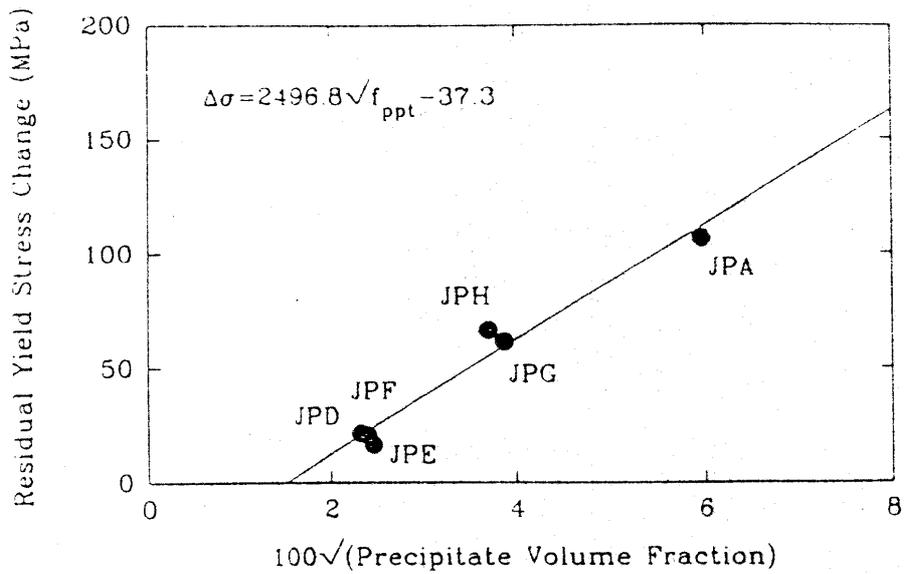


Fig. 27. The precipitate volume fraction dependence of the matrix damage compensated yield stress change in plates JPA and JPD-JPH after about 14 mdpa at 290°C

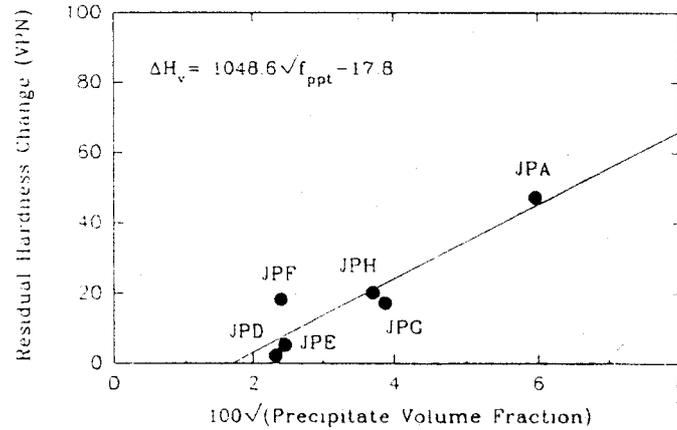


Fig. 28. The precipitate volume fraction dependence of the matrix damage compensated hardness change in plates JPA and JPD-JPH after about 14 mdpa at 290°C

#### 다. Defect Cluster

Defect Cluster로부터의 산란은 종종 강도가 매우 낮고 이런 경우 X-선 회절실험에서는 이중 Bragg 산란 때문에 측정이 어렵게 된다. 그러므로 이런 경우 긴 파장의 중성자는 여러모로 적용하기에 용이하다. 특히 소각중성자산란은 defect cluster 의 크기, 밀도 및 이방성을 얻기 위하여 사용된다. 일반적으로 SANS 는 전자현미경 연구와 보완적으로 종종 사용된다. Schilling등[87]은 고속중성자가 조사된 Cu에서 처음으로 vacancy cluster 와 전위루프와 같은 결합집합체의 밀도를 얻기 위하여 SANS를 적용하였다. 이 결과 약한 산란에서는 cluster 농도의 상한선이 관찰되었는데, 이것은 기대치의 1/5~1/10 정도로 낮은 것으로 조사되었다. 높은 강도는 Kaiser가[88] 중성자조사량  $D$ 가  $4 \times 10^{19} \text{ ncm}^{-2}$  ( $E > 0.1 \text{ MeV}$ ) 인 고속중성자에 조사된 Cu 단결정의 산란곡선으로부터 얻었는데, 이 데이터는 대략 직경 280Å 의  $3 \times 10^{15} \text{ loop cm}^{-3}$  과 직경 90Å의  $10^{17} \text{ loop cm}^{-3}$  의 두 가지 크기분포를 가지고 있다고 설명되었다. 이 값은 전자현미경연구[89]로부터 측정된 값과 Thomas등과[90] Larson등[91]에 의한 X-선 Huang 산란으로부터 측정된 값과도 잘 일치하고 있다. 스테인레스, 알루미늄, 니켈 과 같은 물질들이 고속중성자에 조사되었을 때에는 생성된 vacancy cluster 들이 모여 크기 (100~1000Å)인 void를 형성한다. 정상적으로 이 정도 크기의 void 의 모양 및 크기분포는 전자현미경에 의하여 연구될 수 있다. Al에서 20~100 Å 의 크기를 가진 매우 작은 void 에 대한 연구는 SANS

를 사용하여 수행되었다[92]. 그림 29는 거의  $10^2$  정도의 범위에 이르는  $Q$  와  $10^5$  정도의 범위에 이르는 강도를 포함하는 중성자산란 데이터를 보여준다. 이것은  $Q > 0.017 \text{ \AA}^{-1}$ 에서 존재하는데[93] 중성자산란 데이터와 잘 일치하고 있다. 실험오차 범위 내에서 산란은 작은 void 에 의한 영향을 거의 포함하고 있지 않다. 만일 직경  $60 \text{ \AA}$  정도의 void 가 존재한다면, 이들의 존재 비는 10% 이내가 될 것이다.

