

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2013 年 10 月 17 日(17.10.2013)



(10) 国際公開番号
WO 2013/154193 A1

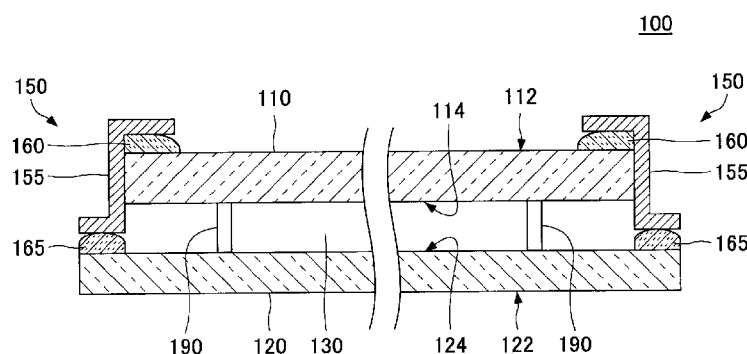
- (51) 国際特許分類:
C03C 27/06 (2006.01) C03C 27/04 (2006.01)
C03C 8/04 (2006.01) E06B 3/66 (2006.01)
C03C 8/08 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/061128
- (22) 国際出願日: 2013 年 4 月 12 日(12.04.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-092368 2012 年 4 月 13 日(13.04.2012) JP
- (71) 出願人: 旭硝子株式会社 (ASAHI GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目 5 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 松本 修治 (MATSUMOTO, Syuji); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目 5 番 1 号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 横山 みか (YOKOYAMA, Mika); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目 5 番 1 号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 伊東 忠重, 外(ITO H, Tadashige et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目 1 番 1 号 丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 16 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロパ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: VACUUM MULTILAYER GLASS, SEALING MEMBER, AND METHOD FOR MANUFACTURING VACUUM MULTILAYER GLASS

(54) 発明の名称: 真空複層ガラスおよびシール部材並びに真空複層ガラスの製造方法

[図1]



(57) Abstract: A vacuum multilayer glass configured by layering a first and second glass substrate with a gap therebetween, the gap being in a low pressure state less than the atmospheric pressure, characterized in that: said gap is sealed with a sealing member; said sealing member comprises a metal member and a vitrification layer for joining the metal member and the glass substrates; and said metal member is selected from among materials that satisfy the requirement $Y \geq 0.10X$ [wherein X represents tensile strength (N/mm^2) and Y represents breaking elongation (%)], when being maintained in the atmosphere at $490^\circ C$ for 40 minutes and then subjected to a room temperature tensile test at a tensile speed of 1 mm/min.

(57) 要約: 第1および第2のガラス基板が間隙部を介して積層され、該間隙部を大気圧未満の圧力状態にすることにより構成される真空複層ガラスであって、前記間隙部は、シール部材によって密閉され、前記シール部材は、金属部材と、該金属部材と前記ガラス基板とを接合するガラス固化層とを有し、前記金属部材は、大気中 $490^\circ C$ で40分間保持した後の室温引張試験 (引張速度: $1 mm/min$) において、引張強度 X (N/mm^2) と破断伸び Y (%) の間の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定されることを特徴とする真空複層ガラス。

WO 2013/154193 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

真空複層ガラスおよびシール部材並びに真空複層ガラスの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、真空複層ガラスおよびそのような真空複層ガラスに使用されるシール部材並びに真空複層ガラスの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 一对のガラス基板を間隙部を介して積層し、該間隙部を低圧または真空状態に保持して構成される、いわゆる「真空複層ガラス」は、優れた断熱効果を有するため、例えばビルおよび住宅等の建築物用の窓ガラス用途に広く利用されている。

[0003] 真空複層ガラスにおいては、間隙部を真空状態に保持するため、該間隙部の周囲に設置されるシール部材のシール性能が、真空複層ガラス全体の断熱性に大きな影響を及ぼす。シール部材のシール性が劣る場合、シール部材を介して、大気中の空気および／または水蒸気等の成分が間隙部に容易に侵入し、これにより間隙部の真空度が低下してしまうからである。このため、よりシール性に優れたシール部材の検討が進められている。

[0004] 特に、最近では、金属部材と非金属部材とで構成されるシール部材、いわゆる「ハイブリッドシール部材」が開発されている。例えば、特許文献1には、真空複層ガラスにおいて、金属部材と低融点セラミックフリットとを組み合わせた「ハイブリッドシール部材」を使用することが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：欧州特許第2099997号明細書

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 前述のように、特許文献1には、金属部材と低融点セラミックフリットと

を組み合わせた「ハイブリッドシール部材」が開示されている。

[0007] しかしながら、特許文献1のようなシール部材を実際に真空複層ガラスに適用しようとした場合、金属部材と低融点セラミックフリットとの間に、良好な結合力が必要となる。両者の間の結合力が低い場合、「ハイブリッドシール部材」が良好なシール性を発揮することができなくなるからである。

[0008] 特許文献1の「ハイブリッドシール部材」は、そのような結合力については全く考慮されておらず、このため、金属部材と低融点セラミックフリットの組み合わせの仕方によっては、適切な結合力が得られない場合が生じ得る。また、そのような組み合わせを選定した場合、良好なシール性を有する「ハイブリッドシール部材」を構成することができなくなる問題がある。

[0009] 本発明は、このような背景に鑑みなされたものであり、本発明では、金属部材とガラス固化層との間に良好な結合力を有する「ハイブリッドシール部材」を備える真空複層ガラスを提供することを目的とする。また、そのような「ハイブリッドシール部材」を提供することを目的とする。また、そのような「ハイブリッドシール部材」を備える真空複層ガラスの製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明では、第1および第2のガラス基板が間隙部を介して積層され、該間隙部を大気圧未満の圧力状態にすることにより構成される真空複層ガラスであって、

前記間隙部は、シール部材によって密閉され、

前記シール部材は、金属部材と、該金属部材と前記ガラス基板とを接合するガラス固化層とを有し、

前記金属部材は、大気中490℃で40分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度X（N/mm²）と破断伸びY（%）の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定されることを特徴とする真空複層ガラスが提供される。

[0011] ここで、本発明による真空複層ガラスにおいて、前記金属部材は、厚さが

0.03 mm～0.5 mmの範囲であっても良い。

[0012] また、本発明による真空複層ガラスにおいて、前記金属部材は、前記大気中490℃で40分間保持する前の室温引張試験（引張速度：1 mm/min）において、引張強度X（N/mm²）と破断伸びY（%）の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たさない材料から選定されても良い。

[0013] また、本発明による真空複層ガラスにおいて、前記金属部材は、純アルミニウム、アルミニウム合金、純チタン、およびチタン合金からなる群から選定された少なくとも一つを含んでも良い。

[0014] また、本発明による真空複層ガラスにおいて、前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、 $70 \times 10^{-7}/K$ 以上 $120 \times 10^{-7}/K$ 以下の範囲の熱膨張係数を有しても良い。

[0015] なお、本願において、熱膨張係数は、50℃～250℃の温度範囲における値である。

[0016] また、本発明による真空複層ガラスにおいて、前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、 $ZnO-Bi_2O_3-B_2O_3$ 系のガラスであっても良い。

[0017] この場合、前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、酸化物換算した場合、質量百分率で、下記の組成を有しても良い： Bi_2O_3 が70%～90%、 ZnO が5%～15%、 B_2O_3 が2%～8%、 Al_2O_3 が0.1%～5%、 SiO_2 が0.1%～2%、 CeO_2 が0.1%～5%、 Fe_2O_3 が0.01%～0.2%、および CuO が0.01%～5%。

[0018] あるいは、本発明による真空複層ガラスにおいて、前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、 $ZnO-SnO-P_2O_5$ 系のガラスであっても良い。

[0019] この場合、前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、酸化物換算した場合、質量百分率で、下記の組成を有しても良い： P_2O_5 が27%～35%、 SnO が25%～35%、 ZnO が25%～45%、 B_2O_3 が0%～5%、 Ga_2O_3 が0%～3%、 CaO が0%～10%、 SrO が0%～10%、 Al_2O_3 が0%～3%、 In_2O_3 が0%～3%、 La_2O_3 が0%～3%、および $Al_2O_3 + In_2O_3 + La_2O_3$ が0%～7%。

- [0020] また、本発明による真空複層ガラスにおいて、
前記金属部材は、第 1 の部分および第 2 の部分を有し、
前記金属部材の第 1 の部分は、前記第 1 のガラス基板に形成された第 1 のガラス固化層と結合され、
前記金属部材の第 2 の部分は、前記第 2 のガラス基板に形成された第 2 のガラス固化層と結合され、
これにより前記シール部材が形成されても良い。
- [0021] さらに、本発明では、第 1 および第 2 のガラス基板が間隙部を介して積層され、該間隙部を大気圧未満の圧力状態にすることにより構成される真空複層ガラス用のシール部材であって、
前記間隙部は、当該シール部材によって密閉され、
当該シール部材は、金属部材と、該金属部材と前記ガラス基板とを接合するガラス固化層とを有し、
前記金属部材は、大気中 490℃で 40 分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1 mm/min）において、引張強度 X (N/mm^2) と破断伸び Y (%) の間の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定されることを特徴とするシール部材が提供される。
- [0022] さらに、本発明では、第 1 および第 2 のガラス基板が間隙部を介して積層され、該間隙部を大気圧未満の圧力状態にすることにより構成される真空複層ガラスの製造方法であって、
前記第 1 のガラス基板に第 1 のガラス固化層を形成し、前記第 2 のガラス基板に第 2 のガラス固化層を形成するステップと、
大気中 490℃で 40 分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1 mm/min）において、引張強度 X (N/mm^2) と破断伸び Y (%) の間の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定される金属部材を、前記第 1 および前記第 2 のガラス固化層に接触させるように、前記第 1 および第 2 のガラス基板と該金属部材とを組み合わせることで前記間隙部を形成させた組立体を構成するステップと、

