

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6352186号
(P6352186)

(45) 発行日 平成30年7月4日(2018.7.4)

(24) 登録日 平成30年6月15日(2018.6.15)

(51) Int.Cl.

F 1

C03C 13/00 (2006.01)

C03C 13/00
C03C 13/02 (2006.01)

C03C 13/02

請求項の数 20 (全 32 頁)

(21) 出願番号 特願2014-529810 (P2014-529810)
 (86) (22) 出願日 平成24年9月5日 (2012.9.5)
 (65) 公表番号 特表2014-530162 (P2014-530162A)
 (43) 公表日 平成26年11月17日 (2014.11.17)
 (86) 國際出願番号 PCT/US2012/053742
 (87) 國際公開番号 WO2013/036505
 (87) 國際公開日 平成25年3月14日 (2013.3.14)
 審査請求日 平成27年8月28日 (2015.8.28)
 (31) 優先権主張番号 13/229,012
 (32) 優先日 平成23年9月9日 (2011.9.9)
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 399074983
 ピーピージー・インダストリーズ・オハイ
 オ・インコーポレイテッド
 P P G I n d u s t r i e s O h i o
 , I n c.
 アメリカ合衆国 オハイオ 44111ク
 リーブランド ウエスト・ワンハンドレッ
 ドフォーティサード・ストリート3800
 (74) 代理人 100078282
 弁理士 山本 秀策
 (74) 代理人 100113413
 弁理士 森下 夏樹

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】低誘電ガラスおよび纖維ガラス

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

SiO_2 69.19 ~ 77 重量パーセント;
 B_2O_3 4.5 ~ 10 重量パーセント;
 Al_2O_3 4.5 ~ 10.37 重量パーセント;
 MgO 4 ~ 12.5 重量パーセント;
 CaO 4.88 ~ 10.5 重量パーセント;
 Li_2O 0 ~ 2 重量パーセント;
 Na_2O 0 ~ 2 重量パーセント;
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント;
 F_2 0 ~ 2 重量パーセント;
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント

を含む纖維形成に適したガラス組成物であって、

ここで、 $(\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O})$ 含量が 2 重量パーセント以下である、組成物。

【請求項2】

 B_2O_3 含量が 5 ~ 10 重量パーセントである、請求項1に記載の組成物。

【請求項3】

10

20

B_2O_3 含量が 9 重量パーセント未満である、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 4】

B_2O_3 含量が 8 重量パーセントより多くない、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 5】

MgO 含量が 5 . 0 重量パーセントより多い、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 6】

MgO 含量が 5 . 8 5 重量パーセント未満である、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 7】

Al_2O_3 含量が 7 . 2 7 重量パーセント未満である、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 8】

$MgO + CaO$ 含量が 1 6 重量パーセント未満である、請求項 1 に記載の組成物。

10

【請求項 9】

$MgO + CaO$ 含量が 8 . 8 8 ~ 1 6 重量パーセントである、請求項 1 に記載の組成物

。

【請求項 10】

Li_2O 含量が少なくとも 0 . 4 重量パーセントである、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 11】

本質的に BaO を含まず、本質的に ZnO を含まない、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 12】

請求項 1 に記載の組成物から形成される複数のガラス纖維。

20

【請求項 13】

SiO_2 6 9 . 1 9 ~ 7 7 重量パーセント ;

B_2O_3 5 ~ 1 0 重量パーセント ;

Al_2O_3 4 . 5 ~ 1 0 . 3 7 重量パーセント ;

MgO 5 ~ 1 2 . 5 重量パーセント ;

CaO 4 . 8 8 ~ 1 0 . 5 重量パーセント ;

Li_2O 0 ~ 2 重量パーセント ;

Na_2O 0 ~ 2 重量パーセント ;

K_2O 0 ~ 1 重量パーセント ;

Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント ;

30

F_2 0 ~ 2 重量パーセント ;

TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント ; および

他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント

を含む纖維形成に適したガラス組成物であって、

ここで、 $MgO + CaO$ 含量が 1 6 重量パーセント未満であり、そして

ここで、($Li_2O + Na_2O + K_2O$) 含量が 2 重量パーセント以下 である、組成物。

【請求項 14】

B_2O_3 含量が 9 重量パーセント未満である、請求項 1 3 に記載の組成物。

【請求項 15】

40

MgO 含量が 5 . 8 5 重量パーセント未満である、請求項 1 3 に記載の組成物。

【請求項 16】

Al_2O_3 含量が 7 . 2 7 重量パーセント未満である、請求項 1 3 に記載の組成物。

【請求項 17】

$MgO + CaO$ 含量が 1 0 ~ < 1 6 重量パーセントである、請求項 1 3 に記載の組成物

。

【請求項 18】

Li_2O 含量が少なくとも 0 . 4 重量パーセントである、請求項 1 3 に記載の組成物。

【請求項 19】

本質的に BaO を含まず、本質的に ZnO を含まない、請求項 1 3 に記載の組成物。

50

【請求項 20】

請求項 13 に記載の組成物から形成される複数のガラス纖維。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

関連出願への相互参照

本出願は、2011年9月9日に出願された米国特許出願第13/229,012号に對して優先権を主張する。この米国特許出願第13/229,012号は、2010年11月5日に出願された米国特許出願第12/940,764号の一部継続出願であり、この米国特許出願第12/940,764号は、2006年12月14日に出願された米国特許出願第11/610,761号であって現在は2010年11月9日に発行された米国特許第7,829,490号の一部継続出願であり、これらの内容はその全体が本明細書において参照として援用される。10

【背景技術】**【0002】**

本発明は、例えば、ガラス纖維を形成するために使用可能なガラス組成物に関する。このようなガラス纖維は、広範囲にわたる末端用途での適用に使用することができる。

【0003】

例えば、一部の実施形態において、ガラス纖維は、プリント基板（「PCB」）を含む複合基板を強化するために使用することができる纖維を形成するように適合される。より具体的には、本発明の一部の実施形態は、PCBの性能を高めることができ電気的特性を有するガラス纖維の強化に関する。20

【0004】

「 D_k 」は、材料の誘電定数であり、「誘電率」としても知られ、材料が電気エネルギーを蓄える能力の指標である。コンデンサとして使用される材料は、望ましくは、比較的高い D_k を有し、一方、PCB基板の一部として使用される材料は、望ましくは、特に高速回路の場合には、低 D_k を有する。 D_k は、同じ2枚の金属板の間の空隙（空気または真空）に蓄えられる電荷量に対する、2枚の金属板の間の所与の材料に蓄えられる電荷の比率（すなわち電気容量）である。「 D_f 」、すなわち散逸率は、誘電材料における電力消失の指標である。 D_f は、電流の容量性要素に対する電流の抵抗損失要素の比率であり、損失角の正接に等しい。高速回路の場合、PCB基材を含む材料の D_f が比較的低いことが望ましい。30

【0005】

PCBは、一般的に、「Standard Specification for Glass Fiber Strands」D 578 American Society for Testing and Materialsに基づき、組成物の「E-ガラス」群のガラス纖維で強化されてきた。この定義によれば、エレクトロニクス用途のためのE-ガラスは、5~10重量パーセントの B_2O_3 を含み、このことは、ガラス組成物の誘電特性に対する B_2O_3 の望ましい効果の認識を反映している。エレクトロニクス用途のためのE-ガラスは、典型的には、1MHzの周波数で6.7~7.3の範囲の D_k を有する。標準的なエレクトロニクス用E-ガラスは、実際の製造を促す融点および成形温度（forming temperature）ももたらされるように配合される。成形温度（粘度が1000ボイズである温度）は、本明細書では T_f とも呼ばれ、商業的なエレクトロニクス用E-ガラスは、典型的には、1170~1250の範囲である。40

【0006】

高性能プリント基板は、よりよい性能（すなわち、ノイズ信号の伝送が少ない）のために、遠隔通信および電子計算における用途のためにE-ガラスと比較して低い D_k を有する基板の強化を必要とする。任意選択で、エレクトロニクス産業によって、E-ガラスと比較して D_f が小さいことも望ましい。PCB産業は、低誘電纖維ガラスを必要とするが50

、ガラス纖維強化の製造は、低誘電纖維の首尾良い商業化を達成するために経済的な実現可能性という課題に対処することを必要とする。この目的のために、従来技術で提案されたD_kがある程度低いガラス組成物は、この経済に関する課題に十分に対処していない。

【0007】

従来技術における誘電率がある程度低いガラスは、高SiO₂含量または高B₂O₃含量、または高SiO₂および高B₂O₃の組み合わせを特徴とする。後者の一例は、「D-ガラス」として知られている。低D_kガラスへのこのアプローチに関する詳細な情報は、L. NaviasおよびR. L. Greenによる文献（非特許文献1）、特許文献1（S. Tamura）、特許文献2（Y. Hirokazu）の中に見いだすことができる。SiO₂纖維およびD-ガラス型のガラスは、PCB基板（例えば、織布纖維およびエポキシ樹脂で構成される積層体）の布形態において強化材として使用してきた。これらのアプローチは、両方とも首尾良く低D_kをもたらす（時に、約3.8または4.3と低い）が、このような組成物の高融点および高成形温度によって、このような纖維が望ましくない程度まで高コストとなる。D-ガラス纖維は、典型的には、1400を超える成形温度を必要とし、SiO₂纖維は、約2000程度の成形温度を必要とする。さらに、D-ガラスは、20重量%以上の高B₂O₃含量を特徴とする。B₂O₃は、従来のエレクトロニクス用E-ガラスを製造するのに必要な最も高価な原材料のひとつであるため、D-ガラスにおいてB₂O₃をかなり多く使用すると、E-ガラスと比較して、そのコストが顕著に増大する。したがって、SiO₂も、D-ガラス纖維も、大スケールで高性能PCB基板材料を製造する現実的な解決法を提供しない。

