

(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  
2024年5月23日(23.05.2024)



(10) 国際公開番号  
**WO 2024/106292 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*C03C 13/02* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/040292
- (22) 国際出願日: 2023年11月8日(08.11.2023)
- (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 2022-183742 2022年11月16日(16.11.2022) JP
- (71) 出願人: 日本板硝子株式会社 (NIPPON SHEET GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1086321 東京都港区三田三丁目5番27号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 中村 文 (NAKAMURA Aya); 〒1086321 東京都港区三田三丁目5番27号日本板硝子株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 鎌田 耕一 (KAMADA Koichi); 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満4丁目3番25号 梅田プラザビル別館8階 Osaka (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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (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, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: GLASS FIBER AND COMPOSITION FOR GLASS FIBER

(54) 発明の名称: ガラス繊維およびガラス繊維用組成物

(57) Abstract: Provided is a glass composition for a glass fiber, the glass composition containing, in terms of mass%, 50-65% of SiO<sub>2</sub>, 10-30% of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 10-20% of MgO, 0-7% of CaO, 0-5% of TiO<sub>2</sub>, and 0-5% of ZrO<sub>2</sub>, wherein the total content of SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, and ZrO<sub>2</sub> is at least 58%, the total content of TiO<sub>2</sub> and ZrO<sub>2</sub> is at least 0.1%, and when the content of MgO is 10-16% (exclusive of 16), at least 0.1% of ZrO<sub>2</sub> is contained.

(57) 要約: 質量%で表示して、SiO<sub>2</sub>: 50~65%、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 10~30%、MgO: 10~20%、CaO: 0~7%、TiO<sub>2</sub>: 0~5%、ZrO<sub>2</sub>: 0~5%を含み、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>およびZrO<sub>2</sub>の含有率の合計が58%以上であり、TiO<sub>2</sub>およびZrO<sub>2</sub>の含有率の合計が0.1%以上であり、MgOの含有率が10%以上16%未満である場合には、0.1%以上のZrO<sub>2</sub>を含む、ガラス繊維用ガラス組成物を提供する。



WO 2024/106292 A1

## 明 細 書

発明の名称： ガラス繊維およびガラス繊維用組成物

### 技術分野

[0001] 本発明は、ガラス繊維と、ガラス繊維に適したガラス組成物に関する。

### 背景技術

[0002] 実用に供されているガラス繊維の多くはそのヤング率が90GPa以下であるガラス組成物により構成されている。ただし、ヤング率が90GPaを超えるガラス組成物も知られている。例えば、特許文献1には、多量の希土類酸化物を配合したガラス組成物が開示されている。特許文献1のガラス組成物における $Y_2O_3$ および $La_2O_3$ の含有率の合計は、20～60重量%の範囲にある。しかし、希土類酸化物の含有率が高いと製造コストが上昇する。これを考慮し、特許文献2には、多量の希土類酸化物を必要とすることなく、ガラス組成物のヤング率を向上させる技術が開示されている。特許文献2のガラス組成物は、ヤング率を向上させる成分として、モル%で表示して15～30%のMgOを含有する。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第2006/057405号

特許文献2：特許第6391875号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0004] 特許文献2では、ガラス組成物の耐酸性については検討されていない。そこで、本発明は、ヤング率が高く、耐酸性に優れたガラス繊維と、そのようなガラス繊維の製造に適したガラス組成物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

[0005] 本発明者は、ガラス成分の配合比率について検討を重ね、耐酸性およびヤング率のバランスに優れたガラス繊維に適したガラス組成物を完成させた。

[0006] 本発明は、

質量%で表示して、

$\text{SiO}_2$  50～65%

$\text{Al}_2\text{O}_3$  10～30%

$\text{MgO}$  10～20%

$\text{CaO}$  0～7%

$\text{TiO}_2$  0～5%

$\text{ZrO}_2$  0～5%

を含み、

$\text{SiO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ の含有率の合計が58%以上であり、

$\text{TiO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ の含有率の合計が0.1%以上であり、

$\text{MgO}$ の含有率が10%以上16%未満である場合には、0.1%以上の $\text{ZrO}_2$ を含む、ガラス繊維用ガラス組成物、を提供する。

