

## 비정질 $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 의 Mössbauer 분포함수 연구

윤성현

군산대학교 물리학과, 군산 573-701

김성백 · 김철성

국민대학교 물리학과, 서울 136-702

(1999년 10월 30일 받음, 1999년 11월 16일 최종수정본 받음)

Mössbauer 분광법을 이용하여 비정질합금  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 의 자기적 성질을 연구하였다. 개선된 Vincze의 방법을 적용하여 각 온도에서 초미세자기장, 이성질체 이동치, 그리고 quadrupole line broadening의 분포함수들을 얻었고 큐리온도는 393 K,  $H_{hf}(0)$ 은 231 kOe로 산출되었다. 환산된 평균 초미세 자기장(reduced average hyperfine field)의 온도 변화는  $S=1$  자기화 곡선에 의해 급히 감소하는 양상을 보였고 이를 설명하기 위해 Handrich의 분자장 이론에서 교환 상호작용의 척도인  $\Delta$ 에  $\Delta = 0.75 - 0.64(T/T_C) + 0.47(T/T_C)^2$ 의 온도 의존성을 도입하였다. 평균 초미세 자기장( $H_{hf}(T)$ )은 저온에서 스핀파 여기에 의한 공식  $H_{hf}(T) = H_{hf}(0) [1 - 0.44(T/T_C)^{3/2} - 0.28(T/T_C)^{5/2} - \dots]$ 으로 분석하였고, 큐리온도 부근에서는 1.00 [ $1 - T/T_C$ ]<sup>0.39</sup>의 관계를 갖는 것으로 나타났다. 초미세 자기장 분포곡선의 선폭은 13 K에서 102 kOe (3.29 mm/s)였으며, 온도가 증가함에 따라 감소했다. 큐리온도 이상에서 평균 quadrupole splitting 값은 0.43 mm/s였으며 quadrupole line broadening에 의한 선폭 증가는 13 K에서 0.31 mm/s였고 320 K에서는 0.23 mm/s로 감소하였다. 반면에 이성질체 이동치 분포에 의한 선폭 증기는 13 K에서 0.1 mm/s, 320 K에서는 0.072 mm/s 정도로 초미세 자기장 분포나 quadrupole line broadening에 의한 선폭 증가보다 작았다. 이성질체 이동치의 온도 변화에 Debye 모형을 적용하여 Debye 온도를  $\Theta_D = 424$  K로 산출하였다.

### I. 서 론

최근 10여 년간 비정질 자기합금은 주요한 연구대상 중에 하나였으며, 그 실용성으로 인해 많은 분야에 응용되고 있다. 이런 합금들은 장거리 구조적 질서를 갖고 있지는 않지만 자기적으로는 강자성(ferromagnetism) 특성을 보이며, 다른 다양한 형태의 좀 더 복잡한 자기적 질서를 나타내기도 한다[1]. 비정질 자기 합금에서는 그 무질서한 원자배열 때문에 교환 상호작용의 세기나 자기능률, 또는 초미세 자기장 등이 특정한 값을 갖는 것이 아니라, 분포를 하게 된다. 더욱이 이런 비정질 상태는 준안정적(metastable)일 경우도 있어서 시간의 경과에 따라 구조적 완화현상을 보이기도 하며, 고온에서 좀 더 안정적인 나노 결정을 형성하기도 한다.

이런 무질서한 강자성체에서의 Mössbauer 스펙트럼은 심하게 중첩되어 있으며, 이러한 스펙트럼을 분석하기 위하여 여러 가지 방법들이 제안되었다. 하지만 비정질의 초미세 매개변수를 구함에 있어서 대부분의 경우 quadrupole splitting과 이성질체 이동치의 분포는 분석 parameter로만 고려될 뿐, 초미세 자기장의 분포를 중점적으로 구해내고 있다. 최근 이런 방법을 비정질 분석에 적용한 대부분

의 연구에서, 비대칭적인 Mössbauer 스펙트럼을 설명하기 위해 복수개의 Gaussian 선형 초미세 자기장 분포를 고려한 결과, 작은 field쪽으로 비대칭적인 꼬리(tail)를 보이고 있다. 그러나 이는 시료전체가 완전한 비정질 상태를 갖는 것이 아니라 자기적으로 불균질한 몇 개의 상(phase)으로 이뤄져있음을 나타내는 것에 불과하다[2].

본 연구에서는 4원계 비정질 합금  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 을 제조하여 온도에 따른 초미세 매개 변수들의 분포 변화를 알아보기자 한다.  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  합금은 비교적 단순한 비대칭적 Mössbauer 스펙트럼을 나타내고 있어 단일 Gaussian 분포 선형을 사용할 수 있으며 상자성 온도 영역에서 상당한 크기의 quadrupole splitting을 보이고 있어 스펙트럼의 분석에 quadrupole splitting과 이성질체 이동치의 분포까지 모두 고려하는 것이 적절할 것이다. 따라서 본 연구에서는 초미세 자기장의 분포뿐만 아니라, quadrupole line broadening과 이성질체 이동치의 분포도 함께 구할 수 있는 개선된 Vincze의 방법[3]을 이용했다.