前記組立体の少なくとも第 1 および第 2 のガラス固化層を加熱して前記第 1 および第 2 のガラス固化層と前記金属部材とを結合させるステップと、
前記間隙部を減圧処理するステップと、
を有することを特徴とする真空複層ガラスの製造方法が提供される。

[0023] また、本発明による真空複層ガラスの製造方法において、前記組立体の少なくとも第 1 および第 2 のガラス固化層を加熱させるステップは、470℃～530℃の温度で、1分～1時間保持した後、室温まで冷却されても良い。

発明の効果

[0024] 本発明では、金属部材とガラス固化層との間に良好な結合力を有する「ハイブリッドシール部材」を備える真空複層ガラスを提供することができる。
また、そのような「ハイブリッドシール部材」を提供することが可能となる。
また、そのような「ハイブリッドシール部材」を備える真空複層ガラスの製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0025] [図1]本発明による真空複層ガラスの構成の一例を概略的に示した図である。
[図2]金属部材とガラス固化層とを加熱処理によって結合して、ガラス基板にハイブリッドシール部材を形成する際に生じ得る問題を模式的に示した図である。
[図3]本発明による真空複層ガラスの製造方法の一例のフロー図を模式的に示した図である。
[図4]実施例 1 におけるサンプル 1～17 の各金属材料の引張試験において得られた引張強度と破断伸びの関係をプロットしたグラフである。
[図5]実施例 2 において使用した評価用試験片の平面図を概略的に示した図である。
[図6]結合力評価試験に使用した試験装置の構成を概略的に示した図である。
[図7]No. 1 の評価用試験片における結合力評価試験の際の変位 (mm) と荷重 (N) の関係を示したグラフである。

[図8] N o. 4 の評価用試験片における結合力評価試験の際の変位 (mm) と荷重 (N) の関係を示したグラフである。

発明を実施するための形態

[0026] 以下、図面を参照して、本発明の構成を説明する。

[0027] 図 1 には、本発明による真空複層ガラスの構成の一例を概略的に示す。

[0028] 図 1 に示すように、本発明による真空複層ガラス 100 は、第 1 のガラス基板 110 と、第 2 のガラス基板 120 と、両者の間に構成された間隙部 130 と、間隙部を密閉状態に保持するシール部材 150 とを有する。

[0029] 第 1 のガラス基板 110 は、第 1 の表面 112 および第 2 の表面 114 を有する。真空複層ガラス 100 において、第 1 のガラス基板 110 は、第 1 の表面 112 の側が外側となるようにして配置される。同様に、第 2 のガラス基板 120 は、第 1 の表面 122 および第 2 の表面 124 を有する。真空複層ガラス 100 において、第 2 のガラス基板 120 は、第 1 の表面 122 の側が外側となるようにして配置される。従って、間隙部 130 は、第 1 のガラス基板 110 の第 2 の表面 114 と、第 2 のガラス基板 120 の第 2 の表面 124 との間に形成される。

[0030] 通常の場合、間隙部 130 内は、真空状態に維持される。ここで、間隙部 130 の真空度は、特に限られず、大気圧よりも低いかなる圧力であっても良い。一般に、間隙部 130 の圧力は、 $0.001\text{ Pa} \sim 0.2\text{ Pa}$ 程度である。

[0031] なお、間隙部 130 内には、アルゴンなどの不活性ガスが、大気圧未満の圧力で充填されても良い。すなわち、本願において、「真空複層ガラス」は、間隙部内の圧力が必ずしも真空状態になっている必要はなく、「真空複層ガラス」という用語は、間隙部内の圧力が大気圧未満となっている全ての複層ガラスを意味するものとする。

[0032] 必要な場合、真空複層ガラス 100 は、間隙部 130 内に、1 または 2 以上のスペーサ 190 を有しても良い。スペーサ 190 は、間隙部 130 を所望の形状に保持する役割を有する。ただし、スペーサ 190 がなくても、間

隙部 130 を所望の形状に維持することができる場合、例えば、間隙部 130 の真空度が低い場合、または間隙部 130 に不活性ガスなどがある程度の圧力で充填される場合には、スペーサ 190 は、省略しても良い。

[0033] シール部材 150 は、間隙部 130 を密閉状態に保持するための部材であり、図 1 の例では、シール部材 150 は、間隙部 130 の周囲全体にわたって設置されている。

[0034] シール部材 150 は、金属部材 155 と、第 1 および第 2 のガラス固化層 160、165 とを含む、いわゆる「ハイブリッドシール部材」である。後に詳しく説明するように、ガラス固化層 160、165 は、ガラスフリットを含むペーストやガラスバルク体（例えばガラスファイバーやガラスリボン等）を熱処理することにより形成された層であり、ガラス成分を含む。

[0035] ここで、前述の特許文献 1 には、真空複層ガラス用のシール部材として、金属部材と低融点セラミックフリットとを組み合わせた「ハイブリッドシール部材」が開示されている。ただし、特許文献 1 では、金属部材と低融点セラミックフリットとの間の結合力については、全く考慮されていない。

[0036] しかしながら、実際に、真空複層ガラスに「ハイブリッドシール部材」を適用することを検討した場合、金属部材と低融点セラミックフリットとの間の結合力は、極めて重要な因子となる。特に、金属部材と低融点セラミックフリットの組み合わせの仕方によっては、両者の間に適切な結合力が得られず、「ハイブリッドシール部材」を真空複層ガラスのシール部材として採用することができなくなるおそれがある。

[0037] 例えば、特許文献 1 には、「ハイブリッドシール部材」用の金属として、金属クロムおよびステンレス鋼が例示されている。しかしながら、一般に、金属クロムは、構造部材の一部として適用されることはほとんどない。また、本願発明者らの検討では、以降に詳しく説明するように、「ハイブリッドシール部材」用の金属として、ステンレス鋼を使用した場合、金属部材と低融点セラミックフリットとは、ほとんど結合しないことが見出されている。

[0038] このように、真空複層ガラスへの「ハイブリッドシール部材」の適用を考

慮した場合、金属部材と低融点セラミックフリットとの間の結合力は、極めて重要である。

[0039] これに対して、本発明では、「ハイブリッドシール部材」の金属部材は、大気中490℃で40分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度X（N/mm²）と破断伸びY（%）の間の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定されるという特徴を有する。

[0040] なお、金属部材の前述の熱処理条件は、後に詳しく示すように、「ハイブリッドシール部材」を形成するときの典型的な熱処理条件に対応する。

[0041] 次に、図2を参照して、このような本発明の特徴の効果について説明する。

[0042] 図2は、金属部材とガラス固化層とを熱処理によって結合して、ガラス基板にハイブリッドシール部材を形成する際の各工程を模式的に示した図である。

[0043] ハイブリッドシール部材を形成する場合、まず、図2（a）に示すように、金属部材210とガラス基板250とが準備される。また、金属部材210が、ガラス基板250の少なくとも一部と重なり合うようにして、ガラス基板250の上部に配置される。これにより、組立体260が構成される。

[0044] なお、図2（a）からは視認されにくいだが、ガラス基板250の表面の一部には、ガラス固化層270が予め設置されている。このガラス固化層270は、ガラス基板250の上部に配置される金属部材210によって覆われる。

[0045] 次に、図2（b）に示すように、加熱処理のため、組立体260が高温に保持される。加熱処理は、ガラス固化層270を介して金属部材210をガラス基板250に結合させるために実施される。通常の場合、加熱処理の温度は、430℃～530℃の範囲（例えば490℃）である。

[0046] この加熱により、ガラス固化層270は、流動性を有するようになる。また、金属部材210は、流動性のガラス固化層270を介してガラス基板250と仮結合される。

- [0047] ここで、通常、金属とガラスでは、熱膨張係数が大きく異なる。このため、特に、図のY方向で見た場合、組立体260を加熱すると、金属部材210は、伸びて比較的大きな変形を示すが、ガラス基板250は、あまり大きな伸びは示さない。
- [0048] その後、図2(c)に示すように、組立体260の温度は、加熱処理温度から低下し始める。これに伴い、ガラス固化層270の流動性が低下し始め、ガラス固化層270が硬化する。これにより、金属部材210がガラス固化層270を介してガラス基板250と結合して、ハイブリッドシール部材が形成される。
- [0049] その後、組立体260の温度がさらに低下する。この際、図2(c)に示すように、金属部材210は、既にガラス固化層270と結合されているため、降温が進んでも、Y方向において、自由に収縮することはできない。すなわち、金属部材210のガラス固化層270と結合されている箇所は、ガラス固化層270によって拘束されており、降温が進んでも、ガラス基板250の収缩量と同等程度にしか変形することができなくなる。
- [0050] ここで、金属部材210が十分な変形許容性を有する場合、すなわち、金属部材210が比較的良好な伸び特性（弾性）を有する場合、そのような金属部材210は、ガラス固化層270によって拘束されたままでも、ガラス基板250の収縮挙動に追随することができる。このため、組立体260が室温まで冷却された際には、図2(d)の上図に示すように、金属部材210とガラス固化層270との間に、良好な結合が得られる。その結果、シール性の良好なハイブリッドシール部材が形成される。
- [0051] 一方、金属部材210が十分な変形許容性を有さない場合、すなわち、金属部材210があまり良好な伸び特性（弾性）を有さない場合、そのような金属部材210は、特にガラス固化層270によって拘束されている箇所において、ガラス基板250の小さな収縮挙動に追随することができない。このため、組立体260が室温まで冷却された際には、図2(d)の下図に示すように、金属部材210は、ガラス固化層270から分離してしまい、金

