Deposition of β -SiC by a LPCVD Method and the Effect of the Crystallographic Orientation on Mechanical Properties

Daejong Kim^{*†}, Jongmin Lee^{***}, Weon-Ju Kim^{*}, Soon Gil Yoon^{**}, and Ji Yeon Park^{*}

^{*}Nuclear Materials Division, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353, Korea

^{**}Department of Materials Engineering, College of Engineering, Chungnam National University, Daejeon 305-764, Korea

(Received December 5, 2012; Revised January 18, 2013; Accepted January 21, 2013)

저압 화학기상증착법을 이용한 β -SiC의 증착 및 결정 성장 방위에 따른 기계적 특성 변화

김대종^{*†} · 이종민^{***} · 김원주^{*} · 윤순길^{**} · 박지연^{*}

^{*}한국원자력연구원 원자력재료개발부

^{**}충남대학교 재료공학과

(2012년 12월 5일 접수 ; 2013년 1월 18일 수정 ; 2013년 1월 21일 채택)

ABSTRACT

β -SiC was deposited onto a graphite substrate by a LPCVD method and the effect of the crystallographic orientation on mechanical properties of the deposited SiC was investigated. The deposition was performed at 1300°C in a cylindrical hot-wall LPCVD system by varying the deposition pressure and total flow rate. The texture and crystallographic orientation of the SiC were evaluated by XRD. The deposition rate increased linearly with the gas flow rate from 800 sccm to 1600 sccm. It also increased with the pressure but became saturated above a total pressure of 3.3 kPa. In the range of 3.3 - 10 kPa, the preferred orientation changed from the (220) and (311) planes to the (111) plane. The hardness and elastic modulus showed maximum values when the SiC had the (111) preferred orientation, though it gradually decreased upon a change to the (220) and (311) preferred orientations.

Key words : Silicon carbide, CVD, Crystallographic orientation, Nanoindentation, Hardness

1. 서 론

화학기상증착법(chemical vapor deposition, CVD)에 의해 제조된 탄화규소(SiC)는 우수한 고온기계적 특성 및 산화저항성을 가질 뿐만 아니라, 중성자 흡수단면적이 매우 작고(열중성자 흡수계수 = 0.09 barns), 조사에 의한 기계적 강도의 저하가 거의 없으며, 높은 조사량에도 부피변화가 거의 없기 때문에 원자력 분야에서 다양한 활용이 이루어질 것으로 보인다.¹⁾ 이러한 우수한 고온 및 중성자 특성으로 인하여, SiC는 원자로의 노심재료(reactor core materials)로 사용되기에 적합하며, 4세대 원전 중 하나인 초고온가스로의 TRISO (tristructural-isotropic) 피복입자 핵연료의 SiC 피복층, 제어봉 외피 소재로 SiC_f/SiC 복합체가 고려되고 있다.^{2,3)} 특히, 미국의 TMI (three mile island) 및 일본 후쿠시마 원전 사고 이후, 가압형 경수로

의 핵연료 피복관으로 사용되는 금속 피복관의 고온 산화에 의한 수소발생 문제가 제기되며, 대체 재료를 개발하기 위한 연구가 활발히 이루어지고 있다. 현재 가동 중인 가압형 경수로의 핵연료 피복관은 Zircoloy-4, Zirlo 등의 지르코늄 합금이 사용되어 왔으나, LOCA (loss-of-coolant accident)와 같은 중대사고(severe accident)시 냉각재의 유실로 인하여 핵연료 피복관의 온도가 상승되고, 이로 인하여 고온에서 지르코늄 합금과 냉각재의 산화반응에 의해 대량의 수소가 발생하기 때문에 수소폭발의 위험성이 매우 크다.⁴⁾ 따라서, 원자로의 비정상 운전시 냉각재와의 반응에 의한 수소발생량이 매우 낮고, 고온 기계적 특성이 우수한 SiC_f/SiC 복합체가 지르코늄 합금 핵연료 피복관의 대체 재료로 활용될 수 있을 것으로 기대되고 있다.⁵⁾

삼중중 형태의 세라믹 복합체 핵연료 피복관은 3개 층으로 구성되어 있으며, 핵연료의 핵분열로부터 발생하는 핵분열생성물이 냉각재로 확산하는 것을 방지하는 기능을 하는 SiC 가스기밀층, 핵연료 피복관의 인성을 부여

