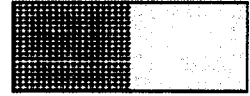


## DOCUMENT MADE AVAILABLE UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

International application number:	<b>PCT/KR2019/016629</b>
International filing date:	<b>28 November 2019 (28.11.2019)</b>
Document type:	<b>Certified copy of priority document</b>
Document details:	Country/Office: <b>KR</b>
	Number: <b>10-2018-0151382</b>
	Filing date: <b>29 November 2018 (29.11.2018)</b>
Date of receipt at the International Bureau:	<b>14 December 2019 (14.12.2019)</b>

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a),(b) or (b-bis)



별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto is a true copy from the records of the Korean Intellectual Property Office.

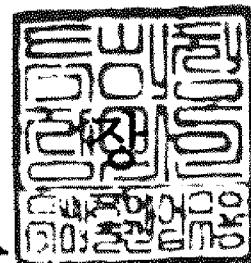
출원 번호 : 10-2018-0151382  
Application Number

출원 년 월 일 : 2018년 11월 29일  
Filing Date NOV 29, 2018

출원인 : 엘지전자 주식회사 외 1명  
Applicant(s) LG Electronics Inc., et al

2019 년 12 월 13 일

특 허 청  
COMMISSIONER



**【서지사항】**

<b>【서류명】</b>	특허출원서
<b>【출원구분】</b>	특허출원
<b>【출원인】</b>	
<b>【명칭】</b>	엘지전자 주식회사
<b>【특허고객번호】</b>	1-2002-012840-3
<b>【출원인】</b>	
<b>【명칭】</b>	주식회사 엘지화학
<b>【특허고객번호】</b>	1-2001-013456-3
<b>【대리인】</b>	
<b>【명칭】</b>	특허법인 대아
<b>【대리인번호】</b>	9-2009-100101-8
<b>【지정된변리사】</b>	정병직, 김보현, 김성곤, 유재영
<b>【포괄위임등록번호】</b>	2016-056372-8
<b>【발명의 국문명칭】</b>	실링 유리 조성물 및 이를 이용한 고체산화물 연료 전지
<b>【발명의 영문명칭】</b>	SEALING GLASS COMPOSITION AND SOLID OXIDE FUEL CELL USING THE SAME
<b>【발명자】</b>	
<b>【성명】</b>	김남진
<b>【성명의 영문표기】</b>	Kim Namjin
<b>【주민등록번호】</b>	830814-1XXXXXX
<b>【우편번호】</b>	08592

**【주소】** 서울특별시 금천구 가산디지털1로 51 LG전자 특허센터

**【발명자】**

**【성명】** 김영석

**【성명의 영문표기】** Young Seok Kim

**【주민등록번호】** 810316-1XXXXXX

**【우편번호】** 08592

**【주소】** 서울특별시 금천구 가산디지털1로 51 LG전자 특허센터

**【발명자】**

**【성명】** 임상혁

**【성명의 영문표기】** SANGHYEOK IM

**【주민등록번호】** 850122-1XXXXXX

**【우편번호】** 34122

**【주소】** 대전광역시 유성구 문지로 188 LG화학기술연구원

**【출원언어】** 국어

**【심사청구】** 청구

**【취지】** 위와 같이 특허청장에게 제출합니다.

대리인 특허법인 대아 (서명 또는 인)

**【수수료】**

**【출원료】** 0 면 46,000 원

**【가산출원료】** 18 면 0 원

**【우선권주장료】** 0 건 0 원

**【심사청구료】**            6    항            407,000   원

**【합계】**                    453,000   원

**【첨부서류】**            1.기타첨부서류[위임장]\_1통

## 【발명의 설명】

### 【발명의 명칭】

실링 유리 조성물 및 이를 이용한 고체산화물 연료 전지{SEALING GLASS COMPOSITION AND SOLID OXIDE FUEL CELL USING THE SAME}

### 【기술분야】

【0001】 본 발명은 실링재로 사용할 수 있는 유리 조성물 및 이를 이용한 고체산화물 연료전지에 관한 것이다.