属部材 210 とガラス固化層 270 との間に、結合が得られなくなる。その結果、ハイブリッドシール部材が得られなくなる。

[0052] このように、金属部材 210 の伸び特性は、金属部材 210 とガラス固化層 270 との結合性を左右する大きな因子となり得る。

[0053] 本願発明者らは、このような考察に基づき、金属部材とガラス固化層の最適な組み合わせについて鋭意研究開発を行ってきた。その結果、金属部材を、大気中 490℃ で 40 分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1 mm / min）において、引張強度 X (N / mm²) と破断伸び Y (%) の間の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定した場合、金属部材に十分な変形許容性が得られ、加熱処理後に、金属部材とガラス固化層の間に、前述の図 2 (d) の上側の図のような結合が得られることを見出した（以下、そのような材料選定条件を、単に「条件 A」と称することにする）。

[0054] すなわち、本発明では、「ハイブリッドシール部材」の金属部材として、前述の条件 A を満たす材料を選定しており、これにより金属部材とガラス固化層との間に、良好な結合性を得ることができる。

[0055] 従って、本発明では、加熱処理を実施した後であっても、金属部材 155 とガラス固化層 250 との間に、良好な結合力を得ることが可能となり、真空複層ガラスに好適に適用することが可能な「ハイブリッドシール部材」を得ることができる。

[0056] （シール部材の構成）

次に、シール部材 150 の構成について、より詳しく説明する。

[0057] シール部材 150 は、金属部材 155 と、第 1 および第 2 のガラス固化層 160、165 とを有する。

[0058] 金属部材 155 は、前述のように、大気中 490℃ で 40 分間保持した後の室温引張試験が、条件 A を満たす材料から選定される。

[0059] ガラス固化層 160、165 は、ガラスフリットを含むペーストやガラスバルク体（例えばガラスファイバーやガラスリボン等）を焼成することにより形成される。ガラス固化層 160、165 は、ガラス成分を含むが、さら

にセラミック粒子を含んでも良い。

[0060] なお、第1のガラス固化層160と第2のガラス固化層165は、同じものであっても、異なるもので構成されても良い。

[0061] ガラス固化層160、165の50℃～250℃での熱膨張係数は、例えば、 $70 \times 10^{-7} / \text{K} \sim 120 \times 10^{-7} / \text{K}$ の範囲であっても良い。熱膨張係数をこの範囲にすることにより、ガラス固化層とガラス基板との熱膨張係数の差は小さくなり、ガラス固化層とガラス基板の界面での剥離が発生し難くなる。本発明においては、金属部材とガラス固化層との熱膨張係数の差が大きても、ガラス固化層と金属部材との結合力が強いシール部材を提供できるので、ガラス固化層とガラス基板との熱膨張係数の差を小さくすることが好ましい。

[0062] ガラス固化層160、165に含まれるガラス成分の組成は、特に限られない。ガラス固化層160、165に含まれるガラス成分は、例えば、 $\text{ZnO}-\text{Bi}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 系または $\text{ZnO}-\text{SnO}-\text{P}_2\text{O}_5$ 系のガラスであっても良い。

[0063] 表1には、ガラス固化層160、165に含まれるガラス成分に使用され得る、 $\text{ZnO}-\text{Bi}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3$ 系のガラスの組成の一例を示す。また、表2には、ガラス固化層160、165に含まれるガラス成分に使用され得る、 $\text{ZnO}-\text{SnO}-\text{P}_2\text{O}_5$ 系のガラスの組成の一例を示す。

[0064]

[表1]

組成	含有量(mass%)
Bi_2O_3	70~90
ZnO	5~15
B_2O_3	2~8
Al_2O_3	0.1~5
SiO_2	0.1~2
CeO_2	0.1~5
Fe_2O_3	0.01~0.2
CuO	0.01~5

[0065]

[表2]

組成	含有量(mass%)
P_2O_5	27～35
SnO	25～35
ZnO	25～45
B_2O_3	0～5
Ga_2O_3	0～3
CaO	0～10
SrO	0～10
Al_2O_3	0～3
In_2O_3	0～3
La_2O_3	0～3
$Al_2O_3+In_2O_3 +La_2O_3$	0～7

なお、図1の例では、シール部材150は、金属部材155と、第1のガラス固化層160および第2のガラス固化層165とを有する。また、金属部材155は、略「Z字」状の形態を有する。すなわち、金属部材155は、略「Z字」状の一端が第1のガラス基板110に形成された第1のガラス固化層160と結合され、略「Z字」状の他端が、第2のガラス基板120に形成された第2のガラス固化層165と結合されている。

[0066] しかしながら、これは一例であって、シール部材150は、その他の構成を有しても良い。例えば、第1のガラス固化層160は、第1のガラス基板110の第2の表面114の側に、第2のガラス固化層165と対向するよ

うに形成され、金属部材は、断面形状がU字型を有し、両者の間に配置されても良い。

[0067] また、金属部材は、断面形状がU字型ではなく、板状または箔状であっても良い。例えば、金属部材は、金属板を真空複層ガラスの周縁に沿った額縁状に打ち抜いて形成されても良い。この場合、第1のガラス基板110の第2の表面114側に第1のガラス固化層160を設け、第2のガラス基板120の第2の表面124側に、平面視で第1のガラス固化層160と互いに重ならない位置に第2のガラス固化層165を設ける。金属部材は、第1および第2のガラス固化層160、165の間に配置され、ガラス固化層とともに加熱されることで、第1のガラス基板110の第2の表面114側と結合され、第2のガラス基板120の第2の表面124と結合される。

[0068] また、金属部材は、箔または板状であり、0.03mm～0.5mmの範囲の厚さを有しても良い。金属部材の厚さが0.03mm以上であると、製造時に破断したり、ピンホールが発生したりする可能性が低くなる。また、金属部材の厚さが0.5mm以下であると、金属部材の変形許容性が充分であるため、金属部材がガラス基板の収縮挙動に追従でき、ガラス固化層と良好な結合力が得られる。より好ましい金属部材の厚さは、0.04mm～0.3mmであり、さらに好ましくは、0.05～0.2mmである。

[0069] シール部材の態様として、その他にも、様々な形態を採用し得ることは当業者には明らかである。

[0070] (本発明による真空複層ガラスの製造方法)

次に、図3を参照して、本発明による真空複層ガラスの製造方法の一例について説明する。なお、以下の記載では、図1に示したような構成の真空複層ガラス100を例として、真空複層ガラスの製造方法について説明する。

[0071] 図3には、本発明による真空複層ガラスの製造方法の一例のフロー図を示す。

[0072] 図3に示すように、本発明による真空複層ガラスの製造方法は、
(a) 第1のガラス基板に第1のガラス固化層を形成し、第2のガラス基板

に第2のガラス固化層を形成するステップ（ステップS 1 1 0）と、

（b）第1および第2のガラス基板と、金属部材とを組み合わせた組立体を構成するステップ（ステップS 1 2 0）と、

（c）組立体の少なくとも第1および第2のガラス固化層を加熱して、真空複層ガラスを構成する（ステップS 1 3 0）と、

を有する。

[0073] 以下、各ステップについて詳しく説明する。

[0074] （ステップS 1 1 0）

まず、第1および第2のガラス基板1 1 0、1 2 0が準備される。

[0075] また、第1のガラス基板1 1 0に、第1のガラス固化層1 6 0が形成され、第2のガラス基板1 2 0に、第2のガラス固化層1 6 5が形成される。以下、一例として、第1のガラス基板1 1 0の第1の表面1 1 2の周囲に、第1のガラス固化層1 6 0を形成する場合について説明する。

[0076] まず、第1のガラス固化層1 6 0用のペーストが調製される。通常、ペーストは、ガラスフリット、セラミック粒子、およびビヒクル（有機バインダおよび有機溶媒）を含む。ただし、セラミック粒子は、省略しても良い。ガラスフリットは、最終的に、第1のガラス固化層1 6 0を構成するガラス成分となる。

[0077] 調製されたペーストは、第1のガラス基板1 1 0の第1の表面1 1 2の周囲に塗布される。

[0078] 次に、ペーストを含む第1のガラス基板1 1 0が乾燥処理される。乾燥処理の条件は、ペースト中の有機溶媒が除去される条件である限り、特に限られない。乾燥処理は、例えば、第1のガラス基板1 1 0を、1 0 0℃～2 0 0℃の温度に、1分～1時間程度保持することにより実施されても良い。

[0079] 次に、ペーストを仮焼成するため、第1のガラス基板1 1 0が高温で熱処理される。熱処理の条件は、ペースト中に含まれる有機バインダが除去される条件である限り、特に限られない。熱処理は、例えば4 3 0℃～4 7 0℃の温度範囲に、第1のガラス基板1 1 0を1分～1時間程度保持することにより実施されても良い。

より実施しても良い。これにより、ペーストが仮焼成され、第1のガラス固化層160が形成される。

[0080] 同様に、第2のガラス基板120の第2の表面124の周囲に、第2のガラス固化層165が形成される。

[0081] (ステップS120)

次に、第1および第2のガラス基板110、120と、金属部材155とを組み合わせて、組立体が構成される。この際には、必要に応じて、第1のガラス基板110と第2のガラス基板120の間に、1または2以上のスペーサ190を配置しても良い。

[0082] 金属部材155は、例えば、板状または箔状に形成される。また、金属部材155は、略「Z字」状の形態を有しても良い。例えば、金属部材155は、第1および第2の端部を有し、両方の端部は、相互に反対向きに折り曲げられていても良い。その場合、金属部材155は、例えば、金属部材155の第1の端部が第1のガラス固化層160と接触し、第2の端部が第2のガラス固化層165と接触するようにして、第1および第2のガラス基板110、120に対して配置されても良い。

[0083] なお、前述のように、金属部材155は、「条件A」すなわち大気中490℃で40分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度 X （N/mm²）と破断伸び Y （%）の間の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定されることに留意する必要がある。

