



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2024년01월16일  
(11) 등록번호 10-2625117  
(24) 등록일자 2024년01월10일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
C03C 8/24 (2006.01) C03C 8/16 (2006.01)  
H01M 8/0282 (2016.01) H01M 8/0286 (2016.01)  
H01M 8/124 (2016.01)
- (52) CPC특허분류  
C03C 8/24 (2013.01)  
C03C 8/16 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2017-7003949
- (22) 출원일자(국제) 2015년07월08일  
심사청구일자 2020년06월19일
- (85) 번역문제출일자 2017년02월13일
- (65) 공개번호 10-2017-0033348
- (43) 공개일자 2017년03월24일
- (86) 국제출원번호 PCT/GB2015/051983
- (87) 국제공개번호 WO 2016/012750  
국제공개일자 2016년01월28일
- (30) 우선권주장  
1413073.6 2014년07월23일 영국(GB)  
1416085.7 2014년09월11일 영국(GB)
- (56) 선행기술조사문헌  
EP02070507 A1  
Journal of Power Sources, 247(2014) p.p.  
243-248\*  
JP2005112925 A\*  
KR1019900006247 A\*  
\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

- (73) 특허권자  
플렉시탈릭 인베스트먼트, 인크.  
미국 텍사스주, 휴스턴, 스위트 190, 4150 엔. 샘  
휴스턴 파크웨이 이. (우: 77032)
- (72) 발명자  
애시워스 존  
영국 랭커셔 오엘13 0비더블유 배킵 파크 로드 비  
즈니스 센터 유닛 2
- (74) 대리인  
리앤목특허법인

전체 청구항 수 : 총 30 항

심사관 : 김준규

(54) 발명의 명칭 **유리 코팅 조성물**

**(57) 요약**

연료 전지 개스킷을 위한 유리 코팅 조성물이 기술된다. 상기 코팅은 동등한 중량의 물의 존재 하에 알칼리성 용액을 형성하는데 효과적인 유리 성분, 바인더 성분, 50 부피% 초과인 물인 액체 캐리어, 및 상기 조성물의 경화를 억제하는데 효과적인 지연제를 포함한다. 상기 유리 코팅 조성물은 특히 연료 전지 개스킷에 유용하고, 수계 분산액에서 응고에 대한 향상된 저항성을 제공한다.

(52) CPC특허분류

*H01M 8/0282* (2013.01)

*H01M 8/0286* (2013.01)

*H01M 2008/1293* (2013.01)

*Y02E 60/50* (2020.08)

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

연료 전지 개스킷을 위한 유리 코팅 조성물로서, 상기 유리 코팅 조성물은

동등한 중량의 물의 존재 하에 알칼리성 용액을 형성하는 유리 성분;

바인더 성분;

50 부피% 초과와 물인 액체 캐리어;를 포함하고,

상기 유리 코팅 조성물의 경화를 억제하는 지연제를 더 포함하는 것을 특징으로 하고,

상기 지연제는, 리그닌 화합물; 히드록카르복실산 및 이들의 염; 비닐 고분자; 당류(saccharides); 아연 산화물; 포스페이트; 플루오레이트; 붕산; 보레이트; 및/또는 이들의 유도체 또는 이들의 혼합물;로부터 이루어진 그룹의 하나 이상으로부터 선택되는, 연료 전지 개스킷을 위한 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 지연제는 하나 이상의 유기 또는 무기 지연제로부터 선택되는, 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 3

제1항에 있어서,

상기 지연제는 보레이트인, 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 4

제3항에 있어서,

상기 보레이트는 하나 이상의 알칼리 보레이트로부터 선택되는, 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 5

제4항에 있어서,

상기 알칼리 보레이트는 소듐 메타보레이트, 소듐 테트라보레이트 (또한 붕사라고 알려짐) 및 포테슘 펜타보레이트로부터 선택되는, 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 6

제1항에 있어서,

상기 지연제는 수용성인, 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 7

제1항에 있어서,

상기 유리 코팅 조성물 내의 상기 지연제의 함량은 0.02 내지 20 중량% 사이인, 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 8

제1항에 있어서,

상기 유리 코팅 조성물 내의 상기 지연제의 함량은 25 중량% 이하인, 유리 코팅 조성물.

#### 청구항 9

제1항에 있어서,

상기 유리 성분은 물에서 경화되고 응고되는 유형이고,

SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, BaO, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO, Cs<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>O, MgO, Na<sub>2</sub>O, PbO, Rb<sub>2</sub>O, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SnO, SrO, TiO<sub>2</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및/또는 ZnO로부터 선택된 화합물들의 하나 이상을 포함하는, 유리 코팅 조성물.

**청구항 10**

제1항에 있어서,

상기 유리에 의하여 형성되는 알칼리성 용액은 25℃에서 1:1 w/w 비율의 유리:물에서 적어도 8의 pH를 갖는, 유리 코팅 조성물.

**청구항 11**

제1항에 있어서,

상기 유리 성분은 상기 유리 코팅 조성물의 10-90 중량%의 범위에서 존재하는, 유리 코팅 조성물.

**청구항 12**

제1항에 있어서,

상기 유리 성분:상기 지연제의 비율은 40:1 내지 90:1 w/w 사이의 범위 내에 있는, 유리 코팅 조성물.

**청구항 13**

제1항에 있어서,

상기 바인더 성분은 셀룰로스 바인더; 아크릴레이트 호모 또는 코폴리머; 비닐 아세테이트 호모 또는 코폴리머; 에틸렌 코폴리머; 및 폴리비닐 부티랄로부터 선택되는, 유리 코팅 조성물.

**청구항 14**

코어층을 포함하는 연료 전지의 두 결합 표면을 밀봉하기 위한 개스킷으로서,

상기 코어층은 제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 유리 코팅 조성물에 따른 제1 및 제2 코팅층 사이에 개재되어 있는, 개스킷.

**청구항 15**

제14항에 있어서,

상기 코어층은 탄력적으로 변형가능한 코어층인, 개스킷.

**청구항 16**

제15항에 있어서,

상기 코어층은 화학적으로 박리된 질석(chemically exfoliated vermiculite, CEV) 및/또는 열적으로 박리된 질석(thermally exfoliated vermiculite, TEV)을 포함하는, 개스킷.

**청구항 17**

제14항에 있어서,

상기 코팅층의 액체 캐리어가 건조에 의하여 실질적으로 제거되어 있는, 개스킷.

**청구항 18**

제17항에 있어서,

상기 코팅층의 바인더가 사용시 제거되거나 분해되어 있는, 개스킷.

**청구항 19**

연료 전지의 두 결합 표면을 밀봉하기 위한 개스킷을 포함하는 연료 전지로서,  
상기 개스킷은 제14항에 따르는, 연료 전지.

**청구항 20**

제14항에 따른 하나 이상의 개스킷을 포함하는 고체 산화물 연료 전지.

**청구항 21**

제14항에 따른 하나 이상의 개스킷을 포함하는 고체 산화물 연료 전지 부품.

**청구항 22**

제14항에 따른 개스킷을 고체 산화물 전지 내로 도입하는 단계를 포함하는, 고체 산화물 연료 전지를 제조하거나, 또는 고체 산화물 연료 전지를 밀봉하는 방법.

**청구항 23**

코어층을 포함하는 연료 전지의 두 결합 표면을 밀봉하기 위한 개스킷의 제조 방법으로서, 상기 코어층은 제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 유리 코팅 조성물에 따른 제1 및 제2 코팅층 사이에 개재되어 있고, 상기 제조 방법은:

- (a) 제1항 내지 제13항 중 어느 한 항의 유리 코팅 조성물을 개스킷 코어층의 각각의 대향하는 표면 상에 코팅하여, 그 위에 코팅층을 형성하는 단계; 및
- (b) 상기 코팅된 개스킷을 연료 전지 내에 밀봉될 결합 표면들 사이에 위치시키는 단계;를 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 24**

제23항에 있어서,  
상기 개스킷을 가열하여 잔존하는 휘발성 유기 성분들을 제거하는 단계;를 더 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 25**

제23항에 있어서,  
상기 개스킷을 가열하여 상기 코팅층을 소결하는 단계;를 더 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 26**

제23항에 있어서,  
추가적으로 가열하여 상기 코팅층의 젖음을 일으키는 단계;를 더 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 27**

코어층을 포함하는 연료 전지의 두 결합 표면을 밀봉하기 위한 개스킷의 제조 방법으로서, 상기 코어층은 제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 유리 코팅 조성물에 따른 제1 및 제2 코팅층 사이에 개재되어 있고, 상기 제조 방법은:

- (a) 제1항 내지 제13항 중 어느 한 항의 유리 코팅 조성물을 밀봉될 각각의 결합 표면들 상에 코팅하는 단계;
- (b) 개스킷 코어층을 밀봉될 상기 코팅된 결합 표면들 사이에 위치시키는 단계;
- (c) 상기 코팅된 표면들 및 개재된 개스킷 코어층을 함께 결합(mating)시키는 단계;를 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 28**

제27항에 있어서,

상기 개스킷을 가열하여 잔존하는 휘발성 유기 성분들을 제거하는 단계;를 더 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 29**

제27항에 있어서,

상기 개스킷을 가열하여 상기 코팅된 표면들을 소결하는 단계;를 더 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 30**

제27항에 있어서,

추가적으로 가열하여 상기 코팅된 표면들의 젖음을 일으키는 단계;를 더 포함하는 개스킷의 제조 방법.

**청구항 31**

삭제

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 발명은 연료 전지 개스킷을 위한 유리 코팅 조성물에 관한 것이고, 더욱 구체적으로 본 발명은 고체 산화물 연료 전지(SOFC) 및 고체 산화물 전해 전지(SOEC)에 사용하기 위한 연료 전지 개스킷의 탄력성있는 코어 재료를 위한 유리 코팅에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] SOFC 또는 SOEC 스택(stack)은 효율적으로 작동하기 위하여 효과적인 고온 개스킷을 필요로 한다. 이러한 씰(seal)은 연료, 예를 들어, 수소의 누설; 연료 및 산화제의 혼합; 및 산화제의 누설을 실질적으로 막을 수 있어야 한다. 씰은 또한 응력(stress)을 피하기 위하여 주변 구성 요소와 유사한 열팽창 계수(coefficients of thermal expansion)를 가져야 한다는 것이 이해된다. 씰은 또한 스택 구성 부품들 및 가스들과 화학적으로 양립될 필요가 있다. 나아가, 일부 씰들은 전기적으로 절연성일 필요가 있다.

[0003] 전통적으로, SOFC 스택 개스킷은 결합성 개스킷(bonding gasket)(예를 들어, 유리/유리-세라믹 또는 브레이즈(braze)) 또는 비결합성(압축성) 개스킷(예를 들어, "A review of sealing technologies applicable to solid oxide electrolysis cells" P. Lessing, Journal of Materials Science, 2007, 42 (10), 3465-3476를 참조하라)이었다. 더욱 최근에는 다중 재료 개스킷(multiple material gasket)이 발전되어 왔다. 상기 개스킷은 압축성 개스킷과 결합성 개스킷 둘 다의 특성 및 재료들을 결합시켰다.