### 【발명의 배경이 되는 기술】

【0002】 고체산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell; SOFC)는 공기와 같은 산화성 가스와  $H_2$ , CO,  $CH_4$ 와 같은 환원성 연료가스를 각각 고온에서 공급받아 전기를 발생시키는 화학전지이다. SOFC는 높은 운전온도로 인하여 높은 열효율, 고가 촉매에 대한 낮은 의존도 등의 장점이 있다.

【0003】 그러나, SOFC에서는 구성재료가 고온에 노출되므로 전지 구성재료의 내구성이 큰 문제가 된다. 그 때문에 실용화를 앞두고 작동온도 중저온용 재료나 전지 구성 등에 대한 기초적인 연구를 필요로 하고 있다.

【0004】 SOFC는 양극(cathode), 고체 전해질(solid electrolyte), 음극(anode)으로 이루어진 단위전지(unit cell)로 구성되어 있으며, 단위전지를 서로 연결시키는 접속자(interconnect)의 형태에 따라 평판형(planar design), 원통형(tubular design) 및 평판형(planar tube design)이 있으며 평판형 SOFC에는 연료간

의 혼합을 막고 단위전지 내의 구성요소 사이의 접합을 위해 실링재의 개발이 필수적이다.

【0005】 최근에 중저온 SOFC의 실용화를 위해 많은 연구가 진행 중이다. 600℃~800℃에서 작동하는 중저온 고체산화물 연료전지의 경우 800℃~1000℃에서 작동하는 기존의 고온 고체산화물 연료전지에 비해 많은 장점을 가지고 있다. 고온 고체산화물 연료전지의 경우는 금속 산화 문제로 인하여 접속자를 세라믹으로 써야 하지만 작동온도가 700℃ 이하로 내려가면 금속 접속자를 사용할 수 있기 때문에 제조원가를 낮출 수 있고, 고체산화물 연료전지 시스템의 가격의 50% 정도를 차지하는 BOP (balance of plant)의 디자인과 재료선택에 있어서 선택의 폭이 넓어져 제조 원가를 혁신적으로 낮출 수 있다. 또한 저온에 작동할수록 스타트업(start up)과 셧다운(shut down)등의 열사이클 대응이 용이하며 내구성을 증가시킬 수 있다.

【0006】 평판형의 경우는 짧은 전류경로로 인해 원통형에 비해 효율성 및 전력밀도면에서 우수한 특성을 보이지만 이를 구성하는 재료 대부분이 세라믹 복합 단일체이므로 취성 파괴의 문제점과 더불어 복잡한 제조공정에 따른 기술적 문제가 있다. 특히 구성층 사이를 접합하기 위한 밀봉 재료로서 실링 유리재의 개발이 필수적이다. 만약, 고온에서 연료가스와 공기가스가 혼합이 일어나는 경우에는 공기에 의한 연료가스의 산화반응에 의해 발열 또는 폭발에 따라 SOFC 스택 구조의 손상을 초래하여 운전이 정지된다. 또한 두 가스의 혼합에 의해 연료극과 공기극에서 각 가스 분압이 낮아지면, 기전력이 감소되어 정상적인 전기 생산이 이루어지지 않

는다.

【0007】 현재 평판형 SOFC에서 요구되는 장기 밀봉 성능과 소재에 대한 신뢰성 모두를 만족할 수 있는 적합한 밀봉 방법과 실링재에 대하여 많은 기술개발이 수행되고 있으나 SOFC의 실용화 및 상용화가 가능한 정도의 기술 개발이 이루어지지 못하고 있는 실정이다.

【0008】 이와 관련하여 800℃~1000℃에서 작동하는 고체산화물 연료전지에 적용되는 실링 유리 조성물이 널리 알려져 있다.

【0009】 그러나, 800℃~1000℃에서 작동하는 고체산화물 연료전지에 적용되는 실링재는 최소 850℃ 이상에서 열처리가 행해지기 때문에 중저온 고체산화물 연료전지에 사용되기 어려운 문제점이 있다. 이에 따라 중저온 고체산화물 연료전지에 사용 가능하고 장기간 사용 후에도 실링 접착강도가 우수한 실링재의 개발이 요구되고 있다.