[0084] そのような「条件A」を満たす金属材料としては、例えば、純アルミニウム、アルミニウム合金、純チタン、およびチタン合金等が挙げられる。ここで純アルミニウムとは、99%以上のアルミニウム純度のものをいい、99%未満のアルミニウム純度のものをアルミニウム合金という。その他の金属材料においても、純度が99%以上のものを「純」とし、99%未満のものを「合金」とする。

[0085] ただし、金属部材155は、この組み立ての段階（すなわちステップS120の段階）では、逆に「条件A」を満たさない材料から選定されることが

好ましい場合がある。

[0086] これは、一般に、条件Aを満たす材料は、比較的柔らかいものが多いためである。すなわち、そのような柔らかい金属部材155を、例えば、箔などの態様で使用した場合、金属部材155のハンドリング性が悪くなってしまう。換言すれば、金属部材155を用いて組立体を構成する際には、金属部材155が「条件A」を満たさず、ある程度の剛性を有する方が、ハンドリング性が高まる場合がある。

[0087] すなわち、金属部材155は、ガラス固化層との間で結合を形成させ、シール部材として機能させる加熱処理（ステップS130）の後に、条件Aを満たしていれば良い。

[0088] そのような材料の一例としては、純アルミニウムおよびアルミニウム合金が挙げられる。純アルミニウムおよびアルミニウム合金の中には、焼きなまし温度が約490℃程度の金属材料があるからである。そのような金属材料は、組立体を構成するハンドリングの際には、ある程度の剛性を有する（すなわち条件Aを満たさない）状態で使用することができる。その後、そのような金属材料は、加熱処理の途中段階で焼きなましが起こり、加熱処理後の状態で、条件Aを満たし、ガラス固化層160、165との間で良好な結合を示すようになる。

[0089] （ステップS130）

次に、組立体の少なくともガラス固化層160、165が加熱される。加熱の条件は、金属部材155とガラス固化層160、165の組み合わせ等によっても変化するが、例えば、約470℃～約530℃（例えば490℃）の温度に、組立体を1分～1時間ほど（例えば40分）保持した後、室温まで冷却を実施しても良い。組立体の加熱においては、ガラス固化層中に結合力を低下せしめる結晶相の生成を抑えることが重要であり、高温、長時間の保持によって結晶相が析出することになる。そのため、より好ましい温度範囲は、470℃～520℃、さらに好ましくは470℃～500℃であり、より好ましい保持時間は、1分～45分、さらに好ましくは1分～30分

である。

[0090] 前述のように、金属部材 155 は、「条件 A」を満たす材料から選定されている。このため、組立体の加熱処理および冷却の際に、金属部材 155 が、ガラス固化層 160、165 の変形挙動に対応できずに、ガラス固化層 160、165 から分離してしまうことが有意に抑制される。従って、組立体の加熱処理によって、金属部材 155 とガラス固化層 160、165 との間には、良好な結合が得られる。組立体の加熱処理後に、第 1 および第 2 のガラス基板 110、120 の間に、シール部材 150 で蔽われた間隙部 130 が形成される。

[0091] その後、第 1 および／または第 2 のガラス基板に予め設けられている開口を利用して、間隙部 130 内が減圧処理される。例えば、間隙部 130 内のガスが不活性ガスで置換され、あるいは間隙部 130 が減圧処理される。さらに、減圧処理に利用された開口が封止される。これにより、真空複層ガラス 100 が製造される。

[0092] 組立体を加熱する時は、真空雰囲気中で行ってもよい。開口を設けることなく、加熱すれば、そのまま間隙部 130 内が真空中で保持されることになり、加熱後の減圧処理を省くことができる。また、組立体を加熱する方法として、全体を加熱する方法以外にガラス固化層を焼成する局所的加熱方法（赤外線加熱、電磁誘導加熱、レーザー照射、等）を用いて実施しても良い。

実施例

[0093] 以下、本発明の実施例について説明する。

[0094] （実施例 1）

（結合性評価試験）

各種金属部材とガラス固化層の組み合わせについて、両者の結合性を、以下の方法により評価した。

[0095] まず、純アルミニウム、アルミニウム合金、純ニッケル、ステンレス鋼、純チタン、鉄ニッケルコバルト合金（コバル）、および銅ニッケル合金（キュプロニッケル）からなる各種金属板を準備した。準備した金属板（サン

プル 1 ～ 1 7) の材質、厚さおよびビッカース硬度を、表 3 にまとめて示す。
。なお、各種金属部材の表示は、ミルシート（鋼材検査証明書）の記載に従った。

[0096]

[表3]

No	金属材料	厚さ (mm)	ビッカース 硬度 (Hv)	結合性 評価	引張試験結果	
					引張強度 (N/mm ²)	破断伸び (%)
1	アルミニウム合金 A3003-H18	0.1	71	○	105	19.4
2	アルミニウム合金 A5052-O	0.15	52.1	×	200	16.5
3	純アルミニウム A1050-H24	0.2	40.8	○	83	17.2
4	純アルミニウム A1050P-O	0.1	20.4	○	69	16.8
5	純アルミニウム A1N30-O	0.1	21.6	○	72	17.7
6	純アルミニウム A1N30-H18	0.1	49.6	○	78	11.1
7	純アルミニウム A1N30-O	0.15	21.4	○	71	24.4
8	純アルミニウム A1N30-H18	0.15	49	○	82	24.6
9	純アルミニウム A1050P-O	0.2	21.7	○	87	14.4
10	純ニッケル Ni-BA	0.1	73.2	×	338	20.6
11	純ニッケル VNiR-H	0.1	228.7	×	662	1.8
12	ステンレス鋼 SUS304-H	0.1	370.6	×	1244	1.5
13	ステンレス鋼 SUS304-O	0.1	198.8	×	738	38.5
14	純チタン TR270C-H	0.1	221.5	×	508	23.3
15	純チタン TR270C-O	0.1	140.7	○	320	35.5
16	コパール Kov-BA	0.1	155.1	×	508	17.8
17	キュプロニッケルH材 Cu70/Ni30	0.1	209.2	×	663	5.4

次に、以下の方法で、ガラス固化層を有するガラス基板作製した。

[0097] 縦50mm×横230mm×厚さ2.8mmのガラス基板（旭硝子製ソーダライムガラス）を準備した。このガラス基板の表面の一つの端部に、以下の方法によりガラス固化層を形成した。

[0098] まず、ガラスフリット、セラミック粉末、およびビヒクル（有機バインダおよび有機溶媒）を含むペーストを調製した。ガラスフリットには、表4に示す $ZnO-Bi_2O_3-B_2O_3$ 系の組成のものを使用した。なお、このガラスフリットの熱膨張係数は、約 $105 \times 10^{-7}/K$ である。また、セラミック粉末としてコーディエライト、ビヒクルとしてエチルセルロース、プロピレングリコールジアセテート（1,2-ジアセトキシプロパン）、ターピネオールの混合物を使用した。

[0099] [表4]

組成	含有量(mass%)
Bi_2O_3	81.4
ZnO	10.5
B_2O_3	6.0
Al_2O_3	0.9
SiO_2	0.7
CeO_2	0.2
Fe_2O_3	0.1
CuO	0.2

次に、このペーストをガラス基板の一方の表面の一端部（約230mm×

約 15 mm の領域) に塗布した。ペーストの乾燥後、ガラス基板を、380℃で30分間熱処理し、ペーストを仮焼成した。これにより、ガラス基板のペーストを塗布した位置に、ガラス固化層が形成された。

[0100] 次に、ガラス基板上に、前述のサンプル1～17のいずれかの金属板を配置し、組立体を得た。金属板は、ガラス固化層の部分が完全に覆われるようにして、ガラス基板上に配置された。

[0101] 次に、得られた組立体を490℃で40分間保持した後、室温まで冷却した。その後、金属板とガラス固化層が結合しているかどうかを評価した。評価は、金属板とガラス固化層とが接着した状態になっているか剥離する状態になっているかで実施された。

[0102] 各サンプル1～17において得られた結果を、前述の表3の「結合性評価」の欄にまとめて示す。なお、結合性評価結果において、「○」は、その金属材料がガラス固化層と結合したことを示しており、「×」は、その金属材料がガラス固化層と結合しなかったことを示している。

[0103] 結合性評価試験の結果から、純ニッケル、ステンレス鋼、コバルト、およびキュプロニッケルは、ガラス固化層との間で良好な結合を形成しないことがわかった。

[0104] これに対して、純アルミニウム、純アルミニウム以外のアルミニウム合金および純チタンは、概して、ガラス固化層と結合する傾向にあることがわかった。ただし、アルミニウム合金の中でも、A5052-O(2.5%Mg)は、ガラス固化層との間で良好な結合を形成しないことがわかった。また、純チタンの中でもTR270C-H(硬質チタン)は、ガラス固化層との間で良好な結合を形成しないことがわかった。

[0105] このように、結合性評価試験の結果から、金属部材とガラス固化層の組み合わせの仕方によっては、両者の間に適切な結合力が得られない場合があることが確認された。

[0106] (室温引張試験)

