



Ultra-Fast Fabrication of YSZ Electrolyte via Flash Light Sintering with ESB Sintering Aid for Solid Oxide Fuel Cells

ESB 소결 조제를 이용한 고체산화물 연료전지용 YSZ 전해질의 초고속 광소결 공정에 관한 연구

저자 (Authors)	임용현, 김영범 Yonghyun Lim, Young-Beom Kim
출처 (Source)	Journal of the Korean Society for Precision Engineering 39(2) , 2022.2, 103-108 (6 pages)
발행처 (Publisher)	Korean Society for Precision Engineering
URL	http://www.dbpia.co.kr/journal/articleDetail?nodeId=NODE11028911
APA Style	임용현, 김영범 (2022). Ultra-Fast Fabrication of YSZ Electrolyte via Flash Light Sintering with ESB Sintering Aid for Solid Oxide Fuel Cells. <i>Journal of the Korean Society for Precision Engineering</i> , 39(2), 103-108.
이용정보 (Accessed)	한양대학교 166.104.66.*** 2022/03/08 15:22 (KST)

저작권 안내

DBpia에서 제공되는 모든 저작물의 저작권은 원저작자에게 있으며, 누리미디어는 각 저작물의 내용을 보증하거나 책임을 지지 않습니다. 그리고 DBpia에서 제공되는 저작물은 DBpia와 구독계약을 체결한 기관소속 이용자 혹은 해당 저작물의 개별 구매자가 비영리적으로만 이용할 수 있습니다. 그러므로 이에 위반하여 DBpia에서 제공되는 저작물을 복제, 전송 등의 방법으로 무단 이용하는 경우 관련 법령에 따라 민, 형사상의 책임을 질 수 있습니다.

Copyright Information

Copyright of all literary works provided by DBpia belongs to the copyright holder(s) and Nurimedia does not guarantee contents of the literary work or assume responsibility for the same. In addition, the literary works provided by DBpia may only be used by the users affiliated to the institutions which executed a subscription agreement with DBpia or the individual purchasers of the literary work(s) for non-commercial purposes. Therefore, any person who illegally uses the literary works provided by DBpia by means of reproduction or transmission shall assume civil and criminal responsibility according to applicable laws and regulations.

• 특집 • 수소에너지 활용 및 연료전지 상용화를 위한 신공정 연구

ESB 소결 조제를 이용한 고체산화물 연료전지용 YSZ 전해질의 초고속 광소결 공정에 관한 연구

Ultra-Fast Fabrication of YSZ Electrolyte via Flash Light Sintering with ESB Sintering Aid for Solid Oxide Fuel Cells

임용현¹, 김영범^{1,#}
Yonghyun Lim¹ and Young-Beom Kim^{1,#}

¹ 한양대학교 융합기계공학과 (Department of Mechanical Convergence Engineering, Hanyang University)
Corresponding Author / E-mail: ybkim@hanyang.ac.kr, TEL: +82-2-2220-0544
ORCID: 0000-0002-0307-0595

KEYWORDS: Alternative sintering (대체 소결법), Flash light sintering (플래시 광소결법), Solid oxide fuel cells (고체산화물 연료전지), Solid electrolyte (고체 전해질)

A high temperature sintering process for solid electrolyte is the main cause of the increase in manufacturing costs of SOFCs. In this study, we developed a novel flash light sintering technique as an alternative sintering process of the conventional thermal sintering process. The YSZ electrolyte films were fabricated by conventional screen-printing method and the flash light sintering process and ESB sintering aid were applied to improve the flash light sinterability of the YSZ electrolyte. In the flash light sintering process, the effect of various pulse conditions such as energy density, and pulse interval were investigated and the microstructure, crystallinity, and sintering behavior of the sintered films were analyzed to demonstrate the effectiveness of the flash light sintering process. The flash light sintered YSZ electrolyte layer was used to fabricate the anode-supported SOFCs and its functionality is successfully demonstrated with the high open circuit voltage. The significance of this study includes minimization of the process time from tens of hours to just a few seconds, thus facilitating the commercialization of SOFCs.

Manuscript received: December 1, 2021 / Revised: January 5, 2022 / Accepted: January 10, 2022

1. 서론

연료전지는 연료의 화학적 에너지를 전기화학 반응을 통해 전기에너지로 직접 변환하는 에너지 변환 장치로 발전 효율이 높고, 수소를 연료로 이용하여 생성물로 물이 생성되기 때문에 친환경적인 장점과 지속가능성(Sustainability)으로 인해 미래 에너지원으로 각광받고 있다.^{1,2}

고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cells, SOFCs)는 이온 전도성 세라믹을 고체 전해질로 사용하는 연료전지로 다른 연료전지들에 비해 발전 효율이 높고 내부 개질을 통해 수소 이외에도 천연가스, 메탄올, 에탄올과 같은 탄화수소계 연료를 사용할