[0004] 결합성 개스킷은 주로 유리 및 유리-세라믹을 함유하고, 이들은 연료 전지의 연관된 결합 표면들(mating surfaces)에 기계적으로 및 화학적으로 결합함으로써 작동한다. 유리 씰은 밀봉(hermetic sealing)을 제공하기 위하여 SOFC 작동 온도 위에서 연화되어 점성적으로 유동하도록 설계된다. SOFC가 작동 온도로 다시 냉각될 때, 유리 씰은 굳어져서 단단하게 결합된 씰을 형성한다.

[0005] 일반적으로, 유리 씰의 적용을 위한 유리 조성물은 테르피네올(terpineol)과 같은 유기 용매 및/또는 유기 고분자 매개물(vehicle)을 포함한다. 그러나 그러한 조성물은 대체로 휘발성 유기 화합물(VOC) 성분 때문에 바람직하지 않다. 덧붙여 연료 전지가 그러한 물질들로 오염되는 것이 또한 가능하다.

[0006] US 2013/108946A 및 US 2012/318022A는 유기 바인더 캐리어 매개물을 갖는 연료 전지를 위한 유리 조성물을 기술하는데, 상기 바인더는 테르피네올과 같은 분산제 화합물 및 에탄올과 같은 용매를 선택적으로 포함한다. 마찬가지로 US6656625B는 유기 바인더 캐리어 매개물만을 언급한다.

[0007] 그러므로 물 기반의(water-based) 유리 코팅 조성물을 사용하는 것이 유리할 것이다. 그러나 고온 유리 코팅 조성물을 위한 그러한 조성물이 갖는 문제는, 원하는 유리가, 물과 함께 혼합한 후에 얼마 안 있어, 예상치 못한 계도, 경화되고 응고(set)하는 것이 발견되어 왔다는 것이다.

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

[0008] 그러므로 하나 이상의, 위에서 언급된 또는 다른 문제들을 해결하는 것이 본 발명의 적어도 일 측면의 목적이다. 특히, 그러한 연료 전지 개스킷을 위한 물 기반의 유리 코팅 조성물을 제공하는 것이 본 발명의 목적이다.

**과제의 해결 수단**

- [0009] 본 발명의 일 측면에 따르면,
- [0010] 동등한 중량의 물의 존재 하에 알칼리성 용액을 형성하는데 효과적인 유리 성분;
- [0011] 바인더 성분;
- [0012] 50 부피% 초과와 물인 액체 캐리어;
- [0013] 를 포함하는 연료 전지 개스킷을 위한 유리 코팅 조성물이 제공되는데, 상기 조성물은 상기 조성물의 경화(hardening)를 억제하는데 효과적인 지연제(retarder)를 더 포함하는 것을 특징으로 한다.
- [0014] 놀랍게도, 알칼리성 유리, 더욱 구체적으로, 물에서 알칼리성 용액을 형성하는 유리가 예외적으로 수성 환경에서 강직되고(stiffen) 경화되는 경향이 있어서, 유난히 짧은 저장 안정성에 기인하여 유리 코팅 조성물로서 그들을 쓸모없게 만드는 것이 발견되어 왔다. 그러나 본 발명자들은 놀랍게도 알칼리 지연제가 그러한 수성 환경에서 응고 과정(settling process)을 지연시키는데 효과적인 것을 발견하였다. 그러한 지연제들은 콘크리트 응용에서 알려져 있으나, 그들이 수성 유리 분말의 이러한 다른 화학적 환경에서 효과적인 것은 놀랍다.
- [0015] 전형적으로, 상기 지연제는 상기 조성물의 알칼리성에 영향을 받은 경화(alkaline effected hardening)를 억제한다. 그와 같이, 대체로 상기 지연제는 상기 조성물의 응고 시간을 연장시키고, 상기 조성물의 저장 수명을 연장시킨다.
- [0016] 그러므로 본 발명의 조성물은 저장 안정성이 있는 조성물이다.
- [0017] 지연제는 하나 이상의 유기 또는 무기 지연제로부터 선택될 수 있다. 적절한 유기 지연제는: 하나 이상의 리그닌(lignin)에 기반한 지연제, 예를 들어, 이들의 칼슘, 나트륨 및/또는 암모늄 염을 포함하는 리그노설포네이트(lignosulfonates); 글루콘산, 시트르산, 타르타르산 또는 말산과 같은 히드록시카르복실산 및 이들의 염, 적절하게는 이들의 수용성 염; 술포네이트-기능화된 아크릴아미드-아크릴산 코폴리머와 같은, 술포네이트기, 카르복실기 및/또는 방향족 고리 기를 함유한 비닐 고분자와 같은 비닐 고분자; 당류(saccharides), 즉, 단당류, 이당류 및 다당류, 예를 들어, 알칼리 탄산염과 같은 탄수화물(carbohydrate), 자당(sucrose)과 같은 이당류, 및 셀룰로스, 예를 들어, 히드록시에틸 셀룰로스(HEC) 및/또는 카르복시메틸 히드록시에틸 셀룰로스(CMHEC)와 같은 다당류; 및/또는 이들의 유도체 또는 이들의 혼합물이다. 적절한 무기 지연제는: 하나 이상의 아연 산화물; 아미노 트리스(메틸렌 포스폰산), 에틸렌디아민 테트라(메틸렌 포스폰산), 디에틸렌트리아민 펜타(메틸렌 포스폰산)와 같은, 인산, 폴리-인산 및 포스폰산의 염, 및 일염기(monobasic) 칼슘, 아연 또는 마그네슘 포스페이트와 같은 포스페이트; 플루오레이트(fluorates); 알칼리 보레이트(예를 들어, 소듐 메타보레이트, 소듐 테트라보레이트(또한 붕사(borax)라고 알려짐) 및/또는 포타슘 펜타보레이트)와 같은 보레이트(borates); 및/또는, 이들의 유도체 또는 이들의 혼합물이다.
- [0018] 적절한 지연제는 시트르산, 타르타르산, 살리실산, 글루콘산, 글루코헵토네이트 및 글루코노-델타-락톤과 같은 히드록시카르복실산 및 이들의 염을 포함하는 히드록시기를 함유하는 지연제들; 단당류 및 이당류 또는 HEC 및 CMHEC와 같은 히드록실레이티드 다당류(hydroxylated polysaccharides)와 같은 당(sugar); 및, 붕산 및 붕사(borax)와 같은 그의 염;이다.
- [0019] 휘발성 유기 화합물(VOC) 성분 및 탄소화(carbonization)와 관련된 잠재적인 문제에 기인하여, 바람직한 지연제는 무기 지연제이고, 더욱 바람직하게는, VOC 성분이 없는 무기 지연제이다. 전형적으로, 지연제는 무탄소(carbon-free) 무기 지연제이다.
- [0020] 바람직하게는, 지연제는 수용성이다. 바람직한 구현예에서, 지연제는 하나 이상의 수용성 보레이트(예를 들어, 붕사); 히드록시카르복실산; 단당류 및 이당류; 가용성 탄수화물 및/또는 가용성 셀룰로스;로부터 선택된다. 특

히 바람직한 지연제는 붕사와 같은 붕산염이다.

- [0021] 본 발명에서 사용하는데 적절한, 상업적으로 입수가 가능한 지연제는, 예를 들어, (Rio Tinto Minerals로부터 입수가 가능한) "Borax"이다.
- [0022] 바람직하게는, 조성물 내의 지연제의 함량은 0.05 내지 10 중량% 사이, 예를 들어 0.5 내지 5 중량% 또는 1 내지 5 중량% 사이와 같은, 0.02 내지 20 중량% 사이이다. 바람직하게는, 조성물 내의 지연제의 함량은 적어도 0.1 중량%, 예를 들어 적어도 0.4 중량% 또는 적어도 0.75 중량%와 같은, 적어도 0.02 중량%이다. 바람직하게는, 조성물 내의 지연제의 함량은 15 중량%, 8 중량% 또는 6 중량% 이하와 같은, 25 중량% 이하일 수 있다.
- [0023] 바람직하게는, 건조 조성물(즉, 액체 캐리어를 포함하지 않는 조성물)은 0.1 내지 10 중량% 사이의 지연제, 예를 들어, 0.5 내지 7 중량% 또는 0.5 내지 2 중량% 사이의 지연제와 같은, 0.05 내지 20 중량% 사이의 지연제를 포함한다. 바람직하게는, 건조 조성물은 적어도 0.5 중량%, 예를 들어 적어도 1 중량% 지연제와 같은, 적어도 0.01 중량% 지연제를 포함한다. 바람직하게는, 건조 조성물은 15 중량% 이하의 지연제와 같은, 20 중량% 이하의 지연제를 포함한다.
- [0024] 적절하게는, 지연제 성분은 통상적으로, 유리 성분의 일부가 아니고, 조성물에 첨가된다.
- [0025] 바람직하게는, 지연제는 상기 양들 중의 하나로 상기 조성물에 용해된다.
- [0026] 사용시, 상기 조성물 내의 임의의 유기 바인더 또는 유기 지연제는 연소되어 제거(burn-off)될 것이다. 따라서, 사용시 조성물(즉, 액체 캐리어 또는 바인더를 포함하지 않는 조성물) 내에 남은 무기 지연제 잔여물의 바람직한 함량은, 0.1 내지 10 중량% 사이의 지연제, 예를 들어 0.5 내지 7 중량% 또는 0.5 내지 3 중량% 사이의 지연제와 같은, 0.05 내지 20 중량% 사이의 지연제를 포함한다. 바람직하게는, 연료 전지에서 사용시 조성물은 적어도 0.5 중량%, 예를 들어 적어도 1 중량% 지연제와 같은, 적어도 0.01 중량% 지연제를 포함한다. 바람직하게는, 연료 전지에서 사용시 조성물은 15 중량% 이하의 지연제와 같은, 20 중량% 이하의 지연제를 포함한다.
- [0027] 유리 성분은 본 명세서에서 제1 측면에서 정의한 바와 같은 알칼리성 용액을 형성하는 임의의 알칼리성 유리 재료로부터 선택될 수 있다. 유리 성분은 비정질(amorphous), 결정질(crystalline) 또는 반-결정질(semi-crystalline) 특성을 가질 수 있다. 일반적으로, 코팅층은 용도에 따라 임의의 정도의 비정질 또는 결정질 특성을 포함할 수 있고, 완전한 결정질 또는 비정질 성질의 재료 사이의 연속선 상에 있는 임의의 조성일 수 있다. 나아가, 코팅은, 예를 들어 상승된 온도에 노출됨으로써, 시간이 지남에 따라 더 높은 비율의 결정질 성분으로 변경될 수 있다. 적절하게는, 유리 성분은 유리, 또는 유리 및 세라믹 재료의 혼합물을 포함한다. 상기 재료들은 코팅이 연료 전지 스택의 선택된 작동 온도 및 압축 응력(compressive stress)에서 충분히 변형되도록 선택된다. 코팅 재료가 결정질 특성을 포함하는 경우, 이는 XRD 및 Rietveld 방법을 사용하였을 때, 작동 온도에서, 5-70% w/w, 더욱 통상적으로는 10-60% w/w, 가장 통상적으로는 20-50% w/w의 범위일 수 있다.
- [0028] 보통, 유리 성분은 어느 정도 양의 Si, Al, Mg, Na, Ca, Ba 및/또는 B를 다양한 산화된 형태로 포함한다. 예를 들어, 통상적으로 상기 유리는 SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, BaO, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO, Cs<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>O, MgO, Na<sub>2</sub>O, PbO, Rb<sub>2</sub>O, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SnO, SrO, TiO<sub>2</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및/또는 ZnO로부터 선택된 하나 이상의 화합물을 포함한다. 예를 들어, 상기 유리 성분은 하나 이상의 BaO, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및/또는 CaO와 같은 하나 이상의 BaO, ZnO, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO 및/또는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>로부터 선택된다. 코팅층 및 특히 유리 성분의 정확한 조성은 상기 조성이 적용될 연료 전지의 작동 온도와 같은 작동 조건에 의존할 것이 통상의 기술자에 의해 이해될 것이다. 적절하게는, 코팅층들은 연료 전지 용도를 위한 코팅에 사용되기에 적절한 하나 이상의 적절한 유리 및/또는 유리-세라믹 재료를 포함한다.
- [0029] 바람직하게는, 유리 성분은 유리 분말과 같은 유리 재료의 입자들을 포함한다. 적절하게는, 유리 성분은 연삭(grind)되었다. 예를 들어, 입자들은 실질적으로 연신되지 않은 입자들일 수 있다. 적절하게는, 유리 성분은 실질적으로, 유리 섬유 형태가 아니다.
- [0030] 바람직하게는, 유리 성분의 입자들은 2 내지 35 $\mu$ m 또는 3 내지 30 $\mu$ m와 같은, 1 내지 40 $\mu$ m 사이의 d<sub>50</sub>을 갖는다. 유리 성분의 입자들은 35 내지 155 $\mu$ m 사이, 예를 들어 40 내지 150 $\mu$ m 사이와 같은, 30 내지 180 $\mu$ m 사이의 d<sub>99</sub>를 갖는다.
- [0031] 바람직하게는, 유리 성분의 입자들은 적어도 2 $\mu$ m 또는 3 $\mu$ m와 같은, 적어도 0.5 $\mu$ m, 또는 적어도 1 $\mu$ m의 d<sub>50</sub>을 갖는



