

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7702438号
(P7702438)

(45)発行日 令和7年7月3日(2025.7.3)

(24)登録日 令和7年6月25日(2025.6.25)

(51)国際特許分類

F I

C 0 3 C 3/091(2006.01)

C 0 3 C 3/091

C 0 3 C 3/093(2006.01)

C 0 3 C 3/093

C 0 3 C 12/00 (2006.01)

C 0 3 C 12/00

C 0 3 C 13/00 (2006.01)

C 0 3 C 13/00

C 0 3 C 17/06 (2006.01)

C 0 3 C 17/06

Z

請求項の数 35 (全57頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2022-579634(P2022-579634)

(86)(22)出願日 令和4年2月4日(2022.2.4)

(86)国際出願番号 PCT/JP2022/004566

(87)国際公開番号 WO2022/168964

(87)国際公開日 令和4年8月11日(2022.8.11)

審査請求日 令和5年7月31日(2023.7.31)

(31)優先権主張番号 特願2021-17863(P2021-17863)

(32)優先日 令和3年2月5日(2021.2.5)

(33)優先権主張国・地域又は機関
日本国(JP)

(73)特許権者 000004008

日本板硝子株式会社

東京都港区三田三丁目5番27号

(74)代理人 110004314

弁理士法人青藍国際特許事務所

(74)代理人 100107641

弁理士 鎌田 耕一

(72)発明者

藤原 浩輔

東京都港区三田三丁目5番27号 日本

板硝子株式会社内

審査官 三村 潤一郎

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ガラス組成物ならびにガラスファイラーおよびその製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

質量%で表して、

 $45 \leq \text{SiO}_2 \leq 70$ 、 $26 < \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40$ 、 $0.1 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 20$ 、 $0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) < 5$ 、 $0.1 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 5$ 、 $0.1 \leq \text{T-SnO}_2 \leq 2.5$ 、 $0 \leq \text{P}_2\text{O}_5 \leq 0.2$

の成分を含有し、

質量基準で、 $\text{MgO} / (\text{MgO} + \text{CaO}) > 0.5$

が成立する、ガラス組成物。

ただし、 T-SnO_2 は、 SnO_2 に換算した全酸化錫であり、前記ガラス組成物は、 CuO 、 CdO 及び Cl を含むフォトリソミックガラスを除く。

【請求項2】

質量%で表して、

 $55.41 \leq \text{SiO}_2 \leq 75$ 、 $20 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40$ 、 $0.1 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 20$ 、

$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) < 5$ 、

$0.1 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 5$ 、

$0.1 \leq \text{T-SnO}_2 \leq 2.5$ 、

$0 \leq \text{P}_2\text{O}_5 \leq 0.2$

の成分を含有し、

質量基準で、 $\text{MgO} / (\text{MgO} + \text{CaO}) > 0.5$

が成立する、ガラス組成物。

ただし、 T-SnO_2 は、 SnO_2 に換算した全酸化錫であり、

前記ガラス組成物は、 CuO 、 CdO 及び Cl を含むフォトリソミックガラスを除く。

【請求項3】

質量%で表して、

$45 \leq \text{SiO}_2 \leq 75$ 、

$20 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40$ 、

$0.1 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 12.90$ 、

$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) < 5$ 、

$0.1 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 5$ 、

$0.1 \leq \text{T-SnO}_2 \leq 2.5$ 、

$0 \leq \text{P}_2\text{O}_5 \leq 0.2$

の成分を含有し、

質量基準で、 $\text{MgO} / (\text{MgO} + \text{CaO}) > 0.5$

が成立する、ガラス組成物。

ただし、 T-SnO_2 は、 SnO_2 に換算した全酸化錫であり、

前記ガラス組成物は、 CuO 、 CdO 及び Cl を含むフォトリソミックガラスを除く。

【請求項4】

質量%で表して、

$45 \leq \text{SiO}_2 \leq 75$ 、

$20 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40$ 、

$0.1 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 18$ 、

$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) < 5$ 、

$0.1 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 5$ 、

$0.1 \leq \text{T-SnO}_2 \leq 2.5$ 、

$0 \leq \text{P}_2\text{O}_5 \leq 0.2$

の成分を含有し、

質量%表示で、 $(\text{SiO}_2 + \text{B}_2\text{O}_3) \geq 81.33$ 、及び、質量基準で、 $\text{MgO} / (\text{MgO} + \text{CaO}) > 0.5$

が成立する、ガラス組成物。

ただし、 T-SnO_2 は、 SnO_2 に換算した全酸化錫であり、

前記ガラス組成物は、 CuO 、 CdO 及び Cl を含むフォトリソミックガラスを除く。

【請求項5】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$45 \leq \text{SiO}_2 \leq 65$ 、である請求項1、3又は4に記載のガラス組成物。

【請求項6】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$24 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40$ 、である請求項2～4のいずれか1項に記載のガラス組成物。

【請求項7】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$5 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 20$ 、である請求項1又は2に記載のガラス組成物。

【請求項8】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) \leq 4.5$ 、である請求項1～4のいずれか1項に記載のガラ

10

20

30

40

50

ス組成物。

【請求項 9】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$0.1 \leq \text{Li}_2\text{O} \leq 5$ 、である請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

【請求項 10】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$0 \leq \text{P}_2\text{O}_5 < 0.1$ 、である請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

【請求項 11】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$0 \leq \text{F}_2 \leq 1$ 、である請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

10

【請求項 12】

前記ガラス組成物が、質量%で表して、

$0.1 \leq \text{CeO}_2 \leq 5$ 、である請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

【請求項 13】

前記ガラス組成物の粘度が $1000 \text{ dPa} \cdot \text{s}$ であるときの温度を作業温度としたとき、前記作業温度が 1450°C 以下である、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

【請求項 14】

前記ガラス組成物の粘度が $1000 \text{ dPa} \cdot \text{s}$ であるときの温度を作業温度としたとき、前記作業温度から失透温度を差し引いた温度差 ΔT が 0°C 以上である、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

20

【請求項 15】

JIS R 3502：1995 に定められたアルカリ溶出試験に準拠して測定した前記ガラス組成物のアルカリ溶出量が $0.001 \sim 0.40 \text{ mg}$ である、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

【請求項 16】

前記ガラス組成物の周波数 1 GHz における誘電率が 5.0 以下である、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物。

【請求項 17】

請求項 1 ～ 16 のいずれか 1 項のガラス組成物から構成されるガラスフィラー。

30

【請求項 18】

質量%で表して、

$45 \leq \text{SiO}_2 \leq 70$ 、

$26 < \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40$ 、

$0.1 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 20$ 、

$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) \leq 10$ 、

$0 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 5$ 、

$0.1 \leq \text{T-SnO}_2 \leq 2.5$ 、

$0 \leq \text{P}_2\text{O}_5 \leq 0.2$

の成分を含有し、

40

質量基準で、 $\text{MgO} / (\text{MgO} + \text{CaO}) > 0.5$

が成立する、ガラス組成物から構成されるガラスフィラー。

ただし、 T-SnO_2 は、 SnO_2 に換算した全酸化錫である。

【請求項 19】

質量%で表して、

$55.41 \leq \text{SiO}_2 \leq 80$ 、

$10 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40$ 、

$0.1 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 20$ 、

$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) \leq 10$ 、

$0 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 5$ 、

50

$$0.1 \leq T - SnO_2 \leq 2.5,$$

$$0 \leq P_2O_5 \leq 0.2$$

の成分を含有し、

質量基準で、 $MgO / (MgO + CaO) > 0.5$
が成立する、ガラス組成物から構成されるガラスフィラー。

ただし、 $T - SnO_2$ は、 SnO_2 に換算した全酸化錫である。

【請求項 20】

質量%で表して、

$$45 \leq SiO_2 \leq 80,$$

$$10 \leq B_2O_3 \leq 40,$$

$$0.1 \leq Al_2O_3 \leq 12.90,$$

$$0.1 \leq (MgO + CaO) \leq 10,$$

$$0 \leq (Li_2O + Na_2O + K_2O) \leq 5,$$

$$0.1 \leq T - SnO_2 \leq 2.5,$$

$$0 \leq P_2O_5 \leq 0.2$$

の成分を含有し、

質量基準で、 $MgO / (MgO + CaO) > 0.5$
が成立する、ガラス組成物から構成されるガラスフィラー。

ただし、 $T - SnO_2$ は、 SnO_2 に換算した全酸化錫である。

【請求項 21】

質量%で表して、

$$45 \leq SiO_2 \leq 80,$$

$$10 \leq B_2O_3 \leq 40,$$

$$0.1 \leq Al_2O_3 \leq 1.8,$$

$$0.1 \leq (MgO + CaO) \leq 10,$$

$$0 \leq (Li_2O + Na_2O + K_2O) \leq 5,$$

$$0.1 \leq T - SnO_2 \leq 2.5,$$

$$0 \leq P_2O_5 \leq 0.2$$

の成分を含有し、

質量%表示で、 $(SiO_2 + B_2O_3) \geq 81.33$ 、及び、質量基準で、 $MgO / (MgO + CaO) > 0.5$

が成立する、ガラス組成物から構成されるガラスフィラー。

ただし、 $T - SnO_2$ は、 SnO_2 に換算した全酸化錫である。

【請求項 22】

鱗片状ガラス、チョップドストランド、ミルドファイバー、ガラス粉末、ガラスビーズ、フラットファイバー、及び薄片状ガラスからなる群から選ばれる少なくとも1種に該当する、請求項 17～21のいずれか1項に記載のガラスフィラー。

【請求項 23】

鱗片状ガラスである、請求項 22に記載のガラスフィラー。

【請求項 24】

チョップドストランドである、請求項 22に記載のガラスフィラー

【請求項 25】

ミルドファイバーである、請求項 22に記載のガラスフィラー。

【請求項 26】

ガラス粉末である、請求項 22に記載のガラスフィラー。

【請求項 27】

ガラスビーズである、請求項 22に記載のガラスフィラー。

【請求項 28】

フラットファイバーである、請求項 22に記載のガラスフィラー。

【請求項 29】

10

20

30

40

50

薄片状ガラスである、請求項 22 に記載のガラスフィラー。

【請求項 30】

請求項 17～29 のいずれか 1 項に記載のガラスフィラーと、前記ガラスフィラーの表面に形成された被膜とを含み、

前記被膜が金属または金属酸化物を主成分とする、被膜付きガラスフィラー。

【請求項 31】

請求項 17～29 のいずれか 1 項に記載のガラスフィラーおよび請求項 30 に記載の被膜付きガラスフィラーから選択される少なくとも 1 つを含有する樹脂組成物。

【請求項 32】

請求項 17～29 のいずれか 1 項に記載のガラスフィラーおよび請求項 30 に記載の被膜付きガラスフィラーから選択される少なくとも 1 つを含有する塗料。

【請求項 33】

請求項 17～29 のいずれか 1 項に記載のガラスフィラーおよび請求項 30 に記載の被膜付きガラスフィラーから選択される少なくとも 1 つを含有するインキ組成物。

【請求項 34】

請求項 17～29 のいずれか 1 項に記載のガラスフィラーおよび請求項 30 に記載の被膜付きガラスフィラーから選択される少なくとも 1 つを含有する化粧料。

【請求項 35】

請求項 1～16 のいずれか 1 項に記載のガラス組成物を熔融する工程と、熔融した前記ガラス組成物をガラスフィラーへと成形する工程と、を含む、
ガラスフィラーの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ガラス組成物と当該組成物により構成されるガラスフィラーと、その製造方法とに関する。本発明は、さらに、当該ガラスフィラーを含有する樹脂組成物、塗料、インキ組成物、および化粧料に関する。

【背景技術】

【0002】

ガラスフィラーを樹脂マトリクス中に分散させると、樹脂成形体の強度や寸法精度を向上できる。この用途のフィラーとして、鱗片状、繊維状、粉末状、ビーズ状などの形態を有するガラスフィラーが知られている。ガラスフィラーは、ライニング材として金属またはコンクリートの表面に塗布される塗料に配合されうる。この用途のフィラーとして、鱗片状などの形態を有するガラスフィラーが知られている。これら補強用充填材としての用途以外にもガラスフィラーは、例えば顔料として、樹脂組成物、塗料、インキ組成物、化粧料などの種々の物品に配合されうる。

【0003】

表面を金属で被覆すると、ガラスフィラーは金属色を呈する。表面を金属酸化物で被覆すると、ガラスフィラーは反射光の干渉による干渉色を呈する。このような金属または金属酸化物を主成分とする被膜を表面に有するガラスフィラー（被膜付きガラスフィラー）は、例えば光輝性顔料として使用でき、塗料あるいは化粧料といった色調および光沢が重要視される用途への使用が拡大している。光輝性顔料として塗料や化粧料に配合されるフィラーとして、鱗片状などの形態を有するガラスフィラーが知られている。

【0004】

また、電子機器が備える各種部品には、電気絶縁部材及び機構部材として、樹脂組成物が広く使用されている。電気絶縁部材の例は、SMT（surface mount technology）、FPC（flexible printed circuits）、ボード間、CPU（central processing unit）ソケット、メモリカード、カードエッジ、光コネクタ等に用いるコネクタハウジング、LCD（liquid crystal display）バックライト、コイル、フラット、トランス、磁気ヘッド等に用いるリアクタンス用ボビン、リレーケース、リレーベーススイッチ、リフローデ

10

20

30

40

50

イップスイッチ、タクトスイッチ等に用いる開閉器、センサーケース、コンデンサケーシング、ボリュウムケーシング、トリマーケーシングである。機構部品の例は、光ピックアップ用のレンズホルダ及びピックアップベース、マイクロモータ用の絶縁体及び端子、並びにレーザプリンタ用ドラムである。樹脂組成物は、FPC用ベースフィルム、銅張積層板用ベースフィルム等のフィルムとしても使用されている。また、電子機器が備えるプリント回路板（printed circuit board）の一種にも樹脂組成物から構成される基板がある。電子部品が実装される前のプリント配線板（printed wiring board）にも樹脂組成物から構成される基板がある。以下、本明細書では、プリント回路板及びプリント配線板の双方を合わせて、「プリント基板（printed board）」と記載する。

【0005】

上記の樹脂組成物は、熱可塑性樹脂と無機充填材とを含み、必要に応じ、硬化剤、改質剤等を更に含む。無機充填材としては、ガラスフィラーが使用されることがある。代表的なガラスフィラーは鱗片状ガラスである。プリント基板にはガラス繊維が更に含まれることがある。近年、電子機器の小型化の要求と、高機能化を目的とした薄型化の要求とに応えるため、樹脂組成物には低誘電率化が求められ、それに応じてその構成材料にも低誘電率化が求められている。

【0006】

特許文献1には、化学的耐久性を重視したCガラス組成、電気製品用に開発されたEガラス組成、および板ガラスとして一般的なガラス組成を有する鱗片状ガラスが開示されている。特許文献2には、 SiO_2 および Al_2O_3 の含有率、ならびにアルカリ金属酸化物の含有率の合計（ $\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ ）を制御することによって耐熱性、化学的耐久性および成形し易さを向上させた鱗片状ガラスが開示されている。特許文献3には、低誘電率のガラス組成物から構成されたガラス繊維が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【文献】特開昭63-201041号公報

【文献】国際公開第2010/024283号

【文献】特開昭62-226839号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

ガラス組成物には、量産に適した特性を有することが求められる。ガラス長繊維は、例えば、耐火窯槽内で熔融されたガラス素地を紡糸して得られる。このようなガラス繊維の製造方法においても、ガラス素地中に存在する気泡によりガラス繊維の切断が発生し易い。鱗片状ガラスは、例えば、耐火窯槽で熔融されたガラス素地から成形された中空状ガラス膜を粉砕して得られる。このような鱗片状ガラスの製造方法においては、ガラス素地中に存在する気泡により中空状ガラス膜の割れが発生し易い。また、チョップドストランドは、例えば、耐火窯槽内で熔融されたガラス素地から紡糸されたガラス繊維を切断して得られる。このようなチョップドストランドの製造方法においても、ガラス素地中に存在する気泡によりガラス繊維の切断が発生し易い。

【0009】

特に低誘電率のガラス組成物は、比較的粘度が高く、ガラス原料の熔解時に発生する気泡がガラス素地中に残存し易い。

【0010】

特許文献1～3に記載されたガラス組成物は、熔融されたガラス素地から脱泡を行うための清澄剤を含まない、もしくはガラスを熔解する際の清澄性が考慮されていなかった。

【0011】

本発明の目的の一つは、ガラスフィラーまたはガラス繊維として、安定的に製造することができるガラス組成物を提供することにある。

10

20

30

40

50

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明者は、清澄剤として酸化錫を採用するとともに、 $T-SnO_2$ 含有率を定めることにより、このようなガラス組成物が得られることを見出した。

【0013】

本発明のガラス組成物は、酸化錫を含有し、酸化錫の含有率が、質量%で表して、

$$0.1 \leq T-SnO_2 \leq 2.5,$$

(ただし、 $T-SnO_2$ は、 SnO_2 に換算した全酸化錫である)

である、ガラス組成物である。

【0014】

本発明のガラス繊維は、本発明のガラス組成物から構成されるガラス繊維であり、本発明のガラスフィラーは、本発明のガラス組成物から構成されるガラスフィラーである。

【0015】

本発明の被膜付きガラスフィラーは、上記本発明のガラスフィラーと、当該ガラスフィラーの表面に形成された被膜とを含み、前記被膜が金属または金属酸化物を主成分とする。

【0016】

これらのガラスフィラーまたは被膜付きガラスフィラーは、例えば、樹脂組成物、塗料、インキ組成物、および化粧料などの各種の組成物に添加して使用できる。本発明の樹脂組成物、塗料、インキ組成物、および化粧料は、上記本発明のガラスフィラーおよび上記本発明の被膜付きガラスフィラーから選択される少なくとも1つを含有する。

【0017】

本発明のガラスフィラーの製造方法は、本発明のガラス組成物を熔融する工程と、熔融した前記ガラス組成物をガラスフィラーへと成形する工程と、を含む、ガラスフィラーの製造方法である。

