

## Taguchi법을 이용한 Ti/TiO<sub>2</sub>/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 전극의 부식특성 최적화

채경선 · 최형기 · 예경환\* · 안준홍\* · 송요승\* · 이득용\*\*†

기술표준원 생물환경과

\*한국항공대학교 항공재료공학과

\*\*대림대학 재료정보학과

(2002년 4월 19일 접수; 2002년 5월 22일 승인)

## Optimization of Corrosion Properties of Ti/TiO<sub>2</sub>/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> Electrodes via Taguchi Method

Kyung-Sun Chae, Hyeong-Ki Choi, Kyung-Hwan Ye\*, Joon-Hong Ahn\*,  
Yo-Seung Song\* and Deuk Yong Lee\*\*†

Biotechnology and Environmental Engineering Division, Agency for Technology and Standards, Kwacheon 427-010, Korea

\*Department of Aviation Materials Engineering, Hankuk Aviation University, Koyang 412-791, Korea

\*\*Department of Materials Engineering, Daelim College of Technology, Anyang 431-715, Korea

(Received April 19, 2002; Accepted May 22, 2002)

### 초 록

Ti 기판에 TiO<sub>2</sub> 중간층을 플라즈마 용사법으로 증착 후 IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 박막을 졸-겔과 dip coating법으로 제조하였다. 코팅층의 접착력을 향상시키기 위하여 유기화합물과 glass frit을 첨가하였다. Taguchi법의 망대특성과 L<sub>18</sub>(2<sup>1</sup>×3<sup>7</sup>)의 직교배열표를 이용하여 IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 박막의 최적조건인 인자와 수준 조합의 최적화를 전류밀도를 측정 분산분석하였다. 최적의 코팅조건은 각각 ethyl cellulose의 점도는 100 cp, 건조온도 및 시간은 170°C 20분, 열처리온도 및 시간은 750°C 10분, 전도성 분말과 glass frit의 무게비는 99:5, 최종열처리시간은 120분, 주입산소량은 5 sccm이었다. 분산분석결과, 유의수준이 α=0.1인 통계적으로 90% 신뢰공정이었다.

### ABSTRACT

IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> films were deposited on plasma sprayed TiO<sub>2</sub> buffer layer above Ti metal by sol-gel and dip-coating method. Organic vehicle (ethyl cellulose and α-terpineol) and glass frit were added to improve adherence of the coatings. Taguchi method and L<sub>18</sub>(2<sup>1</sup>×3<sup>7</sup>) orthogonal arrays were evaluated in terms of current density to determine the optimal combination of levels of factors that best satisfy the bigger is better quality characteristic. The observed conditions were as follows: ethyl cellulose (100 cp), drying temperature and time (170°C, 20 min), heat treatment temperature and time (750°C, 10 min), the weight ratio of IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> powders to glass frit (99:5), final heat treatment time (120 min) and flow rate of air (5 sccm), respectively. ANOVA analysis suggested that the influence of the factors within α=0.1 was significant with a 90% confidence level.

**Key words** : Sol-gel, IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub>, Taguchi method, Analysis of variance (ANOVA), Glass frit

### 1. 서 론

전이금속 산화물(transition metal oxide)들은 낮은 내부 저항(bulk resistivity), 확산특성(diffusion barrier properties) 및 우수한 열적 안정성등의 전기화학적 특성(electrochemical properties) 때문에 산소 및 Cl 음극 전극(oxygen or chlorine evolution anode)에 널리 이용되고 있다.<sup>1-6)</sup> 전이금속 산화물 중 금속 Ti와 가장 낮은 접촉저항(contact resistance)

을 가지고 있으며 정방정 rutile 결정구조 내에서 우수한 전도체로 IrO<sub>2</sub>와 RuO<sub>2</sub> 산화물이 보고되었다.<sup>3,5)</sup> 또한, 음극 방식 전극용 Ti 금속 위에 혼합 산화물의 증착은 전기화학적 특성과 내부식성을 증진시켜 부품의 수명과 내구성 증가시킨다고 보고되었다.<sup>1,3,6)</sup> 혹독한 부식분위기에 사용되는 지하매설용 파이프, 케이블, 구조용 고정체(structural fixture)등에 Ti/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 전극이 널리 사용되고 있다.<sup>1,5)</sup>

최근에 Ti와 IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 피막간의 중간층(buffer layer)으로 플라즈마 용사법(plasma spray)으로 제조된 TiO<sub>2</sub>는 스퍼터링(sputtering)으로 제조된 중간층보다 Ti/TiO<sub>2</sub>/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 전극의 부식성을 향상시키고,<sup>7)</sup> 유기화합물인 ethyl-