다. 바람직하게는, 유리 성분의 입자들은 40 $\mu$ m 이하 또는 35 $\mu$ m 이하 또는 30 $\mu$ m 이하와 같은, 50 $\mu$ m 이하의  $d_{50}$ 를 갖는다.

- [0032] 바람직하게는, 유리 성분의 입자들은 적어도 30 $\mu$ m 또는 적어도 35 $\mu$ m 또는 적어도 40 $\mu$ m와 같은, 적어도 20 $\mu$ m의  $d_{99}$ 를 갖는다. 바람직하게는, 유리 성분의 입자들은 180 $\mu$ m 이하 또는 155 $\mu$ m 이하 또는 150 $\mu$ m 이하와 같은, 200 $\mu$ m 이하의  $d_{99}$ 를 갖는다.
- [0033] 본 발명에 사용되기에 적합한 다양한 상업적으로 입수가능한 유리 성분들은, 예를 들어, BaO, ZnO, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO 및 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 함유한 유리 성분과 같이; Nihon Yamamura Glass Co.,Ltd 로부터 입수가능한 다양한 유리 성분들; 및 BaO, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 CaO를 함유한 유리 성분과 같이, Schott AG 84028 Landshut, Germany로부터 입수가능한 Schott GM31107이다.
- [0034] 바람직하게는, 유리에 의하여 형성되는 알칼리성 용액은 25℃에서 1:1 w/w 비율의 유리:물에서 적어도 8, 더욱 바람직하게는 적어도 9, 가장 바람직하게는 적어도 9.5, 예를 들어, 적어도 11과 같은 적어도 10의 pH를 갖는다.
- [0035] 통상적으로, 유리 성분은 물에서, 예를 들어 동등한 중량의 물에서, 경화되고 응고되는 타입이다.
- [0036] 통상적으로, 본 발명의 브러시형 코팅 조성물은 제형(formulation) 내에 30-90 중량%, 더욱 통상적으로는 40-80 중량%, 가장 통상적으로는 50-75 중량%의 유리 성분을 가질 수 있다. 따라서 이러한 경우에 바인더 성분 및 액체 캐리어 성분은 코팅 제형의 나머지 부분을 실질적으로 제공한다. 분무형 제형에서, 유리 성분은 조성물의 10-70 중량%, 더욱 통상적으로는 20-60 중량%, 가장 통상적으로는 30-50 중량%를 제공할 수 있고, 그 나머지는 역시 실질적으로 바인더 성분 및 액체 캐리어 성분으로 이루어질 수 있다. 따라서 일반적으로 유리 성분은 조성물의 10-90 중량%, 더욱 바람직하게는 20-80 중량%, 가장 바람직하게는 30-75 중량%의 범위에서 존재한다.
- [0037] 바람직하게는, 건조 조성물 내의 유리 성분의 함량은 60 내지 99.45 중량% 사이의 범위이다. 예를 들어, 유리 성분의 함량은 80 내지 98.5 중량% 사이 또는 90 내지 97.5 중량% 사이와 같은, 70 내지 98.5 중량% 사이의 범위 내에 있다. 통상적으로, 건조 조성물은 적어도 75 중량%, 예를 들어 적어도 85 중량% 또는 95 중량%와 같은, 적어도 65 중량%의 양으로 유리 성분을 포함한다.
- [0038] 사용시, 유기물 연소제거 후, 유리 성분의 함량은 70 내지 99.95 중량%의 범위일 수 있다. 예를 들어, 유리 성분의 함량은 80 내지 99 중량% 사이 또는 90 내지 99 중량% 사이와 같은, 50 내지 99 중량%의 범위일 수 있다. 통상적으로, 유기물 연소제거 후, 조성물은 적어도 75 중량%, 예를 들어 적어도 85 중량% 또는 적어도 95 중량%와 같은, 적어도 65 중량%의 양으로 유리 성분을 포함한다.
- [0039] 바람직하게는, 유리 성분:지연제의 비율은 50:1 내지 80:1 w/w, 예를 들어 60:1 내지 70:1 w/w 와 같은, 40:1 내지 90:1 w/w 사이의 범위 내에 있다. 통상적으로, 유리 성분:지연제의 비율은 적어도 50:1 w/w, 예를 들어 적어도 60:1 w/w 와 같은, 적어도 40:1 w/w이다. 통상적으로, 유리 성분:지연제의 비율은 80:1 w/w 이하, 예를 들어 70:1 w/w 이하와 같은, 90:1 w/w이다.
- [0040] 적절하게는, 바인더 성분은 유리에 의하여 형성된 용액의 pH, 예를 들어, 적어도 pH 8, 더욱 통상적으로 적어도 9, 가장 통상적으로 적어도 9.5, 예를 들어, 적어도 pH 10, 또는 적어도 pH 11과 같은 알칼리성 조건 하에서 안정하다.
- [0041] 일반적으로, 바인더는 하나 이상의 유기 및/또는 고분자 바인더(들)로부터 선택된다. 바인더들의 혼합물이 용도에 맞추기 위하여 요구될 수 있다. 통상적으로, 바인더는 물에 분산될 수 있다.
- [0042] 바인더가 폴리머 바인더를 함유할 때, 그것은 스택 작동(stack operation) 이전에 실질적으로 연소되어 제거되는 임의의 바인더로부터 선택될 수 있다. 최소한의 카본 잔류물(deposit)을 남기는 바인더가 바람직하다. 예들은 하나 이상의 셀룰로스 바인더; 아크릴레이트 호모 또는 코폴리머; 비닐 아세테이트 호모 또는 코폴리머, 에틸렌 코폴리머; 및/또는 폴리비닐 부티랄로부터 선택될 수 있다. 적절한 아크릴 호모 또는 코폴리머는 통상의 기술자에게 알려져 있으며, 예를 들어, EP 1566368A2, 문단 [0024] 내지 [0028]에 정의된 것들이다.
- [0043] 바람직하게는, 바인더는 하나 이상의 아크릴레이트 호모 또는 코폴리머 또는 비닐 아세테이트 호모 또는 코폴리머로부터 선택된다. 통상적으로는, 바인더는 하나 이상의 아크릴레이트 호모 또는 코폴리머이다.
- [0044] 바람직하게는, 조성물 내의 바인더의 함량은 2 내지 15 중량%, 예를 들어 3 내지 10 중량%와 같은, 1 내지 20

중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 조성물 내의 바인더의 함량은 적어도 0.5 중량%, 예를 들어 적어도 1.5 중량%와 같은, 적어도 0.1 중량%이다. 바람직하게는, 조성물 내의 바인더의 함량은 15 중량% 이하, 예를 들어 12 중량% 이하와 같은, 25 중량% 이하이다.