[†]Corresponding author : Daejong Kim

E-mail : dskim@kaeri.re.kr

Tel : +82-42-868-4559 Fax : +82-42-862-8549

하는 SiC_f/SiC 복합체 중간층, 그리고 냉각재에 의한 SiC_f/SiC 복합체의 부식을 막기 위한 SiC 내환경층으로 구성 되어 있다. 이 중 SiC 가스기밀층 및 내환경층은 중성자 조사에 의한 열적, 기계적 특성 저하를 줄이기 위해 고순도의 우수한 화학정량을 가져야 하며, 높은 밀도, 균일한 증착층의 두께, 균질한 표면상태 등이 요구되고 있다. 특히, SiC 층은 약 15 MPa 압력의 원자로 1차층 냉각수에 의한 외압과 더불어 핵연료 압력관 내에 존재하는 핵연료의 조사팽창에 의한 내압을 견뎌야 하는 구조재료로써의 역할을 하기 때문에, 세라믹 핵연료 피복관의 구성요소인 SiC 층의 기계적 특성과 이에 영향을 미치는 미세구조 및 결정 방위 등이 매우 중요한 요소가 된다.

고순도의 우수한 화학정량을 가지는 고밀도 SiC 층을 제조하기 위해서 화학기상증착(chemical vapor deposition, CVD)법이 널리 이용되고 있으며, CVD를 이용한 SiC 증착 및 증착 특성, 이에 따른 열적, 기계적 특성 등에 관한 많은 연구들이 수행 되어져 왔다.⁶⁻⁸⁾ SiC 증착 방법은 MTS (methyltrichlorosilane) 또는 DMS (dimethyldichlorosilane)를 precursor로 사용하는 CVD법이 대표적이며, 고순도의 우수한 화학정량을 가지는 β -SiC 상이 생성되는 것으로 알려져 있다.^{9,10)} SiC 증착은 증착온도, 원료기체 및 희석기체의 분압, 증착압력, 기체 유량 등에 따라 증착율 및 증착층의 특성이 변화될 수 있으며,¹⁰⁻¹²⁾ 증착 위치에 따른 반응물질의 고갈 (reactant depletion)에 의한 증착특성 변화도 관찰이 되고 있다.¹³⁾ 특히, CVD 법에 의해 제조된 SiC는 증착 조건에 따라 결정 방위가 쉽게 변할 수 있으며, 이에 따른 미세구조 및 기계적 성질의 이방성이 보고되고 있다.^{14,15)}

따라서, 본 연구에서는 세라믹 복합체 핵연료 피복관의 SiC 가스기밀층 및 내환경층의 제조를 위한 연구의 일환으로 CVD 방법에 의한 고순도 SiC 증착에 관한 연구를 수행하였으며, 증착기체의 유속 및 증착압력에 따른 SiC 증착층의 특성 변화와 결정방위에 따른 경도 및 탄성계

수의 변화를 평가하였다.

2. 실험방법

실린더 형태의 hot-wall CVD 수평로를 이용하여 저압 화학기상증착(low pressure chemical vapor deposition, LPCVD)법에 의해 SiC를 증착하였다. Fig. 1은 증착 실험에 사용된 LPCVD의 개념도를 보여 주고 있다.