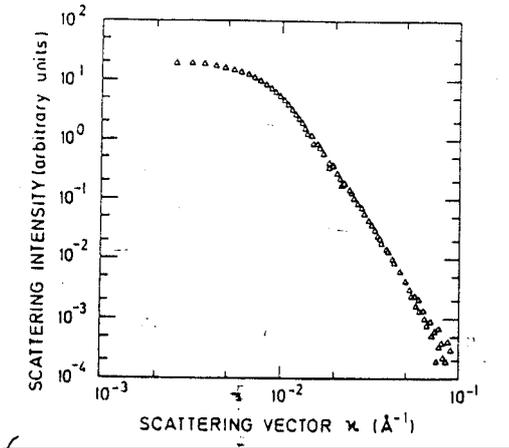


Fig. 29. Scattering intensity for an irradiated aluminum single crystal with voids (Hendricks, Schelten & Schmatz, 1974). Data are taken with different sample-detector distances.

### 3. SANS를 이용한 핵융합로 재료 연구

90년대들어 핵융합 재료로서 개발된 마르텐사이트강인 Next European Torus (MANET) 에 대하여 SANS[94,95], TEM, X-선회절 및 내부마찰[96,97]등이 조사되었다. 여러 가지 예비적인 열처리를 거친 시료에서 SANS 의 측정은 그림 30에 나타나 있다. 여기서 자기장이 없을 때 (그림 30(a))와 있을 때 (그림 30(b)) 의 2차원 표시 contour 가 나타나 있다. 그림 30(c)의 핵적 요소 ( $H$  에 평행한  $Q$ )는 TEM 에 의하여 발견된[89] 카바이드에 의한 것이다. 그림 31은 같은 열처리 하에서 두 가지 방법에 의하여 얻어진 결과를 비교한 것이다. 그림 30(c)의 자기적 요소와 강한 이방성에 관하여는 Cr농도의 요동과 관련되어 있는지를 X-선과 내부마찰에 의하여 확인하였으며, 비슷한 재료에 대하여서 SANS를 사용하여 연구하고 있다[98].

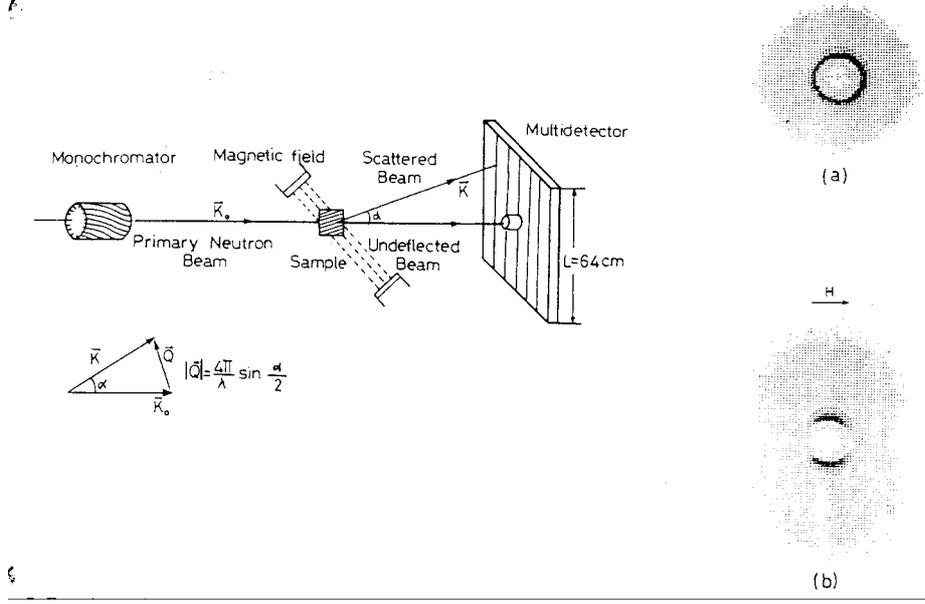


Fig. 30. Experimental layout of SANS experiments on MANET steel: two-dimensional intensity contours without (a) and with (b) magnetic field.