- [0045] 바람직하게는, 건조 조성물 내의 바인더의 함량은 1 내지 15 중량%, 예를 들어 2 내지 10 중량%와 같은, 0.5 내지 20 중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 건조 조성물 내의 바인더의 함량은 적어도 0.1 중량%, 예를 들어 적어도 0.5 중량%와 같은, 적어도 0.05 중량%이다. 바람직하게는, 건조 조성물 내의 바인더의 함량은 18 중량% 이하, 예를 들어 12 중량% 이하와 같은, 20 중량% 이하이다.
- [0046] 본 발명에서 사용하기에 적합한, 다양한 상업적으로 입수가능한 바인더들은, 예를 들어, Syntomer로부터의 안정화된 아크릴 코폴리머인 Plextol D498; 및 Syntomer로부터의 안정화된 비닐 아세테이트/veova인 Emultex 5717 이다.
- [0047] 위에서 설명한 바와 같이, 코팅 조성물은 일반적으로, 주로 물인, 예를 들어, 적어도 70 부피%의 물, 더욱 통상적으로는 적어도 80%, 가장 통상적으로는 적어도 90 부피%의 물, 예를 들어 적어도 95 부피%의 물인 액체 캐리어 성분을 포함한다. 일반적으로 25℃에서 조성물 내에 다른 액체 캐리어는 존재하지 않는다.
- [0048] 바람직하게는, 액체 캐리어 성분은 조성물의 1-55%, 더욱 통상적으로는 10-45% w/w, 가장 통상적으로는 10-25% w/w의 범위에서 존재한다. 바람직하게는, 조성물은 적어도 20 중량%, 예를 들어 적어도 25 중량%와 같은, 적어도 10 중량%의 양으로 액체 캐리어 성분을 포함한다. 바람직하게는, 조성물은 50 중량% 이하, 예를 들어 40 중량% 이하 또는 30 중량% 이하와 같은, 60 중량% 이하의 양으로 액체 캐리어 성분을 포함한다.
- [0049] 코팅 조성물은 통상의 기술자에게 알려진 추가적인 첨가제들을 부가적으로 포함할 수 있는데, 예를 들어 하나 이상의 유화제(emulsifier); 아크릴 폴리머염과 같은, 젖음제(wetting agent), 분산제; 히드록시에틸 셀룰로스 와 같은, 증점제(thickening agent) 및/또는 현탁제(suspending agent); 산탄검(xanthan gum)과 같은 반-침강제(anti-settling agent); 유기 안료와 같은 안료; 및/또는 요변성제(thixotropic agent)가 포함될 수 있다.
- [0050] 바람직하게는, 조성물에서 현탁제의 함량은 0.01 내지 2 중량%, 예를 들어 0.03 내지 1 중량% 또는 0.04 내지 0.5 중량% 또는 0.04 내지 0.1 중량%와 같은, 0.002 내지 4 중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 조성물에서 현탁제의 함량은 적어도 0.005 중량% 또는 적어도 0.01 중량%, 예를 들어 적어도 0.03 중량% 또는 적어도 0.04 중량%와 같은, 적어도 0.001 중량%이다. 바람직하게는, 조성물 중의 현탁제의 함량은 2 중량% 이하, 예를 들어 1 중량% 이하 또는 0.5 중량% 이하와 같은, 4 중량% 이하이다.
- [0051] 바람직하게는, 건조 조성물에서 현탁제의 함량은 0.01 내지 3 중량%, 예를 들어 0.03 내지 1 중량% 또는 0.04 내지 0.5 중량% 또는 0.04 내지 0.1 중량%와 같은, 0.005 내지 5 중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 건조 조성물에서 현탁제의 함량은 적어도 0.005 중량%, 예를 들어 적어도 0.01 중량% 또는 적어도 0.03 중량% 또는 적어도 0.04 중량%와 같은, 적어도 0.002 중량% 이다. 바람직하게는, 건조 조성물에서 현탁제의 함량은 3 중량% 이하, 예를 들어 1 중량% 이하 또는 0.5 중량% 이하와 같은, 5 중량% 이하이다.
- [0052] 바람직하게는, 조성물에서 반-침강제의 함량은 0.01 내지 2 중량%, 예를 들어 0.03 내지 1 중량% 또는 0.04 내지 0.5 중량% 또는 0.04 내지 0.1 중량%와 같은, 0.002 내지 4 중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 조성물에서 반-침강제의 함량은 적어도 0.005 중량% 또는 적어도 0.01 중량%, 예를 들어 적어도 0.03 중량% 또는 적어도 0.04 중량%와 같은, 적어도 0.001 중량%이다. 바람직하게는, 조성물에서 반-침강제의 함량은 2 중량% 이하, 예를 들어 1 중량% 이하 또는 0.5 중량% 이하와 같은, 4 중량% 이하이다.
- [0053] 바람직하게는, 건조 조성물에서 반-침강제의 함량은 0.01 내지 3 중량%, 예를 들어 0.03 내지 1 중량% 또는 0.04 내지 0.5 중량% 또는 0.04 내지 0.1 중량%와 같은, 0.005 내지 5 중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 건조 조성물에서 반-침강제의 함량은 적어도 0.005 중량%, 예를 들어 적어도 0.01 중량% 또는 적어도 0.03 중량% 또는 적어도 0.04 중량%와 같은, 적어도 0.002 중량% 이다. 바람직하게는, 건조 조성물에서 반-침강제의 함량은 3 중량% 이하, 예를 들어 1 중량% 이하 또는 0.5 중량% 이하와 같은, 5 중량% 이하이다.
- [0054] 바람직하게는, 조성물에서 안료의 함량은 0.5 내지 15 중량%, 예를 들어 1 내지 10 중량% 또는 1 내지 5 중량%와 같은, 0.1 내지 20 중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 조성물에서 안료의 함량은 적어도 0.1 중량% 또는 적어도 0.5 중량%, 예를 들어 적어도 1 중량%와 같은, 적어도 0.05 중량% 이다. 바람직하게는, 조성물에서 안료의 함량은 15 중량% 이하, 예를 들어 12 중량% 이하 또는 8 중량% 이하와 같은, 25 중량% 이하이다.
- [0055] 바람직하게는, 건조 조성물에서 안료의 함량은 0.5 내지 15 중량%, 예를 들어 1 내지 10 중량% 또는 1 내지 5

중량%와 같은, 0.1 내지 20 중량%의 범위 내에 있다. 바람직하게는, 건조 조성물에서 안료의 함량은 적어도 0.1 중량%, 예를 들어 적어도 0.5 중량%, 또는 적어도 1 중량%와 같은, 적어도 0.05 중량%이다. 바람직하게는, 건조 조성물에서 안료의 함량은 18 중량% 이하, 예를 들어 12 중량% 이하 또는 10 중량% 이하와 같은, 20 중량% 이하이다.

- [0056] 유리하게도, 안료의 사용은 적용되는 동안 코팅이 색상을 표현하는 것을 허용한다. 보통, 안료가 없으면 코팅은 투명할 것이고, 코팅이 비교적 얇기 때문에 스택 또는 개스킷의 어느 부분에 코팅이 적용되는지 식별하기 어려울 수 있다. 그러나 안료의 사용은 코팅에 의하여 피복되는 스택 또는 개스킷의 영역을 쉽게 식별할 수 있도록 한다. 색상 표현은 또한 사용자가 코팅 및 비코팅 개스킷 스톡(stock) 사이를 분간할 수 있도록 한다. 나아가, 다른 유형의 조성물들이, 예를 들어 다른 연료 전지 작동 온도에서의 사용을 위하여, 다르게 채색될 수 있어서, 상기 다른 조성물들이 분간될 수 있다. 나아가, 유기 안료의 사용은 유기물의 연소제거 동안에 안료가 코팅으로부터 제거될 것이어서, 코팅이 투명해지도록 하고, 따라서, 코팅의 가능한 열화 요인을 제거하는 것을 의미한다.
- [0057] 바람직하게는, 지연제, 유리 성분, 바인더, 액체 캐리어 및 본 명세서의 다른 첨가물의 함량을 위한, 하한 및 상한 뿐만 아니라 범위가 본 발명의 맥락 내에서 임의의 조합으로 조합될 수 있음이 이해될 것이다.
- [0058] 사용시, 액체 캐리어 성분은 일반적으로 건조 중에 증발하고, 코팅층 안의 바인더 성분 및 임의의 잔여 액체 캐리어 성분은 사용된 연료 전지의 가열(heating up)에 기인하여 제거된다. 따라서 제조 및 처음의 건조 후에 개스킷은 바인더 성분을 포함하고, 반면 사용시에는 바인더 성분은 실질적으로 제거된다.
- [0059] 본 발명의 제2 측면에 따르면, 연료 전지의 두 개의 결합 표면(mating surface)을 밀봉하기 위한 코어층을 포함하는 개스킷이 제공되는데, 상기 코어층은 본 발명의 제1 측면의 조성물에 따른 제1 및 제2 코팅층 사이에 개재된다.
- [0060] 덧붙여, 본 발명은 코팅층 액체 캐리어가 건조에 의하여 실질적으로 제거된, 제2 측면에 따른 개스킷으로 확장된다. 더 나아가, 본 발명은 코팅층 바인더가 사용시에 제거되고 분해되는, 제2 측면에 따른 개스킷으로 확장된다.
- [0061] 바람직하게는, 코어층은 탄력적으로 변형가능한 코어층이다. 통상적으로는, 탄력층(resilient layer)은 박리된 질석(exfoliated vermiculite) 및/또는 운모(mica)와 같은 하나 이상의 판상 필러(platelet filler)를 함유하고, 예를 들어, 코어층은 화학적으로 박리된 질석(chemically exfoliated vermiculite, CEV) 및/또는 열적으로 박리된 질석(thermally exfoliated vermiculite, TEV)을 함유할 수 있다. 바람직하게는, 탄력 코어층은 CEV를 함유한다.
- [0062] 적절하게는, 코팅층들은 코어층의 표면의 적어도 일부를 덮는다. 일반적으로, 코팅층들은 실질적으로 코어층의 전체 표면을 덮도록 코어층과 접촉한다. 그러나 코팅층들은 코어층의 에지와 오버랩하여 그들 각각의 주변부에서 합쳐짐으로써 코팅층들 내에서 코어층을 밀봉할 수 있다. 바람직하게는, 사용시 코팅층들이 각각의 결합 표면(mating surface)과 접촉하도록 상기 코팅층들은 개스킷의 바깥층을 형성하고, 더욱 바람직하게는, 개스킷 층들은 실질적으로 코어층의 어느 것도 사용시 결합 표면과 접촉하지 않도록 배열된다. 그러나 코어층의 100% 보다 적은 코팅 범위를 갖고, 선택적으로 일부 코어층이 또한 사용시 결합 표면과 접촉하는 것이 또한 가능하다.
- [0063] 바람직하게는, 본 발명의 개스킷은 SOFC 또는 SOEC에서 사용되기 위한 것이다. 상기 개스킷은 바람직하게는 가스 누설을 감소시키기 위하여 SOFC 또는 SOEC에서 사용되기 위한 개스킷이다.
- [0064] 유리하게도, 놀랍게도, 본 발명의 제2 측면에 따른 개스킷이 사용시에 개선된 누설률을 보여준다는 것이 발견되었다. 또한, 개선된 누설률은 열적 사이클링 이후에도 유지되며, 나아가, 일련의 열적 사이클 이후에 누설률이 실제로 개선될 수 있음이 놀랍게도 발견되었다. 나아가, 낮은 누설률은 넓은 범위의 가스 압력 및 넓은 범위의 온도에서 얻어졌다. 나아가, 유리하게도, 모든 함량의 압축 응력에서 향상된 밀봉이 발견되었지만, 특히, 본 발명의 제2 측면에 따른 개스킷은 상대적으로 낮은 압축 응력에서, 통상적으로 0.5 MPa 미만, 예를 들어 0.1 MPa에서 특히 개선된 밀봉 특성을 제공한다는 것이 발견되었다. 낮은 압축 응력에서 SOFC 또는 SOEC를 작동시킴으로써, 스택 모듈을 위한 덜 거대한 압축 시스템이 사용될 수 있어서 더 큰 설계 자유도 및 효율성 향상을 가능하게 할 수 있다. 나아가, 더 낮은 표면 응력을 가짐에 따라, 더 얇은 연결판(interconnect plate)이 식각 또는 기계 가공된 판 대신 사용될 수 있고, 더 향상된 흐름 기하 구조(flow geometry)가 가능하다.
- [0065] 코어층은 저온에서, 특히 코팅의 유리 전이 온도 아래에서, 코팅보다 더 압축가능하도록 의도된다. 이는 열-기계적 응력이, 전체 유리(all-glass) 셀에 비해 감소되도록 한다. 바람직하게는, 코어층은 대향면에 수직한 방향

으로 압축가능하다. 위에서 언급된 바와 같이 개스킷의 코어층은 박리된 질석을 포함할 수 있다.