【0008】

高B₂O₃濃度（すなわち、11～25重量パーセント）および他の比較的高価な成分、例えば、ZnO（10重量パーセントまで）およびBaO（10重量パーセントまで）に基づく他の低誘電纖維ガラスが、特許文献2（Hirokazu）に記載されており、1MHzで4.8～5.6範囲のD_k値が報告されている。これらの組成物中にBaOが含まれることは、コストと環境の理由から問題である。この参考文献の組成物において、高価なB₂O₃の濃度が高いにもかかわらず、開示されている纖維の成形温度は、比較的高い（例えば、1355～1429）。同様に、高B₂O₃濃度（すなわち、14～20重量パーセント）および相対的に高価なTiO₂（5重量パーセントまで）に基づく他の低誘電纖維ガラスが、特許文献1（Tamura）に記載されており、1MHzでのD_kが4.6～4.8であり、散逸率D_fが0.0007～0.001である。特許文献3（Hiroshi）において、1MHzで5.2～5.3の範囲のD_kを有するホウ素を含まない低誘電ガラスが開示されている。これらのホウ素を含まないガラスは、おそらくコストが比較的低い原材料を用いることによって低D_kをもたらすが、これらの欠点は、1000ポイズの溶融粘度での纖維の成形温度が1376～1548と高いことである。さらに、これらのホウ素を含まないガラスは、非常に狭い成形ウィンドウ（成形温度と液相線温度の差）を有し、典型的には、25以下（一部の場合では、負）であり、一方、商業的な纖維ガラス産業において、一般的に約55以上のウィンドウが好都合であると考えられる。

【0009】

コストの増大を管理しつつ、PCBの性能を高めるために、E-ガラス組成物と比較して、電気的特性（D_kおよび/またはD_f）の顕著な向上をもたらすガラス纖維のための組成物を提供し、同時に、SiO₂およびD-ガラス型および上述の低誘電ガラスへの他の従来技術のアプローチよりも実際に低い成形温度をもたらすことが有利であろう。原材料のコストを顕著に下げるために、B₂O₃含量をD-ガラスのB₂O₃含量よりも低く（例えば、13重量パーセント未満または12パーセント未満）維持することが望ましいだろう。また、一部の状況では、ガラス組成物が、エレクトロニクス用E-ガラスのASTMの定義に含まれ、そのため、10重量パーセント以下のB₂O₃を必要とすることも有利であり得る。また、纖維ガラス産業では一般的ではないBaOまたはZnOのような高価な材料を必要とすることなく、低D_kガラス纖維を製造することも有利であろう。そ

10

20

30

40

50

れに加え、市販の実用ガラス組成物は、望ましくは、原材料中の不純物について許容範囲を有し、それによりあまり高価ではないバッチ材料の使用も可能となる。

【0010】

P C B 複合材におけるガラス纖維の重要な機能は、機械的強度を与えることであるため、電気的特性の向上は、ガラス纖維の強度を顕著に犠牲にすることなく達成されることが最良であろう。ガラス纖維の強度は、ヤング率または本来の引張強度の観点であらわすことができる。一部の代替となるアプローチで必要とされるように、新しい低誘電纖維ガラスという解決法を使用し、使用する樹脂の大幅な変化を必要とせず、またはより高価な樹脂を少なくとも実質的に必要とせずに P C B を製造することも望ましい。

【0011】

一部の実施形態において、本発明のガラス組成物を、限定されないが、航空宇宙、航空機産業、風力エネルギー、積層体、レーダームおよび他の用途を含むさまざまな他の末端用途での適用において、他のポリマー樹脂の強化に使用することができる纖維の形成に適合させる。このような用途において、電気的特性（例えば、上述のようなもの）は、重要な場合もあるし、重要ではない場合もある。一部の用途において、他の特性（例えば、比強度または比弾性率または重量）が重要な場合もある。一部の実施形態では、ガラス纖維は、まず布内に配列され得る。一部の実施形態では、本発明のガラス纖維は、他の形態で、例えば限定されないが、チョップドストランド（乾燥または湿潤）、ヤーン、ウォービング（w o v i n g）、プリプレグなどとして供給され得る。要するに、該ガラス組成物の種々の実施形態（および該組成物で形成される任意の纖維）が、さまざまな用途に使用され得る。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献1】米国特許出願第2003/0054936 A1号

【特許文献2】特許第3409806号公報

【特許文献3】特開2002-154843号公報

【非特許文献】

【0013】

【非特許文献1】「Dielectric Properties of Glasses at Ultra-High Frequencies and their Relation to Composition」, J. Am. Ceram. Soc., 29, 267~276 (1946)

30

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0014】

要旨

本発明の実施形態は、一般的に、ガラス組成物、およびガラス組成物から形成されたガラス纖維に関する。一部の実施形態において、電気的な用途（例えば、プリント基板）および強化用途（例えば、種々の用途で使用可能な纖維ガラスによって強化された複合体）を含む多くの用途にガラス纖維を使用することができる。一部の実施形態において、本発明の纖維化可能なガラス組成物は、従来技術の低D_kガラス提案物よりも市販の実用纖維形成物に対してより導電性の温度-粘度関係を与えつつ、標準的なE-ガラスと比べて改善された電気的性能（すなわち、低誘D_kおよび/または低D_f）を与えることができる。本発明のガラス組成物またはガラス纖維の一部の実施形態は、比較的低い原料バッチコストで商業的に作製され得る。一部の実施形態において、本発明のガラス纖維は、望ましいおよび/または商業的に許容され得る機械的特性を与えることができる。

40

【0015】

本発明の別の態様において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

S i O₂ 53.5~77重量パーセント；

50

B_2O_3 4.5 ~ 14.5 重量パーセント;
 Al_2O_3 4.5 ~ 18.5 重量パーセント;
 MgO 4 ~ 12.5 重量パーセント;
 CaO 0 ~ 10.5 重量パーセント;
 Li_2O 0 ~ 4 重量パーセント;
 Na_2O 0 ~ 2 重量パーセント;
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント;
 F_2 0 ~ 2 重量パーセント;
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント
 を含み得、ガラス纖維の形態であってもよい。 10

【0016】

本発明の別の態様において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

SiO_2 60 ~ 77 重量パーセント;
 B_2O_3 4.5 ~ 14.5 重量パーセント;
 Al_2O_3 4.5 ~ 18.5 重量パーセント;
 MgO 8 ~ 12.5 重量パーセント;
 CaO 0 ~ 4 重量パーセント;
 Li_2O 0 ~ 3 重量パーセント; 20
 Na_2O 0 ~ 2 重量パーセント;
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント;
 F_2 0 ~ 2 重量パーセント;
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント
 を含み得、ガラス纖維の形態であってもよい。

【0017】

本発明の一態様において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

SiO_2 60 ~ 68 重量パーセント; 30
 B_2O_3 7 ~ 13 重量パーセント;
 Al_2O_3 9 ~ 15 重量パーセント;
 MgO 8 ~ 15 重量パーセント;
 CaO 0 ~ 4 重量パーセント;
 Li_2O 0 ~ 2 重量パーセント;
 Na_2O 0 ~ 1 重量パーセント;
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント;
 F_2 0 ~ 1 重量パーセント; および
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント 40
 を含み得、ガラス纖維の形態であってもよい。

【0018】

本発明の別の態様において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

SiO_2 少なくとも 60 重量パーセント;
 B_2O_3 5 ~ 11 重量パーセント;
 Al_2O_3 5 ~ 18 重量パーセント;
 MgO 5 ~ 12 重量パーセント;
 CaO 0 ~ 10 重量パーセント;
 Li_2O 0 ~ 3 重量パーセント;
 Na_2O 0 ~ 2 重量パーセント; 50

K_2O 0 ~ 1 重量パーセント ;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント ;
 F_2 0 ~ 2 重量パーセント ;
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント ; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント
 を含み得、ガラス纖維の形態であってもよい。

【0019】

本発明の別の態様において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

SiO_2 60 ~ 68 重量パーセント ;
 B_2O_3 5 ~ 10 重量パーセント ;
 Al_2O_3 10 ~ 18 重量パーセント ;
 MgO 8 ~ 12 重量パーセント ;
 CaO 0 ~ 4 重量パーセント ;
 Li_2O 0 ~ 3 重量パーセント ;
 Na_2O 0 ~ 2 重量パーセント ;
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント ;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント ;
 F_2 0 ~ 2 重量パーセント ;
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント ; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント
 を含み得、ガラス纖維の形態であってもよい。

【0020】

本発明の別の態様において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

SiO_2 62 ~ 68 重量パーセント ;
 B_2O_3 7 ~ 9 重量パーセント ;
 Al_2O_3 11 ~ 18 重量パーセント ;
 MgO 8 ~ 11 重量パーセント ;
 CaO 1 ~ 2 重量パーセント ;
 Li_2O 1 ~ 2 重量パーセント ;
 Na_2O 0 ~ 0.5 重量パーセント ;
 K_2O 0 ~ 0.5 重量パーセント ;
 Fe_2O_3 0 ~ 0.5 重量パーセント ;
 F_2 0.5 ~ 1 重量パーセント ;
 TiO_2 0 ~ 1 重量パーセント ; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント
 を含み得、ガラス纖維の形態であってもよい。

【0021】

一部の実施形態において、本発明の組成物は、比較的低い CaO 含量、例えば、約 0 ~ 4 重量パーセント程度を特徴とするものである。また他の実施形態では、 CaO 含量は約 0 ~ 3 重量パーセント程度であり得る。また他の実施形態では、 CaO 含量は約 0 ~ 2 重量パーセント程度であり得る。一般に、 CaO 含量を最小限にすると電気的特性の改善がもたらされ、 CaO 含量は、一部の実施形態において、任意選択の構成物質とみなすことができるような低レベルまで低減された。一部の他の実施形態では、 CaO 含量は約 1 ~ 2 重量パーセント程度であり得る。

【0022】

他方で、 MgO 含量は、この型のガラスでは比較的高く、一部の実施形態では、 MgO 含量は CaO 含量の 2 倍である（重量パーセント基準で）。本発明の一部の実施形態は、約 5.0 重量パーセントより多い MgO 含量を有するものであり得、他の実施形態では、 MgO 含量は 8.0 重量パーセントより多い場合もあり得る。一部の実施形態では、本発明の組成物は、例えば約 8 ~ 13 重量パーセント程度の MgO 含量を特徴とするものであ

る。また他の実施形態では、MgO含量は約9～12重量パーセント程度であり得る。一部の他の実施形態では、MgO含量は約8～12重量パーセント程度であり得る。また他の一部の実施形態では、MgO含量は約8～10重量パーセント程度であり得る。