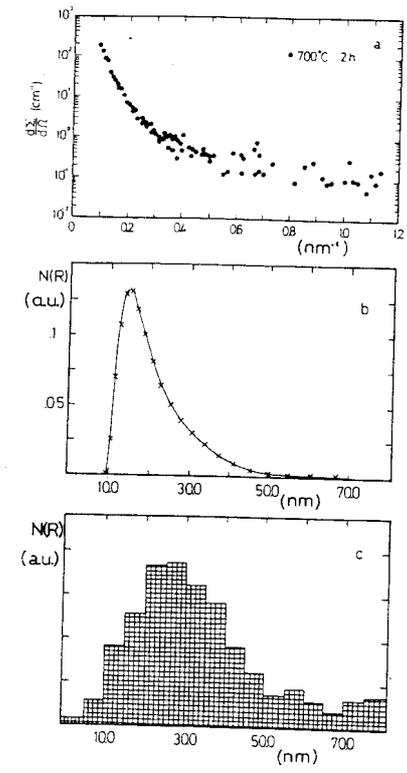


Fig. 31. MANET steel annealed 2h at 700°C: SANS curve (nuclear signal) (a), size distribution of precipitates as obtained from SANS (b) and from TEM (c).

### 가. Voids

중성자가 조사된 Al 단결정의 voids를 연구하는데 일찍이 SANS가 사용되었으며 [99], 이는 미세 조사손상을 탐지하는 SANS의 높은 기술적 능력을 보여준다. SANS 측정은 이중 결정 회절기를 사용하여 미국 ORNL에서 수행되었다. 높은 조사량과 낮은 조사량에서 조사된 시료에 대한 측정결과는 그림 32에 나타나 있다.

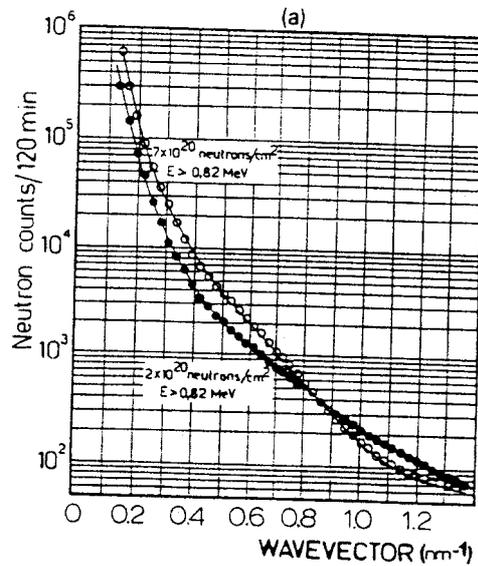


Fig. 32. SANS curve of Al single crystal irradiated at  $2 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (●) and  $7 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (○).

Mook[99]는 그림 32에 예시된 것과 비슷한 조건하에서 조사된 Al 단결정을 TEM, SAXS 와 PA(positron annihilation)를 사용하여 조사하였으며, SANS는 검출기를 이용하여 측정하였다. 그 결과 나타난 전형적인 등강도 지도(isointensity contour map)는 그림 33에 나타나 있다. 그림에서처럼 강한 이방성 패턴은 탐지거리에서 선택된 시료에서 탐지되어 있다. 반면에 매우 낮은  $Q$  값에서 산란은 등방적으로 나타나 있다. 이것은 원래의 논문에서 보고된 대로  $d\Sigma(Q)/d\Omega$  대  $Q$  에서 볼 수 있다. TEM 관찰에 기초를 두고 이 결과를 해석하면, voids 는 {111} 면에서 경계를 가진 8면체 모양으로 가정하고 {100} 면을 자르면 그림 34와 같이 된다.

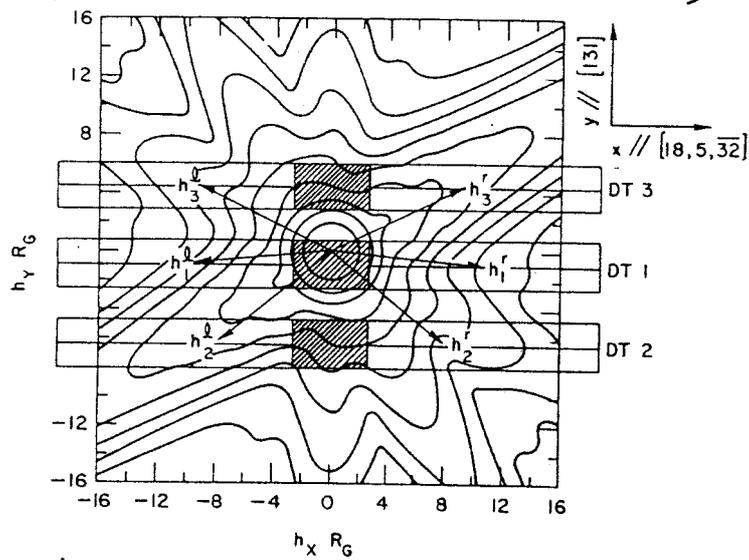


Fig. 33. Contour line calculated for an irradiated Al single crystal containing faceted voids. The three detectors DT1, 2, 3 are placed at a distance of 2 m from the sample and about 1 cm below, 7 cm below, and 5 cm above the bottom centre line. The shaded areas correspond to the beam stop. The crystal axes are indicated in the small diagram.

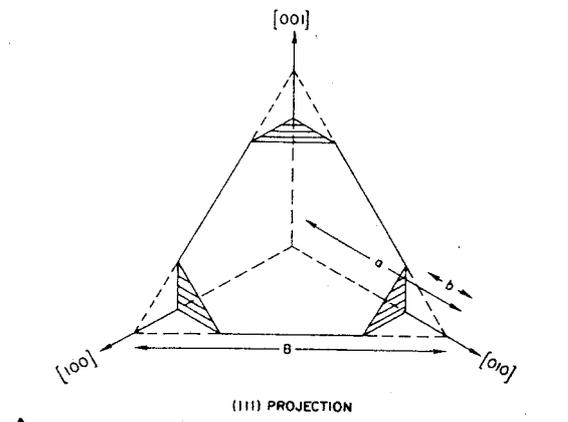


Fig. 34. One octant of a truncated octahedral void.

