

## 전자빔 코팅에 의해 제조된 고체산화물 연료전지용 YSZ 전해질 단층 및 다층박막의 기계적 특성 연구

임해상 · 김희재 · 박종완\*

군사과학대학원 재료과학과

\*한양대학교 금속공학과

### A Study on the Mechanical Properties of Single and Multiple layer Thin Film of YSZ Electrolyte Produced by E-beam Coating for Solid Oxide Fuel Cells

Hae-Sang Lim, Hee-Jae Kim and Jong-Wan Park\*

Dept. of Material Science, Advanced Institute of Military Science and Technology, Seoul 139-799

\*Dept. of Metallurgical Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791

(1999년 1월 27일 받음, 1999년 6월 18일 최종수정본 받음)

초 록 고체 산화물 연료전지의 전해질로 주로 사용되는 8mol.% $Y_2O_3$ - $ZrO_2$ 는 전기 전도성은 우수하나 기계적 특성이 좋지 못하므로, 전기적 특성과 기계적 특성이 동시에 우수한 고체산화물 연료전지의 전해질의 개발이 요구되고 있다. 본 연구는 이러한 두 가지 요구조건을 충족시키기 위해서 수행되어졌다. 단위전지의 공기극 재료인 LSM ( $La_{0.7}Sr_{0.2}MnO_3$ ) 기판과 Si wafer를 기판으로 기계적 성질이 우수한 3mol.%의 YSZ (3-YSZ)와 전기 전도성이 우수한 8mol.%의 YSZ (8-YSZ)를 각각 단층 및 다층 박막의 네 가지 형태로 전자빔 코팅에 의해 전해질 막을 제작하였다. 박막층의 분석결과, 결정조직은 증착된 3-YSZ 박막이 정방정 및 일부 단사정 구조, 8-YSZ 박막은 입방정 구조의 결정성이 나타났다. 단층막 보다 다층막이 낮은 내부 응력을 보였으며, 다층막이 기존의 8-YSZ 단층막의 열처리 전, 후와 비슷한 미세 경도 값을 보였다.

**Abstract** The 8mol.% $Y_2O_3$ - $ZrO_2$  mainly employed as an electrolyte of solid oxide fuel cells(SOFCs) shows excellent electrical properties but has a weakness in the mechanical properties. Since the electrolyte of SOFCs requires both good electrical and mechanical properties, this study was conducted to meet both requirements. The electrolyte thin films were produced on the LSM(cathode material) substrate of a cell and Si wafer. Four electrolyte film types of single layer and the multiple layer, consisting of 3-YSZ (3mol.% $Y_2O_3$ ) with excellent mechanical properties and 8-YSZ with the excellent electric conduction, were produced by electron beam coating technology. The crystal structure and the mechanical properties were also analysed. As the results of the study, the 3-YSZ thin film turned out to be in the tetragonal, partially monoclinic phase, while the 8-YSZ thin film showed the cubic phase. The residual stress in the multiple layer was lower than that of the single layer. The microhardness of the multiple layer was similar to that of the existing 8-YSZ single layer both before and after annealing treatment.

### 1. 서 론

고체산화물 연료전지에서 연료극과 공기극사이의 고체 전해질로 많이 쓰이고 있는 재료인 지르코니아( $ZrO_2$ )는 1937년 Bauer와 Preis<sup>1)</sup>에 의해 최초로 보고되었다. 한편으로 박판을 전해질로 사용하는 경우에는 전기전도도가 높아야 할 뿐만 아니라, 연료와 산소의 혼합을 막기 위하여 밀도도 높으면서 강도와 인성 또한 충분하여야 하는데,<sup>2)</sup> 지르코니아 재료의 경우 1972년 Garvie에 의해 상변태를 이용하여 높은 인성과 강도를 얻을 수 있음이 증명되었다.<sup>3)</sup> 현재는 산소이온 전도성이 높은 8mol.%의 이트리아를 첨가하여 안정화된 8-YSZ (8mol.%  $Y_2O_3$ - $ZrO_2$ ) 조성을 갖는 이트리아 안정화 지르코니아(yttria stabilized zirconia: YSZ)가 많이 쓰이고 있다. 그러나 8-YSZ 박막은 전기적 성질은 우수하나 기계적 특성이 좋지 못하여 화합물

연료전지의 작동온도 1000℃에서 실제 실용화에 어려움이 많은 실정이다. 또한 고체전해질에 사용하는 지르코니아의 전기저항 값은 낮을수록 연료전지의 출력이 향상되므로 가능한 한 그 값이 낮아야 한다. 그러나 전기저항을 낮추기 위해 두께를 얇게 하면 박막의 강도가 떨어지므로 전기전도성이 우수하면서도 기계적 성질이 좋은 전해질 박막을 개발하는 것이 과제이다.

