

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)公表番号  
特表2025-513216  
(P2025-513216A)

(43)公表日 令和7年4月24日(2025.4.24)

(51)国際特許分類

F I

テーマコード (参考)

C 0 3 C 3/095(2006.01) C 0 3 C 3/095 4 G 0 6 2

C 0 3 C 13/00 (2006.01) C 0 3 C 13/00

C 0 3 C 13/02 (2006.01) C 0 3 C 13/02

| 審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全25頁) |                                     |         |                         |
|----------------------------|-------------------------------------|---------|-------------------------|
| (21)出願番号                   | 特願2024-559655(P2024-559655)         | (71)出願人 | 524101663               |
| (86)(22)出願日                | 令和5年4月17日(2023.4.17)                |         | オウエンズ コーニング インテレクチュ     |
| (85)翻訳文提出日                 | 令和6年10月8日(2024.10.8)                |         | アル キャピタル、エルエルシー         |
| (86)国際出願番号                 | PCT/US2023/065833                   |         | アメリカ合衆国 オハイオ州 4 3 6 5 9 |
| (87)国際公開番号                 | WO2023/205596                       |         | トレド, ワン オウエンズ コーニング     |
| (87)国際公開日                  | 令和5年10月26日(2023.10.26)              |         | パークウェイ                  |
| (31)優先権主張番号                | 63/332,032                          | (74)代理人 | 100094569               |
| (32)優先日                    | 令和4年4月18日(2022.4.18)                |         | 弁理士 田中 伸一郎              |
| (33)優先権主張国・地域又は機関          |                                     | (74)代理人 | 100109070               |
|                            | 米国(US)                              |         | 弁理士 須田 洋之               |
| (81)指定国・地域                 | AP(BW,CV,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ       | (74)代理人 | 100119013               |
|                            | ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),    |         | 弁理士 山崎 一夫               |
|                            | EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(     | (74)代理人 | 100111796               |
|                            | AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,   |         | 弁理士 服部 博信               |
|                            | FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV | (74)代理人 | 100123766               |
|                            | 最終頁に続く                              |         | 最終頁に続く                  |

(54)【発明の名称】 エネルギー消費が低減された高弾性率ガラス繊維組成物

(57)【要約】

5 0～5 8重量%の量のS i O<sub>2</sub>と、1 8～2 3重量%の量のA l<sub>2</sub> O<sub>3</sub>と、1 8重量%未満のC a O及びM g Oと、少なくとも5重量%のY<sub>2</sub> O<sub>3</sub>及びL a<sub>2</sub> O<sub>3</sub>であって、Y<sub>2</sub> O<sub>3</sub>及びL a<sub>2</sub> O<sub>3</sub>が、2～4の比R 1 (R 1=Y<sub>2</sub> O<sub>3</sub>/L a<sub>2</sub> O<sub>3</sub>) で存在している、Y<sub>2</sub> O<sub>3</sub>及びL a<sub>2</sub> O<sub>3</sub>と、を含むガラス組成物が、開示される。ガラス組成物から形成されたガラス繊維は、少なくとも9 4 . 5 G P aの音速繊維弾性率を有する。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

ガラス組成物であって、

50～58重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、

18～23重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、

18重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、

少なくとも5重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2～4の比 $R1$  ( $R1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、

1重量%超～2重量%の量の $\text{Li}_2\text{O}$ と、

0～0.1重量%の量の $\text{Na}_2\text{O}$ と、

0～0.2重量%の量の $\text{K}_2\text{O}$ と、

0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含み、

前記ガラス組成物が、3.1～3.75の比 $R2$  ( $R2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ ) を有し、

前記ガラス組成物が、1,300℃未満の繊維化温度、1,250℃以下の液相温度、及び少なくとも10℃の $\Delta T$ を有し、

前記ガラス組成物から形成されたガラス繊維が、少なくとも94.5GPaの音速繊維弾性率を有する、ガラス組成物。

## 【請求項 2】

前記組成物が、

4～8重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ と、

0.5～4重量%の $\text{La}_2\text{O}_3$ と、を含む、請求項1に記載のガラス組成物。

## 【請求項 3】

前記組成物が、17重量%以下の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ を含む、請求項1又は2のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 4】

前記組成物が、18.3～21.5重量%の $\text{Al}_2\text{O}_3$ を含む、請求項1～3のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 5】

前記組成物が、 $\text{B}_2\text{O}_3$ を本質的に含まない、請求項1～4のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 6】

前記組成物が、1.25重量%～2重量%未満の $\text{Li}_2\text{O}$ を含む、請求項1～5のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 7】

前記組成物が、1,270℃未満の繊維化温度を有する、請求項1～6のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 8】

前記組成物が、1,250℃未満の繊維化温度を有する、請求項1～7のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 9】

前記組成物が、2.5～3の比 $R3$  ( $R3 = \text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ ) を有する、請求項1～8のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 10】

前記組成物が、2.8～3.1の比 $R1$ を有する、請求項1～9のいずれか一項に記載のガラス組成物。

## 【請求項 11】

前記組成物が、最大1重量%のフッ素を更に含む、請求項1～10のいずれか一項に記載のガラス組成物。

10

20

30

40

50

## 【請求項 12】

ガラス組成物から形成されたガラス繊維であって、  
 50～56重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、  
 18～23重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、  
 18.0重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、  
 4.5～8重量%の量の $\text{Y}_2\text{O}_3$ と、  
 0.5～4重量%の量の $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、  
 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2～4の比 $R1$  ( $R1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在して  
 いる、 $\text{La}_2\text{O}_3$ と、  
 0～0.5重量%の量の $\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ と、  
 0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含み、  
 前記ガラス組成物が、3.1～3.75の比 $R2$  ( $R2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ ) を有し、  
 前記ガラス繊維が、2.55 g/cc～2.8 g/ccの密度及び少なくとも94.5 GPaの音速繊維弾性率を有する、ガラス組成物から形成されたガラス繊維。

10

## 【請求項 13】

前記ガラス組成物が、18.5～21.5重量%の $\text{Al}_2\text{O}_3$ を含む、請求項12に記載のガラス繊維。

## 【請求項 14】

前記ガラス組成物が、2.5～3の比 $R3$  ( $R3 = \text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ ) を含む、請求項12～13のいずれか一項に記載のガラス繊維。

20

## 【請求項 15】

前記組成物が、1～2重量%の $\text{Li}_2\text{O}$ を含む、請求項12～14のいずれか一項に記載のガラス繊維。

## 【請求項 16】

前記組成物が、7重量%超である、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ の総量を含む、請求項12～15のいずれか一項に記載のガラス繊維。

## 【請求項 17】

連続ガラス繊維を形成する方法であって、  
 請求項1～11のいずれか一項に記載の溶融組成物を提供するステップと、  
 前記溶融組成物を、オリフィスを通して延伸させて、連続ガラス繊維を形成するステップと、を含む、連続ガラス繊維を形成する方法。

30

## 【請求項 18】

強化複合材料製品であって、  
 ポリマーマトリックスと、  
 ガラス組成物から形成された複数のガラス繊維であって、  
 50～58重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、  
 18～23重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、  
 18重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、  
 少なくとも5重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、  
 2～4の比 ( $R1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、  
 1重量%超～2重量%の量の $\text{Li}_2\text{O}$ と、  
 0～0.1重量%の量の $\text{Na}_2\text{O}$ と、  
 0～0.2重量%の量の $\text{K}_2\text{O}$ と、  
 0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含む、ガラス組成物から形成された複数のガラス繊維と、を含み、  
 前記ガラス組成物が、3.1～3.75の比 $R2$  ( $R2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ ) を有し、  
 前記ガラス組成物が、1, 250℃以下の液相温度及び10℃～60℃の $\Delta T$ を有し、  
 前記ガラス組成物から形成されたガラス繊維が、少なくとも94.5 GPaの音速繊維

40

50

弾性率を有する、強化複合材料製品。

【請求項 19】

前記強化複合材料製品が、風力タービンブレードの形態である、請求項 18 に記載の強化複合材料製品。

【請求項 20】

前記組成物が、

4～8 重量%の  $Y_2O_3$  と、

0.5～4 重量%の  $La_2O_3$  と、を含む、請求項 18 又は 19 のいずれか一項に記載の強化複合材料製品。

【請求項 21】

前記組成物が、17 重量%以下の  $CaO$  及び  $MgO$  を含む、請求項 18～20 のいずれか一項に記載の強化複合材料製品。

【請求項 22】

前記組成物が、18.3～21.5 重量%の  $Al_2O_3$  を含む、請求項 18～21 のいずれか一項に記載の強化複合材料製品。

【請求項 23】

前記組成物が、1.25 重量%～2 重量%未満の  $Li_2O$  を含む、請求項 18～22 のいずれか一項に記載の強化複合材料製品。

【請求項 24】

前記組成物が、1, 270℃未満の繊維化温度を有する、請求項 18～23 のいずれか一項に記載の強化複合材料製品。

【請求項 25】

前記組成物が、2.5～3 の比  $R_3$  ( $R_3 = SiO_2 / Al_2O_3$ ) を有する、請求項 18～24 のいずれか一項に記載の強化複合材料製品。

【請求項 26】

前記組成物が、2.8～3.1 の比  $R_1$  を有する、請求項 18～25 のいずれか一項に記載の強化複合材料製品。

【請求項 27】

ガラス組成物であって、

50～58 重量%の量の  $SiO_2$  と、

18～23 重量%の量の  $Al_2O_3$  と、

18 重量%未満の  $CaO$  及び  $MgO$  と、

少なくとも 5 重量%の  $Y_2O_3$  及び  $La_2O_3$  であって、 $Y_2O_3$  及び  $La_2O_3$  が、2～4 の比 ( $R_1 = Y_2O_3 / La_2O_3$ ) で存在している、 $Y_2O_3$  及び  $La_2O_3$  と、を含み、

前記ガラス組成物が、1, 200℃～1, 300℃の繊維化温度及び少なくとも 10℃の  $\Delta T$  を有し、

前記ガラス組成物から形成されたガラス繊維が、少なくとも 94.5 GPa の音速繊維弾性率を有する、ガラス組成物。

【請求項 28】

前記ガラス組成物が、3.1～3.75 の比  $R_2$  ( $R_2 = SiO_2 / (MgO + CaO)$ ) を含む、請求項 27 に記載のガラス組成物。