次に、前述の表1に示した各金属材料の板材を用いて、室温で引張試験を

行った。

- [0107] 引張試験は、各金属材料の板材を長方形（縦50mm×横10mm）に切り出して試験片とし、試験片の長手方向の両端を引張試験機に固定して実施された。試験片の両端のチャック間距離を20mmとし、引張速度を1mm/minとして、各金属材料の引張強度および破断伸びが測定された。各試験片の板厚は表3に示すとおりであった。また、試験時の雰囲気温度は、常温であった。
- [0108] なお、引張試験に供する前に、サンプル1～17の各金属材料は、以下の条件で熱処理した：昇温速度10℃/分で490℃まで加熱後、40分間保持し、その後10℃/分で室温まで冷却。これは、実際に金属部材がシール部材の一部として適用される際の熱履歴を模擬するためである。
- [0109] 引張試験によって得られたサンプル1～17の各金属材料の引張強度および破断伸びの値を、前述の表3の「引張試験結果」の欄にまとめて示す。引張強度は、試験片が破断した際の荷重（N）を試験片の断面積（mm²）で除して求めた。破断伸びは、試験片の任意の2点間の距離における引張試験前後の伸び率（%）とした。この引張試験結果から、前述の結合性評価試験において、ガラス固化層と結合した金属材料は、引張強度の値に相対して比較的破断伸びが大きい傾向にあり、すなわち比較的延性のある材料であることがわかった。
- [0110] 図4には、サンプル1～17の各金属材料の引張試験において得られた引張強度と破断伸びの関係をプロットしたグラフを示す。なおプロットのシンボルが「○」のものは、前述の結合性評価試験において、ガラス固化層と結合したサンプルの値を示しており、プロットのシンボルが「×」のものは、結合性評価試験において、ガラス固化層と結合しなかったサンプルの値を示している。
- [0111] 図4から、「○」のプロットと「×」のプロットは、明確に区別することができる。すなわち、金属材料の引張強度をX（N/mm²）とし、破断伸びをY（%）としたとき、「○」のプロットと「×」のプロット

の境界は、 $Y = 0.10X$ で表すことができる。

[0112] このように、図4のようなプロットを利用することにより、その金属材料がガラス固化層と結合する傾向にあるかどうかを評価することができる。すなわち、大気中490℃で40分間保持した金属材料の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度 X （N/mm²）と破断伸び Y （%）の間の関係をプロットし、そのプロットが $Y \geq 0.10X$ を満たすかどうかを判断すること（前述の「条件A」）により、その金属材料がガラス固化層と結合する傾向にあるかどうかを評価することができる。

[0113] ここで、ある種の純アルミニウムおよびアルミニウム合金は、約490℃前後の温度域に焼きなまし温度を有する。このような純アルミニウムおよびアルミニウム合金は、大気中490℃で40分間保持する熱処理によって初めて、前述のような「条件A」を満たすようになる。換言すれば、そのような熱処理を実施するまでは、「条件A」を満たさない。

[0114] このような純アルミニウムおよびアルミニウム合金は、シール部材用の金属部材として特に好ましい。そのような純アルミニウムおよびアルミニウム合金を使用した場合、金属部材とガラス基板を加熱して「ハイブリッドシール部材」を有する真空複層ガラスを製造する前の段階、すなわち組立体を組み立てる段階において、金属部材のハンドリング性が有意に高まるからである。

[0115] 前述のように、一般に、「条件A」を満たす材料は、比較的柔らかいという特徴を有する。そのような柔らかい金属部材を使用した場合、金属部材のハンドリング性が悪くなってしまう。しかしながら、約490℃前後の温度域に焼きなまし温度を有するアルミニウム合金の場合、組立体を構成するハンドリングの際には、ある程度の剛性を有する状態で使用され、加熱処理後に、「条件A」を満たすようにすることができる。

[0116] 加熱処理前は「条件A」を満たさず加熱処理後に「条件A」を満たすような純アルミニウムおよびアルミニウム合金の一例は、表3のサンプル1のA3003-H18、サンプル3のA1050-H24、ならびにサンプル6

およびサンプル 8 の A 1 N 3 0 - H 1 8 である。

[0117] 表 5 には、これらの純アルミニウムおよびアルミニウム合金の熱処理前後の引張試験結果をまとめて示す。引張試験の条件は、前述の条件と同じである。

[0118] [表 5]

No	金属材料	厚さ (mm)	490℃、40分間の 熱処理の有無	ビッカース 硬度 (Hv)	引張試験結果	
					引張強度 (N/mm ²)	破断伸び (%)
1	アルミニウム合金 A3003-H18	0.1	熱処理なし	71	231	0.7
			熱処理あり	—	105	19.4
3	純アルミニウム A1050-H24	0.2	熱処理なし	40.8	125	1.7
			熱処理あり	—	83	17.2
6	純アルミニウム A1N30-H18	0.1	熱処理なし	49.6	173	9.1
			熱処理あり	—	78	11.1
8	純アルミニウム A1N30-H18	0.15	熱処理なし	49	162	0.5
			熱処理あり	—	82	24.6

この表 5 から、サンプル 1、サンプル 3、サンプル 6、およびサンプル 8 のアルミニウム合金は、490℃、40分間の熱処理によって、初めて「条件 A」を満たすようになることがわかる。

[0119] (実施例 2)

次に、前述の結合性評価試験において、「○」の結果が得られた金属材料サンプル、すなわちガラス固化層と結合した金属材料サンプルを用いて、以

下の方法により、ガラス固化層との間の結合力を定量的に評価した。

[0120] (試験片の作製)

以下の方法で、評価用試験片を作製した。

[0121] まず、前述の実施例 1 と同様の方法により、ガラス固化層を有するガラス基板を作製した。ただし、ガラス基板の寸法は、縦 9 mm×横 50 mm×厚さ 2.8 mm とした。ガラス固化層 520 のおよその寸法は、縦 5 mm×横 5 mm であった。

[0122] 次に、3種類の金属部材を準備した。第 1 の金属部材は、純アルミニウム A1050-H24 とし、厚さは 0.2 mm とした。第 2 の金属部材は、純アルミニウム A1N30-H18 とし、厚さは 0.1 mm とした。第 3 の金属部材は、純アルミニウム A1N30-H18 とし、厚さは 0.15 mm とした。金属部材の寸法は、縦 50 mm×横 10 mm とした。

[0123] 次に、ガラス基板と金属部材とを、ガラス固化層の部分で重なるようにして熱処理した。これにより、金属部材がガラス固化層を介して、ガラス基板と結合され、評価用試験片 (No. 1～No. 3) が作製された。熱処理条件は、大気下、490℃で40分間とした。

[0124] 図 5 には、得られた評価用試験片の平面図を示す。図 5 に示すように、評価用試験片 500 は、ガラス基板 510 および金属部材 530 を有し、金属部材 530 の一端がガラス基板 510 上に形成されたガラス固化層 520 と重なるように配置して作製された。

[0125] No. 1～No. 3 の各評価用試験片の仕様を、まとめて表 6 に示した。

[0126]

[表6]

No	金属部材		結合力評価試験結果	
	材料	厚さ (mm)	破断モード	破断時の荷重 (N)
1	純アルミニウム A1050-H24	0.2	金属部材の破断	134
2	純アルミニウム A1N30-H18	0.1	金属部材の破断	70
3	純アルミニウム A1N30-H18	0.15	金属部材の破断	104

(結合力評価試験)

次に、No. 1～No. 3の各評価用試験片を用いて、結合力評価試験を実施した。

[0127] 結合力評価試験は、室温で、各評価用試験片を破断するまで引っ張ることにより行った。

[0128] 図6には、試験装置の概要を示す。

[0129] 試験装置600は、評価用試験片500を保持する治具610と、評価用試験片500を上方に引っ張るためのホルダー630とを備える。

[0130] 試験の際には、両面接着テープを用いて、評価用試験片500のガラス基板510の側を治具610の側面615に貼り付けた。また、評価用試験片500の金属部材530の先端（ガラス固化層520と結合されていない側の端部）を、ホルダー630に取り付けた。さらに、評価用試験片500の金属部材530の所定の位置に、歪みゲージ（図示されていない）を取り付けた。

- [0131] この状態で、治具 610 を固定したまま、ホルダー 630 を介して評価用試験片 500 を矢印 F の方向（上方）に引っ張った。引張速度は、1 mm/min とした。試験は、評価用試験片 500 が破断するまで続け、評価用試験片 500 が破断した際の荷重（N）および変位（mm）を測定した。
- [0132] 図 7 には、No. 1 の評価用試験片における測定時の変位（mm）と荷重（N）の関係を示す。
- [0133] 試験後に、評価用試験片 500 の状態を観察したところ、評価用試験片 500 は、金属部材 530 の、ガラス固化層 520 との結合部以外の位置で破断していることがわかった。
- [0134] 図 7 における測定時の変位（mm）と荷重（N）の関係が、アルミニウム材単独の引張試験の際に得られる挙動と類似していることから、本結合力評価試験では、評価用試験片 500 において、金属部材 530 とガラス固化層 520 との間には、良好な結合が得られていたことが予想される。すなわち、金属部材 530 とガラス固化層 520 との間には良好な結合が得られており、その結果、結合力評価試験において、測定時の変位（mm）と荷重（N）の関係が、金属部材 530 のみを使用した場合に得られる挙動と一致したものと考えられる。
- [0135] No. 2 および No. 3 の評価用試験片においても同様の挙動が観察された。
- [0136] 前述の表 6 には、No. 1 ～ No. 3 の各評価用試験片における結合力評価試験の測定結果をまとめて示す。結合力評価試験における破断モードは、評価用試験片の破断が、金属部材の破断によるものか、金属部材とガラス固化層の界面の剥離によるものかを示した。破断時の荷重は、評価用試験片が破断した際の荷重である。
- [0137] 表 6 に示すように、試験の結果、No. 1 ～ No. 3 の各評価用試験片における破断時の荷重は、それぞれ、134 N、70 N、および 104 N と十分に大きな値を示した。また、いずれの場合も、破断モードが金属部材の破断であったため、ガラス固化層と金属部材との結合が充分なものであったこ

とがわかる。

[0138] (実施例 3)

実施例 3 では、評価用試験片の金属部材として、厚さ 0.1 mm の純チタン (TR270C-O) を使用した以外は、実施例 2 と同様の方法で評価用試験片を作製し、この評価用試験片を用いて、結合力評価試験を行った。

[0139] 評価用試験片 (No. 4) の仕様を、以下の表 7 に示した。

[0140] [表 7]

No	金属部材		結合力評価試験結果	
	材料	厚さ (mm)	破断モード	破断時の荷重 (N)
4	純チタン TR270C-O	0.1	金属部材とガラス 固化層の界面剥離	171