【0023】

一部の実施形態において、本発明の組成物は、例えば16重量パーセント未満である(MgO + CaO)含量を特徴とするものである。また他の実施形態では、(MgO + CaO)含量は13重量パーセント未満である。一部の他の実施形態では、(MgO + CaO)含量は7～16重量パーセントである。また他の一部の実施形態では、(MgO + CaO)含量は約10～13重量パーセント程度であり得る。

【0024】

また他の一部の実施形態では、本発明の組成物は、(MgO + CaO) / (Li₂O + Na₂O + K₂O)含量比を特徴とするものであり、それは、約9.0程度であり得る。一部の特定の実施形態では、Li₂O / (MgO + CaO)含量比は約0～2.0程度であり得る。また他の一部の実施形態では、Li₂O / (MgO + CaO)含量比は約1～2.0程度であり得る。一部の特定の実施形態では、Li₂O / (MgO + CaO)含量比は約1.0程度であり得る。

【0025】

一部の他の実施形態では、(SiO₂ + B₂O₃)含量は70～76重量パーセント程度であり得る。また他の実施形態では、(SiO₂ + B₂O₃)含量は70重量パーセント程度であり得る。他の実施形態では、(SiO₂ + B₂O₃)含量は73重量パーセント程度であり得る。さらに他の実施形態では、B₂O₃の重量パーセントに対するAl₂O₃の重量パーセントの比は1～3程度である。一部の他の実施形態では、B₂O₃の重量パーセントに対するAl₂O₃の重量パーセントの比は1.5～2.5程度である。一部の特定の実施形態では、SiO₂含量は65～68重量パーセント程度である。

【0026】

上記のように、先行技術の一部の低D_k組成物は、実質的な量のBaOを含めることが必要であるという不都合を有するが、本発明のガラス組成物ではBaOは必要とされないことがみとめられ得る。本発明の好都合な電気的特性および製造特性はBaOの存在を排除するものではないが、BaOの意図的な含有がないことは、本発明の一部の実施形態のさらなる利点とみなすことができる。したがって、本発明の実施形態は、1.0重量パーセント未満のBaOの存在を特徴とするものであり得る。微量不純物量しか存在しない実施形態では、BaO含量は0.05重量パーセント以下であることを特徴とするものであり得る。

【0027】

本発明の組成物には、B₂O₃が、低D_kを達成するために高いB₂O₃に依存している先行技術アプローチよりも少ない量で含まれている。これにより相当な費用削減がもたらされる。一部の実施形態では、必要なB₂O₃含量は13重量パーセント以下、または12重量パーセント以下である。また、本発明の一部の実施形態は、エレクトロニクス用E-ガラスのASTMの定義に含まれるもの、すなわちB₂O₃が10重量パーセント以下である。

【0028】

一部の実施形態において、本発明の組成物は、例えば約5～11重量パーセント程度のB₂O₃含量を特徴とするものである。一部の実施形態では、B₂O₃含量は6～11重量パーセントであり得る。B₂O₃含量は、一部の実施形態では6～9重量パーセントであり得る。一部の実施形態では、B₂O₃含量は5～10重量パーセントであり得る。一部の他の実施形態では、B₂O₃含量は9重量パーセントより多くない。また他の一部の実施形態では、B₂O₃含量は8重量パーセントより多くない。

【0029】

一部の実施形態において、本発明の組成物は、例えば約5～18重量パーセント程度のAl₂O₃含量を特徴とするものである。Al₂O₃含量は、一部の実施形態では9～1

10

20

30

40

50

8重量パーセントであり得る。また他の実施形態では、 Al_2O_3 含量は約10～18重量パーセント程度である。一部の他の実施形態では、 Al_2O_3 含量は約10～16重量パーセント程度である。また他の一部の実施形態では、 Al_2O_3 含量は約10～14重量パーセント程度である。一部の特定の実施形態では、 Al_2O_3 含量は約11～14重量パーセント程度である。

【0030】

一部の実施形態において、 Li_2O は任意選択の構成物質である。一部の実施形態では、本発明の組成物は、例えば約0.4～2.0重量パーセント程度の Li_2O 含量を特徴とするものである。一部の実施形態では、 Li_2O 含量は($Na_2O + K_2O$)含量よりも多い。一部の実施形態では、($Li_2O + Na_2O + K_2O$)含量は2重量パーセントより多くない。一部の実施形態では、($Li_2O + Na_2O + K_2O$)含量は約1～2重量パーセント程度である。

10

【0031】

一部の特定の実施形態では、本発明の組成物は、例えば約0～1重量パーセント程度の TiO_2 含量を特徴とするものである。

【0032】

上記に示した組成物において、該構成物質は、標準的なE-ガラスのものより小さい誘電定数を有するガラスが得られるように釣り合いが取られる。比較のための標準的なエレクトロニクス用E-ガラスに関して、これは1MHzの周波数で約6.7未満であり得る。他の実施形態では、誘電定数(D_k)は1MHzの周波数で6未満であり得る。他の実施形態では、誘電定数(D_k)は1MHzの周波数で5.8未満であり得る。さらなる実施形態は、1MHzの周波数で5.6未満またはさらに小さい誘電定数(D_k)を示すものである。他の実施形態では、誘電定数(D_k)は1MHzの周波数で5.4未満であり得る。また他の実施形態では、誘電定数(D_k)は1MHzの周波数で5.2未満であり得る。また他の実施形態では、誘電定数(D_k)は1MHzの周波数で5.0未満であり得る。

20

【0033】

また、上記に示した組成物は、ガラス纖維の実用的な商業的製造につながる望ましい温度・粘度関係を有する。一般に、該纖維の作製には、先行技術の組成物のD-ガラスタイルと比べてより低温が必要とされる。望ましい特性はいくつかの様式で表示され得、該特性は、本発明の組成物によって単独または組合せで得られ得る。一般に、1000ポイズの粘度で1370以下の成形温度(T_f)を示す上記に示した範囲内的一部の特定のガラス組成物が作製され得る。一部の実施形態の T_f は1320以下、または1300以下、または1290以下、または1260以下、または1250以下である。また、このような組成物には、成形温度と液相線温度(T_L)の差が正の値であるガラスも含まれ、一部の実施形態では成形温度は液相線温度よりも少なくとも55高く、これは、このようなガラス組成物からの纖維の商業的製造に好都合である。

30

【0034】

一般に、ガラス組成物のアルカリ酸化物含量を最小限にすることにより D_k の低下が補助される。 D_k の低減を最適化することが所望される実施形態では、総アルカリ酸化物はガラス組成物の2重量パーセント以下である。本発明の組成物では、 Na_2O および K_2O を最小限にすることは、これとの関連において Li_2O よりも有効であることがわかった。アルカリ酸化物の存在は、一般的に低い成形温度をもたらす。したがって、比較的低い成形温度を得ることが優先事項である本発明の実施形態では、 Li_2O を有意な量、例えば少なくとも0.4重量パーセントで含める。この目的のため、一部の実施形態では、 Li_2O 含量が Na_2O または K_2O のいずれかの含量よりも多く、他の実施形態では、 Li_2O 含量は Na_2O と K_2O の含量の合計よりも多く、一部の実施形態では2倍以上多い。

40

【0035】

一部の実施形態において、纖維形成に適したガラス組成物は、以下の構成物質：

50

SiO_2 62 ~ 68 重量パーセント；
 B_2O_3 約9 重量パーセント未満；
 Al_2O_3 10 ~ 18 重量パーセント；
 MgO 8 ~ 12 重量パーセント；および
 CaO 0 ~ 4 重量パーセント；

を含んでいてもよく、ガラス纖維の形態であってもよく、
ガラスが6.7未満の誘電定数(D_k)で、1000ポイズの粘度で1370 以下の成形温度(T_F)を示すものである。

【0036】

本発明の一部の実施形態において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

B_2O_3 14 重量パーセント未満；
 Al_2O_3 9 ~ 15 重量パーセント；
 MgO 8 ~ 15 重量パーセント；
 CaO 0 ~ 4 重量パーセント；および
 SiO_2 60 ~ 68 重量パーセント；

を含んでいてもよく、ガラス纖維の形態であってもよく、
ガラスが6.7未満の誘電定数(D_k)で、1000ポイズの粘度で1370 以下の成形温度(T_F)を示すものである。

【0037】

本発明の一部の他の実施形態において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

B_2O_3 9 重量パーセント未満；
 Al_2O_3 11 ~ 18 重量パーセント；
 MgO 8 ~ 11 重量パーセント；
 CaO 1 ~ 2 重量パーセント；および
 SiO_2 62 ~ 68 重量パーセント；

を含んでいてもよく、ガラス纖維の形態であってもよく、
ガラスが6.7未満の誘電定数(D_k)で、1000ポイズの粘度で1370 以下の成形温度(T_F)を示すものである。

【0038】

本発明のある特定の実施形態において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

SiO_2 60 ~ 68 重量パーセント；
 B_2O_3 7 ~ 13 重量パーセント；
 Al_2O_3 9 ~ 15 重量パーセント；
 MgO 8 ~ 15 重量パーセント；
 CaO 0 ~ 3 重量パーセント；
 Li_2O 0.4 ~ 2 重量パーセント；
 Na_2O 0 ~ 1 重量パーセント；
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント；
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント；
 F_2 0 ~ 1 重量パーセント；および
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント

を含んでいてもよく、ガラス纖維の形態であってもよく、
ガラスが5.9未満の誘電定数(D_k)で、1000ポイズの粘度で1300 以下の成形温度(T_F)を示すものである。

【0039】

本発明の一部の実施形態において、ガラス組成物は、以下の構成物質：

SiO_2 60 ~ 68 重量パーセント；
 B_2O_3 7 ~ 11 重量パーセント；
 Al_2O_3 9 ~ 13 重量パーセント；
 MgO 8 ~ 13 重量パーセント；

10

20

30

40

50

CaO 0 ~ 3 重量パーセント ;
 Li_2O 0 . 4 ~ 2 重量パーセント ;
 Na_2O 0 ~ 1 重量パーセント ;
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント ;
 $(\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O} + \text{Li}_2\text{O})$ 0 ~ 2 重量パーセント ;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント ;
 F_2 0 ~ 1 重量パーセント ; および
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント

を含んでいてもよく、ガラス纖維の形態であってもよい。

【0040】

10

上記の本発明の特徴に加えて、または該特徴の代わりに、本発明の組成物の一部の実施形態は、標準的なエレクトロニクス用 E - ガラスよりも小さい散逸率 (D_f) を有するガラスを得るために使用され得る。一部の実施形態では、 D_f は 1 GHz で 0 . 0 1 5 0 以下、他の実施形態では 1 GHz で 0 . 0 1 0 0 以下であり得る。

【0041】

ガラス組成物の一部の実施形態では、 D_f は 1 GHz で 0 . 0 0 7 以下、他の実施形態では 1 GHz で 0 . 0 0 3 以下、また他の実施形態では 1 GHz で 0 . 0 0 2 以下である。

【0042】

一部の実施形態の本発明の好都合な一態様は、纖維ガラス産業における慣用的な構成物質およびその原料供給源が高価な相当な量の構成物質の回避に依存するものである。本発明の態様では、本発明のガラスの組成の定義で明示したものに加えた構成物質が、必要ではないが 5 重量パーセントより多くない総量で含有され得る。このような任意選択の構成物質としては、溶融助剤、清澄助剤、着色剤、微量不純物およびガラス作製の当業者に公知の他の添加剤が挙げられる。一部の先行技術の低 D_k ガラスと比べて、本発明の組成物には BaO は必要とされないが、少量の BaO (例えば、約 1 重量パーセントまで) が含まれることは排除され得ない。同様に、本発明では多量の ZnO は必要とされないが、一部の実施形態では、少量 (例えば、約 2 . 0 重量パーセントまで) が含有され得る。任意選択の構成物質が最小限である本発明の実施形態では、任意選択の構成物質の総量は 2 重量パーセント以下、または 1 重量パーセント以下である。あるいはまた、本発明の一部の実施形態は、本質的に名称を挙げた構成物質からなるということができる。

20

30

本発明の実施形態において、例えば以下の項目が提供される。

(項目1)

SiO_2 53 . 5 ~ 77 重量パーセント ;
 B_2O_3 4 . 5 ~ 14 . 5 重量パーセント ;
 Al_2O_3 4 . 5 ~ 18 . 5 重量パーセント ;
 MgO 4 ~ 12 . 5 重量パーセント ;
 CaO 0 ~ 10 . 5 重量パーセント ;
 Li_2O 0 ~ 4 重量パーセント ;
 Na_2O 0 ~ 2 重量パーセント ;
 K_2O 0 ~ 1 重量パーセント ;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント ;
 F_2 0 ~ 2 重量パーセント ;
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント ; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント

を含む纖維形成に適したガラス組成物。

(項目2)

SiO_2 62 ~ 68 重量パーセント ;
 B_2O_3 6 ~ 9 重量パーセント ;

40

50

A₁₂O₃ 10 ~ 18 重量パーセント；および
MgO 8 ~ 12 重量パーセント
を含む、項目1に記載の組成物。

(項目3)

Li₂O 含量が 1 ~ 2 重量パーセントである、項目2に記載の組成物。

(項目4)

MgO 含量が 5 重量パーセントより多い、項目1に記載の組成物。

(項目5)

MgO 含量が 8 重量パーセントより多い、項目1に記載の組成物。

(項目6)

CaO 含量が 0 ~ 3 重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目7)

CaO 含量が少なくとも 1 重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目8)

TiO₂ 含量が 0 ~ 1 重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目9)

B₂O₃ 含量が 6 ~ 11 重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目10)

B₂O₃ 含量が 6 ~ 9 重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目11)

A₁₂O₃ 含量が 9 ~ 18 重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目12)

A₁₂O₃ 含量が 10 ~ 18 重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目13)

SiO₂ 含量が約 60 重量パーセントよりも多い、項目1に記載の組成物。

(項目14)

前記構成物質が、1GHzの周波数で 6.7 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目15)

前記構成物質が、1GHzの周波数で 6 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目16)

前記構成物質が、1GHzの周波数で 5.6 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目17)

前記構成物質が、1GHzの周波数で 5.2 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目18)

前記構成物質が、1GHzの周波数で 5.0 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目19)

前記構成物質が、1GHzの周波数で 0.007 未満の散逸率 (D_f) を有するガラスが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目20)

前記構成物質が、1GHzの周波数で 0.003 未満の散逸率 (D_f) を有するガラスが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目21)

前記構成物質が、1000 ポイズの粘度で 1370 以下の成形温度 T_F が得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目22)

10

20

30

40

50

前記構成物質が、1000ポイズの粘度で1320以下の成形温度T_Fが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目23)

前記構成物質が、1000ポイズの粘度で1300以下の成形温度T_Fが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目24)

前記構成物質が、1000ポイズの粘度で1290以下の成形温度T_Fが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

(項目25)

前記構成物質が、1000ポイズの粘度で1260以下の成形温度T_Fが得られるように選択される、項目1に記載の組成物。

10

(項目26)

前記構成物質が、前記成形温度よりも少なくとも55低い液相線温度(T_L)が得られるように選択される、項目25に記載の組成物。

(項目27)

Li₂O含量が0.4~2.0重量パーセントである、項目1に記載の組成物。

(項目28)

Li₂O含量が(Na₂O+K₂O)含量よりも多い、項目1に記載の組成物。

(項目29)

(Li₂O+Na₂O+K₂O)含量が2重量パーセント未満である、項目1に記載の組成物。

20

(項目30)

0~1重量パーセントのBaOと0~2重量パーセントのZnOを含む、項目1に記載の組成物。

(項目31)

本質的にBaOを含まず、本質的にZnOを含まない、項目1に記載の組成物。

(項目32)

他の構成物質が、存在する場合、0~2重量パーセントの総量で存在する、項目1に記載の組成物。

(項目33)

30

他の構成物質が、存在する場合、0~1重量パーセントの総量で存在する、項目1に記載の組成物。

(項目34)

SiO₂ 少なくとも60重量パーセント；

B₂O₃ 5~11重量パーセント；

Al₂O₃ 5~18重量パーセント；

MgO 5~12重量パーセント；

CaO 0~10重量パーセント；

Li₂O 0~3重量パーセント；

Na₂O 0~2重量パーセント；

K₂O 0~1重量パーセント；

Fe₂O₃ 0~1重量パーセント；

F₂ 0~2重量パーセント；

TiO₂ 0~2重量パーセント；および

他の構成物質 合計で0~5重量パーセント

40

を含む纖維形成に適したガラス組成物。

(項目35)

前記構成物質が、1GHzの周波数で6.7未満の誘電定数(D_k)を有するガラスが得られるように選択される、項目34に記載の組成物。

(項目36)

50

前記構成物質が、1 GHz の周波数で 6 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 3 7)

前記構成物質が、1 GHz の周波数で 5.6 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 3 8)

前記構成物質が、1 GHz の周波数で 5.2 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 3 9)

前記構成物質が、1 GHz の周波数で 5.0 未満の誘電定数 (D_k) を有するガラスが得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 4 0)

前記構成物質が、1 GHz の周波数で 0.007 未満の散逸率 (D_f) を有するガラスが得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 4 1)

前記構成物質が、1 GHz の周波数で 0.003 未満の散逸率 (D_f) を有するガラスが得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 4 2)

前記構成物質が、1000 ポイズの粘度で 1370 以下の成形温度 T_f が得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

10

(項目 4 3)

前記構成物質が、1000 ポイズの粘度で 1320 以下の成形温度 T_f が得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 4 4)

前記構成物質が、1000 ポイズの粘度で 1300 以下の成形温度 T_f が得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 4 5)

前記構成物質が、1000 ポイズの粘度で 1290 以下の成形温度 T_f が得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

20

(項目 4 6)

前記構成物質が、1000 ポイズの粘度で 1290 以下の成形温度 T_f が得られるように選択される、項目 3 4 に記載の組成物。

30

(項目 4 7)

前記構成物質が、前記成形温度よりも少なくとも 55 低い液相線温度 (T_l) が得られるように選択される、項目 4 6 に記載の組成物。

(項目 4 8)

Li₂O 含量が 0.4 ~ 2.0 重量パーセントである、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 4 9)

Li₂O 含量が (Na₂O + K₂O) 含量よりも多い、項目 3 4 に記載の組成物。

40

(項目 5 0)

(Li₂O + Na₂O + K₂O) 含量が 2 重量パーセント未満である、項目 3 4 に記載の組成物。

(項目 5 1)

SiO₂ 6.0 ~ 6.8 重量パーセント；

B₂O₃ 5 ~ 10 重量パーセント；

Al₂O₃ 1.0 ~ 1.8 重量パーセント；

MgO 8 ~ 12 重量パーセント；

CaO 0 ~ 4 重量パーセント；

Li₂O 0 ~ 3 重量パーセント；

Na₂O 0 ~ 2 重量パーセント；

50

K_2O 0 ~ 1 重量パーセント;
 Fe_2O_3 0 ~ 1 重量パーセント;
 F_2 0 ~ 2 重量パーセント;
 TiO_2 0 ~ 2 重量パーセント; および
 他の構成物質 合計で 0 ~ 5 重量パーセント
 を含む纖維形成に適したガラス組成物。

(項目 52)

SiO_2 62 ~ 68 重量パーセント;
 B_2O_3 約 9 重量パーセント未満;
 Al_2O_3 10 ~ 18 重量パーセント;
 MgO 8 ~ 12 重量パーセント; および
 CaO 0 ~ 4 重量パーセント;

10

を含む纖維形成に適したガラス組成物であって、ガラスが D_k 6.7 未満の誘電定数 (D_k) で、1000 ポイズの粘度で 1370 以下の成形温度 T_f を示す、ガラス組成物。

【発明を実施するための形態】

【0043】

詳細な説明

低電気的分極率を有する SiO_2 および B_2O_3 を含め、 D_k および D_f を下げる事が、本発明の組成物で有用である。 B_2O_3 自体は低温 (350) で溶融させることができると、周囲の空気中の水分の攻撃には安定ではないため、純粋な B_2O_3 の纖維は、PCB 積層体での使用は現実的ではない。 SiO_2 および B_2O_3 は両方とも網目構造形成剤であり、これら 2 種の混合物は、D - ガラスの場合のように、E - ガラスよりも顕著に高い纖維成形温度をもたらすだろう。纖維 - 成形温度を下げるために、 SiO_2 の一部を置き換えた MgO および Al_2O_3 が含まれる。酸化カルシウム (CaO) および SrO を MgO と組み合わせて使用することもできるが、これらは両方とも MgO より分極率が高いため、 MgO よりも望ましくない。