따라서, 본 연구에서는 전기적 특성이 좋은 8-YSZ과 기계적 특성이 8-YSZ에 비해서 좋은 3-YSZ에 대해서 단층 및 다층막을 형성하여 열처리 온도별 YSZ박막의 결정 구조 및 표면 형상 분석과 기계적 특성 변화에 대한 고찰을 행하였다.

### 2. 실험 방법

본 연구에서 YSZ 박막을 지르코늄(Zr)과 이트륨(Y)의

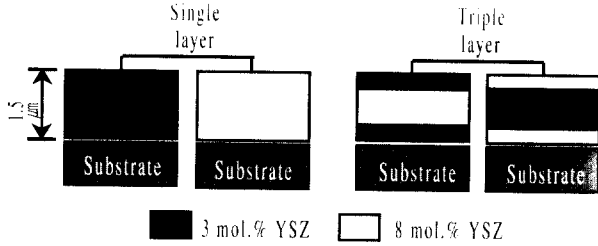


Fig. 1. Four types of thin film layer production.

금속 화합물을 이용하여 전자빔 코팅으로 Fig. 1과 같이 4 가지 형태로 제조하였다. 제조 방법은 전기적 특성이 우수한 8-YSZ와 기계적 성질이 우수한 3-YSZ를 단층막과 교대로 적층한 다층박막을 LSM 기판과 Si wafer 기판 위에 전자빔 코팅을 이용하여 실험실 수준인 두께 1.5 $\mu$ m로 증착하였다. 일반적으로 고체 전해질의 내부 응력이나 저항을 감소시키기 위해서는 박막(10 $\mu$ m 수준)으로 제작하여야 하는 것으로 알려져 있다.<sup>4)</sup> 또한, 증착한 박막을 여러 가지 공정변수 및 적층구조에 따른 결정조직과 기계적 특성(잔류응력 및 미세경도)을 측정하여 물성의 변화를 비교 분석하였으며, 그 결과로 전자빔 코팅에 의한 최적의 증착공정 조건을 구하고자 하였다.

고체전해질 재료(증착원)는 산화물인 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 분말 3mol.%와 8mol.%를 ZrO<sub>2</sub> 분말에 각각 혼합하여 화합물을 제조한 후 직경 10mm의 금형을 사용하여 200 kgf/cm<sup>2</sup>의 일방축의 힘을 가하여 disc 형태로 성형하였다. 이후 성형된 YSZ pellet를 1400 $^{\circ}$ C에서 2시간 소결한 것과 1100 $^{\circ}$ C에서 3시간 동안 소결한 것을 노냉 후 박막 증착용 재료로 사용하였다.

Si wafer기판은 stress 측정용(2 $\times$ 2cm), 두께 및 경도 등 기타 측정과 분석용(1 $\times$ 1cm)으로 준비하였다. 증착하기 전에 기판에 묻어 있는 각종 유기 및 무기물질을 제거하기 위하여 초음파와 세척기로 세정하고 질소가스로 크리닝 후에 증착을 하였다.

LSM (La<sub>0.75</sub>Sr<sub>0.25</sub>MnO<sub>3</sub>) 기판 제조는 순도 99.9%의 LSM powder (Kojundo Chemical Lab. Co., Ltd., Japan)를 사용하여 crushing한 후 직경 10mm의 금형을 사용하여 200 kgf/cm<sup>2</sup>의 일방축의 힘을 가하여 disc 형태로 성형을 하였다. 이후 성형된 LSM 기판을 1400 $^{\circ}$ C에서 2시간 동안 소결하고 표면을 연마한 후 YSZ 박막을 증착하였다.

증착 장치는 electron beam evaporation 장비를 사용하였으며, 증착 조건은 7 $\times$ 10<sup>-4</sup> torr까지의 예비진공으로 배기한 후, 5 $\times$ 10<sup>-5</sup> torr의 고진공에 도달하면 4KV, 50mA의 power로 5분간 증착물 표면의 오염물질을 제거하기 위하여 예비처리를 실시하였다. 그후, 5 $\times$ 10<sup>-5</sup> torr의 압력에서 3mol.%와 8mol.%의 단층 및 다층의 YSZ 박막을 증착하였으며, 기판 온도는 상온에서 실험을 행하였다.

제조한 YSZ 증착층의 표면 조직 분석은 주사전자현미경 (JEOL JSM 6300)과 원자력 탐침 현미경 (AFM, PSI Autoprobe-CP)으로 관찰하였고, 결정구조 분석은 X-선

회절분석기 (Rigaku, RAD-C)로, 증착된 시편의 두께는 표면탐침법 (Tencor,  $\alpha$ -step 200)을 이용하여 측정하였다. 기계적 특성분석을 위하여 박막 응력 측정장치 (Tencor FLX-2908)와 미세경도측정기 (Antonix Microhardness-Tester, Matsuzawa, MXT- $\alpha$ )가 이용되었다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 LSM 기판의 특성 분석

Fig. 2는 소결온도에 따른 LSM 펠렛 (pellet)의 표면형상을 나타낸 것으로 소결온도가 증가할수록 기공 크기가 감소하며, 조밀해졌다. 특히 1400 $^{\circ}$ C에서 2시간 동안 소결한 LSM 펠렛은 작은 구상 입자들로 구성된 가장 조밀한 구조를 보여주고 있다.