### II. 실험방법

실험에 사용한  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  합금은 고순도의 원료를

당량비대로 평량하여 진공 아크용해로에서 모합금을 제조한 후 단를 용융(single role melt spinning)법에 의해 제작하였다. 용융상태의 시료를  $0.15 \times 4$  mm의 사각 노즐로  $0.005\sim0.02 \text{ kg/cm}^2$ 의 압력으로 사출하고 40~60 m/s의 roll speed로 박막리본을 제작하였으며, 폭 2~4 mm, 두께 7~12 μm의 박막리본이 만들어졌다. Mössbauer 스펙트럼은 전기역학적 등가속도형 Mössbauer 분광기로 측정하였으며 감마선원은 Dupont 회사제품의 Rh 금속에 확산시킨 실온 상태의 30 mCi  $^{57}\text{Co}$  단일 선원을 사용하였다. 이 실험에서 모든 이성질체 이동치는  $\alpha\text{-Fe}$ 를 기준으로 눈금매기 기를 한 값이다. 저온실험을 위하여 APD CS-202 dispplex 장치와 DMX-20 Mössbauer vacuum shroud를 사용하였고 온도측정은 silicon diode를 이용한 온도조절기(Lakeshore사 DRC-91C 형)을 이용하여  $\pm 0.05 \text{ K}$ 의 온도정밀도를 유지하였다. 고온실험은 고온 dewar (Austin Science Associate사 VF-1000) furnace를 이용하였고, 온도자동 조절기를 사용하여  $\pm 0.1 \text{ K}$  온도 오차 내에서 실험하였다. 저온과 고온 실험 모두 진공도는  $10^{-6} \text{ Torr}$  이상을 유지하였다.

### III. 분석 방법 및 실험 결과

비정질 합금  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  시료의 Mössbauer 스펙트럼을 13 K에서부터 700 K 까지 여러 온도에서 측정하였으

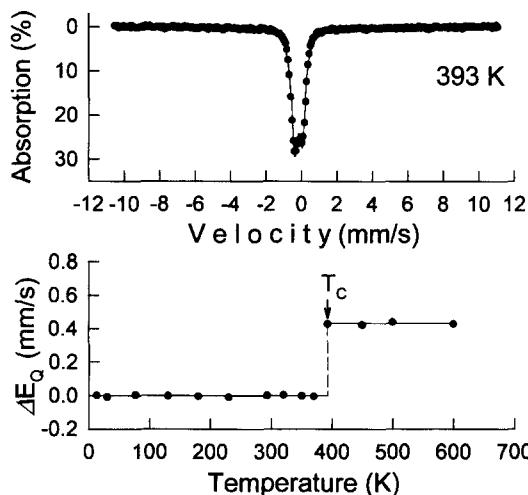


Fig. 2. Mössbauer spectrum of amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy at Curie temperature (393 K), and quadrupole splitting of amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy as a function of temperature.

며, 그 중 대표적인 것을 Fig. 1에 제시하였다. 큐리온도 (393 K) 이하에서는 선폭이 매우 넓은 6개의 공명흡수선이 나타나고 큐리온도 이상에서는 quadrupole splitting에 의한 2개의 흡수선이 나타난다. 큐리온도 이하에서 이와 같이 선폭이 넓어지는 원인은 원자배열이 무질서하기 때문에 각 원자에 작용하는 초미세 상호작용의 세기가 위치

