

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年9月30日(30.09.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/193166 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 59/24 (2006.01) C08K 3/013 (2018.01)
C08L 63/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/010217

(22) 国際出願日: 2021年3月12日(12.03.2021)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2020-053661 2020年3月25日(25.03.2020) JP

(71) 出願人: 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社(NIPPON STEEL CHEMICAL & MATERIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 関谷 勝則 (SEKIYA Katsunori);
〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番

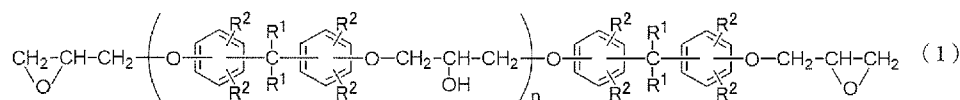
1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 切替 徳之(KIRIKAE Noriyuki); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP). 金光 伸悟(KANEMITSU Shingo); 〒1030027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 日鉄ケミカル & マテリアル株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 佐々木 一也, 外(SASAKI Kazuya et al.);
〒1030001 東京都中央区日本橋小伝馬町6番10号 丸森ビル7階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) Title: EPOXY RESIN COMPOSITION FOR CASTING, AND ELECTRICAL/ELECTRONIC COMPONENT

(54) 発明の名称: 注型用エポキシ樹脂組成物及び電気・電子部品



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide an epoxy resin composition for casting, which can yield a cured product having excellent resistance to thermal shock and which exhibits excellent impregnation properties in a coil or the like. This epoxy resin composition for casting contains an epoxy resin, an acid anhydride and an inorganic filler. The epoxy resin is a bisphenol type epoxy resin represented by general formula (1). The content of a product for which n=0 is 60-75% by area and the content of a product for which n=2 is 5-25% by area in gel permeation chromatography measurements. The average particle diameter (D50) of the inorganic filler is 0.2-50 μm. The content of the inorganic filler is 50-500 parts by mass relative to 100 parts by mass of the epoxy resin. In the formula, R¹ and R² each independently denote a hydrogen atom or a hydrocarbon group having 1-6 carbon atoms, and n is a number having an average value of 0.5-5.

(57) 要約: 耐熱衝撃性の優れた硬化物が得られ、かつ、コイル等への含浸性に優れた注型用エポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。エポキシ樹脂、酸無水物、及び無機物充填剤を含む注型用エポキシ樹脂組成物であって、エポキシ樹脂が下記一般式(1)で表されるビスフェノール型エポキシ樹脂であり、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定において、n=0体の含有量が60~75面積%であり、n=2体以上の含有量の合計が5~25面積%であり、無機充填材の平均粒径(D50)が0.2~50μmであり、エポキシ樹脂100質量部に対して、無機充填材が50~500質量部である注型用エポキシ樹脂組成物。式中、R¹及びR²はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1~6の炭化水素基であり、nは平均で0.5~5の数である。

KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称： 注型用エポキシ樹脂組成物及び電気・電子部品

技術分野

[0001] 本発明は、注型用エポキシ樹脂組成物及び電気・電子部品に関する。

背景技術

[0002] 従来から、エポキシ樹脂組成物の硬化物は優れた機械的特性、化学的特性、電気的特性が得られるため、エポキシ樹脂組成物は接着剤、塗料、注型材料としてコイル、コンデンサ等の電気部品や半導体素子等の電子部品の絶縁封止に広く使用されている。

[0003] エポキシ樹脂組成物を電気コイル等の注型用に用いる場合、含浸性（注型性）、絶縁性、機械的強度が優れたものが選定されており、近年、低コスト化、高機能化及び作業性の向上の要求が高まっている。

[0004] 高機能化、高信頼性という観点から、熱膨張率の低減及び機械的強度の向上が必要であり、シリカ等の無機充填材を配合することで機械的強度の向上が図られてきた（特許文献1）。しかし、無機充填材を配合することで、硬化時に無機充填材が沈降してしまい、エポキシ樹脂組成物の均一性が悪化し、硬化物の信頼性、特に耐熱衝撃性が低下する場合があった。

[0005] エポキシ樹脂組成物の無機充填材の沈降を抑制させる手法としては、沈降防止剤により、チキソトロピー性を付与する手法が有効である（特許文献2）。しかしながら、コイル等に注型した際に、チキソトロピー性の増加により、コイル等への含浸性が低下する場合があった。そのため、硬化物の信頼性、特に耐熱衝撃性が低下する場合があった。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2003-155394号公報