【請求項 29】

前記ガラス組成物が、1, 150℃～1, 250℃の液相温度を有する、請求項 27 又は 28 のいずれか一項に記載のガラス組成物。

【請求項 30】

前記ガラス組成物が、1, 210℃～1, 260℃の繊維化温度を有する、請求項 27～29 のいずれか一項に記載のガラス組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

10

20

30

40

50

## 【0001】

ガラス繊維は、一般に「ガラスバッチ (glass batch)」と呼ばれる所望の組成物を得るために特定の割合で組み合わせられた様々な原材料から、製造される。このガラスバッチは、溶融装置内で溶融されてもよく、溶融ガラスは、ブッシング又はオリフィスプレートを通してフィラメントへと延伸される (得られたフィラメントは、連続ガラス繊維とも称される)。

## 【0002】

ガラス製造産業における努力が、より環境に優しく持続可能な製造プロセスに移行するにつれて、1つの主要な態様は、ガラス繊維を作製する際に使用されるガラス原材料を溶融するために必要なエネルギーを低減することに、焦点を当てている。原材料を溶融するために必要な温度を低下させることは、製造プロセス全体で消費されるエネルギーの量を減少させ、溶融及びブッシング装置の寿命を延ばすことにもまた、役立ち得る。エネルギー消費の量を低減することによって、カーボンフットプリント (特定二酸化炭素排出量) もまた、最終的に低下する。

## 【0003】

更に、従来の原材料を溶融すると、典型的には、温室効果ガス (greenhouse gas、GHG) などの特定のガスが、大気中に排出される。例えば、石灰石や苦灰石 (ドロマイト) などの炭酸塩系の原材料は、材料の加工を容易にし、ガラス製品に望ましい特性を付与するために、一般的に相当量で、使用される。しかしながら、このような炭酸塩系の原材料の溶融は、二酸化炭素などのGHGの生成を、もたらす場合がある。GHGの生成はまた、従来のガラス繊維製造プロセスにおいて一般的に用いられているその他のプロセスから、例えば、原材料を溶融するために使用されるエネルギーを提供するための発電に関与する燃焼反応によって、また溶融ガラスの繊維化の間にもまた、生じる可能性がある。

## 【0004】

したがって、持続可能で環境に優しい解決策が、製造イニシアチブの最前線にあるので、高い弾性率及び引張り強度などの望ましい機械的特性を維持しながら、溶融温度が低く、ガラス繊維製造プロセス中に大気中に排出されるGHGがより少ないガラス繊維組成物が、必要とされている。

## 【発明の概要】

## 【0005】

本発明の概念の様々な例示的な態様は、50～58重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、18～23重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、18重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、少なくとも5重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2～4の比 $R_1$  ( $R_1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、1重量% (又は1重量%超) ～2重量%の量の $\text{Li}_2\text{O}$ と、0～0.1重量%の量の $\text{Na}_2\text{O}$ と、0～0.2重量%の量の $\text{K}_2\text{O}$ と、0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含むガラス組成物に関する。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、3.1～3.75の比 $R_2$  ( $R_2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ )、1300℃未満の繊維化温度、1250℃以下の液相温度、及び／又は少なくとも10℃の $\Delta T$ を有してもよい。ガラス組成物から形成されたガラス繊維は、少なくとも94.5GPaの音速繊維弾性率を有する。

## 【0006】

本発明の概念の更なる例示的な態様は、50～56重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、18～23重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、18重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、4.5～8重量%の量の $\text{Y}_2\text{O}_3$ と、0.5～4重量%の量の $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2～4の比 $R_1$  ( $R_1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在している、 $\text{La}_2\text{O}_3$ と、0～0.5重量%の量の $\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ と、0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含むガラス組成物から形成されたガラス繊維に関する。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、3.1～3.75の比 $R_2$  ( $R_2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ ) を有してもよい。ガラス繊維は、2.55g/cc～2.8g/ccの密度、及び／又は少な

くとも 94.5 GPa の音速繊維弾性率を有してもよい。

【0007】

本発明の概念の更なる例示的な態様は、ポリマーマトリックスと、ガラス組成物から形成された複数のガラス繊維と、を含む、強化複合材料製品に関する。ガラス組成物は、50～58重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、18～23.0重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、18重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、少なくとも5重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2～4の比( $R1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ )で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、1重量%超～2重量%の量の $\text{Li}_2\text{O}$ と、0～0.1重量%の量の $\text{Na}_2\text{O}$ と、0～0.2重量%の量の $\text{K}_2\text{O}$ と、0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含み、ガラス組成物は、3.1～3.75の比 $R2$  ( $R2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ )を有する。ガラス組成物は、1,250℃以下の液相温度及び10℃～60℃の $\Delta T$ を有してもよい。ガラス組成物から形成されたガラス繊維は、少なくとも94.5 GPa の音速繊維弾性率を有してもよい。

10

【0008】

本発明の概念の更なる例示的な態様は、50～58.0重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、18～23重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、18重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、少なくとも5重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2～4の比( $R1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ )で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、を含むガラス組成物に関する。ガラス組成物は、1,200℃～1,300℃の繊維化温度及び少なくとも10℃の $\Delta T$ を有し、ガラス組成物から形成されたガラス繊維は、少なくとも94.5 GPa の音速繊維弾性率を有してもよい。

20

【0009】

本発明の前述及びその他の目的、特徴及び利点は、以下に続く詳細な説明を考慮することによって、より十分に明らかになるであろう。

【発明を実施するための形態】

【0010】

別途定義されない限り、本明細書で使用される全ての技術用語及び科学用語は、これらの例示的な実施形態が属する分野の当業者によって一般的に理解されるものと同じ意味を有する。本明細書で使用される用語は、単に例示的な実施形態を説明するためのものであり、例示的な実施形態を限定することを意図するものではない。したがって、一般的な発明概念は、本明細書に示された特定の実施形態に限定されることを意図するものではない。本明細書に記載されるものと類似又は同等のその他の方法及び材料が、本発明の実施又は試験において使用され得るが、好ましい方法及び材料が、本明細書に記載されている。

30

【0011】

本明細書及び添付の特許請求の範囲において使用される場合、単数形「1つの(a)」、「1つの(an)」及び「その(the)」は、文脈が明らかに別様を示さない限り、複数形も同様に含むことが、意図される。

【0012】

別段の指示がない限り、本明細書及び特許請求の範囲で使用される成分の量、化学的特性及び分子的特性、反応条件などを表す全ての数は、全ての場合において「約(about)」という用語によって修飾されるものとして、理解されるべきである。したがって、別様を示さない限り、本明細書及び添付の特許請求の範囲に記載される数値パラメータは、本発明の例示的な実施形態によって得ようとする所望の特性に応じて変化し得る、近似値である。少なくとも、各数値パラメータは、有効桁数及び通常の丸め手法(rounding approach)を考慮して、解釈されるべきである。

40

【0013】

例示的な実施形態の広い範囲を示す数値範囲及びパラメータが近似値であるにもかかわらず、特定の実施例において示される数値は、可能な限り正確に報告される。しかしながら、任意の数値は、それらのそれぞれの試験測定において見出される標準偏差から必然的に生じる特定の誤差を、本質的に含む。本明細書及び特許請求の範囲を通して与えられる

50

全ての数値範囲は、このようなより広い数値範囲内に入る全てのより狭い数値範囲を、このようなより狭い数値範囲が全て本明細書に明示的に記載されているかのように、含む。更に、実施例において報告される任意の数値は、本明細書に開示されるより広い組成範囲の上限又は下限のいずれかを定義するために使用されてもよい。

【0014】

対象となる本発明の概念のガラス組成物は、様々な方法で説明及び／又は特許請求され得るが、異なる組成物は、本明細書で対処される特定の問題に対する代替的な解決策であり、開示される一般的な発明概念の全ての部分であることを、理解されたい。

【0015】

本開示は、高い弾性率、低い密度、及び改善された温度プロファイルを有するガラス繊維を提供するために特に必要に応じて調整された組成を有するガラス組成物に関し、これによって、ガラスは、製造中に溶融するために必要とされるエネルギーがより少なく、排出される温室効果ガス、特に、二酸化炭素が、少ない。このようなガラス組成物は、より多くのエネルギーを発生させるためにより長いブレードを必要とする風力タービンなどの風力製品の分野において、特に有益である。より長いブレードは、破損することなくそれらに印加される力に耐えるために、より高い弾性率を有する材料を必要とする。実際、ガラス繊維の弾性率は最終製品の特性に大きな影響を与え、ガラス繊維の弾性率のわずかな改善であっても、複合製品の全体の繊維重量分率が乗じられ、全体として大きな改善がもたらされる。

【0016】

本明細書に開示されるガラス組成物は、ガラス強化繊維の製造に広く使用されている従来の市販の耐火物で内張りされたガラス炉での溶融に、好適である。

【0017】

ガラス組成物は、溶融装置中でガラス組成物の構成成分を溶融することによって得られる溶融形態であってもよい。ガラス組成物は、ASTM C965-96（2007年）によって決定される、約1000ポアズの溶融粘度に対応する温度として定義される、低い繊維化温度を示す。繊維化温度を低下させることは、より長いブッシング寿命及びガラス組成物の構成成分を溶融するために必要なエネルギー使用量の低減を可能にするので、ガラス繊維の生産コストを低減する場合がある。したがって、放出されるエネルギーは、一般に、Advantex（登録商標）ガラスを含む多くの市販のガラス配合物を溶融するために必要なエネルギーよりも、小さい。このようなより低いエネルギー必要量はまた、ガラス組成物に関連する全体的な製造コストを低下させる場合がある。

【0018】

いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、2,354°F（1,290°C）以下、2,327°F（1,275°C）以下、2,309°F（1,265°C）以下、2,291°F（1,255°C）以下、2,282°F（1,250°C）以下、2,273°F（1,245°C）以下、及び2,264°F（1,240°C）以下の繊維化温度を含む、2,372°F（1,300°C）未満の繊維化温度を有する。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、2,192°F（1,200°C）～2,372°F（1,300°C）の繊維化温度を有してもよく、2,228°F（1,210°C）～2,300°F（1,260°C）、及び2,246°F（1,230°C）～2,264°F（1,240°C）を含み、全ての端点及びそれらの間の部分範囲を含む。