SiC 증착용 기관으로 등방성 고순도 흑연인 IG-110 (열팽창계수 = $4.5 \times 10^{-6}/K$)를 사용하였으며, 증착용 흑연 기관은 직경 10 mm, 두께 1 mm의 쿠펜 형태로 7° 경사를 가지는 경사판 위에 올려 두고 증착 실험을 수행하였다. 증착 원료물질은 CH₃SiCl₃ (methyltrichlorosilane, MTS), 운반 및 희석 기체로는 고순도 H₂ (99.999%)를 이용하였다. 액체상인 MTS는 냉각장치(chiller)에서 0°C로 유지되었으며, 운반 기체인 H₂가 MTS로 통과함으로써 일정량의 MTS가 반응기로 공급되었고, 원료 기체에 대한 희석 기체의 비($\alpha = P_{H_2}/P_{MTS}$)가 5가 되도록 조절 하였다. 증착 온도는 1300°C로 고정을 하였으며, SiC의 증착율 및 미세구조 변화를 살펴보기 위해 기체의 총유량은 800-1600 sccm, 증착 압력은 1.3-10 kPa로 변화시켰다. 증착된 SiC 층의 결정구조 및 우선성장방위는 XRD를 이용하여 분석하였으며, 증착층의 결정방위에 따른 기계적 특성 변화를 평가하기 위해 나노인덴테이션 분석을 수행하였다. 나노인덴테이션 측정을 위한 SiC 샘플은 1300°C, 1200 sccm 기체 유량에서 5시간 동안 증착되었으며, 증착 압력이 3.3-10 kPa 인 조건에서 증착된 결정의 우선 배향성이 다른 SiC를 이용하였다. 증착된 SiC 층을 1 μ m까지 연마를 한 후, 약 20회 이상 측정하였다. Fused silica (SiO₂) 표준 샘플을 이용하여 나노인덴테이션 장비를 교정한 후, Berkovich 나노인덴터 팁을 이용하여 최대 하중을 80 mN로 설정하여 경도 (hardness) 및 탄성계수 (elastic modulus)를 측정하였으며, SiC의 포아송 비는 0.21로 취하였다.

Fig. 1. Schematic diagram of a LPCVD system for β -SiC deposition.

3. 결과 및 고찰

3.1. 기체유량 및 증착 압력에 따른 증착율 및 미세구조 변화

Fig. 2는 1300°C, 3.3 kPa의 증착 압력에서 기체의 총유량의 변화에 따른 SiC의 증착율의 변화를 보여 주고 있다. 기체의 총유량이 증가함에 따라, SiC의 증착율은 선형적으로 증가 한다. 일반적으로 1000°C 이하의 온도에서는 기체 유량이 적을 경우 물질전달(mass transfer)에 의해 증착율이 결정 되며, 유량이 증가할수록 화학반응(chemical reaction)이 율속 반응이 된다.¹¹⁾ 화학반응이 율속 반응이 되는 영역에 있을 경우 기체 확산층을 통한 반응 기체의 확산이 원활하기 때문에 기체의 유량은 증착율에 큰 영향을 미치지 않는다. 그러나 온도가 높아짐에 따라 반응 속도가 빨라지며 기체 확산층이 넓어지게 되고, 이에 따라 물질전달/화학반응 기구의 전이를 위한 임계 기체 유량은 높은 값으로 이동하게 된다. 1300°C의 증착 온도는 기체확산에 의한 물질전달 기구에 의해 증착율이 지배를 받는 구간으로,¹²⁾ 증착 표면에서의 화학 반응이 매우 빠르기 때문에 넓은 기체 확산층이 형성된다. 1600 sccm 이하의 기체 유량에서는 완전한 물질 전달 반응에 의해 SiC가 증착 되어 유량에 따른 증착율의 증가가 관찰 된 것

Fig. 2. Deposition rates of SiC as a function of total gas flow.

으로 판단된다.

Fig. 3은 기체의 총유량의 변화에 따른 SiC의 표면 및 파단면의 미세구조를 보여 주고 있다. 모든 증착 조건에서 SiC는 거친 표면을 가지며 pebble 형태의 미세구조를 가지는 것으로 관찰되었고, SiC 층의 두께에 관계없이 치밀한 구조를 띄고 있다.

Fig. 4는 1300°C, 1200 sccm의 기체 유량에서 증착 압력에 따른 SiC 증착율의 변화를 보여 주고 있다. 증착 압력이 3.3 kPa까지 높아짐에 따라 증착율이 증가하고 있으나, 더 높은 압력에서는 증착율의 변화는 거의 관찰이 되지 않는다. 앞서 설명한 바와 같이, 1200 sccm의 기체 유량에서는 물질전달 기구에 의해 증착율이 결정이 되며, 증착 압력에 따른 SiC 증착 기구의 변화는 크지 않을 것으로 판단이 된다. 그러나, 증착 압력이 매우 낮은 경우 식 (1)에서 볼 수 있는 바와 같이 증착 온도와 기체 유량이 일정한 조건에서 증착층 표면에서 기체의 선속도(v)는 시스템 압력의 역수에 비례하게 되어, 급격하게 증가하게 된다.¹⁶⁾

$$v = \frac{QP_0T_s}{SP_{tot}T_0} \quad (1)$$

여기서, Q는 기체유량, P_0 는 표준기압, T_s 는 증착온도, S는 증착반응로의 단면적, P_{tot} 은 반응로의 총압력, T_0 는 298 K이다.