수 있어 수송용, 발전용 등 다양한 분야에 사용될 수 있어 큰 장점을 가진다.³

최근 고체산화물 연료전지 성능의 비약적인 향상과 더불어 시스템의 상용화를 앞당기기 위한 기술적 수요가 지속적으로 이어짐에 따라 저렴한 비용에 대량 생산이 용이한 분말 기반의 비진공 공정에 대한 연구가 국내외 활발하게 이루어지고 있다.^{4,5}

하지만, 이러한 비진공 기반 제작 공정은 산화물 전해질 및 전극의 물성 확보를 위해 고온에서의 장시간 후속 열처리 공정이 필수적으로 요구되며, 이로 인해 재료 선정 및 경제성에 큰 제약이 존재하게 된다. 특히, 전해질 제작 공정의 경우 치밀한 미세구조를 위해 약 1,400°C 이상의 후 열처리 공정을 필요로

하기 때문에, 높은 공정 온도 및 긴 공정 시간으로 인해 생산성이 저하되는 문제점을 가지고 있다.⁵ 따라서, 고체산화물 연료전지의 제작 단가 저감 및 상용화를 위해서는 제조 공정의 개선이 필수적이며, 특히 고온·장시간 후 열처리 공정의 개선을 위한 새로운 공정 기술의 확보가 시급하다고 할 수 있다.

최근 이러한 문제를 해결하기 위해 국내외 연구자들은 크게 전해질의 소결 온도를 낮추는 연구와 대체 소결 방법을 개발하는 연구로 나누어 진행하고 있다. 먼저, 전해질의 소결 온도를 낮추기 위한 연구로는 전이 금속산화물(Transition Metal Oxide)을 소결 조제(Sintering Aid)로 첨가하여 소결 과정에서 액상 소결(Liquid Phase Sintering)이나 결정립계 특성 변화를 유발하여 소결체의 수축, 입자 성장 등 소결 특성을 변화시키는 방법이 활발히 연구되고 있다. 예를 들어, YSZ 전해질의 소결 과정에서 2 mol %의 Fe_2O_3 의 첨가를 통해 Fe^{3+} 이온의 지르코니아 격자 내부로의 침투를 통해 결정립계에서의 물질 수송 특성을 증가시켜 소결 온도를 약 150°C 낮춘 연구가 보고된 바 있으며,⁶ 또한 CuO 소결 조제의 첨가를 통해 소결 과정에서 생성된 CuO 액상이 YSZ 입자의 물질 수송 특성을 증가시켜 YSZ 소결 온도를 1,100°C로 크게 낮춘 연구가 보고된 바 있다.⁷ 다양한 소결 조제 물질 중 Bi_2O_3 는 낮은 녹는점(~825°C)으로 인해 비교적 낮은 온도에서도 액상 소결을 유발할 수 있어, 가장 효과적인 소결 조제 물질 중 하나로 알려져 있으며,^{8,9} 특히 Er_2O_3 가 도핑된 Bi_2O_3 (ESB, $Er_{0.4}Bi_{1.6}O_{3.6}$)는 YSZ 대비 높은 산소 이온 전도 특성과 우수한 표면 전기화학 반응성으로 인해 소결 온도 감소와 더불어 연료전지 성능 또한 향상시킬 수 있다는 연구 결과가 보고된 바 있다.¹⁰

한편, 기존 열소결 공정을 대체할 수 있는 대체 소결법 개발에 관한 연구 또한 활발히 이루어지고 있다. 대표적으로 마이크로웨이브 소결법(Microwave Sintering), 레이저 소결법, 방전 플라즈마 소결법(Spark Plasma Sintering) 등이 연구되고 있으며,¹¹⁻¹³ 이와 관련하여 Kim 등은 최근 마이크로웨이브 소결을 이용해 기존 40시간 이상 소요되는 SOFC 제조 공정을 8시간 내로 단축한 결과를 보고하였다.¹⁴ 또한, Ferrage 등은 Graphite를 소결 조제로 이용한 선택적 레이저 소결법을 통해 YSZ 전해질의 소결 가능성을 시연하였다.¹⁵ 그러나, 이러한 기존의 대체 소결법들은 소결 시간 감소에는 효과적일 수 있으나, 재료 선정의 제약, 높은 장비 가격, 낮은 유효 면적 등의 한계점으로 인해 실제 상용 공정에서의 적용에 어려움을 겪고 있다. 예를 들어 마이크로웨이브 소결은 여전히 긴 공정 시간과 적용 가능한 물질의 종류에 제약이 있으며, 레이저 소결법은 낮은 소결 면적으로 인해 대면적 소결에 한계점을 가지고 있고, 방전 플라즈마 소결법은 낮은 균일성과 샘플 구조의 제약이 있다. 따라서, 이러한 문제를 해결할 수 있는 보다 효과적인 대체 소결법의 개발이 필요하다고 할 수 있다.