형상계수는 단결정에서 편향되어있는 voids의 분포에 의한  $Q$  벡터의 각각의 방향에서 관찰되는 각기 다른 접근 법칙을 포함하는 이방성패턴을 다시 만들 수 있다. 그러나 첫 단계로서 voids의 크기분포 함수는 구형형상계수(spherical form factor)를 사용하여 결정할 수 있다.

이밖에 voids에 관한 많은 연구들이 급속 냉각 또는 소둔된 NiAl 단결정[101], 피로시

협된 순수한 Ni[102] 또는 순수한 Cu[103] 또는 AISI316L 강에서[104] 연구되었다. 피로 시편의 경우에는 어떠한 진동수와 온도조건 하에서 Ni-Ge 합금에서 사각형의 voids 가 생성되는 것이 보고되었고[105], 이 연구는 피로와 조사손상 사이의 미세 조직적 관점에서 차이 유추할 수 있기 때문에 주목을 받았다.

#### 나. He 기포

SANS를 이용하여  $\alpha$ 이온이 조사된 Ni 단결정과 같은 재료에서 He 기포를 연구할 수 있다. 이는 고속증식로나 핵연료 피복관 등에서  $(n, \alpha)$ 반응에 의하여 재료내에 He 원자가 생성될 때 이로 인한 팽윤(swelling)현상을 분석할 수 있다는 것을 의미한다[106]. 조사후 소둔에 의한 기포밀도의 변화는  $d\Sigma/d\Omega$  를 측정함으로써 구할 수 있다. 조사된 시료에서 각기 다른 소둔 온도에 의하여 He 기포가 생성되고 성장되는 것은 산란강도의 증가로서 나타나게 된다. 그림 35는 소둔에 의하여 기포의 크기 분포  $N(R)$  이 변하는 것을 SANS와 TEM을 이용하여 관찰한 것이다.

SANS에서는 관찰되나 TEM 에 의해서는 보이지 않는 큰 반경을 가진 기포가 분포되어 있으리라는 추측은 Kesternich의[107] 추가실험에 의하여 명확히 나타났다. 이 실험에서는 시료표면에 가까이 까지 TEM 분석을 실시하였는데 이 방법으로 그림 36에 나타난 것처럼 2차 분포를 탐지할 수 있었다. 그림 36에 나타난바와 같이 이 두 가지 방법으로 분석한 결과는 거의 일치하였다.

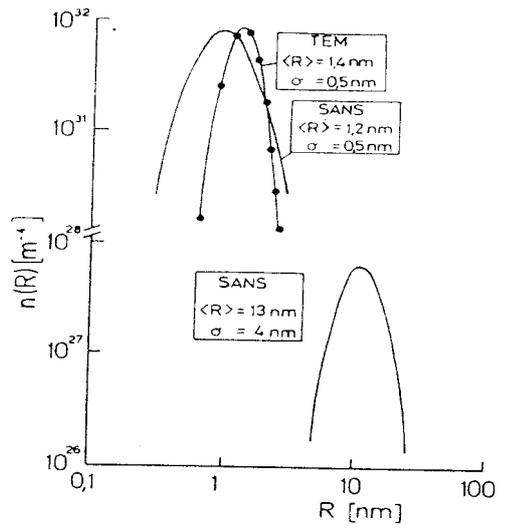


Fig. 35. Size distributions of the bubbles in  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Ni}$  matrices as obtained by SANS and TEM.

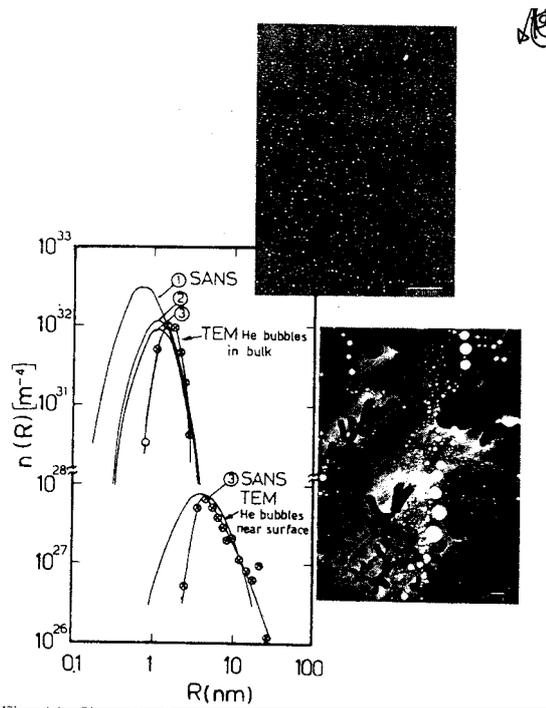


Fig. 36. Size distribution of He bubbles as obtained from SANS after annealing at 1073K 2h (1), 6.75h (2) and 50h (3)]. TEM pictures are inserted to show the aspect of the two populations of He bubbles.