No. 4 の評価用試験片における結合力評価試験の結果を図 8 に示す。No. 4 の評価用試験片の破断は、金属部材とガラス固化層との界面の剥離であった。

[0141] 図 8 は、No. 4 の評価用試験片の金属部材とガラス固化層との界面が剥離するまでの変位 (mm) と荷重 (N) の関係を示したものである。

[0142] 図 8 の結果から、No. 4 の評価用試験片における、金属部材とガラス固化層との界面が剥離するまでの変位 (mm) と荷重 (N) の関係は、図 7 に示した No. 1 ~ No. 3 の評価用試験片における、金属部材が破断した結果の変位 (mm) と荷重 (N) の関係とは大きく異なることがわかる。

[0143] 前述の表 7 に、No. 4 の評価用試験片における結合力評価試験の引張強度の値を示す。表 7 に示すように、試験の結果、No. 4 の評価用試験片は、金属部材とガラス固化層との界面で剥離したが、剥離時の荷重は、171

Nであった。この値は、表6における純アルミニウムの場合よりも大きい値を示した。

[0144] このように、No. 4の評価用試験片は、No. 1～No. 3の評価用試験片の破断モード（金属部材の破断）とは異なり、金属部材とガラス固化層との界面が剥離する破断モードを示すものの、No. 4の評価用試験片においても、金属部材とガラス固化層との間には、良好な結合が得られていることが確認された。

[0145] 以上のように、大気中490℃で40分間保持した金属材料が「条件A」を満たすかどうかを判断の尺度とすることにより、その金属材料がガラス固化層と結合する傾向にあるかどうかを判断することができることが確認された。

[0146] （実施例4）

縦10mm×横20mm×厚さ2.8mmのガラス基板（旭硝子製ソーダライムガラス）に、縦5mm×横15mm×厚さ0.1mmのZnO-SnO-P₂O₅系の組成のガラスリボンを介して、縦10mm×横20mm×厚さ0.1mmの純アルミニウム（A1N30-H18）からなる金属板を積層させた試験片を準備し、熱処理した。熱処理の条件は、450℃で10分間保持とした。なお、ZnO-SnO-P₂O₅系のガラスリボンの組成は、P₂O₅が30%、SnOが32%、ZnOが36%、B₂O₃が1%、CaOが0.5%、Al₂O₃が0.5%であった。

[0147] 試験片は、熱処理によりガラスリボンが軟化して、ガラス基板と金属板とが接合されており、実施例1と同様の結合性評価試験の結果は「○」であった。

[0148] 以上のように、ガラス固化層がZnO-SnO-P₂O₅系の組成のものであっても、結合することができることが確認された。

産業上の利用可能性

[0149] 本発明は、建築物の窓ガラス等に使用される真空複層ガラス等に利用することができる。

[0150] 本願は、2012年4月13日に出願した日本国特許出願2012-092368号に基づく優先権を主張するものであり、同日本国出願の全内容を本願の参照として援用する。

符号の説明

[0151]	100	本発明による真空複層ガラス
	110	第1のガラス基板
	112	第1の表面
	114	第2の表面
	120	第2のガラス基板
	122	第1の表面
	124	第2の表面
	130	間隙部
	150	シール部材
	155	金属部材
	160	第1のガラス固化層
	165	第2のガラス固化層
	190	スペーサ
	210	金属部材
	250	ガラス基板
	260	組立体
	270	ガラス固化層
	500	評価用試験片
	510	ガラス基板
	520	ガラス固化層
	530	金属部材
	600	試験装置
	610	冶具
	615	側面

6 3 0 ホルダー

請求の範囲

- [請求項1] 第1および第2のガラス基板が間隙部を介して積層され、該間隙部を大気圧未満の圧力状態にすることにより構成される真空複層ガラスであって、
- 前記間隙部は、シール部材によって密閉され、
- 前記シール部材は、金属部材と、該金属部材と前記ガラス基板とを接合するガラス固化層とを有し、
- 前記金属部材は、大気中490℃で40分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度X（N/mm²）と破断伸びY（%）の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定されることを特徴とする真空複層ガラス。
- [請求項2] 前記金属部材は、厚さが0.03mm～0.5mmの範囲である請求項1に記載の真空複層ガラス。
- [請求項3] 前記金属部材は、前記大気中490℃で40分間保持する前の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度X（N/mm²）と破断伸びY（%）の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たさない材料から選定される請求項1または2に記載の真空複層ガラス。
- [請求項4] 前記金属部材は、純アルミニウム、アルミニウム合金、純チタンおよびチタン合金からなる群から選定された少なくとも一つを含む請求項1乃至3のいずれか一つに記載の真空複層ガラス。
- [請求項5] 前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、50℃～250℃での熱膨張係数が、 $70 \times 10^{-7}/K$ 以上 $120 \times 10^{-7}/K$ 以下である請求項1から4のいずれか一つに記載の真空複層ガラス。
- [請求項6] 前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、 $ZnO-Bi_2O_3-B_2O_3$ 系のガラスである請求項1から5のいずれか一つに記載の真空複層ガラス。
- [請求項7] 前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、酸化物換算した場合、質量百分率で、下記の組成を有する請求項6に記載の真空複層ガラス

:

Bi_2O_3 が70%~90%、 ZnO が5%~15%、 B_2O_3 が2%~8%、 Al_2O_3 が0.1%~5%、 SiO_2 が0.1%~2%、 CeO_2 が0.1%~5%、 Fe_2O_3 が0.01%~0.2%、および CuO が0.01%~5%。

[請求項8] 前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、 $\text{ZnO}-\text{SnO}-\text{P}_2\text{O}_5$ 系のガラスである請求項1から5のいずれか一つに記載の真空複層ガラス。

[請求項9] 前記ガラス固化層に含まれるガラス成分は、酸化物換算した場合、質量百分率で、下記の組成を有する請求項6に記載の真空複層ガラス

:

P_2O_5 が27%~35%、 SnO が25%~35%、 ZnO が25%~45%、 B_2O_3 が0%~5%、 Ga_2O_3 が0%~3%、 CaO が0%~10%、 SrO が0%~10%、 Al_2O_3 が0%~3%、 In_2O_3 が0%~3%、 La_2O_3 が0%~3%、および $\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{In}_2\text{O}_3 + \text{La}_2\text{O}_3$ が0%~7%。

[請求項10] 前記金属部材は、第1の部分および第2の部分有し、
前記金属部材の第1の部分は、前記第1のガラス基板に形成された第1のガラス固化層と結合され、
前記金属部材の第2の部分は、前記第2のガラス基板に形成された第2のガラス固化層と結合され、
これにより前記シール部材が形成される請求項1から9のいずれか一つに記載の真空複層ガラス。

[請求項11] 第1および第2のガラス基板が間隙部を介して積層され、該間隙部を大気圧未満の圧力状態にすることにより構成される真空複層ガラス用のシール部材であって、

前記間隙部は、当該シール部材によって密閉され、

当該シール部材は、金属部材と、該金属部材と前記ガラス基板とを

接合するガラス固化層とを有し、

前記金属部材は、大気中490℃で40分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度X（N/mm²）と破断伸びY（%）の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定されることを特徴とするシール部材。

[請求項12]

第1および第2のガラス基板が間隙部を介して積層され、該間隙部を大気圧未満の圧力状態にすることにより構成される真空複層ガラスの製造方法であって、

前記第1のガラス基板に第1のガラス固化層を形成し、前記第2のガラス基板に第2のガラス固化層を形成するステップと、

大気中490℃で40分間保持した後の室温引張試験（引張速度：1mm/min）において、引張強度X（N/mm²）と破断伸びY（%）の関係が、 $Y \geq 0.10X$ を満たす材料から選定される金属部材を、前記第1および前記第2のガラス固化層に接触させるように、前記第1および第2のガラス基板と該金属部材とを組み合わせる前記間隙部を形成させた組立体を構成するステップと、

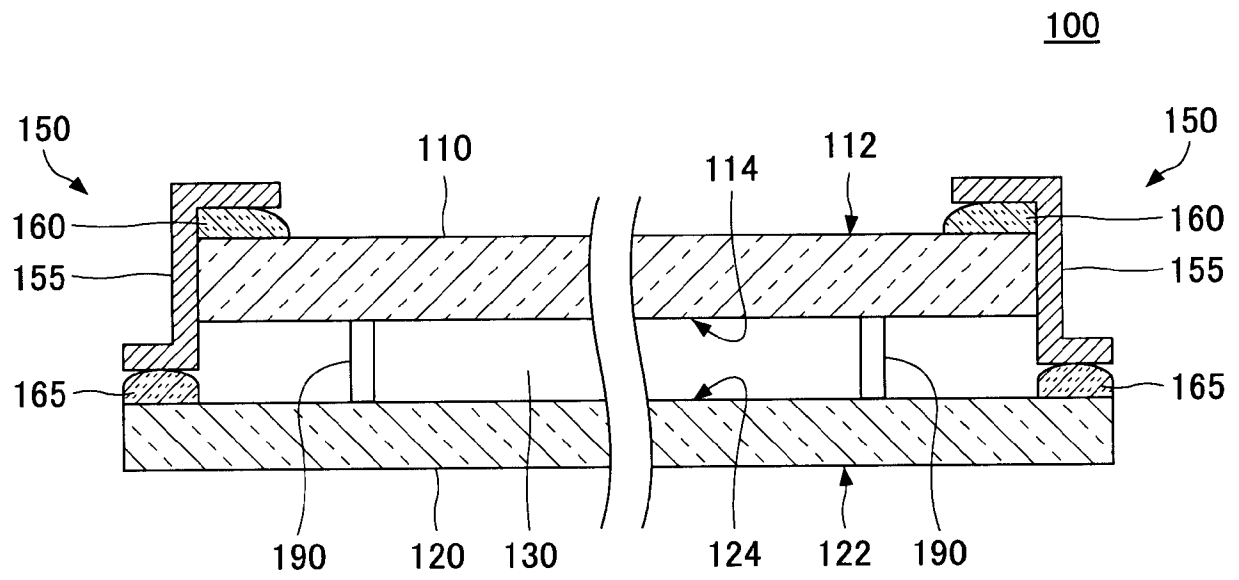
前記組立体の少なくとも前記第1および第2のガラス固化層を加熱して前記第1および第2のガラス固化層と前記金属部材とを結合させるステップと、