플래시 광소결법(Flash Light Sintering)은 저온·상압 조건에서 제논 램프의 충·방전을 통해 발생된 순간적인 광에너지로 물질을 소결하는 기술로 비교적 간편한 시스템 구성, 매우 짧은 공정 시간, 대면적 소결의 장점을 통해 기존 소결법들의 한계를

극복하고, 기존 열 소결 공정을 대체할 수 있는 기술로 주목받고 있다.^{16,17} 따라서, 고체산화물 연료전지의 제조 과정에 플래시 광소결법을 적용하면 기존 열소결 공정의 수습 시간의 긴 공정 시간을 수 초대로 획기적으로 단축할 수 있어 생산성 및 경제성의 큰 개선을 기대할 수 있다. 하지만, 아직까지 광소결법을 이용한 기존 연구는 주로 디스플레이나 인쇄 전자 분야에서 금속 입자를 소결하는 연구에 치중되어 있으며,^{18,19} 고체산화물 연료전지의 제조 과정에 적용한 연구는 아직까지 미흡한 실정이며, 특히 분말 공정 기반 세라믹 전해질의 제조에 관한 연구는 세라믹 입자들의 낮은 광 흡수율 및 높은 소결 온도 문제로 그 난이도가 매우 높고 거의 전무한 실정이다.

본 연구에서는 고체산화물 연료전지의 주 전해질로 사용되는 YSZ 전해질의 플래시 광소결 공정의 수립을 통해 기존 열소결 공정의 공정 시간을 획기적으로 단축하고자 하였다. 세라믹 분말의 광소결 공정 효율을 극대화하기 위한 ESB 소결 조제 첨가의 영향에 대하여 분석하였으며, 광소결 공정 변수의 최적화를 수행하고 제조된 YSZ 세라믹 전해질의 미세구조, 조성, 결정성 등과 같은 막 특성 분석 및 전기화학 분석을 진행하였다.

2. 실험 방법

2.1 ESB-YSZ Paste 및 세라믹 전해질 제작 방법

ESB 소결 조제가 첨가된 YSZ 세라믹 전해질을 제작하기 위하여 다음과 같은 순서로 ESB-YSZ Paste를 제조하였다. 먼저, α -Terpineol (Tokyo Chemical Industry (TCI), Japan) 용매 10 mL에 BH-3 (Sekisui Chemical, Japan) 바인더를 0.38 g 혼합한 뒤 Hot Plate를 이용하여 60°C에서 24시간 교반하였다. 이후 분산제(Hypermet KD-6) 0.57 g과 가소제(Dibutyl Phthalate (DBP), Sigma-Aldrich, USA) 0.19 g를 용매에 혼합한 뒤 마찬가지로 60°C에서 24시간 교반하여 혼합하였다. 제작된 용매에 YSZ (8YSZ, TZ-8Y, Tosoh, Japan) 분말과 ESB ($Er_{0.4}Bi_{1.6}O_3$, K-Ceracell, South Korea) 분말 총 18.9 g을 각각 1 : 99, 5 : 95, 10 : 90, 20 : 80 몰 비율로 혼합한 뒤, 3-Roll Mill (Intec System, South Korea)을 이용하여 1시간 동안 분산하여 페이스트를 제조하였다.

제작된 ESB-YSZ 페이스트를 이용하여 NiO-YSZ 음극지지체(K-Ceracell, South Korea)상에 스크린 프린팅 장비를 이용하여 코팅을 통해 ESB-YSZ 전해질을 제작하였다. 코팅 시 충분한 두께의 확보를 위해 2회 코팅하였으며, 각 코팅 과정에서 증착 후 Hot Plate를 이용하여 100°C에서 1시간 동안 건조하였다. 제작된 전해질 막은 광소결 시 급격한 유기물의 휘발을 방지하기 위해 500°C에서 2시간 동안 열처리하였으며, 제작된 전해질 막의 두께는 약 10 μ m로 확인하였다.

2.2 광소결 공정

NiO-YSZ 음극지지체상에 제작된 ESB-YSZ 세라믹 전해질을

광소결 장비(myPET-LM200, Semisysco, Korea)를 이용하여 소결하였다. 광소결 장비는 전원 공급부, 축전기, 제논 램프(Xenon Lamp, PerkinElmer Corp., UK), 반사판, 펄스 제어부, 기관 가열부로 구성되어 있으며, 제논 램프의 충·방전을 통해 발생된 백색광의 광에너지를 순간적으로 입자에 조사하여 소결하는 방식이다. 광소결 공정에서 광소결 조건은 인가 전압, 조사 간격을 조절하여 약 110-130 J/cm²의 에너지 밀도 범위에서 조절하여 광소결을 수행하였으며, 조사 시간은 10 ms, 펄스 수는 6 Pulse로 고정하였다. 광소결 시 광소결 효율을 높이기 위하여 하부 히터를 이용하여 기관 온도 500°C에서 실험을 수행하였다.