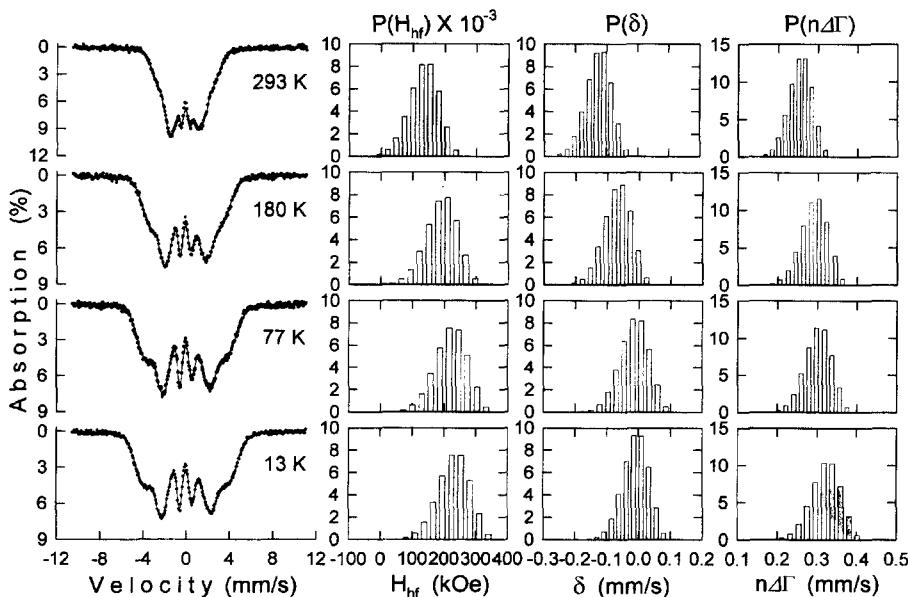


Fig. 1. Mössbauer spectra and hyperfine parameter distributions of amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy at various temperatures.

에 따라 조금씩 달라지는데 기인한다.

Mössbauer 스펙트럼을 단순한 6개의 Gaussian 선형으로 분석한 결과, 큐리온도 이하에서의 quadrupole splitting 값은 0 이었으나, 큐리온도 이상에서는 0.43 mm/s를 나타내고 있다. Fig. 2에 비정질  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  시료의 큐리온도에서의 Mössbauer 스펙트럼과 온도에 따른 quadrupole splitting 값의 변화를 함께 나타냈다. 자기적 질서가 존재할 때는 초미세 자기장이 전기장 기울기 텐서의 세 주축에 대해 임의의 방향을 취할 수 있어서  $E_Q$  값은 평균적으로 0 이 된다. 하지만 초미세 자기장이 사라지면  $E_Q$  값이 나타나게 되는데, 이런 현상은 페라이트 등의 결정성 물질에서도 보고된 바 있다[4].

비록 quadrupole splitting의 평균값은 0이지만, 이 불규칙한 분포에 의한 선폭 증가  $2\Delta E_Q$ 는 0이 아니다. 비정질  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  시료의 큐리온도 이상에서의 quadrupole splitting 값 0.43 mm/s를 고려하면, 선폭 증가는

$$\begin{aligned} 2\Delta E_Q &= [\langle (E_Q - \langle E_Q \rangle)^2 \rangle]^{\frac{1}{2}} \\ &= 2 \left[ \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} \frac{e^4 q^2 Q^2}{64} (3\cos^2\theta - 1 + \eta\sin^2\theta\cos2\phi)^2 \sin\theta d\theta d\phi \right]^{\frac{1}{2}} \\ &= \frac{1}{\sqrt{5}} \frac{e^2 q Q}{2} \left( 1 + \frac{\eta^2}{3} \right)^{\frac{1}{2}} \\ &= \frac{1}{\sqrt{5}} 0.43 \\ &= 0.19 \text{ (mm/s)} \end{aligned}$$

인데, 이와 같이 quadrupole splitting의 분포에 의한 선폭 증가가 상당히 큰 점을 감안해 볼 때, quadrupole-이성질체 이동치 분포도 고려하는 것이 더 정확한 분석임을 알 수 있다. Quadrupole-이성질체 이동치 분포를 고려에 넣은

**Table I.** Values of hyperfine parameters at various temperatures.

T (K)	$\langle H_{hf} \rangle$ (kOe)	$H_w$ (kOe)	$\langle \delta \rangle$ (mm/s)	$\delta_w$ (mm/s)	$\langle n\Delta\Gamma \rangle$ (mm/s)
13	23.0	10.2	-0.011	0.091	0.308
30	22.8	10.1	-0.012	0.101	0.306
77	22.0	10.2	-0.016	0.092	0.301
130	20.7	10.0	-0.042	0.098	0.302
180	19.0	10.0	-0.065	0.087	0.290
230	16.8	9.9	-0.090	0.087	0.277
293	13.4	9.3	-0.127	0.082	0.254
320	11.7	8.5	-0.143	0.072	0.230
393	0.0		-0.181		0.450*

\* FWHM(Full Width at Half Maximum) value.

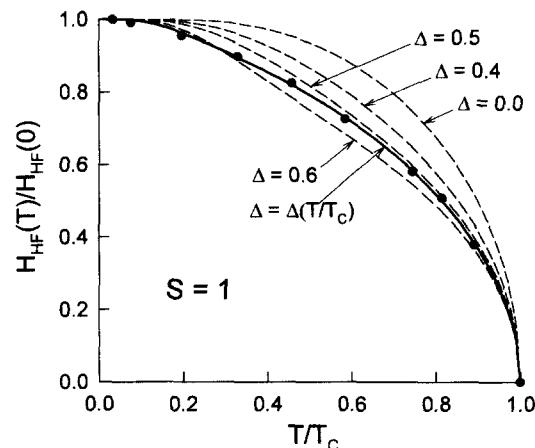
분석 방법으로 Vincze의 방법[5]이 있는데, 여기서는 이성질체 이동치의 분포와 quadrupole splitting의 분포에 의한 선폭 증가를 분리하여 구하기 위하여 Vincze의 방법을 수정한 Ok 등의 분석법[3]을 이용하였으며, 이렇게 구한 초미세 매개변수의 분포를 Table I과 Fig. 1에 나타냈다.