【0010】 또한, 기존의 실링재는 유리의 유동성을 향상시키기 위한 성분을 일정량 포함하지만, 모재와의 열팽창 계수를 매칭할 수 있는 적절한 성분 및 조성비를 갖지 못하여 SOFC의 장시간 운전 시 균열이 발생하는 등의 문제점이 있다.

【0011】 또한, 기존의 실링재와는 달리 800℃ 이하에서 열처리가 행해지면서도 700±50℃의 SOFC 운전 조건에서 화학적 내구성 및 내열성이 우수한 실링 유리 조성물의 개발이 요구되고 있다.

## 【발명의 내용】



### 【해결하고자 하는 과제】

【0012】 본 발명은  $700 \pm 50^\circ\text{C}$ 의 중저온에서 작동하는 고체산화물 연료전지에 사용되기 적합하고 장기간 사용 후에도 실링 접착강도가 우수한 새로운 실링 유리 조성물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

【0013】 또한 본 발명은, 유리의 고온 유동성을 향상시킴과 더불어 모재와의 열팽창 계수가 매칭되어 박리 내지는 파손 현상이 발생하지 않고 내구성이 우수한 새로운 실링 유리 조성물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

【0014】 또한 본 발명은,  $800^\circ\text{C}$  이하에서 열처리가 행해지면서도  $700 \pm 50^\circ\text{C}$ 의 SOFC 운전 조건에서 화학적 내구성 및 내열성이 우수한 새로운 실링 유리 조성물을 제공하는 것을 목적으로 한다.

### 【과제의 해결 수단】

【0015】 중저온에서 작동하는 고체산화물 연료전지에 사용되기 적합하고 장기간 사용 후에도 실링 접착강도가 우수한 실링 유리 조성물을 제공하기 위해, 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은  $\text{SiO}_2$  10~45 중량%,  $\text{B}_2\text{O}_3$  0.1~20 중량%,  $\text{BaO}$  40~65 중량%,  $\text{CaO}$  0.1~20 중량%,  $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  및  $\text{ZrO}_2$  가운데 1종 이상 0.1~15 중량%를 포함한다.

【0016】 아울러, 유리의 고온 유동성을 향상시킴과 더불어 모재와의 열팽창 계수가 매칭되어 박리 내지는 파손 현상이 발생하지 않는 새로운 실링 유리 조성물을 제공하기 위해, 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은  $\text{SiO}_2$ 의 함량이  $\text{BaO}$ 의 함량의

1/4 이상 3/4 이하로 제어될 수 있다.

【0017】 아울러, 800 °C 이하에서 열처리가 행해지면서도 700±50 °C의 SOFC 운전 조건에서 화학적 내구성 및 내열성이 우수한 새로운 실링 유리 조성물을 제공하기 위해 SrO 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상의 함량을 5 중량% 이하로 제어할 수 있다.

### 【발명의 효과】

【0018】 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 SiO<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, BaO, CaO, 그리고 SrO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상을 특유의 조성비로 포함한 새로운 성분계를 가짐으로써, 종래의 실링재 유리 조성물과 달리 중저온에서 작동하기 적합하고 장기간 사용 후에도 실링 접착강도의 저하가 최소화되는 우수한 효과가 있다.

【0019】 아울러, 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 SiO<sub>2</sub>와 BaO의 최적비를 가질 수 있어 유리의 고온 유동성을 향상시킴과 더불어 모재와의 열팽창 계수가 매칭되어 박리 내지는 파손 현상이 발생하지 않는 효과가 있다.

【0020】 더 나아가 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 SrO 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상의 함량을 제어하여 800 °C 이하에서 열처리가 행해지면서도 700±50 °C의 SOFC 운전 조건에서 화학적 내구성 및 내열성이 우수한 효과가 있다.

### 【도면의 간단한 설명】

【0021】 도 1은 평판형 고체산화물 연료전지의 개략적인 구조를 도시한 단면도이다.

### 【발명을 실시하기 위한 구체적인 내용】

【0022】 전술한 목적, 특징 및 장점은 상세하게 후술되며, 이에 따라 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자가 본 발명의 기술적 사상을 용이하게 실시할 수 있을 것이다. 본 발명을 설명함에 있어서 본 발명과 관련된 공지 기술에 대한 구체적인 설명이 본 발명의 요지를 불필요하게 흐릴 수 있다고 판단되는 경우에는 상세한 설명을 생략한다. 이하, 본 발명에 따른 바람직한 실시예를 상세히 설명하기로 한다.