- [0066] 바람직하게는, 박리된 질석은 화학적으로 박리된 질석(CEV)이다. CEV는 광석(ore)을 처리하고 물에서 그것을 팽윤(swelling)시킴으로써 형성된다. 한 가능한 제조 방법에서, 광석을 포화된 염화 나트륨 수용액으로 처리하여 마그네슘 이온을 나트륨 이온으로 교환하고, 그 후 n-부틸 염화 암모늄으로 처리하여, 나트륨 이온을 n-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>NH<sub>3</sub> 이온으로 대체한다. 물로 세척하면, 팽윤이 발생한다. 그 후 팽윤된 재료에 고전단(high shear)을 가하여, 매우 미세한 (직경 50 $\mu$ m 미만의) 질석 입자들의 수성 현탁액(aqueous suspension)을 만든다.
- [0067] 물이 또한 상기 현탁액으로부터 제거되어 건조 CEV 입자를 형성할 수 있다. 바람직하게는, 건조 CEV는 통상의 기술자에게 잘 알려진 것과 같은 적절한 건조 기법에 의해 제조된다. 적절한 건조 기법은 케이크 건조 및 분쇄; 필름 건조 및 분쇄; 회전식 열풍 건조(rotary hot air drying); 분무 건조(spray drying); 동결 건조(freeze drying); 송풍 건조(pneumatic drying); 부분적으로 건조된 고체의 유동층 건조(fluidised bed drying); 및 진공 선반 건조(vacuum shelf drying)를 포함하는 진공 방법을 포함한다.
- [0068] 통상적으로, 본 발명의 코어층은 1.7-2.0 g/cm<sup>3</sup>, 더욱 통상적으로, 약 1.9 g/cm<sup>3</sup>의 사용 이전 밀도를 갖는다.
- [0069] 바람직하게는, CEV는 코어층에서 100% w/w 이하의 총 박리 질석, 통상적으로, 80-100% w/w, 더욱 통상적으로, 90-100%, 일반적으로 약 100% CEV w/w의 총 박리 질석을 코어층에 제공한다. 코어층은 또한 건조 유도된(dry derived) CEV, 즉, 코어 개스킷 조성물의 형성 및 건조 이전에 건조 상태에서 코어 조성물에 첨가되는 CEV를 포함할 수 있다. 그러나 일반적으로 CEV의 공급원은 질석 광석으로부터 직접적으로 제조된 이들의 수성 분산액(dispersion)이다.
- [0070] 바람직하게는, CEV의 비율은 코어층의 적어도 30% w/w, 더욱 바람직하게는 코어층의 적어도 35% w/w이다.
- [0071] 통상적으로, CEV의 함량은 코어층의 30-70% w/w, 더욱 통상적으로는, 코어층의 35-65% w/w, 가장 통상적으로는, 코어층의 40-55% w/w 범위 내에 있다.
- [0072] 바람직하게는, 코어층은 젖은 반죽(wet dough) 조성물을 캘린더링(calendering)하거나 닥터 블레이드(doctor blade)로 젖은 반죽 조성물을 스프레딩(spreading)한 후 건조함으로써 형성되는, 박리된 질석의 호일(foil)의 형태이다.
- [0073] 코어층은 박리된 질석 이외에 추가 성분을 더 포함할 수 있다. 예를 들어, 코어층은 하나 이상의 거친, 미세한, 매우 미세한 및/또는 판-형상의 필러와 같은 적절한 필러를 더 포함할 수 있다. 예를 들어, 필러는 Malvern Sizer 3601에 의해 측정된 것에 따르면, 약 20 $\mu$ m의 d<sub>50</sub>을 갖는 거친 필러일 수 있다. 필러는 약 125m<sup>2</sup>/g의 표면적을 갖는 매우 미세한 필러일 수 있고/있거나, 필러는 판-형상 필러와 같이 약 7m<sup>2</sup>/g의 표면적을 갖는, 미세하게 연삭된 필러일 수 있다. "약"은  $\pm$ 10%를 의미한다.
- [0074] 바람직한 필러는 활석(talc)이다. 거친 입자 활석 필러의 예는 Richard Baker Harrison Limited IG1 4TQ, UK로부터 입수 가능한 Magsil Diamond D200이다. 필러의 다른 예는 Evonik Degussa GmbH, 60287 Germany로부터 입수가능한 매우 미세한 합성 실리카 필러 VN2이다. 적절한 필러의 또 다른 예는 Minelco Ltd DE21 7BE로부터 입수가능한 미세하게 연삭된 판(plate) 운모 재료 MKT이다.
- [0075] 적절한, 박리된 질석 코어 재료의 예는 (Flexitallic로부터 입수가능한) Thermiculite 866이다.
- [0076] 본 발명의 바람직한 일 구현예에서, 박리된 질석은 80%-100% w/w CEV이고, CEV의 비율은 코어층의 적어도 30% w/w이다.
- [0077] 본 발명의 바람직한 다른 구현예들에서, 박리된 질석은 80-100% w/w CEV이고; CEV의 비율은 코어층의 적어도 30% w/w이고; 필러의 비율은 코어층의 적어도 40% w/w이고; 코팅층들은 바람직하게는 코어층과 접촉하고 있고; 코팅층은 선택적으로 0.1 및 50 $\mu$ m 사이의 두께를 갖고; 선택적으로 개스킷은 10-2100 $\mu$ m 범위의 압축되지 않은 두께를 갖는다.
- [0078] 바람직하게는, 필러의 비율은 코어층의 적어도 40% w/w이고, 가장 바람직하게는 적어도 코어층의 45% w/w이다. 통상적으로는, 필러의 함량은 코어층의 70-30% w/w; 더욱 통상적으로는 코어층의 65-35% w/w, 가장 통상적으로는 코어층의 60-48% w/w 범위 내에 있다.
- [0079] 통상적으로는, 코어층은 300-1000 $\mu$ m와 같이, 10-2000 $\mu$ m, 더욱 통상적으로는 100-1500 $\mu$ m, 가장 통상적으로는

100-1200 $\mu$ m 두께 범위 내에 있다.

- [0080] 위에서 언급한 바와 같이, 개스킷은 본 발명의 제1 측면의 조성물의 코팅층들을 더 포함한다. 본 발명의 코팅층들은 SOFC 또는 SOEC의 결합 표면을 밀봉하고 개스킷의 코어층의 지형(topography)에 정합(conform)하도록 설계된다. 상기 코팅층들은 결합 표면에서 표면 결합을 수용하도록 더 작동가능하고, 이로 인해 실질적으로 직접적인 누설 경로를 밀봉하는 역할을 한다. 나아가, 하나 이상의 코팅층이 직접적으로 코어층에 인접하게 배열되는 경우, 코팅층(들)은 코어층 재료의 표면 결합을 수용하도록 작용할 수 있고, 이로 인해 또한 코어층의 직접적인 누설 경로를 실질적으로 밀봉한다. 따라서, 코팅층들은 바람직하게는 코어층의 지형에 정합한다. 그와 같이, 바람직하게는 코어층의 직접적인 코팅에 의해 코어층의 양 대향면에 직접 접하게 되는 제1 코팅 및 제2 코팅을 형성함으로써, 바람직하게는 코팅층들이 코어층과 접촉하도록 개스킷 내에 배치된다. 본 발명의 코팅층들은, 본 발명의 코어층의 표면 상에 표면 결합 및 줄 자국(striation)이 통상적으로 존재하기 마련이기 때문에, 특히 유리하다.
- [0081] 유기물의 연소제거 후 연료 전지에서 사용시 유리 코팅의 통상적인 밀도는 3 내지 6.5 g/cm<sup>3</sup> 범위와 같이 2.5-7.5 g/cm<sup>3</sup> 범위 내에 있다.
- [0082] 코팅의 단위 면적당 무게(mg/cm<sup>2</sup>)는 개스킷에 적용되는 코팅의 두께에 의존할 것이지만, 통상적으로는 3 내지 8 mg/cm<sup>2</sup> 범위와 같이 유기물의 연소제거 후 0.2-10 mg/cm<sup>2</sup> 범위 내에 있다.
- [0083] 적절하게는, 스택의 온도가 작동 온도일 때, 코팅층은 초기에 1 내지 10<sup>4</sup> Pa.s의 점도를 가질 수 있다. 그러나 시간이 지남에 따라, 비점질 상태는 점점 더 결정화되어 작동 온도에서 점도의 증가로 이어질 수 있다.
- [0084] 본 발명의 코팅은 코팅이 코어층 표면의 결합을 채워서 그에 의하여 누설 경로를 밀봉하는 방식으로 코어층에 정합하도록 채용될 수 있다. 일반적으로 이는 작동 온도에서 일어난다.
- [0085] 유리 성분의 유리의 유형은 스택의 바람직한 작동 온도에 따라 달라질 수 있다. 예를 들어, 연료 전지 스택이 특정한 작동 온도를 갖는 경우, 재료의 점도가 그 스택 작동 온도에 맞춰지고, 이에 의해 코팅이 그 온도에서 인접한 표면에 정합하도록, 코팅 조성물이 선택될 수 있다. 유리 성분은 씰(seal)이 사용될 연료 전지의 작동 온도의 영역 내의 또는 작동 온도 위의 젖음 유동 온도(wetting-flowing temperature)를 갖는 것이 바람직하다. 예를 들어, 연료 전지 스택이 700 $^{\circ}$ C의 작동 온도를 갖는 경우, 약 700 내지 800 $^{\circ}$ C의 젖음 유동 온도 범위를 갖는 유리 성분이 사용될 수 있다. 따라서, 유리 성분의 바람직하게 요구되는 밀봉 온도는 연화점 위이고, 더욱 통상적으로는, 코팅의 연화점 및 반구 온도(hemisphere temperature) 사이인데, 이때 반구 온도는 일반적으로 젖음상(wetting phase)의 시작(onset)을 나타내기 때문이다. 연료 전지 작동 온도는 스택의 성질에 따라 달라질 수 있고, 500 $^{\circ}$ C 및 1000 $^{\circ}$ C 사이일 수 있으나, 일반적으로 550 $^{\circ}$ C 및 900 $^{\circ}$ C 사이일 수도 있으며, 일반적으로 코팅 조성물은 가장 낮은 작동 온도에서 여전히 효과적인 밀봉을 제공하여야 한다. 따라서, 유리 성분의 바람직한 연화점 범위는 다양한 연료 전지의 필요 조건을 충족시키기 위하여 450 내지 950 $^{\circ}$ C 사이이고, 더욱 바람직하게는 500-900 $^{\circ}$ C이다. 반구 온도의 범위는 연화점 범위보다 10-500 $^{\circ}$ C, 더욱 바람직하게는 10-200 $^{\circ}$ C 더 높을 수 있다. 주어진 연료 전지에 대한 연료 전지 작동 온도가 사용시 변화할 수 있으므로, 유리 성분은 바람직하게 이들 온도에 걸쳐서 작동 가능하여야 한다. 그러나 본 발명의 일부 구현예에서 젖음상 또는 심지어 유동상(flowing phase)이 최초 사이클링 동안 도달될 수 있도록 반구 온도가 연료 전지의 상한 작동 온도의 아래인 것이 바람직할데, 이는 코어층과 코팅층 사이의 밀봉을 도울 것이기 때문이다. 유리 성분의 유동 온도는 반구 온도 범위보다 5-100 $^{\circ}$ C 높을 수 있다. 전형적인 유동 온도의 범위는 800-1500 $^{\circ}$ C이지만, 유리-세라믹 복합체의 경우 750-1100 $^{\circ}$ C 범위, 더욱 바람직하게는 800-1050 $^{\circ}$ C 범위 내에 있다. 스택의 압력이 밀봉 온도, 반구 온도 및 유동 온도에도 또한 영향을 미칠 것이라는 것이 이해될 것이다. 그러나 상기 온도 범위는 대기압에서 고열 현미경(hot stage microscope)에 의해 결정될 수 있다.
- [0086] 바람직하게는, 각각의 코팅층은 유기물의 연소 제거 후 0.1 내지 50 $\mu$ m 사이, 더욱 통상적으로는 0.5 내지 25 $\mu$ m 사이, 또는 1 내지 20 $\mu$ m 사이의 두께를 갖는다.
- [0087] 비록 코팅 조성물의 다중 코팅이 적용될 수 있지만, 바람직하게는 코팅 조성물의 오직 하나의 코팅이 개스킷 내의 각각의 코팅층에 적용된다.
- [0088] 바람직하게는, 유리 코팅층의 낮은 점도는 인접한 표면의 우수한 젖음뿐만 아니라 박리된 질석 기공에 대한 침투를 허용한다.