## 제 4 장 결론 및 전망

앞에서 기술한 모든 영역에 대한 소각산란(SAS) 기술의 응용이 실험도구 및 방법의 개선으로 최근에 와서 급격한 진전을 보이고 있다. 입사 beam의 조절, 감지기의 발달로 단결정으로부터의 이방성 소각산란은 더욱 중요하게 될 것이며 이러한 실험방법은 조사 시편(irradiated specimen)내의 낮은 농도를 가진 point-defect cluster에 관한 연구에 아주 강력한 도구가 될 것이다.

상분리 분야에서는 합금, 세라믹, glass등 다양한 system에 대한 연구가 가능하다. 다성분계(multicomponent system)에서는 X-ray와 연계한 SANS 실험으로부터 서로 다른 상의 성분과 성분 요동(structural fluctuation)에 대한 정보를 얻을 수 있다. 상분리 운동학에 관한 이론 및 computer simulation 또한 이러한 SAS 실험으로 인하여 큰 진보가 있게 되었으며, 앞으로 많은 중요한 결과가 기대된다.

그리고 SANS의 비파괴적 조사에 대한 전망도 밝아 응집합금(concentrated alloy)과 구조적 성분에 대한 실험적 연구가 급증하고 있으며, 복잡한 자기적 system 및 초전도 system에서의 여러 문제점들 또한 SANS 연구로 해결될 수 있다.

앞의 여러 사실에서 살펴보았듯이 SANS는 상분리라는 기본적인 관점에서부터 상용 합금의 미세구조 변화에까지 물리 야금학(Physical Metallurgy)의 넓은 범위에 걸쳐 응용되는 아주 유용한 실험적 도구이다. SANS의 장점은 자화의 미시적인 변화를 포함한 미세구조의 변화에 대한 정밀함과 적용할 수 있는 물질의 다양함 그리고 많은 수의 산란물체( $\geq 10^{10}$ )에 의한 통계적으로 신뢰할 수 있는 결과라 할 수 있다. SANS를 국소적인 조사(TEM 이나 FIM등)와 연계하여 이용하면 미세구조적 성분들을 가지는 실제 재료에 있어서의 복잡한 문제들을 해결 가능케 할 수 있을 것이다.

## References

- [1] W. Schmatz, T. Springer, J. Schelton, and K. Ibel, *J. Appl. Cryst.* 7 (1974) 96
- [2] V. Gerold, G. Kostorz, *J. Appl. Cryst.* 11 (1978) 376-404
- [3] G. Albettini and Coppola, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. A314* (1992) 352-365
- [4] J.S. Higgins and R.S. Stein, *J. Appl. Cryst.* 11 (1978) 346
- [5] H.B. Stuhramm and A. Miller, *J. Appl. Cryst.* 11 (1978) 325-345
- [6] A. Guinier and G. Fournet, "Small Angle Scattering of X-ray" Wiley, N.Y. (1955)
- [7] A. Guinier, *Nature* 142 (1938) 569
- [8] A.F. Wright, *J. Non-Cryst. Solids* 76 (1985) 43
- [9] B. Rodmacq, Ph. Mangin, and A. Chamberod, *Phys. Rev. B* 30 (1984) 6188
- [10] C. Janot and B. George, *J. Physique Lett.* 46 (1985) L85
- [11] J.M. Dubois, K. Dehghan, C. Janot, P. Chieux, and B. Chenal, *J. Physique* 46 (1985) C8-461
- [12] J.J. Rhyne and G.E. Fish, *J. Appl. Phys.* 57 (1985) 3407
- [13] G.E. Fish and J.J. Rhyne, *J. Appl. Phys.* 61 (1987) 454
- [14] J.M. Raynal, J. Schelton and W. Schmatz, *J. Appl. Cryst.* 7 (1971) 96
- [15] D. Allen, S. Messoloras, R.J. Stewart, *J. Appl. Cryst.* 11 (1978) 578
- [16] J.W. Cahn, *Trans. AIME* 242 (1968) 166
- [17] J. Marro, T.L. Lebowitz, M.H. Kalos, *P.R.L* 43 (1979) 282
- [18] M. Furusaka, Y. Ishikawa, M. Mera, *Phys. Rev. Lett.* 51
- [19] J.S. Langer, M. Baron. Baron, H.D. Miller, *Phys. Rev. A* 11 (1975) 1417
- [20] M.A. Krivoglaz, *Theory of X-ray and Thermal Neutron Scattering by Real Crystals*, Translated and edited by S.C. Moss, N.Y.; Olenum Press, (1969)
- [21] P.H. Dederich, *J. Phys. F: Metal Phys.* 3 (1973) 471-496
- [22] W. Schmatz et al, *J. Appl. Cryst.* 7 (1974) 96-116
- [23] C.D. Clark and B.H. Meardon, *Nature Phys. Sci.* 235, (1972) 18-20.
- [24] M. Roth and J.M. Raynal, *J. Appl. Cryst.* 7 (1974) 219-221.
- [25] V. Gerold, *J. Appl. Cryst.* 7 (1974) 210.