20

【0044】

バッチコストを下げるため、 B_2O_3 が D - ガラス中より低濃度で利用される。しかし、ガラス溶融物において相分離を防ぐのに十分な B_2O_3 が含まれることによって、この組成物から作られるガラス纖維に良好な機械的特性を与える。

30

【0045】

バッチ成分の選択およびそのコストは、その純度要件に有意に依存する。例えば E - ガラスの作製のための典型的な市販の成分には、 Na_2O 、 K_2O 、 Fe_2O_3 または FeO 、 SrO 、 F_2 、 TiO_2 、 SO_3 などの不純物が種々の化学形態で含有されている。このような不純物に由来するカチオンのほとんどは、ガラスの SiO_2 および / または B_2O_3 と非架橋酸素を形成することによってガラスの D_k を増大させ得るものである。

【0046】

また、スルフェート (SO_3 と示す) は清澄剤として存在してもよい。また、原料由来または溶融プロセス中での混入による少量の不純物、例えば、 SrO 、 BaO 、 Cl_2 、 P_2O_5 、 Cr_2O_3 、または NiO (これらの特定の化学形態に限定されない) が存在することもあり得る。また、他の清澄剤および / または加工助剤、例えば、 As_2O_3 、 MnO 、 MnO_2 、 SB_2O_3 、または SnO_2 (これらの特定の化学形態に限定されない) が存在してもよい。このような不純物および清澄剤は、存在する場合、各々、典型的には、ガラス組成物の総量の 0.5 重量 % 未満の量で存在する。任意選択で、元素の周期表の希土類族の元素、例えば、原子番号 21 (Sc)、39 (Y)、および 57 (La) ~ 71 (Lu) を本発明の組成物に添加してもよい。これらは、加工助剤としての、またはガラスの電気的、物理的 (熱的もしくは光学的)、機械的および化学的特性を改善するためのいずれかの機能を果たし得る。希土類添加剤は、元の化学形態および酸化状態を考慮して含有され得る。希土類元素の添加は、低濃度であってもバッチコストが増大し得るため、特に、原料コストを最小限にする目的を有する本発明の実施形態では任意選択とみ

40

50

なされる。いずれの場合も、典型的には、そのコストによって、希土類成分（酸化物として測定）が、含有される場合は、ガラス組成物の総量の約0.1~1.0重量%以下の量で存在することが決定され得る。

【0047】

以下の一連の具体的な実施形態によって本発明を説明する。しかし、当業者は、多くの他の実施形態が本発明の原理に包含されることを理解する。

【0048】

これらの実施例のガラスは、試薬等級の粉末形態の化学物質の混合物を、10%Rh/Ptるつぼ内で1500~1550(2732°F~2822°F)の温度で4時間溶融させることにより作製した。各バッチは約1200グラムとした。4時間の溶融期間後、溶融ガラスを鋼板上に注入して急冷した。B₂O₃の揮発減損（典型的には、1200グラムのバッチサイズで、実験室バッチ溶融条件において目標総B₂O₃濃度の約5%）を補うため、バッチの計算におけるホウ素保持因子を95%に設定した。他の揮発性種（フッ化物およびアルカリ酸化物など）は、ガラス中において低濃度であるため、バッチにおいてその放出減損を調整しなかった。実施例の組成物は、バッチどおり（as-batched）の組成を表す。ガラスの調製において、B₂O₃を充分に調整して試薬化学物質を使用したため、本発明において表示したバッチどおりの組成は、測定された組成に近いとみなされる。

【0049】

温度の関数としての溶融粘度および液相線温度を、それぞれ、ASTM Test Method C965 "Standard Practice for Measuring Viscosity of Glass Above the Softening Point" および C829 "Standard Practices for Measurement of Liquidus Temperature of Glass by the Gradient Furnace Method" を用いることによって測定した。

【0050】

40mmの直径および1~1.5mmの厚さを有する各ガラス試験片の研磨ディスクを電気的特性および機械的特性の測定に使用し、これは焼鈍ガラスで作製した。各ガラスの誘電定数(D_k)と散逸率(D_f)を、1MHzから1GHzまでで、ASTM Test Method D150 "Standard Test Methods for A-C Loss Characteristics and Permittivity (Dielectric Constant) of Solid Electrical Insulating Materials" によって測定した。この手順に従い、試験片はすべて、25で50%湿度下にて40時間プレコンディショニングした。ガラス密度についてASTM Test Method C729 "Standard Test Method for Density of Glass by the Sink-Float Comparator," を用いて選択的試験を行ない、試験のために試験片はすべて焼鈍した。

【0051】

選択した組成物について、微小圧痕法を使用し、ヤング率（圧痕負荷-圧痕深さの曲線の最初の傾きから、圧子除荷サイクルにおいて）、および微小硬さ（最大圧痕負荷と最大圧痕深さから）を測定した。該試験には、同じディスク試験片(D_kおよびD_fについて試験しておいた)を使用した。5回の圧痕測定を行ない、平均ヤング率と微小硬さのデータを得た。微小圧痕装置は、BK7という製品名の市販の標準参照ガラスブロックを用いて較正した。この参照ガラスは、ヤング率90.1GPa(1つの標準偏差は0.26GPa)および微小硬さ4.1GPa(1つの標準偏差は0.02GPa)を有するものである(すべて5回の測定に基づく)。

【実施例】

【0052】

10

20

30

40

50

実施例のすべての組成の値は重量パーセントで示している。

【0053】

表1 組成

実施例1～8は、重量パーセンテージでのガラス組成(表1)： SiO_2 62.5～67.5%、 B_2O_3 8.4～9.4%、 Al_2O_3 10.3～16.0%、 MgO 6.5～11.1%、 CaO 1.5～5.2%、 Li_2O 1.0%、 Na_2O 0.0%、 K_2O 0.8%、 Fe_2O_3 0.2～0.8%、 F_2 0.0%、 TiO_2 0.0%、およびスルフェート(SO_3 と示す)0.0%を示す。

【0054】

ガラスは、1MHzで5.44～5.67の D_k および0.0006～0.0031の10 D_f 、1GHz周波数で5.47～6.67の D_k および0.0048～0.0077の D_f を有するものであることがわかった。シリーズIIIの組成物の電気的特性では、標準的なE-ガラス(1MHzで7.29の D_k および0.003の D_f 、1GHzで7.14の D_k および0.0168の D_f を有する)と比べて有意に小さい(すなわち、改善された) D_k および D_f が示されている。

【0055】

繊維成形特性に関して、表1の組成物は、1300～1372の成形温度(T_F)および89～222の成形ウインドウ($T_F - T_L$)を有する。これは、標準的なE-ガラス(典型的には1170～1215の範囲の T_F を有する)に匹敵し得る。繊維成形においてガラスの失透を抑制するためには、55より大きい成形ウインドウ(min window)($T_F - T_L$)が望ましい。表1の組成物はすべて、満足な成形ウインドウを示している。表1の組成物はE-ガラスよりも高い成形温度を有するが、D-ガラス(典型的には、約1410)よりも有意に低い成形温度を有する。

【0056】

【表1】

表1

	1	2	3	4	5	6	7	8
Al_2O_3	11.02	9.45	11.64	12.71	15.95	10.38	10.37	11.21
B_2O_3	8.55	8.64	8.58	8.56	8.46	8.71	9.87	9.28
CaO	5.10	5.15	3.27	2.48	1.50	2.95	2.01	1.54
CoO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.62
Fe_2O_3	0.39	0.40	0.39	0.39	0.39	0.53	0.80	0.27
K_2O	0.77	0.78	0.77	0.77	0.76	0.79	0.79	0.78
Li_2O	0.98	0.99	0.98	0.98	0.97	1.00	1.00	1.00
MgO	6.70	7.44	8.04	8.69	9.24	10.39	11.05	11.04
SiO_2	66.48	67.16	66.32	65.42	62.72	65.26	64.12	64.26
特性								
$D_k, 1\text{MHz}$	5.62	5.59	5.44	5.47	5.50	5.67	5.57	5.50
$D_k, 1\text{GHz}$	5.65	5.62	5.46	5.47	5.53	5.67	5.56	5.50
$D_f, 1\text{MHz}$	0.0010	0.0006	0.0016	0.0008	0.0020	0.0031	0.0012	0.0010
$D_f, 1\text{GHz}$	0.0048	0.0059	0.0055	0.0051	0.0077	0.0051	0.0053	0.0049
$T_L(\text{°C})$	1209	1228	1215	1180	1143	1219	1211	1213
$T_F(\text{°C})$	1370	1353	1360	1372	1365	1319	1300	1316
$T_F - T_L(\text{°C})$	161	125	145	192	222	100	89	103

表2 組成

実施例9～15は、ガラス組成： SiO_2 60.8～68.0%、 B_2O_3 8.6～11.0%、 Al_2O_3 8.7～12.2%、 MgO 9.5～12.5%、 CaO 50

1.0~3.0%、 Li_2O 0.5~1.5%、 Na_2O 0.5%、 K_2O 0.8%、 Fe_2O_3 0.4%、 F_2 0.3%、 TiO_2 0.2%、およびスルフェート(SO_3 と示す) 0.0%を示す。

【0057】

ガラスは、1MHzで5.55~5.95の D_k および0.0002~0.0013の D_f 、1GHz周波数で5.54~5.94の D_k および0.0040~0.0058の D_f を有するものであることがわかった。表2の組成物の電気的特性では、標準的なE-ガラス(1MHzで7.29の D_k および0.003の D_f 、1GHzで7.14の D_k および0.0168の D_f を有する)と比べて有意に小さい(改善された) D_k および D_f が示されている。

10

【0058】

機械的特性に関して、表2の組成物は、86.5~91.5GPaのヤング率および4.0~4.2GPaの微小硬さを有し、どちらも、標準的なEガラス(85.9GPaのヤング率および3.8GPaの微小硬さを有する)と同等であるか、またはより高い。また、表2の組成物のヤング率もD-ガラス(文献データに基づくと約55GPa)より有意に高い。