【0019】

ガラス組成物の別の繊維化特性は、液相温度である。液相温度は、液体ガラスとその主結晶相との間に平衡が存在する最高温度として、定義される。液相温度は、場合によっては、ガラス組成物を、白金合金ポート内の温度勾配に、16時間曝露することによって、測定されてもよい（ASTM C829-81（2005年））。液相温度を超える全ての温度で、ガラスは完全に溶融している、すなわち、結晶が存在しない。液相線温度未満の温度では、結晶が形成される場合がある。（ $\Delta T$ として周知であり、以下でより詳細に定義される）処理ウィンドウを開くために、可能な限り低い液相温度を有することが、望

10

20

30

40

50

ましい。低い液相温度はまた、溶融装置の最も冷たい位置における結晶形成を低減させるために役立ち、したがって、ガラスの加工性を改善する。

#### 【0020】

いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、 $2,264^{\circ}\text{F}$  ( $1,240^{\circ}\text{C}$ ) 以下、 $2,246^{\circ}\text{F}$  ( $1,230^{\circ}\text{C}$ ) 以下、 $2,237^{\circ}\text{F}$  ( $1,225^{\circ}\text{C}$ ) 以下、 $2,219^{\circ}\text{F}$  ( $1,215^{\circ}\text{C}$ ) 以下、 $2,210^{\circ}\text{F}$  ( $1,210^{\circ}\text{C}$ ) 以下、 $2,201^{\circ}\text{F}$  ( $1,205^{\circ}\text{C}$ ) 以下、 $2,192^{\circ}\text{F}$  ( $1,200^{\circ}\text{C}$ ) 以下、及び  $2,183^{\circ}\text{F}$  ( $1,195^{\circ}\text{C}$ ) 以下の液相温度を含む、 $2,282^{\circ}\text{F}$  ( $1,250^{\circ}\text{C}$ ) 未満の液相温度を有する。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、 $2,147^{\circ}\text{F}$  ( $1,175^{\circ}\text{C}$ )  $\sim$   $2,255^{\circ}\text{F}$  ( $1,235^{\circ}\text{C}$ )、及び  $2,192^{\circ}\text{F}$  ( $1,180^{\circ}\text{C}$ )  $\sim$   $2,192^{\circ}\text{F}$  ( $1,200^{\circ}\text{C}$ ) を含む、 $2,102^{\circ}\text{F}$  ( $1,150^{\circ}\text{C}$ )  $\sim$   $2,282^{\circ}\text{F}$  ( $1,250^{\circ}\text{C}$ ) の液相温度を有してもよい。

10

#### 【0021】

第3の繊維化特性は「 $\Delta T$ 」であるが、これは、繊維化温度と液相温度との間の差として、定義される。ガラス組成物の  $\Delta T$  は、0 超でなければならず、特に、低い繊維化温度を考慮して、十分な成形ウィンドウを有するガラス組成物を提供するように、選択される。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、少なくとも  $10^{\circ}\text{C}$ 、少なくとも  $15^{\circ}\text{C}$ 、少なくとも  $20^{\circ}\text{C}$ 、少なくとも  $24^{\circ}\text{C}$ 、少なくとも  $27^{\circ}\text{F}$ 、少なくとも  $30^{\circ}\text{C}$ 、少なくとも  $33^{\circ}\text{C}$ 、及び少なくとも  $35^{\circ}\text{C}$  を含む、少なくとも  $3^{\circ}\text{C}$  の  $\Delta T$  を有する。様々な例示的な実施形態では、ガラス組成物は、 $12^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$ 、 $15^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ 、 $20^{\circ}\text{C} \sim 55^{\circ}\text{C}$ 、 $25^{\circ}\text{C} \sim 50^{\circ}\text{C}$ 、及び  $30^{\circ}\text{C} \sim 45^{\circ}\text{C}$  を含む、 $3^{\circ}\text{C} \sim 80^{\circ}\text{C}$  の  $\Delta T$  を有する。

20

#### 【0022】

低減された  $\text{CO}_2$  排出を有する高弾性率ガラスを生産することが可能なガラス組成物を達成するために、ガラス組成物は、低減された濃度の  $\text{CaO}$  及び  $\text{MgO}$  を、集合的に含む。しかしながら、一般的に、カルシウム及びマグネシウムのレベルを増加させることは、温度、特に、繊維化温度を低下させる有効な方法であることが、一般に知られている。しかしながら、驚くべきことに、少なくとも 5.0 重量%の希土類酸化物、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  及び  $\text{La}_2\text{O}_3$  の相乗的ブレンドを集合的に組み込むことによって、少なくとも  $\text{GPa}$  の音速繊維弾性率を有するガラス繊維を形成することが可能な、低い繊維化温度を有する、ガラス組成物もまた達成しながら、集合的な  $\text{CaO}$  及び  $\text{MgO}$  濃度を減少させ得ることが、発見された。

30

#### 【0023】

希土類酸化物、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  及び  $\text{La}_2\text{O}_3$  のこの特定の組み合わせ及び濃度は、十分な弾性率及び引張り強度を有するガラス繊維の生成を可能にしながら、繊維化温度を低下させることに役立つことが、見出された。したがって、例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  及び  $\text{La}_2\text{O}_3$  の両方を含む。特に、対象となるガラス組成物は、少なくとも 5 重量%の  $\text{Y}_2\text{O}_3$  及び  $\text{La}_2\text{O}_3$  の総濃度を含み、 $\text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$  ( $R1$ ) の比は、2  $\sim$  4 である。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、2.2  $\sim$  3.8 の  $\text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$  比 ( $R1$ ) を含み、2.4  $\sim$  3.6、2.6  $\sim$  3.4、2.8  $\sim$  3.2、2.9  $\sim$  3.1 を含み、全ての端点及びそれらの間の部分範囲を含む。更に、上述したように、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  及び  $\text{La}_2\text{O}_3$  の総濃度は、例えば、少なくとも 5.5 重量%、少なくとも 5.7 重量%、少なくとも 6 重量%、少なくとも 6.3 重量%、少なくとも 6.5 重量%、少なくとも 6.8 重量%、少なくとも 7 重量%、少なくとも 7.2 重量%、及び少なくとも 7.5 重量%を含む、少なくとも 5 重量%である。同様に、 $\text{Y}_2\text{O}_3$  及び  $\text{La}_2\text{O}_3$  の総濃度は、例えば、9.6 重量%以下、9.4 重量%以下、9.2 重量%以下、9 重量%以下、8.8 重量%以下、8.4 重量%以下、及び 8 重量%以下を含む、15 重量%以下であってもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、5.5  $\sim$  9.8 重量%、5.8  $\sim$  9.5 重量%、6.0  $\sim$  9.2 重量%、6.3  $\sim$  9 重量%、6.5  $\sim$  8.8 重量%、7  $\sim$  8.5 重量%、及び 7.2  $\sim$  8.2 重量%を含む、5 重量%超かつ 10 重量%未満の  $\text{Y}_2\text{O}_3$  及び  $\text{La}_2\text{O}_3$  を集合的に含んでもよく、全

40

50

ての端点及びそれらの間の範囲を含む。

【0024】

これらの酸化物の個々に関して、ガラス組成物は、例えば、少なくとも4.2重量%、4.4重量%、4.6重量%、少なくとも4.8重量%、少なくとも5重量%、少なくとも5.2重量%、少なくとも5.5重量%、少なくとも5.4重量%、少なくとも5.6重量%、及び少なくとも5.8重量%を含む、少なくとも4重量%の $Y_2O_3$ を含んでもよい。同様に、ガラス組成物は、例えば、7.8重量%以下、7.5重量%以下、7.3重量%以下、7重量%以下、6.8重量%以下、6.5重量%以下、及び6.3重量%以下の $Y_2O_3$ を含む、8重量%以下の $Y_2O_3$ を含んでもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、5.4重量%～7.5重量%、5.6重量%～7重量%、及び5.8重量%～6.7重量%を含む、5重量%超～8重量%未満の $Y_2O_3$ を含んでもよく、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。

10

【0025】

更に、ガラス組成物は、例えば、少なくとも0.75重量%、0.9重量%、1重量%、少なくとも1.3重量%、少なくとも1.5重量%、少なくとも1.7重量%、少なくとも1.9重量%、及び少なくとも2重量%を含む、少なくとも0.5重量%の $La_2O_3$ を含んでもよい。同様に、ガラス組成物は、例えば、3.8重量%以下、3.5重量%以下、3.3重量%以下、3重量%以下、2.8重量%以下、2.5重量%以下、及び2.3重量%以下の $La_2O_3$ を含む、4重量%以下の $La_2O_3$ を含んでもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、1.4重量%～3.5重量%、1.6重量%～3重量%、及び1.8重量%～2.7重量%を含む、1重量%超～4重量%未満の $La_2O_3$ を含んでもよく、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。

20

【0026】

$Y_2O_3$ 及び $La_2O_3$ の上述の相乗的ブレンドを含むことは、 $CaO$ 及び $MgO$ の集合的な濃度の低減を容易にし、ガラスバッチへの二酸化炭素の導入に関与する、原材料の石灰石、苦灰石、及びマグネサイトについての要件を、より低くする。したがって、ガラス組成物中の $CaO$ 及び $MgO$ の総濃度は、18重量%以下、例えば、17.5重量%以下、17.2重量%以下、17重量%以下、16.8重量%以下、16.5重量%以下、16.2重量%以下、及び16重量%以下であるべきである。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、 $CaO$ 及び $MgO$ の両方を含んでもよい。

30

【0027】

ガラス組成物は、更に有利には、少なくとも9重量%かつ13重量%以下の $MgO$ を含んでもよい。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、例えば、少なくとも9.5重量%、少なくとも9.8重量%、少なくとも10重量%、少なくとも10.2重量%、及び少なくとも10.5重量%の $MgO$ を含む、少なくとも9.2重量%の $MgO$ を含む。同様に、例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、12.8重量%以下、12.6重量%以下、12.4重量%以下、12.2重量%以下、12.0重量%以下、11.8重量%以下、及び11.5重量%以下の $MgO$ 濃度を含む、13重量%未満の $MgO$ 濃度を含んでもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、9～13.0重量%未満、又は9.3～12.8重量%、又は9.5～12.5重量%、又は9.8～12.2重量%の $MgO$ 濃度を含んでもよく、任意の端点及びそれらの間の部分範囲を含む。