†Corresponding author : Deuk Yong Lee

E-mail : dylee@daelim.ac.kr

Tel : +82-31-467-4835 Fax : +82-31-467-4830

cellulose의 첨가는 IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 피막의 수명(service lifetime)에 효과적이라고 보고되었다.<sup>8,9)</sup> 플라즈마 용사법과 스퍼터링으로 제조된 TiO<sub>2</sub>의 결정립 크기는 각각 60~200 nm, 10~50 nm로 결정립의 크기가 커질수록 전류의 흐름을 억제하는 결정입계의 면적이 작아지므로 전류밀도값이 증가하여 내식성이 증가한다고 보고되었다.<sup>7)</sup> 유기화합물은 건조 시 코팅액에 포함되어 있는 수분, 염기, 유기용매, 알코올등이 증발하면서 표면에 발생하는 균열과 기공을 제어하고 피막의 표면조직을 균일하게 치밀화 시켜 전극의 수명을 연장시키는 역할을 한다고 발표되었다.<sup>8,9)</sup> 본 연구에서는 중간층인 TiO<sub>2</sub>를 플라즈마 용사법으로 제조하고,<sup>7,10)</sup> 최종 IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 코팅층을 유기화합물뿐만 아니라 피막의 접착력 증진과 표면의 미세균열을 억제하고자<sup>9)</sup> lead borosilicate glass frit(PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>)를 첨가 졸-겔과 dip-coating법으로 증착하여 전류밀도와 표면조직을 관찰하여 glass frit의 첨가효과를 조사하였다. 실험적으로 전류밀도를 측정하여 잡음비(S/N ratio)로 변환시켜 분석하였다. Taguchi<sup>11)</sup>에 의해 개발된 품질공학(quality engineering)의 실험방법인 망대 특성(bigger is better, QC=B)을 만족하는 인자(factor)와 수준(level)의 조합인 최적조건을 조사하였다. 분석 시 사용된 인자는 2수준이 하나인 인자와 3수준이 7개인 인자를 가진 L<sub>18</sub>(2<sup>1</sup>×3<sup>7</sup>)의 직교좌표를 이용하여 설계되었으며 분산분석(analysis of variance, ANOVA)을 통하여 통계적으로 해석하였다.<sup>7-9,11)</sup>

## 2. 실험방법

### 2.1. Taguchi 실험법

본 실험에서는 Taguchi 실험계획법 중 허용차 설계를 하였다.<sup>7-9,11)</sup> 허용차 설계는 예비실험에서 분석한 기준 공정 인자(ethyl cellulosus 10 cP, 건조 온도 170°C, 하소 온도 650°C, 건조 시간 20분, 하소 시간 15분, 전도성 powder와 glass frit의 무게 비율 97:3, 소성시간 90분, 주입 공기량 1 sccm)를 일정수준범위에서 변화시켜 설계한 실험계획법이다.<sup>11)</sup> Table 1은 Taguchi 실험계획법에 사용한 직교좌표이며 L<sub>18</sub>(2<sup>1</sup>×3<sup>7</sup>)로 표시한다. 본 연구에서 공정 인자로는 ethyl-cellulosus 점도, 열처리온도, 건조온도, 건조시간, 열처리 시간, 전도성 powder와 glass frit의 무게 비율, 최종 열처리시간, 주입 산소량등 8가지 변수를 각각 A, B, C, D, E, F, G, H로 표시하였다. 2수준을 가진 A인자를 제외하곤 3수준으로 정하였고 Table 2에 표시하였다. Table 2에서 보는 것처럼 배열순서는 공정에 영향을 크게 미칠 것으로 예상되는 공정변수를 왼쪽에서부터 오른쪽으로 배치하였다.<sup>11)</sup> Glass frit은 열충격에 안정해야 하며, 유전상수와 유전손실이 낮아야 하므로 후막용 glass frit은 PbO가 포함된 것을 사용하는데 본 연구에서 사용된 glass frit (70 wt%PbO-8 wt% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-15 wt% SiO<sub>2</sub>, No. 8000, Shin-

**Table 1.** Experimental Descriptions using Level Notations for L<sub>18</sub>(2<sup>1</sup>×3<sup>7</sup>) and their S/N Values

No.	A	B	C	D	E	F	G	H	S/N
1	1	1	1	1	1	1	1	1	32.5350
2	1	1	2	2	2	2	2	2	33.4562
3	1	1	3	3	3	3	3	3	37.4297
4	1	2	1	1	2	2	3	3	35.5334
5	1	2	2	2	3	3	1	1	38.1051
6	1	2	3	3	1	1	2	2	36.8576
7	1	3	1	2	1	3	2	3	37.4525
8	1	3	2	3	2	1	3	1	36.6121
9	1	3	3	1	3	2	1	2	39.2104
10	2	1	1	3	3	2	2	1	34.6704
11	2	1	2	1	1	3	3	3	43.1392
12	2	1	3	2	2	1	1	2	35.0922
13	2	2	1	2	3	1	3	2	37.5865
14	2	2	2	3	1	2	1	3	36.2458
15	2	2	3	1	2	3	2	1	33.6530
16	2	3	1	3	2	3	1	2	40.4230
17	2	3	2	1	3	1	2	3	37.0654
18	2	3	3	2	1	2	3	1	40.9782
Total Sums									666.0457