Fig. 3은 소결 온도 증가에 따라 겉보기 기공율은 감소한 반면 굽힘 강도가 증가함을 보이고 있다. 1400 $^{\circ}$ C에서 2시간 소결된 시편은 약 11%의 겉보기 기공율과 24 MPa의 굽힘 강도를 보이고 있는데, 이는 일반적인 LSM 물질의 강도가 약 30 MPa임을<sup>5)</sup> 감안할 때 비교적 양호한 강도를 보인 것으로 간주할 수 있다. 본 실험에서는 기판의 강도를 우선적으로 고려하여 1400 $^{\circ}$ C에서 2시간을 LSM 기판의 소결 조건으로 결정하였다.

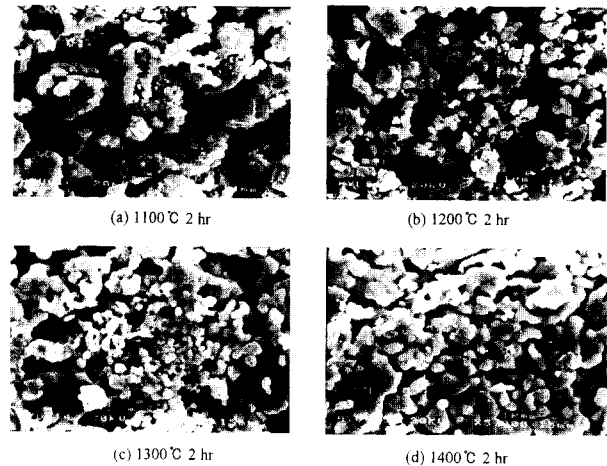


Fig. 2. SEM micrographs of sintered LSM substrate at different sintering temperatures.

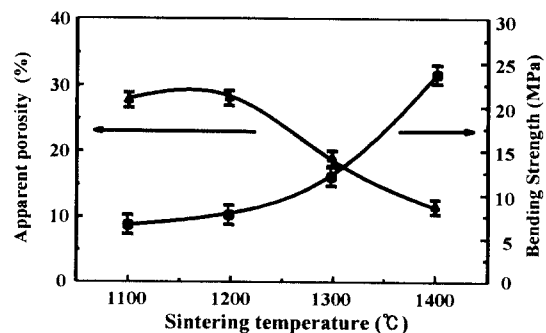


Fig. 3. Apparent porosity and bending strength of sintered LSM substrate at different sintering temperatures.

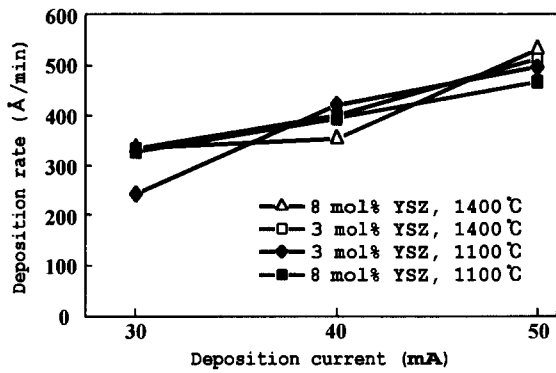


Fig. 4. Deposition rates of YSZ films produced from electron beam evaporation method.

3.2 YSZ 박막의 증발원 제작 및 증착조건 결정

Fig. 4는 1100°C와 1400°C에서 소결된 YSZ 증발원에 가해지는 전류가 증가할수록 증착속도가 증가함을 보여주고 있다. 그림에서처럼 증착 속도가 가장 높은 조건은 50mA에서 소결온도가 1400°C인 경우이나, 소결온도에 따른 증착률의 차이가 적어서 낮은 온도 조건인 1100°C, 50mA를 증발원의 소결 조건으로 선정하였다.

3.3 박막의 조성분석

Table 1은 증착된 YSZ 박막의 조성을 지르코늄과 이트륨의 성분비를 EDS로 구한 후 이론값 (3 또는 8mol.%  $Y_2O_3-ZrO_2$  화합물 속에 포함된 Y의 함량비)과 비교하였다. 이 분석 결과를 토대로 전자빔 코팅으로 YSZ 증발원( $Y_2O_3$  분말과  $ZrO_2$ 분말의 합성)을 제조하기 위하여 출발물질 (starting materials)의 조성에 대한 증착된 YSZ 박막의 조성을 Fig. 5처럼 비교하였는데, 출발물질의  $Y_2O_3$  몰비에 대한 증착된 YSZ 박막의 이트륨(Y) 함량비는 비례적으로 증가함을 보였다. 이러한 분석 결과, 3-Y-YSZ 박막 제조에는 YSZ 증발원 출발물질이 6.2mol.%  $Y_2O_3$ 와 93.8mol.%  $ZrO_2$ 가, 8-Y-YSZ 박막제조에는 10.5 mol.%  $Y_2O_3$ 와 89.5mol.%  $ZrO_2$ 의 분말이 사용되어야 하며, 이 조건으로 증발원을 제작하였다.