40

【0028】

上述したように、ガラス組成物は、従来の組成物と比較して低減された濃度の $CaO$ を含むが、これは、製造中の炭素排出を低減する一方で、形成された繊維の弾性率もまた改善する。したがって、ガラス組成物は、6重量%以下の $CaO$ 、場合によっては、5.5重量%以下の $CaO$ を含んでもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、例えば、5重量%以下、4.8重量%以下、及び4.7重量%以下の $CaO$ を含む、5.2重量%以下の $CaO$ 濃度を含んでもよい。同様に、例示的な実施形態のいずれかは、例えば、最小3.2重量%、3.5重量%、3.7重量%、3.9重量%、及び4.1重

50

量%など、最小3重量%のCaOを含んでもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、3.5～5.8重量%、3.8～5.5重量%、4～5.2重量%、及び4.1～5.0重量%未満を含む、3～6.0重量%のCaOを含んでもよい。

#### 【0029】

MgO及びCaOの総濃度は、MgO及びCaOの合計濃度に対するSiO<sub>2</sub>の比( $R_2 = \text{SiO}_2 / (\text{CaO} + \text{MgO})$ )が、3.2～3.6及び3.3～3.55を含む、3.1～3.75に、得に調整されるようなものであり、全ての端点及びそれらの間の部分範囲を含む。SiO<sub>2</sub>は、主要なガラス形成剤であり(O-Si-O結合、各ケイ素に4個の酸素及び各酸素に2個のケイ素を有する)、アルカリ土類酸化物CaO及びMgOは、Ca<sup>2+</sup>及びMg<sup>2+</sup>カチオンを構造に対して寄与するが、これらの各々は、ガラス形成剤結合において、2個の非架橋酸素(Non-Bridging Oxygen、NBO)を生成する。3.75を超えるSiO<sub>2</sub>/(CaO+MgO)の比は、構造中に多すぎる架橋酸素が存在することを示すが、これは、形成粘度に達するために必要とされる高温に起因して、高粘度及び形成の困難性をもたらす場合がある。SiO<sub>2</sub>/(CaO+MgO)の比が3.1未満であると、NBOが多すぎて、構造が極めて破壊されたり、柔軟になったりする場合があり、粘度が低くなると共に、強度及び弾性率が低くなる。SiO<sub>2</sub>/(CaO+MgO)比の値のバランスは、成形及び市場での用途の両方について、所望の特性を達成することが、発見されている。

#### 【0030】

ガラス組成物は、少なくとも50重量%かつ58重量%未満のSiO<sub>2</sub>を更に含む。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、少なくとも52重量%、少なくとも52.5重量%、少なくとも53重量%、少なくとも53.5重量%、少なくとも53.8重量%、少なくとも54重量%、及び少なくとも54.15重量%を含む、少なくとも51重量%のSiO<sub>2</sub>を含む。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、58重量%以下、57.5重量%以下、57重量%以下、56.5重量%以下、56重量%以下、及び55.5重量%以下を含む、60重量%以下のSiO<sub>2</sub>を含む。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、50重量%超～58重量%未満、52重量%超～57重量%未満のSiO<sub>2</sub>、53重量%超～56.5重量%未満、又は53.2重量%～55.8重量%を含み、任意の端点及びそれらの間の部分範囲を含む。

#### 【0031】

所望の機械的特性及び繊維化特性の両方を達成するために、ガラス組成物の1つの重要な態様は、少なくとも18重量%及び23重量%以下のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>濃度を有することである。18重量%超である、特に、少なくとも18.5重量%のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>濃度を含むことは、典型的には、組成物から形成されるガラス繊維が十分な弾性率を達成することを確認にするが、これは、以下により詳細に記載される。23重量%超のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含むことは、典型的には、ガラスの液相線を繊維化温度より高いレベルまで増加させるが、これは、負のΔTをもたらす。

#### 【0032】

例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、少なくとも19重量%、少なくとも19.3重量%、少なくとも19.5重量%、少なくとも19.7重量%、少なくとも19.8重量%、及び少なくとも20重量%を含む、少なくとも18.8重量%のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含んでもよい。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、22.5重量%以下、22重量%以下、21.7重量%以下、21.5重量%以下、21.3重量%以下、及び21重量%以下を含む、22.8重量%以下のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含む。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、18.9～21.5重量%のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、及び19重量%超～21重量%未満を含む、18.6～22重量%のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含み、任意の端点及びそれらの間の部分範囲を含む。

#### 【0033】

例示的な実施形態のいずれかでは、SiO<sub>2</sub>及びAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は、2.6～2.95、及び2.7～2.9を含む、2.5～3.0で特に調整された比R<sub>3</sub>( $R_3 = \text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ )

10

20

30

40

50

$\text{Li}_2\text{O}_3$ ) で存在しており、全ての端点及びそれらの間の部分範囲を含む。先に述べたように、 $\text{SiO}_2$  は、主要なガラス形成剤である。しかしながら、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  もまたガラス形成剤であり、ガラス構造における結合性の程度を高めるように、作用する。したがって、ガラス形成剤ネットワークの結合性を高めるために十分な  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が存在しなければならないが、ネットワークの結晶化が過度に大きくなり、それによって、低い液相温度を維持する場合には、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  が多すぎてはならない。2.7 対 2.9 の比が、許容可能な液相温度を維持しながら弾性率を改善するために特に好ましいことが、発見されている。

#### 【0034】

ガラス組成物は、総  $\text{R}_2\text{O}$  濃度を 3 重量%未満に維持しながら、少なくとも 1 重量%のアルカリ金属酸化物  $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$ 、及び  $\text{K}_2\text{O}$ （まとめて、「 $\text{R}_2\text{O}$ 」）を更に含んでもよい。特に、 $\text{Li}_2\text{O}$  は、ガラス構造中に 1 つの  $\text{NBO}$  を生成する望ましい  $\text{Li}^+$  カチオンを加え、それによって、溶融粘度及び成形粘度を低下させるという点で、例外的なアルカリ酸化物である。ガラス構造はまた、高い電界強度（又は低いイオン半径）を有するが、これは、ガラス構造がトポロジ的に互いにより近くなる（密に充填される）ことを可能にし、ネットワーク全体を強固にする。より高品質の原材料の使用による、 $\text{Na}_2\text{O}$  及び  $\text{K}_2\text{O}$  の効果的な低減又は除去により、 $\text{Li}_2\text{O}$  の量を増加させて弾性率を高めることができる一方で、粘度が液相温度に近づきすぎないようにする。

#### 【0035】

ガラス組成物は、例えば、少なくとも 0.85 重量%、少なくとも 0.95 重量%、少なくとも 1.05 重量%、少なくとも 1.15 重量%、少なくとも 1.25 重量%、少なくとも 1.4 重量%、及び少なくとも 1.5 重量%を含む、少なくとも 0.8 重量%超の量の  $\text{Li}_2\text{O}$  を含んでもよい。同様に、ガラス組成物は、例えば、2.8 重量%以下、2.5 重量%以下、2.3 重量%以下、2 重量%以下、1.8 重量%以下、及び 1.6 重量%以下を含む、3 重量%未満の  $\text{Li}_2\text{O}$  を含む。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、1.1 重量%～2.1 重量%、1.3 重量%～1.9 重量%、及び 1.4 重量%～1.7 重量%を含む、0.9 重量%超～2.5 重量%を含んでもよく、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。

#### 【0036】

いくつかの実施形態では、ガラス組成物は、 $\text{Li}_2\text{O}$  及び／又はアルカリ金属酸化物を含まなくてもよい、又は本質的に含まなくてもよい。本明細書で使用される場合、「本質的に含まない (essentially free)」は、1 重量%未満、例えば、0.75 重量%未満、0.5 重量%未満、0.25 重量%未満、0.1 重量%未満、0.05 重量%未満、又は 0.025 重量%未満の量を示す。したがって、いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、0.5 重量%未満、0.3 重量%未満、0.15 重量%未満、0.075 重量%未満、及び 0.05 重量%未満の  $\text{Li}_2\text{O}$  を含む、0.75 重量%未満の  $\text{Li}_2\text{O}$  を含む。

#### 【0037】

ガラス組成物は、 $\text{Na}_2\text{O}$  及び／又は  $\text{K}_2\text{O}$  を、少なくとも 0.01 重量%の個々の又は集合的な量で、含んでもよい。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、0.01～0.5 重量%、0.03～0.4 重量%、及び 0.06～0.3 重量%を含む、0～1.0 重量%の  $\text{Na}_2\text{O}$  を含み、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、0.01～0.5 重量%、0.03～0.3 重量%、及び 0.04～0.15 重量%を含む、0～1 重量%の  $\text{K}_2\text{O}$  を更に含んでもよく、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、 $\text{Na}_2\text{O}$  及び／又は  $\text{K}_2\text{O}$  を含まなくてもよい。

#### 【0038】

ガラス組成物は、 $\text{TiO}_2$  及び／又は  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  を、少なくとも 0.01 重量%の個々の又は集合的な量で、更に含んでもよい。例えば、例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、任意選択的に、0.01 重量%～1 重量%、及び 0.1～0.6 重量%を

10

20

30

40

50

含む、0重量%～1.5重量%の $\text{TiO}_2$ を含んでもよい。ガラス組成物は、任意選択的に、最大1重量%の $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を更に含んでもよい。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス組成物は、0.01重量%～0.6重量%、及び0.1～0.35重量%を含む、0重量%～0.8重量%の $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を含み、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。  
【0039】

ガラス組成物は、ガラス又は繊維に悪影響を及ぼすことなく、不純物及び／又は微量物質を更に含んでもよい。これらの不純物は、原材料不純物としてガラス中に混入していてもよく、又は溶融ガラスと炉の構成要素との化学反応によって形成された生成物であってもよい。微量物質の非限定的な例としては、例えば、ストロンチウム (strontium、 $\text{SrO}$ )、バリウム (barium、 $\text{BaO}$ )、及びこれらの組み合わせが挙げられる。微量物質は、それらの酸化物形態で存在してもよく、フッ素及び／又は塩素を更に含んでもよい。いくつかの例示的な実施形態では、本発明のガラス組成物は、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{P}_2\text{O}_5$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、及び $\text{SO}_3$ のそれぞれを、2重量%以下、例えば、1重量%未満、0.5重量%未満、0.2重量%未満、0.1重量%未満、及び0.05重量%未満、含有する。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、これらの組成物の1つ以上を、除外してもよい。したがって、例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、 $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{P}_2\text{O}_5$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{ZnO}$ 、及び $\text{SO}_3$ のいずれか1種又以上を含まない。