- [0089] 본 발명의 제3 측면에 따르면, 연료 전지의 결합 표면(mating faces)을 밀봉하기 위한 개스킷을 포함하는 연료 전지가 제공되는데, 상기 개스킷은 본 발명의 제2 측면에 따른 것이다.
- [0090] 바람직하게는, 연료 전지는 고체 산화물 연료 전지(SOFC) 및 고체 산화물 전해 전지(SOEC)이다.
- [0091] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 연료 전지 개스킷에서의 본 발명의 제1 측면에 따른 유리 코팅 조성물의 용도가 제공된다.
- [0092] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 본 발명의 임의의 측면에 따른 하나 이상의 개스킷을 포함하는 고체 산화물 전지 또는 고체 산화물 전지 부품이 제공된다.
- [0093] 바람직하게는, 상기 고체 산화물 전지는 본 발명의 제2 측면에 따른 적어도 하나의 개스킷을 포함한다. 선택적으로, 상기 고체 산화물 전지는 전지 전해질과 캐소드 사이; 전해질과 애노드 사이; 캐소드와 애노드 사이; 전지와 연결판 사이; 연결판과 연결판 사이; 연결판과 엔드플레이트(end plate) 사이; 전지와 엔드플레이트 사이; 및/또는 전지와 전지 사이;의 하나 이상에서 개스킷들을 포함한다.
- [0094] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 고체 산화물 전지, 특히 SOFC 또는 SOEC에서 밀봉 특성을 개선시키기 위하여 본 발명의 임의의 측면에 따른 개스킷의 사용이 제공된다.
- [0095] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 고체 산화물 전지의 제조 또는 고체 산화물 전지의 밀봉 방법이 제공되는데, 이는 상기 고체 산화물 전지 내로 본 발명의 임의의 측면에 따른 적어도 하나 이상의 개스킷을 도입하는 단계를 포함한다.
- [0096] 연료 전지의 결합 표면은 동일하거나 다른 재료로 형성될 수 있다. 바람직하게는, 상기 결합 표면은 금속 또는 세라믹으로 형성된다. 가장 바람직하게는, 상기 결합 표면은 고온 페라이트계 강(ferritic steel)과 같은 강철(steel)로 형성된다. 적합한 스테인리스 강은 900℃까지 매우 안정한 크롬-망간 산화물층을 형성하는 Crofer 22 APU이다.
- [0097] 유리하게도, 본 발명의 제2 측면에 따른 개스킷의 우수한 성능은, 여전히 가스 밀봉을 달성하는 동안 더 낮은 표면 응력의 사용을 가능하게 한다. 따라서 본 발명의 사용은 또한 더 낮은 응력 한계를 갖는 연료 전지 부품의 사용을 허용한다. 이러한 부품은, 예를 들어, 식각 또는 기계 가공보다 프레스에 의해 편리하게 제조될 수 있는 얇은 연결판을 포함한다. 이는 연료 전지에 더 큰 설계 자유도 및 더 향상된 흐름 기하 구조를 허용한다. 통상적으로, 본 발명의 연료 전지의 얇은 금속 판은 0.1 내지 1.5 mm 두께, 더 바람직하게는, 0.1 내지 1 mm 두께, 가장 바람직하게는, 0.1 내지 0.5 mm 두께의 범위 내에 있다.
- [0098] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 본 발명의 제2 측면에 따른 개스킷의 제조 방법으로서, 하기의 단계를 포함하는 개스킷 제조 방법이 제공된다;
- [0099] (a) 제1 측면의 유리 조성물을 개스킷 코어층의 각각의 대향하는 표면 상에 코팅하여 코팅층을 형성하는 단계;
- [0100] (b) 상기 코팅된 개스킷을 연료 전지 내에 밀봉될 결합 표면들 사이에 위치시키는 단계;
- [0101] (c) 선택적으로, 상기 개스킷을 가열하여 임의의 잔존하는 휘발성 유기 성분을 제거하는 단계;
- [0102] (d) 선택적으로, 상기 개스킷을 가열하여 상기 코팅층을 소결하는 단계;
- [0103] (e) 선택적으로, 추가적으로 가열하여 상기 코팅층의 젖음을 일으키는 단계.
- [0104] 개스킷 코어층은 본 명세서에서 정의된 개스킷 코어층으로부터 선택될 수 있다. 바람직하게는, 코어층은 박리된 질석, 더욱 바람직하게는 화학적으로 박리된 질석을 포함한다.
- [0105] 상기 방법은 코팅 단계 (a) 이전 또는 이후에, 필요한 개스킷 형상으로 코어층을 형성, 바람직하게는 컷팅하는 단계를 포함할 수 있다. 선택적으로(optionally), 상기 형성, 더욱 바람직하게는 컷팅하는 단계가 (a) 단계 이전에 일어난다. 이러한 방식으로, 코팅층으로부터의 분리가 그러면 회피됨에 따라, 코어층의 임의의 사용되지 않은 부분의 재생(recycling)이 더 용이하게 일어난다.
- [0106] 코팅층들은 통상의 기술자에게 알려진 임의의 방식으로 코어층에 도포될 수 있다. 바람직하게는, 코팅층은 액체 현탁액(liquid suspension) 또는 페이스트형 제형(paste-type formulation)의 형태로 도포된다. 예를 들어, 코팅층은 분무(spraying), 브러싱(brushing), 스패툴라(spatula), 롤러, 드로우 바(draw bar), 테이프 또는 스크린 프린팅에 의해 도포될 수 있다. 도포 방법에 따라 어느 정도까지는 코팅 제형의 성분이 결정될 것이다.