**Table 2.** Factor and Level Descriptions

Level	A (cp)	B (°C)	C (°C)	D (min)	E (min)	F (wt ratio)	G (min)	H (sccm)
1	10	550	150	15	10	99:1	60	1
2	100	650	170	20	15	97:3	90	3
3	-	750	190	25	20	95:5	120	5

heung Ceramics Ltd., Korea)은 점도와 온도의존성을 고려한 것으로 열팽창계수, 유리전이온도 및 융점은 각각  $8.27 \times 10^{-6}/C$ , 408°C, 480°C이었다.

Table 1에서 각 실험번호에 해당하는 공정조건으로 시편을 제조하고, 제조된 박막의 성능 평가를 위해서 피막층의 전류밀도를 측정하였다. 측정된 전류밀도 값을 목표값(target value)으로 정하여 공정인자가 미치는 영향을 S/N 값으로 분석하였다. 분석 할 때에 사용되는 S/N비는 식(1)에 의해 목표 값을 S/N비 값으로 환산하였다. 식(1)은 망대특성(QC=B)으로 S/N비 값이 크면 클수록 좋다는 의미를 가진다.

$$S/N = -10 \log_{10} \left( \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \frac{1}{y_{ij}^2} \right) \quad (1)$$

식(1)에서 n은 y의 반복 수이며 y<sub>ij</sub>는 행렬의 i번째 실험점에서 관측된 j번째의 성능 특성치를 나타낸다. 각 공정변수의 S/N 값을 이용하여 식(2)를 이용 ANOVA 분석을 하였다.<sup>11)</sup>

$$S = \sum \frac{(T_i)^2}{n} - \left( \frac{T^2}{18} \right) \quad (2)$$

S는 제곱합,  $T_i$ 는 각각 수준별 특성치의 합, n은 수준별 특성치 개수, T는 총제곱합을 나타낸다.

## 2.2. IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 피막 제조 및 전류밀도 측정법

### 2.2.1. IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 피막 제조방법

5×5×3 mm인 Ti 기판을 연마포(SiC #220)를 이용한 후 연마한 후 90°C 6 N의 HCl 용액에서 1시간 처리한 후 증류수에 세척하였다. Ti 기판에 플라즈마 용사법을<sup>7,10)</sup> 이용하여 TiO<sub>2</sub>를 제조하여 졸-겔 및 dip-coating용 기판으로 사용하였다. 플라즈마 용사법의 실험조건은 참고문헌에 자세히 기술되어 있다.<sup>7,10)</sup> 졸-겔 용액은 iso-propanol과 α-terpineol의 부피 비율을 8:2로 유지하고,<sup>8,9)</sup> 전도성 물질인 IrCl<sub>3</sub>·3H<sub>2</sub>O과 RuCl<sub>3</sub>·xH<sub>2</sub>O의 염화물의 중량 비가 1:9로 하였으며, ethyl-cellulose양은 전도성 물질의 5 wt%가 되도록 첨가하였다. 각 실험조건으로 시편을 1회 침지 후 건조, 열처리까지를 1회로 하여 전부 5회 반복한 후 최종 열처리를 하였다.

### 2.2.2. 피막의 전류밀도 실험방법

전극의 전류밀도(anodic current density) 시험을 위하여 ASTM G5에 기초하여 전기 화학적 분극실험(polarization test)을 실시하였다.<sup>7-9,12)</sup> 전해액은 해수조건 상태인 3.5% NaCl 용액(pH 6-7)을 사용하였고, 담수조건으로는 chloride 15±5 ppm인 수도물(pH 6-7)을 사용하였다. 기준전극은 포화칼로멜전극(Saturated Calomel Electrode, SCE), 상대전극은 흑연전극을 각각 사용하였다.<sup>12)</sup> 실험 방법은 시편을 1시간 동안 전해액에 침지시킨 후 동적전위법(potentiodynamic method)으로 개방전위(open circuit potential)에서 전위 sweep을 0.6 V/h의 속도로 1.8 V SCE까지 측정하였다.<sup>12)</sup>