2.3 막 특성 분석 및 전기화학 특성 분석

제작된 세라믹 전해질의 미세구조 분석을 위해 전계방출형 주사전자현미경(FE-SEM, Field Emission-Scanning Electron Microscope, JSM-6701F, JEOL LTD., Japan)을 이용하여 분석하였으며, 화학적 조성 분석을 위해 X-선 광전자 분광법(XPS, X-Ray Photoelectron Spectroscopy, Thermo Fisher Scientific Co., USA)을 이용하여 분석하였다. 또한, 제작된 세라믹 전해질의 결정성 분석을 위해 X-선 회절분석기(XRD, X-ray Diffraction, Bruker Co., USA)를 이용하여 2θ 기준 20-80° 영역에 대하여 분석하였다. 광소결을 통해 제작된 세라믹 전해질 기반 단전지의 전기화학 분석을 위해 제작된 전해질 상단에 LSM-YSZ 공기극 및 LSM 집전층을 스크린 인쇄법을 통해 증착한 뒤 1,050°C에서 2시간 소결하였다. 연료전지 측정 시스템을 활용하여 연료극에 수소 기체 75 sccm, 공기극에 공기 75 sccm을 주입시켜 750°C의 작동 온도에서 전기화학 특성 분석 장비(Solartron 1287, Solartron Analytical, USA)를 활용하여 측정하였다. 임피던스 분석을 위해 50 mV의 교류 전압의 인가 하에 1 MHz에서 0.1 Hz의 주파수 영역에 대하여 임피던스 측정을 진행하였다.

3. 결과 및 고찰

YSZ 세라믹 분말의 광소결 공정 시 ESB 소결 조제의 영향을 확인하기 위해 1, 5, 10, 20 mol%의 ESB가 첨가된 ESB-YSZ 전해질을 제작하여 광소결 공정을 적용하였다. Fig. 1은 각각의 ESB-YSZ 세라믹 전해질에 120 J/cm²의 광에너지를 조사한 후 표면 미세구조 분석 결과이다. 소결 조제의 함량이 비교적 낮은 1-5 mol%의 ESB 소결 조제가 첨가된 샘플의 경우 미세구조 변화 및 입자의 소결도가 거의 미미한 것을 확인할 수 있다. 반면, 10 mol% 이상의 ESB 소결 조제가 첨가된 경우 동일한 광조사 조건에서 YSZ 입자의 결정립 성장 및 미세구조의 치밀화가 일어나는 것을 확인할 수 있으며, 20 mol%의 ESB 소결 조제가 첨가된 경우 가장 소결도가 우수한 것을 확인할 수 있다. 이는 가시광선대 영역의 빛을 거의 흡수하지 못하는 YSZ 분말에 비해 약 300-550 nm 영역의 광흡수도가 높은 ESB 소결 조제의

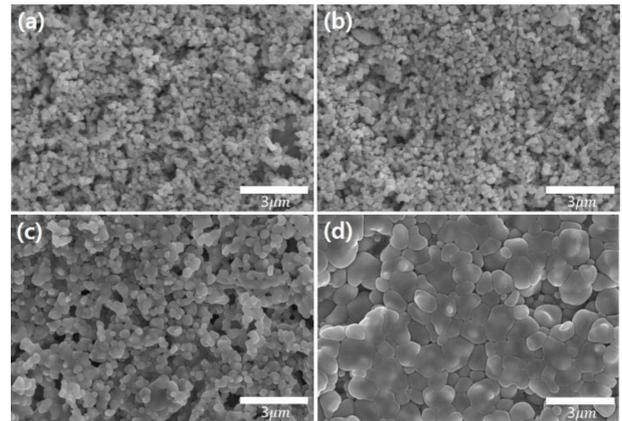


Fig. 1 Surface microstructure of the flash light sintered ESB-YSZ electrolyte films irradiated of 120 J/cm² with different ESB contents of (a) 1, (b) 5, (c) 10, and (d) 20 mol%

첨가를 통해 광소결 시 전해질의 광 흡수도를 증가시킨 영향이며, 또한 낮은 녹는점을 가지는 ESB가 소결 과정에서 액상 소결을 유발하여 소결도를 향상시킨 결과라고 할 수 있다. 따라서, YSZ 전해질의 광소결 특성 향상을 위해서 약 20 mol% 이상의 ESB 소결 조제의 첨가가 가장 효과적이라고 할 수 있다.

앞서 확인한 20 mol%의 ESB 소결 조제가 첨가된 YSZ 세라믹 전해질의 광소결 에너지에 따른 소결 특성을 비교하고자 다양한 광조사에너지에 따른 영향을 분석하였다. Fig. 2는 110-130 J/cm²의 광조사에너지를 적용한 YSZ 전해질의 표면 미세구조 분석 결과이다. 광조사에너지가 110 J/cm²로 비교적 낮은 경우에는 세라믹 입자의 조대화 및 치밀화가 부족하여 전해질 내부에 기공이 존재하는 것을 확인할 수 있다. 이는 상대적으로 낮은 광에너지를 조사할 경우 소결에 필요한 에너지가 충분하지 않아 표면 온도의 상승이 충분하지 못한 결과라고 할 수 있다.