【発明の効果】

【0018】

本発明によれば、ガラスフィラーまたはガラス繊維を安定的に製造することができるガラス組成物が得られる。また、紫外線を照射することにより発光するガラス組成物が得られる。紫外線照射による発光は、顔料、センサ用材料、照明用材料、建築用材料などとしての使用において有用である。

【図面の簡単な説明】

【0019】

【図1A】フレーク状ガラスの一例を示す斜視図である。

【図1B】図1Aに示したフレーク状ガラスの平面図である。

【図2】フレーク状ガラスの製造装置の一例を示す断面図である。

【図3】チョップドストランドの製造装置の一例を示す断面図である。

【図4】チョップドストランドの製造装置の一例を示す断面図である。

【図5】フラットファイバーの一例を示す斜視図である。

【図6】フラットファイバーの別の一例を示す斜視図である。

【発明を実施するための形態】

【0020】

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。以下において、「実質的に含まれない」とは、含有率が0.1質量%未満、好ましくは0.05質量%未満、より好ましくは0.01質量%未満、さらに好ましくは0.005質量%未満、特に好ましくは0.003質量%未満、最も好ましくは0.001質量%未満を意味する。「実質的に構成される」とは、記載された成分以外の成分、例えば工業原料、製造装置などから不可避免的に混入する不純物、を「実質的に含まれない」とみなし得る範囲で許容する趣旨である。各成分の含有率、特性その他の好ましい範囲は、以下において個別に記載する上限及び下限を任意に組み合わせて把握できる。

【0021】

[ガラス組成物]

<ガラス組成>

(T-SnO₂)

本実施形態のガラス組成物（以下、ガラス組成A）は、酸化錫を含有する。ガラス中のSnは、通常、Sn²⁺及び／又はSn⁴⁺の状態が存在する。SnO₂はガラス素地中に存在する泡を脱泡する成分である。また、ガラスの耐水性を向上させる成分である。さらに、ガラス中のSnは紫外線の照射により発光する成分である。ガラス組成Aでは、酸化錫について、T-SnO₂（SnO₂に換算した全酸化錫）の含有率の範囲を0.1質量%以上2.5質量%以下とする。T-SnO₂の含有率が0.1質量%未満では、酸化錫によるガラス組成物の十分な清澄効果が得られない。T-SnO₂の含有率が2.5質量%を超えると、ガラス組成物の失透温度が高くなり、またはガラスが分相し易くなる。

10

【0022】

T-SnO₂の含有率の下限は、0.2質量%以上、さらに0.22質量%以上が好ましく、0.25質量%以上がより好ましく、0.3質量%以上がさらに好ましく、0.35質量%以上が特に好ましく、0.4質量%以上が最も好ましい。T-SnO₂の含有率は、0.6質量%以上、さらに0.8質量%以上、場合によっては1.0質量%以上であってもよい。T-SnO₂の含有率の上限は、2質量%以下が好ましく、1.8質量%以下がより好ましく、1.6質量%以下がさらに好ましく、1.4質量%以下が特に好ましく、1.2質量%未満が最も好ましい。

【0023】

(酸化錫以外の成分)

ガラス組成Aは、SiO₂をさらに含有する。ガラス組成AにおけるSiO₂の含有率は、例えば40質量%以上80質量%以下であり、45質量%以上75質量%以下でありうる。

20

【0024】

ガラス組成Aは、B₂O₃を含有しうる。ガラス組成AにおけるB₂O₃の含有率は、ガラス組成物の用途に応じて選択できる。B₂O₃の含有率は、例えば0質量%以上45質量%以下であり、0質量%以上40質量%以下でありうるし、0.1質量%以上40質量%以下でありうる。ガラス組成Aは、B₂O₃が実質的に含まれない組成でありうる。ガラス組成Aは、Al₂O₃を含有しうる。ガラス組成AにおけるAl₂O₃の含有率は、ガラス組成物の用途に応じて選択できる。Al₂O₃の含有率は、0質量%以上35質量%以下、0.1質量%以上30質量%以下、0.5質量%以上30質量%以下、さらに1質量%以上30質量%以下でありうる。

30

【0025】

ガラス組成Aは、アルカリ土類金属酸化物および／またはアルカリ金属酸化物を含有する。アルカリ土類金属酸化物（RO）は、MgO、CaO、SrOおよびBaOから選ばれる少なくとも1種であり、MgO、CaOおよびSrOから選ばれる少なくとも1種でありうるし、MgOおよびCaOから選ばれる少なくとも1種でありうる。ガラス組成Aにおけるアルカリ土類金属酸化物の含有率は、本発明のガラス組成物から構成されるガラス繊維やガラスフィラーの用途に応じて選択できる。ROの含有率は、例えば0質量%以上45質量%以下であり、0.1質量%以上40質量%以下でありうる。アルカリ金属酸化物（R₁O）は、Li₂O、Na₂OおよびK₂Oから選ばれる少なくとも1種である。ガラス組成Aにおけるアルカリ金属酸化物の含有率は、ガラス組成物の用途に応じて選択できる。アルカリ土類金属酸化物とアルカリ金属酸化物の含有率の和（RO+R₁O）は、0.1質量%以上45質量%以下であり、0.1質量%以上40質量%以下でありうるし、0.1質量%以上35質量%以下でありうる。

40

【0026】

すなわちガラス組成Aは、当該組成が、質量%で表示して、

$$40 \leq \text{SiO}_2 \leq 80$$

$$0 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 45$$

50

$$0 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 35$$

$$0.1 \leq \text{RO} + \text{R}'_2\text{O} \leq 45$$

の成分をさらに含有しうる。

【0027】

ガラス組成Aは、上述した各成分から実質的に構成されていてもよいし、上述した各成分から構成されていてもよい。

【0028】

(ガラス組成Aの具体例)

(組成A-1)

より具体的なガラス組成Aの一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$45 \leq \text{SiO}_2 \leq 80、$$

$$10 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 40、$$

$$0.1 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 20、$$

$$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) \leq 10、$$

$$0 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 5、$$

の成分をさらに含有し、

質量%で表示した含有率の比である $\text{MgO} / (\text{MgO} + \text{CaO})$ が0.5を超える、すなわち、 $\text{MgO} / (\text{MgO} + \text{CaO}) > 0.5$ である (組成A-1)。

【0029】

ガラス組成A-1を有するガラス組成物は、ガラスの骨格を形成する成分 (網目成分) の多さに基づく誘電率および屈折率の低さを示しうる。低い誘電率を得るため、組成A-1では、質量%で表示して、 $(\text{SiO}_2 + \text{B}_2\text{O}_3) \geq 78$ 、さらに $(\text{SiO}_2 + \text{B}_2\text{O}_3) \geq 80$ が成立してもよい。

【0030】

ガラス組成A-1における各成分について、以下に説明する。

(SiO₂)

二酸化ケイ素 (SiO₂) は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成A-1の主成分 (含有率が最も大きい成分) である。また、組成A-1においてSiO₂は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、誘電率を下げる作用を有する成分である。組成A-1においてSiO₂の含有率が45質量%以上80質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。SiO₂の含有率の下限は、48質量%以上が好ましく、50質量%以上がより好ましく、52質量%以上、54質量%以上、さらに55質量%以上であってもよい。SiO₂の含有率の上限は、75質量%以下が好ましく、70質量%以下がより好ましく、65質量%以下がさらに好ましく、60質量%以下が特に好ましく、58質量%以下が最も好ましい。

【0031】

(B₂O₃)

三酸化二ホウ素 (B₂O₃) は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、B₂O₃は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、誘電率を下げる作用を有する成分である。一方で、B₂O₃は、ガラス組成物の熔融時に揮発しやすく、その含有率が過大となると、ガラス組成物として十分な均質性が得られ難くなる。また、過度のB₂O₃の含有は、ガラスの耐水性を低下させる。組成A-1においてB₂O₃の含有率が10質量%以上40質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。さらに、この範囲ではガラスの耐水性が高くなる。B₂O₃の含有率の下限は、15質量%以上が好ましく、20質量%以上がより好ましく、24質量%以上がさらに好ましく、25質量%以上が特に好ましく、26質量%より大きいことが最も好ましい。B₂O₃の含有率の上限は、35質量%以下が好ましく、32質量%以下がより好ましく、30質量%以下がさらに好ましく、29質量%以下が特に好ましく、28質量%以下であってもよい。

10

20

30

40

50

【0032】

(Al₂O₃)

酸化アルミニウム (Al₂O₃) は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、Al₂O₃ は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。さらに、Al₂O₃ は、ガラスの誘電率を調整する成分である。組成 A-1 において Al₂O₃ の含有率が 0.1 質量%以上 20 質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。Al₂O₃ の含有率の下限は、1 質量%以上が好ましく、5 質量%以上がより好ましく、8 質量%以上がさらに好ましく、10 質量%以上が特に好ましく、12 質量%以上が最も好ましい。Al₂O₃ の含有率の上限は、18 質量%以下が好ましく、16 質量%以下がより好ましく、15 質量%以下がさらに好ましく、14 質量%以下、さらに 13 質量%以下であってもよい。

10

【0033】

(MgO、CaO)

酸化マグネシウム (MgO) および酸化カルシウム (CaO) は、ガラスの耐熱性を維持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、MgO はおよび CaO は、ガラスの耐水性を向上させる成分である。さらに、MgO および CaO は、ガラスの誘電率を調整する成分である。

【0034】

ガラス組成物の誘電率や耐水性を重視する場合、ガラスの誘電率および耐水性を調整する成分である MgO および CaO の含有率の和 (MgO + CaO) が重要である。組成 A-1 において MgO および CaO の含有率の和 (MgO + CaO) が 0.1 質量%以上 10 質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。さらに、この範囲ではガラスの耐水性が高くなる。MgO および CaO の含有率の和 (MgO + CaO) の下限は、1 質量%以上が好ましく、1.5 質量%以上がより好ましく、2 質量%以上がさらに好ましく、2.5 質量%以上が特に好ましく、3 質量%以上が最も好ましい。MgO および CaO の含有率の和 (MgO + CaO) の上限は、8 質量%以下が好ましく、7 質量%以下、6 質量%以下、5 質量%未満、さらには 4.5 質量%以下であってもよい。

20

【0035】

MgO の添加と CaO の添加とは同様の効果を奏しうるが、誘電率をより低下させるという観点からは、CaO の添加よりも MgO の添加が有利である。また、耐水性をより向上させるという観点からも、CaO の添加よりも MgO の添加が有利である。したがって、 $MgO / (MgO + CaO) > 0.5$ が成立するように、MgO および CaO を添加することが好ましい。

30

【0036】

MgO は、ガラスの耐熱性を維持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、MgO は、ガラスの耐水性を向上させる成分である。さらに、MgO は、ガラスの誘電率を調整する成分である。一方で、過度の MgO の含有はガラスの誘電率を上昇させる。このため、MgO の含有率の下限は、0.1 質量%以上でありうるし、0.5 質量%以上、1 質量%以上、1.5 質量%以上、2 質量%以上、2.5 質量%以上でありうる。MgO の含有率の上限は、10 質量%以下でありうるし、8 質量%以下、6 質量%以下、5 質量%未満、4.5 質量%以下、4 質量%以下、さらに 3 質量%以下でありうる。

40

【0037】

CaO は、ガラスの耐熱性を維持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、CaO は、ガラスの耐水性を向上させる成分である。さらに、CaO は、ガラスの誘電率を調整する成分である。一方で、過度の CaO の含有はガラスの誘電率を上昇させる。このため、CaO の含有率の下限は、0.1 質量%以上でありうるし、0.5 質量%以上、1 質量%以上、2 質量%以上、3 質量%以上、4 質量%以上であり

50

うる。CaOの含有率の上限は、10質量%以下でありうるし、8質量%以下、6質量%以下、さらには5質量%未満でありうる。ガラス組成物の誘電率の調整を特に重要視する場合は、CaOの含有率の上限を、4質量%未満、2質量%未満、さらに1質量%未満としてもよい。

【0038】

(SrO)

ガラス組成A-1は、酸化ストロンチウム(SrO)をさらに含有しうる。SrOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。一方で、過度のSrOの含有はガラスの誘電率を上昇させる。このため、SrOの含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、2質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、さらには0.1質量%未満でありうる。SrOは、実質的に含まれていなくてもよい。

【0039】

(BaO)

ガラス組成A-1は、酸化バリウム(BaO)をさらに含有しうる。BaOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。一方で、過度のBaOの含有はガラスの誘電率を上昇させる。このため、BaOの含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、2質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、さらには0.1質量%未満でありうる。BaOは、実質的に含まれていなくてもよい。ガラス原料の均一な熔融およびガラス組成物の安定的な製造を特に重要視する場合は、BaOの含有率の下限を0.1質量%以上としてもよい。

【0040】

(ZnO)

ガラス組成A-1は、酸化亜鉛(ZnO)をさらに含有しうる。ZnOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、ZnOは、ガラスの誘電率を調整する成分である。一方で、過度のZnOの含有はガラスの誘電率を上昇させる。このため、ZnOの含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、2質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、さらには0.1質量%未満でありうる。ZnOは、実質的に含まれていなくてもよい。

【0041】

(Li₂O、Na₂O、K₂O)

アルカリ金属酸化物(Li₂O、Na₂O、K₂O)は、ガラスの耐熱性を維持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。

【0042】

Li₂Oは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。一方で、過度のLi₂Oの含有はガラスの誘電率を上昇させる。また、過度のLi₂Oの含有は、ガラスの耐水性を低下させる。このため、Li₂Oの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、0.2質量%以上、0.3質量%以上、0.4質量%以上、さらには0.5質量%以上でありうる。Li₂Oの含有率の上限は、4質量%以下でありうるし、3質量%以下、2質量%以下、1.5質量%以下、さらには1質量%以下でありうる。

【0043】

Na₂Oは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。一方で、過度のNa₂Oの含有はガラスの誘電率を上昇させる。また、過度のNa₂Oの含有は、ガラスの耐水性を低下させる。このため、Na₂Oの含有率の上限は、4質量%以下でありうるし、2質量%以下、1.5質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、さらには0.2質量%以下でありうる。

【0044】

K₂Oは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。一方で、過度のK₂Oの含有はガラスの誘電率を上昇させる。また、過度のK₂Oの含有は、ガラスの耐水性を低下させる。このため、K₂Oの含有率の上限は、4質量%以下でありうるし、2質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、0.2質量%以下、さらには0.1質量%未満

10

20

30

40

50

でありうる。 K_2O は、実質的に含まれていなくてもよい。

【0045】

アルカリ金属酸化物の含有率の合計 ($Li_2O + Na_2O + K_2O$) の下限は、0.1 質量%以上でありうるし、0.2 質量%以上、0.3 質量%以上、0.4 質量%以上、さらには0.5 質量%以上でありうる。 ($Li_2O + Na_2O + K_2O$) の上限は、5 質量%以下でありうるし、4 質量%以下、3 質量%以下、2 質量%以下、1.5 質量%以下、さらには1 質量%以下でありうる。アルカリ金属酸化物 ($Li_2O + Na_2O + K_2O$) は、実質的に含まれていなくてもよい。

【0046】

(TiO_2)

ガラス組成A-1は、酸化チタン (TiO_2) をさらに含有しうる。 TiO_2 は、ガラスの熔融性および化学的耐久性を向上させ、ガラスの紫外線吸収特性を向上させる成分である。一方で、過度の TiO_2 の含有はガラスの誘電率を上昇させる。 TiO_2 の含有率の下限は、0.1 質量%以上でありうる。 TiO_2 の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、2 質量%以下、1 質量%未満、0.5 質量%未満、0.2 質量%以下でありうる。これらの上限の範囲において、 TiO_2 の含有による失透温度の過度の上昇を抑制できる。 TiO_2 の含有率の上限は、0.1 質量%未満であってもよい。 TiO_2 は、実質的に含まれていなくてもよい。

【0047】

(ZrO_2)

ガラス組成A-1は、酸化ジルコニウム (ZrO_2) をさらに含有しうる。 ZrO_2 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。一方で、過度の ZrO_2 の含有はガラスの誘電率を上昇させる。 ZrO_2 の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、2 質量%以下、1 質量%未満、0.5 質量%未満、0.2 質量%以下、さらには0.1 質量%未満でありうる。これらの上限の範囲において、 ZrO_2 の含有による、失透温度の過度の上昇を抑制できる。 ZrO_2 は、実質的に含まれていなくてもよい。

【0048】

($T-Fe_2O_3$)

ガラス組成物A-1は、酸化鉄をさらに含有し得る。ガラス組成物中に含まれる鉄 (Fe) は、通常、 Fe^{2+} または Fe^{3+} の状態で存在する。 Fe^{3+} はガラス組成物の紫外線吸収特性を高める成分であり、 Fe^{2+} はガラス組成物の熱線吸収特性を高める成分である。 Fe は、意図的に含ませなくとも、工業用原料により不可避免的に混入する場合がある。 Fe の含有量が少なければ、ガラス組成物の着色を防止することができる。 Fe の含有率の上限は、 $T-Fe_2O_3$ ($T-Fe_2O_3$ は、 Fe_2O_3 に換算した全酸化鉄) により表示して5 質量%以下でありうるし、2 質量%以下、1 質量%未満、0.5 質量%未満、さらには0.2 質量%以下でありうる。 $T-Fe_2O_3$ は0.1 質量%以上であってもよい。 $T-Fe_2O_3$ は、ガラス組成物によっては $T-SnO_2$ による清澄効果を補強することがある。

【0049】

(CeO_2)

ガラス組成A-1は、酸化セリウム (CeO_2) をさらに含有しうる。 CeO_2 は、清澄成分である。 CeO_2 の含有量が少なければ、ガラス組成物の着色を防止することができる。このため、 CeO_2 の含有率の下限は、0.1 質量%以上でありうる。 CeO_2 の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、2 質量%以下、1 質量%以下、0.5 質量%未満でありうる。 CeO_2 の含有率は、これら上限および下限の任意の組み合わせによる範囲をとりうる。 CeO_2 の含有率の上限は、0.1 質量%未満であってもよい。 CeO_2 は、実質的に含まれていなくてもよい。