[0007] また、本発明は、本発明によるガラス繊維用ガラス組成物を含むガラス繊維、を提供する。

### 発明の効果

[0008] 本発明によれば、耐酸性およびヤング率のバランスに優れたガラス繊維と、そのようなガラス繊維に適したガラス繊維用ガラス組成物が提供される。

### 発明を実施するための形態

[0009] 以下、本発明の実施形態を説明するが、以下の説明は本発明を特定の実施形態に限定する趣旨ではない。本明細書において、以降のガラス組成物の成分の含有率は、すべて質量%により示し、基本的に質量%は「%」と表示する。本明細書において、「実質的に含有しない」および「実質的に含有されていない」は、含有率が、0.1質量%未満、0.05質量%未満、0.01質量%未満、0.005質量%未満、さらに0.003質量%未満、場合によっては0.001質量%未満であることを意味する。「実質的に」は、ガラス原料、製造装置などに由来する微量の不純物の含有を許容する趣旨である。「アルカリ金属酸化物」は、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$ および $\text{K}_2\text{O}$ を意味し、R

$_2\text{O}$ と表記することがある。以下に述べる含有率の上限および下限は、上限および下限が個別に記載されている場合、上限および下限が範囲として記載されている場合の両方において、任意に組み合わせることができる。

[0010] [ガラス組成物]

<成分>

以下、本実施形態のガラス組成物を構成しうる各成分について説明する。

[0011] ( $\text{SiO}_2$ )

$\text{SiO}_2$ は、ガラスの骨格を形成する成分であり、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整し、耐酸性を向上させる成分でもある。 $\text{SiO}_2$ の含有率は、例えば50～65%である。 $\text{SiO}_2$ の含有率の下限は、55%以上、57%以上、57.5%以上、58%以上、59%以上、59.6%以上、59.8%以上、さらに60%以上であってもよい。 $\text{SiO}_2$ の含有率の上限は、63%以下、62.3%以下、62%以下、61.8%、61.5%以下、さらに61%以下であってもよい。 $\text{SiO}_2$ の含有率は、55～62%、さらに57.5～61.5%であってもよい。

[0012] ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )

$\text{Al}_2\text{O}_3$ は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整し、ガラスの耐水性の向上に寄与する成分である。 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の含有率は、例えば10～30%である。 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の含有率の下限は、例えば15%以上、17%以上、19%以上、19.5%以上、19.7%以上、さらに20%以上であってもよい。 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の含有率の上限は、28%以下、25%以下、22%以下、21%以下、20.8%以下、さらに20.6%以下であってもよい。 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の含有率は、15～30%、さらに19.7～20.6%であってもよい。ただし後述するとおり、 $\text{MgO}$ の含有率が16%未満の範囲にある場合、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の含有率は、22～29%、さらに23.5～28%であってもよい。

[0013] ( $\text{B}_2\text{O}_3$ )

$\text{B}_2\text{O}_3$ は、ガラスの骨格を形成し、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する任意成分である。 $\text{B}_2\text{O}_3$ の含有率は、例えば0～1.5%である。 $\text{B}_2\text{O}_3$

$B_2O_3$ の含有率の下限は、0.02%以上であってもよい。 $B_2O_3$ の含有率の上限は、1.2%以下、1%以下、0.5%以下、0.3%以下、0.1%以下、さらに0.08%以下であってもよい。 $B_2O_3$ は、実質的に含有されていなくてもよい。

[0014] (MgO)

MgOは、ヤング率の向上に寄与し、失透温度、粘度等に影響を与える成分である。MgOの含有率は、例えば10~20%である。MgOの含有率の下限は、12%以上、14%以上、16%以上、16.5%以上、16.6%以上、16.8%以上、さらに17%以上であってもよい。MgOの含有率の上限は、19%以下、18%以下、17.8%以下、17.7%以下、さらに17.6%以下であってもよい。MgOの含有率は、12~20%、さらに、14~19%であってもよい。MgOの含有率が16%未満である場合は、 $ZrO_2$ の添加が推奨される。

[0015] (CaO)

CaOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する任意成分である。CaOの含有率は、例えば0~7%である。CaOの含有率の下限は、0.1%以上、0.3%以上、0.5%以上、さらに0.7%以上であってもよい。CaOの含有率の上限は、5%以下、3%以下、2%以下、1.5%以下、1.4%以下、1.3%以下、1.2%以下、さらに1%以下であってもよい。

[0016] (アルカリ金属酸化物)

アルカリ金属酸化物 ( $R_2O$ ) は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する任意成分である。アルカリ金属酸化物の含有率の合計、具体的には  $[Li_2O] + [Na_2O] + [K_2O]$ 、は、例えば0~3%である。アルカリ金属酸化物の含有率の下限は、0.05%以上、0.1%以上、0.2%以上、さらに0.3%以上であってもよい。 $R_2O$ の含有率の上限は、2%以下、1.5%以下、1.2%以下、1.0%以下、0.9%以下、さらに0.8%以下であってもよい。 $R_2O$ の含有率が高いと、ヤング率が十分に上昇しな