- [0107] 코팅 조성물의 성분 및 비율이 두께, 접착성 등과 같은 원하는 제형의 특성에 따라 변경될 수 있음이 통상의 기술자에게 명확할 것이다.
- [0108] 코팅 조성물은 통상의 기술자에게 알려진 임의의 방법에 의하여 형성될 수 있다. 일반적으로, 코팅 조성물은 바인더 성분, 액체 캐리어, 지연제 및 유리 성분을 혼합함으로써 준비될 수 있다. 적절하게는, 유리 성분 및 지연제는 상이한 성분들이고, 개별적으로 첨가되거나 개별적인 성분들로부터 미리 조합된다.
- [0109] 코팅된 코어층은 주변 온도에서 건조될 수 있다. 건조 단계의 길이 및 온도는, 예를 들어, 코팅 조성물의 성분 및 코팅층의 두께에 의존할 것이다. 일 구현예에서 액체 캐리어 성분의 일 부분이 건조 후 코팅층에 남는다. 유리하게도, 이러한 형태의 코팅층은 저온 접착제로서 작용할 수 있고, 그와 같이, 첫 번째 사용 이전에 조립된 구성 부품들의 취급의 용이함을 향상시키는데 기여한다.
- [0110] 유리하게도, 본 발명에 따른 조성물이 종래 기술의 조성물에 비하여 혼합하기에 더 용이한 것이 발견되었다. 예를 들어, 테르피네올과 같은 유기 캐리어를 사용하는 종래 기술의 조성물은 12시간 까지의 시간 동안 혼합하는 것을 필요로 했을 수 있다. 본 발명에 따른 조성물은, RW 기본 실험실 에그(egg) 믹서 또는 RW 20 디지털 믹서를 포함하는 IKA 오버헤드 교반기를 사용한 정상 작동 조건에서의 혼합과 같은, 30분의 혼합, 예를 들어 20분, 10분, 5 또는 2분의 혼합과 같은 수 분간의 혼합 후에도 적합한 형태로 있는 것이 발견되었다. 나아가, 본 발명에 따른 조성물은 종래 기술의 조성물보다 건조하기에 더 용이한 것이 발견되었다. 예를 들어, 테르피네올을 사용하는 종래 기술의 조성물은 오븐에서 20분까지의 시간 동안 가열하여 건조하는 것이 필요할 수 있다. 반면에 본 발명에 따른 조성물은 오븐 가열의 필요 없이 적절한 시간 규모 내에서 건조됨이 발견되었다. 예를 들어, 상기 코팅은 18 내지 25°C 사이와 같은 주변 온도에서 20분, 예를 들어 10 또는 5분 동안 건조된 후에 적절하게 건조할 수 있다.
- [0111] 개스킷은 코팅 전에 필요한 형상으로 커팅될 수 있으나, 통상적으로는, 통상의 기술자에게 알려진 임의의 적절한 방법에 의하여 코팅 및 초기 건조 후에 필요한 형상으로 커팅된다.
- [0112] 바람직하게는, 코팅층들은 스택 조립 및 가열(heat-up) 전에 코어층에 정합된다.
- [0113] 본 발명의 이러한 추가적인 측면에서 열처리 단계 (c) 내지 (e)의 조건은 코팅층이 코어층의 표면에 있는 임의의 결함을 수용하도록 바람직하게 최적화된다.
- [0114] 열처리 공정은 단계적인, 연속적인, 또는 단계적인 것과 연속적인 것이 혼합된 온도 구배를 사용하여 수행된다. 예를 들어, 온도는 20 내지 100 K/h 사이, 더욱 바람직하게는 50 내지 70 K/h, 가장 바람직하게는 55 내지 65 K/h 사이의 비교적 일정한 속도로 증가될 수 있다. 바람직하게는, 열처리는 공기 분위기에서 수행된다.
- [0115] 바람직하게는, 열처리는 단계적인 방법으로 수행되는데, 이것은, 온도를 특정 상승 수준까지 올려서 거기에서 일정 시간 동안 실질적으로 유지한 다음, 온도를 더 올려서 거기에서 실질적으로 유지하는 조작을, 가열이 완료될 때까지, 반복하는 것을 의미한다. 그와 같이, 일 구현예에서, 상기 가열은 임의의 유기 물질의 제어된 연소(burn out)를 허용하는 온도에서 유지하는 것을 포함할 수 있다. 제어된 연소는 탄소 형성을 방지하는 것을 돕기 위하여 선호된다. 온도가 그후 상기 코팅의 젖음과 소결이 일어나는 더 높은 온도로 높여질 수 있다.
- [0116] (c) 단계와 관련하여, 이 단계는 스택을 가열하는 동안의 체류 기간(dwell period)을 포함할 수 있다. 상기 체류 기간은, 잔류하는 유기 성분들을 실질적으로 연소 제거하기 위하여, 예를 들어 한 시간 동안에 걸쳐, 적어도 350°C 위, 500°C 온도 이하와 같은, 350-500°C 사이에서 이루어질 수 있다.
- [0117] 통상적으로는, (d) 단계에 적용되는 온도는 스택의 작동 온도보다 높을 뿐만 아니라 (e) 단계의 온도보다 더 높다. 예를 들어, (d) 단계의 온도는 스택의 작동 온도보다 40-70°C 더 높을 수 있다. 그와 같이, 소결 단계의 사용은, 온도가 스택 작동 온도에 맞춰질 수 있기 전에, 개스킷을 위한 별도의 가열 상황(regime)을 필요로 할 수 있다. 유리하게도, 본 발명에 따른 개스킷은 (d) 단계의 소결을 필요로 하지 않을 수 있다. 예를 들어, 본 발명에 따른 개스킷은, 스택이 약 700°C 이상의 작동 온도를 가질 때와 같은 경우에는, 소결 단계를 필요로 하지 않거나 또는 스택의 작동 온도 위로 가열하는 것을 필요로 하지 않을 수 있다. 그와 같이, 통상적으로, 스택의 온도는 스택의 필요조건에만 따라서 높여질 수 있다. 본 발명에 따른 개스킷은 스택의 온도 필요조건에 독립된, 특별한 가열 상황(regime)을 필요로 하지 않을 수 있다.
- [0118] 유리하게도, 상기 열처리는 코팅층이 코어의 표면 결함을 채울 수 있도록 한다. 나아가, 코팅은 직접적인 누설 경로를 실질적으로 밀봉한다. 일 구현예에서, 코팅층들은, 열적 사이클링 동안 형성되는 코어 내의 크랙을 밀봉하도록 작동될 수 있다.

- [0119] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 본 발명의 제2 측면에 따른 개스킷의 제조 방법으로서, 하기의 단계를 포함하는 개스킷 제조 방법이 제공된다;
- [0120] (a) 본 발명의 제1 측면에 따른 유리 조성물을 밀봉될 각각의 결합 표면들 상에 코팅하는 단계;
- [0121] (b) 개스킷 코어층을 밀봉될 상기 코팅된 결합 표면들 사이에 위치시키는 단계;
- [0122] (c) 상기 코팅된 표면들 및 개재된 개스킷 코어층을 함께 결합(mating)시키는 단계;
- [0123] (d) 선택적으로, 상기 개스킷을 가열하여 임의의 잔존하는 휘발성 유기 성분들을 제거하는 단계;
- [0124] (e) 선택적으로, 상기 개스킷을 가열하여 상기 코팅층을 소결하는 단계;
- [0125] (f) 선택적으로, 추가적으로 가열하여 상기 코팅층의 젖음을 일으키는 단계.
- [0126] 본 발명의 이러한 측면의 코팅층들은 본 발명의 임의의 측면의 코팅층들에 관하여 기술된 임의의 코팅 조성물 및 방법에 따라 제조되고 결합 표면에 도포될 수 있다. 바람직하게는, 코팅층들은 페이스트의 형태로 결합 표면에 도포된다. 바람직하게는, 결합 표면에 유리 조성물을 도포하는 방법은, 압출(extrusion)에 의한 비딩(beading)과 같은, 압출에 의한다.
- [0127] (d) 내지 (f) 단계들은 위에서 기술된 바와 같이 본 발명의 이전 측면의 (c) 내지 (e) 단계들 및 이들의 선택적 특징에 따라 수행될 수 있다.
- [0128] 상기 방법은 밀봉될 코팅된 결합 표면들 사이에 위치시키기 전에, 개스킷 코어층을 필요한 개스킷 형상으로 형성, 바람직하게는 컷팅하는 단계를 포함할 수 있다.
- [0129] 유리하게는, 이 측면에 따른 방법은 본 발명에 따른 개스킷 제조에 있어서 훨씬 더 큰 재료 효율성을 허용한다. 개스킷의 형상은 일반적으로 결합 표면의 형상에 의해 좌우되지만, 코어층 재료는 일반적으로 큰 시트 형태로 제조된다. 이와 같이, 유리 코팅된 코어층 시트의 성형(shaping)은 폐기되기 마련인 절단물(cut-off)을 발생시킬 수 있다. 따라서 초기에 결합 표면에 유리 조성물을 도포함으로써, 코팅 조성물의 낭비가 방지된다. 또한, 이러한 방식으로 코어층의 사용하지 않은 부분의 재생이 더 쉽게 이루어진다.
- [0130] 본 발명의 측면들에 따른 개스킷은 코팅층들 사이에 개재된 코어층을 포함한다. 바람직하게는, 개스킷의 코팅층은 코어층에 실질적으로 바로 인접하도록, 또한 통상적으로는 코어층과 접촉되어 접촉되도록 배치된다. 그러므로 추가적인 층이 코팅층과 코어층 사이에 개재되지 않도록, 코팅층은 바람직하게는 코어층과 연속적인 접촉을 한다. 코어층 물질은 본 명세서에서 정의된 것들로부터 선택될 수 있다. 바람직하게는, 코어층은 박리된 질석, 더욱 바람직하게는 화학적으로 박리된 질석을 포함한다.
- [0131] 통상적으로는, 본 발명의 코팅된 개스킷은 10-2100 $\mu\text{m}$ , 더욱 통상적으로는 50 내지 1500 $\mu\text{m}$ , 가장 통상적으로는 300 내지 1000 $\mu\text{m}$  범위의 압축되지 않은 두께를 갖는다.
- [0132] 보통, 코팅층들은 스택의 작동 온도에서 알맞게 유동적이고 정합가능할 것이다. 그러나 더 낮은 온도에서, 예를 들어 열적 사이클링 동안, 코팅층들이 굳어질 수 있다. 그와 같이, 코팅층들, 코어층 및 결합 표면들의 열팽창 계수(thermal expansion coefficients, CTE)는 실질적으로 동일할 수 있다. 통상적으로, 전지의 결합 표면은 작동 온도 동안 10-13 x 10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> 범위의 CTE를 갖는다. 코팅 재료 및 결합 표면의 CTE의 매칭(matching)은 특히 이러한 온도 뿐만 아니라 더욱 특히 작동 온도 미만, 따라서 코팅 재료의 Tg 미만에서 열적 사이클링 동안 밀봉에 대한 손상을 피하기 위하여 유리하다. 적절하게는, 코팅 재료는 600-1000 $^{\circ}\text{C}$ 에서 +/-2 x 10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, 더욱 바람직하게는, +/-1.5 x 10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>의 결합 표면에 대한 CTE를 갖는다.
- [0133] 일반적으로, 조성물은 브러시형 코팅 또는 분무형 코팅 제형으로서 도포될 수 있다. 조성물이 분무에 의하여 도포될 때, 조성물은 통상적으로 높은 함량의 액체 캐리어를 포함할 것이다. 전달의 이유로, 분무형(spray-type) 코팅 제형은 브러시형 코팅 제형보다 더 높은 함량의 액체 캐리어를 요구한다. 그와 같이, 조성물이 브러시형 제형으로 도포되는 경우, 조성물은 일반적으로 감소된 함량의 액체 캐리어를 포함할 것이다. 브러시형 코팅 조성물은 모든 비-분무 도포 방법에 대하여 일반적으로 적합하다.
- [0134] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 유리 조성물의 경화를 예방하기 위한 지연제의 사용이 제공된다. 이 목적을 위한 적절한 지연제 및 유리 조성물이 본 명세서에서, 특히 제1 측면에서 정의된다.
- [0135] 본 발명의 다른 측면에 따르면, 유리 조성물의 경화를 억제하기 위한 지연제의 사용이 제공된다. 이 목적을 위



한 적절한 지연제 및 유리 조성물이 본 명세서에서, 특히 제1 측면에서 정의된다.

[0136] 정의

[0137] "저장 안정성이 있는(storage stable)"은, 보통 수용 가능한 온도 및 시간의 저장 조건 하에서, 즉, 5 내지 30 °C 사이 및 1 내지 7일, 더욱 통상적으로는 15 내지 25°C 및 1 내지 5일에서, 조성물이 실질적으로 경화하지 않는 것을 의미한다.

[0138] 본 명세서에서 용어 "액체(liquid)"는 통상의 기술자에게 잘 이해되기 때문에 정의를 필요로 하지 않는다. 통상적으로는, 용어 액체는 적어도 5 내지 35°C 사이, 더욱 통상적으로는 5 내지 30°C 사이에서 재료 또는 조성물에 적용 가능하다.

[0139] 본 명세서에서 용어 "고체 산화물 전지(solid oxide cell)"은 고체 산화물 연료 전지 또는 고체 산화물 전해 전지를 포함한다.

[0140] 반구 온도(hemisphere temperature)는 샘플의 높이가 지름의 절반인 온도이고, 따라서 이것은 젖음의 접근의 지표(index of the approach of wetting)이다.

[0141] 반구(또는 절반의 구) 온도는 샘플의 높이가 그 기저의 폭의 절반일 때 도달된다.