【0050】

(F_2 , Cl_2)

ガラス組成A-1は、フッ素および／または塩素をさらに含有しうる。フッ素や塩素は分子 (それぞれ F_2 や Cl_2) として含有されていてもよく、陰イオン (それぞれ F^- や Cl^-)

10

20

30

40

50

として含有されていてもよい。本明細書においては、分子や陰イオンで含まれるフッ素や塩素を総称して、それぞれ F_2 や Cl_2 と表記することがある。また、それらの含有率について、分子に換算した質量百分率で表示する。フッ素 (F_2) は、揮発し易いため、熔融時に飛散する可能性があるとともに、ガラス中の含有量を管理し難いという問題もある。 F_2 の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、2 質量%以下、1 質量%以下、0.5 質量%以下、0.2 質量%以下、さらには 0.1 質量%未満でありうる。 F_2 は、実質的に含まれていなくてもよい。塩素 (Cl_2) は、揮発し易いため、熔融時に飛散する可能性があるとともに、ガラス中の含有量を管理し難いという問題もある。 Cl_2 の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、2 質量%以下、1 質量%以下、0.5 質量%以下、0.2 質量%以下、さらには 0.1 質量%未満でありうる。 Cl_2 は、実質的に含まれていなくてもよい。

10

【0051】

(P_2O_5)

ガラス組成 A-1 は、五酸化二リン (P_2O_5) をさらに含有しうる。五酸化二リンは、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する成分でもある。また、 P_2O_5 は、ガラスの誘電率を調整する成分である。一般に、 P_2O_5 の含有率が 2% を超えると、ガラスを熔融する際に熔融窯および蓄熱窯の炉壁が浸食され、窯の寿命が著しく低下しうる。 P_2O_5 の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、2 質量%以下、1 質量%未満、0.5 質量%未満、0.2 質量%以下、さらには 0.1 質量%未満でありうる。 P_2O_5 は、実質的に含まれていなくてもよい。

20

【0052】

(組成 A-2)

より具体的なガラス組成 A の別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$50 \leq SiO_2 \leq 75,$$

$$15 \leq Al_2O_3 \leq 30,$$

$$5 \leq (MgO + CaO) \leq 25,$$

$$0 \leq (Li_2O + Na_2O + K_2O) \leq 4,$$

の成分をさらに含有する (組成 A-2)。

【0053】

ガラス組成 A-2 を有するガラス組成物は、機械的強度や弾性率に優れたガラス組成物となりうる。

30

【0054】

ガラス組成 A-2 における各成分について、以下に説明する。

(SiO_2)

SiO_2 は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成 A-2 の主成分 (含有率が最も大きい成分) である。また、組成 A-2 において SiO_2 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐水性を向上させる成分である。さらに、組成 A-2 において SiO_2 は、ガラスの機械強度を向上させる成分でもある。組成 A-2 において SiO_2 の含有率が 50 質量%以上 75 質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。さらに、この範囲ではガラスの機械的強度が高くなる。 SiO_2 の含有率の下限は、53 質量%以上でありうるし、55 質量%以上、57 質量%以上、58 質量%以上、さらには 59 質量%以上でありうる。 SiO_2 の含有率の上限は、70 質量%以下でありうるし、67 質量%以下、65 質量%以下、63 質量%以下、62 質量%未満、さらには 61 質量%以下でありうる。

40

【0055】

(B_2O_3)

B_2O_3 は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、 B_2O_3 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。一方で、過度の B_2O_3 の含有は、ガラスの耐水性を低下させる。組成 A-2 において B_2O_3 の含有率が 2 質量%以上 15 質量%以下では

50

、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 B_2O_3 の含有率の下限は、0.1質量%以上でありうる。 B_2O_3 の上限は、5質量%以下でありうるし、2質量%以下、1.5質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、さらには0.1質量%以下でありうる。

【0056】

(Al_2O_3)

Al_2O_3 は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、 Al_2O_3 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。さらに、組成A-2において Al_2O_3 は、ガラスの弾性率を向上させる成分でもある。組成A-2において Al_2O_3 の含有率が15質量%以上30質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。さらに、ガラスの弾性率が高くなる。 Al_2O_3 の含有率の下限は、16質量%以上でありうるし、17質量%以上、さらには18質量%以上でありうる。 Al_2O_3 の含有率の上限は、25質量%以下でありうるし、23質量%以下、21質量%以下、さらには20質量%未満でありうる。

【0057】

(MgO 、 CaO)

MgO および CaO は、組成A-2において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、組成A-2において MgO および CaO は、ガラスの弾性率を向上させる成分でもある。

【0058】

組成A-2において、 MgO および CaO の含有率の和($MgO + CaO$)が5質量%以上25質量%以下では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの弾性率が高くなる。

($MgO + CaO$)の下限は、8質量%以上でありうるし、10質量%以上、11質量%以上、12質量%より大きくてもよい。($MgO + CaO$)の上限は、22質量%以下でありうるし、21質量%以下、20質量%以下、19質量%以下、18質量%以下でありうる。

【0059】

組成A-2において MgO の含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、2質量%以上、4質量%以上、6質量%以上、8質量%以上、10質量%以上、さらには12質量%より大きくてもよい。 MgO の含有率の上限は、22質量%以下でありうるし、20質量%以下、18質量%以下、17質量%以下、さらには16質量%以下でありうる。

【0060】

組成A-2において CaO の含有率の下限は、0.1質量%以上でありうる。 CaO の含有率の上限は、20質量%以下でありうるし、15質量%以下、12質量%以下、10質量%以下、8質量%以下でありうる。

【0061】

(SrO) (BaO) (ZnO)

組成A-2は、組成A-1について述べた含有率で、 SrO 、 BaO 、 ZnO をさらに含有しうる。ただし、 SrO 、 BaO および ZnO の含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

【0062】

(Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O)

アルカリ金属酸化物(Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O)は、組成A-2において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成A-2は、組成A-1について述べた含有率で、 Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O を含有しうる。ただし、組成A-2では、 $Li_2O + Na_2O + K_2O$ の上限は4質量%以下に制限される。

【0063】

(TiO_2) (ZrO_2) ($\text{T-Fe}_2\text{O}_3$) (CeO_2) (F_2 , Cl_2) (P_2O_5)

組成 A-2 は、組成 A-1 について述べた含有率で、 TiO_2 、 ZrO_2 、 $\text{T-Fe}_2\text{O}_3$ 、 CeO_2 、 F_2 、 Cl_2 、 P_2O_5 をさらに含有しうる。

【0064】

(組成 A-3)

より具体的なガラス組成 A の別の一例では、当該組成が、質量% で表示して、

$60 \leq \text{SiO}_2 \leq 75$ 、

$2 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 8$ 、

$2 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 8$ 、

$5 < \text{B}_2\text{O}_3 + \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 15$ 、

$3 \leq \text{CaO} \leq 20$ 、

$6 \leq \text{Na}_2\text{O} \leq 20$ 、

$9 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 20$ 、

の成分をさらに含有する (組成 A-3)。

【0065】

ガラス組成 A-3 は、C ガラス組成に対応する。ガラス組成 A-3 は、C ガラス組成物と同様に、ガラスの骨格を形成する成分 (網目成分) の多さに基づく化学的耐久性の高さを示すとともに機械的特性に優れる。

【0066】

ガラス組成 A-3 における各成分について、以下に説明する。

(SiO_2)

SiO_2 は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成 A-3 の主成分 (含有率が最も大きい成分) である。また、組成 A-3 において SiO_2 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐酸性を向上させる成分である。組成 A-3 において SiO_2 の含有率が 60 質量% 以上 75 質量% 以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 SiO_2 の含有率の下限は、63 質量% 以上でありうるし、64 質量% より大きくてもよく、さらには 65 質量% より大きくてもよい。 SiO_2 の含有率の上限は、72 質量% 以下でありうるし、70 質量% 以下でありうる。

【0067】

(B_2O_3)

B_2O_3 は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、 B_2O_3 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。一方で、過度の B_2O_3 の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。組成 A-3 において B_2O_3 の含有率が 2 質量% 以上 8 質量% 以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 B_2O_3 の含有率の下限は、3 質量% 以上でありうるし、4 質量% 以上でありうる。 B_2O_3 の含有率の上限は、7 質量% 以下でありうるし、6 質量% 以下、さらには 5 質量% 以下でありうる。

【0068】

(Al_2O_3)

Al_2O_3 は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、 Al_2O_3 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。一方で、過度の Al_2O_3 の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。組成 A-3 において Al_2O_3 の含有率が 2 質量% 以上 8 質量% 以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 Al_2O_3 の含有率の下限は、3 質量% 以上でありうるし、3.5 質量% 以上、さらには 4 質量% 以上でありうる。 Al_2O_3 の含有率の上限は、7 質量% 以下でありうるし、6 質量% 以下、さらには 5 質量% 以下でありうる。

10

20

30

40

50

【0069】

(B₂O₃+Al₂O₃)

組成A-3では、ガラス組成物の形成し易さおよび耐酸性を重視する場合、B₂O₃およびAl₂O₃の含有率の和(B₂O₃+Al₂O₃)が重要である。組成A-3において(B₂O₃+Al₂O₃)が5質量%より大きく15質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。(B₂O₃+Al₂O₃)の下限は、6質量%以上でありうるし、7質量%以上、さらには8質量%以上でありうる。(B₂O₃+Al₂O₃)の上限は、14質量%以下でありうるし、13質量%以下、12質量%未満、11質量%以下、さらには10質量%以下でありうる。

10

【0070】

(MgO)

組成A-3に含まれた場合にMgOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成A-3において、MgOの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、1質量%以上、さらには2質量%以上でありうる。MgOの含有率の上限は、10質量%以下でありうるし、8質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、さらには4質量%以下でありうる。

【0071】

(CaO)

CaOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成A-3においてCaOの含有率が3質量%以上20質量%以下では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。CaOの含有率の下限は、4質量%以上でありうる。CaOの含有率の上限は、15質量%以下でありうるし、11質量%以下、さらには9質量%以下でありうる。

20

【0072】

(SrO)(BaO)(ZnO)

組成A-3は、組成A-1について述べた含有率で、SrO、BaO、ZnOをさらに含有しうる。ただし、SrO、BaOおよびZnOの含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

【0073】

(Li₂O, Na₂O, K₂O)

アルカリ金属酸化物(Li₂O, Na₂O, K₂O)は、組成A-3において、ガラスの耐熱性を維持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。

【0074】

組成A-3においてLi₂Oの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、さらには0.5質量%以上でありうる。Li₂Oの含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、2質量%未満、さらには1質量%未満でありうる。

30

【0075】

組成A-3において、Na₂Oの含有率が6質量%以上20質量%以下では、ガラスの失透温度および粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。さらに、この範囲ではガラスの化学的耐久性を向上させることも可能となる。Na₂Oの下限は、7質量%以上でありうるし、8質量%以上、9質量%以上、9.5質量%以上、さらには10質量%以上でありうる。Na₂Oの上限は、17質量%以下でありうるし、15質量%以下、13質量%以下、さらには12質量%以下でありうる。

40

【0076】

組成A-3においてK₂Oの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、0.5質量%以上でありうる。組成A-3においてK₂Oの含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、3質量%以下、2質量%未満、さらには1質量%以下でありうる。

50

【0077】

組成A-3において、アルカリ金属酸化物の含有率の合計 ($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$) の値が9質量%以上20質量%以下では、熔融ガラスの失透温度および粘度をガラスファイラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$) の下限は、9.5質量%以上でありうるし、10質量%以上、10.5質量%以上、11質量%以上でありうる。($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$) の上限は、18質量%以下でありうるし、16質量%以下、15質量%以下、14質量%以下、13質量%以下、さらには12質量%以下でありうる。

10

【0078】

(TiO_2) (ZrO_2) ($\text{T-Fe}_2\text{O}_3$) (CeO_2) (F_2 , Cl_2) (P_2O_5)

組成A-3は、組成A-1について述べた含有率で、 TiO_2 、 ZrO_2 、 $\text{T-Fe}_2\text{O}_3$ 、 CeO_2 、 F_2 、 Cl_2 、 P_2O_5 をさらに含有しうる。

【0079】

(組成A-4)

より具体的なガラス組成Aの別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$50 \leq \text{SiO}_2 \leq 60、$$

$$2 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 15、$$

$$10 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 20、$$

$$15 \leq \text{CaO} \leq 30、$$

$$0 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 2、$$

の成分をさらに含有する(組成A-4)。

20

【0080】

ガラス組成A-4は、Eガラス組成に対応する。ガラス組成A-4を有するガラス繊維やガラスファイラーは、さらに、Eガラス組成物と同様に、アルカリ金属酸化物の含有率の少なさに基づく電気絶縁性および化学的耐久性の高さを示すとともに機械的特性に優れる。

【0081】

ガラス組成A-4における各成分について、以下に説明する。

(SiO_2)

30

SiO_2 は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成A-4の主成分(含有率が最も大きい成分)である。また、組成A-4において SiO_2 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐水性を向上させる成分である。組成A-4において SiO_2 の含有率が50質量%以上60質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 SiO_2 の含有率の下限は、51質量%以上でありうるし、52質量%以上、53質量%以上、さらには54質量%以上でありうる。 SiO_2 の含有率の上限は、58質量%以下でありうるし、57質量%以下、さらには56質量%以下でありうる。

【0082】

40

(B_2O_3)

B_2O_3 は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、 B_2O_3 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。一方で、過度の B_2O_3 の含有は、ガラスの耐水性を低下させる。組成A-4において B_2O_3 の含有率が2質量%以上15質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 B_2O_3 の含有率の下限は、3質量%以上でありうるし、4質量%以上、さらには5質量%以上でありうる。 B_2O_3 の含有率の上限は、13質量%以下でありうるし、10質量%以下、8質量%以下、7質量%以下、さらには6質量%以下でありうる。

【0083】

50

(A l₂O₃)

A l₂O₃は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、A l₂O₃は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。組成A-4においてA l₂O₃の含有率が10質量%以上20質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。A l₂O₃の含有率の下限は、11質量%以上でありうるし、12質量%以上、13質量%以上、さらには14質量%以上でありうる。A l₂O₃の含有率の上限は、18質量%以下でありうるし、17質量%以下、16質量%以下、さらには15質量%以下でありうる。

【0084】

(MgO)

組成A-4に含まれた場合にMgOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成A-4においてMgOの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうる。MgOの含有率の上限は、10質量%以下でありうるし、8質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、さらには4質量%以下でありうる。

【0085】

(CaO)

CaOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成A-4においてCaOの含有率が15質量%以上30質量%以下では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。CaOの含有率の下限は、16質量%以上でありうるし、17質量%以上、18質量%以上、さらには19質量%以上でありうる。CaOの含有率の上限は、28質量%以下でありうるし、26質量%以下、さらには25質量%以下でありうる。

【0086】

(SrO) (BaO) (ZnO)

組成A-4は、組成A-1について述べた含有率で、SrO、BaO、ZnOをさらに含有しうる。ただし、SrO、BaOおよびZnOの含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

【0087】

(Li₂O、Na₂O、K₂O)

アルカリ金属酸化物(Li₂O、Na₂O、K₂O)は、組成A-4において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。

【0088】

組成A-4において、アルカリ金属酸化物の含有率の合計(Li₂O+Na₂O+K₂O)の値が0質量%以上2質量%以下では、熔融ガラスの失透温度および粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。(Li₂O+Na₂O+K₂O)の下限は、0質量%より大きくてもよいし、0.1質量%以上でありうる。(Li₂O+Na₂O+K₂O)の上限は、1.5質量%以下でありうるし、1質量%以下、さらには0.8質量%以下でありうる。

【0089】

(TiO₂) (ZrO₂) (T-F e₂O₃) (CeO₂) (F₂、Cl₂) (P₂O₅)

組成A-4は、組成A-1について述べた含有率で、TiO₂、ZrO₂、T-F e₂O₃、CeO₂、F₂、Cl₂、P₂O₅をさらに含有しうる。

【0090】

(組成A-5)

より具体的なガラス組成Aの別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$57 \leq \text{SiO}_2 \leq 65、$$

$$8 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 15、$$

10

20

30

40

50

$$1 \leq \text{MgO} \leq 5、$$
$$15 \leq \text{CaO} \leq 30、$$
$$0 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 4、$$

の成分をさらに含有する（組成A-5）。

【0091】

ガラス組成A-5を有するガラス繊維やガラスフィラーは、さらに耐熱性に優れ、高温に過熱されたときの変形が抑制されるとともに、化学的耐久性、特に耐酸性、に優れる。

【0092】

ガラス組成A-5における各成分について、以下に説明する。

(SiO₂)

SiO₂は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成A-5の主成分（含有率が最も大きい成分）である。また、組成A-5においてSiO₂は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐酸性を向上させる成分である。組成A-5においてSiO₂の含有率が57質量%以上65質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。SiO₂の含有率の下限は、59質量%以上でありうるし、60質量%より大きくてもよい。SiO₂の含有率の上限は、64質量%以下でありうるし、63質量%以下でありうる。

【0093】

(B₂O₃)

組成A-5は、B₂O₃をさらに含有しうる。B₂O₃は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、組成A-5に含まれた場合にB₂O₃は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。組成A-5においてB₂O₃の含有率の上限は、2質量%以下でありうるし、1.5質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、さらには0.1質量%未満でありうる。組成A-5は、B₂O₃を実質的に含有しなくてもよい。

【0094】

(Al₂O₃)

Al₂O₃は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、Al₂O₃は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。一方で、過度のAl₂O₃の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。組成A-5においてAl₂O₃の含有率が8質量%以上15質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。Al₂O₃の含有率の下限は、9質量%以上でありうるし、10質量%以上でありうる。Al₂O₃の含有率の上限は、13質量%以下でありうるし、12質量%未満でありうる。

【0095】

(SiO₂-Al₂O₃)