## 3. 결과 및 고찰

측정한 전류밀도 값을 식(1)를 이용 S/N비로 환산한 값과 ANOVA 분석법을 위한 제곱합(S)의 값은 각각 Table 1와 3에 나타내었다. 전류밀도 값에 대한 S/N비 값을 이용하여 1, 2, 3 수준(level)별 합을 계산한 후, 식(2)를 통해 제곱합을 구하였다. ANOVA 분석법의 제곱합을 구함으로써 평균 제곱합( $V = S/\phi$ )과 F-분포표를 이용한 유의수준 값( $F_0$ )을 계산하여 최적의 공정 제어인자(factor)에 대한 신뢰도(confidence level)를 조사하였다.<sup>11)</sup> Table 4와 5는 ANOVA 분석결과표이며 각각 pooling 전과 pooling 후를 나타낸 것이다. 평균 제곱합(V)은 제곱합(S)을 자유도( $\phi$ )로 나눈 값을 말하고, 자유도는(수준수-1)의 값이다. 본 실험에서 인자의 수준(level)은 A는 2수준, B에서 H까지는 3수준이므로 자유도는 A는 1이고, B에서 H까지는 2이다. 오차 항은 pooling시 생기는 항으로 A에서 H까지

Table 3. ANOVA Analysis before Pooling

Factor	Sums of Squares			S	$\phi$	V
	1	2	3			
A	327.1919	338.8537	-	7.5553	1	7.553
B	216.3227	217.9815	231.7414	23.8716	2	11.9358
C	218.2007	224.6238	223.2211	3.7942	2	1.8971
D	221.1364	222.6707	222.2386	0.2086	2	0.1043
E	227.2083	214.7698	224.0675	13.9386	2	6.9693
F	215.7489	220.0943	230.2024	18.3237	2	9.1619
G	221.6115	213.1551	231.2790	27.4063	2	13.7032
H	216.5537	222.6259	223.8660	8.9478	2	4.4739

Table 4. ANOVA Analysis after Pooling

Factor	S	$\phi$	V	F <sub>0</sub>	F( $\alpha=0.1$ )
A	7.5553	1	7.5553	72.7169	49.9
B	23.8716	2	11.9358	114.878	9.00
C	3.7942	2	1.8971	18.2587	9.00
E	13.9386	2	6.9693	67.0770	9.00
F	18.3237	2	9.1619	88.1795	9.00
G	27.4063	2	13.7032	131.888	9.00
H	8.9478	2	4.4739	43.0597	9.00
Error	0.2086	2	0.1043		
Total	104.0461	15	55.8008		

평균 제곱합(V)의 값을 비교하였을 때 가장 작은 값의 항이다. 오차 항은 공정 설계 시 설정한 공정인자 중 피막에 미치는 영향력이 상대적으로 작은 공정인자(D)로 정의된다. 각 제어 인자의 유의수준( $F_0$ ) 값은 오차 항과 F-분포표를 이용하여 분석하였다.<sup>11)</sup> Pooling은 각각의 제어 인자의 평균 제곱 합(V) 값을 상대적으로 비교하여, 작은 값을 오차 항에 포함시켜 수행하였다. 가장 작은 값을 갖는 D항을 오차 항으로 pooling한 후 유의수준  $\alpha=0.1$ (90% 신뢰 구간인 경우)인 F-분포표를 이용하여 각 인자의 F( $\alpha=0.1$ )의 값을 구하여 Table 4에 나타내었다. 본 연구에서 얻은 최적 공정변수는 유의 수준  $\alpha=0.1$ 에서 F(2, 2;  $\alpha=0.1$ )은 9.00로<sup>11)</sup> 가장 작은 값을 가진 C 인자의  $F_0$  값인 18.2587 보다 작으므로(Table 4) 통계적으로 90% 신뢰 공정 설계이었다.<sup>11)</sup>

Fig. 1은 각 제어인자의 기여도를 나타낸 것이다. 본 실험에서 피막의 전류밀도값을 최대로 얻기 위함으로 망대특성(QC=B)을 적용하였으며, 최적 공정인자는 각 인자에 해당하는 수준 중에서 S/N비 값을 가장 크게 하는 수준을 선택하였으므로 최적의 공정인자와 수준의 조합은 Fig. 1에서 보는 것처럼 A<sub>2</sub>B<sub>3</sub>C<sub>2</sub>D<sub>2</sub>E<sub>1</sub>F<sub>3</sub>G<sub>3</sub>H<sub>3</sub>로 ANOVA 분석에 의거 90% 이상의 신뢰도를 나타냈다. Fig. 2에서 최적의 공정인자의 경우와 유기화합물등 첨가제가 없는 경우의 전류밀도 값을 나타내었다. 최적의 공정인자와 첨가