### 3.1. 초미세 자기장의 온도 의존성

각 온도에서 얻은 초미세 자기장의 분포함수로부터 초미세 자기장의 평균치와 그 분포의 폭을 구할 수 있다. Fig. 3에 비정질  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  시료의 환산온도(reduced) 평균 초미세 자기장의 환산온도 의존성을 나타냈는데, 일반적인 스핀  $S=1$ 인 자기화 곡선에 비해 급히 감소한다. Handrich는 이와 같은 현상을 원자들의 무질서한 배치 때문에 야기되는 자기적 교환 상호작용의 fluctuation에 기인하는 것으로 해석하였고, molecular field approximation을 사용하여 reduced magnetization<sup>a</sup> 다음 식으로 주어짐을 보였다[6].

$$\begin{aligned} \sigma(\tau) &= M(T)/M(0) \\ &= H_{hf}(T)/H_{hf}(0) \\ &= \frac{1}{2} \{ B_s(x(1+\Delta)) + B_s(x(1-\Delta)) \} \end{aligned} \quad (2)$$

(2)식에서 이 시료의 magnetization  $M(T)$ 과 초미세 자기장  $H_{hf}(T)$ 가 정비례한다는 사실[7]을 이용하였다. 여기서  $\tau$ 는 환산온도  $T/T_C$ 이고,  $B_s(x)$ 는 Brillouin 함수,



**Fig. 3.** Reduced hyperfine field vs reduced temperature for amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy. The dashed curves are the result of Handrich's calculation using corresponding  $\Delta$  values. The solid curve is the result obtained from Eq. (2) with  $\Delta=0.75-0.64\tau+0.47\tau^2$ .

$x = \frac{g\mu_B SH_W}{k_B T}$ ,  $g$ 는 분광학적  $g$ -인자,  $\mu_B$ 는 Bohr magneton,  $k_B$ 는 Boltzmann 상수이다. 이때

$$\Delta^2 = \langle (\Delta H_W)^2 \rangle / \langle H_W \rangle^2$$

$$= \langle \left( \sum_{i,j} \Delta J_{ij} \right)^2 \rangle / \left( \sum_{i,j} \langle J_{ij} \rangle \right)^2 \quad (3)$$

이고  $H_W$ 는 molecular field,  $J_{ij}$ 는 인접원자간의 교환 상호작용의 세기이다.  $\Delta$ 는 0과 1 사이의 값을 가지며, molecular field fluctuation 또는 교환 상호작용의 fluctuation의 척도를 나타낸다. Fig. 3에 몇 가지  $\Delta$  값에 대한 (2)식의 계산 결과를 나타냈는데,  $\Delta = 0$ 는 무질서가 없는 순수한 결정질 상태에 해당하며,  $\Delta$  값이 증가함에 따라  $\sigma(\tau)$ 는 감소해 가는 경향을 나타낸다.  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 의 초미세 자기장의 온도에 따른 변화는  $\Delta = 0.5$ 인 곡선에 비교적 잘 맞고 있지만, 아직도 실험 값과 (2)식에 의해 계산된 곡선사이에 상당한 차이가 존재한다.

일반적으로 저온에서 Mössbauer 원자가 느끼는 구조적 무질서의 효과는 고온에서 보다 중요해진다. 고온에서는 포논(photon)이 원자의 위치를 훌뜨려서 저온에서 보다 불균일성이 줄어든다. 이는  $\Delta$ 가 상수가 아니고 온도의 함수임을 의미하며, Bhatnagar 등[8]은 이런 실험적 관계를  $\Delta = \Delta_0 (1 - \tau^2)$ 로 표현했다. 여기서  $\Delta_0$ 는 Fe가 다량 첨가된 비정질 합금에서 대략 0.6~0.7 정도의 값을 갖는 것으로 나타났다. 하지만 비정질  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  합금의 경우 fluctuation의 온도에 따른 변화가  $\Delta = 0.75 - 0.64 \tau + 0.47 \tau^2$  일 때 가장 잘 맞는 것으로 나타났고, 그 결과를 Fig. 3에 실선으로 나타냈다. 이렇게 구한  $\Delta$ 는 온도가 증가함에 따라 점차 감소하는데, 여기서 큐리온도에 도달하는 순간에도  $\Delta(\tau)$ 는 사라지지 않는다는 점이 눈에 띠며 이런 결과는  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  합금에서도 보고되었다[9].