い場合がある。

[0017]  $\text{Li}_2\text{O}$ の含有率は、例えば0～1.5%である。 $\text{Li}_2\text{O}$ の含有率の下限は、0.1%以上、0.2%以上であり、0.3%以上、さらに0.4%以上であってもよい。 $\text{Li}_2\text{O}$ の含有率の上限は、1%以下、0.8%以下、0.6%以下、さらに0.5%以下であってもよい。 $\text{Li}_2\text{O}$ の含有率の好ましい一例は、0.1～0.8%である。 $\text{Li}_2\text{O}$ は、ヤング率を低下させる影響を抑制しながら失透温度等の特性を調整することに関しては、 $\text{Na}_2\text{O}$ および $\text{K}_2\text{O}$ より有利である。 $\text{Li}_2\text{O}$ の含有率は、 $\text{Na}_2\text{O}$ の含有率より高くてもよく、 $\text{K}_2\text{O}$ の含有率より高くてもよく、 $\text{Na}_2\text{O}$ の含有率および $\text{K}_2\text{O}$ の含有率の合計より高くてもよい。もっとも、 $\text{Li}_2\text{O}$ は、実質的に含有されていなくてもよい。

[0018]  $\text{Na}_2\text{O}$ の含有率は、例えば0～1%である。 $\text{Na}_2\text{O}$ の含有率の上限は、0.5%以下、0.2%以下、0.18%以下、0.15%以下、0.13%以下、0.1%以下、さらに0.08%以下であってもよい。 $\text{Na}_2\text{O}$ は、実質的に含有されていなくてもよい。 $\text{K}_2\text{O}$ の含有率は、例えば0～0.5%である。 $\text{K}_2\text{O}$ の含有率の上限は、0.3%以下、0.1%以下、0.08%以下、さらに0.06%以下、さらに0.04%以下であってもよい。 $\text{K}_2\text{O}$ は、実質的に含有されていなくてもよい。

[0019]  $\text{Na}_2\text{O}$ の含有率および $\text{K}_2\text{O}$ の含有率の合計は、0～1%、0～0.5%、さらに0～0.3%の範囲内であってもよい。

[0020] ( $\text{TiO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ )

$\text{TiO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ は、耐酸性の向上に寄与しうる任意成分である。ただし、 $\text{TiO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ から選択される少なくとも1つは添加することが望ましい。特に $\text{ZrO}_2$ は、 $\text{MgO}$ によるヤング率向上の効果を補い得る成分であることが見い出された。 $\text{TiO}_2$ の含有率および $\text{ZrO}_2$ の含有率の合計の下限は、0.1%以上、0.3%以上、0.5%以上、0.8%以上、1%以上、さらに1.5%以上であってもよい。 $\text{TiO}_2$ の含有率および $\text{ZrO}_2$ の含有率の合計の上限は、5%以下、4%以下、3.5%以下、3%以下、さら

に2.5%以下であってもよい。本実施形態では、例えば、 $TiO_2$ の含有率および $ZrO_2$ の含有率の合計は、0.5~5%、0.8~4%、1~3.5%の範囲にあってもよい。

[0021]  $TiO_2$ および $ZrO_2$ は、それぞれ例えば0~5%の範囲で添加される。 $TiO_2$ の含有率および $ZrO_2$ の含有率は、それぞれ0.1%以上、0.3%以上、0.5%以上、1%以上、さらに1.2%以上であってもよい。 $TiO_2$ の含有率および $ZrO_2$ の含有率は、それぞれ4%以下、3%以下、2.5%以下、さらに2%以下であってもよい。ただし、 $TiO_2$ または $ZrO_2$ は、実質的に含有されていなくてもよい。

[0022] ( $ZnO$ )

$ZnO$ は添加が許容される任意成分である。 $ZnO$ は、例えば0~3%、さらに0~1.5%の範囲で添加される。 $ZnO$ の含有率の上限は、1.4%以下、1%以下、さらに0.5%以下であってもよい。 $ZnO$ は、実質的に含有されていなくてもよい。

[0023] ( $F_2$ )

$F_2$ も清澄などのために添加が許容される任意成分である。 $F_2$ は、例えば0~0.5%、さらに0~0.1%の範囲で添加される。 $F_2$ の含有率の上限は、0.08%以下であってもよい。 $F_2$ は、実質的に含有されていなくてもよい。

[0024] ( $SiO_2+TiO_2+ZrO_2$ )