- [26] W.W. Beeman et al, Handbuch der Physik, Vol.32, pp440-441, 1957, Springer-Verlag
- [27] H.H. Atkinson and R.D. Lowde, Phil. Mag. 2 (1957) 589-590
- [28] A. Seeger and E. Kroner, Z. Naturforsch, A14 (1959) 74-80
- [29] H. Kronmüller et al, J. Phys. Chem. Solids, 18 (1961) 93-115
- [30] K. Trenzinger, Diploma work, Technische Hochschule München (1966)
- [31] L. Schonauer, Diploma work, Technische Hochschule München (1968)
- [32] P. Pizzi and H. Walther, J. Appl. Cryst., 7 (1974) 230
- [33] S. Abis, A. Boeuf, R. Caciuffo, P. Fiorini, M. Magnani, S. Melone, F. Rusticelli, and M. Stefanon, J. Nucl. Mater. 135 (1985) 181
- [34] M. Fatemi, C.S. Pande, and H.R. Child, Phil. Mag. A48 (1983) 479;  
M. Fatemi, Phil. Mag. A50 (1984) 711
- [35] F. Bley, P. Guyot, and S. Lefebvre, Acta. Metall. 33 (1985) 1235
- [36] S. Messoloras, P.C. Pike, R.J. Stewart, and C.G. Windsor, Metal. Sci. 18 (1984) 311
- [37] C.G. Windsor, R.N. Sinclair, S. Faulkner, Y. Rainey, and F.F. Slattery, Microstructural Characterization of Metallurgy by Non-Microscopical Techniques, 5th Risø International Symposium on Metallurgy and Materials Science. edited by N.H. Anderson, M. Eldrup, N.Hansen, D.J. Jensen, T. Leffers, H. Lilholt, O.B. Pederson, and B.N. Singh, Risø National Laboratory, p583 (1984)
- [38] A. Boeuf, R. Caciuffo, R. Coppola, S. Melone, P. Puliti, and F. Rusticelli, Nucl. Inst. and Methods A234 (1985) 562
- [39] M.H. Yoo, J.C. Ogle, J.H. Schneibel, and R. Swindeman, Microstructural Characterization of Metallurgy by Non-Microscopical Techniques, 5th Risø International Symposium on Metallurgy and Materials Science. edited by N.H. Anderson, M. Eldrup, N.Hansen, D.J. Jensen, T. Leffers, H. Lilholt, O.B. Pederson, and B.N. Singh, Risø National Laboratory, p595(1984)
- [40] J.E. Epperson, J.S. Lin, and S. Spooner, Effects of Radiation on Materials, Proc. 13th International Symp., ASTM STP 956, edited by F. Garner and

N.H. Packan, ASTM, Philadelphia, 1987

- [41] R.E. Beddoe, P. Haasen, and G. Kostorz, *Z. Metallkunde* 15 (1984) 213
- [42] W. Hein, W. Wagner, H. Wollenberger, and D.J. Jensen, *Microstructural Characterization of Metallurgy by Non-Microscopical Techniques*, 5th International Symposium on Metallurgy and Materials Science. edited by N.H. Anderson, M. Eldrup, N.Hansen, D.J. Jensen, T. Leffers, H. Lilholt, O.B. Pederson, and B.N. Singh, Risø National Laboratory, p279(1984)
- [43] K. Ali, S. Messoloras, and R.J. Stewart, *J. Phys. F : Met. Phys.* 15 (1985) 487
- [44] H.P. Degischer, W. Hein, H. Strecker, W. Wagner, and R.P. Wahi, *Z. Metallkunde* 78 (1987) 237
- [45] G. Kostorz, *Neutron Scattering*, edited by G. Kostorz, vol. 15. *A treatise on Materials Science and Technology*, Academic Press, NewYork, 1979, pp.227
- [46] G.G. Low and T.M. Holden, *Proc. Phys. Soc.* 89 (1966) 119
- [47] G.G. Low, *Advanc. Phys.* 18 (1969) 371
- [48] T.J. Hicks, B. Rainford, S.J. Kouvel, G.G. Low, and J.B. Comly, *Phys. Rev. Lett.* 22 (1969) 531
- [49] J.W. Cable, E.O.Wollan, and H.R. Child, *Phys. Rev.Lett.* 22 (1969) 1256
- [50] S. Komura, G. Lippmann, and W. Schmatz, *J. Appl. Cryst.* 7 (1974) 233
- [51] S. Kachi and H.J. Asano, *J. Phys. Soc. Jpn.* 27 (1969) 536
- [52] G. Maier, *Z. Angew. Phys.* 27 (1969) 73
- [53] M. Ernst, J. Schelten, and W. Schmatz, *Phys. Stat. Sol.(a)* 7 (1971) 469, 477
- [54] U. Denkhaus, *Int. J. Magnet.* 4 (1973)
- [55] U. Denkhaus, J. Schelten, and W. Schmatz, *J. Appl. Cryst.* 7 (1974) 232
- [56] T. Takeda, S. Komura, A. Ohsawa, and K. Honda, *Jpn. J. Appl. Phys.* 26 (1987) 106
- [57] S. Messoloras, J.R. Schneider, R.J. Stewart, and W. Zulehner, *Nature* 336 (1988) 364
- [58] S. Messoloras, J.R. Schneider, R.J. Stewart, and W. Zulehner, *Semicond.*