組成A-5では、ガラスの耐酸性に関し、SiO₂およびAl₂O₃の含有率のバランスが重要となる。ガラスの耐酸性が向上する観点からは、SiO₂の含有率からAl₂O₃の含有率を引いた値（SiO₂-Al₂O₃）の下限は、47質量%以上が好ましく、49質量%より大きいことが好ましい。また、（SiO₂-Al₂O₃）の上限は、57質量%以下が好ましく、56質量%以下、55質量%以下、54質量%以下、53質量%以下、52質量%以下の順により好ましい。

【0096】

(MgO、CaO)

MgOおよびCaOは、組成A-5において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成A-5においてMgOの含有率が1質量%以上5質量%以下では、失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。MgOの含有率の下限は、1.5質量%以上でありうるし、2質量%以上でありうる。MgOの含有率の上限は、4.5質量%以下でありうるし、4質量%以

10

20

30

40

50

下でありうる。

【0097】

組成A-5においてCaOの含有率が15質量%以上30質量%以下では、失透温度および熔融時の粘度をガラスファイラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。CaOの含有率の下限は、18質量%以上でありうるし、19質量%以上、さらには20質量%以上でありうる。CaOの含有率の上限は、27質量%以下でありうるし、25質量%以下、さらには24質量%以下でありうる。

【0098】

(SrO)(BaO)(ZnO)

組成A-5は、組成A-1について述べた含有率で、SrO、BaO、ZnOをさらに含有しうる。ただし、SrO、BaOおよびZnOの含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

10

【0099】

(Li₂O, Na₂O, K₂O)

アルカリ金属酸化物(Li₂O, Na₂O, K₂O)は、組成A-5において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。

【0100】

組成A-5において、アルカリ金属酸化物の含有率の合計(Li₂O+Na₂O+K₂O)の値が0質量%以上4質量%以下では、熔融ガラスの失透温度および粘度を、ガラスファイラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。(Li₂O+Na₂O+K₂O)の下限は、0質量%より大きくてもよいし、0.1質量%以上でありうる。(Li₂O+Na₂O+K₂O)の上限は、3質量%以下でありうるし、2質量%未満でありうる。組成A-5において、ガラス原料の均一な熔融およびガラス組成物の製造し易さを特に重要視する場合は、(Li₂O+Na₂O+K₂O)の値を2質量%以上4質量%以下としてもよい。組成A-5において、ガラス組成物の耐アルカリ性を特に重要視する場合は、(Li₂O+Na₂O+K₂O)の値を0.1質量%未満としてもよい。

20

【0101】

組成A-5において、アルカリ金属酸化物のなかでも酸化リチウム(Li₂O)が、上述したアルカリ金属酸化物に基づく効果について特に高い寄与を示す。この観点からは、組成A-5におけるLi₂Oの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、0.4質量%以上でありうる。Li₂Oの含有率の上限は、3質量%以下でありうるし、2質量%未満、さらには1質量%以下でありうる。組成A-5において、ガラス原料の均一な熔融およびガラス組成物の製造し易さを特に重要視する場合は、Li₂Oの含有率を2質量%以上4質量%以下としてもよい。

30

【0102】

(TiO₂)(ZrO₂)(T-Fe₂O₃)(CeO₂)(F₂, Cl₂)(P₂O₅)

組成A-5は、組成A-1について述べた含有率で、TiO₂、ZrO₂、T-Fe₂O₃、CeO₂、F₂、Cl₂、P₂O₅をさらに含有しうる。

40

【0103】

(組成A-6)

より具体的なガラス組成Aの別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$65 < \text{SiO}_2 \leq 70、$$

$$5 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 15、$$

$$1 \leq \text{MgO} \leq 10、$$

$$10 \leq \text{CaO} \leq 25、$$

$$0 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 4、$$

の成分をさらに含有する(組成A-6)。

【0104】

50

ガラス組成 A-6 を有するガラス繊維やガラスフィラーは、さらに、耐熱性に優れ、高温に過熱されたときの変形が抑制されるとともに、化学的耐久性、特に耐酸性、に優れる。

【0105】

ガラス組成 A-6 における各成分について、以下に説明する。

(SiO₂)

SiO₂は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成 A-6 の主成分（含有率が最も大きい成分）である。また、組成 A-6 において SiO₂は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐酸性を向上させる成分である。組成 A-6 において SiO₂の含有率が 65 質量%より大きく 70 質量%以下では、ガラスの失透温度の過度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。SiO₂の含有率の下限は、66 質量%以上でありうる。SiO₂の含有率の上限は、69 質量%以下でありうるし、68 質量%以下、さらには 67 質量%以下でありうる。

10

【0106】

(B₂O₃)

組成 A-6 は、B₂O₃をさらに含有しうる。B₂O₃は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、組成 A-6 に含まれた場合に B₂O₃は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。組成 A-6 において B₂O₃の含有率の上限は、2 質量%以下でありうるし、1.5 質量%以下、1 質量%以下、0.5 質量%以下、さらには 0.1 質量%未満でありうる。組成 A-6 は、B₂O₃を実質的に含有しなくてもよい。

20

【0107】

(Al₂O₃)

Al₂O₃は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、Al₂O₃は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。一方で、過度の Al₂O₃の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。組成 A-6 において Al₂O₃の含有率が 5 質量%以上 15 質量%以下では、失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。Al₂O₃の含有率の下限は、6 質量%以上でありうるし、8 質量%以上、さらには 10 質量%以上でありうる。Al₂O₃の含有率の上限は、13 質量%以下でありうるし、12 質量%未満でありうる。

30

【0108】

(SiO₂-Al₂O₃)

組成 A-6 では、ガラスの耐酸性に関し、SiO₂および Al₂O₃の含有率のバランスが重要となる。ガラスの耐酸性が向上する観点からは、SiO₂の含有率から Al₂O₃の含有率を引いた値 (SiO₂-Al₂O₃) の下限は、50 質量%より大きいことが好ましく、51 質量%以上がより好ましく、52 質量%以上がさらに好ましく、53 質量%より大きいことが最も好ましい。また、(SiO₂-Al₂O₃) の上限は、60 質量%以下が好ましく、59 質量%以下、58 質量%以下、57 質量%以下の順により好ましい。

【0109】

(MgO、CaO)

MgO および CaO は、組成 A-6 において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成 A-6 において MgO の含有率が 1 質量%以上 10 質量%以下では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。MgO の含有率の下限は、2 質量%以上でありうる。MgO の含有率の上限は、8 質量%以下でありうるし、5 質量%以下、さらには 4 質量%以下でありうる。

40

【0110】

組成 A-6 において CaO の含有率が 10 質量%以上 25 質量%以下では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。CaO の含有率の下限は、12 質量%以上でありうるし、14 質量%以上

50

、さらには15質量%より大きいことがありうる。CaOの含有率の上限は、23質量%以下でありうるし、21質量%以下、さらには20質量%以下でありうる。

【0111】

(SrO)(BaO)(ZnO)

組成A-6は、組成A-1について述べた含有率で、SrO、BaO、ZnOをさらに含有しうる。ただし、SrO、BaOおよびZnOの含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

【0112】

(Li₂O、Na₂O、K₂O)

アルカリ金属酸化物(Li₂O、Na₂O、K₂O)は、組成A-6において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。

10

【0113】

組成A-6において、アルカリ金属酸化物の含有率の合計(Li₂O+Na₂O+K₂O)の値が0質量%以上4質量%以下では、ガラスの失透温度および粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。(Li₂O+Na₂O+K₂O)の下限は、0.1質量%以上でありうるし、1質量%以上、1.5質量%以上、さらには2質量%以上でありうる。(Li₂O+Na₂O+K₂O)の上限は、3.5質量%以下でありうるし、3質量%未満でありうる。

20

【0114】

組成A-6において、アルカリ金属酸化物のなかでも酸化リチウム(Li₂O)が、上述したアルカリ金属酸化物に基づく効果について特に高い寄与を示す。この観点からは、組成A-6におけるLi₂Oの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、0.5質量%以上、さらには1質量%以上でありうる。Li₂Oの含有率の上限は、3質量%以下でありうるし、2質量%未満でありうるし、1質量%以下でありうる。

【0115】

(TiO₂)(ZrO₂)(T-Fe₂O₃)(CeO₂)(F₂、Cl₂)(P₂O₅)

組成A-6は、組成A-1について述べた含有率で、TiO₂、ZrO₂、T-Fe₂O₃、CeO₂、F₂、Cl₂、P₂O₅をさらに含有しうる。

30

【0116】

(組成A-7)

より具体的なガラス組成Aの別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$60 \leq \text{SiO}_2 \leq 70、$$

$$5 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 15、$$

$$1 \leq \text{MgO} \leq 10、$$

$$10 \leq \text{CaO} \leq 25、$$

$$4 < (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) < 9、$$

の成分をさらに含有する(組成A-7)。

【0117】

ガラス組成A-7を有するガラス繊維やガラスフィラーは、さらに、耐熱性に優れ、高温に過熱されたときの変形が抑制されるとともに、化学的耐久性、特に耐酸性、に優れる。

40

【0118】

ガラス組成A-7における各成分について、以下に説明する。

(SiO₂)

SiO₂は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成A-7の主成分(含有率が最も大きい成分)である。また、組成A-7においてSiO₂は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐酸性を向上させる成分である。組成A-7においてSiO₂の含有率が60質量%以上70質量%以下では、失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることがな

50

く、原料を熔融する際の均一性が増す。 SiO_2 の含有率の下限は、63質量%以上でありうるし、64質量%以上、さらには65質量%より大きいことがありうる。 SiO_2 の含有率の上限は、69質量%以下でありうるし、68質量%以下、さらには67質量%以下でありうる。

【0119】

(B_2O_3)

組成A-7は、 B_2O_3 をさらに含有しうる。 B_2O_3 は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、組成A-7に含まれた場合に B_2O_3 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。組成A-7において B_2O_3 の含有率の上限は、2質量%以下でありうるし、1.5質量%以下、1質量%以下、0.5質量%以下、さらには0.1質量%未満でありうる。組成A-7は、 B_2O_3 を実質的に含有しなくてもよい。

10

【0120】

(Al_2O_3)

Al_2O_3 は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、 Al_2O_3 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。一方で、過度の Al_2O_3 の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。組成A-7において Al_2O_3 の含有率が5質量%以上15質量%以下では、ガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 Al_2O_3 の含有率の下限は、6質量%以上でありうるし、8質量%以上、9質量%以上、さらには10質量%以上でありうる。 Al_2O_3 の含有率の上限は、13質量%以下でありうるし、12質量%未満でありうる。

20

【0121】

($\text{SiO}_2 - \text{Al}_2\text{O}_3$)

組成A-7では、ガラスの耐酸性に関し、 SiO_2 および Al_2O_3 の含有率のバランスが重要となる。ガラスの耐酸性が向上する観点からは、 SiO_2 の含有率から Al_2O_3 の含有率を引いた値($\text{SiO}_2 - \text{Al}_2\text{O}_3$)の下限は、50質量%より大きいことが好ましく、51質量%以上がより好ましく、52質量%以上がさらに好ましく、53質量%より大きいことが最も好ましい。また、($\text{SiO}_2 - \text{Al}_2\text{O}_3$)の上限は、60質量%以下が好ましく、59質量%以下、58質量%以下、57質量%以下の順により好ましい。

【0122】

(MgO 、 CaO)

MgO および CaO は、組成A-7において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。組成A-7において MgO の含有率が1質量%以上10質量%以下では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。 MgO の含有率の下限は、2質量%以上でありうる。 MgO の含有率の上限は、8質量%以下、5質量%以下、さらには4質量%以下でありうる。組成A-7において CaO の含有率が10質量%以上25質量%以下では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。 CaO の含有率の下限は、12質量%以上でありうるし、13質量%以上、14質量%以上、さらには15質量%より大きいことがありうる。 CaO の含有率の上限は、23質量%以下でありうるし、21質量%以下、20質量%以下、19質量%以下、さらには18質量%以下でありうる。

30

40

【0123】

(SrO) (BaO) (ZnO)

組成A-7は、組成A-1について述べた含有率で、 SrO 、 BaO 、 ZnO をさらに含有しうる。ただし、 SrO 、 BaO および ZnO の含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

【0124】

(Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O)

アルカリ金属酸化物(Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O)は、組成A-7において、ガラス形

50

成時の失透温度および粘度を調整する成分である。

【0125】

組成A-7において、アルカリ金属酸化物の含有率の合計 ($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$) の値が4質量%より大きく9質量%未満では、ガラスの失透温度および粘度をガラスファイラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$) の下限は、4.5質量%以上でありうるし、5質量%以上でありうる。($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$) の上限は、8.5質量%以下でありうるし、8質量%以下でありうる。

【0126】

組成A-7において、アルカリ金属酸化物のなかでも酸化リチウム (Li_2O) が、上述したアルカリ金属酸化物に基づく効果について特に高い寄与を示す。この観点からは、組成A-7における Li_2O の含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、0.5質量%以上、さらには1質量%以上でありうる。 Li_2O の含有率の上限は、3質量%以下でありうるし、2質量%未満でありうる。

【0127】

(TiO_2) (ZrO_2) ($\text{T-Fe}_2\text{O}_3$) (CeO_2) (F_2 , Cl_2) (P_2O_5)

組成A-7は、組成A-1について述べた含有率で、 TiO_2 、 ZrO_2 、 $\text{T-Fe}_2\text{O}_3$ 、 CeO_2 、 F_2 、 Cl_2 、 P_2O_5 をさらに含有する。

【0128】

(組成A-8, A-9)

より具体的なガラス組成Aの別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$\begin{aligned} 60 &\leq \text{SiO}_2 \leq 75, \\ 5 &< \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 15, \\ 5 &\leq \text{CaO} \leq 20, \\ 6 &\leq \text{Na}_2\text{O} \leq 13, \\ 9 &\leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 13, \end{aligned}$$

の成分をさらに含有する(組成A-8)。

【0129】

より具体的なガラス組成Aの別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$\begin{aligned} 60 &\leq \text{SiO}_2 \leq 75, \\ 5 &< \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 15, \\ 3 &\leq \text{CaO} \leq 15, \\ 9 &\leq \text{Na}_2\text{O} \leq 20, \\ 13 &< (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 20, \end{aligned}$$

の成分をさらに含有する(組成A-9)。

【0130】

ガラス組成A-8, A-9を有するガラス繊維やガラスファイラーは、さらに、耐熱性および化学的耐久性、特に耐酸性、に優れる。

【0131】

ガラス組成A-8, A-9における各成分について、以下に説明する。

(SiO_2)

SiO_2 は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成A-8, A-9の主成分である。また、組成A-8, A-9において SiO_2 は、ガラスの耐熱性を保持しながらガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐酸性を向上させる成分である。組成A-8, A-9において SiO_2 の含有率が60質量%以上75質量%以下では、ガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 SiO_2 の含有率の下限は、63質量%以上でありうるし、64質量%以上、さらには65質量%より大きいことがありうる。 SiO_2 の含有率の上限は、70質量%以下でありうるし、68質

10

20

30

40

50

量%以下、さらには67質量%以下でありうる。

【0132】

(B₂O₃)

組成A-8, A-9は、B₂O₃をさらに含有しうる。B₂O₃は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、組成A-8, A-9に含まれた場合にB₂O₃は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。組成A-8, A-9においてB₂O₃の含有率の上限は、6質量%以下でありうるし、2質量%未満、1質量%未満、さらには0.1質量%未満でありうる。組成A-8, A-9は、B₂O₃を実質的に含有しなくてもよい。

【0133】

(Al₂O₃)

Al₂O₃は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、組成A-8, A-9においてAl₂O₃は、ガラスの耐熱性を保持しながらガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。一方で、過度のAl₂O₃の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。組成A-8, A-9においてAl₂O₃の含有率が5質量%を超え15質量%以下では、Al₂O₃の含有による失透温度および粘度の調整効果が十分に得られ、ガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性および耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。Al₂O₃の含有率の下限は、6質量%以上でありうるし、7質量%以上、さらには8質量%超でありうる。Al₂O₃の含有率の上限は、13質量%以下でありうるし、12質量%以下、さらには12質量%未満でありうる。

【0134】

(MgO)

組成A-8, A-9は、MgOをさらに含有しうる。組成A-8, A-9に含まれた場合にMgOは、ガラスの耐熱性を保持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。すなわち、組成A-8, A-9においてMgOの含有は必須ではないが、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整するための成分として含有されうる。組成A-8, A-9におけるMgOの含有率の下限は、0質量%以上でありうるし、0.1質量%以上、1質量%以上、さらには2質量%以上でありうる。MgOの含有率の上限は、10質量%以下でありうるし、8質量%以下、5質量%以下、さらには4質量%以下でありうる。MgOが含まれる場合、その含有率をこれらの範囲とすることによって、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。

【0135】

(CaO)

CaOは、組成A-8, A-9において、ガラスの耐熱性を保持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。CaOの含有率は、アルカリ金属酸化物の含有率の合計(Li₂O+Na₂O+K₂O)により異なる。アルカリ金属酸化物の含有率の合計(Li₂O+Na₂O+K₂O)が9質量%以上13質量%以下の場合、CaOの含有率は5質量%以上20質量%以下である(組成A-8)。組成A-8では、アルカリ金属酸化物の含有率の合計とCaOの含有率とがこれらの範囲にあることによって、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。この場合、CaOの含有率の下限は、8質量%以上でありうるし、9質量%以上、10質量%以上、さらには10質量%より大きくてもよい。CaOの含有率の上限は、18質量%以下でありうるし、16質量%以下、さらには15質量%以下でありうる。

【0136】

アルカリ金属酸化物の含有率の合計(Li₂O+Na₂O+K₂O)が13質量%を超え20質量%以下の場合、CaOの含有率は3質量%以上15質量%以下である(組成A-9)。組成A-9では、アルカリ金属酸化物の含有率の合計とCaOの含有率とがこれらの範囲にあることによって、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガ

10

20

30

40

50

ラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。この場合、 CaO の含有率の下限は、4質量%以上でありうるし、5質量%以上、さらには6質量%以上でありうる。 CaO の含有率の上限は、12質量%以下でありうるし、10質量%以下でありうる。

【0137】

組成A-8, A-9においてガラス組成物の成形し易さを重視する場合、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である MgO および CaO の含有率の合計($\text{MgO} + \text{CaO}$)の値に着目できる。好ましい($\text{MgO} + \text{CaO}$)の値は、組成A-8, A-9におけるアルカリ金属酸化物の含有率の合計($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)により異なる。

【0138】

アルカリ金属酸化物の含有率の合計($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)が9質量%以上13質量%以下の場合、($\text{MgO} + \text{CaO}$)は5質量%以上30質量%以下でありうる。組成A-8では、アルカリ金属酸化物の含有率の合計と MgO および CaO の含有率の合計とがこれらの範囲にあることによって、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの高い耐酸性を確保できる。この場合、($\text{MgO} + \text{CaO}$)の下限は、11質量%以上でありうるし、12質量%以上、13質量%以上、さらには14質量%以上でありうる。($\text{MgO} + \text{CaO}$)の上限は、26質量%以下でありうるし、23質量%以下、さらには20質量%以下でありうる。

【0139】

アルカリ金属酸化物の含有率の合計($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)が13質量%を超え20質量%以下の場合、($\text{MgO} + \text{CaO}$)は3質量%以上25質量%以下でありうる。組成A-9では、アルカリ金属酸化物の含有率の合計と MgO および CaO の含有率の合計とがこれらの範囲にあることによって、ガラスの失透温度および熔融時の粘度をガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの高い耐酸性を確保できる。この場合、($\text{MgO} + \text{CaO}$)の下限は、6質量%以上でありうるし、8質量%以上、9質量%以上、さらには10質量%以上でありうる。($\text{MgO} + \text{CaO}$)の上限は、20質量%以下でありうるし、17質量%以下、さらには15質量%以下でありうる。

【0140】

(SrO) (BaO) (ZnO)

組成A-8, A-9は、それぞれ、組成A-1について述べた含有率で、 SrO 、 BaO 、 ZnO をさらに含有しうる。ただし、 SrO 、 BaO および ZnO の含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

【0141】

(Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O)

アルカリ金属酸化物(Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O)は、組成A-8, A-9において、ガラスの耐熱性を維持しつつ、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。アルカリ金属酸化物の含有率の合計($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)は、組成A-8では9質量%以上13質量%以下であり、組成A-9では13質量%を超え20質量%以下である。アルカリ金属酸化物の含有量の合計がこれらの範囲にあることによって組成A-8, A-9では、ガラスの失透温度および熔融時の粘度が低下してガラスの成形性が向上し、ガラス繊維やガラスフィラーの生産性が向上する。またこのとき、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。

【0142】

組成A-8において、($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)の下限は、9.5質量%以上でありうるし、10質量%以上でありうる。組成A-8において、($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)の上限は、12.5質量%以下でありうるし、12質量%以下でありうる。組成A-9において、($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)の下限は、13.5質量%以上でありうる。組成A-9において、($\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$)の上限は、18質量%以下でありうる。

10

20

30

40

50

るし、16質量%以下、15質量%以下、さらには15質量%未満でありうる。

【0143】

組成A-8, A-9において、アルカリ金属酸化物のなかでも Li_2O が、上述したアルカリ金属酸化物に基づく効果について特に高い寄与を示す。また、 Li_2O の含有によって、ガラス繊維やガラスフィラーを形成する際のガラス素地の作業温度を下げることができ、作業温度が下がるとガラス繊維やガラスフィラーが形成しやすくなり、その生産性が向上する。一方、過度の Li_2O の含有は、ガラス転移温度を下げ、ガラスの耐熱性が低下する。組成A-8, A-9における Li_2O の含有率の下限は、0質量%以上でありうるし、0.1質量%以上、0.5質量%以上、さらには1質量%以上でありうる。 Li_2O の含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、4質量%以下、3質量%以下、2質量%以下、さらには2質量%未満でありうる。

10

【0144】

Na_2O の含有率は、組成A-8では6質量%以上13質量%以下、組成A-9では9質量%以上20質量%以下である。いずれの組成においても、 Na_2O の含有率がこれらの範囲において、上述したアルカリ金属酸化物に基づく効果がより確実となる。組成A-8では、 Na_2O の含有率の下限は、7質量%以上でありうるし、8質量%以上、さらには9質量%以上でありうる。 Na_2O の含有率の上限は、12質量%以下でありうる。組成A-9では、 Na_2O の含有率の下限は、10質量%以上でありうるし、11質量%以上、さらには12質量%以上でありうる。 Na_2O の含有率の上限は、17質量%以下でありうるし、15質量%以下、15質量%未満、さらには14質量%以下でありうる。

20

【0145】

組成A-8, A-9において K_2O の含有率の下限は、0質量%以上でありうるし、0.1質量%以上、さらには0.5質量%以上でありうる。 K_2O の含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、3質量%以下、2質量%以下、2質量%未満、さらには1質量%以下でありうる。

【0146】

(TiO_2) (ZrO_2) ($\text{T-Fe}_2\text{O}_3$) (CeO_2) (F_2, Cl_2) (P_2O_5)

組成A-8, A-9は、それぞれ、組成A-1について述べた含有率で、 TiO_2 、 ZrO_2 、 $\text{T-Fe}_2\text{O}_3$ 、 CeO_2 、 F_2 、 Cl_2 、 P_2O_5 をさらに含有しうる。

【0147】

(組成A-10)

より具体的なガラス組成Aの別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$60 \leq \text{SiO}_2 \leq 80、$$

$$5 \leq \text{B}_2\text{O}_3 \leq 20、$$

$$5 \leq \text{Al}_2\text{O}_3 \leq 15、$$

$$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) < 1、$$

$$9 < \text{Na}_2\text{O} < 13、$$

の成分をさらに含有しうる(組成A-10)。

【0148】

ガラス組成A-10を有するガラス繊維やガラスフィラーは、屈折率、密度およびヤング率から選ばれる少なくとも1つの特性において、従来のガラス組成物からなるガラスフィラー、ガラス繊維などよりも、樹脂(特にアクリル樹脂)への配合に適する。

40

【0149】

ガラス組成A-10における各成分について、以下に説明する。

(SiO_2)

SiO_2 は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成A-10の主成分(含有率が最も大きい成分)である。また、組成A-10において SiO_2 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。さらに、 SiO_2 は、耐水性を向上させる成分であり、屈折率を調整する成分でもある。組成A-10において SiO_2 の含有率が60質量%以上80質量%以下では、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造が難しくなるようなガラスの

50

失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。さらに、この範囲ではガラスの屈折率をアクリル樹脂への配合に適した範囲内に調整することも可能となる。 SiO_2 の含有率の下限は、62質量%以上でありうるし、64質量%以上、さらには65質量%より大きくてもよい。 SiO_2 の含有率の上限は、74質量%以下でありうるし、73質量%以下、72質量%以下、71質量%未満、さらには68質量%未満でありうる。

【0150】

(B_2O_3)

B_2O_3 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する成分でもある。また、 B_2O_3 は、屈折率を調整する成分でもある。組成A-10において B_2O_3 の含有率が5質量%以上20質量%以下では、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造が難しくなるようなガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの屈折率をアクリル樹脂への配合に適した範囲内に調整することも可能となる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 B_2O_3 の含有率の下限は、8質量%以上でありうるし、10質量%以上、11質量%以上、12質量%以上、13質量%以上、さらには14質量%以上でありうる。 B_2O_3 の含有率の上限は、18質量%以下でありうるし、17質量%以下、16質量%以下、さらには15質量%未満でありうる。

【0151】

(Al_2O_3)

Al_2O_3 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する成分でもある。また、 Al_2O_3 は、ガラスの耐水性を向上させる成分であり、屈折率を調整する成分でもある。組成A-10において Al_2O_3 の含有率が5質量%以上15質量%以下では、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造が難しくなるようなガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの屈折率をアクリル樹脂への配合に適した範囲内に調整することも可能となる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。 Al_2O_3 の含有率の下限は、6質量%以上でありうるし、6.5質量%以上、さらには7質量%より大きくてもよい。 Al_2O_3 の含有率の上限は、13質量%以下でありうるし、12質量%未満、10質量%未満、9質量%未満、さらには8質量%未満でありうる。

【0152】

(MgO 、 CaO)

組成A-10は、 MgO をさらに含有しうる。組成A-10に含まれた場合に MgO は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、屈折率を調整する成分でもある。このため、組成A-10において MgO の含有率の下限は、0.1質量%以上でありうる。 MgO の含有率の上限は、1質量%未満でありうるし、0.7質量%未満、0.5質量%未満、さらには0.3質量%未満でありうる。

【0153】

組成A-10は、 CaO をさらに含有しうる。組成A-10に含まれた場合に CaO は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、屈折率を調整する成分でもある。 CaO の添加と MgO の添加とは同様の効果を奏しうるが、屈折率をより低下させるという観点からは、 CaO の添加よりも MgO の添加が有利である。 CaO の含有率は MgO の含有率よりも低く抑えることが好ましい。このため、組成A-10において CaO の含有率の上限は、1質量%未満でありうるし、0.5質量%未満、0.3質量%未満、さらには0.1質量%未満でありうる。

【0154】

組成A-10において、 MgO および CaO の含有率の和($\text{MgO} + \text{CaO}$)の値が0.1質量%以上1質量%未満では、失透温度の過度な上昇を抑制しながら熔融ガラスの失透温度および粘度を、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることが

10

20

30

40

50

できる。また、この範囲ではガラスの屈折率をアクリル樹脂への配合に適した範囲内に調整することも可能となる。 $(MgO + CaO)$ の下限は、0.15 質量% 以上でありうる。 $(MgO + CaO)$ の上限は、0.7 質量% 未満でありうるし、0.5 質量% 未満、さらには 0.3 質量% 未満でありうる。

【0155】

(SrO) (BaO) (ZnO)

組成 A-10 は、組成 A-1 について述べた含有率で、 SrO 、 BaO 、 ZnO をさらに含有しうる。ただし、 SrO 、 BaO および ZnO の含有率の上限は、それぞれ 10 質量% 以下であってもよい。

【0156】

(Li_2O) 、 Na_2O 、 K_2O

アルカリ金属酸化物 (Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O) は、組成 A-10 において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。

【0157】

組成 A-10 は、 Li_2O をさらに含有しうる。組成 A-10 において Li_2O の含有率の上限は、5 質量% 以下でありうるし、2 質量% 未満、1 質量% 未満、0.75 質量% 未満、さらには 0.5 質量% 未満でありうる。

【0158】

組成 A-10 において、 Na_2O の含有率が 9 質量% より大きく 13 質量% 未満では、失透温度の過度な上昇を抑制しながら熔融ガラスの失透温度および粘度を、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。 Na_2O の下限は、9.5 質量% 以上でありうるし、10 質量% 以上でありうる。 Na_2O の上限は、12.5 質量% 以下でありうるし、12 質量% 以下でありうる。

【0159】

組成 A-10 は、 K_2O をさらに含有しうる。組成 A-10 において K_2O の下限は、0.1 質量% 以上でありうるし、0.5 質量% より大きくてもよい。 K_2O の上限は、5 質量% 以下でありうるし、3 質量% 以下、2 質量% 以下、1 質量% 未満、さらには 0.8 質量% 以下でありうる。

【0160】

組成 A-10 において、アルカリ金属酸化物の含有率の合計 ($Li_2O + Na_2O + K_2O$) の値が 9 質量% より大きく 13 質量% 未満では、失透温度の過度な上昇を抑制しながら熔融ガラスの失透温度および粘度を、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。 $(Li_2O + Na_2O + K_2O)$ の下限は、9.5 質量% 以上でありうるし、10 質量% より大きく、10.5 質量% 以上、さらには 11 質量% より大きくてもよい。 $(Li_2O + Na_2O + K_2O)$ の上限は、18 質量% 以下でありうるし、15 質量% 未満、さらには 13 質量% 未満でありうる。

【0161】

(TiO_2) (ZrO_2) $(T-Fe_2O_3)$ (CeO_2) (F_2, Cl_2) (P_2O_5)

組成 A-10 は、組成 A-1 について述べた含有率で、 TiO_2 、 ZrO_2 、 $T-Fe_2O_3$ 、 CeO_2 、 F_2 、 Cl_2 、 P_2O_5 をさらに含有しうる。

【0162】

(組成 A-11)

より具体的なガラス組成 A の別の一例では、当該組成が、質量% で表示して、

$45 \leq SiO_2 \leq 65$ 、

$21 \leq B_2O_3 \leq 35$ 、

$5 \leq Al_2O_3 \leq 15$ 、

10

20

30

40

50

$$4 \leq \text{Na}_2\text{O} \leq 9、$$

の成分をさらに含有しうる（組成 A-11）。

【0163】

（組成 A-12）

より具体的なガラス組成 A の別の一例では、当該組成が、質量%で表示して、

$$50 \leq \text{SiO}_2 \leq 75、$$

$$0.1 \leq (\text{MgO} + \text{CaO}) \leq 20、$$

$$9 \leq (\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) \leq 20、$$

$$5 \leq \text{ZrO}_2 \leq 20、$$

の成分をさらに含有しうる（組成 A-12）。

10

【0164】

ガラス組成 A-12 は、高い化学的耐久性を備えたガラスフィラー、ガラス繊維となりうる。

【0165】

ガラス組成 A-12 における各成分について、以下に説明する。

（SiO₂）

SiO₂ は、ガラスの骨格を形成する成分であり、組成 A-12 の主成分（含有率が最も大きい成分）である。また、組成 A-12 において SiO₂ は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分であり、耐水性や耐酸性を向上させる成分である。組成 A-12 において SiO₂ の含有率が 50 質量%以上 75 質量%以下では、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造が難しくなるようなガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性や耐酸性が高くなる。また、この範囲ではガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。SiO₂ の含有率の下限は、54 質量%以上でありうるし、56 質量%以上、58 質量%以上、60 質量%以上、62 質量%以上、63 質量%以上、64 質量%以上、65 質量%より大きく、さらには 66 質量%より大きくてもよい。SiO₂ の含有率の上限は、74 質量%以下でありうるし、73 質量%以下、71 質量%以下、さらには 70 質量%以下でありうる。

20

【0166】

（B₂O₃）

組成 A-12 は、B₂O₃ をさらに含有しうる。組成 A-12 に含まれた場合に B₂O₃ は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、B₂O₃ は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもある。一方で、過度の B₂O₃ の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。B₂O₃ の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、3 質量%未満、2 質量%未満、1 質量%未満、さらには 0.5 質量%以下でありうる。

30

【0167】

（Al₂O₃）

組成 A-12 は、Al₂O₃ をさらに含有しうる。組成 A-12 に含まれた場合に Al₂O₃ は、ガラスの骨格を形成する成分である。また、Al₂O₃ は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分でもあり、ガラスの耐水性を向上させる成分である。一方で、過度の Al₂O₃ の含有は、ガラスの耐酸性を低下させる。Al₂O₃ の含有率の上限は、5 質量%以下でありうるし、4 質量%以下、3 質量%未満、2 質量%未満、さらには 1.5 質量%以下でありうる。

40

【0168】

（B₂O₃ + Al₂O₃）

組成 A-12 では、ガラスフィラー、ガラス繊維などの形成し易さおよび耐酸性を重視する場合、B₂O₃ および Al₂O₃ の含有率の和（B₂O₃ + Al₂O₃）が重要となりうる。組成 A-12 において（B₂O₃ + Al₂O₃）は 5 質量%以下でありうる。この場合、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造が難しくなるようなガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐酸性が高くなる。また、ガラスの融点が過度に高くなることなく、原料を熔融する際の均一性が増す。（B₂O₃ + Al₂O₃）の上限は、4 質量%以

50

下でありうるし、3質量%未満、2質量%未満、さらには1.5質量%未満でありうる。

【0169】

(MgO、CaO)

組成A-12は、MgOをさらに含有しうる。組成A-12に含まれた場合にMgOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、MgOは、ガラス組成物の耐酸性および耐水性を調整する成分でもある。MgOの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、1質量%以上、さらには2質量%より大きくてもよい。MgOの含有率の上限は、15質量%以下でありうるし、12質量%以下、10質量%以下、8質量%以下、6質量%以下、さらには5質量%以下でありうる。

【0170】

組成A-12は、CaOをさらに含有しうる。組成A-12に含まれた場合にCaOは、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、CaOは、ガラス組成物の耐酸性および耐水性を調整する成分でもある。CaOの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、1質量%以上、2質量%以上、さらには3質量%より大きくてもよい。CaOの含有率の上限は、15質量%以下でありうるし、12質量%以下、10質量%以下、さらには8質量%以下でありうる。

【0171】

組成A-12において、MgOおよびCaOの含有率の和(MgO+CaO)の値が0.1質量%以上20質量%以下では、失透温度の過度な上昇を抑制しながら熔融ガラスの失透温度および粘度を、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、この範囲ではガラスの化学的耐久性を向上させることも可能となる。(MgO+CaO)の下限は、2質量%以上でありうるし、4質量%以上、6質量%以上、8質量%以上、さらには9質量%以上でありうる。(MgO+CaO)の上限は、20質量%以下でありうるし、18質量%以下、16質量%以下、14質量%未満、さらには13質量%以下でありうる。

【0172】

(SrO)(BaO)(ZnO)

組成A-12は、組成A-1について述べた含有率で、SrO、BaO、ZnOをさらに含有しうる。ただし、SrO、BaOおよびZnOの含有率の上限は、それぞれ10質量%以下であってもよい。

【0173】

(Li₂O、Na₂O、K₂O)

アルカリ金属酸化物(Li₂O、Na₂O、K₂O)は、組成A-12において、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。また、アルカリ金属酸化物(Li₂O、Na₂O、K₂O)は、ガラスの耐酸性および耐水性を調整する成分でもある。