【0059】

繊維成形特性に関して、表2の組成物は、1224~1365の成形温度(T_F)および6~105の成形ウィンドウ($T_F - T_L$)を有するのに対して、標準的なE-ガラスは1170~1215の範囲の T_F を有する。表2の組成物の一部のものは(すべてではないが)、55より大きい成形ウィンドウ($T_F - T_L$)を有し、これは、一部の状況において、商業的繊維成形操作におけるガラスの失透を回避するために好ましいとみなされる。表2の組成物は、D-ガラス(1410)のものより低いがE-ガラスより高い成形温度を有する。

20

【0060】

【表2】

表2

実施例:	9	10	11	12	13	14	15
Al_2O_3	12.02	11.88	10.41	12.08	12.18	8.76	12.04
B_2O_3	10.98	10.86	9.90	8.71	8.79	8.79	8.68
CaO	1.07	2.90	2.02	2.95	1.09	1.09	2.94
F_2	0.32	0.31	0.32	0.32	0.32	0.32	0.32
Fe_2O_3	0.40	0.39	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40
K_2O	0.78	0.77	0.79	0.79	0.79	0.79	0.78
Li_2O	0.50	0.49	1.00	0.50	1.51	1.51	1.49
MgO	12.35	9.56	11.10	12.41	12.51	9.81	9.69
Na_2O	0.51	0.51	0.52	0.52	0.52	0.52	0.52
SiO_2	60.87	62.13	63.35	61.14	61.68	67.80	62.95
TiO_2	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
特性							
D_k 、1MHz	5.69	5.55	5.74	5.84	5.95	5.60	5.88
D_k 、1GHz	5.65	5.54	5.71	5.83	5.94	5.55	5.86
D_f 、1MHz	0.0007	0.0013	0.0007	0.0006	0.0002	0.0002	0.0011
D_f 、1GHz	0.0042	0.0040	0.0058	0.0043	0.0048	0.0045	0.0053
T_L (°C)	1214	1209	1232	1246	1248	1263	1215
T_F (°C)	1288	1314	1287	1277	1254	1365	1285
$T_F - T_L$ (°C)	74	105	55	31	6	102	70
E (GPa)	90.5	87.4	86.8	86.5	89.6	87.2	91.5
H (GPa)	4.12	4.02	4.02	4.03	4.14	4.07	4.19

30

40

【0061】

【表3-1】

表3

実施例:	16	17	18	19	20
Al ₂ O ₃	10.37	11.58	8.41	11.58	12.05
B ₂ O ₃	8.71	10.93	10.66	8.98	8.69
CaO	2.01	2.63	3.02	1.78	2.12
F ₂	0.32	0.30	0.30	0.30	0.30
Fe ₂ O ₃	0.40	0.27	0.27	0.27	0.27
K ₂ O	0.79	0.25	0.25	0.16	0.10
Li ₂ O	0.50	1.21	1.53	0.59	1.40
MgO	11.06	10.04	9.65	11.65	10.57
Na ₂ O	0.52	0.25	0.57	0.35	0.15
SiO ₂	65.13	62.55	65.35	64.35	64.35
TiO ₂	0.20	0.00	0.00	0.00	0.00
合計	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
D _k 、1MHz	5.43	5.57		5.30	5.42
D _k 、1GHz	5.33	5.48		5.22	5.33
D _f 、1MHz	0.0057	0.0033		0.0031	0.0051
D _f 、1GHz	0.0003	0.0001		0.0008	0.0014
T _L (°C)	1231	1161	1196	1254	1193
T _F (°C)	1327	1262	1254	1312	1299
T _F - T _L (°C)	96	101	58	58	106
T _M (°C)	1703	1592	1641	1634	1633
E(GPa)	85.3	86.1	85.7	91.8	89.5
Std E(GPa)	0.4	0.6	2.5	1.7	1.5
H(GPa)	3.99	4.00	4.03	4.22	4.13
Std H(GPa)	0.01	0.02	0.09	0.08	0.05

【0062】

10

20

【表3-2】

表3(続き)

実施例:	21	22	23	24	25	26
Al ₂ O ₃	12.04	12.04	12.04	12.04	12.04	12.54
B ₂ O ₃	8.65	8.69	10.73	10.73	11.07	8.73
CaO	2.06	2.98	2.98	2.98	2.98	2.88
F ₂	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45	2.00
Fe ₂ O ₃	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35
K ₂ O	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.40
Li ₂ O	1.53	1.05	1.05	0.59	0.48	
MgO	10.47	10.62	9.97	11.26	11.26	11.26
Na ₂ O	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.50
SiO ₂	63.05	62.42	61.03	60.2	59.97	61.34
TiO ₂	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	
合計	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
D _k 、1MHz	5.75	5.73	5.61	5.64	5.63	5.35
D _k 、1GHz	5.68	5.61	5.55	5.54	5.49	5.38
D _f 、1MHz	0.004	0.0058	0.0020	0.0046	0.0040	0.0063
D _f 、1GHz	0.0021	0.0024	0.0034	0.0019	0.0023	0.0001
T _L (°C)	1185	1191	1141	1171	1149	1227
T _F (°C)	1256	1258	1244	1246	1249	1301
T _F - T _L (°C)	71	67	103	75	100	
T _M (°C)	1587	1581	1587	1548	1553	
E(GPa)						
Std E(GPa)						
H(GPa)						
Std H(GPa)						
σ _f (KPSI/GPa)			475.7/ 3.28	520.9/ 3.59	466.5/ 3.22	522.0
Std σ _f (KPSI/GPa)			37.3/ 0.26	18.3/ 0.13	41.8/ 0.29	18.70
密度(g/cm ³)			2.4209*	2.4324*	2.4348*	

【0063】

【表4】

10

20

30

表4

実施例:	27	28	E-ガラス
Al ₂ O ₃	12.42	12.57	13.98
B ₂ O ₃	9.59	8.59	5.91
CaO	0.11	0.10	22.95
F ₂	0.35	0.26	0.71
Fe ₂ O ₃	0.21	0.21	0.36
K ₂ O	0.18	0.18	0.11
Li ₂ O	0.80	1.01	0
MgO	10.25	10.41	0.74
Na ₂ O	0.15	0.18	0.89
SiO ₂	65.47	65.96	54.15
TiO ₂	0.17	0.17	0.07
D _k 、1MHz	5.3	5.4	7.3
D _k 、1GHz	5.3	5.4	7.1
D _f 、1MHz	0.003	0.008	
D _f 、1GHz	0.011	0.012	0.0168
T _L (°C)	1184	1201	1079
T _F (°C)	1269	1282	1173
T _F - T _L (°C)	85	81	94
E(GPa)			
H(GPa)	3.195	3.694	

40

50

実施例 29～62 は、重量パーセンテージでのガラス組成(表5)：SiO₂ 53.74～76.97%、B₂O₃ 4.47～14.28%、Al₂O₃ 4.63～15.44%、MgO 4.20～12.16%、CaO 1.04～10.15%、Li₂O 0.0～3.2%、Na₂O 0.0～1.61%、K₂O 0.01～0.05%、Fe₂O₃ 0.06～0.35%、F₂ 0.49～1.48%、TiO₂ 0.05～0.65%、およびスルフェート(SO₃と示す) 0.0～0.16%を示す。

【0064】

実施例 29～62 は、重量パーセンテージでのガラス組成(表5)を示し、ここで、(MgO + CaO) 含量は 7.81～16.00% であり、CaO / MgO 比は 0.09～1.74% であり、(SiO₂ + B₂O₃) 含量は 67.68～81.44% であり、Al₂O₃ / B₂O₃ 比は 0.90～1.71% であり、(Li₂O + Na₂O + K₂O) 含量は 0.03～3.38% であり、Li₂O / (Li₂O + Na₂O + K₂O) 比は 0.00～0.95% である。10

【0065】

機械的特性に関して、表5の組成物は、2.331～2.416 g / cm³ の纖維密度および 3050～3578 MPa の平均纖維引張強度(または纖維強度)を有する。

【0066】

纖維引張強度を測定するため、ガラス組成物製の纖維試験片を、10Rh / 90Pt シングルチップ纖維延伸ユニットで作製した。およそ 85 グラムの所与の組成物のカレットをブッシング溶融ユニット内に供給し、100 ポイズ溶融粘度に近いまたは同等の温度に 2 時間コンディショニングした。続いて、この溶融物を 1000 ポイズ溶融粘度に近いまたは同等の温度まで下げ、1 時間安定化させた後、纖維の延伸を行なった。纖維直径は、纖維延伸巻き取り機の速度を制御することによって、およそ 10 μm 直径の纖維が作製されるように制御した。纖維試験片はすべて、いかなる異物との接触なく空中で捕捉した。纖維の延伸は 40～45% RH の制御湿度下の室内で終了させた。20

【0067】

纖維引張強度は、Kawabata C型負荷セルを備えた Kawabata KES-G1 (カトーテック株式会社、日本) 引張強度解析装置を用いて測定した。纖維試験片をふち付(framing)ペーパーストリップ上に樹脂接着剤を用いてのせた。纖維に対して破断されるまで張力を適用し、これにより、纖維直径と破断応力に基づいて纖維強度を求めた。試験は、室温にて 40～45% RH の制御された湿度下で行なった。平均値と標準偏差を、各組成物について 65～72 本の纖維試験片サイズに基づいてコンピュータで算出した。30

【0068】

ガラスは、1 GHz で 4.83～5.67 の D_k および 0.003～0.007 の D_f を有するものであることがわかった。表5の組成物の電気的特性では、標準的な E-ガラス(1 GHz で 7.14 の D_k および 0.0168 の D_f を有する)と比べて有意に小さい(すなわち、改善された) D_k および D_f が示されている。

【0069】

纖維成形特性に関して、表5の組成物は、1247～1439 の成形温度(T_F) および 53～243 の成形ウインドウ(T_F - T_L) を有する。表5の組成物は、1058～1279 の液相線温度(T_L) を有する。これは、標準的な E-ガラス(典型的には 1170～1215 の範囲の T_F を有する)に匹敵し得る。纖維成形におけるガラスの失透を抑制するためには、55 より大きい成形ウインドウ(T_F - T_L) が場合によつては望ましい。表5の組成物はすべて、満足な成形ウインドウを示している。40