Table 1. EDS results of YSZ thin films.

specimen	Yttria content (%)	
	Theoretical	Experimental
3mol.% YSZ	5.4	5.65
8mol.% YSZ	13.7	14.76

3.4 전류 변화에 따른 YSZ 박막의 특성

Fig. 6은 YSZ 증발원에 가해진 전류의 크기에 따른 결정성 변화를 XRD 분석을 보인 것이다. 3-YSZ 박막의 결정성은 YSZ 증발원에 가해지는 전류의 크기가 커질수록 정방정(tetragonal) (111)의 peak이 증가하였는데, 이는  $CaF_2$  형식구조에서 (111)면이 가장 표면에너지가 낮기 때문인 것으로 사료된다. 또한 정방정상(tetragonal phase) 외에 M으로 표시한 단사정상(monoclinic phase)

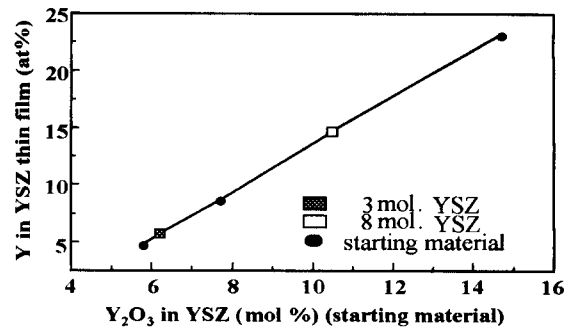


Fig. 5. Yttrium composition analysis of YSZ thin film deposited with  $Y_2O_3$  content of starting materials.

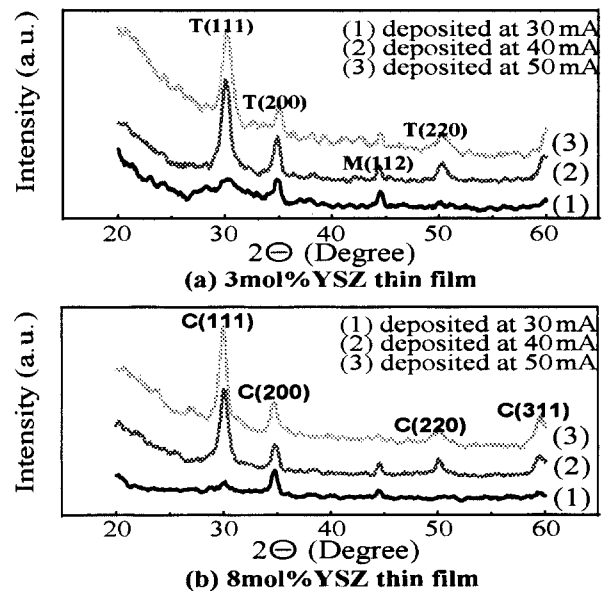


Fig. 6. XRD patterns of YSZ thin films deposited from YSZ source sintered at 1400°C.

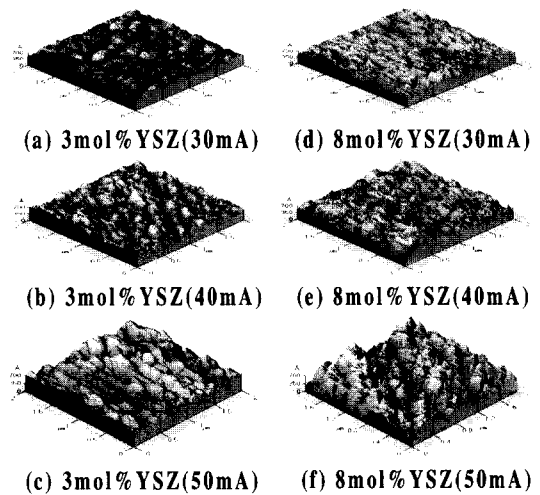
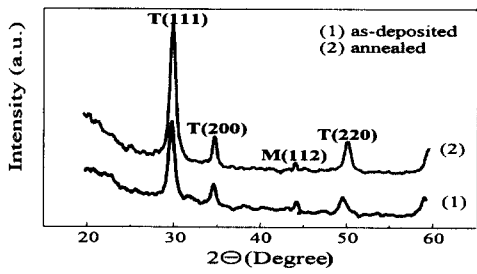
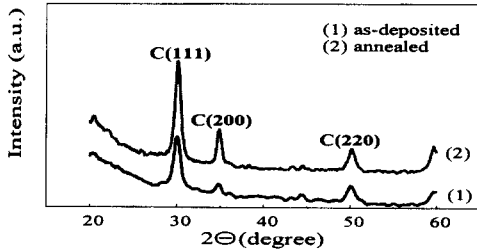


Fig. 7. AFM images of 3mol.% and 8mol.% YSZ thin films deposited from YSZ source sintered at 1400°C.