### 3.2 $T_C$ 이하에서의 스픬파 여기(excitation)

결정성 강자성체의 경우, 저온 영역에서의 자기화  $M(T)$ 의 감소추세는 Bloch의  $T^{3/2}$  법칙을 따르는 것으로 알려져 있으며, 이는 장파장의 스픬파 여기로 설명된다. 하지만 비정질 시료에서도 이와 같은 온도 의존성이 보고되고 있으며, 그 감소추세가 훨씬 더 가파르다.

$\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 의 초미세 자기장의 온도 의존성도 이 spin wave 이론으로 잘 설명되는 결과를 보이고 있다. 초미세 자기장  $H_{hf}(T)$ 와 자기화  $M(T)$ 가 정비례할 때, Fig. 4에서 보듯이 평균 초미세 자기장은 온도에 따라 다음과

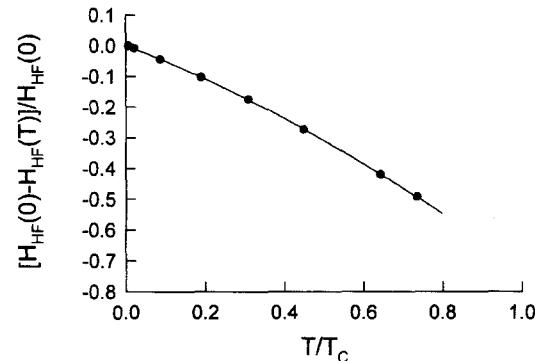


Fig. 4. Fractional change of average hyperfine field as a function of  $(T/T_C)^{3/2}$  for amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy.

같이 극사적으로 변화한다.

$$\frac{H_{hf}(T) - H_{hf}(0)}{H_{hf}(0)} = -B_{3/2} \left( \frac{T}{T_C} \right)^{3/2} - C_{5/2} \left( \frac{T}{T_C} \right)^{5/2} \quad (3)$$

실험에서  $B_{3/2}$ 는 0.44,  $C_{5/2}$ 는 0.28로 산출되었다. 일반적으로 결정질 강자성체의 경우 아주 제한된 극저온 영역 ( $T < 0.15T_C$ )에서만  $T^{3/2}$  법칙이 성립함에 비해 비정질 강자성체의 경우는 좀 더 넓은 영역( $T < 0.5T_C$ )에 걸쳐 성립한다. 더구나  $T^{5/2}$  항까지 고려할 경우엔 (3)식이 0.7  $T_C$  까지도 성립한다. 5원계 비정질 합금  $\text{Fe}_{78}\text{Al}_4\text{Nb}_5\text{B}_{12}\text{Cu}_1$ 에서  $B_{3/2}$ 와  $C_{5/2}$ 는 각각 0.45와 0.25 [10], 3원계 합금  $\text{Fe}_{84}\text{B}_9\text{Nb}_7$ 에서는 0.52와 0.34[11]으로 보고되어 있으며,  $B_{3/2}$ 가 큰 값을 가질수록 저온에서  $M(T)$ 가 더 급히 감소한다.

### 3.3 $T_C$ 근처에서의 임계지수 (critical exponent)

비정질 강자성체에서는 불규칙한 원자 배열 때문에 자성원자간의 교환 상호작용 값이 유일하지 않다. 따라서  $T_C$ 에서의 전이가 날카로운 2차 전이(second order transition)인지, 넓은 온도 영역에 걸쳐 일어나는 전이인지, 날카로운 2차 전이라 하더라도 결정성 자성물질의 그것과 어떻게 다른지 알아볼 필요가 있다. 비정질  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 의 경우, 큐리온도  $T_C = 393$  K는 다른 결정성 자성체에서처럼  $\pm 5$  K 이내에서 날카롭게 정의되는 것으로 나타났다.

일반적으로  $T_C$  근처에서 자기화 또는 초미세 자기장은 다음의 지수함수의 법칙을 만족하는 것으로 알려져 있다.

$$\frac{H_{hf}(T)}{H_{hf}(0)} = D \left[ 1 - \frac{T}{T_C} \right]^\beta \quad (4)$$

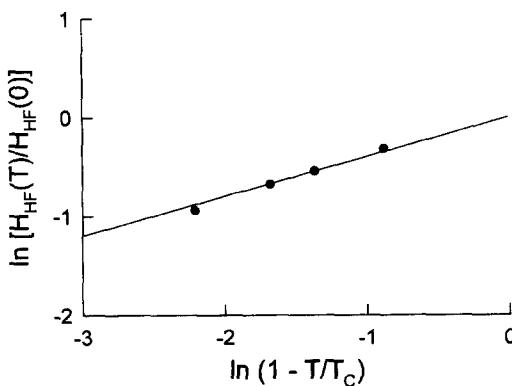


Fig. 5.  $[H_h(T)/H_h(0)]$  vs  $(1-T/T_c)$  for amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy in log-log plot.