$SiO_2$ 、 $TiO_2$ および $ZrO_2$ の含有率の合計 ( $SiO_2+TiO_2+ZrO_2$ ) は、例えば58%以上である。 $SiO_2$ 、 $TiO_2$ および $ZrO_2$ の含有率の合計は、58.5%以上、59%以上、59.5%以上、60%以上、60.5%以上、さらに61%以上であってもよい。 ( $SiO_2+TiO_2+ZrO_2$ ) が高いガラス組成物は、優れた耐酸性の実現に適している。 ( $SiO_2+TiO_2+ZrO_2$ ) の上限は、特に制限されないが、例えば、63.5%以下、63%以下、さらに62.5%以下である。

[0025] ( $SiO_2+Al_2O_3+MgO$ )

$\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、および $\text{MgO}$ の成分の含有率の合計 ( $\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{MgO}$ ) は、95%以上、96%以上、97%以上、さらに97.5%以上であってもよい。 $(\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{MgO})$  は、例えば99%以下、さらに98.5%以下であってもよい。

[0026] ( $\text{CaO} + \text{R}_2\text{O}$ )

$\text{CaO}$ およびアルカリ金属酸化物 ( $\text{R}_2\text{O}$ ) の添加は、ガラス組成物の失透温度の調整に適している。 $\text{CaO}$ の含有率および $\text{R}_2\text{O}$ の含有率の合計 ( $\text{CaO} + \text{R}_2\text{O}$ ) は、0~2.5%であってもよい。 $(\text{CaO} + \text{R}_2\text{O})$  の下限は、0.05%以上、0.1%以上、0.3%以上、0.5%以上、0.7%以上、さらに1%以上であってもよい。 $(\text{CaO} + \text{R}_2\text{O})$  の上限は、例えば2.3%以下、2.2%以下、2%以下、さらに1.8%以下であってもよい。

[0027] (その他の成分)

ガラス組成物は、上記以外の成分を含んでもよい。ガラス組成物が含むうるその他の成分としては、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{Cl}_2$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{CeO}_2$ 、 $\text{P}_2\text{O}_5$ 、 $\text{SO}_3$ を例示できる。

[0028]  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ は、例えば0~1%の範囲で添加される。 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ の含有率の上限は、0.5%、0.3%以下、0.2%以下、0.15%以下、さらに0.1%以下であってもよい。 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ は、実質的に含有されていなくてもよい。なお、酸化鉄は、その一部が $\text{FeO}$ としてもガラス組成物中に存在するが、その含有率は、慣用に従って $\text{Fe}_2\text{O}_3$ に換算して示すこととする。

[0029]  $\text{Y}_2\text{O}_3$ および $\text{La}_2\text{O}_3$ は、ヤング率の向上に寄与する任意成分である。ただし、これらの成分は、その原料が相対的に高価である。 $\text{Y}_2\text{O}_3$ および $\text{La}_2\text{O}_3$ の含有率の合計は、例えば0~5%である。 $\text{Y}_2\text{O}_3$ および $\text{La}_2\text{O}_3$ の含有率の合計の上限は、3%以下、2%以下、1%以下、さらに0.5%以下であってもよい。 $\text{Y}_2\text{O}_3$ は、実質的に含有されていなくてもよい。 $\text{La}_2\text{O}_3$ も、実質的に含有されていなくてもよい。

[0030]  $\text{SrO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{Cl}_2$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{CeO}_2$ 、 $\text{P}_2\text{O}_5$ 、および $\text{SO}_3$ の含有率は

、それぞれ例えば0～0.5%である。これらの成分のそれぞれの含有率の上限は、0.3%以下、0.2%以下、さらに0.1%以下であってもよい。これらの各成分は、それぞれ実質的に含有されていなくてもよい。

[0031] (MgOを16%以上含有する組成例A)

本実施形態のガラス組成物は、以下の成分を含んでいてもよい。

SiO <sub>2</sub>	50～65%
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0～1.5%
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10～25%
MgO	16～20%
CaO	0～7%
Li <sub>2</sub> O	0～1.0%
Na <sub>2</sub> O	0～0.2%
K <sub>2</sub> O	0～0.1%
TiO <sub>2</sub>	0～5%
ZrO <sub>2</sub>	0～5%

を含み、

SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>およびZrO<sub>2</sub>の含有率の合計が58%以上であり、TiO<sub>2</sub>およびZrO<sub>2</sub>の含有率の合計が0.1%以上である。

[0032] (MgOの含有率が16%未満であり、ZrO<sub>2</sub>を含む組成例B)

本実施形態のガラス組成物は、以下の成分を含んでいてもよい。

SiO <sub>2</sub>	50～65%
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0～1.5%
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10～30%
MgO	10～16% (ただし16%を除く)
CaO	0～7%
Li <sub>2</sub> O	0～1.0%
Na <sub>2</sub> O	0～0.2%
K <sub>2</sub> O	0～0.1%