【0023】 본 발명은 이하에서 개시되는 실시예에 한정되는 것이 아니라 서로 다른 다양한 형태로 구현될 수 있으며, 단지 본 실시예는 본 발명의 개시가 완전하도록 하며 통상의 지식을 가진 자에게 발명의 범주를 완전하게 알려주기 위하여 제공되는 것이다.

【0024】 이하, 본 발명에 따른 실링 유리 조성물 및 이를 이용한 고체산화물 연료전지에 대해 상세히 설명하기로 한다.

#### 【0026】 <실링 유리 조성물>

【0028】 약  $700 \pm 50$  °C에서 온도조건에서 구동되는 중저온 고체산화물 연료전지에 적용되기 적합한 실링 유리 조성물의 개발이 요구되고 있다. 이에 본 발명자들은 특히 800°C 이하에서 열처리 공정(실링 공정)에 적합하며 중저온 고체산화물 연료전지에 장시간 적용되어도 내구성이 우수하고 특히 모재와의 접착 계면에서

접착강도가 우수한 신규의 실링 유리 조성물을 완성하였다.

【0030】 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은  $\text{SiO}_2$  10~45 중량%,  $\text{B}_2\text{O}_3$  0.1~20 중량%,  $\text{BaO}$  40~65 중량%,  $\text{CaO}$  0.1~20 중량%,  $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  및  $\text{ZrO}_2$  가운데 1종 이상 0.1~15 중량%를 포함한다.

【0032】  $\text{SiO}_2$ 는 유리형성능력을 향상시키며 유리의 망목구조를 형성하기 위한 성분에 해당한다. 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 상기  $\text{SiO}_2$ 를 10~45 중량%의 범위로 포함한다. 상기  $\text{SiO}_2$ 가 10 중량% 미만으로 포함되면 유리의 결정화가 쉽게 발생되어 실링 자체가 어려운 문제가 있고 상기  $\text{SiO}_2$ 가 45 중량%를 초과하여 포함되면 고온에서의 융합 흐름(fusion flow)이 급격히 높아짐에 따라 구성 부품간에 충분한 실링이 이루어지지 못하는 문제점이 있다.

【0034】  $\text{B}_2\text{O}_3$ 는  $\text{SiO}_2$ 와 더불어 충분한 유리화가 가능하도록 유리 형성체로서의 역할을 하며 유리의 용융 온도, 연화 온도, 고온 점도를 낮추고 유리 조성물의 결정화 양을 감소시키는 성분에 해당한다. 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 상기  $\text{B}_2\text{O}_3$ 를 0.1~20 중량% 포함한다. 상기  $\text{B}_2\text{O}_3$ 가 0.1 중량% 미만으로 포함되면 연화점이 상승하여 고온에서의 점도가 높아 기밀성이 저하될 수 있다. 또한 상기  $\text{B}_2\text{O}_3$ 가 20 중량%를 초과하여 포함되면 실링재의 내수성이 약해지고 무엇보다 중저온 SOFC

의 장시간 운전시 재료의 열화가 발생할 수 있는 문제가 있다.

【0036】 BaO는 유리의 실투를 억제시키며 고온 점도를 낮추어 유동성을 향상시킬 수 있는 성분에 해당한다. 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 상기 BaO를 40~65 중량% 포함한다. 상기 BaO가 40 중량% 미만으로 포함되면 유리의 유동성이 저하되는 문제점이 발생할 수 있다. 또한 상기 BaO가 65 중량%를 초과하여 포함되면 유리 조성물 내의 Ba 성분이 특히 스테인리스 강으로 형성된 모재(연결재)에서 나온 Cr 성분과 반응하여 BaCrO<sub>4</sub>를 생성하게 되며 이를 통해 실링재의 열팽창계수에 큰 변화를 주어 SOFC의 장시간 작동 시 모재와 실링재에 크랙이 발생할 수 있는 문제가 있다.