여기서  $\beta$ 는 임계지수, D는 1부근의 상수이다. 비정질  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 의  $T_c$  부근의 결과치를 (4)식에 최소자승법으로 분석하여  $\beta = 0.39$ ,  $D = 1.00$ 로 구했고, 그 결과를 Fig. 5에 나타냈다. 그림에서 기울기가  $\beta$ 가 되는 것이다. 이론적으로 3차원 Heisenberg 강자성체의 경우  $\beta = 1/3$ 임이 알려져 있으며, 실험결과는 이와 유사한 값이다. 또한 이런 지수법칙이 결정성 자성물질에서보다 훨씬 넓은 온도 영역에서 만족되는데, 이는 비정질의 무질서한 구조에 기인하는 것으로 해석된다.

#### 3.4 초미세 자기장의 분포에 의한 선폭 증가

초미세 자기장 분포함수를 이용하여 분포의 폭

$$H_w(T) = 2\sqrt{\langle (H(T) - \langle H \rangle)^2 \rangle} \quad (5)$$

을 계산하였으며, 그 결과를 Fig. 6에 나타냈다. 이 값은 13 K에서 102 kOe 정도이며 이는 3.29 mm/s에 해당한다. 온도가 증가하면 이 값은 감소하는데, 이는 3.1절의  $\Delta$ 의

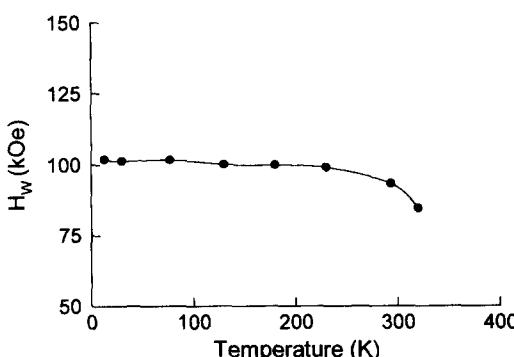


Fig. 6. Distribution width of hyperfine field for amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy as a function of temperature.

감소와 깊은 관련이 있다. 일반적으로 초미세 자기장의 크기는 1, 6번 공명흡수선의 위치에서 구하는데, 일정한 초미세 자기장의 변화에 대해 1, 6번 흡수선의 위치변화는 3, 4번 선의 위치변화보다 약 8.3배나 크다. Fig. 1의 13 K Mössbauer 스펙트럼에서 가장 좁은 선폭을 갖는 3, 4번 흡수선의 평균 선폭이 약 0.7 mm/s이다. 여기서 자연 선폭을 빼더라도 위 102 kOe의 분포 폭에 의한 3, 4번 선폭 증가 0.39 mm/s 보다 크므로 초미세 자기장의 분포만으로는 Mössbauer 스펙트럼의 선폭 증가를 설명하기 어렵다. 따라서 이성질체 이동치와 quadrupole splitting의 분포에 의한 선폭 증가도 무시해 버릴 수 없음을 알 수 있다.

#### 3.5 Quadrupole splitting의 분포에 의한 선폭 증가

Quadrupole splitting의 분포에 의한 평균적 선폭 증가의 온도 의존성을 Fig. 7에 나타냈다. quadrupole splitting의 분포에 의한 선폭 증가분은 13 K에서 0.31 mm/s이고 온도가 증가함에 따라 약간씩 감소하여 320 K 이상에서는 0.22 mm/s 이하로 감소해 간다. 3.7절에서 구할 이성질체 이동치의 분포에 의한 선폭증가가 작다는 사실을 고려해 볼 때, 이는 큐리온도 이상의 doublet 으로부터 구한 선폭과 잘 일치하는 값이다. 큐리온도 이상에서는 초미세 자기장의 분포가 없어지므로 (1) 식에서 구한 분포 폭과 이성질체 이동치의 분포 폭을 합한 것이 바로 전체 선폭 증가분이 될 것이기 때문이다. Fig. 2의 393 K 스펙트럼에서의 평균선폭은 0.45 mm/s로 분석됐는데 이는 여기서 구한 선폭 증가분에 자연 선폭을 합한 값과 거의 일치한다. 또 이렇게 구한 선폭 증가 값이 3, 4번 공명 흡수선의 초미세 자기장 분포에 의한 선폭 증가분에 비해 큰 것으로

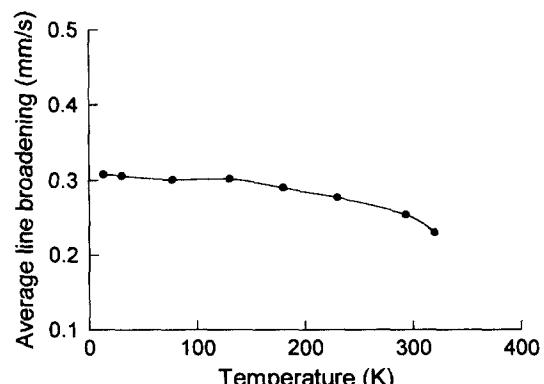


Fig. 7. Quadrupole line broadening for amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy as a function of temperature.