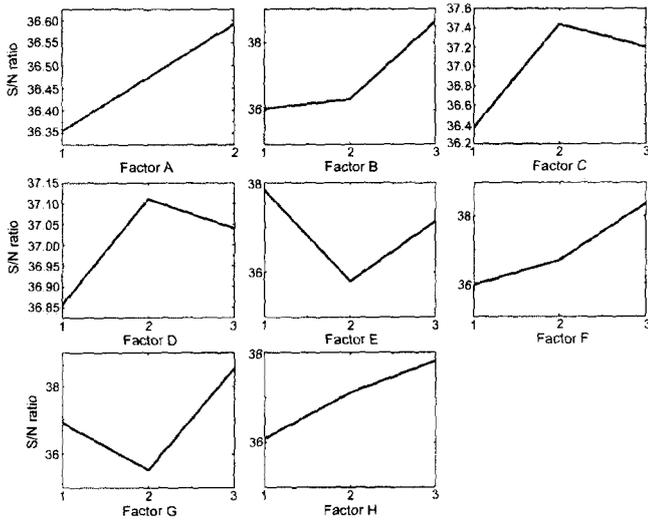


Fig. 1. Main effects of the 8 factors.

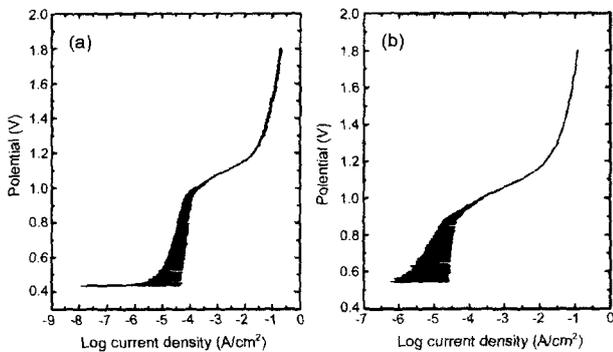
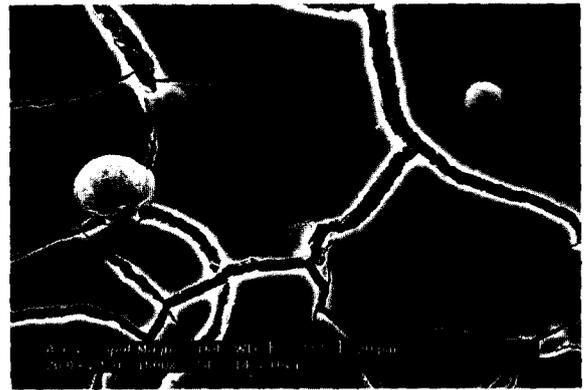


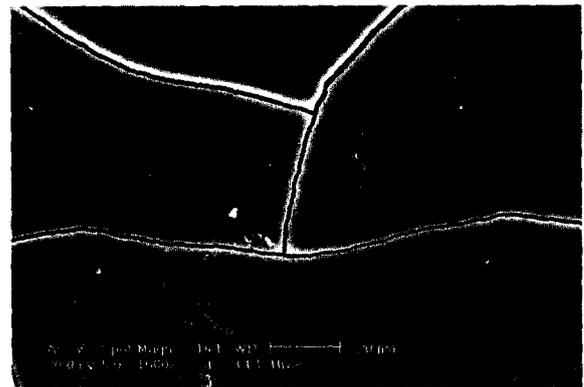
Fig. 2. Polarization diagrams of (a) A<sub>2</sub>B<sub>3</sub>C<sub>2</sub>D<sub>2</sub>E<sub>1</sub>F<sub>3</sub>G<sub>3</sub>H<sub>3</sub> and (b) the IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> films without additives, respectively.

제가 없는 경우의 전류밀도 값은 각각 0.097 A/cm<sup>2</sup>와 0.065 A/cm<sup>2</sup>이었다. 실험결과, 최적의 공정조건(A<sub>2</sub>B<sub>3</sub>C<sub>2</sub>D<sub>2</sub>E<sub>1</sub>F<sub>3</sub>G<sub>3</sub>H<sub>3</sub>)이 기존의 조건으로 제조된 전극에 비해 전류밀도 값에서 약 150% 향상된 것이 관찰되었다.

Fig. 3은 동일한 조건에서 건조온도(C)를 150°C, 170°C, 190°C로 각각 변화시켜 SEM을 관찰하였다. 건조온도를 150°C와 190°C에서 열처리하였을 때 표면에 구상의 입자들이 관찰되지만, 170°C(Fig. 2(b))에서는 관찰되지 않았다. Fig. 4는 구상의 입자를 EDX로 정량 분석한 것으로 구상의 입자는 IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 피막의 주성분인 IrCl<sub>4</sub>, RuCl<sub>4</sub>, Cl 등으로 구성된 것이 관찰되었다. 190°C에서 검은 그림자의 둥근 자국이 관찰되었는데, 이는 Cl이 burning하여 생긴 것으로 사료된다. 실험적으로 190°C에서 단위 면적당 균열의 밀도가 가장 높고 170°C에서는 단위 면적 당 균열 밀도가 상대적으로 작았다. 위 현상은 건조 시 모재에 흡착되어 있는 휘발성물질, 용매 및 기타 알코올류가 증발하면서 표면에 전단응력(shear stress)이 발생하여 균열의



(a)



(b)



(c)

Fig. 3. SEM micrographs of the IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> film surfaces after drying at (a) 150°C, (b) 170°C and (c) 190°C, respectively.