【0038】 CaO는 실링 유리 조성물의 열팽창계수를 제어하고 실링재의 내구성을 향상시킬 수 있는 성분에 해당한다. 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 상기 CaO를 0.1~20 중량% 포함한다. 상기 CaO가 0.1 중량% 미만으로 포함되면 요구되는 열팽창계수를 얻지 못하고 유리의 유동성이 저하되는 문제점이 발생할 수 있다. 또한 상기 CaO가 15 중량%를 초과하여 포함되면 유리의 실투가 발생할 수 있고 또한 고온 유동성이 저하될 수 있는 문제가 있다.

【0040】 SrO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상은 실링재의 화학적 내구성과 내열성을 향상시키는 성분에 해당한다. 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 SrO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상을 0.1~15 중량% 포함한다. 상기 SrO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상이 0.1 중량% 미만으로 포함되면 화학적 내구성과 내열성 향상 효과가 미미할 수 있고, 또한 15 중량%를 초과하여 포함되면 오히려 유리의 실투가 발생할 수 있는 문제가 있다. 바람직하게는 SrO 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상이 5 중량% 이하로 제어될 수 있다. SrO 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상이 5 중량% 를 초과하면 실링 유리 조성물의 켈칭 공정 중에 유리 실투가 발생할 수 있고 실링 공정 중에 과도한 유리 결정화가 발생할 수 있다.

【0042】 보다 바람직하게는, 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 상기 상기 SiO<sub>2</sub>의 함량이 상기 BaO의 함량의 1/4 이상 3/4 이하로 조절될 수 있다. BaO 성분은 앞서 언급한 바와 같이 유동성을 향상시키는 성분에 해당하며 특히 본 발명에 따른 실링 유리 조성물의 성분계에서 적절한 유동성을 부여하기 위해 SiO<sub>2</sub>의 함량보다 많이 함유되는 것이 바람직하다. 다만, SiO<sub>2</sub>의 함량이 BaO 함량의 1/4 미만으로 함유되면 유리의 내열성이 저하됨과 동시에 유동성이 과도하게 커지게 되는 문제가 있다. 또한, SiO<sub>2</sub>의 함량이 BaO의 함량의 3/4를 초과하여 함유되면 유리의 유동성이 저하되어 실링이 잘 이루어지지 않는 문제가 있다.

【0044】 또한 본 발명에 따른 실링 유리 조성물은 800 °C 이하의 열처리 공

정(실링 공정)에 적합할 수 있도록 바람직하게는 800 °C 이하의 반구형 온도 (hemisphere temperature)를 가질 수 있다. 상기 반구형 온도는 고온 현미경을 이용하여 현미경 방법으로 측정할 수 있으며, 원통형인 시험 시편이 서로 융합하여 반구형 매스를 형성하는 온도를 의미한다. 본 발명에 따른 실링 유리 조성물이 800 °C 이하의 반구형 온도를 가짐으로써 약  $700 \pm 50$  °C의 온도에서 충분한 기밀성을 확보할 수 있다.

**【0046】 <고체산화물 연료전지 및 이의 실링 방법>**

**【0048】** 본 발명은 앞서 언급한 실링 유리 조성물로 형성되는 실링재를 포함한 고체산화물 연료전지를 제공한다. 보다 바람직하게는 상기 고체산화물 연료전지는  $700 \pm 50$  °C 온도 범위에서 작동하는 중저온 고체산화물 연료전지일 수 있다.

**【0049】** 도 1을 참조하면, 고체산화물 연료전지는 음극과 양극, 상기 음극과 양극 사이에 구비된 전해질, 인터커넥터 및 프레임을 포함할 수 있으며, 그 구조가 특별히 제한되는 것은 아니다.

**【0050】** 고체산화물 연료전지는 상기 양극과 음극의 가스 혼합을 방지하고, 각 셀의 전극, 전해질 및 인터커넥터의 가장자리에 전기적 절연을 위해서 완벽한 밀봉이 요구된다.

【0051】 이를 위해 본 발명에 따른 실링 유리 조성물로 형성된 실링재는 각 전극과 인터커넥터 사이, 전해질과 인터커넥터 사이, 셀 스택과 프레임 사이를 밀봉하도록 적용될 수 있다.