10

【0040】

ガラス組成物は、 $\text{B}_2\text{O}_3$ を含まなくてもよい、又は本質的に含まなくてもよいが、繊維化及び完成ガラス特性を調整するために少量が追加されてもよく、数パーセント未満に維持されている場合では、特性に悪影響を与えない。したがって、例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、0.75重量%未満、0.5重量%未満、0.3重量%未満、0.15重量%未満、0.075重量%未満、及び0.05重量%未満の $\text{B}_2\text{O}_3$ を含む、1重量%未満の $\text{B}_2\text{O}_3$ を含む。

20

【0041】

ガラス組成物は、1.0重量%以下の量のフッ素 (fluorine、 $\text{F}$ ) を更に含んでもよい。例えば、例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス組成物は、任意選択的に、0.01重量%～0.75重量%、及び0.05～0.5重量%を含む、0重量%～0.9重量%の $\text{F}$ を含んでもよく、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。

30

【0042】

本明細書で使用される場合、「重量パーセント (weight percent)」、「重量% (% by weight)」、「重量パーセント (wt. %)」及び「重量パーセント (percent by weight)」という用語は、互換的に使用されてもよく、全組成物に基づく重量パーセント (weight percent) (又は重量パーセント (percent by weight)) を示すことを意味する。

【0043】

以下の表1は、本発明の概念に従って配合された、様々な例示的な組成範囲を提供する。

【0044】

40

【表 1】

表 1

|                                                               | 例示的な範囲A | 例示的な範囲B   | 例示的な範囲C   |
|---------------------------------------------------------------|---------|-----------|-----------|
| SiO <sub>2</sub>                                              | 50～58   | 52～56     | 53～55     |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 18～23   | 18.5～22   | 19～21     |
| CaO                                                           | 3～6     | 3.5～5.5   | 4～5       |
| MgO                                                           | 9～13    | 9.5～12.5  | 10～11.5   |
| SiO <sub>2</sub> /(MgO+CaO)                                   | 3.1～3.7 | 3.2～3.68  | 3.3～3.55  |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                 | 4～7.5   | 5～7       | 5.5～6.5   |
| La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 0.5～3   | 1～2.5     | 1.3～2.2   |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 5～10    | 6.5～9     | 7.5～8.5   |
| Na <sub>2</sub> O+K <sub>2</sub> O                            | 0～1     | 0.01～0.5  | 0.05～0.1  |
| Li <sub>2</sub> O                                             | 0～2     | 0.95～1.8  | 1.2～1.65  |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 0～0.5   | 0.07～0.3  | 0.09～0.25 |
| F                                                             | 0～1     | 0.01～0.75 | 0.05～0.5  |
| TiO <sub>2</sub>                                              | 0～0.6   | 0.01～0.5  | 0.03～0.3  |

10

## 【0045】

上に示したように、本発明のガラス組成物は、予想外にも、1,300℃未満の繊維化温度、1,250℃未満（又はいくつかの例示的な実施形態では、1,200℃未満）の液相温度、及び好ましくは、少なくとも10℃の正のΔT値を含む、望ましい形成特性を維持しながら、最適化された弾性率を示す。

20

## 【0046】

繊維引張り強度は、本明細書では、単に「強度（strength）」とも称される。いくつかの例示的な実施形態では、引張り強度は、ASTM D2343-09に従ってインストロン引張り試験装置を使用して、新品同様の繊維（すなわち、サイジングされていない、手付かずの、実験室で生成された繊維）で、測定される。本明細書に開示される本発明のガラス組成物から形成された、例示的なガラス繊維は、少なくとも4,450MPa、少なくとも4,500MPa、少なくとも4,530MPa、少なくとも4,550MPa、少なくとも4,570MPa、少なくとも4,590MPa、少なくとも4,600MPa、少なくとも4,630MPa、及び少なくとも4,650MPaを含む、少なくとも4,400MPaの繊維引張り強度を有してもよい。いくつかの例示的な実施形態では、本発明のガラス組成物から形成されたガラス繊維は、4,500MPa～4,800MPa、4,550～4,750MPaを含む、4,450～4,900MPaの繊維引張り強度を有し、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。

30

## 【0047】

ガラス繊維の弾性率は、様々な方法で決定されてもよい。いくつかの例示的な実施形態では、弾性率は、音波技術によって決定され、1965年6月23日、公報番号NOLTR 65-87の公報「Glass Fiber Drawing and Measuring Facilities at the U. S. Naval Ordnance Laboratory」に概説されている音波測定手順に従って測定された、5本の単一ガラス繊維の平均測定値を取ることによって、音速繊維弾性率を提供する。弾性率は、ASTM C1259に従って実施される体積弾性率として、更に決定されてもよい。

40

## 【0048】

本発明のガラス組成物から形成された例示的なガラス繊維は、少なくとも93.5GPa、少なくとも94.0GPa、少なくとも94.5GPa、少なくとも95GPa、少なくとも95.3GPa、少なくとも95.5GPa、少なくとも95.8GPa、又は少なくとも96GPaを含む、少なくとも93GPaの音速繊維弾性率を有してもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、本発明のガラス組成物から形成された例示的なガラス繊維は、94GPa～105GPa、及び95GPa～100GPaを含む、93.5GPa～120GPaの体積弾性率を有してもよく、全ての端点及びそれらの間の範囲を含む。

50

## 【0049】

例示的な実施形態のいずれかでは、本明細書に開示されるガラス組成物は、 $2.2 \text{ g/cc} \sim 3.0 \text{ g/cc}$ の密度を有するガラス繊維を形成する。密度は、アニールされていないバルクガラスに対するアルキメデス法（ASTM C693-93（2008年））などの、当該技術分野において周知であり一般に受け入れられている任意の方法によって、測定されてもよい。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス繊維は、 $2.5 \text{ g/cc} \sim 2.8 \text{ g/cc}$ 、 $2.55 \sim 2.75 \text{ g/cc}$ 、及び $2.6 \sim 2.7 \text{ g/cc}$ を含む、 $2.3 \text{ g/cc} \sim 2.85 \text{ g/cc}$ の密度を有してもよい。

## 【0050】

密度及び弾性率は、比弾性率の決定につながる。最終物品に剛性を加える軽量複合材料を達成するためには、高い比弾性率を有することが、望ましい。比弾性率は、風力エネルギー及び航空宇宙用途などの、製品の剛性が重要なパラメータである用途において、重要である。本明細書で使用される場合、比弾性率は、以下の式によって計算される：

$$\text{比弾性率 (MJ/kg)} = \text{音速繊維弾性率 (GPa)} / \text{密度 (kg/立方メートル)}$$

## 【0051】

本発明のガラス組成物から形成された例示的なガラス繊維は、 $34 \text{ MJ/kg} \sim 37 \text{ MJ/kg}$ 、及び $34.5 \text{ MJ/kg} \sim 36 \text{ MJ/kg}$ を含む、 $33 \text{ MJ/kg} \sim 40 \text{ MJ/kg}$ の比弾性率を有する。例示的な実施形態のいずれかでは、ガラス繊維は、 $34.6 \text{ MJ/kg} \sim 35 \text{ MJ/kg}$ の比弾性率を有してもよい。

## 【0052】

いくつかの例示的な実施形態によれば、上述のガラス組成物からガラス繊維を調製するための方法が、提供される。ガラス繊維は、当該技術分野において周知であり、伝統的に使用されている任意の手段によって、形成されてもよい。いくつかの例示的な実施形態では、ガラス繊維は、原材料成分を得て、所望の重量パーセントの最終組成物を与えるのに適切な量の成分を混合することによって、形成される。本方法は、熔融形態の本発明のガラス組成物を提供することと、ブッシングのオリフィスを通して熔融組成物を延伸してガラス繊維を形成することと、を更に含んでもよい。

## 【0053】

ガラス組成物の構成成分は、 $\text{SiO}_2$ については砂又は葉蠟石（パイロフィライト）、 $\text{CaO}$ については石灰石、生石灰、珪灰石（ウォラストナイト）、又は苦灰石、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ についてはカオリン、アルミナ、又は葉蠟石、 $\text{MgO}$ については苦灰石、ドロマイト生石灰、水滑石（ブルーサイト）、頑火輝石（エンスタタイト）、タルク、焼成マグネサイト、又はマグネサイト、及び $\text{Na}_2\text{O}$ については炭酸ナトリウム、ナトリウム長石、又は硫酸ナトリウムを含むが、これらに限定されるものではない、好適な成分又は原材料から、得られてもよい。いくつかの例示的な実施形態では、ガラスカレットを使用して、必要な酸化物のうちの1種以上を供給してもよい。上述したように、対象となるガラス組成物は、低減された量の石灰石、苦灰石、及びマグネサイトを含む。

## 【0054】

次に、混合されたバッチを、炉又は熔融装置で熔融し、得られた熔融ガラスを前炉に沿って通過させ、前炉の底部に位置するブッシングのオリフィスを通して延伸させて、個々のガラスフィラメントを形成してもよい。いくつかの例示的な実施形態では、炉又は熔融装置は、従来の耐火性熔融装置である。耐火性ブロックから形成された耐火性タンクを利用することによって、本発明の組成物によって生成されるガラス繊維の生産に関連する製造コストを、低減することができる。いくつかの例示的な実施形態では、ブッシングは、白金合金系のブッシングである。次に、個々のフィラメントを一緒に集めることによって、ガラス繊維のストランドを形成してもよい。繊維ストランドは巻き付けられ、意図された用途に好適な従来の様式で、更に処理されてもよい。

## 【0055】

熔融装置、前炉、及びブッシング内のガラスの動作温度は、ガラスの粘度を適切に調整するように選択されてもよく、制御装置などの好適な方法を使用して、維持されてもよい

10

20

30

40

50

。溶融装置の前方端部における温度は、失透を低減又は排除するように、自動的に制御されてもよい。次に、溶融ガラスは、ブッシングの底部又は先端プレート内の孔又はオリフィスを通して引っ張られ（延伸され）、ガラス繊維を形成してもよい。いくつかの例示的な実施形態によれば、ブッシングオリフィスを通して流れる溶融ガラスの流れは、複数の個々のフィラメントから形成されたストランドを、巻き取り機の回転可能なコレットに取り付けられた形成管に巻き取ることによって、フィラメントに細化されるか、又は適応速度で切断される。本発明のガラス繊維は、本明細書に記載の方法のいずれか、又はガラス繊維を形成するための任意の周知の方法によって、得ることができる。