생성을 촉진하는 것으로 추정된다.<sup>8,9)</sup> 특히, 190°C에서 150°C나 170°C 보다 극심한 증발 현상으로 인한 전단응력의 축적으로 단위면적당 균열밀도가 가장 높은 것으로 사료된다. 그러나, 170°C에서는 표면에 구상의 입자가 관찰되지 않았을 뿐만 아니라 단위 면적 당 균열 밀도가 낮았는데 ethyl-cellulose가 초기에 α-terpineol에 고용되고, IrCl<sub>4</sub>과 RuCl<sub>4</sub>이 섞이면서 분산제 역할을 하여 건조처리 시 IrCl<sub>4</sub>과 RuCl<sub>4</sub>이 비정질화 되면서 표면에 나타나는 전단응력

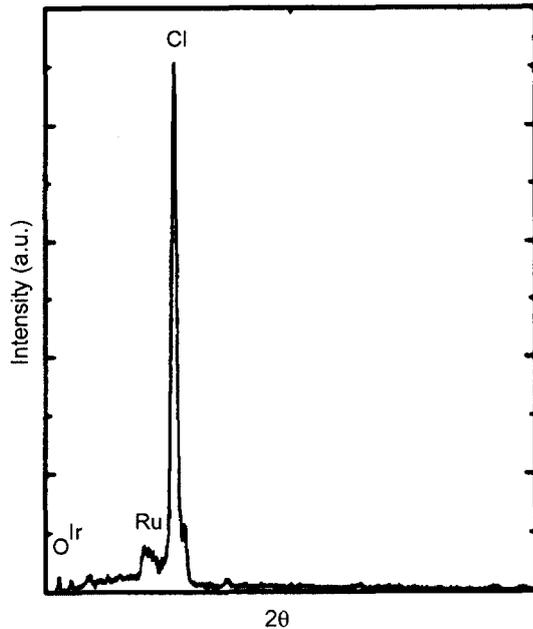
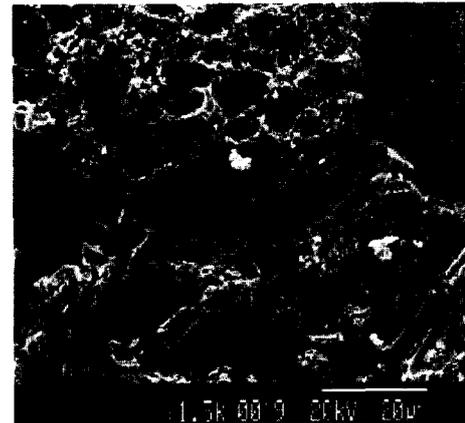


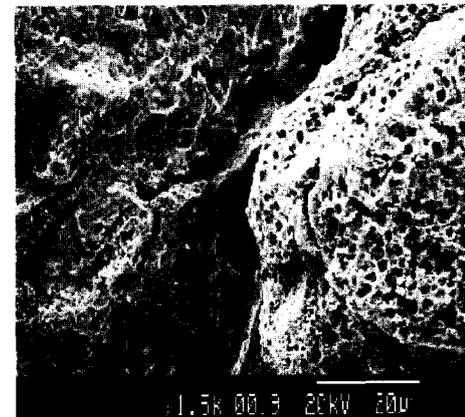
Fig. 4. EDX analysis of the surface particles formed after drying process.

을 억제하고 균열발생을 낮추어 표면을 치밀하게 해 준 것으로 사료된다.<sup>8,9)</sup> 실험적으로 Fig. 3(b)에서 보는 것처럼 표면이 170°C의 피막에서 가장 균일하였다. 실험적 결과는 ANOVA 분석을 통해 얻은 결과와 잘 일치하였다. ANOVA 분석에 의하면 제어인자 C(건조온도)가 C<sub>2</sub>(170°C)로 될 경우 전류밀도 성능이 가장 우수하였는데, 미세조직 관찰을 통해서도 건조온도가 170°C에서 결합과 균열 밀도가 가장 낮았고 표면이 균일한 형상이므로 ANOVA 분석과 같은 결과가 관찰되었다.