[0142] 본 발명의 더 나은 이해를 위하여, 그리고 어떻게 본 발명의 구현예들이 효과를 낼도록 수행될 수 있는지 보여 주기 위하여, 예로서 다음의 실시예들이 참조될 것이다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

[0143] 실시예

[0144] 다음의 유리 분말들이 테스트 되었다.

- [0145] 1 VIOX V1467 (1:1 물 분산액에서 pH 6-7)
- [0146] 2 VIOX V2289 (1:1 물 분산액에서 pH 6)
- [0147] 3 FLX 102 (1:1 물 분산액에서 pH 10)
- [0148] 4 FLX 101 (1:1 물 분산액에서 pH 10)
- [0149] 5 Schott GM31107 (1:1 물 분산액에서 pH 10.5)

[0150] 비교예

[0151] 비교 테스트를 위하여, 상기 유리 분말들이 다음의 조성물에 도입되었다.

[0152]	유리 분말	100
[0153]	Dispex N40	1
[0154]	물	42
[0155]	1% Natrosol	1
[0156]	1% Kelzan	1

[0157] Dispex N40 - 물 속의 메타크릴산의 나트륨염의 용액을 포함하는 적심 및 분산제(wetting and dispersing agent)

[0158] Natrosol - 1% 히드록시에틸셀룰로스 용액을 포함하는 증점 및 현탁제

[0159] Kelzan - 1% 산탄검(xanthan gum) 용액을 포함하는 반-침강제

[0160] 비교예의 결과

[0161] 비교예 1 (VIOX V1467 함유) - 2시간 후에 다져진(packed) 침전물 위의 물층으로 분리되었다. 노력으로 재혼합될 수 있었다. 24시간 후에 변화가 없었고, 응고(solidification) 반응이 없었다.

[0162] 비교예 2 (VIOX V2289 함유) - 2시간 후에 부드러운 침전물 위의 물층으로 분리되었다. 재혼합하기 쉬웠다. 24

시간 후에 변화가 없었고, 응고 반응이 없었다.

[0163] 비교예 3 (FLX 102 함유) - 조성물이 거의 즉각적으로 진해지기(thickening) 시작하였다. 2시간 후에 페이스트 같은 농도. 24시간 후에, 이 조성물은 회복될 수 없는 진한 응집된 페이스트가 되었다.

[0164] 비교예 4 (FLX 101 함유) - 한 시간 후에 조성물이 페이스트 같이 되었다. 24시간 후에 조성물이 코팅으로서 사용 불가능한 매우 강직한(stiff) 페이스트가 되었다.

[0165] 비교예 5 (Schott GM31107 함유) - 조성물이 수 분 내에 응고되었다.

[0166] 위의 실시예들에 의하여 나타난 바와 같이, 알칼리성 유리들은 수성 분산액에서 빨리 응고되었고, 그와 같이 열악한 저장 안정성을 보여준다.

[0167] 본 발명의 테스트

[0168] 본 발명에 따른 조성물의 테스트를 위하여 FLX 102 및 FLX 101 유리 분말이 다음의 실시예 1 및 2의 조성물 내로 도입되었다.

[0169] 유리 분말 100

[0170] Dispex N40 1

[0171] 물 42

[0172] 1% Natrosol 1

[0173] 1% Kelzan 1

[0174] 붕사 1.5

[0175] 붕사 - 사붕산이나트륨을 포함하는 지연제

[0176] 실시예의 결과

[0177] 실시예 1 (FLX 102 함유) - 두 시간 후에 조성물이 재혼합될 수 있는 다져진 침전물을 형성하였다. 조성물이 24시간 후에 응고 없이 동일한 형태에 있었다. 48시간 후에도 여전히 응고가 없었다.

[0178] 실시예 2 (FLX 101 함유) - 두 시간 후에 조성물의 형태에 변화가 없었다. 48시간 후 일부 분리가 있었지만, 조성물은 쉽게 재혼합될 수 있었고, 응고가 발견되지 않았다.

[0179] 또한, 본 발명의 실시예 3에서 Schott GM31107 유리 분말이 다음의 조성물 내에 도입되었다.

[0180] 유리 분말 100

[0181] Dispex N40 1

[0182] 물 42.5

[0183] 1% Natrosol 10

[0184] 1% Kelzan 10

[0185] 붕사 1.5

[0186] Plectol d498 10

[0187] 10% 황색 2.2

[0188] 10% 적색 0.4

[0189] 10% 흑색 0.55

[0190] Plectol D498 - 높은 알칼리도 시스템에 적용되기 위하여 안정화된 아크릴 분산액을 포함하는 바인더

[0191] 황색 안료 - 유기 안료 Yellow 83의 물 기반 분산액인 Gemspers EP83

[0192] 적색 안료 - 유기 적색 안료의 물 기반 분산액인 Gemspers EX166

- [0193] 흑색 안료 - 카본 블랙의 물 기반 분산액인 Gemspers EP7
- [0194] 상기 조성물은 물, Dispex 및 붕사를 붕사가 용해될 때까지 미리 혼합하여 형성되었다. 유리 분말이 그후 교반과 함께 첨가되었다. 미리 형성된 Natrosol 및 Kelzan 용액이 그후 느린 교반과 함께 첨가되었고, 이어서 Plextol이 느린 교반과 함께 첨가되었고, 마지막으로 안료가 느린 교반과 함께 첨가되었다.
- [0195] 본 발명의 테스트 결과
- [0196] 실시예 3 (Schott 함유) - 조성물은 이틀에 걸쳐 무시할 만한 증점(thickening)을 보였다. 또한 무시할 만한 침강(settling)이 있었으며, 모든 침강물이 쉽게 재혼합될 수 있었다. 나아가 조성물이 주변 온도에서 저장되었을 때 4일 후에도, 그리고 냉장고에 저장되었을 때 7일 동안, 도포에 적합한 것이 발견되었다.
- [0197] 실시예 3의 조성물을, 50 μ KBar (RK Print Coat Instruments Ltd, Litlington, Royston, SG8 0QZ, UK로부터 입수가능)를 사용하여, 질석 개스킷 코어층에 도포하여, 평평한 필름을 만들어 내었고, 이를 공기 건조하였다. 건조된 필름은 균일(coherent)하였고 또한 마찰 저항성(rub resistant)이 있었고, 탈락(chalking)은 무시할 만하였다. 유기 물질들을 연소 제거하기 위하여 시트가 370°C까지 가열되었다. 700°C까지 시트를 가열하여, 깨끗하고 투명한 용융 유리 코팅을 생성하였다.
- [0198] 또 다른 지연제들이 유리 조성물을 지연/안정화시키는데 있어서 그들의 효율에 대하여 테스트되었다. 다음과 같이 붕사가 대체된 것을 제외하고는, 사용된 제형은 실시예 3에서와 같았다.
- [0199] 실시예 4 - 오르쏘 붕산(H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>)
- [0200] 붕산은 pH 6.7의 용액을 갖는 매우 약한 산이고, 물에 충분히 용해가능하다. Dispex 및 유리를 첨가하기 전에, 상기 제형에서 1.4 중량부의 함량으로 붕산이 상기 물 성분에 용해되었다.
- [0201] 점도가 다음과 같이 모니터되었다:
- [0202] 초기 - 낮은 점도의 매끄러운 액체
- [0203] 6시간 - 낮은 점도의 매끄러운 액체
- [0204] 24시간 - 낮은 점도의 매끄러운 액체
- [0205] 실시예 5. 당(자당)
- [0206] 유리를 첨가하기 전에 물에 용해함으로써 상기 제형에 1.4 중량부로 첨가되었다.
- [0207] 점도가 다음과 같이 모니터되었다:
- [0208] 초기 - 낮은 점도의 액체
- [0209] 1시간 - 질척한 페이스트(sloppy paste)
- [0210] 6시간 - 진한 페이스트(thick paste) - 그리트( grit ) 없음
- [0211] 24시간 - 진한 페이스트 - 그리트( grit ) 없음
- [0212] 48시간 - 강직한 페이스트(stiff paste)이지만 여전히 작업 가능함
- [0213] 실시예 6 - 타르타르산
- [0214] 유리를 첨가하기 전에 물에 용해함으로써 상기 제형에 1.4 중량부로 첨가되었다.
- [0215] 점도가 다음과 같이 모니터되었다:
- [0216] 초기 - 낮은 점도의 액체
- [0217] 7시간 - 크림같은 점도
- [0218] 24시간 - 크림같은 점도
- [0219] 72시간 - 크림 같은 점도, 그리트 또는 응집물 없음
- [0220] 실시예 7 - 살리실산

- [0221] 이전에 기술된 바와 같이 1.4 중량부로 첨가되었다.
- [0222] 점도가 다음과 같이 모니터되었다:
- [0223] 초기 - 낮은 점도의 액체
- [0224] 45 분 - 낮은 점도의 액체
- [0225] 24시간 - 질척한 페이스트, 그리트 없음, 여전히 작업 가능함
- [0226] 상기 실시예들로부터 볼 수 있는 바와 같이, 알칼리성 유리와 지연제를 함유한 본 발명에 따른 수성 조성물은 수성 분산액에서 응고에 대한 향상된 저항을 보여주며, 이들 고온 유리에 대한 저장 안정성에서 상당한 향상을 제공한다.
- [0227] 본 출원과 관련된, 본 명세서와 동시에 또는 그 이전에 제출되고, 본 명세서의 공중 심사에서 개방되어 있는 모든 논문과 문서가 주목되어야 하며, 그러한 모든 논문과 문서의 내용은 본 명세서에 인용에 의하여 포함된다.
- [0228] 본 명세서(모든 특허 청구 범위, 요약 및 도면 포함)에 개시된 모든 특징들, 및/또는 그렇게 개시된 임의의 방법 또는 공정의 모든 단계는 임의의 조합으로 결합될 수 있고, 다만, 그러한 특징 및/또는 단계의 적어도 일부가 상호 배타적인 조합들은 제외된다.
- [0229] 본 명세서(모든 특허 청구 범위, 요약 도면 포함)에 개시된 각각의 특징은 명시적으로 다르게 언급하지 않는 한, 동일, 균등 또는 유사한 목적을 제공하는 다른 특징들로 대체될 수 있다. 그러므로 명시적으로 다르게 언급되지 않는 한, 개시된 각각의 특징들은 단지 포괄적인 일련의 동등하거나 유사한 특징들의 일 예이다.
- [0230] 본 발명은 전술한 구현예(들)의 세부 사항에 한정되지 않는다. 본 발명은 본 명세서(모든 특허 청구 범위, 요약 도면 포함)에 개시된 특징들의 임의의 신규한 것 또는 임의의 신규한 조합, 또는 본 명세서(모든 특허 청구 범위, 요약 도면 포함)에 개시된 임의의 방법 또는 공정의 단계들의 임의의 신규한 것, 임의의 신규한 조합으로 확대된다.