特許文献2：特開2018-12745号公報

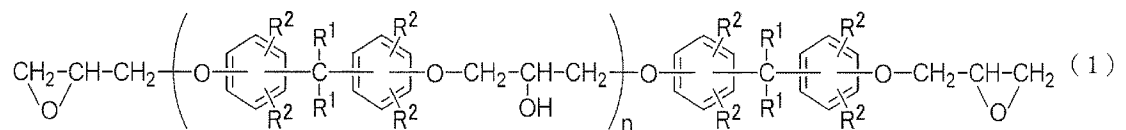
発明の概要

[0007] 本発明の目的は、耐熱衝撃性の優れた硬化物が得られ、かつ、コイル等の電気・電子部品への含浸性に優れた注型用エポキシ樹脂組成物を提供することにある。

[0008] 本発明者らは、上記の課題を解決するために鋭意研究を進めた結果、特定の構造及び分子量分布のエポキシ樹脂を使用して、無機充填材の平均粒度（D50）を特定範囲に限定し、エポキシ樹脂と無機充填材の配合割合を特定範囲にすることで、無機充填材の沈降が少なく、コイル等への含浸性に優れ、耐熱衝撃性の優れた硬化物が得られることを見出し、本発明を完成した。

[0009] すなわち、エポキシ樹脂、酸無水物、及び無機物充填剤を含む注型用エポキシ樹脂組成物であって、エポキシ樹脂が下記一般式（1）で表されるビスフェノール型エポキシ樹脂であり、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定において、 $n=0$ 体の含有量が60～75面積％であり、 $n=2$ 体以上の含有量の合計が5～25面積％であり、無機充填材の平均粒径（D50）が0.2～50 μm であり、エポキシ樹脂100質量部に対して、無機充填材が50～500質量部である注型用エポキシ樹脂組成物である。

[0010] [化1]



式中、 R^1 及び R^2 はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～6の炭化水素基であり、 n は繰り返し数で、平均で0.5～5の数である。

[0011] エポキシ樹脂の25℃における粘度は60000～100000 $\text{mPa}\cdot\text{s}$ が好ましく、エポキシ樹脂のエポキシ当量は180～250 $\text{g}/\text{eq.}$ が好ましい。

[0012] エポキシ樹脂はビスフェノールA型エポキシ樹脂とビスフェノールF型エポキシ樹脂の混合物であることが好ましい。

[0013] 酸無水物は液状が好ましく、その25℃における粘度は30～500 mP

a・sが好ましい。

[0014] また、本発明は、上記注型用エポキシ樹脂組成物が注型されてなることを特徴とする電気・電子部品である。

本発明による注型用エポキシ樹脂組成物は、硬化時の無機充填材の沈降が少なく、コイル等の電気・電子部品への含浸性が優れ、耐熱衝撃性の優れた硬化物を得られるエポキシ樹脂組成物を得ることができる。

発明を実施するための形態

[0015] 以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

まず、本発明の注型用エポキシ樹脂組成物について説明する。

本発明の注型用エポキシ樹脂組成物（「本発明の樹脂組成物」と称することがある）に用いられるエポキシ樹脂としては、上記一般式（1）で表されるビスフェノール型エポキシ樹脂が必須である。

[0016] 式（1）において、 R^1 及び R^2 はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～6の炭化水素基である。炭素数1～6の炭化水素基としては、炭素数1～6のアルキル基又はフェニル基である。炭素数1～6のアルキル基としては、直鎖状、分岐状、環状のいずれでもかまわず、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、ネオペンチル基、*s*-ペンチル基、*t*-ペンチル基、シクロペンチル基、メチルシクロペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基等が挙げられるが、これらに限定されない。 R^1 及び R^2 としては、入手の容易性及び硬化物とするときの反応性の観点から、水素原子、メチル基、フェニル基が好ましく、水素原子、メチル基がより好ましい。

[0017] 上記エポキシ樹脂の $n=0$ 体の含有量は、60～75面積%であり、62～72面積%が好ましく、65～70面積%がより好ましい。また、 $n=2$ 体以上の含有量の合計は、5～25面積%であり、8～20面積%がより好ましく、10～16面積%がより好ましい。なお、 $n=1$ 体の含有量は、残部なので、 $n=0$ 体の含有量、 $n=2$ 体以上の含有量から計算で求められる。上記の分子量分布を有するビスフェノール型エポキシ樹脂であれば使用可

能であり、その製造方法は特定されないが、低分子ビスフェノール型エポキシ樹脂と中分子ビスフェノール型エポキシ樹脂を混合する方法が分子量分布を管理しやすく好ましい。例えば、低分子ビスフェノール型エポキシ樹脂として $n = 0$ 体の含有量が 65 面積%以上のもの、中分子ビスフェノール型エポキシ樹脂として $n = 2$ 体以上の含有量合計が 70 面積%以上のものを選択し、これらを所望の配合量で混合することにより、本発明の一般式 (1) で表されるビスフェノール型エポキシ樹脂であって特定の分子量分布を持つものに調整するとよい。この場合、低分子ビスフェノール型エポキシ樹脂を、好ましくは 60 質量%以上、より好ましくは 70 質量%以上配合するとよい。