이에 반면 광조사에너지를 130 J/cm²로 증가시킨 샘플의 경우 결정립 크기가 기존의 0.5-0.7 μm에서 1.0-1.2 μm로 증가한 것을 확인할 수 있으며, 막의 치밀도가 개선된 것을 확인할 수 있다. 그러나 YSZ 결정립 사이에 불순물이 검출되는 것을 확인할 수 있었으며, 이는 과도한 광에너지를 짧은 조사 간격(30 ms)으로 적용한 결과로 Ni-YSZ 음극지지체에 영향을 준 것으로 파악할 수 있다. 따라서, 낮은 에너지로 인한 밀도 부족과 과도한 광에너지 조사로 인한 불순물 생성을 억제하기 위해서는 약 120 J/cm²의 광에너지 조사가 적합하다고 할 수 있다. 다만, 막의 Roughness가 크고 전해질 내부 기공이 존재하는 것을 확인할 수 있으며, 이는 앞서 언급한 짧은 조사 간격으로 인한 샘플의 급격한 온도 상승 및 감소로 인해 소결 시간이 비교적 부족한 영향의 결과로 이해할 수 있다.

YSZ 전해질 광소결 공정 시 조사 간격의 영향을 파악하고자 광 조사 간격을 30, 500, 1,500 ms로 조절하여 120 J/cm²의 광에너지를 조사하였다. Fig. 3은 다양한 조사 간격을 적용한 YSZ 전해질의 광소결 미세구조 분석 결과이다. 상대적으로 짧은 광조사 간격으로 광에너지를 조사한 경우에 비하여 (Fig. 3(a)) 조사

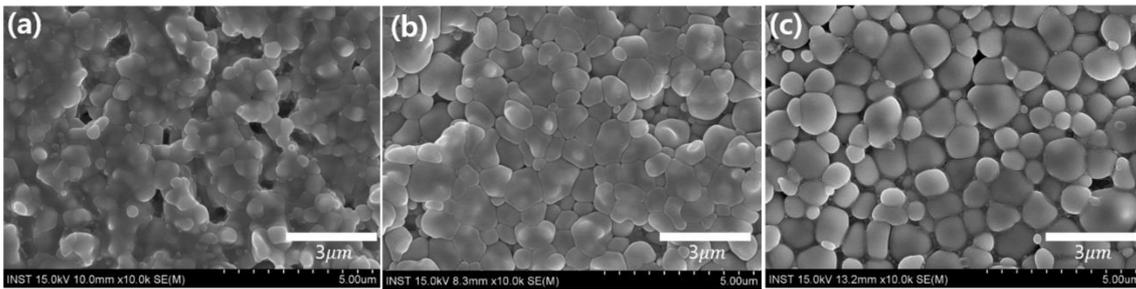


Fig. 2 FE-SEM images of flash light sintered ESB-YSZ electrolyte with different irradiation energy and 30 ms of off-time. (a) 110, (b) 120, and (c) 130 J/cm²

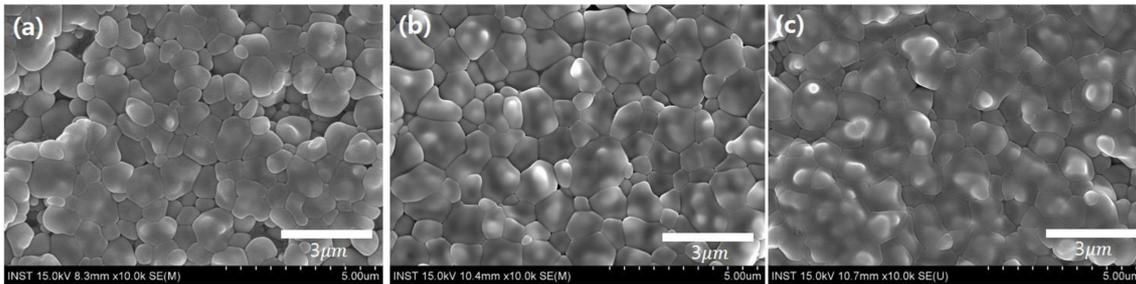


Fig. 3 Microstructure of flash light sintered ESB-YSZ electrolyte with 120 J/cm² and different pulse interval. (a) 30, (b) 500, and (c) 1,500 ms

간격을 500 ms로 늘린 경우 (Fig. 3(b)) 막의 Roughness가 줄어들고, 전해질의 치밀도가 상당히 개선되는 것을 확인할 수 있다. 이는 조사 간격이 과도하게 짧은 경우 샘플의 온도가 급격히 상승하고 감소하여 소결 시간이 비교적 불충분한 경우에 비하여 조사 간격이 증가할수록 샘플의 온도 상승 및 유지할 수 있는 시간이 길어져 전체적인 소결 시간이 증가된 영향으로 파악할 수 있다. 다만, 조사 간격이 과도하게 증가할 경우 펄스 증첩에 의한 온도 상승의 효과를 기대하기 어렵기 때문에 광소결 시 샘플의 온도가 낮아지게 되고, 이에 따라 막 소결도가 감소되는 것을 확인할 수 있다.