도 혼재하고 있는 것으로 나타났다. 8-Y-YSZ 박막의 경우 입방정상이 형성되었으며 전류 크기가 증가함에 따라 3-Y-YSZ 박막의 경우와 같이 (111)면이 크게 성장함을 알 수



(a) 3mol%YSZ thin film



(b) 8mol%YSZ thin film

Fig. 8. XRD patterns of YSZ thin films deposited on Si substrate from YSZ source sintered at 1100°C.

있었다. 또한 증착 전류가 50mA 일 때 형성한 YSZ 박막의 결정성이 가장 우수하게 나타났다.

Fig. 7은 YSZ 증발원에 가해진 전류의 크기가 증가할수록 표면 거칠기가 증가함을 보여주고 있다. 이는 전류의 크기 증가에 따른 증착 속도 증가로 증발된 YSZ 입자들의 운동에너지가 커져서 기판 표면에 높은 충돌 에너지로 증착되어 표면이 더 거칠어진 것으로 여겨진다.

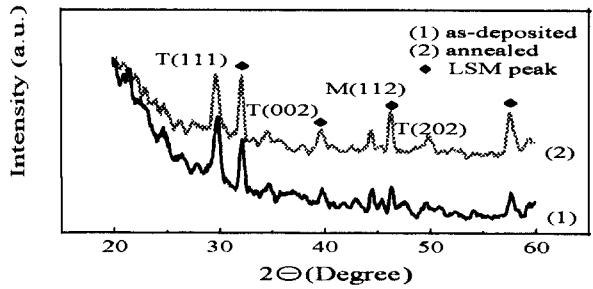
8-YSZ 박막의 표면 거칠기는 3-YSZ 박막 보다 높은 표면 거칠기를 나타내었다. 이는 8-YSZ 박막의 평균 증착 속도가 3-YSZ 박막의 평균 증착 속도보다 크기 때문인 것으로 여겨진다. 표면 거칠기의 측정은 음극 위에 증착된 YSZ 전해질 박막이 양극과의 접합성 및 전극반응에서 표면 거칠기의 증가로 인한 전극접촉 면적의 변화가 전도성에 미치는 영향을 알아보기 위해서였다.

### 3.5 YSZ 박막에서의 열처리 효과

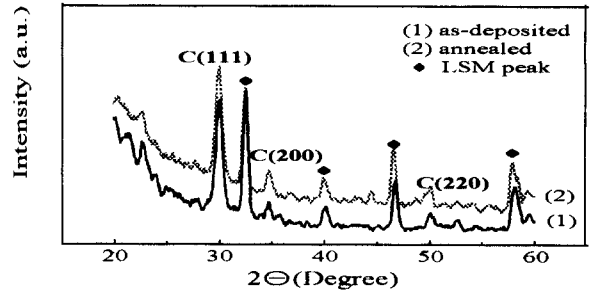
Fig. 8은 YSZ 분말을 1100°C에서 소결하여 50mA에서 Si wafer기판 위에 증착한 YSZ 박막의 XRD 분석 결과를 나타낸 것이다. 3-YSZ 박막의 경우, 1400°C에서 소결한 증발원으로 제조된 YSZ 박막(Fig. 6(a))과 유사하게 정방정상과 단사정상이 관찰되었다. 또한 증착 후 500°C에서 1시간동안 열처리한 후 증착한 YSZ 박막에는 (111)면의 결정성이 향상되었음을 볼 수 있었다. 8-YSZ 박막의 경우에서도 Fig. 6(b)의 결과와 유사하게 입방정상이 형성되었으며 열처리를 한 후 (111)면의 결정성이 상당히 향상되었다.

따라서 500°C에서 1시간동안의 열처리하는 과정은 전자빔 코팅으로 제조된 YSZ 박막의 결정성을 향상시켰다.