Sci. Technol. 4 (1989) 340

[59] A.H. Mahan, D.L. Williamson, B.P. Nelson, and R.S. Crandal, Phys. Rev. B40 (1989) 12024

[60] S.R. Elliot, Adv. Phys. 38 (1989) 1

[61] P. Fratzl, S. Klaumunzer, M. Rammensee, and G. Vogl, Europhys. Lett. 11 (1990) 547

[62] P. Fratzl, J.L. Lebowitz, Acta. Metall. 37 (1989) 3245

[63] J. Schelten, H. Ullmaier, and G. Lippmann, Phys. Rev. B12 (1975) 1772

[64] G.E. Lucas, G.R. Odette, P.M. Lombrozo, and J.W. Sheckerd, Proc. 12th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials, ASTM-STP 870, (American Society for Testing and Materials, 1985) pp.900

[65] J.R. Hawthorne, Proc. 2nd Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, Monterey, CA, USA, Sep. 1985(The American Nuclear Society, 1986) pp.361

[66] T.J. Williams, D. Ellis, D.I. Swan, J. McGuire, S.P. Walley, C.A. English, J.H. Venables, and P.H.N. Ray, Proc. 2nd Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, Monterey, CA, USA, Sep. 1985(The American Nuclear Society, 1986) pp.393

[67] W.J. Phythian, A.J.E. Foreman, C.A. English, J.T. Buswell, M.G. Hetherington, K. Roberts, and S. Pizzini, Proc. 15th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials, ASTM-STP 1125, (American Society for Testing and Materials, 1992) pp.131

[68] G.R. Odette and G.E. Lucas, Proc. 14th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials, ASTM-STP 1046, vol. 2(American Society for Testing and Materials, 1990) pp.323

[69] P.A. Beaven, F. Fricius, R. Kampmann, R. Wagner, and J.R. Hawthorne, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review, ASTM-STP 1011, vol. 3 (The American Testing and Materials, 1989) pp.243

- [70] G. Solt, F. Frisius, and W.B. Waeber, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review(Third Volume), edited by L.E. Steele, pp.229, Philadelphia : American Society for Testing and Materials. (1989)
- [71] J. Boehmert, M. Grosse, and P. Nitzsche, *Physica* B234-236 (1997) 997
- [72] J.T. Buswell et al, CEBG Report DE8670325 GAR (1985).
- [73] J.T. Buswell, W.J. Phythian, R.J. McElloy, S. Dumbill, P.H.N. Ray, J. Mace, and R.N. Sinclair, *J. Nucl. Mater.* 225 (1995) 196
- [74] G.R. Odette and G.E. Lucas, Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review(Second Volume),ASTM-STP 909 vol.2 edited by L.E. Steele, pp.206, Philadelphia:American Society for Testing and Materials. (1986)
- [75] S.B. Fisher and J.T. Buswell, *Int. J. Press. Vessel Piping* 27 (1987) 91
- [76] T.J. Williams, P.R. Burch. C.A. English, and P.H.N. Ray, *Proc. 3rd Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors*, Traverse city, MI. USA (The metallurgical Society, 1988) pp.121
- [77] M. Valo, R. Krause, K. Saarinen, P. Hautojarri, and J.R. Hawthorne, *Proc. 15th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials*, ASTM-STP 1125, (The American Society for Testing and Materials, 1992) pp.172
- [78] J.T. Buswell, P.J.E. Bischler, S.T. Fenton, A.E. Ward, and W.J. Phythian, *J. Nucl. Mater.* 205 (1993) 198
- [79] M.J. Makin and F.J. Minter, *Acta. Metall.* 8 (1960) 691
- [80] J.A. Potton, G.J. Daniel, and B.D. Rainford, *J. Appl. Cryst.* 21 (1988) 663
- [81] J.A. Potton, G.J. Daniel, and B.D. Rainford, *J. Appl. Cryst.* 21 (1988) 891
- [82] P.A. Beaven, F. Frisius, R. Kampmann, R. Wagner, and J.R. Hawthorne, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review, ASTM-STP 1011, vol.3(The American Society for Testing and Materials, 1989) pp.243
- [83] G. Solt, F. Frisius, W.B. Weaber, and P. Tipping, *Proc. 16th Int. Symp. on*

Effects of Radiation on Materials, ASTM-STP 1175 (The American Society for Testing and Materials, 1993) pp.444

[84] C.A. English, W.J. Phythian, J.T. Buswell, J.R. Hawthorne, and P.H.N. Ray, Proc. 15th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials, ASTM-STP 1125, (The American Society for Testing and Materials, 1992) pp.93

[85] M.K. Miller and M.G. Burke, Proc. 14th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials, ASTM-STP 1046, vol.2 (The American Society for Testing and Materials, 1990) pp.107

[86] W.J. Phythian, N. de Diego, J. Mace, and R.J. McElroy, Proc. 16th Int. Symp. on Effects of Radiation on Materials, ASTM-STP 1175, (The American Society for Testing and Materials, 1993) pp.462

[87] W. Schilling and . Schmatz, Phys. Stat. Sol. 4 (1964) 95-101.

[88] B. Kaiser, Dissertation, Technische Univ. Munchen, (1970)

[89] M. Ruhle, Phys. Stat. Sol. 19 (1963) 263-295.

