

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 7 部門第 2 区分

【発行日】平成 29 年 12 月 14 日 (2017.12.14)

【公表番号】特表 2016-538720 (P2016-538720A)

【公表日】平成 28 年 12 月 8 日 (2016.12.8)

【年通号数】公開・登録公報 2016-067

【出願番号】特願 2016-528227 (P2016-528227)

【国際特許分類】

H 0 1 F 1/24 (2006.01)

B 2 2 F 1/00 (2006.01)

B 2 2 F 3/00 (2006.01)

B 2 2 F 1/02 (2006.01)

C 2 2 C 38/00 (2006.01)

【F I】

H 0 1 F 1/24

B 2 2 F 1/00 Y

B 2 2 F 3/00 B

B 2 2 F 1/02 C

B 2 2 F 1/02 E

C 2 2 C 38/00 3 0 3 S

【手続補正書】

【提出日】平成 29 年 10 月 31 日 (2017.10.31)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

シリコン系コーティングでコーティングした軟磁性粉末であって、
前記シリコン系コーティングが、以下のフッ素含有組成物：

a) 式 (I)

$$S i_{1-0.25a} M 1_a O_{2-0.5b} F_b \quad (I)$$

(式中、

a は、0.015 ~ 0.52 の範囲であり、

b は、0.015 ~ 0.52 の範囲であり、

M 1 は、H、K、R b、C s、又は $N R^{1-4}$ であり、それぞれの R は、H、C₁₋₆ アルキル、フェニル、及びベンジルからなる群から独立して選択される)

のフッ素含有組成物、

b) 式 (II)

$$S i_{1-0.75c} M 2_c O_{2-0.5d} F_d \quad (II)$$

(式中、

c は、0.005 ~ 0.17 の範囲であり、

d は、0.015 ~ 0.52 の範囲であり、

M 2 は、B、又は A 1 である)

のフッ素含有組成物、

又は

c) 式 (III)



(式中、

e は、0.003 ~ 0.10 の範囲であり、

f は、0.015 ~ 0.52 の範囲である)

のフッ素含有組成物の少なくとも1種のフッ素含有組成物を含むことを特徴とする軟磁性粉末。

【請求項2】

M1 が H、Cs、又は NH₄ である式 (I) の少なくとも1種のフッ素含有組成物、及び M2 が B である式 (II) の少なくとも1種のフッ素含有組成物を含むことを特徴とする請求項1に記載の軟磁性粉末。

【請求項3】

前記シリコン系コーティングが、0.1 ~ 5 質量% の式 (I)、(II)、又は (III) の少なくとも1種のフッ素含有組成物を含むことを特徴とする請求項1又は2に記載の軟磁性粉末。

【請求項4】

前記フッ素含有組成物のフッ素成分が、SiO₂-マトリックス内に埋め込まれること、及び/又は SiO₂ コーティングの表面に結合されることを特徴とする請求項1 ~ 3 のいずれか1項に記載の軟磁性粉末。

【請求項5】

前記シリコン系コーティングが、2 ~ 100 nm の平均厚さを有することを特徴とする請求項1 ~ 4 のいずれか1項に記載の軟磁性粉末。

【請求項6】

軟磁性粉末の被覆方法であって、

コーティングが、以下のフッ素含有組成物：

a) 請求項1で定義される式 (I) のフッ素含有組成物

b) 請求項1で定義される式 (II) のフッ素含有組成物

c) 請求項1で定義される式 (III) のフッ素含有組成物

の少なくとも1種のフッ素含有組成物を含み、

前記軟磁性粉末を、可溶性フッ素化剤 (F) を含むシリコン系溶液と共に混合することを特徴とする被覆方法。

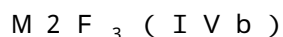
【請求項7】

前記軟磁性粉末を、シリコン系溶液と混合し、前記軟磁性粉末を、前記シリコン系溶液で少なくとも部分的に処理した後に、可溶性フッ素化剤 (F) を加えることを特徴とする請求項6に記載の被覆方法。

【請求項8】

前記少なくとも1種の可溶性フッ素化剤 (F) が、

(A) 式 (IVa)、又は (IVb) の塩

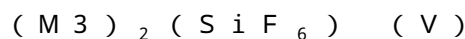


(式中、

M1 は、式 (I) で定義した通りであり、

M2 は、式 (II) で定義した通りである。)、

(B) 式 (V) の化合物

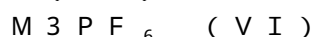


(式中、

M3 は、H、Na、K、Rb、Cs、又は NR¹₄ であり、

R¹ は、式 (I) で定義した通りである。)、

(C) 式 (VI) の化合物



(式中、M3 は、式 (V) で定義した通りである。)、

又は、

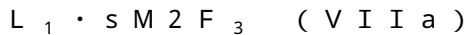
(D) ルイス酸 - ルイス塩基付加物

(ここで、ルイス酸は M_2F_3 であり、 M_2 は式 (II) で定義した通りである。) であることを特徴とする請求項 6 又は 7 に記載の被覆方法。

【請求項 9】

前記少なくとも 1 種のルイス酸 - ルイス塩基付加物が、

(D1) 式 (VIIa) の付加物



(式中、

M_2 は、式 (II) で定義した通りである、

L_1 は、 $R^2 - O - R^3$ 、又は $NR^4 R^5 R^6$ であり、

s は、0.5 ~ 1.0 の範囲の数であり、

R^2 、 R^3 は、互いに独立して、H、 $C_1 \sim 6$ アルキル (任意に、ハロゲン、又はヒドロキシで置換される)、 $C_3 \sim 8$ シクロアルキル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、フェニル (任意に、ハロゲン、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、及びベンジル (任意に、ハロゲン、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される) からなる群から選択され、