Fig. 9는 LSM 기판 위에 50mA로 증착한 YSZ 박막의 XRD 분석 결과를 나타낸 것이다. 증착된 3-YSZ와 8-YSZ 박막의 결정성은 Fig. 8의 Si 기판 위에 증착된 YSZ

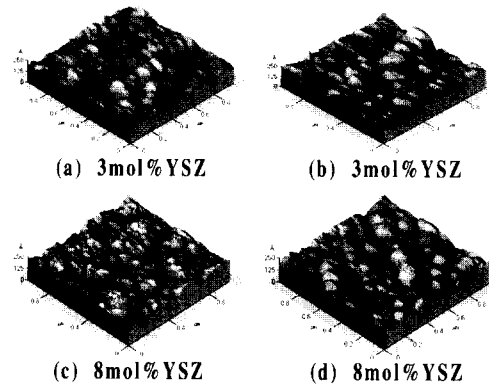


(a) 3mol%YSZ thin film



(b) 8mol%YSZ thin film

Fig. 9. XRD patterns of YSZ thin films deposited on LSM from YSZ source sintered at 1100°C.



구분	rms(Å)	
	3-YSZ	8-YSZ
As-deposited	(a) 20.5	(c) 19.1
Annealed	(b) 29.3	(d) 23.7

Fig. 10. AFM images of YSZ thin films deposited from YSZ source sintered at 1100°C.

박막의 경우와 유사한 결과를 보였으며, 후열처리를 한 후 입방정 (111)면의 결정성이 다소 향상된 것으로 나타났다. 이렇게 1100°C에서 소결된 YSZ 증발원에 의해 제조된 YSZ 박막의 표면거칠기의 변화를 Fig. 10에 나타내었는데, Fig. 7에 보인 1400°C 소결한 YSZ 증발원으로부터 증착된 시편의 거칠기에 비해 다소 낮은 표면 거칠기를 보이고 있다. 이러한 결과는 50mA의 전류와 1400°C에서 소결된 증발원으로부터 제조된 YSZ 박막의 증착속도가 1100°C 소결된 YSZ 증발원에 의해 제조된 YSZ 박막의 증착 속도보다 더욱 크기 때문인 것으로 사료된다. 이상의 실험 결과를 볼 때 1400°C의 50mA에서 증착했을 때와 1100

℃의 50mA로 증착 후 500℃에서 1시간 열처리했을 때 비슷한 거칠기 값과 결정성을 보여 주었다. 결국 전자빔 코팅에 의한 YSZ 박막의 증착은 YSZ 증발원을 1100℃에서 소결하고 전류를 50mA로 했을 때가 비교적 좋은 조건인 것으로 나타났다.

3.6 열처리 온도별 YSZ박막의 특성

증착된 YSZ 박막을 500~900℃에서 1시간 열처리한 8-YSZ 박막의 결정성 변화를 Fig. 11에 나타내었다. 그림에서처럼 후열처리 온도가 증가함에 따라 입방정 (111)면 이외는 차이가 거의 없게 나타났다. 즉, 후열처리 온도가 YSZ 박막의 결정성에 큰 변화를 초래하지 않았다. 한편으로 후열처리 온도에 따른 YSZ 박막 (Si 기판위에 증착)의 표면 상태를 확인하기 위해 SEM 분석을 실시한 결과 Fig. 12와 같은 표면형상을 보였다.

SEM 사진에서처럼 후 열처리 온도가 700℃까지는 표면에 어떠한 균열이나 결함이 관찰되지 않았으나 800℃에서 균열이 발생하기 시작하여 900℃로 후열처리한 경우에는 균열이 심하게 발생하였다. 이러한 실험 결과는 전자빔 코팅에 의해 제조된 YSZ 박막은 증착 직후는 조밀하지 않으나 후열처리를 하면 형성된 입자가 성장하면서 조밀화가 진행됨에 따라 증착입자 사이의 기공들이 결합하여 균열을 생성하기 때문으로 여겨진다.

따라서 전자빔 코팅에 의해 제작된 YSZ 박막의 후 열처

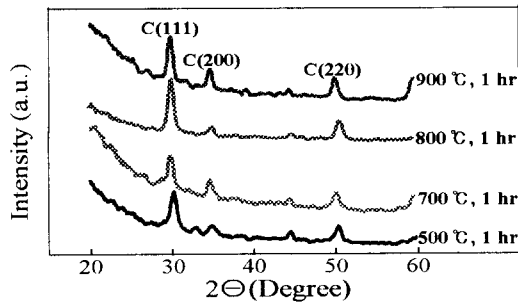


Fig. 11. XRD patterns of 8mol.% YSZ thin film as a function of post-annealing temperature.

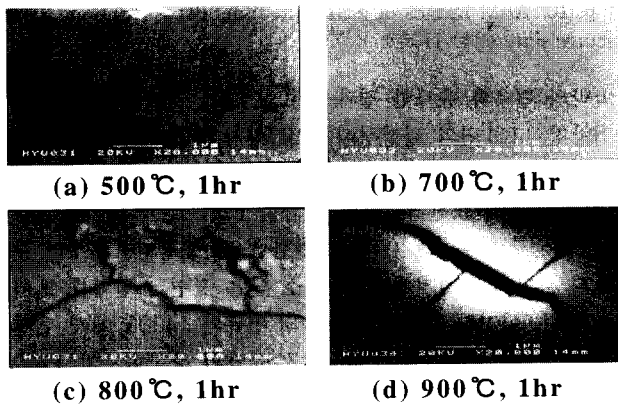


Fig. 12. SEM images of 8mol.% YSZ thin films as a function of post-annealing temperatures.