[90] J.E. Thomas, T.O. Baldwin, and P.H. Dederichs, Phys. Rev. B3 (1971) 1167-1173

[91] B.C. Larson, F.W. Young and W. schmatz, (1974)

[92] R.W. Hendricks, J. Schelten, and W. Schmatz, J. Appl. Cryst., 7 (1974) 223

[93] J.E. Epperson, R.W. Hendricks and K. Farrell, (1974)

[94] R. Coppola et al, Nucl. Instr. Meth. A280 (1989) 583.

[95] G. Albertini et al, J. Nucl. mater. 179-181 (1991) 706.

[96] L. Brunelli et al, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 675

[97] P. Gondi et al, Proc. Int. Conf. on Physics of Irradiation Effects in Metals, PM'91, 20-24, May 1991.

[98] I.S. Golovin et al, Fiz. Metall. Metallov. 3 (198) 540

[99] H.A. Mook, J. Appl. Phy. 45 (1974) 45

[100] R.W. Hendricks et al, Phil. Mag. 30 (1974) 819

[101] J.E. Epperson, K.W. Gerstenberg, D. Berner, G. Kostorz and C. Oritz, Phil. Mag. A38 (1978) 529

[102] M.H. Yoo et al., Acta. Metall. 30 (1982) 1733

- [103] M.S. Yang et al., *Script. Metall.* 18 (1984) 543
- [104] A. Boeuf et al., *Proc. Int. Conf. on Mech. Behavior and Nuclear Application of Stainless Steels*, Ispira, Italy, 20-22 May (1981) 94
- [105] B. Arnaud et al., *Acta. Metall.* 33 (1985) 1105
- [106] D. Schwahn et al, *Acta. Metall.* 31 (1983) 2003
- [107] W. Kesternich et al, *Scripta Metall.* 18 (1984) 1011
- [108] R. Baur and V. Gerold, *Acta Metall.* 12 (1964) 1449

서 지 정 보 양 식

<b>수행기관보고서번호</b>	위탁기관보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드		
KAERI/ - /					
<b>제목 / 부제</b>	중성자소각산란 응용기술 - 재료과학을 중심으로				
<b>연구책임자 및 부서명 (AR,TR 등의 경우 주저자)</b>	성백석				
<b>연구자 및 부서명</b>	박덕근, 이창희, 한영수(중성자빔 이용 연구)				
<b>출판지</b>	대전	<b>발행기관</b>	한국원자력연구소	<b>발행년</b>	2001
<b>페이지</b>	73 p.	<b>도표</b>	있음( O ), 없음( )	<b>크기</b>	26 Cm.
<b>참고사항</b>					
<b>비밀여부</b>	공개( O ), 대외비( ), __ 급비밀	<b>보고서종류</b>	기술현황보고서		
<b>연구위탁기관</b>		<b>계약번호</b>			
<b>초록 (15-20줄내외)</b>	<p>중성자소각산란(SANS) 기술은 재료내의 불균일성 크기가 1~100nm인 미시구조를 조사하는 데 매우 유용한 기술로 금속재료, 세라믹, 생체거대분자 등 광범위한 분야에서 연구가 활발하게 이루어지고 있다. 하나로 CN 수평공에는 중성자소각산란분광장치(SANS)를 설치하여 성능 시험 중이며, 2001년 중반에는 외부이용자들에게 개방할 예정이다. 본 보고서는 SANS 장치를 이용할 재료 연구자를 위해서 SANS의 일반 이론과 중성자 소각산란에 의한 재료연구 기술 동향을 소개하고자 한다. 아울러 SANS 장치 활용할 재료 관련 연구 분야의 연구 타당성과 기대효과를 검증하고, 이 분야 연구자들에게 향후 실험 방향을 제시하는데 도움을 주고자 한다.</p>				
<b>주제명키워드 (10단어내외)</b>	중성자소각산란분광장치, 중성자, 하나로, 중성자소각산란, 방사선조사손상, 금속재료				

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.		Sponsoring Org. Report No.		Standard Report No.	INIS Subject Code
KAERI/					
Title / Subtitle		Application of Small Angle Neutron Scattering to Materials Science and Engineering			
Project Manager and Department (or Main Author)		B. S. Seong			
Researcher and Department		D. K. Park, C. H. Lee, Y. S. Han(Neutron Beam Applications)			
Publication Place	Taejon	Publisher	KAERI	Publication Date	2001.
Page	73p.	Ill. & Tab.	Yes(O ), No ( )	Size	26 Cm.
Note					
Classified	Open( O ), Restricted( ), ___ Class Document		Report Type	State-of-the Art report	
Sponsoring Org.				Contract No.	
Abstract (15-20 Lines)		<p>The small angle neutron scattering techniques is very useful for the study of microstructural inhomogeneities with size of 1nm to 100nm range in various materials such as metals, ceramics, polymers, boi-molecules, etc. The small angle neutron spectrometer(SANS) has been installed at CN beam port of HANARO reactor. After commissioning it will be opened to internal and external users in the middle of 2001. This report reviews basic theory of SANS and recent trends of materials studied by using SANS technique for the material researchers. We, also, wish to review feasibility of small angle studies for materials science fields at HANARO SANS and to help possible beam time users for their experimental consideration.</p>			
Subject Keywords (About 10 words)		small angle scattering, neutron, SANS, materials, radiation damage, HANARO			