Table 1은 앞서 최적화한 ESB-YSZ 전해질 막의 열소결, 광소결에 따른 XPS 조성 분석 결과이다. 증착 직후 샘플의 조성 분석 결과 ESB 및 YSZ상으로 이루어진 예상 조성과 유사한 것을 확인할 수 있으며, 광소결 후 Bi 함량 감소를 통해 ESB 소결 조제 물질의 승화를 파악할 수 있다. 기존 연구 결과에 따르면, ESB 물질은 약 900°C 이상의 온도에서 승화가 이루어진다고 보고된 바 있으며,^{20,21} 이를 통해 광소결 시 해당 온도 이상으로 충분히 온도가 올라갔다고 파악할 수 있다.

이러한 승화 경향은 열소결을 진행한 샘플에서도 동일한 경향을 보였으며, 결과적으로 ESB 소결 조제가 광소결 과정에서 광흡수율 증가, 액상 소결 유발 등 소결 조제의 역할을 한 뒤 승화되어 최종적으로 YSZ 전해질 층이 생성된 것으로 파악할 수 있다.

Fig. 4는 ESB 소결 조제가 첨가된 YSZ 전해질의 광소결 및 열소결에 따른 결정성 분석 결과이다. 열소결 및 광소결 시 초기 ESB상의 결정성 감소를 볼 수 있으며, 이는 앞서 XPS 결과

Table 1 Film compositions obtained by XPS results of the Bi-YSZ electrolytes

Samples	Bi4f	O1s	Y3p	Zr3d	Er4d
As-deposited	8.19	68.89	4.12	18.36	0.44
IPL sintering	0.47	68.86	5.51	23.09	0.13
Thermal sintering	0	67.45	6.55	25.23	0.13

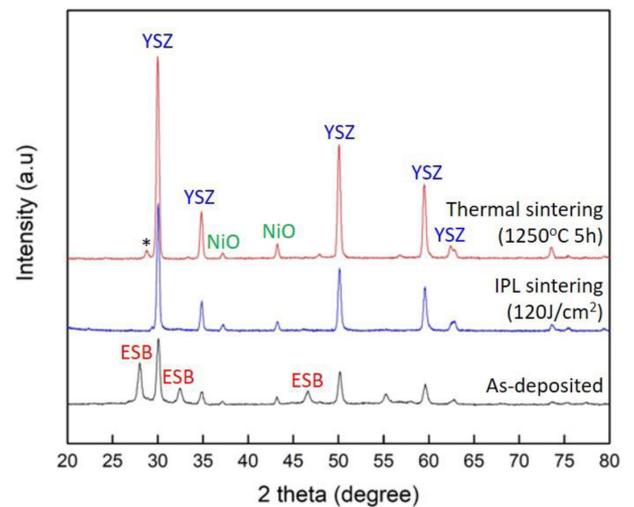


Fig. 4 X-ray diffraction patterns of the 20ESB-YSZ films as-deposited, flash light sintered and thermal sintered

에서 확인한 바와 같이 소결 시 충분한 온도 상승으로 인한 ESB상의 승화에 따른 영향으로 파악할 수 있다. 반면, YSZ상은

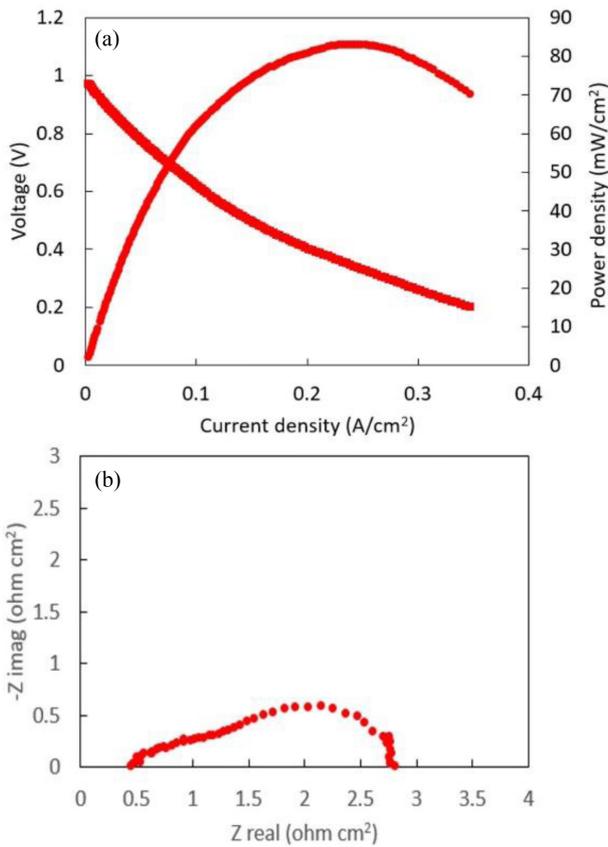


Fig. 5 (a) Current-voltage (I-V) curves, and (b) EIS spectra of the fuel cell with the flash light sintered ESB-YSZ electrolyte under a constant bias voltage of 0.6 V. Both the I-V curves and the EIS spectra were measured at 750°C

광소결 및 열소결 후 초기에 비해 Peak Intensity가 증가하는 것을 확인할 수 있었으며, 이는 소결 과정을 통한 결정립 성장 및 결정성 향상에 따른 결과이다.