리 온도는 XRD와 SEM 분석에 의해 500℃에서 실시하는 것이 좋은 조건인 것으로 생각되어진다.

3.7 YSZ 박막의 응력 및 경도 분석

Fig. 13은 3-YSZ와 8-YSZ의 단층 및 다층막(두께 1.5μm)으로 제작한 증착층의 열처리 전, 후 응력 측정 결과이며 측정값은 Table 2에 열거하였다.

Fig. 13에서처럼 증착된 모든 시편에서 인장응력을 받고 있는 것으로 나타났는데 단층막의 인장응력은 높은 반면에 다층막은 낮게 나타났다. 열처리 후에는 증착 직후의 응력보다 많이 감소하였는데, 3-YSZ 단층 박막의 내부응력이 급격히 감소하여 변화가 제일 크게 나타났다. 한편, 단층 8-YSZ 박막의 경우는 응력 변화가 거의 나타나지 않았다.

3/8/3-YSZ 다층막의 열처리에서, 외부층(3-YSZ)은 Fig. 13(a)에서 보인 것처럼 응력이 급격히 감소하고 내부층(8-YSZ)은 Fig. 13(b)처럼 변화가 거의 없는 상태에서 전체응력은 열충격 저항이 우수한 3-YSZ 박막층이 주도하여 극히 낮은 인장응력 상태를 보이고 있는 것으로 여겨진다. 반면에 8/3/8-YSZ 다층막의 경우는 시험편 중에서 가장 낮은 인장 응력값과 열처리 후에는 압축응력이 발생하였다. 그 이유는 중간층에 위치한 3-YSZ 박막층의 응력이 급격히 감소하는 반면 외부의 양쪽 8-YSZ는 응력 변화가 거의 일어나지 않아서 외부에서 내부로 압축응력이 작용한

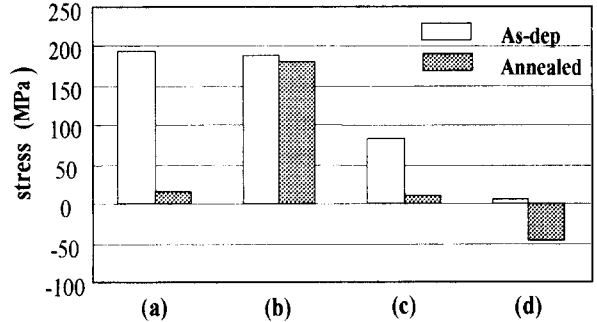


Fig. 13. Average residual stresses of deposited YSZ thin film. (a) 3-YSZ (b) 8-YSZ (c) 3/8/3-YSZ (d) 8/3/8-YSZ

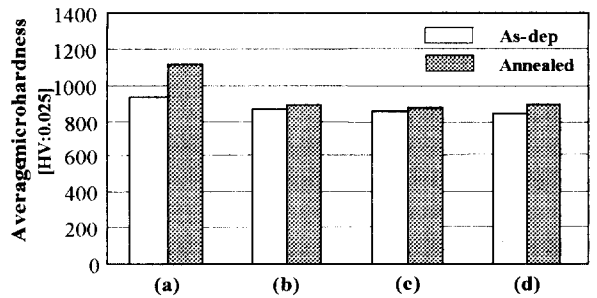


Fig. 14. Average microhardness of deposited YSZ films. (a) 3-YSZ (b) 8-YSZ (c) 3/8/3-YSZ (d) 8/3/8-YSZ

것으로 사료된다.

이상과 같이 열처리로 인한 박막의 응력 감소 현상은 증착시 조밀하지 않은 상태에서 받고 있던 응력이 열처리를 통하여 확산되면서 응력완화효과(stress relief effect)가 발생하여 내부잔류응력이 감소한 것으로 판단된다.

Fig. 14는 Fig. 13과 같은 조건으로 500°C에서 1시간동안 열처리 전, 후의 Vickers 미세경도를 측정한 결과이다.

Fig. 14에서 나타난 것처럼 3-YSZ의 단층박막의 경우가 가장 높은 경도값을 나타내었는데, 이것은 일반적으로 3-YSZ의 기계적 특성이 8-YSZ보다 우수한 것으로 알려진 결과와 일치하고 있다.<sup>3,6)</sup> 특히 기존의 고체산화물 연료전지의 전해질로 많이 사용되는 8-YSZ와 삼층으로 증착된 박막들의 경도값은 비슷하게 나타났으며 증착후 열처리된 경우에도 미세경도 값의 큰 변화는 없었다.