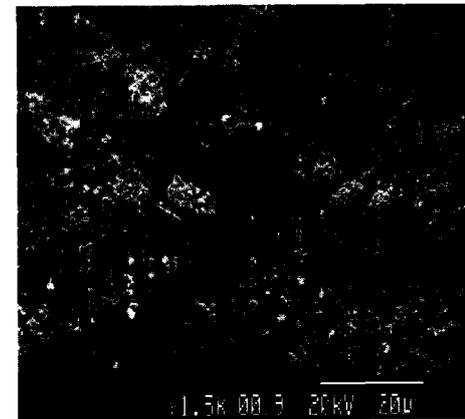
Fig. 5는 열처리온도(B)를 550°C, 650°C, 750°C로 변화시킨 SEM 관찰 결과이다. Fig. 5(a)와 (b)와는 달리 Fig. 5(c) (750°C)는 균열발생이 적을 뿐만 아니라 표면에 생기는 기공이 거의 관찰되지 않았다. 건조과정에서 균열이 발생하지만 본 실험에서는 glass frit을 첨가하였기 때문에 Fig. 5(c)와 같이 기공과 균열이 적었으며 치밀해진 조직이 관찰되었다.<sup>13)</sup> Fig. 5에서는 알 수 없지만 일반적으로 저융점 glass frit은 고온 열처리에서 액상(liquid glass)으로 변하여 모세관 현상이 발생함으로 피막의 표면에서 발생되는 기공이나 균열등으로 침투하여 균열의 발생을 억제해주는 것으로 추정된다.<sup>13,14)</sup> ANOVA 분석을 통해 나타난 B 인자에 대해 B<sub>3</sub>(750°C)에서 열처리함으로써 전류밀도 성능이 가장 우수하게 나타났고, 미세조직 관찰결과와 일치하였다. Fig. 6은 glass frit의 첨가량(F)을 5 wt%, 3 wt%, 1 wt%로 감소시키면서 피막의 전류밀도를 측정된 결과이다. 첨가량이 감소함에 따라 전류밀도값은 0.093 A/cm<sup>2</sup>, 0.073 A/cm<sup>2</sup>, 0.062 A/cm<sup>2</sup>로 감소하였다. Glass frit의 첨가



(a)



(b)

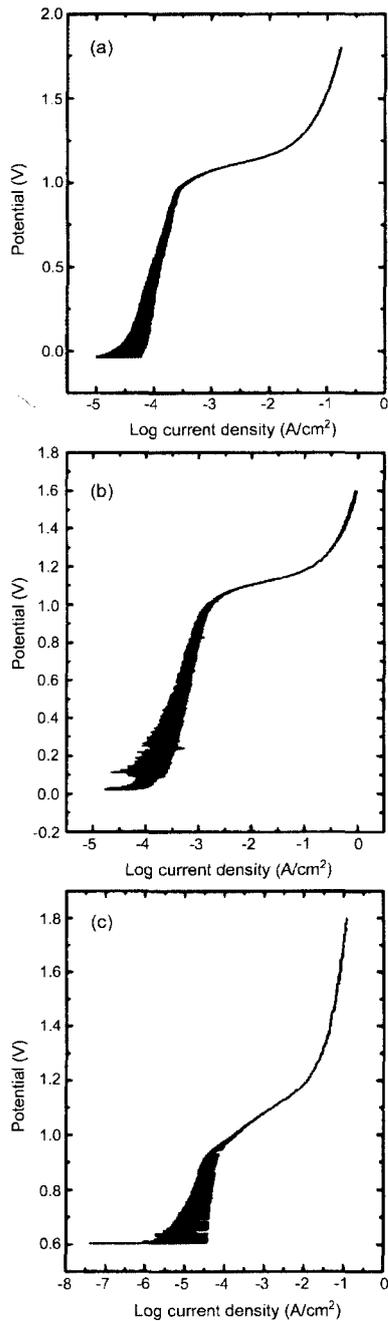


(c)

Fig. 5. SEM micrographs of the surfaces after heat treatment at (a) 550°C, (b) 650°C and (c) 750°C, respectively.

량을 증가시킴으로 피막의 면 저항이 감소하여 전류밀도 성능이 우수해 지는 것으로 사료된다. 상기 결과 또한 ANOVA 분석결과와 일치하였다.

ANOVA 분석결과, 최적의 공정인자(factor) 및 수준(level)의 조합은 A<sub>2</sub>B<sub>3</sub>C<sub>2</sub>D<sub>2</sub>E<sub>1</sub>F<sub>3</sub>G<sub>3</sub>H<sub>3</sub>이었다. Ti/TiO<sub>2</sub>/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 전극의 부식특성 향상을 위한 최적 공정조건은 ethyl-



**Fig. 6.** Polarization diagrams of the IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> films containing (a) 5 wt%, (b) 3 wt% and (c) 1 wt% of glass frit, respectively.

cellulose의 점도가 100 cP, 건조온도 170°C, 건조시간 20분, 열처리 온도 750°C, 열처리 시간 10분, 전도성 powder와 glass frit의 무게분율은 95 : 5, 최종 열처리 시간 120분, 주입 공기량은 5 sccm이다. Taguchi 법과 직교좌표에 의한 분산분석 결과는 실험적으로 측정된 전류밀도와 SEM 관찰결과와 잘 일치하였으며 Ti/TiO<sub>2</sub>/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 전극 제

조 시 유기화합물과 glass frit의 첨가가 부식특성 향상에 효과적이었다.