선속도가 매우 클 경우 증착 표면에서 반응 기체의 잔류 시간($1/v$)이 줄어들며, 분해 반응이 충분히 일어나지 못하기 때문에 증착율이 감소될 수 있다. Loumage 등의 SiC 증착 연구에 의하면,¹¹⁾ 900°C 이하의 온도에서는 약 30 kPa의 높은 증착 압력까지 선형적으로 비례하여 증가하는 거동을 보인다. 그러나, 900°C 이상의 온도에서는 약 3 kPa의 증착 압력 이상에서 증착율의 변화가 관찰되지 않거나, 오히려 감소하는 경향을 보이고 있음을 알 수 있다. 반응 온도는 기체의 선속도에 큰 영향을 미치지 않기 때문에,¹⁷⁾ 1300°C의 온도에서도, 1000°C 이하의 저온에서 관찰된 경향과 같은 거동을 보일 것으로 예측되며, 특히 3.3 kPa 이상의 압력에서는 선속도가 완만하게 감소를 하기

Fig. 3. Surface and fractured morphologies of SiC deposited at 1300°C under different total flow rate: (a) 800 sccm, (b) 1200 sccm, and (c) 1600 sccm.

때문에, 증착율의 변화가 크지 않은 것으로 판단이 된다.

Fig. 5는 증착 압력에 따른 SiC 표면 미세구조의 변화를 보여 주고 있다. 모든 증착 압력 조건에서 SiC는 거시적으로 Fig. 3과 같이 pebble 구조를 가지고 있다. 그러나, 고배율 사진에서 보는 바와 같이, 6.7 kPa 증착 압력 이하에서는 표면의 결정립이 미세한 angular 형태의 구조를 보이고 있으나, 10 kPa에서는 우수한 결정성을 가지는 조대한 입자의 strong facet 구조가 관찰되고 있다. 이러한 구조의 변화는 증착 온도가 낮아지거나, 입력 기체비(α)값의 증가 등에 의한 증착 기구의 변화로부터 발생하는 경우가 대부분이며,^{12,18,19} 본 연구에서는 압력이 증가함에 따라 hot-wall CVD 장치에서 반응물질의 고갈(reactant depletion)에 의해 기체 확산층이 넓어짐에 따라 시편 주위에서 반응 물질의 국부적인 고갈이 발생했기 때문으로 판단이 된다.¹³

Fig. 4. Deposition rates of SiC as a function of the total pressure.

Fig. 5. Surface morphologies of SiC deposited at 1300°C under different total pressures: (a) 1.3 kPa, (b) 3.3 kPa, (c) 6.7 kPa, and (d) 10 kPa.

3.2. 결정방위에 따른 경도 및 탄성계수의 변화

Fig. 6은 기체의 유량 및 증착 압력에 따른 SiC 증착층의 X선 회절피크의 변화를 보여 주고 있다. 모든 증착 압력 조건에서 순수한 β -SiC가 형성되어 있음을 알 수 있다. 그러나, 증착 압력의 변화에 따라 (220)과 (311), 또는 (111) 피크가 강하게 나타나는 우선 배향면이 관찰이 된다. 증착율이 낮은 1.3 kPa의 압력에서는 (111) 우선 배향면을 가지고, 3.3 - 10 kPa로 증착 압력이 증가함에 따라 (220)과 (311)에서 (111) 우선 배향성으로 변하고 있다.

우선배향성을 정량화하기 위해 X선 회절피크의 상대강도를 이용하여 TC(texture coefficient)를 구하였다.²⁰ 식 (2)은 Harris법에 의한 TC를 산출하기 위한 식을 나타내고 있다.

$$TC = \frac{I_i/I_0}{(1/n) \sum_{i=1}^n (I_i/I_0)} \quad (2)$$

여기서, I_i/I_0 는 이론강도(I_0)에 대한 i 번째 피크의 상대강도(I_i) 비, n 은 계산에 사용된 X선 회절 피크의 수를 나타낸다.