### 3.8 YSZ 박막의 기계적 특성분석 결과

본 실험에서 동일한 두께로 증착한 시험편의 경우 다층박막이 단층박막에 비하여 Fig. 13에서 나타난 것처럼 내부 잔류응력이 크게 감소하였음에도 불구하고 미세 경도값이 큰 차이가 없는 이유는 다층으로 제작된 경우 층 경계면이 전위의 이동을 억제하는 역할을 하였기 때문으로 여겨진다. 또한 8/3/8-YSZ 구조의 삼층 박막은 가장 낮은 인장응력 값과 열처리 후, 낮은 값의 압축응력을 보여주었다. 고체전해질은 세라믹 재료 특성상 압축응력 보다는 인장응력에 취약한 점이 있으며, 단위전지(cell)로 구성된 다층 복합체(multilayer composites)의 고체산화물 연료전지는 구성 재료들을 제조하여 적층할 때 압축응력이 가해지면 재료의 안정성에 일부 도움이 될 수 있다는 연구 결과도 있다.<sup>7)</sup>

따라서 고체산화물 연료전지용 전해질막을 단층으로 제작한 것보다 다층으로 제작하면, Fig. 13처럼 열에 의해 변화되는 내부응력의 변화로 인한 열충격으로 발생하는 균열을 억제하면서도 어느 정도 범위에서 기계적 강도(경도값)를 유지할 수 있으므로 고체산화물 연료전지의 전해질막으로 사용시 재료 특성을 개선할 수 있을 것으로 여겨진다.

## 4. 결 론

본 연구는 고체산화물 연료전지(SOFC)용 고체전해질로 사용되고 있는 YSZ 전해질막을 전자빔 코팅으로 제작할 수 있는 최적의 공정조건을 구하고자 하였다. 그리하여 기계적 성질이 향상된 새로운 고체전해질을 개발하기 위해 3mol.% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub>(3-YSZ)와 8mol.% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub>(8-YSZ) 막을 각각 단층 및 다층으로 전자빔 코팅에 의해 동

일한 두께로 제작한 후 이들 증착막의 재료 특성을 분석하여 다음과 같은 결론을 구하였다.

1) 1400°C에서 2시간 소결하여 제작한 LSM 기판의 결보기 공율은 11%, 3점 곡강도는 24MPa를 보였다.

2) 전자빔 코팅으로 YSZ 증발원에 인가한 전류가 증가할수록 증착율이 증가하여 50mA에서 최대 증착율(500 Å/min)을 보였으며 최적의 소결조건은 1100°C이었다.

3) 3-YSZ와 8-YSZ 박막의 증착은 각각 6.2mol.% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub>와 10.5mol.% Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZrO<sub>2</sub> 조성을 가진 증발원을 출발물질로 사용할 경우에 가능하였다.

4) XRD 분석에 의하면 3-YSZ 박막은 정방정상과 일부 단사정상, 8-YSZ 박막은 입방정상으로 증착되었으며, 3-YSZ 및 8-YSZ 박막에서 공통적으로 전류가 증가할수록 결정성이 향상되었으며 50mA에서 결정성이 가장 좋게 나타났다.

5) Si 기판상에 증착한 YSZ 박막은 증착 후 조밀하지 못했으나 500°C에서 1시간동안 열처리를 실시한 경우 시험편 표면에 균열을 발생시키지 않으며 조밀한 박막을 형성할 수 있었다.

6) 동일한 두께로 증착한 단층의 3-YSZ 및 8-YSZ 박막과, 3/8/3-YSZ 및 8/3/8-YSZ 다층박막 중 8/3/8-YSZ 다층박막이 가장 낮은 내부응력을 보였다.

## 참 고 문 헌

1. E. Baur and H. Preis, "Über Brennstoff-Ketten Mit Festleitern," Z. Elektrochem., 43, 727-732. (1937).
2. N. Q. Minh, "Ceramic Fuel Cells," J. Am. Ceram. Soc., 76(3), 563-588 (1993).
3. 김공호, KIST, "지르코니아의 소결 및 고온 안정성에 관한 연구 최종 보고서," 129-173. (1996).
4. 조원일, KIST, 산학연 협동연구회 활동 최종결과 보고서, "고체전해질 연료전지," 44. (1995).
5. N. Q. Minh, T. Takahashi, "Science and Technology of Ceramic Fuel Cells," Elsevier Science B.V., Amsterdam, 53, 450-457. (1995).
6. T.K. Gupta, J.H. Bechtold, R.C. Kuzmicki, L.H. Cadoff, and B.R. Rossing, "Stabilization of Tetragonal Phase in Polycrystalline Zirconia," J. Mat. Sci., 12, 2421. (1977).
7. 김구대, KIST, "세라믹 연료전지 요소기술의 개발 연구 최종 보고서," 235-259. (1997).