$n = 0$ 体の含有量を上記範囲にすることで、エポキシ樹脂が比較的 low 粘度になるため、粘度を低下させるための希釈剤や低粘度液状エポキシ樹脂を多量に配合する必要がなく、コイル等の電気・電子部品への含浸性に優る樹脂組成物が得られる。更に、無機充填剤を十分に配合できるため、耐熱衝撃性に優れた硬化物が得られる。また、 $n = 2$ 体以上の含有量の合計を上記範囲にすることで、機械物性（曲げ強度保持率や高い伸び率）の優れた硬化物が得られる。

[0018] 上記式 (1) で表されるビスフェノール型エポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂、ビスフェノール AD 型エポキシ樹脂、ビスフェノールアセトフェノン型エポキシ樹脂、ビスフェノール C 型エポキシ樹脂、テトラメチルビスフェノール A 型エポキシ樹脂、テトラメチルビスフェノール F 型エポキシ樹脂が挙げられる。これらのエポキシ樹脂は単独でも、2 種以上を混合して使用してもよい。低分子ビスフェノール型エポキシ樹脂と中分子ビスフェノール型エポキシ樹脂を混合することによって、上記の好ましい分子量分布のエポキシ樹脂にすることもできる。中でも、低分子ビスフェノール型エポキシ樹脂として、ビスフェノール A 型又は F 型液状エポキシ樹脂を選び、中分子ビスフェノール型エポキシ樹脂として、ビスフェノール F 型又は A 型固形エポキシ樹脂を選び、これらを混合して使用することが好ましい。

- [0019] 上記エポキシ樹脂の25℃における粘度は、特に限定されるものではないが、60000～100000 mPa・sが好ましく、65000～80000 mPa・sがより好ましい。この範囲であれば、注型用エポキシ樹脂の硬化時の無機充填材の沈降を抑制することが容易になり、流動性の低下により作業性を低下させることなく、良好なコイル等への含浸性を得ることができる。
- [0020] エポキシ樹脂のエポキシ当量は、180～250 g/eq. が好ましく、185～225 g/eq. がより好ましい。この範囲であれば、耐熱衝撃性の優れた硬化物を得ることができる。
- [0021] エポキシ樹脂の配合量としては、特に限定されるものではないが、作業性、硬化性、コイル等への含浸性等の観点から、注型用エポキシ樹脂組成物中に、5～40質量%が好ましく、10～30質量%がより好ましい。
- [0022] 本発明に用いられる酸無水物系硬化剤としては、分子中に酸無水物基を有するものであれば特に限定されずに使用可能だが、常温で液状の酸無水物系硬化剤が好ましく、その25℃における粘度は、30～500 mPa・sが好ましく、40～200 mPa・sがより好ましい。このような液状の酸無水物系硬化剤としては、例えば、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、メチルヘキサヒドロ無水フタル酸、無水メチルナジック酸、ドデセニル無水コハク酸、無水メチルハイミック酸及びこれらの誘導体等が挙げられる。また、常温で固形の酸無水物系硬化剤の場合は、液状の酸無水物系硬化剤と混合使用又は共融混合物として使用することが好ましい。このような固形の酸無水物系硬化剤としては、例えば、テトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸、無水ナジック酸、無水ポリアゼライン酸、トリメリット酸誘導体を含む酸無水物、ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物や無水ピロメリット酸等及びこれらの誘導体等が挙げられる。これらの酸無水物系硬化剤は、単独又は2種以上混合して使用することができる。また、酸無水物系硬化剤の酸無水物当量は、150～400 g/eq. が好ましく、170～300 g/eq. がより好ましい。

[0023] 硬化剤の配合量としては、特に限定されるものではないが、作業性、硬化性、コイル等への含浸性等の観点から、注型用エポキシ樹脂組成物中に、5～40質量%が好ましく、10～30質量%がより好ましい。また、エポキシ樹脂と硬化剤の配合割合は、当量比で全エポキシ樹脂／全硬化剤＝1／0.7～1.2が好ましく、1／0.8～1.1がより好ましい。上記範囲内とすることで、注型用エポキシ樹脂組成物を硬化させた際、優れた機械的特性及び電気特性を得ることができる。