【0070】

【表5 - 1】

表5

wt%	29	30	31	32	33
SiO ₂	64.24	58.62	57.83	61.00	61.56
Al ₂ O ₃	11.54	12.90	12.86	12.87	12.82
Fe ₂ O ₃	0.28	0.33	0.33	0.33	0.32
CaO	1.70	1.04	2.48	2.48	1.08
MgO	11.69	11.63	12.16	9.31	10.69
Na ₂ O	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
K ₂ O	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
B ₂ O ₃	8.96	14.28	13.15	12.81	12.30
F ₂	0.53	0.62	0.61	0.61	0.65
TiO ₂	0.40	0.54	0.54	0.54	0.54
Li ₂ O	0.60	0.00	0.00	0.00	0.00
SO ₃	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
合計	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
(MgO+CaO)	13.39	12.67	14.64	11.79	11.77
CaO/Mg	0.15	0.09	0.20	0.27	0.10
MgO/(MgO+CaO)	0.87	0.92	0.83	0.79	0.91
SiO ₂ +B ₂ O ₃	73.20	72.90	70.98	73.81	73.86
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.29	0.90	0.98	1.00	1.04
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.64	0.03	0.03	0.03	0.03
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.94	0.00	0.00	0.00	0.00
T _L (°C)	1196	1228	1205	1180	1249
T _F (°C)	1331	1300	1258	1334	1332
T _F - T _L (°C)	135	72	53	154	83
D _k @ 1GHz	5.26	***	***	5.30	***
D _f @ 1GHz	0.0017	***	***	0.001	***
繊維密度(g/cm ³)	***	***	***	***	***
繊維強度(MPa)	***	***	***	***	***

10

20

30

【0071】

【表5 - 2】

表5(続き)

wt%	34	35	36	37	38
SiO ₂	63.83	65.21	66.70	60.02	53.74
Al ₂ O ₃	10.97	10.56	10.11	12.32	15.44
Fe ₂ O ₃	0.26	0.25	0.24	0.29	0.24
CaO	2.38	2.29	2.19	4.01	3.83
MgO	10.64	10.23	9.79	9.95	10.53
Na ₂ O	0.29	0.28	0.27	0.33	0.09
K ₂ O	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
B ₂ O ₃	9.32	8.96	8.57	10.48	13.94
F ₂	1.20	1.16	1.11	1.35	1.48
TiO ₂	0.36	0.35	0.33	0.41	0.65
Li ₂ O	0.70	0.67	0.64	0.79	0.02
SO ₃	0.14	0.14	0.13	0.16	0.14
合計	100.13	100.13	100.12	100.15	100.13
(MgO+CaO)	13.02	12.52	11.98	13.96	14.36
CaO/MgO	0.22	0.22	0.22	0.40	0.36
MgO/(MgO+CaO)	0.82	0.82	0.82	0.71	0.73
SiO ₂ +B ₂ O ₃	73.15	74.17	75.27	70.50	67.68
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.18	1.18	1.18	1.18	1.11
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	1.02	0.98	0.94	1.15	0.14
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.69	0.68	0.68	0.69	0.16
T _L (°C)	1255	1267	1279	1058	1175
T _F (°C)	1313	1320	1333	1266	1247
T _F - T _L (°C)	58	53	54	208	72
D _k @ 1GHz	***	5.46	5.43	5.56	5.57
D _f @ 1GHz	***	0.0036	0.0020	0.0025	0.00437
纖維密度(g/cm ³)	2.402	2.408	2.352	2.416	***
纖維強度(MPa)	3310	3354	3369	3413	***

10

20

30

【0072】

【表 5 - 3】

表5(続き)

wt%	39	40	41	42	43
SiO ₂	62.54	63.83	65.21	66.70	59.60
Al ₂ O ₃	11.36	10.97	10.56	10.11	13.52
Fe ₂ O ₃	0.27	0.26	0.25	0.24	0.33
CaO	2.47	2.38	2.29	2.19	1.80
MgO	11.02	10.64	10.23	9.79	9.77
Na ₂ O	0.31	0.29	0.28	0.27	0.10
K ₂ O	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
B ₂ O ₃	9.65	9.32	8.96	8.57	12.70
F ₂	1.25	1.20	1.16	1.11	1.21
TiO ₂	0.37	0.36	0.35	0.33	0.51
Li ₂ O	0.73	0.70	0.67	0.64	0.41
SO ₃	0.15	0.14	0.14	0.13	0.15
合計	100.14	100.13	100.13	100.12	100.14
(MgO+CaO)	13.49	13.02	12.52	11.98	11.57
CaO/MgO	0.22	0.22	0.22	0.22	0.18
MgO/(MgO+CaO)	0.82	0.82	0.82	0.82	0.84
SiO ₂ +B ₂ O ₃	72.19	73.15	74.17	75.27	72.30
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.18	1.18	1.18	1.18	1.06
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	1.07	1.02	0.98	0.94	0.54
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.68	0.69	0.68	0.68	0.76
T _L (°C)	1238	1249	1266	1276	1083
T _F (°C)	1293	1313	1342	1368	1310
T _F - T _L (°C)	55	64	76	92	227
D _k @ 1GHz	5.45	5.31	5.39	5.25	5.20
D _f @ 1GHz	0.00531	0.00579	0.00525	0.00491	0.00302
繊維密度(g/cm ³)	2.403	***	***	***	***
繊維強度(MPa)	3467	***	***	***	***

10

20

30

【 0 0 7 3 】

【表5-4】

表5(続き)

wt%	44	45	46	47	48
SiO ₂	59.90	60.45	62.68	65.30	65.06
Al ₂ O ₃	13.23	13.06	12.28	11.51	12.58
Fe ₂ O ₃	0.34	0.35	0.20	0.19	0.25
CaO	1.86	1.58	1.65	1.39	1.25
MgO	10.14	10.50	8.74	8.18	6.56
Na ₂ O	0.10	0.10	0.10	0.09	0.13
K ₂ O	0.03	0.03	0.02	0.02	0.05
B ₂ O ₃	12.40	12.29	12.69	11.89	10.03
F ₂	1.26	1.07	1.11	0.94	0.82
TiO ₂	0.53	0.55	0.51	0.48	0.07
Li ₂ O	0.20	0.00	0.00	0.00	3.20
SO ₃	0.15	0.16	0.15	0.14	0.11
合計	100.14	100.15	100.14	100.13	100.10
RO(MgO+CaO)	12.00	12.08	10.39	9.57	7.81
CaO/Mg	0.18	0.15	0.19	0.17	0.19
MgO/(MgO+CaO)	0.85	0.87	0.84	0.85	0.84
SiO ₂ +B ₂ O ₃	72.30	72.74	75.37	77.19	75.09
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.07	1.06	0.97	0.97	1.25
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.33	0.13	0.12	0.11	3.38
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.61	0.00	0.00	0.00	0.95
T _L (°C)	1129	1211	1201	1196	***
T _F (°C)	1303	1378	1378	1439	***
T _F -T _L (°C)	174	167	177	243	***
Dk @ 1GHz	5.24	5.05	4.94	4.83	5.67
Df @ 1GHz	0.00473	0.00449	0.00508	0.00254	0.007
繊維密度(g/cm ³)	2.387	2.385	2.354	2.34	2.345
繊維強度(MPa)	3483	3362	3166	3050	3578

【0074】

10

20

30

【表5 - 5】

表5(続き)

wt%	49	50	51	52	53
SiO ₂	61.14	60.83	62.45	61.88	66.25
Al ₂ O ₃	12.90	13.02	12.52	12.72	10.60
Fe ₂ O ₃	0.27	0.28	0.26	0.28	0.18
CaO	1.72	1.74	1.59	1.63	3.33
MgO	9.25	9.36	8.98	9.13	5.98
Na ₂ O	0.10	0.10	0.10	0.10	0.86
K ₂ O	0.03	0.03	0.03	0.03	0.02
B ₂ O ₃	12.70	12.70	12.29	12.38	11.44
F ₂	1.16	1.17	1.08	1.10	0.90
TiO ₂	0.51	0.51	0.50	0.50	0.44
Li ₂ O	0.21	0.25	0.21	0.25	0.00
SO ₃	0.15	0.15	0.14	0.14	0.00
合計	100.14	100.14	100.13	100.13	100.00
(MgO+CaO)	10.97	11.10	10.57	10.76	9.31
CaO/Mg	0.19	0.19	0.18	0.18	0.56
MgO/(MgO+CaO)	0.84	0.84	0.85	0.85	0.64
SiO ₂ +B ₂ O ₃	73.84	73.53	74.74	74.26	77.69
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.02	1.03	1.02	1.03	0.93
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.34	0.38	0.34	0.38	0.88
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.62	0.66	0.62	0.66	0.00
T _L (℃)	1179	1179	1186	1191	***
T _F (℃)	1342	1340	1374	1366	***
T _F - T _L (℃)	163	161	188	175	***
D _k @ 1GHz	***	5.24	4.96	5.06	5.03
D _f @ 1GHz	***	0.0018	0.0015	0.0014	0.0027
纖維密度(g/cm ³)	2.358	2.362	2.338	***	2.331
纖維強度(MPa)	3545	3530	3234	***	3161

【0075】

10

20

30

【表 5 - 6】

表5(続き)

wt%	54	55	56	57	58
SiO ₂	66.11	69.19	70.68	69.44	69.40
Al ₂ O ₃	10.58	10.37	8.87	7.20	7.21
Fe ₂ O ₃	0.18	0.18	0.16	0.13	0.14
CaO	5.31	5.20	5.50	5.57	10.15
MgO	4.20	7.13	7.54	10.39	5.85
Na ₂ O	0.86	0.55	0.59	0.59	0.59
K ₂ O	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
B ₂ O ₃	11.41	6.39	5.72	5.80	5.79
F ₂	0.90	0.53	0.55	0.55	0.55
TiO ₂	0.44	0.43	0.37	0.30	0.30
Li ₂ O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
SO ₃	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
合計	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
(MgO+CaO)	9.51	12.33	13.04	15.96	16.00
CaO/Mg	1.26	0.73	0.73	0.54	1.74
MgO/(MgO+CaO)	0.44	0.58	0.58	0.65	0.37
SiO ₂ +B ₂ O ₃	77.52	75.58	76.40	75.24	75.19
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	0.93	1.62	1.55	1.24	1.25
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.88	0.57	0.61	0.61	0.61
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
T _L (°C)	***	***	***	***	***
T _F (°C)	***	***	***	***	***
T _F - T _L (°C)	***	***	***	***	***
D _k @ 1GHz	***	***	***	***	***
D _f @ 1GHz	***	***	***	***	***
繊維密度(g/cm ³)	2.341	***	***	***	***
繊維強度(MPa)	3372	***	***	***	***