前記間隙部を減圧処理するステップと、
を有することを特徴とする真空複層ガラスの製造方法。

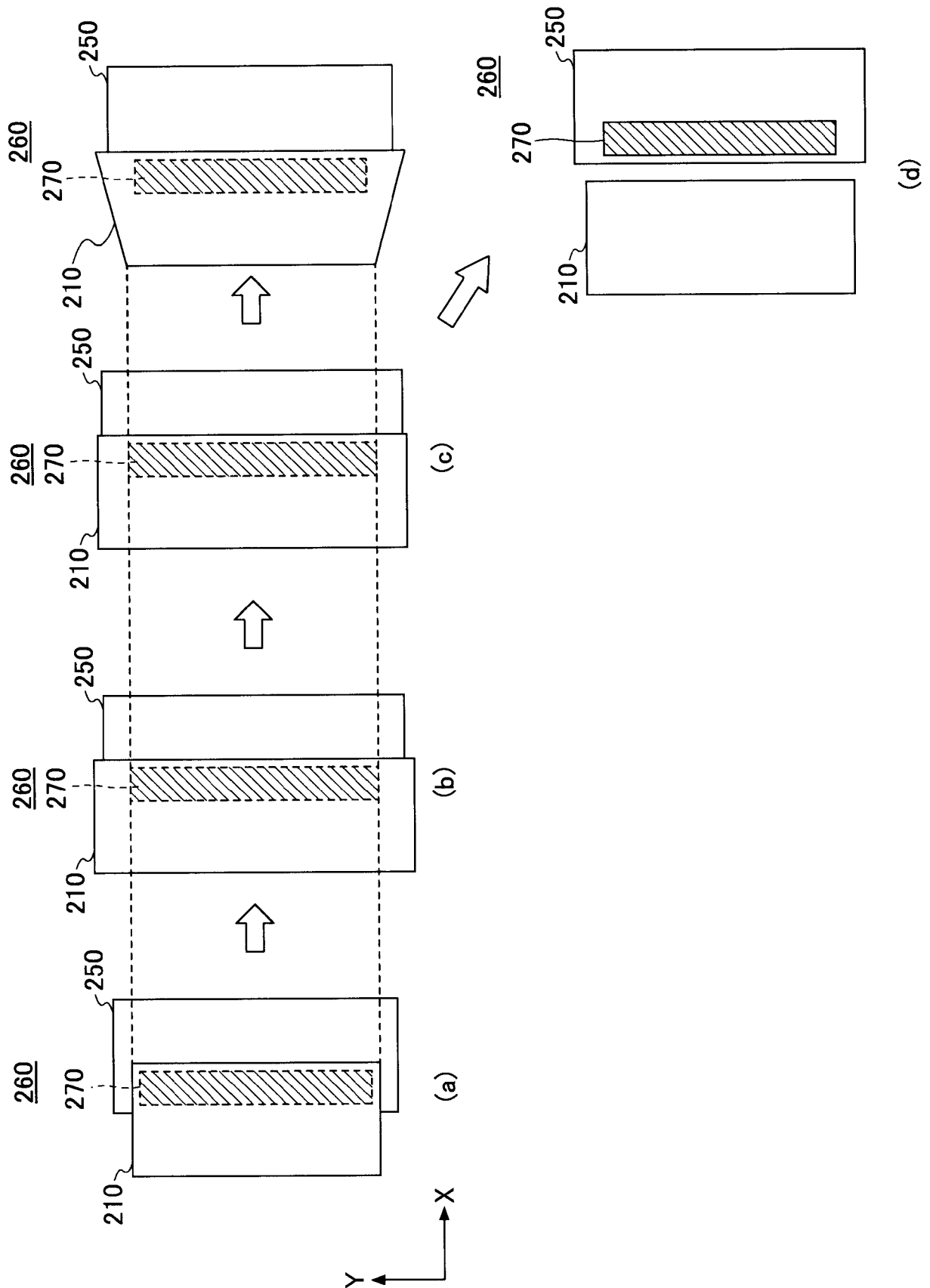
[請求項13]

前記組立体の少なくとも前記第1および第2のガラス固化層を加熱させるステップは、470℃～530℃の温度で、1分～1時間保持した後、室温まで冷却される請求項12に記載の製造方法。

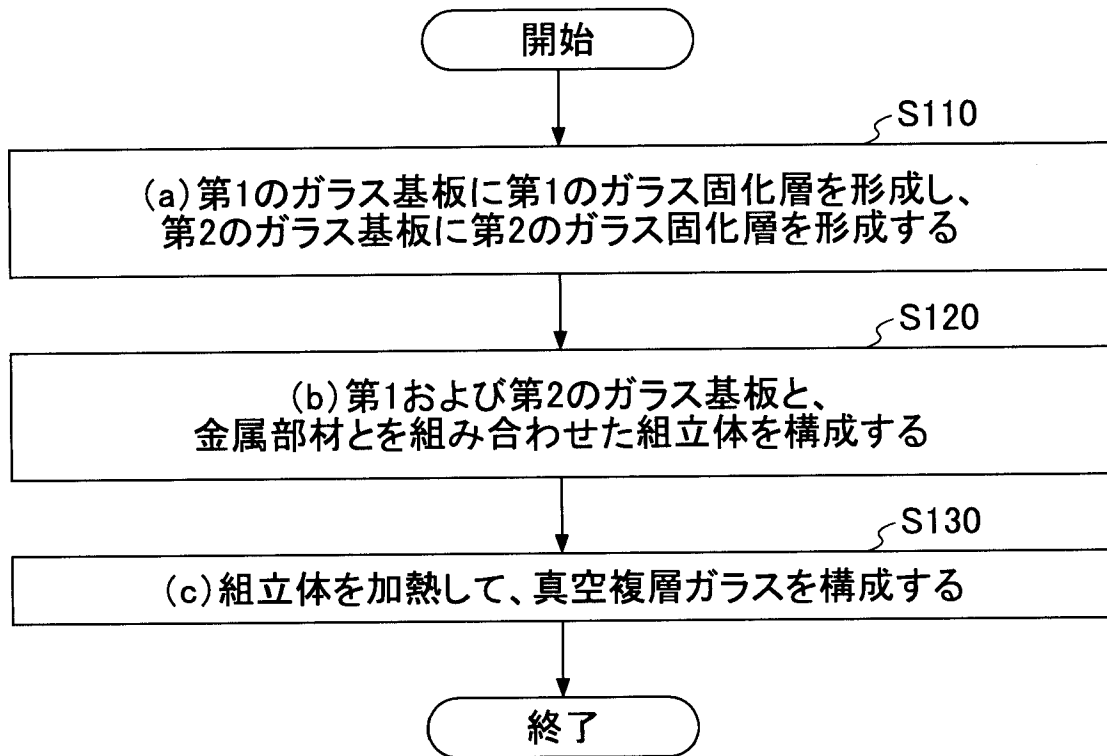
[図1]



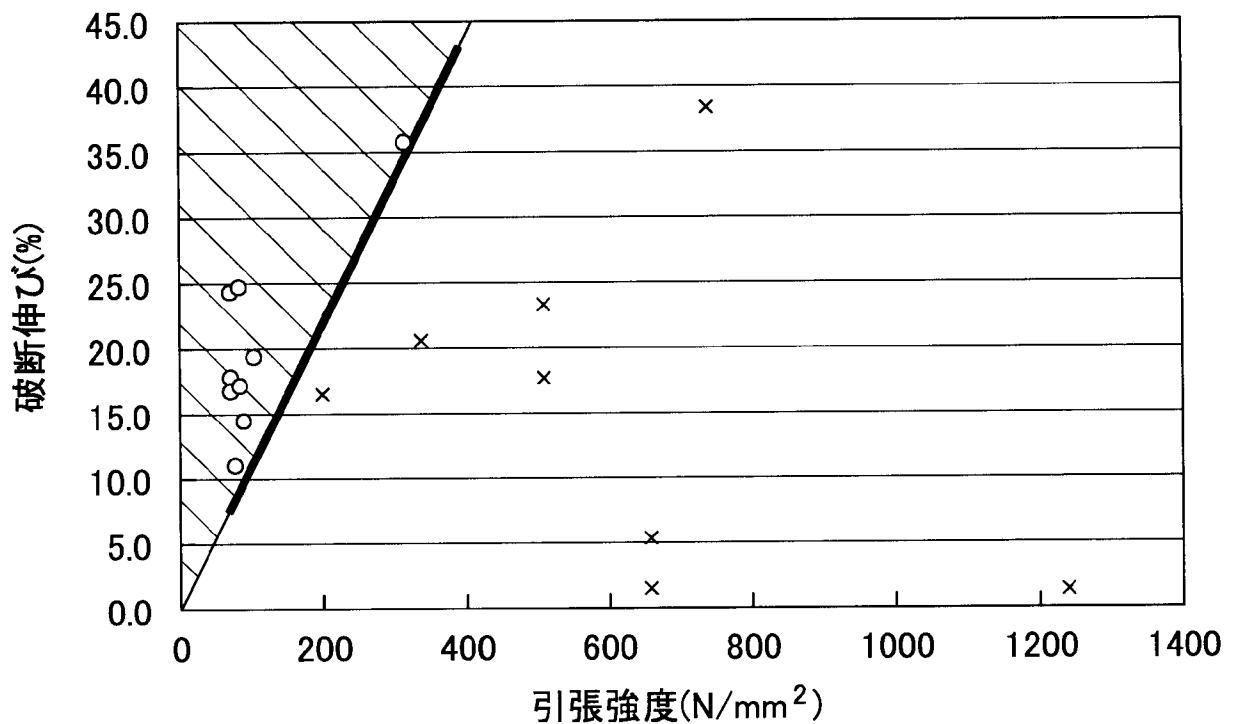
[図2]