$TiO_2$  0～5%

$ZrO_2$  0.1～5%

を含み、

$SiO_2$ 、 $TiO_2$ および $ZrO_2$ の含有率の合計が58%以上である。

[0033] 組成例Bにおいても、各成分の含有率は、上述した範囲を参照して適宜調整するとよい。ただし、 $Al_2O_3$ の含有率は、やや高めに調整してもよく、例えば、22～29%、さらに23.5～28%であってもよい。

[0034] (耐酸性において特に優れている組成例C)

本実施形態のガラス組成物は、以下の成分を含んでもよい。

$SiO_2$  55～65%

$B_2O_3$  0～1.5%

$Al_2O_3$  10～28%

$MgO$  10～20%

$CaO$  0～7%

$Li_2O$  0～1.0%

$Na_2O$  0～0.2%

$K_2O$  0～0.1%

$TiO_2$  0～5%

$ZrO_2$  1.2～5%

を含み、

$SiO_2$ 、 $TiO_2$ および $ZrO_2$ の含有率の合計が60.4%以上である。

[0035] 組成例A～Cにおける $ZrO_2$ の含有率は、1.5～3%であってもよい。

[0036] <特性>

(ヤング率)

本実施形態のガラス組成物のヤング率は、例えば98GPa以上である。ヤング率の下限は、99GPa以上、99.5GPa以上、場合によっては100GPa以上とすることもできる。ヤング率の上限は、特に限定されないが、例えば115GPa以下、さらに110GPa以下であってもよい。

## [0037] (耐酸性)

耐酸性は、実施例の欄において述べる試験により得た質量減少率 $\Delta W$  (%)により評価することができる。本実施形態のガラス組成物の $\Delta W$ は、例えば0.3質量%以下である。 $\Delta W$ の上限は、0.25質量%以下、さらに0.1質量%以下とすることもできる。

## [0038] [ガラス繊維]

本実施形態のガラス組成物は、ガラス繊維の製造に適している。ガラス繊維は、ガラス長繊維であってもガラス短繊維であってもよい。ガラス繊維は、例えばストランド、ロービング、ヤーン、クロス、チョップドストランド、グラスウール、及びミルドファイバーからなる群より選択される少なくとも1つに該当する形態であってもよい。クロスは、例えばロービングクロス、ヤーンクロスである。

[0039] ただし、上記各形態のガラス組成物は、その優れた特性から、ガラス繊維以外のガラス成形体としても使用できる。ガラス成形体の一例は、粒子状ガラスである。粒子状ガラスは、ガラス繊維としての外形が失われる程度にまで微細に破断し、或いはガラス繊維と同様、目的とする形状に応じたノズルを使用して、製造されうる。上記各形態のガラス組成物は、失透を回避しながら粒子状ガラスを製造することにも適している。本発明の一形態において、粒子状ガラスは、上記各形態のガラス組成物を含み、或いは上記各形態のガラス組成物により構成されている。

[0040] 粒子状ガラスは、例えば、鱗片状ガラス、ガラス粉末、ガラスビーズ、およびファインフレイクからなる群から選ばれる少なくとも1種に相当するものであってもよい。粒子状ガラスは、FRPへの使用、すなわち樹脂に代表される被補強体の補強その他に使用できる。

[0041] 粒子状ガラスにも使用できることを考慮すると、上述のガラス組成物は、ガラス繊維または粒子状ガラス用のガラス組成物としても把握できる。

## [0042] [不織布、ゴム補強用コード]

本発明により提供される各ガラス繊維は、従来のガラス繊維と同様の用途

に供することができる。本発明の一形態からは、ガラス繊維を含むガラス繊維不織布が提供される。また、本発明の一形態からは、ガラス繊維が束ねられたストランドを含むゴム補強用コードが提供される。ガラス繊維はその他の用途に供することもできる。その他の用途には、樹脂に代表される被補強体の補強が挙げられる。

[0043] [実施例]

以下、実施例および比較例により本発明の実施形態をさらに具体的に説明する。なお、以下の表においても、組成の含有率は、質量%により表示されている。

<ガラス組成物の調製>

表1及び2に示した各組成となるように、珪砂等の通常のガラス原料を調合し、実施例および比較例ごとにガラス原料のバッチを作製した。電気炉を用いて、各バッチを1500～1600℃まで加熱して熔融させ、組成が均一になるまで約4時間そのまま維持した。その後、熔融したガラス（ガラス熔融物）の一部を鉄板上に流し出し、電気炉中で室温まで徐冷し、バルクとしてのガラス組成物（板状物、ガラス試料）を得た。これらのガラス組成物について、以下のとおり特性を評価した。結果を表1及び2に併せて示す。