【0052】 또한, 본 발명에 따른 실링 유리 조성물로 형성된 실링재는 고체산화물 연료전지의 구조에 따라 여러 부분에 적용될 수 있다.

【0053】 본 발명에 따른 고체산화물 연료전지의 실링 방법은 실링이 필요한 부분에 본 발명에 따른 실링 유리 조성물을 도포하는 등의 방식으로 적용하고 800 °C 이하의 온도에서 열처리하는 공정(실링 공정)을 통해 수행된다.

【0055】 이하, 이하, 실시예를 통해 본 발명의 구체적인 태양을 살펴보기로 한다.

#### 【0057】 <실링 유리 조성물의 제조>

【0058】 하기 표 1에 기재된 조성비를 갖는 실링 유리 조성물을 제조하였다. 각 성분 가운데 BaO, CaO 및 SrO의 원재료는 각각 BaCO<sub>3</sub>, CaCO<sub>3</sub> 및 SrCO<sub>3</sub>를 사용하였고 나머지 성분은 하기 표 1에 기재된 성분과 동일한 성분을 사용하였다. 제조된 유리 조성물을 전기로에서 1200 ~ 1350 °C의 온도 범위에서 용융시킨 후 트윈롤을 이용하여 건식으로 급냉하였다. 급냉하여 얻은 컬릿을 건식분쇄기로 분쇄 후 230 메쉬 시브에 통과시켜 D<sub>50</sub> 입경이 15 ~ 25 μm인 유리 분말을 제조하였다.



**【0060】 【표 1】**

성분 (중량%)	실시에			비교예	
	1	2	3	1	2
SiO <sub>2</sub>	20.4	22.8	20.2	34.7	13.9
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.7	11.5	15.7	7.9	35.9
Na <sub>2</sub> O	0	0	0	13.3	0
BaO	50.5	53.2	49.5	30.8	35.2
CaO	12.3	7.3	12.3	0	3.2
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.8	4.7	1.2	2.2	5.9
ZrO <sub>2</sub>	0	0.5	0.8	0	0
SrO	0.3	0	0.3	0	5.9
ZnO	0	0	0	11.1	0

**【0062】 <실험예>**

【0063】 상기 실시에 및 비교예에 의해 제조된 실링 유리 조성물에 대해 열팽창계수를 측정하고 시편을 제작하여 모재(스테인리스강)와의 반응성을 검토하였다. 물성 측정 및 반응성에 대한 결과는 하기 표 2에 정리하였다.

**【0065】 1. 열팽창계수(CTE( x 10<sup>-7</sup>/°C )) 측정**

【0066】 상기 실시에 및 비교예로부터 제작한 분말을 펠릿으로 제작한 후 750°C에서 유지하고 노냉(furnace cooling) 후 TMA 장비(TMA-Q400 TA instrument)를 이용하여 열팽창계수를 측정하였다. 열팽창계수는 하기 표 2와 각 샘플에 대해 2가지 조건에서 측정하였다.

## 【0068】 【표 2】

		실시예			비교예	
		1	2	3	1	2
열팽창계수 (CTE( x 10 <sup>-7</sup> /°C))	780°C에서 10시간 유지 후 측정	107.9	105.2	106.9	92.2	60.5
	780°C에서 10시간 유지하고, 이후 670°C에서 200시간 유지 후 측정	103.8	108.1	104.7	91.3	61.1

【0070】 상기 표 2에 기재된 바와 같이, 본 발명에 따른 실시예 1~3은 열팽창 계수가 103 ~ 114 ( x 10<sup>-7</sup>/°C ) 의 범위 내에 속한다. 접합 모재는 스테인리스 강 (SUS441)으로서 이의 열팽창계수는 약 115 ( x 10<sup>-7</sup>/°C )에 해당하는 바, 실시예 1~3은 접합 모재와 열팽창계수가 매칭이 되는 것을 알 수 있다. 그러나, 비교예는 열팽창 계수가 92 ( x 10<sup>-7</sup>/°C ) 이하의 범위에 해당하여 접합 모재와 열팽창계수가 매칭이 되지 않는 것을 확인할 수 있다.