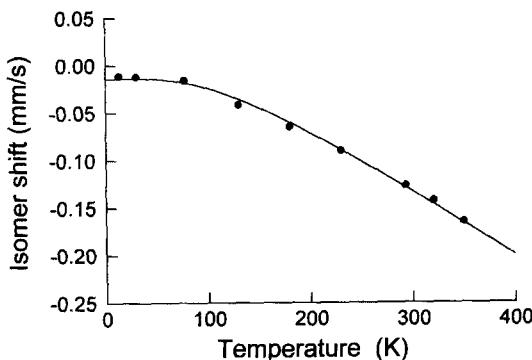


Fig. 8. Temperature dependence of the isomer shift for amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy. Solid curve is the result obtained from Eq. (6) with the Debye temperature  $\Theta_D=424$  K.

로 나타나, quadrupole splitting의 분포를 무시하고 초미세 자기장의 분포만을 구하는 분석방법이 큰 오차를 줄 수 있음을 알 수 있다. Fig. 1에 몇 가지 온도에서의 quadrupole splitting의 분포에 의한 선폭 증가분의 분포함수  $p(n\Delta\Gamma)$ 를 나타냈다. 온도가 증가함에 따라서 이 분포의 폭이 다소 줄어드는 것을 볼 수 있다. 이는  $\Delta E_Q$ 의 분포가  $(\theta, \phi)$ 의 함수일 뿐만 아니라, 동시에 온도에 따라서도 변화함을 말해준다.

### 3.6 Isomer shift와 Debye 온도

이성질체 이동치의 평균값의 온도에 대한 변화를 Fig. 8에 나타냈다. Mössbauer 스펙트럼의 중심이동량(center shift)은 해 내의 s 전자의 밀도에 의한 효과와 온도의 함수인 2차 도플러 효과의 합으로 표시할 수 있다. 그림에서 온도가 증가함에 따라 2차 도플러 효과에 의해 평균 이성질체 이동치는 감소하는데 고온 부분의 이성질 이동치가 선형적(linearly)으로 감소한다고 가정할 때, 그 기울기는 약  $-0.0006 \text{ mm/s} \cdot \text{K}$ 로 나타났다. 원자간에 조화력(harmonic force)에 의한 결합을 가정하고 Debye 모형을 이용하면, 온도에 따른 스펙트럼의 중심이동  $\delta(T)$ 는

$$\delta(T) = a + dT - \frac{9k_B\Theta_D}{16M_C} \times \left[ 1 + 8 \left( \frac{T}{\Theta_D} \right)^4 \Theta_D/T \frac{x^3}{e^x - 1} dx \right] \quad (6)$$

로 표현되는데 [12], 여기서  $M$ 은 Mössbauer 원자의 질량,  $\Theta_D$ 는 Debye 온도이며,  $a$ ,  $d$ ,  $\Theta_D$ 를 최소자승법으로 구해낸다. 비정질  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  합금의 경우,  $a = 0.105$ ,  $d = 1.0 \times 10^{-5}$ , 그리고 Debye 온도  $\Theta_D$ 는 424 K로 산출되었다. 이는 같은 방법으로 구한  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ 의 356 K[13] 보다 높은 것으로,  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$ 의 원자간 결합이

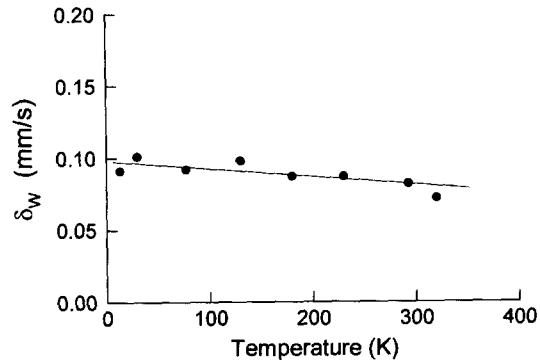


Fig. 9. Distribution width of isomer shift for amorphous  $\text{Fe}_{83}\text{B}_9\text{Nb}_7\text{Cu}_1$  alloy.

더 강함을 나타낸다.