증착 압력에 따른 SiC 증착층의 (111), (220) 및 (311) 면에 대한 TC 결과를 Table 1에 나타내었다. 3.3 kPa에서 증착된 SiC는 이상적인 등방성의 SiC 보다 (220)과 (311) 우선 배향성이 매우 크게 나타나며, 10 kPa에서 증착된 SiC는 완전히 (111) 우선 배향성을 띠고 있음을 알 수 있다.

우선 배향성이 각각 다른 3.3 - 10 kPa 압력 조건에서 증착된 SiC를 이용하여, 나노인덴테이션 분석을 수행하였다. Fig. 7은 증착 압력이 3.3 - 10 kPa인 조건에서 증착된 SiC 층의 하중이 80 mN 곡선을 보여 주고 있다. 최대 하중이 80 mN에서, 변위량은 증착 압력이 높아 질수록 낮아지고 있다. 즉, 변위량의 감소는 압흔 면적이 줄어들었음을 의

Fig. 6. X-ray diffraction patterns of as-deposited SiC as a function of the total pressure.

Table 1. Relative Intensity of X-Ray Diffraction Peaks and Texture Coefficients for SiC Deposited in the Pressure Range of 3.3-10 kPa

(hkl)	SiC (P = 3.3 kPa)		SiC (P = 6.7 kPa)		SiC (P = 10 kPa)	
	I_i/I_0	TC	I_i/I_0	TC	I_i/I_0	TC
(111)	1	0.399	1	0.786	1	3
(220)	2.56	1.02	1.22	0.960	0	0
(311)	3.96	1.58	1.59	1.25	0	0

Fig. 7. Indentation load-displacement curves of SiC deposited at different total pressures: (a) 3.3 kPa, (b) 6.7 kPa, and (c) 10 kPa.

미하며, 증착 압력이 높아지면서 SiC는 (111) 배향성이 커지고, 이로 인하여 경도가 증가했기 때문이다.

Fig. 8은 (111)면에 대한 TC 값 변화와 이에 따른 경도 및 탄성계수 변화를 보여 주고 있다. 경도 및 탄성계수는 (111) 배향성이 커질수록 높아지는 것을 확인 할 수 있으며, (220) 및 (311) 우선 배향성을 가지는 3.3 kPa에서 증착된 SiC에 비해, 경도는 약 15.7%, 탄성계수는 약 8.5% 증가했다. 경도 및 탄성계수는 재료의 밀도, 표면 상태, 집합조직 이방성, 결정립의 크기, 화학양론비 등 다양한 조건에 의해 영향을 받는 것으로 알려져 있다.²¹⁾ 본 연구에서 증착된 SiC의 경우 증착 온도 및 원료 기체비, 시편 연마 상태 등이 동일하기 때문에 밀도, 화학양론비, 표면 상태 등은 큰 영향을 미치지 않을 것으로 보이며, 이방성 및 결정립의 크기가 주된 영향이 될 수 있다고 보여진다. 그러나, Fig. 5에서 보는 바와 같이 10 kPa에서 증착된 (111) 우선 배향면을 가지고 있는 SiC의 결정립의 크기가 가장 큼에도 불구하고 경도값이 높게 측정되었다. 이러한 경향은 다른 연구에서도 관찰이 되고 있으며,¹⁵⁾ 특히, Niihara, Harai는 이러한 결정립 방향에 따른 경도값의 차이는 결정 성장 방위에 따른 β -SiC의 주 슬립(primary slip)계의 차이 때문으로 분석하였고, 결정립 크기가 작은 (220) 우선 배향면을 가지는 SiC에 비해, 결정립이 조대한 (111) 우선 배향면의 SiC의 경도가 더 높게 측정되었다.^{6,22)} 또한, 화학정량비를 가지는 1400°C에서 증착된 SiC에서도 결정 이방성의 영향이 관찰되고 있으며, (111) 우선 배향면을 가지는 SiC가 (220) 우선 배향면을 가지는 SiC보다 경도 값이 더 높게 나타났다.²¹⁾

Fig. 9은 (111) 우선 배향면을 가지는 10 kPa에서 증착

Fig. 8. Changes in hardness and elastic modulus values of SiC as a function of texture coefficient for the (111) plane: (a) hardness and (b) elastic modulus.