Fig. 5는 광소결 공정을 적용한 ESB-YSZ 전해질 기반 고체 산화물 연료전지 단전지의 전기화학 성능을 평가한 결과이다. 750°C의 작동 온도에서 약 1.0 V 이상의 개방 회로 전압을 확보한 것을 알 수 있으며, 이는 광소결 공정에 의해 제작된 전해질이 실제 전해질로서의 기능을 위한 충분한 밀도를 확보하였다고 할 수 있다. 또한, 최대 전력밀도 83 mW/cm²의 성능을 확인할 수 있었으며, 임피던스 분석 결과 전해질 ASR은 약 0.438, 전극 ASR은 2.317 Ω·cm²의 값을 보였다. 본 실험 결과의 비교적 낮은 전력밀도는 높은 전극 분극 저항에서 기인한다는 것을 확인할 수 있었으며, 이는 비교적 전기화학 반응성이 낮은 LSM-YSZ 전극의 물질적 한계 및 전해질/전극 계면에서의 계면 접합성에 의한 결과로 예상할 수 있다. 하지만 보다 중요한 것은 기존 열소결 공정에 의한 제작 공정에 소요되는 약 20시간 이상의 소결 공정을 광소결 공정 수립을 통해 수 초 내로 획기적으로 단축시켰다는 점에서 본 연구 결과의 의의가 크다고 할 수 있으며, 추가적인 광소결 공정 최적화 및 공기극 물질의 최적화를 통해 추가적인 성능 향상이 가능할 것으로 판단된다.

4. 결론

본 연구에서는 고체산화물 연료전지의 주 전해질 물질인 YSZ 전해질의 초고속 플래시 광소결 공정을 수립하였다. 광소결 공정 효율을 높이기 위하여 ESB 소결 조제를 적용하였으며, 다양한 광소결 공정 변수에 따른 소결 양상을 분석하였다. 아울러 결정성 분석 및 조성 분석을 통해 광소결 공정의 효과를 확인하였으며, 광소결 공정에 의해 제작된 YSZ 전해질 기반 단전지를 제작하고 평가하여 실제 성공적으로 셀로 구동하는 것을 확인하였다. 본 연구 결과는 기존 수십 시간 이상 소요되는 전해질 열소결 공정의 공정 시간을 수 초대로 획기적으로 단축한 점에서 의의가 크다고 할 수 있으며, 플래시 광소결 공정을 통한 산화물 제조 가능성을 확인하는 결과이다.

ACKNOWLEDGEMENT

본 연구는 한국에너지기술평가원의 산업기술혁신사업(No. 20203030020200)의 지원을 받아 수행되었음.

REFERENCES

1. Jacobson, A. J., "Materials for Solid Oxide Fuel Cells," Chemistry of Materials, Vol. 22, No. 3, pp. 660-674, 2010.
2. O'hayre, R., Cha, S.-W., Colella, W., and Prinz, F. B., "Fuel Cell Fundamentals," John Wiley & Sons, 3rd Ed., 2016.
3. Ivers-Tiffée, E., Weber, A., and Herbstreit, D., "Materials and Technologies for SOFC-Components," Journal of the European Ceramic Society, Vol. 21, Nos. 10-11, pp. 1805-1811, 2001.
4. Dai, H., Kou, H., Tao, Z., Liu, K., Xue, M., et al., "Optimization of Sintering Temperature for SOFCs by a Co-Firing Method," Ceramics International, Vol. 46, No. 5, pp. 6987-6990, 2020.
5. Kim, J., Kim, J., Yoon, K. J., Son, J.-W., Lee, J.-H., et al., "Solid Oxide Fuel Cells with Zirconia/Ceria Bilayer Electrolytes via Roll Calendering Process," Journal of Alloys and Compounds, Vol. 846, Paper No. 156318, 2020.
6. Mehranjani, A., Cumming, D., Sinclair, D., and Rothman, R., "Low-Temperature Co-Sintering for Fabrication of Zirconia/Ceria Bi-Layer Electrolyte via Tape Casting Using a Fe₂O₃ Sintering Aid," Journal of the European Ceramic Society, Vol. 37, No. 13, pp. 3981-3993, 2017.
7. Ramesh, S., Gill, C., and Lawson, S., "The Effect of Copper Oxide on Sintering, Microstructure, Mechanical Properties and Hydrothermal Ageing of Coated 2.5 Y-TZP Ceramics," Journal of Materials Science, Vol. 34, No. 22, pp. 5457-5467, 1999.
8. Yeh, T., Kusuma, G., Suresh, M., and Chou, C., "Effect of Sintering Process on the Microstructures of Bi₂O₃-Doped Ytria