#### 【0056】

繊維は、意図される用途に好適な従来の様式で、更に加工されてもよい。例えば、いくつかの例示的な実施形態では、ガラス繊維は、当業者に周知のサイジング組成物で、サイジングされる。サイジング組成物は決して限定されるものではなく、ガラス繊維への適用に好適な、任意のサイジング組成物であってもよい。サイジングされた繊維は、製品の最終用途が高い強度及び剛性並びに低重量を必要とする、様々なプラスチックなどの基材を強化するために使用されてもよい。このような用途としては、風力タービンブレードを形成する際に使用するための、不織布マット及び織布と、鉄筋コンクリート、橋等のインフラストラクチャと、航空宇宙用構造物と、が挙げられるが、これらに限定されるものではない。例示的な織布としては、例えば、一方向布、一軸布、多軸布、ステッチ布等が挙げられる。

#### 【0057】

これに関して、本発明のいくつかの例示的な実施形態は、硬化性マトリックス材料と組み合わせて、上述のような本発明のガラス繊維を組み込む複合材料を含む。これは、本明細書では、強化複合材料製品と称される場合もある。マトリックス材料は、ポリエステル、ポリプロピレン、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート、及びポリブチレンなどの熱可塑性プラスチック、並びにエポキシ樹脂、不飽和ポリエステル、フェノール樹脂、ビニルエステル、及びエラストマーなどの熱硬化性樹脂などであるが、これらに限定されるものではない、当業者に周知の、任意の好適な熱可塑性プラスチック又は熱硬化性樹脂であってもよい。これらの樹脂は、単独で又は組み合わせて使用されてもよい。強化複合材料製品は、風力タービンブレード、鉄筋、パイプ、フィラメントワインディング、マフラー充填、吸音等に使用されてもよい。

#### 【0058】

更なる例示的な実施形態によれば、本発明は、上述の複合製品を調製する方法を提供する。本方法は、少なくとも1種のポリマーマトリックス材料を、複数のガラス繊維と組み合わせることを含んでもよい。ポリマーマトリックス材料及びガラス繊維の両方は、上述の通りであってもよい。

#### 【実施例】

#### 【0059】

以下の表2、表3、及び表4に記載される酸化物重量パーセントを有する最終ガラス組成物を達成するために、比例した量でバッチ構成成分を混合することによって、本発明による例示的なガラス組成物を調製した。

#### 【0060】

原材料を、1, 600℃の温度で3時間、電気加熱炉中の白金るつぼ中で、溶融した。「Standard Practice for Measuring Viscosity of Glass Above the Softening Point」と題するASTM C965-96（2007年）（その内容が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されているような回転シリンダ法を使用して、繊維化温度を測定した。「Standard Practices for Measurement of Liquidus Temperature of Glass」と題するASTM C829-81（2005年）（その内容は参照により本明細書に組み込まれる）に定義されているように、ガラスを白金合金ポート内の温度勾配に16時間曝露することによって、液

相温度を測定した。「Standard Test Method for Density of Glass Buoyancy」と題するASTM C693-93(2008年)(その内容は参照により本明細書に組み込まれる)に詳述されているように、アルキメデス法によって、密度を測定した。

【0061】

公報番号NOLTR 65-87の「Glass Fiber Drawing and Measuring Facilities at the U. S. Naval Ordnance Laboratory」(1965年、6月23日)に概説されている測定手順に従って、音速繊維技術によって、弾性率を測定した。測定されたGPa単位の弾性率を、 $\text{kg/m}^3$ 単位の密度で除算することによって、比弾性率を計算した。

10

【0062】

「Standard Test Method for Tensile Properties of Glass Fiber Strands, Yarns, and Rovings Used in Reinforced Plastics」と題するASTM D2343-09(その内容は参照により本明細書に組み込まれる)に従って、インストロン引張り試験装置を使用して、新品同様の繊維について、強度を測定した。

【0063】

20

30

40

50

【表 2】

|                                                               | 比較実施例 1<br>(重量%) | 比較実施例 2<br>(重量%) | 比較実施例 3<br>(重量%) | 比較実施例 4<br>(重量%) | 実施例 1<br>(重量%) | 実施例 2<br>(重量%) | 実施例 3<br>(重量%) | 実施例 4<br>(重量%) | 実施例 5<br>(重量%) |
|---------------------------------------------------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| SiO <sub>2</sub>                                              | 58.8             | 59.9             | 57               | 57               | 55             | 54.76          | 53.75          | 53.69          | 54.18          |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 17               | 16.54            | 20               | 20               | 20             | 19.98          | 19.99          | 19.98          | 19.88          |
| SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>              | 3.45             | 3.62             | 2.85             | 2.85             | 2.75           | 2.74           | 2.69           | 2.69           | 2.73           |
| CaO                                                           | 5.5              | 5.38             | 4                | 5                | 4.5            | 4.50           | 4.49           | 4.49           | 4.37           |
| MgO                                                           | 10.5             | 11.55            | 11               | 10               | 11             | 10.99          | 10.98          | 10.98          | 11.04          |
| CaO+MgO                                                       | 16.0             | 16.93            | 15               | 15               | 16.5           | 15.49          | 15.47          | 15.47          | 15.41          |
| SiO <sub>2</sub> /(MgO+CaO)                                   | 3.675            | 3.54             | 3.8              | 3.8              | 3.55           | 3.54           | 3.47           | 3.47           | 3.51           |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                 | 5                | 4.71             | 4                | 6                | 6              | 6              | 6              | 6              | 6              |
| La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 0.6              | 0                | 2                | 0                | 2              | 2              | 2              | 2              | 2              |
| Na <sub>2</sub> O                                             | 0.27             | 0.05             | ---              | ---              | ---            | 0.07           | 0.08           | 0.22           | 0.067          |
| K <sub>2</sub> O                                              | 0.48             | 0.1              | ---              | ---              | ---            | 0.06           | 0.16           | 0.25           | 0.123          |
| Li <sub>2</sub> O                                             | 0.75             | 1.03             | 2                | 1.8              | 1.5            | 1.50           | 1.50           | 1.50           | 1.52           |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 0.43             | 0.24             | ---              | ---              | ---            | 0.07           | 0.28           | 0.21           | 0.245          |
| TiO <sub>2</sub>                                              | 0.41             | 0.5              | ---              | 0.2              | 0              | 0.02           | 0.59           | 0.51           | 0.567          |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 8.33             | N/A              | 2                | N/A              | 3              | 3              | 3              | 3              | 3              |
| 纖維化温度(°C)                                                     | 1.305            | 1.273            | 1.201            | 1.257            | 1.249          | 1.241          | 1.239          | 1.235          | 1.232          |
| 液相温度(°C)                                                      | 1.205            | 1.252            | 1.213            | 1.178            | 1.196          | 1.201          | 1.199          | ---            | 1.192          |
| ΔT(°C)                                                        | 100              | 21               | -12              | 79               | 53.9           | 40             | 40             | ---            | 40             |
| 密度(g/cm <sup>3</sup> )                                        | 2.66             | 2.65             | 2.74             | 2.67             | 2.7191         | 2.73           | 2.73           | ---            | 2.73           |
| 音速纖維弹性率(GPa)                                                  | 90.4             | 93.8             | 98.0             | 94.15            | 94.7           | 95             | 95.1           | 95             | 94.9           |

【0064】

表 2

10

20

30

40

50

表 3

|                                                               | 比較実施例 6<br>(重量%) | 比較実施例 7<br>(重量%) | 比較実施例 8<br>(重量%) | 比較実施例 9<br>(重量%) | 実施例 6<br>(重量%) | 実施例 7<br>(重量%) | 実施例 8<br>(重量%) | 実施例 9<br>(重量%) | 実施例 10<br>(重量%) |
|---------------------------------------------------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|-----------------|
| SiO <sub>2</sub>                                              | 54.67            | 50.89            | 53.84            | 55.5             | 53.93          | 53.7           | 53             | 53.5           | 55              |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 22.24            | 22.92            | 18.43            | 21               | 20             | 20             | 22             | 21.5           | 21              |
| SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>              | 2.45             | 2.22             | 2.92             | 2.64             | 2.7            | 2.69           | 2.41           | 2.49           | 2.62            |
| CaO                                                           | 7.99             | 4.47             | 8.29             | 3.5              | 4.5            | 4.5            | 5              | 5              | 4.5             |
| MgO                                                           | 9.39             | 12.46            | 10.27            | 11               | 11             | 11             | 12             | 12             | 11              |
| CaO+MgO                                                       | 17.38            | 16.93            | 18.56            | 14.5             | 15.5           | 15.5           | 17             | 17             | 15.5            |
| SiO <sub>2</sub> /(MgO+CaO)                                   | 3.14             | 3.01             | 2.74             | 3.83             | 3.48           | 3.46           | 3.12           | 3.14           | 3.54            |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                 | 5                | 5.49             | 3                | 4                | 6              | 6              | 4              | 4              | 5               |
| La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 0                | 1.5              | 3                | 3                | 2              | 2              | 2              | 2              | 2               |
| Na <sub>2</sub> O                                             | 0.5              | 0.034            | 0.12             | 0                | 0.04           | 0.07           | ---            | ---            | ---             |
| K <sub>2</sub> O                                              | 0                | 0.01             | 0.12             | 0                | 0.15           | 0.26           | ---            | ---            | ---             |
| Li <sub>2</sub> O                                             | 0                | 2.2              | 2                | 2                | 1.5            | 1.5            | 2              | 2              | 1.5             |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 0.16             | 0.012            | 0.32             | 0                | 0.283          | 0.3            | ---            | ---            | ---             |
| TiO <sub>2</sub>                                              | 0.03             | 0.009            | 0.64             | 0                | 0.592          | 0.6            | ---            | ---            | 0               |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | N/A              | 3.66             | 1                | 1.33             | 3              | 3              | 2              | 2              | 2.5             |
| 纖維化温度(°C)                                                     | ---              | 1,200.6          | 1,196.1          | 1,200.6          | 1,239          | 1,230          | 1,206          | 1,208          | 1,253           |
| 液相温度(°C)                                                      | 1,267            | 1,213.9          | 1,173.3          | 1,213.9          | 1,199          |                | 1,191          | 1,188          | 1,227           |
| ΔT(°C)                                                        | ---              | -13.3            | 22.8             | -13.3            | 39.6           |                | 15             | 20             | 26              |
| 密度(g/cm <sup>3</sup> )                                        | 2.69             | 2.744            | 2.732            | 2.744            | 2.7333         | 2.7262         | 2.71           | 2.71           | 2.70            |
| 音速纖維彈性率(GPa)                                                  | 91.3             | 98               | 94.1             | 98               | 95.0           | 95.1           | 96.2           | 96.2           | 94.7            |