## 【0072】 2. 접착 강도 평가

【0073】 다음으로, 실시예 1 내지 5로부터 제작된 실링재와 비교예 1로부터 제작된 실링재를 스테인리스 강(SUS441) 위에 올린 후 650°C에서 5시간 열처리한 이후 접착강도 특성을 관찰하였다. 비교예 2는 모재와 접착이 불가능하여 접착 강도 특성을 관찰할 수 없었다.

【0074】 접착 강도는 실링재와 모재와의 전단인장응력을 측정하여 관찰하였다. 상기 전단인장응력은 상기 샘플의 양끝단을 측정장치(만능재료시험기)에 고정시키고 스테인리스 강(SUS441)과 실링재를 양쪽으로 당겨서 접착력을 시험하는 방법에 의하였다. 실시예 1 내지 5와 비교예 1의 전단인장응력 측정 결과는 하기 표 3에 기재하였다.

【0076】 【표 3】

	실시예			비교예	
	1	2	3	1	2
열처리 전 전단응력(kgf)	101.2	100.8	101.3	84.4	77.8
650℃에서 5시간 열처리 후 전단인장응력(kgf)	95.1	94.5	95.2	79.7	65.4

【0078】 표 3에 나타난 바와 같이, 실시예에 따른 실링재는 열처리 후에도 실링재의 열물성이 우수하여 전단인장응력의 감소가 최소화되는 것을 확인할 수 있다. 이와 달리 비교예에 따른 실링재는 열물성이 너무 낮아 열처리 후 전단인장응력이 급격히 감소함을 알 수 있다

【0080】 이상과 같이 본 발명에 대해 설명하였으나, 본 명세서에 개시된 실시예에 의해 본 발명이 한정되는 것은 아니며, 본 발명의 기술사상의 범위 내에서

통상의 기술자에 의해 다양한 변형이 이루어질 수 있음은 자명하다. 아울러 앞서 본 발명의 실시예를 설명하면서 본 발명의 구성에 따른 작용 효과를 명시적으로 기재하여 설명하지 않았을 지라도, 해당 구성에 의해 예측 가능한 효과 또한 인정되어야 함은 당연하다.

**【청구범위】**

**【청구항 1】**

SiO<sub>2</sub> 10~45 중량%,

B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0.1~20 중량%,

BaO 40~65 중량%,

CaO 0.1~20 중량%,

SrO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상 0.1~15 중량%를 포함하는

실링 유리 조성물.

**【청구항 2】**

제 1항에 있어서,

상기 SiO<sub>2</sub>의 함량은 상기 BaO의 함량의 1/4 이상 3/4 이하인 것을 특징으로

하는

실링 유리 조성물.

**【청구항 3】**

제 1항에 있어서,

SrO 및 ZrO<sub>2</sub> 가운데 1종 이상이 5 중량% 이하인 것을 특징으로 하는

실링 유리 조성물.

**【청구항 4】**

제 1항에 있어서,

반구형 온도가 800 °C이하인 것을 특징으로 하는 실링 유리 조성물.

**【청구항 5】**

제1항 내지 제4항 가운데 어느 한 항에 기재된 실링 유리 조성물로 형성된 실링재를 포함하는 고체 산화물 연료전지.

**【청구항 6】**

제1항 내지 제4항 가운데 어느 한 항에 기재된 실링 유리 조성물을 800 °C 이하에서 열처리하는 공정을 포함하는 고체 산화물 연료전지의 실링 방법.

**【요약서】****【요약】**

본 발명은 실링재로 사용할 수 있는 유리 조성물 및 이를 이용한 고체산화물 연료전지에 관한 것이다.

본 발명에 따른 실링 유리 조성물은  $\text{SiO}_2$  10~45 중량%,  $\text{B}_2\text{O}_3$  0.1~20 중량%,  $\text{BaO}$  40~65 중량%,  $\text{CaO}$  0.1~20 중량%,  $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  및  $\text{ZrO}_2$  가운데 1종 이상 0.1~15 중량%를 포함하여, 종래의 실링재 유리 조성물과 달리 중저온에서 작동하는 고체산화물 연료전지에 적합하게 사용 가능하고 특히 장기간 사용 후에도 실링 접착강도의 저하가 최소화되는 우수한 효과가 있다.

**【대표도】**

도 1

【도면】

【도 1】