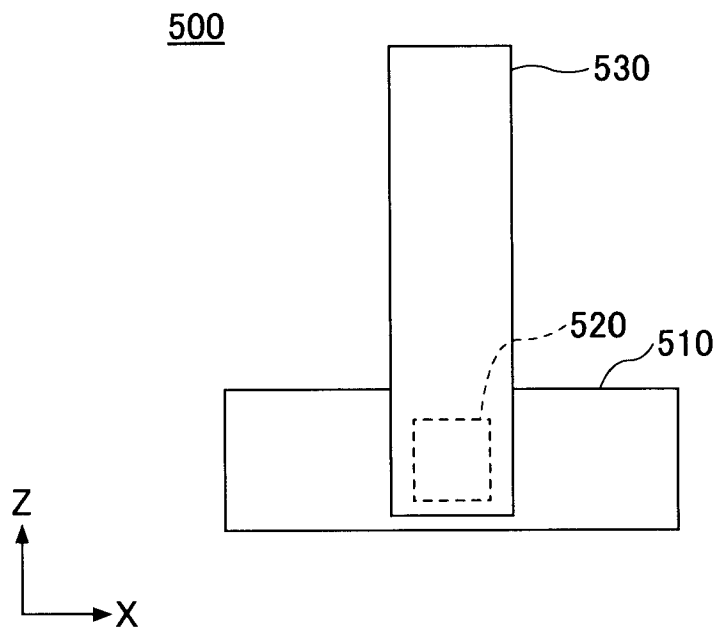
[図3]



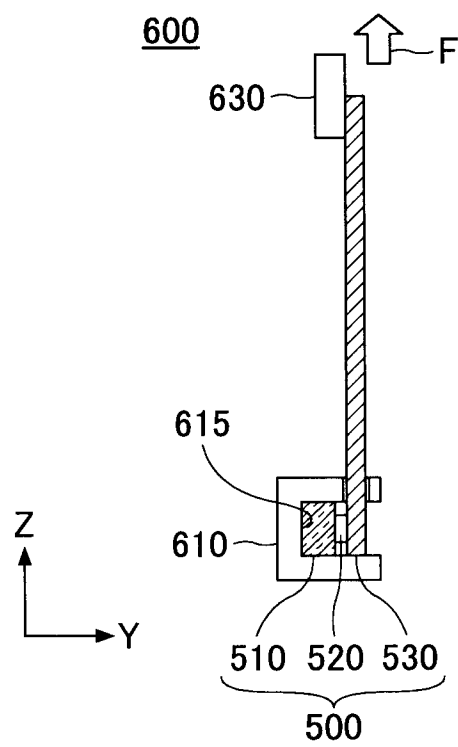
[図4]



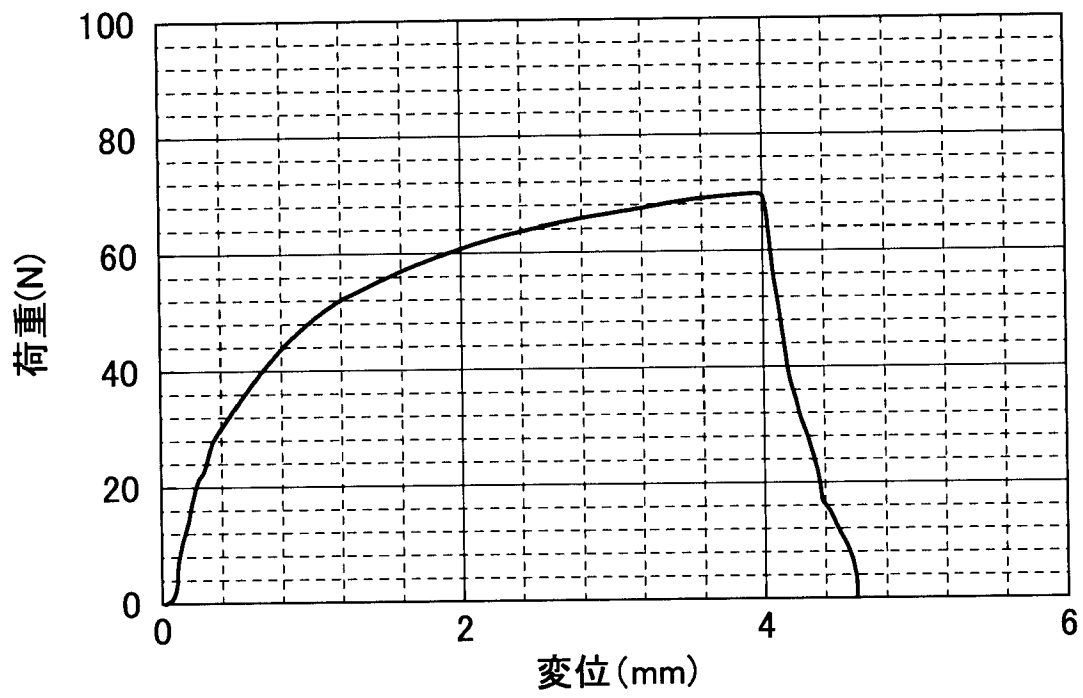
[図5]



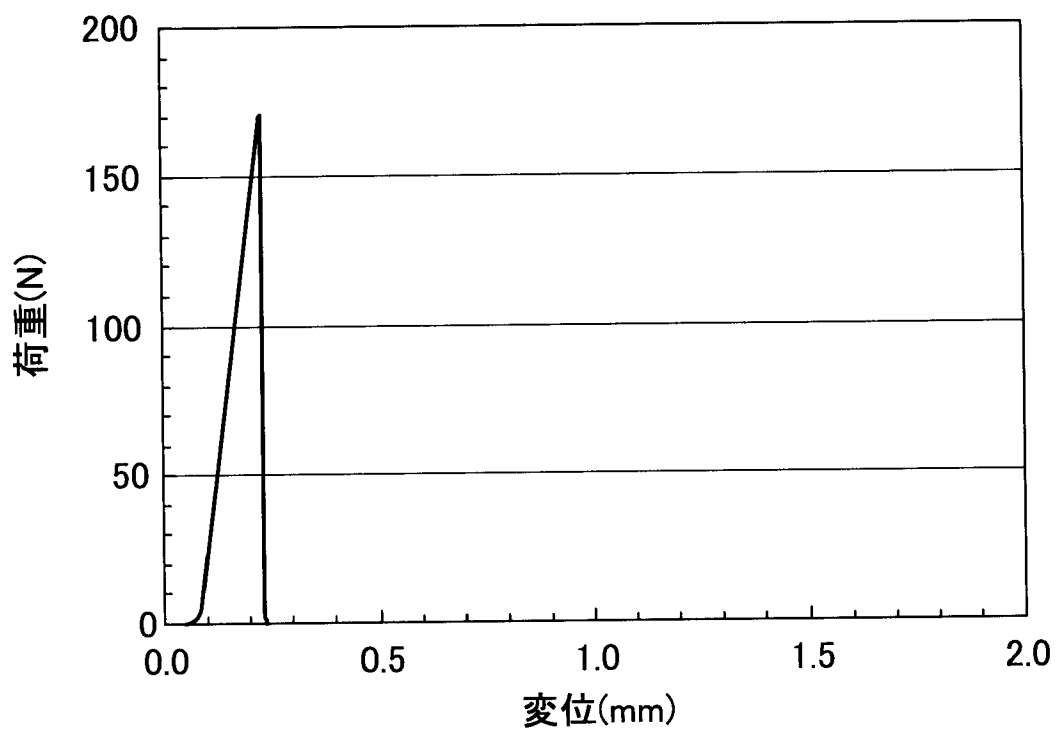
[図6]



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/061128

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C27/06(2006.01)i, C03C8/04(2006.01)i, C03C8/08(2006.01)i, C03C27/04(2006.01)i, E06B3/66(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C03C27/00-29/00, E06B3/66

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2008/085325 A2 (GUARDIAN INDUSTRIES CORP.), 17 July 2008 (17.07.2008), entire text & US 2008/0166570 A1	1-13
A	WO 2011/072646 A2 (FUTECH CMBH), 23 June 2011 (23.06.2011), entire text & JP 2013-514245 A & US 2012/0269996 A1	1-13
A	JP 2010-530838 A (Fraunhofer-Gesellschaft zur Foerderung der angewandten Forschung e.V.), 16 September 2010 (16.09.2010), entire text & US 2010/0276473 A1 & WO 2009/000256 A1	1-13



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 June, 2013 (27.06.13)

Date of mailing of the international search report
09 July, 2013 (09.07.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C03C27/06(2006.01)i, C03C8/04(2006.01)i, C03C8/08(2006.01)i, C03C27/04(2006.01)i,
E06B3/66(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C03C27/00-29/00, E06B3/66

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2008/085325 A2 (GUARDIAN INDUSTRIES CORP.) 2008.07.17, 全文 & US 2008/0166570 A1	1-13
A	WO 2011/072646 A2 (FUTECH CMBH) 2011.06.23, 全文 & JP 2013-514245 A & US 2012/0269996 A1	1-13

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 7 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

0 9 . 0 7 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山崎 直也

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 6 5

4 T

3 2 3 4

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2010-530838 A (フラウンホファー ゲセルシャフト ツール フェールデルンク ダー アンゲヴァンテン フォルシュング エー. ファオ.) 2010.09.16, 全文 & US 2010/0276473 A1 & WO 2009/000256 A1	1-13