#### 4. 결 론

Ti/TiO<sub>2</sub>/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> 전극의 부식특성을 Taguchi 법과 L<sub>18</sub> (2<sup>1</sup> × 3<sup>7</sup>)의 직교좌표를 이용 최적화 한 결과, 최적 공정조건은 ethyl-cellulose 100 cP, 건조온도 170°C, 건조시간 20분, 열처리 온도 750°C, 열처리 시간 10분, 전도성 powder와 glass frit의 무게 비 95 : 5, 최종 열처리 120분, 주입 공기량은 5 sccm이었다. 첨가제가 없는 공정조건으로 제조된 전극에 비해 유기화합물과 glass frit이 첨가된 공정조건으로 제조된 전극의 전류밀도 성능이 150% 향상되었다. ANOVA 분석결과, 최적 공정조건은 유의수준  $\alpha=0.1$ 에 해당하는 통계적으로 90% 신뢰공정으로 실험적 결과와 잘 일치하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 산업기반기술사업에 의해 수행되었으며 이에 감사 드립니다.

#### REFERENCES

1. S. Trasatti and G. Lodi, *Electrodes of Conductive Metallic Oxides; Part A*, pp. 301-09, Elsevier Science Ltd., Amsterdam, 1980.
2. L. Krusin-Elbaum, "Effect of Oxygen on the Electrical Transport in RuO<sub>2</sub>," *Thin Solid Films*, **169** 17-24 (1989).
3. L. Krusin-Elbaum and M. Wittmer, "Conducting Transition Metal Oxides: Possibilities for RuO<sub>2</sub> in VLSI Metallization," *J. Electrochem. Soc.*, **135** [10] 2610-14 (1988).
4. L. Krusin-Elbaum, M. Wittmer and D. S. Yee, "Characterization of Reactively Sputtered Ruthenium Dioxide for Very Large Scale Integrated Metallization," *Appl. Phys. Lett.*, **50** [26] 1879-81 (1987).
5. M. L. Green, M. E. Gross, L. E. Papa, K. J. Schnoes and D. Brasen, "Chemical Vapor Deposition of Ruthenium and Ruthenium Dioxide Films," *J. Electrochem. Soc.*, **132** [11] 2677-85 (1985).
6. R. Mraz and J. Krysa, "Long Service Life IrO<sub>2</sub>/Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Electrodes for Electroflotation," *J. Appl. Electrochem.*, **24** 1262-66 (1994).
7. K-S. Chae, J-G. Yoon, J-H. Ahn, Y-S. Song and D. Y. Lee, "Application of Taguchi Method and Orthogonal Arrays for Characterization of Corrosion Rate of IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> Film," *J. Mater. Sci.*, in press.
8. K-S. Chae, H-K. Choi, J-H. Ahn, Y-S. Song and D. Y. Lee, "Effect of Organic Vehicle Addition on Service Lifetime of Ti/IrO<sub>2</sub>-RuO<sub>2</sub> Electrodes," *Mater. Lett.*, in press.
9. K-S. Chae, A-R. Han, H-K. Choi, J-H. Ahn, Y-S. Song and D. Y. Lee, "A Study on Optimization Process of Metal

- Oxide Coating with Organic Vehicle(*in Kor.*)," *J. Corros. Sci. Soc. Kor.*, **30** [4] 205-12 (2001).
10. Y-S. Song, I-G. Lee, D. Y. Lee, D-J. Kim, S. Kim and K. Lee, "High-temperature Properties of Plasma-sprayed Coatings of YSZ/NiCrAlY on Inconel Substrate," *Mater. Sci. & Eng. A*, **332** [1-2] 129-33 (2002).
  11. R. K. Roy, Design of Experiments Using the Taguchi Approach; pp. 179-185, John Wiley & Sons, Inc., New York, 2001.
  12. H. H. Uhlig and R. W. Revie, Corrosion and Corrosion Control; 3rd Ed., pp. 35-59, John Wiley & Sons, New York, 1985.
  13. D. Y. Lee, J-W. Jang, D-J. Kim, I-S. Park, J-K. Lee, M-H. Lee and B-Y. Kim, "Glass-alumina Composites Prepared by Melt-infiltration: I. Effect of Alumina Particle Size(*in Kor.*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **38** [9] 799-805 (2001).
  14. D. Y. Lee, J-W. Jang, M-H. Lee, J-K. Lee, D-J. Kim and I-S. Park, "Glass-alumina Composites Prepared by Melt-infiltration: II. Kinetic Studies(*in Kor.*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **39** [2] 145-52 (2002).