- Stabilized Zirconia,” *Materials Research Bulletin*, Vol. 45, No. 3, pp. 318-323, 2010.
9. Spiridigliozzi, L., Accardo, G., Audasso, E., Bosio, B., Yoon, S. P., et al., “Synthesis of Easily Sinterable Ceramic Electrolytes based on Bi-Doped 8YSZ for It-SOFC Applications,” *AIMS Materials Science*, Vol. 6, No. 4, pp. 610-620, 2019.
 10. Joh, D. W., Park, J. H., Kim, D. Y., Yun, B.-H., and Lee, K. T., “High Performance Zirconia-Bismuth Oxide Nanocomposite Electrolytes for Lower Temperature Solid Oxide Fuel Cells,” *Journal of Power Sources*, Vol. 320, pp. 267-273, 2016.
 11. Hao, H., Xu, L., Huang, Y., Zhang, X., and Xie, Z., “Kinetics Mechanism of Microwave Sintering in Ceramic Materials,” *Science in China Series E: Technological Sciences*, Vol. 52, No. 9, pp. 2727-2731, 2009.
 12. Bayati, R., Molaei, R., Richmond, A., Nori, S., Wu, F., et al., “Modification of Properties of Yttria Stabilized Zirconia Epitaxial Thin Films by Excimer Laser Annealing,” *ACS Applied Materials & Interfaces*, Vol. 6, No. 24, pp. 22316-22325, 2014.
 13. Fregeac, A., Ansart, F., Selezneff, S., and Estournès, C., “Relationship between Mechanical Properties and Microstructure of Yttria Stabilized Zirconia Ceramics Densified by Spark Plasma Sintering,” *Ceramics International*, Vol. 45, No. 17, pp. 23740-23749, 2019.
 14. Kim, K. J., Park, J. H., and Lee, K. T., “Ultra-Fast Fabrication of Anode-Supported Solid Oxide Fuel Cells via Microwave-Assisted Sintering Technology,” *Korean Journal of Chemical Engineering*, Vol. 37, No. 8, pp. 1436-1439, 2020.
 15. Ferrage, L., Bertrand, G., and Lenormand, P., “Dense Yttria-Stabilized Zirconia Obtained by Direct Selective Laser Sintering,” *Additive Manufacturing*, Vol. 21, pp. 472-478, 2018.
 16. Joo, S.-J., Hwang, H.-J., and Kim, H.-S., “Highly Conductive Copper Nano/Microparticles Ink via Flash Light Sintering for Printed Electronics,” *Nanotechnology*, Vol. 25, No. 26, Paper No. 265601, 2014.
 17. Park, J.-S., Kim, D.-J., Chung, W.-H., Lim, Y., Kim, H.-S., et al., “Rapid, Cool Sintering of Wet Processed Yttria-Stabilized Zirconia Ceramic Electrolyte Thin Films,” *Scientific Reports*, Vol. 7, No. 1, pp. 1-10, 2017.
 18. Hwang, H.-J., Chung, W.-H., and Kim, H.-S., “In Situ Monitoring of Flash-Light Sintering of Copper Nanoparticle Ink for Printed Electronics,” *Nanotechnology*, Vol. 23, No. 48, Paper No. 485205, 2012.
 19. Park, S.-H., Jang, S., Lee, D.-J., Oh, J., and Kim, H.-S., “Two-Step Flash Light Sintering Process for Crack-Free Inkjet-Printed Ag Films,” *Journal of Micromechanics and Microengineering*, Vol. 23, No. 1, Paper No. 015013, 2012.
 20. Lee, K. T., Jung, D. W., Camaratta, M. A., Yoon, H. S., Ahn, J. S., et al., “ $Gd_{0.1}Ce_{0.9}O_{1.95}/Er_{0.4}Bi_{1.6}O_3$ Bilayered Electrolytes Fabricated by a Simple Colloidal Route Using Nano-Sized $Er_{0.4}Bi_{1.6}O_3$ Powders for High Performance Low Temperature Solid Oxide Fuel Cells,” *Journal of Power Sources*, Vol. 205, pp. 122-128, 2012.
 21. Lee, K. T., Lidie, A. A., Jeon, S. Y., Hitz, G. T., Song, S. J., et al., “Highly Functional Nano-Scale Stabilized Bismuth Oxides via Reverse Strike Co-Precipitation for Solid Oxide Fuel Cells,” *Journal of Materials Chemistry A*, Vol. 1, No. 20, pp. 6199-6207, 2013.



Yonghyun Lim

Postdoctoral Researcher in Hanyang University. His research interest is development of solid-state oxide devices including solid oxide fuel cells (SOFCs).

E-mail: shskt2002@hanyang.ac.kr



Young-Beom Kim

Professor in the Department of Mechanical Engineering, Hanyang University. His research interests include development of various solid-state energy conversion devices including solid oxide fuel cells, all-solid-state batteries etc.

E-mail: ybkim@hanyang.ac.kr