【0174】

組成A-12は、Li₂Oをさらに含有しうる。組成A-12においてLi₂Oの含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、0.5質量%以上、1質量%以上、1.5質量%以上でありうる。Li₂Oの含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、4質量%以下、3.5質量%以下、さらには3質量%以下でありうる。

【0175】

組成A-12において、Na₂Oの含有率は6質量%以上20質量%以下でありうる。この場合、失透温度の過度な上昇を抑制しながら熔融ガラスの失透温度および粘度を、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。さらに、この範囲ではガラスの化学的耐久性を向上させることも可能となる。Na₂Oの下限は、7質量%以上でありうるし、7.5質量%以上、さらには8質量%以上でありうる。Na₂Oの上限は、18質量%以下でありうるし、16質量%以下、15質量%以下、14質量%以下、13質量%未満、さらには12質量%未満でありうる。

10

20

30

40

50

【0176】

組成A-12は、 K_2O をさらに含有しうる。組成A-12において K_2O の含有率の下限は、0.1質量%以上でありうるし、0.5質量%より大きくてもよい。組成A-12において K_2O の含有率の上限は、5質量%以下でありうるし、4質量%未満、3質量%以下、さらには2質量%未満でありうる。

【0177】

組成A-12において、アルカリ金属酸化物の含有率の合計($Li_2O + Na_2O + K_2O$)の値が9質量%以上20質量%以下では、失透温度の過度な上昇を抑制しながら熔融ガラスの失透温度および粘度を、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造に適した範囲とすることができる。また、ガラスの融点の上昇を抑え、ガラス原料のより均一な熔融を実施できながらも、ガラス転移温度が過度に低下することなく、高いガラスの耐熱性を確保できる。さらに、この範囲ではガラスの化学的耐久性を向上させることも可能となる。($Li_2O + Na_2O + K_2O$)の下限は、9.5質量%以上でありうるし、10質量%以上でありうる。($Li_2O + Na_2O + K_2O$)の上限は、18質量%以下でありうるし、16質量%以下、15質量%以下、14質量%以下、13質量%未満、さらには12質量%未満でありうる。

【0178】

(TiO₂)

組成A-12は、組成A-1について述べた含有率で、 TiO_2 をさらに含有しうる。

【0179】

(ZrO₂)

ガラス組成A-12において ZrO_2 は、ガラス形成時の失透温度および粘度を調整する成分である。。また、 ZrO_2 は、ガラス組成物の耐酸性および耐水性を調整する成分でもある。組成A-12において ZrO_2 の含有率が5質量%以上20質量%以下では、ガラスフィラー、ガラス繊維などの製造が難しくなるようなガラスの失透温度の上昇が抑えられるとともに、ガラスの耐水性や耐酸性が高くなる。組成A-12において ZrO_2 の含有率の下限は、5質量%より大きく、5.5質量%以上、6質量%以上、6.5質量%以上、さらには7質量%以上でありうる。 ZrO_2 の含有率の上限は、18質量%以下でありうるし、15質量%以下、12質量%以下、10質量%未満、9.5質量%以下、9質量%以下、8.5質量%以下、さらには8質量%以下でありうる。

【0180】

(T-Fe₂O₃) (CeO₂) (F₂, Cl₂) (P₂O₅)

組成A-12は、組成A-1について述べた含有率で、T-Fe₂O₃、CeO₂、F₂、Cl₂、P₂O₅をさらに含有しうる。

【0181】

(その他の成分)

ガラス組成Aは、その他の成分として、La₂O₃、WO₃、Nb₂O₅、Y₂O₃、MoO₃、Ta₂O₅、MnO₂、Cr₂O₃、CuOおよびCoOから選ばれる少なくとも1種を、それぞれ0質量%以上5質量%以下の含有率で含有しうる。これらの成分の許容される含有率は、それぞれについて2質量%未満でありうるし、1質量%未満、0.5質量%未満、さらには0.1質量%未満でありうる。これらの成分の許容される含有率の合計は、5質量%以下でありうるし、2%質量%未満、1質量%未満、0.5質量%未満、さらには0.1質量%未満でありうる。ただし、上記その他の成分は、それぞれ実質的に含まれていなくてもよい。

【0182】

ガラス組成Aは、添加物として、Br₂、I₂、As₂O₃およびSb₂O₃から選ばれる少なくとも1種を、それぞれ0質量%以上1質量%以下の含有率で含有しうる。これらの成分の許容される含有率は、それぞれについて0.5質量%未満でありうるし、0.2質量%未満、さらには0.1質量%未満でありうる。これらの成分の許容される含有率の合計は、1質量%以下でありうるし、0.5%質量%未満、0.2質量%未満、さらには0.

1質量%未満でありうる。ただし、上記その他の成分は、それぞれ実質的に含まれていなくてもよい。

【0183】

ガラス組成Aは、 H_2O 、 OH 、 H_2 、 CO_2 、 CO 、 He 、 Ne 、 Ar および N_2 を、それぞれ0質量%以上0.1質量%以下の含有率で含有しうる。これらの成分の許容される含有率は、それぞれについて0.05質量%未満でありうるし、0.03質量%未満、さらには0.01質量%未満でありうる。これらの成分の許容される含有率の合計は、0.1質量%以下でありうるし、0.05質量%未満、0.03質量%未満、さらには0.01質量%未満でありうる。ただし、上記その他の成分は、それぞれ実質的に含まれていなくてもよい。

10

【0184】

ガラス組成Aは、微量の貴金属元素を含有していてもよい。例えば、 Pt 、 Rh 、 Au 、 Os などの貴金属元素を、それぞれ0質量%以上0.1質量%以下の含有率で含むことができる。これらの成分の許容される含有率は、それぞれについて0.1質量%未満でありうるし、0.05質量%未満、0.03質量%未満、さらには0.01質量%未満でありうる。これらの成分の許容される含有率の合計は、0.1質量%以下でありうるし、0.05質量%未満、0.03質量%未満、さらには0.01質量%未満でありうる。ただし、上記その他の成分は、それぞれ実質的に含まれていなくてもよい。

【0185】

<特性>

20

本発明のガラス組成物がとりうる特性について、以下、説明する。

(熔融特性)

熔融ガラスの粘度が $1000\text{ dPa}\cdot\text{sec}$ (1000 poise) となるときの温度は、当該ガラスの作業温度と呼ばれ、ガラスの成形に最も適する温度である。ガラス繊維やガラスフィラーとして鱗片状ガラスまたはガラス繊維を製造する場合、ガラスの作業温度が 1100°C 以上であれば、鱗片状ガラスの厚さまたはガラス繊維径のばらつきを小さくできる。作業温度が 1450°C 以下であれば、ガラスを熔融する際の燃料費を低減でき、ガラス製造装置が熱による腐食を受け難くなり、装置寿命が延びる。作業温度の下限は、 1100°C 以上でありうるし、 1150°C 以上、 1200°C 以上、 1250°C 以上、さらには 1300°C 以上でありうる。作業温度の上限は、 1450°C 以下でありうるし、 1420°C 以下、 1400°C 以下、 1380°C 以下、さらには 1350°C 未満でありうる。

30

【0186】

作業温度から失透温度を差し引いた温度差 ΔT が大きいほど、ガラス成形時に失透が生じ難く、均質なガラスを高い歩留りで製造できる。したがって、ガラス組成Aの ΔT は 0°C 以上でありうるし、 10°C 以上、 20°C 以上、 30°C 以上、 40°C 以上、さらには 50°C 以上でありうる。一方、 ΔT が 500°C 以下であれば、ガラス組成の調整が容易になる。ガラス組成Aの ΔT は 500°C 以下でありうるし、 400°C 以下、 300°C 以下、さらには 200°C 以下でありうる。

【0187】

(耐水性)

40

耐水性の指標としてアルカリ溶出量を採用できる。アルカリ溶出量が小さいほど、ガラスの耐水性は高くなる。ガラスフィラーを樹脂組成物に配合させる場合、後述する試験によるガラス組成物のアルカリ溶出量が 0.40 mg 以下であれば、水による樹脂組成物の強度低下が抑制される。好ましい一形態において、ガラス組成物のアルカリ溶出量の上限は、 0.40 mg 以下、 0.35 mg 以下、更には 0.33 mg 以下であってもよい。アルカリ溶出量の下限は、通常、 0.001 mg 程度であり、 0.01 mg 以上、更には 0.03 mg 以上であってもよい。

【0188】

(誘電率)

本実施形態のガラス組成物は低い誘電率を有しうる。測定周波数 1 GHz の誘電率は、

50

5.0以下、4.9以下、4.8以下、4.7以下、4.6以下、さらには4.5以下であり、場合によっては4.4以下である。誘電率は、厳密には比誘電率を意味するが、本明細書では慣用に従って単に誘電率と表記する。誘電率は室温（25℃）での値である。

【0189】

〔ガラス繊維〕

以上に説明したガラス組成物は、ガラス繊維としての利用に適している。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。ガラス長繊維は、粘度を制御したガラス融液をノズルから流出させ、巻き取り機によって巻き取って製造される。この連続繊維は、使用時に適切な長さに切断される。ガラス短繊維は、高圧空気、遠心力等によってガラス融液を吹き飛ばしながら製造される。ガラス短繊維は、綿状の形態を有しているためにグラスウールと呼ばれることもある。

10

【0190】

〔ガラス繊維製品〕

ガラス長繊維及びガラス短繊維は、さらに種々のガラス繊維製品へと加工して使用することができる。ヤング率及び耐クラック荷重が大きいガラス繊維が特に望まれているガラス繊維製品としては、ゴム補強用コードを挙げることができる。ゴム補強コードは、複数本のガラス長繊維（フィラメントと呼ばれる）を束ねたストランドを備えている。各ストランドは、例えば100～2000本、典型的には200～600本のガラスフィラメントから構成されている。各ストランドは、ゴムとの接着性を改善するための被覆層によって被覆されることが多い。被覆層を形成するための処理液及びその方法は、特許文献1を始めとする文献に詳細に説明されているため、ここでは説明を省略する。

20

【0191】

ヤング率及び耐クラック荷重が大きいというガラス繊維の特徴が望まれている別のガラス繊維製品としては、ガラス繊維不織布を挙げることができる。ガラス繊維不織布は、ガラス繊維によって構成された不織布であって、その一例は、微小なガラス短繊維を抄紙することによって製造されたガラスペーパーである。一般にガラス繊維不織布には大きな強度が期待されている。特に、燃料電池の電解質膜の補強材、及び二次電池を始めとする電気化学デバイスのセパレータの用途においては、ガラス繊維不織布には高い空隙率が求められることが多い。このため、これらの用途では特に、ガラス繊維の強度向上への期待が大きい。

30

【0192】

以上に説明したとおり、ガラス繊維製品の好ましい例としては、ガラス長繊維が束ねられたストランドを備えたゴム補強用コード、及びガラス短繊維を含むガラス繊維不織布が挙げられる。

【0193】

〔ガラス粒子状製品〕

以上に説明したガラス組成物は、ガラス繊維だけでなく、粒子状ガラス、特にガラスフレークなどのガラスフィラーとしての使用にも適している。ガラスフレークは、フレーク状ガラスとも呼ばれる鱗片状のガラスであり、その大きさは、例えば平均厚さ2～5 μm、平均粒径10～4000 μm（特に10～1000 μm）である。ガラスフレークは、ブロー法、ロータリー法等により、熔融したガラスから成形され量産されている。ガラスフレークに代表される粒子状ガラスは、母材の強度を向上させるための充填剤として母材に混合して使用されることがある。代表的な母材はプラスチックである。特に近年はプラスチック部品の小型化が進み、部品の寸法安定性や強度のさらなる向上が求められている。このため、充填剤として使用される粒子状ガラスにも、ヤング率が高く、耐クラック荷重が大きいガラス組成物の使用が望ましい。粒子状ガラスの形状は、典型的には鱗片状であるが、「粒子状」（最大径5 mm以下）に相当する限り、その形状は問わない。

40

【0194】

〔ガラスフィラー〕

（ガラスフィラーの形態）

50

ガラスフィラーの形態は、特に制限されないが、例えば、フレーク状ガラス、チョップドストランド、ミルドファイバー、ガラス粉末、ガラスビーズ、フラットファイバー、及び薄片状ガラスから選ばれる少なくとも1種に該当するものであってよい。ただし、これらの形態は、互いに厳密に区別されるものではない。また、互いに異なる形態を有する2種以上のガラスフィラーを組み合わせるフィラーとして用いてもよい。以下、各形態について説明する。

【0195】

フレーク状ガラスは、鱗片状ガラスとも呼ばれ、フレーク状の形状を有する。フレーク状ガラスの平均厚さは、例えば0.1～15 μm である。図1Aに示すように、フレーク状ガラスの厚さは、フレーク状ガラス10の両主面間の距離 t に相当する。図1Bには、面積 S を有するフレーク状ガラス10の主面が示されている。平均粒子径は、例えば0.2～15000 μm である。フレーク状ガラスのアスペクト比は、例えば2～1000である。アスペクト比は、平均粒子径を平均厚さで除して求めることができる。平均厚さは、走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて100枚以上のフレーク状ガラスの厚さ t を測定し、その平均値を算出して求めることができる。フレーク状ガラスの平均粒子径は、レーザ回折散乱法により測定された粒度分布において累積堆積百分率が50%に相当する粒子径（D50）により定めることができる。

【0196】

フレーク状ガラスは、公知のブロー法、カップ法などにより得ることができる。ブロー法を用いる製造装置を図2に示す。この装置では、耐火窯槽12において熔融された所定の組成を有するガラス素地11がブローノズル13に送り込まれたガスによって風船状に膨張し、中空状ガラス膜14となる。この中空状ガラス膜14を一对の押圧ロール15で粉砕することにより、フレーク状ガラス10が得られる。

【0197】

チョップドストランドは、ガラス繊維を短く切断した形状を有する。チョップドストランドの繊維径は、例えば1～50 μm であり、そのアスペクト比は、例えば2～1000である。チョップドストランドのアスペクト比は、繊維長さを繊維径で除して求めることができる。チョップドストランドは、例えば、図3及び図4に示す装置を用いて製造できる。

【0198】

図3に示すように、耐火窯槽内で熔融され、所定の組成を有するガラス素地は、底部に多数（例えば2400本）のノズルを有するブッシング20から引き出され、多数のガラスフィラメント21として引き出される。ガラスフィラメント21には、冷却水が吹きかけられた後、バインダアプリーケーター22の塗布ローラ23により、バインダー（集束剤）24が塗布される。バインダー24が塗布された多数のガラスフィラメント21は、補強パッド25により、各々が例えば800本程度のガラスフィラメント21からなる3本のストランド26として集束される。各ストランド26は、トラバースフィンガ27で綾振りされつつコレット28に嵌められた円筒チューブ29に巻き取られる。ストランド26が巻き取られた円筒チューブ29をコレット28から外して、ケーキ（ストランド巻体）30が得られる。

【0199】

次に、図4に示すように、クリル31にケーキ30を収容し、ケーキ30からストランド26を引き出して、集束ガイド32によりストランド束33として束ねられる。ストランド束33に、噴霧装置34より水又は処理液が噴霧される。ストランド束33を切断装置35の回転刃36で切断し、チョップドストランド37が得られる。

【0200】

ミルドファイバーは、ガラス繊維を粉末状に切断した形状を有する。ミルドファイバーの繊維径は、例えば1～50 μm であり、そのアスペクト比は例えば2～500である。ミルドファイバーのアスペクト比は、繊維長さを繊維径で除して求めることができる。ミルドファイバーは、公知の方法により得ることができる。

【0201】

ガラス粉末は、粉末状のガラスであり、ガラスを粉砕することによって製造される。ガラス粉末の平均粒子径は、例えば1～500 μm である。ガラス粉末の粒子径は、ガラス粉末の粒子と同体積の球体の直径として定義される。ガラス粉末は、公知の方法により得ることができる。

【0202】

ガラスビーズは、球形又は略球形の形状を有する。ガラスビーズの平均粒子径は、例えば1～500 μm である。ガラスビーズの粒子径は、ガラスビーズの粒子と同体積の球体の直径として定義される。ガラスビーズは、公知の方法により得ることができる。

【0203】

フラットファイバーは、断面が楕円などの偏平な形状であるガラス繊維を切断した形状を有する。図5に示すように、フラットファイバーの断面の短径D1に対して長径D2は大きく、 $D2/D1$ は、例えば1.2以上である。短径D1は、例えば0.5～25 μm である。長径D2は、例えば0.6～300 μm である。フラットファイバーの長さLは、例えば10～1000 μm である。フラットファイバーは、公知の方法により得ることができる。図6に示すように、フラットファイバーの断面形状は、長径D2に沿って延びる表面が端部よりも中央部において後退した凹形状を有していてもよい。

【0204】

薄片状ガラスは、薄物のフレーク状ガラスである。薄片状ガラスは、例えば、平均厚さが0.1～2.0 μm のフレーク状ガラスで構成されていてもよく、また例えば、厚さ0.01～2.0 μm の範囲にあるフレーク状ガラスを90質量%以上の割合で含有していてもよい。この程度に平均厚さが薄く、厚さのバラツキが小さい薄片状ガラスは、樹脂を補強する効果が高く、樹脂の成形収縮率を低減する効果にも優れている。

【0205】

薄片状ガラスは、樹脂成形体の厚さなどの制限を従来よりも緩和することにも適している。薄片状ガラスは、好ましくは平均厚さが0.1～1.0 μm のフレーク状ガラスで構成されている。薄片状ガラスは、好ましくは厚さ0.05～1.0 μm の範囲にあるフレーク状ガラスを90質量%以上の割合で含有している。薄片状ガラスは、上述の方法により得ることができる。

【0206】

(ガラスフィラーの顆粒化)

ガラスフィラーは、少なくともその一部が顆粒化されていてもよい。顆粒化は、ガラスフィラーにバインダー処理を施し、個々のガラスフィラーをバインダーによって互いに結びつけて造粒する処理である。顆粒状のフレーク状ガラスは、飛散性が低いために作業性に優れ、樹脂中での分散性にも優れている。顆粒状のフレーク状ガラスを用いると、フィード性が向上し、より確実な定量的フィードが可能となる。以下、顆粒化に用いるバインダーについて説明する。