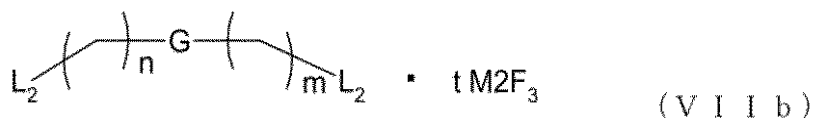
又は、 R^2 、 R^3 は、結合している酸素原子と共に 3 ~ 8 員環を形成し、

R^4 、 R^5 、 R^6 は、互いに独立して、H、 $C_1 \sim 6$ アルキル (任意に、ハロゲン、又はヒドロキシで置換される)、フェニル (任意に、ハロゲン、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、及びベンジル (任意に、ハロゲン、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される) からなる群から選択され、

又は、 R^4 、 R^5 、 R^6 のうちの 2 個は、結合している窒素原子と共に、3 ~ 8 員環を形成する)

(D2) 式 (VIIb) の付加物

【化 1】



(式中、

それぞれの M_2 は、独立して式 (II) で定義した通りであり、

t は、0.8 ~ 2 の範囲の数であり、

G は、単結合、又は、 $C_1 \sim 6$ アルキル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、 $C_2 \sim 6$ アルケニル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、 $C_3 \sim 8$ シクロアルキル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、 $C_4 \sim 8$ シクロアルキル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、及び $C_6 \sim 14$ アリール (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、又は $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ ア

ルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される) からなる群から選択される連結基であり、

m 及び n は、 G が単結合であるときに、 $m + n = 0$ であるという条件で、互いに独立して、0、1、2、3、又は4であり、

それぞれの L_2 は、独立して、 NR^7R^8 、及び OR^9 からなる群から選択され、

ここで、 R^7 、 R^8 は、互いに独立して、 H 、 $C_1 \sim 6$ アルキル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、フェニル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、及びベンジル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される) からなる群から選択され、

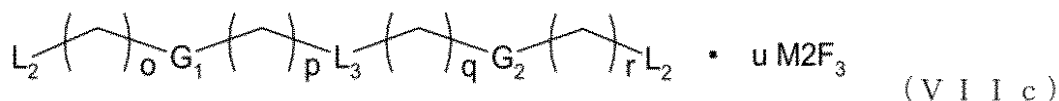
又は、 R^7 、 R^8 は、結合している窒素原子と共に、3～8員環を形成し、

R^9 は、 H 、 $C_1 \sim 6$ アルキル、フェニル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、及びベンジル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される) からなる群から選択される)

及び、

(D3) 式 (VIIc) の付加物

【化2】



(式中、

それぞれの M_2 は、独立して式 (II) として定義され、

それぞれの L_2 は、独立して式 (VIIb) として定義され、

u は、0.8～3.0の範囲の数であり、

G_1 、 G_2 は、互いに独立して、単結合、又は、 $C_1 \sim 6$ アルキル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、 $C_2 \sim 6$ アルケニル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、 $C_3 \sim 8$ シクロアルキル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、 $C_4 \sim 8$ シクロアルケニル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、及び $C_6 \sim 14$ アリール (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される) からなる群から選択される連結基であり、

L_3 は、 NR^{10} 又は O であり、

それぞれの R^{10} は、独立して H 、 $C_1 \sim 6$ アルキル、フェニル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$ アルケノキシで置換される)、ベンジル (任意に、ハロゲン、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ヒドロキシアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、又は $C_2 \sim 6$

アルケノキシで置換される) からなる群から選択され、

G 1 が単結合であるときに、 $o + p = 0$ であり、及び G 2 が単結合であるときに、 $q + r = 0$ であるという条件で、 o 、 p 、 q 、及び r は、互いに独立して 0、1、2、3、又は 4 である)

からなる群から選択されることを特徴とする請求項 6 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の被覆方法。

【請求項 10】

前記可溶性フッ素化剤 (F) が、 CsF 、 NH_4F 、 H_2SiF_6 、 $(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$ 、 BF_3 - イソホロンジアミン、 BF_3 - イソプロピルアミン、 BF_3 - エチルアミン、及び BF_3 - ベンジルアミンからなる群から選択されることを特徴とする請求項 6 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の被覆方法。

【請求項 11】

前記可溶性フッ素化剤を、前記シリコン系溶液を用いる処理をしている間、又は前記シリコン系溶液を用いる処理をした直後に加えることを特徴とする請求項 6 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の被覆方法。

【請求項 12】

0.05 ~ 3 mol % のフッ素を、前記可溶性フッ素化剤を介して前記シリコン系溶液に加えることを特徴とする請求項 6 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の被覆方法。

【請求項 13】

前記シリコン系溶液が、シリコンアルコキシドを含み、
前記シリコン系溶液が、反応混合物に 1 個 以上の工程で加えられることを特徴とする請求項 6 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の被覆方法。

【請求項 14】

請求項 1 ~ 5 に記載の前記軟磁性粉末、又は請求項 6 ~ 13 に記載の 前記被覆方法から得られる前記軟磁性粉末 を使用することを特徴とする電子部品の製造方法。

【請求項 15】

請求項 1 ~ 5 に記載の前記軟磁性粉末、又は請求項 6 ~ 13 に記載の被覆方法から得られる前記軟磁性粉末を含むことを特徴とする電子部品。