(a)

(b)

Fig. 9. (a) Cross-sectional microstructure and (b) hardness variations of SiC deposited at 10 kPa.

된 SiC의 미세구조 및 흑연 기판으로부터 증착된 방향으로의 거리에 따른 경도값의 변화를 보여 주고 있다. 흑연 기판에서 가까운 증착 초기의 미세구조는 columnar 구조를 가지고 있지 않은 미세한 결정립의 SiC가 성장하게 되며 결정립의 우선 배향성이 없는 random한 집합구조를 갖는다. 반면, 증착층의 두께가 약 20 μm 이상 성장한 후 조대한 결정립을 가지는 전형적인 columnar 구조를 가지며 (111) 면으로의 우선 배향성이 나타나게 된다. Fig. 9(b)의 경도 측정 결과에서 증착 초기에 증착된 미세 결정립의 SiC에 비해 조대한 결정립 크기를 갖는 증착 후기 쪽으로 갈수록 경도의 완만한 증가가 나타나는 것으로 보아, 결정립의 크기보다는 결정의 이방성이 경도 및 탄성 계수에 더 큰 영향을 미치는 것으로 판단이 된다.

4. 결 론

MTS를 이용한 LPCVD 법을 통해 β-SiC를 증착 하였으며, 증착조건에 따른 결정 이방성 및 이에 따른 기계적

특성 평가를 수행하였다. 1300°C의 온도에서 증착된 SiC의 경우 기체유량 800 - 1600 sccm의 구간에서 증착율이 선형적으로 증가되었으며, 증착 압력이 증가함에 따라 증착율이 증가 하다가 3.3 kPa 이상의 증착 압력에서는 증착율의 변화가 관찰 되지 않았다. 3.3 kPa 이상의 증착 압력에서 SiC의 우선 배향성은 (220)과 (311)에서 (111)로 변했으며, (111) 우선 배향성이 증가함에 따라 경도 및 탄성계수가 증가하였다. 반면, (220) 및 (311) 우선 배향성을 가지는 SiC의 경우 결정립의 크기가 작음에도 불구하고 경도 및 탄성계수가 감소하는 경향을 보였으며, 이는 결정의 성장 방향의 변화에 기인한 것으로 판단이 된다.

Acknowledgment

본 연구는 교육과학기술부(MEST) 한국연구재단(NRF)의 연구지원으로 수행되었으며, 이에 감사 드립니다 (No. 2012009818).

REFERENCES

1. Y. Katoh, L.L. Snead, T.D. Burchell, and W.E. Windes, Composite Technology Development Plan; Vol. 1, pp. 20-31, ORNL/TM-2009/185, ORNL, Oak Ridge, 2010.
2. X.W. Zhou and C.H. Tang, "Current Status and Future Development of Coated Fuel Particles for High Temperature Gas-Cooled Reactors," *Prog. Nucl. Energ.*, **53** 182-88 (2011).
3. Y. Katoh, T. Nozawa, and L.L. Snead, "Mechanical Properties of Thin Pyrolytic Carbon Interphase SiC-Matrix Composites Reinforced with Near-Stoichiometric SiC Fibers," *J. Am. Ceram. Soc.*, **88** [11] 3088-95 (2005).
4. T. Chuto, F. Nagase, and T. Fuketa, "High Temperature Oxidation of Nb-Containing Zr Alloy Cladding in LOCA Conditions," *Nucl. Eng. Technol.*, **41** [2] 163-70 (2009).
5. H. Feinroth, M. Ales, E. Barringer, G. Kohse, D. Carpenter, and R. Jaramillo, "Mechanical Strength of CTP Triplex SiC Fuel Clad Tubes after Irradiation in MIT Research Reactor under PWR Coolant Conditions"; pp. 47-58, in *Silicon Carbide and Carbon Composites*, Vol. 30, *Ceramic Engineering and Science Proceeding*, Ed. by Y. Katoh and A. Cozzi, John Wiley & Sons, New Jersey, 2009.
6. S. Sômiya and Y. Inomata, *Silicon Carbide Ceramics*; Vol. 1, pp. 77-98, Elsevier Science Publishers, New York, 1991.
7. J. H. Kim, H. K. Lee, J.-Y. Park, W.-J. Kim, and D.K. Kim, "Mechanical Properties of Chemical-Vapor-Deposited Silicon Carbide using a Nanoindentation Technique," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **45** [9] 518-23 (2008).
8. D. Lespiaux, F. Langlais, and R. Naslain, "Correlations between Gas Phase Supersaturation, Nucleation Process and Physico-Chemical Characteristics of Silicon Carbide Deposited from Si-C-H-Cl System on Silica Substrates," *J. Mater. Sci.*, **30** 1500-10 (1990).
9. J. Chin, P. K. Gantzel, and R. G. Hudson, "The Structure of