【0207】

バインダーは、界面活性剤及び結合成分を含むことが好ましい。界面活性剤は、アニオン性、カチオン性、両性および非イオン性のいずれであってもよい。ただし、結合成分がエポキシ樹脂又はウレタン樹脂を含む場合には、非イオン性の界面活性剤の使用が好ましい。バインダーの凝集を抑制して安定化させることができるからである。アニオン性界面活性剤としては、ジオクチルスルフォコハク酸ナトリウム、脂肪酸塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルアリアルスルホン酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩、アルキルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルアリアル硫酸エステル塩、スルホコハク酸エステル塩などが挙げられる。カチオン性界面活性剤としては、高級アミンハロゲン酸塩、ハロゲン化アルキルピリジニウムまたは第4級アンモニウム塩などが挙げられる。両性界面活性剤としては、ラウリルアミノプロピオン酸塩、ラウリルジメチルベタインなどが挙げられる。非イオン性界面活性剤として

10

20

30

40

50

は、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレン高級アルコールエーテル、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテルなどのポリオキシエチレングリコールアルキルエーテル類、ポリエチレングリコールモノステアレートなどのポリエチレングリコール脂肪酸エステル類、ソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレートなどのソルビタン脂肪酸エステル類、グリコールモノステアレートなどのグリコール脂肪酸エステル類、脂肪酸モノグリセリド類などが挙げられる。これらを2種以上組み合わせて使用してもよい。

【0208】

バインダーの結合成分は、特に限定されず、有機系又は無機系の成分を使用できる。有機系の結合成分としては、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、澱粉、カルボキシメチルスターチ、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ポリビニルアルコール、シランカップリング剤、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、酢酸ビニル、ウレタン樹脂などが挙げられる。無機系の結合成分としては、水ガラス、コロイダルシリカ、コロイダルアルミナ、アミノシランなどが挙げられる。結合成分は、シランカップリング剤、エポキシ樹脂及びウレタン樹脂から選ばれる少なくとも1つを含むことが好ましい。シランカップリング剤は、分子中に2種以上の反応基を有し、その1つがフレーク状ガラスの表面と反応し、他の1つが有機系の結合成分及び熱可塑性樹脂と反応するため、フレーク状ガラスと熱可塑性樹脂との馴染みが改善する。エポキシ樹脂及びウレタン樹脂は、シランカップリング剤及び熱可塑性樹脂との馴染みがよい。

【0209】

バインダーは、水又はアルコールを溶媒として、ガラスフィラーの表面に各成分が均一に存在しうるようにその濃度を調整することが好ましい。バインダーの濃度は、全固形分濃度で表して1～10質量%が好ましい。バインダーは、例えば、常温大気圧下において結合成分、界面活性剤などを溶媒中に適宜添加し、均一になるまで攪拌することにより製造することができる。

【0210】

顆粒化したガラスフィラーにおけるバインダーの比率、言い換えるとバインダーの付着率は、例えば、固形分質量比で0.1～2質量%である。0.1質量%以上の付着率は、ガラスフィラーの飛散性の十分な抑制に適している。2質量%以下の付着率は、樹脂組成物の押し出し成形時のガスの発生や樹脂組成物の変色の抑制に適している。

【0211】

ガラスフィラーの顆粒化の方法は、特に限定されず、例えば、攪拌造粒法、流動層造粒法、噴射造粒法、回転造粒法などを利用できる。具体的には、スプレーなどによりバインダーを適量付着させたガラスフィラーを回転ドラム中または振動するトレイ上に拡げ、加熱して溶媒を蒸発させつつ、造粒する方法を適用できる。回転ドラムの回転速度又は振動トレイの振動周波数、さらには溶媒の蒸発速度を適宜調整することにより、所望の大きさの顆粒状のガラスフィラーを製造できる。

【0212】

ガラスフィラーは、表面処理剤によってその表面が処理されたものであってもよい。この処理により、ガラスフィラーの補強効果が向上することがある。表面処理剤としては、例えば、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、 γ -メタクリルオキシプロピルトリメトキシシランなどのシリコン系カップリング剤、チタン系カップリング剤などが挙げられる。表面処理剤の使用量は、例えば、ガラスフィラーの0.05～0.20質量%である。

【0213】

(ガラスフィラーの製造方法)

ガラスフィラーは、上記で説明したガラス組成物を熔融する工程と、熔融したガラス組成物を所望のガラスフィラーへと成形する工程と、を含む方法により製造される。ガラス組成物を熔融する温度は、例えば1400℃以上である。

【0214】

(ガラスフィラー上の被膜)

ガラスフィラーは、その表面に形成された被膜を有していてもよい。被膜は、金属または金属化合物を主成分とすること、特に金属または金属酸化物を主成分とすることが好ましい。ここでも主成分は、質量基準で含有率が最も大きい成分である。金属は、例えば、金、銀、アルミニウム、白金、パラジウムおよびニッケルなどである。金属酸化物は、例えば、酸化チタン、二酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウム、酸化鉄、酸化コバルト、酸化亜鉛および酸化スズなどである。被膜は、単層、混合層または複層でありうる。被膜は、基材であるガラスフィラーの少なくとも一部の表面に形成されていればよい。ガラスフィラーの表面全体に被膜が形成されていてもよい。被膜の厚さは、被膜付きガラスフィラーの目的に応じて、適宜、選択できる。被膜は、ガラスフィラーの着色、光学特性の調整などの役割を担いうる。着色は、金属被膜による反射色、金属被膜を構成する金属ナノ粒子のプラズモン共鳴による発色、金属酸化物膜による干渉色などにより実現できる。被膜は、スパッタリング法に代表される気相成膜法により形成してもよいが、ガラスフィラー上の成膜には液相成膜法が適している。

【0215】

[樹脂組成物]

本発明による樹脂組成物は、本発明によるガラスフィラーと共に熱可塑性樹脂を含む。熱可塑性樹脂は、特に限定されないが、例えば、ポリ塩化ビニル、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリブチレン、ポリブチレンテレフタレート、これらの共重合体などである。ポリブチレンテレフタレートをを用いると、ガラスフィラーとの混合による成形品の反り抑制や寸法安定性の改善効果が大きくなる。

【0216】

樹脂組成物中におけるフレーク状ガラスなどのガラスフィラーの含有率は、5～70質量%が好ましい。5質量%以上とすることにより、ガラスフィラーの補強材としての機能が十分に発揮されやすくなる。70重量%以下とすることにより、樹脂組成物中にガラスフィラーを均一に分散させることが容易になる。成形収縮率を十分抑えるためには、ガラスフィラーの含有率を30質量%以上とすることがより好ましい。

【0217】

樹脂組成物には、ガラスフィラー以外の補強材を適宜含有させてもよい。例えば高い強度が要求される用途では、ガラス繊維を含有させてもよい。この場合、ガラス繊維は、ガラスフィラーと同程度の含有率で添加してもよい。

【0218】

フレーク状ガラス、フラットファイバーおよび薄片状ガラスは、比表面積が相対的に大きく、熱可塑性樹脂との間の接合力の確保に適している。この観点から、図6に示したフラットファイバーは、凹型の表面形状が比表面積の拡大に寄与していて好ましい。

【0219】

本発明による樹脂組成物は、誘電率が低く、かつ強度、耐熱性、寸法安定性の向上、線熱膨張係数の低下および異方性の低減、成形時の収縮率の異方性の低減などといった諸特性の改善に適したものとなる。

【0220】

[塗料]

本発明による塗料は、本発明によるガラスフィラーを構成成分として含む。塗料は、特に限定されないが、例えば車両用塗料、船舶用塗料、航空機用塗料、建築物用塗料、土木構造物用塗料、建築材用塗料、電気製品用塗料、樹脂成形品用塗料、紙加工用塗料、フィルム加工用塗料である。代表的な車両用塗料は自動車用塗料である。塗料は、コーティング剤などと呼ばれるものであってもよく、塗布の手段も特に限定されない。

【0221】

[化粧料]

本発明による化粧料は、本発明によるガラスフィラーを構成成分として含む。化粧料は

10

20

30

40

50

、特に限定されないが、例えばフェーシャル化粧料、メーキャップ化粧料、ヘア化粧料である。フェーシャル化粧料は、例えばファンデーション、フェイスパウダーである。メーキャップ化粧料は、例えばアイシャドー、ネイルエナメル、アイライナー、マスカラ、口紅、ファンシーパウダーである。化粧料の形態としては、特に限定されないが、粉末状、ケーキ状、ペンシル状、スティック状、軟膏状、液状、乳液状、クリーム状などが挙げられる。

【0222】

[インキ組成物]

本発明による化粧料は、本発明によるガラスフィラーを構成成分として含む。インキ組成物としては、例えば筆記具用インキ、印刷用インキ、インクジェット用インキが挙げられる。

10

【0223】

以下、実施例および比較例を挙げて本発明の実施形態をさらに具体的に説明する。

【0224】

(実施例1～76および比較例1～5)

表1～表13に示した組成となるように、珪砂などの通常のガラス原料を調合し、実施例および比較例毎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。

20

【0225】

得られたガラス組成物について、通常の白金球引き上げ法により粘度と温度との関係を調べ、その結果から作業温度を求めた。ここで、白金球引き上げ法とは、熔融ガラス中に白金球を浸し、その白金球を等速運動で引き上げる際の負荷荷重（抵抗）と、白金球に働く重力および浮力などとの関係を、微小の粒子が流体中を沈降する際の粘度と落下速度との関係を示したストークス（Stokes）の法則にあてはめることにより、粘度を測定する方法である。

【0226】

粒子径1.0～2.8mmの大きさに粉碎したガラス組成物を白金ボートに入れ、温度勾配（800～1400℃）を設けた電気炉中で2時間保持し、結晶の出現した位置に対応する電気炉の最高温度から失透温度を求めた。ガラスが白濁して結晶が観察できない場合は、白濁の出現した位置に対応する電気炉の最高温度を失透温度とした。ここで、粒子径は、ふるい分け法により測定された値である。なお、電気炉内の場所に応じて異なる温度（電気炉内の温度分布）は、予め測定されており、電気炉内の所定の場所に置かれたガラス組成物は、予め測定された、当該所定の場所の温度で加熱される。温度差 ΔT は、作業温度から失透温度を差し引いた温度差である。

30

【0227】

JIS R3502：1995「化学分析用ガラス器具の試験方法」に定められたアルカリ溶出試験に準拠して、アルカリ溶出量を測定した。具体的には、下記のとおりである。ガラス試料を粉碎し、目開き420 μm の篩を通過し、目開き250 μm の篩に残る粒子をふるい分けた。次に、ふるい分けた粒子から、ガラス試料の比重と同じ質量の粒子を秤取った。秤取した粒子を100℃の蒸留水50mLに1時間浸漬した後、浸漬後の水に含まれるアルカリ成分を濃度0.01Nの硫酸で滴定した。滴定に要した硫酸のミリリットル数に0.31を乗じることにより、 Na_2O に換算したアルカリ成分のミリグラム数を求め、これをアルカリ溶出量とした。アルカリ溶出量が小さいほど、ガラス試料の耐水性は高い。

40

【0228】

周波数1GHzにおける誘電率は、空洞共振器摂動法による誘電率測定装置を用いて測定した。測定温度は25℃、測定用サンプルの寸法は、底面が1辺1.5mmの正方形である高さ100mmの直方体とした。

50

【0229】

また、泡数は以下のように求めた。珪砂などの通常のガラス原料を調合し、実施例および比較例毎にガラス原料のバッチを作製した。電気炉を用いて、150gの各バッチを1500～1600℃まで加熱して熔融させ、組成が均一になるまで2時間そのまま維持した。熔融温度はガラス組成に応じて適宜選択し、このときの熔融温度を泡数評価における試験温度とした。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、ガラス試料を得た。このガラス試料中の泡個数を光学顕微鏡で観察し、ガラス100g当たりの泡個数を算出した。ガラス100g中の泡個数が4000個未満のものをA、4000以上10000個未満のものをB、10000以上20000個未満のものをC、20000個以上のものをDとした。

10

【0230】

さらに、ガラス組成物に波長254nmの紫外線ランプを照射した場合の、発光の有無およびその色目を目視で観察した。

これらの測定結果を表1～表13に示した。なお、表中のガラス組成は、すべて質量%で表示した値である。

【0231】

20

30

40

50

【表 1】

組成 A-1										
成分(質量%)又は物性	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10
SiO ₂	54.82	54.23	54.21	54.02	54.55	54.09	54.06	54.40	50.50	54.42
B ₂ O ₃	26.90	27.92	27.91	27.82	26.78	27.85	27.84	27.24	28.19	27.24
Al ₂ O ₃	13.71	12.90	12.89	12.85	12.87	12.87	12.86	12.83	14.34	12.83
MgO	3.32	2.93	3.08	2.25	2.05	2.60	2.23	2.15	3.32	1.95
CaO	0.23	0.64	0.22	1.45	1.89	1.04	1.39	1.41	3.18	1.85
SnO	-	-	-	-	-	-	-	0.30	-	-
BaO	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.21
ZnO	-	-	0.24	0.11	-	-	-	-	-	-
Li ₂ O	0.69	0.69	0.74	0.69	0.69	0.64	0.69	0.73	-	0.69
Na ₂ O	0.10	0.10	-	0.10	0.10	0.19	0.10	-	-	0.10
K ₂ O	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
TiO ₂	-	-	-	-	0.61	-	-	-	-	-
ZrO ₂	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
T-Fe ₂ O ₃	-	0.12	0.25	0.25	-	-	0.25	0.25	0.24	0.25
T-SnO ₂	0.23	0.47	0.46	0.46	0.46	0.46	0.46	0.69	0.23	0.46
CeO ₂	-	-	-	-	-	0.26	-	-	-	-
F ₂	-	-	-	-	-	-	0.12	-	-	-
失透温度 [°C]	1302	1272	1282	1237	1213	1249	1241	1308	1162	1221
作業温度 [°C]	1339	1322	1326	1313	1315	1315	1314	1313	1340	1318
ΔT [°C]	37	50	44	76	102	66	73	5	178	97
アルカリ溶出量 [mg]	0.10	0.20	0.21	0.29	0.17	0.20	0.28	0.27	0.06	0.28
誘電率	4.4	4.4	4.4	4.5	4.6	4.5	4.4	4.5	4.6	4.5
試験温度 [°C]	1600	1600	1600	1600	1600	1600	1600	1600	1600	1600
泡数	C	B	C	C	B	B	B	B	B	B
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【0 2 3 2】

10

20

30

40

50

【表 2】

組成 A-1

成分(質量%)又は物性	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16
SiO ₂	53.95	51.37	53.92	55.41	50.44	54.75
B ₂ O ₃	27.79	27.62	27.75	27.19	28.16	26.88
Al ₂ O ₃	12.84	14.32	12.82	12.64	14.32	13.70
MgO	1.96	2.87	2.39	3.27	3.28	3.32
CaO	1.85	2.85	2.00	0.23	3.14	0.23
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	0.11	—	—	—	—	—
Li ₂ O	0.69	0.18	0.32	0.69	—	0.65
Na ₂ O	0.10	0.09	0.10	0.10	—	0.10
K ₂ O	—	—	—	—	—	0.15
TiO ₂	—	—	—	—	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	0.19	—
T—Fe ₂ O ₃	0.25	0.24	0.24	—	0.24	—
T—SnO ₂	0.46	0.46	0.46	0.47	0.23	0.23
CeO ₂	—	—	—	—	—	—
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1221	1259	1323	1272	1160	1305
作業温度 [°C]	1309	1332	1326	1343	1340	1342
ΔT [°C]	88	73	3	71	180	37
アルカリ溶出量 [mg]	0.32	0.08	0.18	0.14	0.06	0.10
誘電率	4.5	4.6	4.4	4.4	4.6	4.4
試験温度 [°C]	1600	1600	1600	1600	1600	1600
泡数	C	A	C	B	C	C
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 3 3 】

【表 3】

組成 A-2

成分(質量%)又は物性	実施例17	実施例18	実施例19	実施例20	実施例21	実施例22
SiO ₂	61.35	59.73	62.19	61.57	62.11	60.14
B ₂ O ₃	—	—	—	—	0.57	1.67
Al ₂ O ₃	19.60	19.71	19.87	19.68	20.00	21.00
MgO	10.27	11.71	14.34	11.68	15.88	10.17
CaO	7.19	7.21	1.81	5.39	—	5.27
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	—	—
Li ₂ O	—	—	—	—	—	—
Na ₂ O	0.80	0.60	0.61	0.60	0.61	0.79
K ₂ O	0.30	0.31	0.31	0.31	0.31	—
TiO ₂	—	—	0.13	—	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T—Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	0.26	—
T—SnO ₂	0.49	0.73	0.74	0.49	0.25	0.96
CeO ₂	—	—	—	0.28	—	—
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1242	1268	1337	1259	1320	1282
作業温度 [°C]	1352	1328	1340	1349	1334	1345
ΔT [°C]	110	60	3	90	14	63
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1550	1550	1550	1550	1550	1550
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 3 4 】

【表 4】

組成 A-3						
成分(質量%)又は物性	実施例23	実施例24	実施例25	実施例26	実施例27	実施例28
SiO ₂	66.55	67.25	64.61	66.78	67.52	67.22
B ₂ O ₃	4.65	4.70	6.92	4.67	4.72	4.70
Al ₂ O ₃	3.99	4.03	3.99	4.00	4.04	4.03
MgO	2.49	3.20	3.03	3.06	3.18	3.10
CaO	6.31	8.11	7.67	7.76	8.05	7.86
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	3.58	—	—	—	—	—
Li ₂ O	0.58	—	—	—	0.59	0.59
Na ₂ O	10.10	11.43	11.82	11.35	10.24	10.20
K ₂ O	0.77	0.78	—	0.77	0.78	0.78
TiO ₂	—	—	—	0.13	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T-Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	0.13	—
T-SnO ₂	0.98	0.50	1.96	1.48	0.75	1.24
CeO ₂	—	—	—	—	—	0.28
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	984	1025	1003	1022	1028	1025
作業温度 [°C]	1166	1182	1140	1183	1169	1166
ΔT [°C]	182	157	137	161	141	141
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1500	1500	1500	1500	1500	1500
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 3 5 】