[0044] (ヤング率)

ヤング率は、通常の超音波法により、ガラス中を伝播する弾性波の縦波速度  $v_l$  と横波速度  $v_t$  を測定し、別にアルキメデス法により測定したガラスの密度  $\rho$  から、 $E = 3\rho \cdot v_t^2 \cdot (v_l^2 - 4/3 \cdot v_t^2) / (v_l^2 - v_t^2)$  の式により求めた。

[0045] (耐酸性)

直径15  $\mu\text{m}$  のガラス単繊維を長さ20mmに切断し、ガラスの比重と同じグラム数取り、このガラス繊維を99℃、比重1.2の硫酸水溶液80mLに60分間浸漬したときの質量減少率を求め、この質量減少率を  $\Delta W$  とした。

[0046] なお、上記質量減少率は、浸漬前の質量を  $W_a$ 、浸漬後の質量を  $W_b$  とし

て、以下の式に基づいて算出した。

$$\text{質量減少率 (\%)} = \{ (W_a - W_b) / W_a \} \times 100$$

[0047] [表1]

実施例	1	2	3	4	5	6	7	8
SiO <sub>2</sub>	57.62	59.64	59.62	59.53	59.90	57.85	56.73	60.06
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	20.41	20.24	20.24	20.21	21.18	24.54	27.28	20.39
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.00	0.00	0.06	0.00	0.00	0.06	0.05	0.00
MgO	18.49	16.67	16.63	17.30	17.41	14.20	12.65	16.79
CaO	0.94	0.93	0.93	0.93	0.00	0.90	0.88	0.93
Li <sub>2</sub> O	0.50	0.49	0.49	0.00	0.50	0.48	0.47	0.50
Na <sub>2</sub> O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
K <sub>2</sub> O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
TiO <sub>2</sub>	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.33
ZrO <sub>2</sub>	2.05	2.03	2.03	2.03	1.02	1.97	1.94	0.00
SiO <sub>2</sub> +TiO <sub>2</sub> +ZrO <sub>2</sub>	60.4	60.3	61.2	60.5	61.6	61.4	60.0	61.8
耐酸性ΔW	0.070	0.205	0.024	0.050	0.200	0.080	0.120	0.240
ヤング率E(GPa)	101.9	100.6	100.6	100.3	100.3	100.9	101.6	100.0

[0048] [表2]

比較例	1	2
SiO <sub>2</sub>	57.29	59.11
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	21.13	23.40
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.15	1.14
MgO	16.04	15.86
CaO	3.72	0.00
Li <sub>2</sub> O	0.50	0.49
Na <sub>2</sub> O	0.11	0.00
K <sub>2</sub> O	0.00	0.00
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.06	0.00
TiO <sub>2</sub>	0.00	0.00
ZrO <sub>2</sub>	0.00	0.00
SiO <sub>2</sub> +TiO <sub>2</sub> +ZrO <sub>2</sub>	57.29	59.11
耐酸性ΔW	0.312	0.200
ヤング率E(GPa)	100.0	97.5

[0049] 各実施例によると、98 GPa以上のヤング率および0.3質量%以下の $\Delta W$ が達成された。一方、各比較例ではこれらの特性を満たすことはできなかった。

[0050] 以上のとおり、本明細書は、以下の技術を開示する。

[0051] (技術1)

質量%で表示して、

SiO <sub>2</sub>	50~65%
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10~30%
MgO	10~20%
CaO	0~7%
TiO <sub>2</sub>	0~5%
ZrO <sub>2</sub>	0~5%

を含み、

SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>およびZrO<sub>2</sub>の含有率の合計が58%以上であり、  
TiO<sub>2</sub>およびZrO<sub>2</sub>の含有率の合計が0.1%以上であり、  
MgOの含有率が10%以上16%未満である場合には、0.1%以上の  
ZrO<sub>2</sub>を含む、ガラス繊維用ガラス組成物。

[0052] (技術2)

質量%で表示して、

SiO <sub>2</sub>	55~62%
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15~30%
MgO	12~20%
CaO	0~4%
TiO <sub>2</sub>	0~3%
ZrO <sub>2</sub>	0~3%

を含む、技術1のガラス組成物。

[0053] (技術3)

質量%で表示して、 $TiO_2$ の含有率と $ZrO_2$ の含有率との合計が0.5%以上5%以下である、技術1または2に記載のガラス組成物。

[0054] (技術4)