【表 4】

表 4

|                                                               | 実施例 11<br>(重量%) | 実施例 12<br>(重量%) | 実施例 13<br>(重量%) | 実施例 14<br>(重量%) | 実施例 15<br>(重量%) | 実施例 16<br>(重量%) |
|---------------------------------------------------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| SiO <sub>2</sub>                                              | 52.5            | 54              | 54              | 53.8            | 54              | 54.1            |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 22.5            | 20.2            | 20.2            | 20.2            | 20.2            | 20.5            |
| SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>              | 2.7             | 2.7             | 2.7             | 2.67            | 2.7             | 2.64            |
| CaO                                                           | 4.5             | 4.5             | 4.5             | 4.5             | 4.5             | 5               |
| MgO                                                           | 12.5            | 11.1            | 11.1            | 11.1            | 11.1            | 11.1            |
| CaO+MgO                                                       | 17              | 15.6            | 15.6            | 15.6            | 15.6            | 15.6            |
| SiO <sub>2</sub> /(MgO+CaO)                                   | 3.1             | 3.5             | 3.5             | 3.4             | 3.5             | 3.5             |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                 | 4               | 6               | 6               | 6.5             | 6.5             | 6               |
| La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | 2               | 2               | 2               | 2.5             | 2.5             | 2               |
| Na <sub>2</sub> O                                             | ----            | 0.2             | 0.2             | 0.1             | 0.1             | 0.1             |
| ZrO <sub>2</sub>                                              | ----            | 0.5             | 1               | ----            | ----            | ----            |
| K <sub>2</sub> O                                              | ----            | ----            | ----            | 0.2             | 0.2             | 0.1             |
| Li <sub>2</sub> O                                             | 2               | 1               | 0.5             | 1               | 0.8             | 1               |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                                | ----            | 0.15            | 0.15            | 0.05            | 0.05            | 0.05            |
| TiO <sub>2</sub>                                              | ----            | 0.35            | 0.35            | 0.05            | 0.05            | 0.05            |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 2               | 3               | 3               | 2.6             | 2.6             | 3               |
| 繊維化温度(°C)                                                     | 1,208.3         | 1,251.7         | 1269.4          | 1254.4          | 1261.9          | 1254.7          |
| 液相温度(°C)                                                      | 1,204.2         | 1,226.9         | 1,242.2         | 1231.1          | 1245            | 1235            |
| ΔT(°C)                                                        | 4.1             | 24.8            | 27.2            | 23.3            | 16.9            | 19.7            |
| 密度(g/cm <sup>3</sup> )                                        | 2.72            | 2.74            | 2.75            | 2.75            | 2.75            | 2.73            |
| 音速繊維弾性率(GPa)                                                  | 96.64           | 95.0            | 94.8            | 94.7            | 94.5            | 94.7            |

10

20

## 【0066】

表 2、表 3 及び表 4 は、先行技術の高性能ガラス（比較実施例）に対して、特に、バランスのとれた成形特性（すなわち、1,300℃未満の繊維化温度、1,250℃以下の（好ましくは1,200℃以下の）液相温度、及び少なくとも94.5GPaである改善された音速繊維弾性率を有する正のΔT（好ましくは、少なくとも10℃のΔT））を有するガラスを達成するために、対象となるガラス組成物が克服した課題を示す。比較先行技術のガラス組成物は、単一のガラス組成物においてこれらのパラメータの各々を達成することができず、したがって、重要な技術的効果が、本明細書に記載される特定のガラス組成物内で、確認されている。上述のように、繊維の弾性率の見かけ上のわずかな増加であっても、製品の繊維重量分率全体にわたって増加を倍増させることに起因して、繊維を用いて形成された複合製品の特性に、大きな影響を及ぼす可能性がある。

30

## 【0067】

特に、表 2 に示されるように、比較実施例 1、比較実施例 2、及び比較実施例 4 は、各々、少なくとも 2 つの必要なパラメータ（すなわち、高シリカ、低アルミナ、低ランタン、及び低リチウム（比較実施例 1 のみ））から外れており、少なくとも 94.5 GPa の弾性率を達成することができない。比較実施例 3 及び比較実施例 4 は、3.75 超の SiO<sub>2</sub>/(MgO+CaO) 濃度を含むが、この区別は、比較実施例 3 では負の ΔT を、比較実施例 4 では低い弾性率を、もたらす。表 3 では、比較実施例 6 及び比較実施例 8 は、低い弾性率を実証しており、両方の比較ガラス組成物は、その他の差異の中でもとりわけ、2.0 及び 4.0 の必要とされる比から外れた Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 比を含む。比較実施例 7 及び比較実施例 8 は、各々、3.1～3.75 の必要とされる比から外れた SiO<sub>2</sub>/(MgO+CaO) 比を含み、加工について許容できない負の ΔT 値をもたらす。対照的に、実施例 1～実施例 16 の各々は、本明細書に記載される特定の要件及び関係の範囲内に入り、1,300℃未満の繊維化温度、1,250℃以下の液相温度、及び正の ΔT 値（好ましくは、少なくとも 10℃）を有するガラス組成物を生成する一方で、少なくとも 94.5 GPa の音速繊維弾性率値を有するガラス繊維もまた、生成する。

40

## 【0068】

50

段落 1. ガラス組成物であって、50.0～58.0重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、18.0～23.0重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、18.0重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、少なくとも5.0重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2.0～4.0の比 $R1$  ( $R1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、1.0重量%超～2.0重量%の量の $\text{Li}_2\text{O}$ と、0.0～0.1重量%の量の $\text{Na}_2\text{O}$ と、0.0～0.2重量%の量の $\text{K}_2\text{O}$ と、0.0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含み、ガラス組成物が、3.1～3.75の比 $R2$  ( $R2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ ) を有し、ガラス組成物が、1,300℃未満の繊維化温度、1,250℃以下の液相温度、及び少なくとも10℃の $\Delta T$ を有し、ガラス組成物から形成されたガラス繊維が、少なくとも94.5 GPaの音速繊維弾性率を有する、ガラス組成物。

10

【0069】

段落 2. 組成物が、4.0～8.0重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、及び0.5～4.0重量%の $\text{La}_2\text{O}_3$ を含む、段落 1 に記載のガラス組成物。

【0070】

段落 3. 組成物が、17.0重量%以下の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ を含む、段落 1 又は 2 のいずれか 1 つに記載のガラス組成物。

【0071】

段落 4. 組成物が、18.3～21.5重量%の $\text{Al}_2\text{O}_3$ を含む、段落 1～3 のいずれか 1 つに記載のエネルギー効率の高い高性能ガラス組成物。

【0072】

20

段落 5. 組成物が、 $\text{B}_2\text{O}_3$ を本質的に含まない、段落 1～4 のいずれか 1 つに記載のガラス組成物。

【0073】

段落 6. 組成物が、1.25重量%～2.0重量%未満の $\text{Li}_2\text{O}$ を含む、段落 1～5 のいずれか 1 つに記載のガラス組成物。

【0074】

段落 7. 組成物が、1,270℃未満の繊維化温度を有する、段落 1～6 のいずれか 1 つに記載のガラス組成物。

【0075】

段落 8. 組成物が、1,250℃未満の繊維化温度を有する、段落 1～7 のいずれか 1 つに記載のガラス組成物。

30

【0076】

段落 9. 組成物が、2.5～3.0の比 $R3$  ( $R3 = \text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ ) を有する、段落 1～8 のいずれかに記載のガラス組成物。

【0077】

段落 10. 組成物が、2.8～3.1の比 $R1$ を有する、段落 1～9 のいずれかに記載のガラス組成物。

【0078】

段落 11. 組成物が、最大1.0重量%のフッ素を更に含む、段落 1～10 のいずれかに記載のガラス組成物。

40

【0079】

段落 12. ガラス組成物から形成されたガラス繊維であって、50.0～56.0重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、18.0～23.0重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、18.0重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、4.5～8.0重量%の量の $\text{Y}_2\text{O}_3$ と、0.5～4.0重量%の量の $\text{La}_2\text{O}_3$ と、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2.0～4.0の比 $R1$  ( $R1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、0.0～0.5重量%の量の $\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ と、0.0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含み、ガラス組成物が、3.1～3.75の比 $R2$  ( $R2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ ) を有し、ガラス繊維が、2.55 g/cc～2.8 g/ccの密度及び少なくとも94.5 GPaの音速繊維弾性率を有する、ガラス組成物から形成され

50

たガラス繊維。

【0080】

段落13．ガラス組成物が、18.5～21.5重量%の $\text{Al}_2\text{O}_3$ を含む、段落12に記載のガラス繊維。

【0081】

段落14．ガラス組成物が、2.5～3.0の比 $R_3$  ( $R_3 = \text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ )を含む、段落12～13のいずれか1つに記載のガラス繊維。

【0082】

段落15．組成物が、0.5～2.0重量%の $\text{Li}_2\text{O}$ を含む、段落12～14のいずれか1つに記載のガラス繊維。

【0083】

段落16．組成物が、7.0重量%超である、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ の総量を含む、段落12～15のいずれか1つに記載のガラス繊維。

【0084】

段落17．連続ガラス繊維を形成する方法であって、段落1～11のいずれか一項に記載の熔融組成物を提供するステップと、オリフィスを通して、熔融組成物を延伸して、連続ガラス繊維を形成するステップと、を含む、連続ガラス繊維を形成する方法。

【0085】

段落18．ポリマーマトリックスと、ガラス組成物から形成された複数のガラス繊維と、を含む、強化複合材料製品。ガラス組成物は、50.0～58.0重量%の量の $\text{SiO}_2$ と、18.0～23.0重量%の量の $\text{Al}_2\text{O}_3$ と、18.0重量%未満の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ と、少なくとも5.0重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ であって、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ が、2.0～4.0の比 ( $R_1 = \text{Y}_2\text{O}_3 / \text{La}_2\text{O}_3$ ) で存在している、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び $\text{La}_2\text{O}_3$ と、1.0重量%超～2.0重量%の量の $\text{Li}_2\text{O}$ と、0.0～0.1重量%の量の $\text{Na}_2\text{O}$ と、0.0～0.2重量%の量の $\text{K}_2\text{O}$ と、0.0～0.5重量%の量の $\text{TiO}_2$ と、を含み、ガラス組成物は、3.1～3.75の比 $R_2$  ( $R_2 = \text{SiO}_2 / (\text{MgO} + \text{CaO})$ ) を有し、ガラス組成物は、1,250℃以下の液相温度、及び10℃～60℃の $\Delta T$ を有し、ガラス組成物から形成されたガラス繊維は、少なくとも94.5 GPaの音速繊維弾性率を有する。