10

20

30

【0076】

【表5-7】

表5(続き)

wt%	59	60	61	62
SiO ₂	69.26	71.45	74.07	76.97
Al ₂ O ₃	8.72	5.30	7.27	4.63
Fe ₂ O ₃	0.13	0.06	0.09	0.10
CaO	4.89	5.24	4.88	5.69
MgO	9.92	10.63	4.77	5.56
Na ₂ O	0.53	0.58	0.73	1.61
K ₂ O	0.03	0.02	0.03	0.01
B ₂ O ₃	5.09	4.96	6.39	4.47
F ₂	0.49	0.50	0.66	0.77
TiO ₂	0.27	0.05	0.17	0.19
Li ₂ O	0.69	1.20	0.95	0.00
SO ₃	0.00	0.00	0.00	0.00
合計	100.00	100.00	100.00	100.00
(MgO+CaO)	14.81	15.87	9.65	11.25
CaO/Mg	0.49	0.49	1.02	1.02
MgO/(MgO+CaO)	0.67	0.67	0.49	0.49
SiO ₂ +B ₂ O ₃	74.35	76.41	80.46	81.44
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.71	1.07	1.14	1.04
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	1.25	1.80	1.71	1.62
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.55	0.67	0.56	0.00
T _L (°C)	***	***	***	***
T _F (°C)	1358/1355	1331/1333	1493/1484	***
T _F - T _L (°C)	***	***	***	***
D _k @ 1GHz	***	***	***	***
D _f @ 1GHz	***	***	***	***
纖維密度(g/cm ³)	***	***	***	***
纖維強度(MPa)	***	***	***	***

実施例63～73は、重量パーセンテージでのガラス組成(表6)：SiO₂ 62.35～68.35%、B₂O₃ 6.72～8.67%、Al₂O₃ 10.53～18.04%、MgO 8.14～11.44%、CaO 1.67～2.12%、Li₂O 1.07～1.38%、Na₂O 0.02%、K₂O 0.03～0.04%、Fe₂O₃ 0.23～0.33%、F₂ 0.49～0.60%、TiO₂ 0.26～0.61%、およびスルフェート(SO₃と示す)0.0%を示す。

【0077】

実施例63～73は、重量パーセンテージでのガラス組成(表6)を示し、ここで、(MgO+CaO)含量は9.81～13.34%であり、CaO/MgO比は0.16～0.20であり、(SiO₂+B₂O₃)含量は69.59～76.02%であり、Al₂O₃/B₂O₃比は1.37～2.69であり、(Li₂O+Na₂O+K₂O)含量は1.09～1.40%であり、Li₂O/(Li₂O+Na₂O+K₂O)比は0.98である。

【0078】

機械的特性に関して、表6の組成物は、2.371～2.407g/cm³の纖維密度および3730～4076MPaの平均纖維引張強度(または纖維強度)を有する。表6

10

20

30

40

50

の組成物で作製された纖維の纖維引張強度を表 5 の組成物に関して測定した纖維引張強度と同様にして測定した。

【0079】

該組成物で形成された纖維は、73.84～81.80 GPa の範囲のヤング率 (E) の値を有することがわかった。纖維のヤング率 (E) の値は、纖維に対する超音波弾性率法を用いて測定した。記載の組成を有するガラス溶融物を延伸した纖維の弾性率の値は、音響超音波パルス手法を使用し、Panatherm 5010 機器 (Panametrics, Inc. (Waltham, Massachusetts) 製) で測定した。伸縮波反射時間は、20マイクロ秒の持続時間、200 kHz のパルスを用いて得た。

試験片の長さを測定し、それぞれの伸縮波速度 (V_E) を計算した。纖維密度 (ρ) は、Micromeritics AccuPyc 1330 比重瓶を用いて測定した。一般に、各組成物に対して 20 回の測定を行ない、式 $E = V_E^2 \times \rho$ に従って平均ヤング率 (E) を計算した。纖維の破断歪みは、公知の纖維強度とヤング率の値に基づいてフックの法則を用いて計算した。

【0080】

ガラスは、1 GHz で 5.20～5.54 の D_k および 0.0010～0.0020 の D_f を有するものであることがわかった。表 6 の組成物の電気的特性では、標準的な E - ガラス (1 GHz で 7.14 の D_k および 0.0168 の D_f を有する) と比べて有意に小さい (すなわち、改善された) D_k および D_f が示されている。

【0081】

纖維成形特性に関して、表 6 の組成物は、1303～1388 の成形温度 (T_F) および 51～144 の成形ウインドウ ($T_F - T_L$) を有する。

【0082】

10

20

【表 6 - 1】

表6

wt%	63	64	65	66	67
SiO ₂	64.25	65.35	66.38	67.35	68.35
Al ₂ O ₃	11.88	11.52	11.18	10.86	10.53
Fe ₂ O ₃	0.26	0.25	0.24	0.24	0.23
CaO	2.12	2.05	1.99	1.93	1.87
MgO	10.50	10.17	9.87	9.58	9.29
Na ₂ O	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
K ₂ O	0.04	0.03	0.03	0.03	0.03
B ₂ O ₃	8.67	8.40	8.15	7.91	7.67
F ₂	0.60	0.58	0.56	0.54	0.53
TiO ₂	0.30	0.29	0.28	0.27	0.26
Li ₂ O	1.38	1.33	1.29	1.26	1.22
SO ₃	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
合計	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
(MgO+CaO)	12.61	12.22	11.86	11.51	11.16
CaO/MgO	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
MgO/(MgO+CaO)	0.83	0.83	0.83	0.83	0.83
SiO ₂ +B ₂ O ₃	72.92	73.75	74.53	75.26	76.02
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.37	1.37	1.37	1.37	1.37
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	1.40	1.36	1.32	1.28	1.24
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.98	0.98	0.98	0.98	0.98
T _L (°C)	1241	1259	1266	1268	1287
T _F (°C)	1306	1329	1349	1374	1388
T _F - T _L (°C)	65	70	83	106	101
D _k @ 1GHz	5.44	5.35	5.29	5.31	5.2
D _f @ 1GHz	0.0013	0.0016	0.001	0.002	0.0013
繊維密度(g/cm ³)	2.395	2.385	2.384	2.375	2.371
繊維強度(MPa)	3730	3759	3813	3743	3738
ヤング率(GPa)	***	***	***	74.25	***
繊維破断歪み(%)	***	***	***	5.04	***

【 0 0 8 3 】

10

20

30

【表 6 - 2】

表6(続き)

wt%	68	69	70	71	72	73
SiO ₂	64.39	63.63	62.87	65.45	65.61	62.35
Al ₂ O ₃	14.05	16.04	18.04	11.05	14.29	14.74
Fe ₂ O ₃	0.28	0.30	0.33	0.24	0.28	0.29
CaO	1.90	1.79	1.67	1.91	1.77	1.79
MgO	9.39	8.77	8.14	11.44	8.72	11.37
Na ₂ O	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02
K ₂ O	0.04	0.04	0.04	0.03	0.04	0.04
B ₂ O ₃	7.75	7.23	6.72	7.80	7.19	7.28
F ₂	0.54	0.51	0.49	0.54	0.51	0.51
TiO ₂	0.41	0.51	0.61	0.28	0.43	0.45
Li ₂ O	1.23	1.15	1.07	1.24	1.14	1.16
SO ₃	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
合計	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
(MgO+CaO)	11.29	10.55	9.81	13.34	10.49	13.16
CaO/MgO	0.20	0.20	0.20	0.17	0.20	0.16
MgO/(MgO+CaO)	0.83	0.83	0.83	0.86	0.83	0.86
SiO ₂ +B ₂ O ₃	72.14	70.87	69.59	73.25	72.80	69.63
Al ₂ O ₃ /B ₂ O ₃	1.81	2.22	2.69	1.42	1.99	2.02
(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	1.25	1.17	1.09	1.26	1.16	1.18
Li ₂ O/(Li ₂ O+Na ₂ O+K ₂ O)	0.98	0.98	0.98	0.98	0.98	0.98
T _L (°C)	1231	1219	1236	1266	1235	1220
T _F (°C)	1349	1362	1368	1317	1379	1303
T _F - T _L (°C)	118	143	132	51	144	83
D _k @ 1GHz	5.4	5.38	5.39	5.54	5.52	5.58
D _f @ 1GHz	0.0016	0.0013	0.002	0.0015	0.0016	0.0015
纖維密度(g/cm ³)	2.393	2.398	2.407	***	***	***
纖維強度(MPa)	3954	3977	4076	***	***	***
ヤング率(GPa)	73.84	80.34	81.57	80.69	81.80	***
纖維破断歪み(%)	5.36	4.95	5.00	4.68	4.72	***

本明細書の記載が、本発明の明確な理解に関連する本発明の態様を説明することを理解されたい。当業者に明らかであり、したがって、本発明のよりよい理解を促進しないと思われる本発明のある特定の態様は、本明細書の記載を単純化するために提示していない。本発明のある特定の実施形態と関連づけて記載しているが、本発明は、開示されている特別な実施形態に限定されるのではなく、本発明の趣旨および範囲に含まれる改変を包含することを意図している。

10

20

30

40

フロントページの続き

(72)発明者 リー, ホン

アメリカ合衆国 ペンシルベニア 15143, セウイクリー, ノーマン ドライブ 162
1

(72)発明者 リチャーズ, シェリル エー.

アメリカ合衆国 ペンシルベニア 15146, モンロービル, トロットウッド ドライブ
104

審査官 増山 淳子

(56)参考文献 特開2008-255002(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C03C 1/00 - 14/00
INTERGLAD