- Chemical Vapor Deposited Silicon Carbide,” *Thin Solid Films*, **40** 57-72 (1977).
10. F. Langlais and C. Prebende, “Physical and Chemical Kinetic Processes in the CVD of Silicon from $\text{SiH}_2\text{Cl}_2/\text{H}_2$ Gaseous Mixtures in a Vertical Cylindrical Hot-Wall Reactor,” *J. Crystal Growth*, **113** 606-32 (1991).
 11. F. Loumagne, F. Langlais, and R. Naslain, “Experimental Kinetic Study of the Chemical Vapor Deposition of SiC-Based Ceramics from $\text{CH}_3\text{SiCl}_3/\text{H}_2$ Gas Precursor,” *J. Crystal Growth*, **155** 198-204 (1995).
 12. J.-S. Song, Y.-W. Kim, D.-J. Kim, D.-J. Choi, and J.-G. Lee, “Low Pressure Chemical Vapor Deposition of Silicon Carbide(in Korean),” *J. Kor. Ceram. Soc.*, **31** [3] 257-64 (1994).
 13. D.-J. Kim, D.-J. Choi, and Y.-W. Kim, “Effect of Reactant Depletion on the Microstructure and Preferred Orientation of Polycrystalline SiC Films by Chemical Vapor Deposition,” *Thin Solid Films*, **266** 192-97 (1995).
 14. Y. long, A. Javed, Z. Chen, X. Xiong, and P. Xiao, “Deposition Rate, Texture, and Mechanical Properties of SiC Coatings Produced by Chemical Vapor Deposition at Different Temperatures,” *Int. J. Appl. Ceram. Technol.*, in press, 1-9 (2012).
 15. H. K. Lee, J. H. Kim, and D. K. Kim, “Mechanical Properties of Chemical Vapor Deposited SiC Coating Layer(in Korean),” *J. Kor. Ceram. Soc.*, **43** [8] 492-97 (2006).
 16. M. Ganz, N. Dorval, M. Lefebvre, M. Péalat, F. Loumagne, and F. Langlais, “In Situ Optical Analysis of the Gas Phase during the Deposition of Silicon Carbide from Methyltrichlorosilane,” *J. Electrochem. Soc.*, **143** [5] 1654-61 (1996).
 17. M.Y. Lee, J.Y. Park, W.-J. Kim, J.I. Kim, G.W. Hong, and S.G. Yoon, “Effect of Total Reaction Pressure on the Microstructure of the SiC deposited Layers by Low Pressure Chemical Vapor Deposition(in Korean),” *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [4] 388-92 (2001).
 18. D. J. Cheng, W. J. Shyy, D. H. Kuo, and M. H. Hon, “Growth Characteristics of CVD Beta-Silicon Carbide,” *J. Electrochem. Soc.*, **134** [12] 3145-49 (1987).
 19. J. H. Oh, C. H. Wang, D. J. Choi, and H. S. Song, “Fabrication of CVD SiC Double Layer Structure from the Microstructural Change through Input Gas Ratio(in Korean),” *J. Kor. Ceram. Soc.*, **36** [9] 937-45 (1999).
 20. C.S. Barret, Structure of Metals; Vol. 2, pp. 170-195, McGraw-Hill, New York, 1952.
 21. D.-J. Kim and D.-J. Choi, “Microhardness and Surface Roughness of Silicon Carbide by Chemical Vapour Deposition,” *J. Mater. Sci. Lett.*, **16** 286-89 (1997).
 22. K. Niihara, “Mechanical Properties of Chemically Vapor Deposited Nonoxide Ceramics,” *Am. Ceram. Soc. Bull.*, **63** [9] 1160-64 (1984).