【0086】

段落19．強化複合材料製品が、風力タービンブレードの形態である、段落18に記載の強化複合材料製品。

【0087】

段落20．組成物が、4.0～8.0重量%の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 及び0.5～4.0重量%の $\text{La}_2\text{O}_3$ を含む、段落18又は19のいずれか1つに記載の強化複合材料製品。

【0088】

段落21．組成物が、17.0重量%以下の $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ を含む、段落18～20のいずれか1つに記載の強化複合材料製品。

【0089】

段落22．組成物が、18.3～21.5重量%の $\text{Al}_2\text{O}_3$ を含む、段落18～21のいずれか1つに記載の強化複合材料製品。

【0090】

段落23．組成物が、1.25重量%～2.0重量%未満の $\text{Li}_2\text{O}$ を含む、段落18～22のいずれか1つに記載の強化複合材料製品。

【0091】

段落24．組成物が、1,270℃未満の繊維化温度を有する、段落18～23のいずれか1つに記載の強化複合材料製品。

【0092】

段落25．組成物が、2.5～3.0の比 $R_3$  ( $R_3 = \text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ ) を有する、段落18～24のいずれか1つに記載の強化複合材料製品。

10

20

30

40

50

## 【0093】

段落26. 組成物が、2.8～3.1の比R1を有する、段落18～25のいずれか1つに記載の強化複合材料製品。

## 【0094】

段落27. ガラス組成物であって、50.0～58.0重量%の量のSiO<sub>2</sub>と、18.0～23.0重量%の量のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と、18.0重量%未満のCaO及びMgOと、少なくとも5.0重量%のY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>及びLa<sub>2</sub>O<sub>3</sub>であって、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>及びLa<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が、2.0～4.0の比( $R1 = Y_2O_3 / La_2O_3$ )で存在している、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>及びLa<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と、を含み、ガラス組成物が、1,200℃～1,300℃の繊維化温度及び少なくとも10℃のΔTを有し、ガラス組成物から形成されたガラス繊維が、少なくとも94.5GPaの音速繊維弾性率を有する、ガラス組成物。

10

## 【0095】

段落28. ガラス組成物が、3.1～3.75の比R2 ( $R2 = SiO_2 / (MgO + CaO)$ )を含む、段落27に記載のガラス組成物。

## 【0096】

段落29. ガラス組成物が、1,150℃～1,250℃の液相温度を有する、段落27又は段落28のいずれか1つに記載の高性能ガラス組成物。

## 【0097】

段落30. ガラス組成物が、1,210℃～1,260℃の繊維化温度を有する、段落27～29のいずれか1つに記載の高性能ガラス組成物。

20

## 【0098】

本出願の発明を、一般的な説明と特定の実施形態に関する説明との両方で、上述してきた。本発明を、好ましい実施形態であると考えられるものについて記載してきたが、当業者に周知の多種多様な代替形態が、一般的な開示内で選択され得る。本発明は、以下に記載される特許請求の範囲の詳説を除いて、他の点で限定されるものではない。

30

40

50

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/US2023/065833

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                                                                |                                                                  |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------|
| <b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b><br>INV. C03C3/095 C03C13/00<br>ADD.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| <b>B. FIELDS SEARCHED</b>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)<br>C03C                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)<br>EPO-Internal, INSPEC, WPI Data                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| <b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| Category*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                             | Relevant to claim No.                                            |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | WO 2022/006947 A1 (JUSHI GROUP CO LTD [CN]) 13 January 2022 (2022-01-13) paragraphs [0002], [0003], [0010], [0011], [0045], [0048], [0141], [0156]; example 19 | 1-30                                                             |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | US 2020/165158 A1 (KORWIN-EDSON MICHELLE L [US]) 28 May 2020 (2020-05-28) the whole document                                                                   | 1-30                                                             |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | US 2020/165159 A1 (KORWIN-EDSON MICHELLE L [US]) 28 May 2020 (2020-05-28) the whole document                                                                   | 1-30                                                             |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | EP 3 354 628 A1 (JUSHI GROUP CO LTD [CN]) 1 August 2018 (2018-08-01) the whole document                                                                        | 1-30                                                             |
| <input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| * Special categories of cited documents :<br>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date<br>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)<br>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed<br>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention<br>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone<br>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art<br>"&" document member of the same patent family |                                                                                                                                                                |                                                                  |
| Date of the actual completion of the international search<br>28 June 2023                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                                                | Date of mailing of the international search report<br>05/07/2023 |
| Name and mailing address of the ISA/<br>European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2<br>NL - 2280 HV Rijswijk<br>Tel. (+31-70) 340-2040,<br>Fax: (+31-70) 340-3016                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                                                                | Authorized officer<br>King, Ruth                                 |

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2023/065833

| Patent document<br>cited in search report | Publication<br>date | Patent family<br>member(s) | Publication<br>date |
|-------------------------------------------|---------------------|----------------------------|---------------------|
| <b>WO 2022006947 A1</b>                   | <b>13-01-2022</b>   | <b>CN 111807707 A</b>      | <b>23-10-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>TW 202202462 A</b>      | <b>16-01-2022</b>   |
|                                           |                     | <b>WO 2022006947 A1</b>    | <b>13-01-2022</b>   |
| <hr/>                                     |                     |                            |                     |
| <b>US 2020165158 A1</b>                   | <b>28-05-2020</b>   | <b>BR 112021010112 A2</b>  | <b>24-08-2021</b>   |
|                                           |                     | <b>CA 3117986 A1</b>       | <b>04-06-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>CN 111217531 A</b>      | <b>02-06-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>EP 3887328 A2</b>       | <b>06-10-2021</b>   |
|                                           |                     | <b>JP 2022507967 A</b>     | <b>18-01-2022</b>   |
|                                           |                     | <b>KR 20210096138 A</b>    | <b>04-08-2021</b>   |
|                                           |                     | <b>US 2020165158 A1</b>    | <b>28-05-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>WO 2020112396 A2</b>    | <b>04-06-2020</b>   |
| <hr/>                                     |                     |                            |                     |
| <b>US 2020165159 A1</b>                   | <b>28-05-2020</b>   | <b>BR 112021008894 A2</b>  | <b>10-08-2021</b>   |
|                                           |                     | <b>CA 3117892 A1</b>       | <b>04-06-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>CN 111217520 A</b>      | <b>02-06-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>EP 3887329 A1</b>       | <b>06-10-2021</b>   |
|                                           |                     | <b>JP 2022511737 A</b>     | <b>01-02-2022</b>   |
|                                           |                     | <b>KR 20210096140 A</b>    | <b>04-08-2021</b>   |
|                                           |                     | <b>US 2020165159 A1</b>    | <b>28-05-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>US 2022204391 A1</b>    | <b>30-06-2022</b>   |
|                                           |                     | <b>WO 2020112398 A1</b>    | <b>04-06-2020</b>   |
| <hr/>                                     |                     |                            |                     |
| <b>EP 3354628 A1</b>                      | <b>01-08-2018</b>   | <b>AU 2016405716 A1</b>    | <b>24-05-2018</b>   |
|                                           |                     | <b>BR 112018000203 A2</b>  | <b>04-09-2018</b>   |
|                                           |                     | <b>CA 2990296 A1</b>       | <b>09-11-2017</b>   |
|                                           |                     | <b>CN 106082639 A</b>      | <b>09-11-2016</b>   |
|                                           |                     | <b>DK 3354628 T3</b>       | <b>17-02-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>EP 3354628 A1</b>       | <b>01-08-2018</b>   |
|                                           |                     | <b>ES 2773984 T3</b>       | <b>16-07-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>HR P20200157 T1</b>     | <b>01-05-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>JP 6499329 B2</b>       | <b>10-04-2019</b>   |
|                                           |                     | <b>JP 2018518450 A</b>     | <b>12-07-2018</b>   |
|                                           |                     | <b>KR 20180011240 A</b>    | <b>31-01-2018</b>   |
|                                           |                     | <b>MA 41723 A1</b>         | <b>28-09-2018</b>   |
|                                           |                     | <b>PL 3354628 T3</b>       | <b>10-08-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>PT 3354628 T</b>        | <b>19-02-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>RU 2737097 C1</b>       | <b>24-11-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>RU 2017145115 A</b>     | <b>21-06-2019</b>   |
|                                           |                     | <b>SI 3354628 T1</b>       | <b>31-03-2020</b>   |
|                                           |                     | <b>US 2018186688 A1</b>    | <b>05-07-2018</b>   |
|                                           |                     | <b>WO 2017190405 A1</b>    | <b>09-11-2017</b>   |
|                                           |                     | <b>ZA 201708765 B</b>      | <b>26-06-2019</b>   |
| <hr/>                                     |                     |                            |                     |

## フロントページの続き

,MC,ME,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,  
ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,C  
O,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,I  
R,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MU,MW  
,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL  
,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

弁理士 松田 七重

(74)代理人 110002848

弁理士法人N I P & S B P J 国際特許事務所

(72)発明者 コルウィンーエドソン、ミシェル

アメリカ合衆国 4 3 0 2 3 オハイオ州 グランビル ブルー ストーン コート 1 0 9

F ターム (参考) 4G062 AA05 AA15 BB06 CC04 DA06 DB04 DC01 DD01 DE01 DF01

EA03 EB01 EB02 EC01 EC02 ED01 ED02 ED03 ED04 EE01 EE02

EE03 EE04 EF01 EG01 FA01 FA10 FB01 FB02 FC01 FC02 FD01

FE01 FF01 FG01 FH01 FJ01 FJ02 FJ03 FK01 FK02 FK03 FL01

GA01 GA10 GB01 GC01 GD01 GE01 HH01 HH03 HH05 HH07 HH09

HH11 HH12 HH13 HH15 HH17 HH20 JJ01 JJ03 JJ05 JJ07 JJ10

KK01 KK03 KK05 KK07 KK10 MM01 NN32 NN33