### 3.7 Isomer shift의 분포에 의한 선폭 증가

Fig. 9에 온도에 따른 이성질체 이동치의 분포의 폭  $\delta_W(T)$ 의 변화를 나타냈으며

$$\delta_W(T) = 2\sqrt{\langle(\delta(T) - \bar{\delta})^2\rangle} \quad (7)$$

로 계산하였다. 13 K에서 0.1 mm/s 정도이며 온도 상승에 따라 단조 감소해 가는 것으로 나타났다. 이는 이성질체 이동치 분포로 인한 선폭 증가가 quadrupole splitting 분포로 인한 선폭 증가나 초미세자기장의 분포로 인한 선폭 증가보다 매우 작음(4%이내)을 나타낸다.

## 감사의 글

이 연구는 한국과학재단 (97-0702-0401-5) 지원에 위한 것이며 이에 감사를 드립니다.

## 참 고 문 헌

- [1] D. H Ryan, J. M. D. Coey, E. Batalla, and J. O. Ström-Olsen, Phys. Rev., B **35**, 8630(1987).
- [2] M. Miglierini, and J.-M. Greneche, Czech. J. Phys., **47**, 507(1997).
- [3] K. S. Baek, and H. N. Ok, Phys. Rev., B **28**, 5310 (1983).
- [4] H. N. Ok, K. S. Baek, and E. J. Choi, Phys. Rev., B **40**, 84(1989).
- [5] I. Vincze, Solid State Commun., **25**, 689(1978).
- [6] K. Handrich, Phys. Stat. Sol., **32**, K55(1969).
- [7] C. S. Kim, S. B. Kim, J. S. Lee, and T. H. Noh, J. Appl. Phys., **79**, 5459(1996).
- [8] A. K. Bhatnager, B. Bhanu Prasad, and R. Jagannathan,

- Phys. Rev., B **29**, 4896(1984).
- [9] J. Z. Jiang, J. Magn. Magn. Mater., **154**, 375(1996).
- [10] S. H. Yoon, S. B. Kim, and C. S. Kim, J. Magn. Magn. Mater., to be published.
- [11] C. S. Kim, S. B. Kim, Y. K. Kim, J. S. Lee, T. H. Noh, IEEE Trans. Magn., **32**, 4824(1996).
- [12] G. K. Shenoy, F. E. Wagner, and G. M. Kalvius, Mössbauer Isomer Shift, North-Holland, Amsterdam (1978), pp. 103.

## Distributions of Hyperfine Parameters in Amorphous Fe<sub>83</sub>B<sub>9</sub>Nb<sub>7</sub>Cu<sub>1</sub> Alloys

Sung Hyun Yoon

*Dept. of Physics, Kunsan National University, Kunsan 573-701*

Sung Baek Kim and Chul Sung Kim

*Dept. of Physics, Kookmin University, Seoul 136-702*

(Received 30 October 1999, in final form 16 November 1999)

Amorphous Fe<sub>83</sub>B<sub>9</sub>Nb<sub>7</sub>Cu<sub>1</sub> alloy has been studied by Mössbauer spectroscopy. Revised Vincze method was used and distributions of hyperfine field, isomer shift, and quadrupole line broadening of the sample at various temperatures have been evaluated and Curie temperature and  $H_{hf}(0)$  were calculated to be 393 K and 231 kOe, respectively. Temperature variation of reduced average hyperfine field shows a flattered curve in comparison with the Brillouin curve for S=1. This behavior can be explained on the basis of Handrich molecular field model, in which the parameter  $\Delta$ , which is a measure of fluctuation in exchange interactions, is assumed to have the temperature dependence  $\Delta = 0.75 - 0.64\tau + 0.47\tau^2$  where  $\tau$  is  $T/T_C$ . At low temperature, the average hyperfine field can be fitted to  $H_{hf}(T) = H_{hf}(0) [1 - 0.44 (T/T_C)^{3/2} - 0.28 (T/T_C)^{5/2} - \dots]$ , which indicates the presence long wave length spin wave excitations. At temperature near  $T_C$ , reduced average hyperfine field varies as  $1.00 [1 - T/T_C]^{0.39}$ . It is also found that half-width of the hyperfine field distribution was 102 kOe (3.29 mm/s) at 13 K and decreased monotonically as temperature increased. Above the Curie temperature, an average quadrupole splitting value of 0.43 mm/s was found. Average line broadening due to quadrupole splitting distribution was 0.31 mm/s at 13 K and decreases monotonically to 0.23 mm/s at 320 K, whereas that due to the isomer shift distribution is 0.1 mm/s at 13 K and 0.072 mm/s at 320 K, which is much smaller than that of both hyperfine field and quadrupole splitting. The temperature dependence of the isomer shift can be fitted within the harmonic approximation to a Debye model with a Debye temperature  $\Theta_D = 424 \pm 5$  K.