【表 5】

組成 A-4

成分(質量%)又は物性	実施例29	実施例30	実施例31	実施例32	実施例33	実施例34
SiO ₂	54.46	54.36	54.07	54.98	54.85	54.45
B ₂ O ₃	5.91	5.90	5.86	5.96	5.95	5.90
Al ₂ O ₃	14.42	14.39	14.31	14.55	14.52	14.42
MgO	0.39	0.39	0.38	3.51	0.39	0.39
CaO	23.08	22.86	22.48	18.78	23.33	23.07
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	—	—
Li ₂ O	—	—	—	—	—	—
Na ₂ O	0.49	0.49	0.48	0.49	—	0.49
K ₂ O	0.30	0.30	0.29	0.30	—	0.30
TiO ₂	—	0.13	—	—	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T-Fe ₂ O ₃	—	—	0.25	—	—	—
T-SnO ₂	0.95	1.18	1.88	1.43	0.48	0.71
CeO ₂	—	—	—	—	—	0.27
F ₂	—	—	—	—	0.48	—
失透温度 [°C]	1056	1062	1067	1119	1060	1105
作業温度 [°C]	1202	1202	1207	1212	1207	1196
ΔT [°C]	146	140	140	93	147	91
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1500	1500	1500	1500	1500	1500
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 3 6 】

【表 6】

組成 A-5						
成分(質量%)又は物性	実施例35	実施例36	実施例37	実施例38	実施例39	実施例40
SiO ₂	59.93	60.99	61.28	60.39	64.55	63.02
B ₂ O ₃	—	—	—	—	—	1.14
Al ₂ O ₃	11.17	11.09	11.15	11.26	11.29	11.20
MgO	3.41	3.10	3.18	3.28	2.48	1.99
CaO	24.50	22.22	22.97	23.53	17.78	19.84
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	—	—
Li ₂ O	—	0.14	—	0.79	2.37	1.57
Na ₂ O	—	0.30	0.38	—	—	—
K ₂ O	—	0.44	0.29	—	—	—
TiO ₂	—	0.25	—	—	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T—Fe ₂ O ₃	—	—	0.26	—	—	—
T—SnO ₂	0.99	1.47	0.49	0.75	1.25	1.24
CeO ₂	—	—	—	—	0.28	—
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1215	1206	1217	1212	1175	1176
作業温度 [°C]	1239	1247	1254	1215	1228	1230
ΔT [°C]	24	41	37	3	53	54
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1500	1500	1500	1500	1500	1500
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 3 7 】

【表 7】

組成 A-6

成分(質量%)又は物性	実施例41	実施例42	実施例43	実施例44	実施例45	実施例46
SiO ₂	65.17	65.84	65.22	66.60	65.04	65.11
B ₂ O ₃	—	—	—	—	—	1.13
Al ₂ O ₃	11.05	11.08	11.05	10.95	11.03	9.22
MgO	260	223	2.19	208	261	253
CaO	17.01	17.06	18.61	15.36	16.17	16.60
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	1.34	—
Li ₂ O	1.70	2.30	1.66	1.69	1.70	—
Na ₂ O	1.14	—	0.27	1.13	1.14	3.65
K ₂ O	0.34	—	0.26	0.34	0.34	0.26
TiO ₂	—	—	—	0.13	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T-Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	0.13	—
T-SnO ₂	0.99	1.49	0.74	1.72	0.50	1.22
CeO ₂	—	—	—	—	—	0.28
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1183	1189	1156	1173	1159	1201
作業温度 [°C]	1260	1244	1260	1291	1262	1260
ΔT [°C]	77	55	104	118	103	59
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1500	1500	1500	1500	1500	1500
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 3 8 】

【表 8】

組成 A-7

成分(質量%)又は物性	実施例47	実施例48	実施例49	実施例50	実施例51	実施例52
SiO ₂	62.90	65.73	66.65	65.61	63.88	64.58
B ₂ O ₃	—	—	—	—	1.14	—
Al ₂ O ₃	10.82	11.06	9.44	11.04	10.99	10.94
MgO	2.74	1.99	2.13	2.00	2.13	2.11
CaO	14.60	15.21	15.77	15.34	15.72	14.66
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	—	1.33
Li ₂ O	—	3.03	2.31	2.29	1.79	1.78
Na ₂ O	7.44	—	2.20	1.87	2.87	2.86
K ₂ O	0.53	0.99	—	0.48	0.48	0.48
TiO ₂	—	—	—	0.13	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T-Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	0.26	—
T-SnO ₂	0.97	1.99	1.50	1.24	0.74	0.98
CeO ₂	—	—	—	—	—	0.28
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1229	1184	1179	1159	1151	1142
作業温度 [°C]	1270	1229	1234	1243	1221	1249
ΔT [°C]	41	45	55	84	70	107
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1500	1500	1500	1500	1500	1500
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 3 9 】

【表 9】

組成 A-8

成分(質量%)又は物性	実施例53	実施例54	実施例55	実施例56	実施例57	実施例58
SiO ₂	6338	6601	6254	6274	6285	6298
B ₂ O ₃	—	126	—	—	—	—
Al ₂ O ₃	1091	901	1076	1080	1081	1084
MgO	3.12	3.01	3.64	2.67	2.64	2.70
CaO	1057	7.75	9.37	11.41	11.74	11.97
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	0.65	—	—
Li ₂ O	1.04	0.55	—	0.50	0.50	0.50
Na ₂ O	9.19	10.14	11.20	9.24	9.25	9.27
K ₂ O	0.81	0.81	0.80	0.74	0.74	0.75
TiO ₂	—	—	—	—	0.26	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T—Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	—	0.26
T—SnO ₂	0.98	1.46	1.69	0.97	1.21	0.73
CeO ₂	—	—	—	0.28	—	—
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1152	1160	1232	1171	1192	1169
作業温度 [°C]	1228	1266	1266	1247	1243	1247
ΔT [°C]	76	106	34	76	51	78
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1500	1500	1500	1500	1500	1500
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 4 0 】

【表 10】

組成 A-9

成分(質量%)又は物性	実施例59	実施例60	実施例61	実施例62	実施例63	実施例64
SiO ₂	65.55	64.45	65.65	66.11	64.65	65.55
B ₂ O ₃	—	—	1.12	—	—	—
Al ₂ O ₃	9.66	8.12	8.03	7.96	8.02	9.65
MgO	2.91	3.68	2.84	—	3.29	2.84
CaO	7.27	9.19	7.11	11.15	7.38	7.10
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	1.31	—
Li ₂ O	—	—	—	—	—	0.24
Na ₂ O	12.97	13.14	12.99	12.88	12.98	12.90
K ₂ O	0.67	0.68	0.67	0.66	0.67	—
TiO ₂	—	—	0.13	—	—	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T-Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	—	0.26
T-SnO ₂	0.97	0.74	1.46	0.96	1.70	1.46
CeO ₂	—	—	—	0.28	—	—
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1097	1109	1108	1161	1160	1136
作業温度 [°C]	1272	1224	1246	1240	1245	1279
ΔT [°C]	175	115	138	79	85	143
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1500	1500	1500	1500	1500	1500
泡数	B	A	A	A	A	B
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【0241】

10

20

30

40

50

【表 1 1】

組成 A-10						
成分(質量%)又は物性	実施例65	実施例66	実施例67	実施例68	実施例69	実施例70
SiO ₂	67.57	62.47	65.00	65.50	65.98	66.01
B ₂ O ₃	13.29	18.67	14.14	14.14	14.14	14.15
Al ₂ O ₃	7.17	7.12	7.77	7.78	7.78	7.78
MgO	0.03	0.07	0.42	0.30	0.02	0.08
CaO	0.01	0.04	0.24	0.05	—	—
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	—	—
Li ₂ O	0.30	0.30	—	—	—	—
Na ₂ O	10.37	10.31	10.71	10.71	10.71	10.72
K ₂ O	0.79	0.78	0.54	0.54	0.54	0.54
TiO ₂	—	—	—	—	0.12	—
ZrO ₂	—	—	—	—	—	—
T-Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	—	0.25
T-SnO ₂	0.47	0.24	1.18	0.71	0.71	0.47
CeO ₂	—	—	—	0.27	—	—
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	958	867	887	876	918	870
作業温度 [°C]	1264	1210	1254	1266	1267	1273
ΔT [°C]	306	343	367	390	349	403
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1600	1600	1600	1600	1600	1600
泡数	B	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【0 2 4 2】

10

20

30

40

50

【表 1 2】

組成 A-12

成分(質量%)又は物性	実施例71	実施例72	実施例73	実施例74	実施例75	実施例76
SiO ₂	69.31	68.47	70.43	68.35	69.59	69.37
B ₂ O ₃	—	—	—	—	0.57	—
Al ₂ O ₃	1.46	1.45	—	2.28	0.63	1.46
MgO	2.50	2.65	2.70	2.65	2.74	2.71
CaO	6.24	6.63	6.74	6.60	6.86	6.78
SrO	—	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	—	—
Li ₂ O	1.95	—	0.98	0.97	0.98	0.98
Na ₂ O	9.08	12.97	11.15	11.03	11.15	11.12
K ₂ O	0.68	0.67	0.68	0.67	0.68	0.68
TiO ₂	—	—	—	—	—	0.13
ZrO ₂	8.04	5.95	6.05	5.99	6.05	6.03
T-Fe ₂ O ₃	—	—	—	—	0.26	—
T-SnO ₂	0.74	1.21	0.99	1.46	0.49	0.74
CeO ₂	—	—	0.28	—	—	—
F ₂	—	—	—	—	—	—
失透温度 [°C]	1005	1080	1008	1049	1173	1003
作業温度 [°C]	1231	1258	1225	1240	1230	1258
ΔT [°C]	226	178	217	191	57	255
アルカリ溶出量 [mg]	—	—	—	—	—	—
誘電率	—	—	—	—	—	—
試験温度 [°C]	1550	1550	1550	1550	1550	1550
泡数	A	A	A	A	A	A
発光色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色	青白色

【 0 2 4 3 】

10

20

30

40

50

【表 13】

成分(質量%)又は物性	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
SiO ₂	74.20	55.12	54.15	54.08	53.38
B ₂ O ₃	22.00	26.83	27.88	26.32	27.71
Al ₂ O ₃	0.30	12.89	12.88	12.65	12.80
MgO	—	2.55	3.12	2.06	2.46
CaO	0.50	2.33	1.44	1.88	2.24
SrO	—	—	—	—	—
BaO	—	—	—	—	—
ZnO	—	—	—	—	—
Li ₂ O	0.50	0.18	0.18	0.18	0.18
Na ₂ O	1.00	0.10	0.10	0.09	0.09
K ₂ O	1.50	—	—	—	—
TiO ₂	—	—	—	—	0.61
ZrO ₂	—	—	—	—	—
T—Fe ₂ O ₃	—	—	0.25	—	—
T—SnO ₂	—	—	—	2.74	—
CeO ₂	—	—	—	—	0.53
F ₂	—	—	—	—	—
失透温度[°C]	—	1240	1278	>1343	1226
作業温度[°C]	—	1343	1332	1343	1310
ΔT[°C]	—	103	54	<0	84
アルカリ溶出量[mg]	0.45	0.21	0.32	0.35	0.27
誘電率	—	44	44	44	45
試験温度[°C]	1600	1600	1600	1600	1600
泡数	D	D	D	A	D
発光色	—	—	—	青白色	—

【0244】

実施例1～76で得られたガラス組成物の温度差ΔT（作業温度－失透温度）は、3℃～182℃であった。実施例1～16で得られたガラス組成物のアルカリ溶出量は、0.06～0.32mgであった。実施例1～16で得られたガラス組成物の周波数1GHzにおける誘電率は、4.4～4.6であった。実施例1～76で得られたガラス組成物の泡数は、A～Cであった。実施例1～76で得られたいずれのガラス組成物においても、紫外線による発光が見られた。

【0245】

他方、比較例1で得られたガラス組成物は、T—SnO₂の含有率が本発明において規定される組成範囲より外にあった。そのため、比較例1で得られたガラス組成物の泡数はDであり、実施例1～76で得られたガラス組成物の泡数に比べて大きかった。また、比較例1で得られたガラス組成物において、紫外線による発光は見られなかった。

【0246】

比較例2で得られたガラス組成物は、T—SnO₂の含有率が本発明において規定される組成範囲より外にあった。そのため、比較例2で得られたガラス組成物の泡数はDであり、実施例1～76で得られたガラス組成物の泡数に比べて大きかった。また、比較例2で得られたガラス組成物において、紫外線による発光は見られなかった。

【0247】

比較例3で得られたガラス組成物は、T—SnO₂の含有率が本発明において規定される組成範囲より外にあった。そのため、比較例3で得られたガラス組成物の泡数はDであり、実施例1～76で得られたガラス組成物の泡数に比べて大きかった。また、比較例3で得られたガラス組成物において、紫外線による発光は見られなかった。

【0248】

比較例4で得られたガラス組成物は、 $T-SnO_2$ の含有率が本発明において規定される組成範囲より外にあった。そのため、比較例4で得られたガラス組成物の ΔT は $0^\circ C$ 未満であり、実施例1～76で得られたガラス組成物の ΔT に比べて小さかった。

【0249】

比較例5で得られたガラス組成物は、 $T-SnO_2$ の含有率が本発明において規定される組成範囲より外にあった。そのため、比較例5で得られたガラス組成物の泡数はDであり、実施例1～76で得られたガラス組成物の泡数に比べて大きかった。また、比較例5で得られたガラス組成物において、紫外線による発光は見られなかった。

10

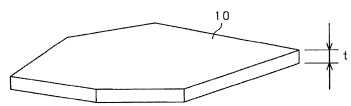
20

30

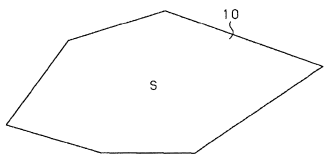
40

50

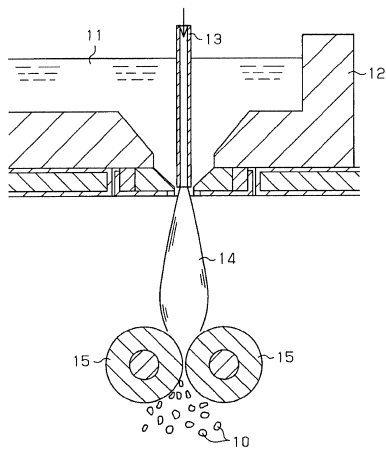
【図面】
【図 1 A】



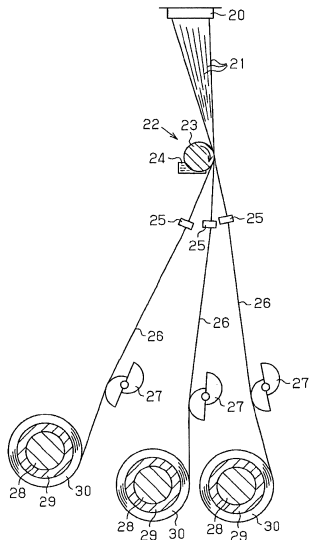
【図 1 B】



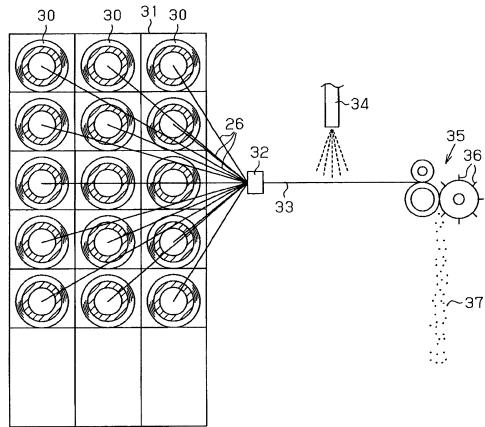
【図 2】



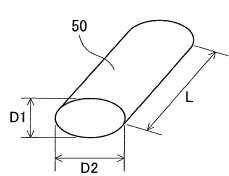
【図 3】



【図 4】



【図 5】



10

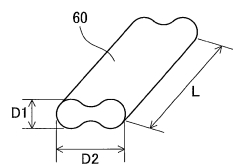
20

30

40

50

【図 6】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

C 0 3 C	17/22	(2006.01)	C 0 3 C	17/22	Z
C 0 9 D	7/61	(2018.01)	C 0 9 D	7/61	
C 0 9 D	11/02	(2014.01)	C 0 9 D	11/02	
C 0 9 D	201/00	(2006.01)	C 0 9 D	201/00	

(56)参考文献

米国特許出願公開第2020/0039870 (US, A1)

国際公開第2010/024283 (WO, A1)

米国特許第04166745 (US, A)

特表2016-528152 (JP, A)

特開2010-064922 (JP, A)

国際公開第2016/035674 (WO, A1)

特開2001-122637 (JP, A)

特表2015-516356 (JP, A)

特開2001-080935 (JP, A)

特表2017-520496 (JP, A)

特開2007-246365 (JP, A)

特開2011-162435 (JP, A)

特表2017-526607 (JP, A)

特開2018-203571 (JP, A)

特開平02-208236 (JP, A)

特開2018-177601 (JP, A)

米国特許出願公開第2020/0181004 (US, A1)

JOURNAL OF NON-CRYSTALLINE SOLIDS, 2004年07月15日, Volume 337, No.3, 232-240

Journal of the American Ceramic Society, 2013年09月, Volume 96, Number 9, 2831-2838

(58)調査した分野 (Int.Cl., D B名)

C 0 3 C 1/00 - 14/00

C 0 3 C 17/00 - 17/44

C 0 9 D 1/00 - 10/00

C 0 9 D 101/00 - 201/10

INTERGLAD