質量%で表示して、 $SiO_2$ の含有率が57.5~61.5%の範囲にある、技術1~3のいずれか1つのガラス組成物。

[0055] (技術5)

質量%で表示して、 $Li_2O$ の含有率が0~1.5%の範囲にある、技術1~4のいずれか1つのガラス組成物。

[0056] (技術6)

質量%で表示して、 $Na_2O$ の含有率と $K_2O$ の含有率との合計が0~1%の範囲にある、技術1~5のいずれか1つのガラス組成物。

[0057] (技術7)

質量%で表示して、 $B_2O_3$ の含有率が0~1.5%の範囲にある、技術1~6のいずれか1つのガラス組成物。

[0058] (技術8)

質量%で表示して、 $Y_2O_3$ の含有率と $La_2O_3$ の含有率との合計が0~5%の範囲にある、技術1~7のいずれか1つのガラス組成物。

[0059] (技術9)

ヤング率が98GPa以上である、技術1~8のいずれか1つのガラス組成物。

[0060] (技術10)

$\Delta W$ が0.3質量%以下である、技術1~9のいずれか1つのガラス組成物。

ここで、前記 $\Delta W$ は、質量を前記ガラス組成物の比重と同じ値のグラム数とした前記ガラス組成物を、比重1.2、温度99℃の硫酸液80mLに60分間浸漬したときの質量減少率である。

[0061] (技術11)

技術1~10のいずれか1つのガラス組成物を含むガラス繊維。

## [0062] (技術 1 2)

ストランド、ロービング、ヤーン、クロス、チョップドストランド、グラスウール、及びミルドファイバーからなる群より選択される少なくとも 1 つに該当する形態を有する、技術 1 1 のガラス繊維。

## 請求の範囲

[請求項1]

質量%で表示して、

 $\text{SiO}_2$  50～65% $\text{Al}_2\text{O}_3$  10～30% $\text{MgO}$  10～20% $\text{CaO}$  0～7% $\text{TiO}_2$  0～5% $\text{ZrO}_2$  0～5%

を含み、

 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ の含有率の合計が58%以上であり、

、

 $\text{TiO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ の含有率の合計が0.1%以上であり、 $\text{MgO}$ の含有率が10%以上16%未満である場合には、0.1%以上の $\text{ZrO}_2$ を含む、ガラス繊維用ガラス組成物。

[請求項2]

質量%で表示して、

 $\text{SiO}_2$  55～62% $\text{Al}_2\text{O}_3$  15～30% $\text{MgO}$  12～20% $\text{CaO}$  0～4% $\text{TiO}_2$  0～3% $\text{ZrO}_2$  0～3%

を含む、請求項1に記載のガラス組成物。

[請求項3]

質量%で表示して、 $\text{TiO}_2$ の含有率と $\text{ZrO}_2$ の含有率との合計が0.5%以上5%以下である、請求項1に記載のガラス組成物。

[請求項4]

質量%で表示して、 $\text{SiO}_2$ の含有率が57.5～61.5%の範囲にある、請求項1に記載のガラス組成物。

[請求項5]

質量%で表示して、 $\text{Li}_2\text{O}$ の含有率が0～1.5%の範囲にある、請求項1に記載のガラス組成物。

- [請求項6] 質量%で表示して、 $\text{Na}_2\text{O}$ の含有率と $\text{K}_2\text{O}$ の含有率との合計が0～1%の範囲にある、請求項1に記載のガラス組成物。
- [請求項7] 質量%で表示して、 $\text{B}_2\text{O}_3$ の含有率が0～1.5%の範囲にある、請求項1に記載のガラス組成物。
- [請求項8] 質量%で表示して、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ の含有率と $\text{La}_2\text{O}_3$ の含有率との合計が0～5%の範囲にある、請求項1に記載のガラス組成物。
- [請求項9] ヤング率が98GPa以上である、請求項1に記載のガラス組成物。
- [請求項10]  $\Delta W$ が0.3質量%以下である、請求項1に記載のガラス組成物。  
ここで、前記 $\Delta W$ は、質量を前記ガラス組成物の比重と同じ値のグラム数とした前記ガラス組成物を、比重1.2、温度99℃の硫酸80mLに60分間浸漬したときの質量減少率である。
- [請求項11] 請求項1～10のいずれか1項に記載のガラス組成物を含むガラス繊維。
- [請求項12] スtrand、ロービング、ヤーン、クロス、チョップドstrand、ガラスウール、及びミルドファイバーからなる群より選択される少なくとも1つに該当する形態を有する、請求項11に記載のガラス繊維。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/040292

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
C03C 13/02(2006.01) FI: C03C13/02		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C03C1/00-14/00		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) INTERGLAD		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CN 112745032 A (TAISHAN FIBERGLASS INC.) 04 May 2021 (2021-05-04) paragraph [0001], examples	1-12
X	EP 3287423 A2 (JUSHI GROUP CO., LTD.) 28 February 2018 (2018-02-28) paragraph [0002], examples	1, 3-8, 10-12
X	WO 2015/009686 A1 (PPG INDUSTRIES OHIO, INC.) 22 January 2015 (2015-01-22) specification, page 1, lines 12-13, examples	1, 3-8, 10-12
X	JP 2003-321247 A (NITTO BOSEKI CO., LTD.) 11 November 2003 (2003-11-11) paragraph [0001], examples	1, 3, 5-8, 10-12
X	WO 2022/148275 A1 (TAISHAN FIBERGLASS INC.) 14 July 2022 (2022-07-14) specification, page 1, line 3, examples	1-6, 8, 10-12
X	JP 2022-507967 A (OWENS CORNING INTELLECTUAL CAPITAL, LLC) 18 January 2022 (2022-01-18) claims, examples	1-4, 6-8, 10-12
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 "D" document cited by the applicant in the international application "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 <b>16 January 2024</b>		Date of mailing of the international search report <b>23 January 2024</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2023/040292**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
CN	112745032	A	04 May 2021	(Family: none)	
EP	3287423	A2	28 February 2018	US 2018/0208497	A1
				WO 2017/197933	A2
				CN 108358460	A
				KR 10-2018-0096495	A
WO	2015/009686	A1	22 January 2015	US 2015/0018194	A1
				CN 105392744	A
JP	2003-321247	A	11 November 2003	(Family: none)	
WO	2022/148275	A1	14 July 2022	JP 2023-512885	A
				paragraph [0001], examples	
				CN 112624620	A
				KR 10-2022-0107238	A
JP	2022-507967	A	18 January 2022	WO 2020/112396	A2
				claims, examples	
				US 2020/0165158	A1
				CN 111217531	A
				KR 10-2021-0096138	A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C03C 13/02(2006.01)i FI: C03C13/02		
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（IPC）） C03C1/00-14/00 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 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2024年 日本国実用新案登録公報 1996-2024年 日本国登録実用新案公報 1994-2024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） INTERGLAD		
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
X	CN 112745032 A (TAISHAN FIBERGLASS INC.) 04.05.2021 (2021-05-04) [0001], 実施例	1-12
X	EP 3287423 A2 (JUSHI GROUP CO., LTD.) 28.02.2018 (2018-02-28) [0002], 実施例	1, 3-8, 10-12
X	WO 2015/009686 A1 (PPG INDUSTRIES OHIO, INC.) 22.01.2015 (2015-01-22) 明細書第1ページ第12-13行, 実施例	1, 3-8, 10-12
X	JP 2003-321247 A (日東紡績株式会社) 11.11.2003 (2003-11-11) [0001], 実施例	1, 3, 5-8, 10-12
X	WO 2022/148275 A1 (TAISHAN FIBERGLASS INC.) 14.07.2022 (2022-07-14) 明細書第1ページ第3行, 実施例	1-6, 8, 10-12
X	JP 2022-507967 A (オウエンス コーニング インテレクチュアル キャピタル リミ テッド ライアビリティ カンパニー) 18.01.2022 (2022-01-18) 特許請求の範囲, 実施例	1-4, 6-8, 10-12
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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、一般的技术水準を示すもの “D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献 “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抵 触するものではなく、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	16.01.2024	国際調査報告の発送日 23.01.2024
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官）  永田 史泰 4T 3029  電話番号 03-3581-1101 内線 3465	

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/040292

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
CN 112745032 A	04.05.2021	(ファミリーなし)	
EP 3287423 A2	28.02.2018	US 2018/0208497 A1	
		WO 2017/197933 A2	
		CN 108358460 A	
		KR 10-2018-0096495 A	
WO 2015/009686 A1	22.01.2015	US 2015/0018194 A1	
		CN 105392744 A	
JP 2003-321247 A	11.11.2003	(ファミリーなし)	
WO 2022/148275 A1	14.07.2022	JP 2023-512885 A	
		[0001], 実施例	
		CN 112624620 A	
		KR 10-2022-0107238 A	
JP 2022-507967 A	18.01.2022	WO 2020/112396 A2	
		特許請求の範囲, 実施例	
		US 2020/0165158 A1	
		CN 111217531 A	
		KR 10-2021-0096138 A	