[0024] 本発明に用いられる無機充填材としては、特に限定されるものではないが、例えば、シリカ、アルミナ、炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム、タルク、マイカ等が挙げられ、これらを単独又は2種以上混合して使用できる。市販品を例示すると、カルファイン200M（軽質炭酸カルシウム、丸尾カルシウム社製）、C-301N（水酸化アルミニウム、住友化学社製）、ヒューズレックスRY（溶融シリカ、龍森社製）、LS-210B（アルミナ、日本軽金属社製）、シナノランダムGP（炭化ケイ素、信越電気製錬社製）、デンカボロンナイトライドHGP（窒化ホウ素、デンカ社製）、トーヤルテックフィラーTFZ-NO5P（窒化アルミニウム、東洋アルミ社製）等が挙げられる。これらの無機充填剤のうち、硬化物の熱伝導率向上の点では、シリカ、アルミナ、炭化ケイ素、窒化ホウ素、窒化アルミニウムが好ましく、シリカ、アルミナがより好ましい。また、樹脂への混練が容易で粘度が上昇し難いという点では、炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム、溶融シリカ、アルミナが好ましく、水酸化アルミニウム、シリカ、アルミナがより好ましい。なお、市場での物流量が多いことから製品品質が安定しているという観点では、炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム、シリカ、アルミナが好ましく、水酸化アルミニウム、溶融シリカ、アルミナがより好ましい。また、シリカとしては、高純度の石英を高温で完全に溶融して石英ガラス化した溶融シリカが更に好ましい。

[0025] 本発明に用いられる無機充填材の粒子形状は、不定形でも球状でもよく、樹脂組成物の粘度や無機充填材の沈降等を考慮して、粗い粒子から微粒子ま

でを組み合わせで配合してもよいし、単一粒径だけを用いてもよい。レーザー回折式粒度分布装置で測定した平均粒径（D50）は0.2～50 μm であり、0.5～40 μm が好ましく、1～30 μm がより好ましい。平均粒径（D50）が0.2 μm 未満では、エポキシ樹脂組成物を作る際に分散速度が著しく低下する恐れがある。また平均粒径（D50）が50 μm を越えると、エポキシ樹脂組成物において一部沈降現象が起こり均質な樹脂組成物が得られない恐れがある。また、特に限定されないが、D98は200 μm 以下が好ましく、100 μm 以下がより好ましい。好ましい粒度分布の無機充填材を使用することで、注型用エポキシ樹脂組成物の硬化時の無機充填材の沈降を抑制することが容易になり、コイル等の電気・電子部品への含浸性が低下しない。

[0026] 本発明に用いられる無機充填材の配合量は、エポキシ樹脂100質量部に対して、無機充填材が50～500質量部であり、250～450質量部が好ましく、300～425質量部が好ましい。上記範囲の下限值以上とすることで、注型用エポキシ樹脂組成物を硬化させた際、優れた機械的特性（特に耐熱衝撃性）及び電気特性を得ることができる。また、上記範囲の上限値以下とすることで、流動性の低下により作業性を低下させることなく、良好なコイル等への含浸性を得ることができる。

[0027] また、本発明の樹脂組成物には、無機充填剤を均一に分散させるために、分散剤を配合することが好ましい。分散剤としては、無機充填剤吸着基と樹脂親和基を有するものであれば特に制限なく広く使用することができる。例えば、アニオン性化合物、カチオン性化合物、非イオン性化合物、高分子化合物が挙げられ、これらを単独又は2種以上混合して使用できる。これらの中では、非イオン性化合物、高分子化合物が好ましく、高分子化合物がより好ましく、ポリカルボン酸系高分子化合物が更に好ましい。ポリカルボン酸系高分子化合物としては、 α -オレフィン／無水マレイン酸共重合物の部分エステル化物が挙げられる。市販品を例示すると、フローレンG-700、フローレンGW-1500（以上、共栄社化学製）が挙げられる。分散剤の

配合量は、無機充填剤の沈降性と硬化物性とのバランスの観点から、樹脂組成物中で、0.1～10質量%が好ましく、0.3～5.0質量%がより好ましく、0.5～3.0質量%が更に好ましい。

[0028] 更に、本発明の樹脂組成物には、以上の成分の他、必要に応じて硬化促進剤を配合してもよい。硬化促進剤の添加量としては、通常、エポキシ樹脂100重量部に対して、0.2～10重量部の範囲である。硬化促進剤としては、エポキシ樹脂と硬化剤との反応を促進する作用を有するものであれば、特に限定されるものではなく、例えば、イミダゾール化合物、3級アミン類、ジアザビシクロアルケン及びその誘導体、ホスフィン類等が挙げられ、これらを単独又は2種以上を混合して使用することができる。

[0029] イミダゾール化合物としては、例えば、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-ヒドロキシメチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール等が挙げられる。

3級アミン類としては、例えば、トリエチルアミン、トリエチレンジアミン、ベンジルジメチルアミン、 α -メチルベンジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、2-(ジメチルアミノメチル)フェノール、トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール等が挙げられる。

ジアザビシクロアルケン及びその誘導体としては、例えば、1,8-ジアザビシクロ[5,4,0]ウンデセン-7(DBU)、1,5-ジアザビシクロ[4,3,0]ノネン-5等が挙げられる。

ホスフィン類としては、例えば、トリエチルホスフィン、トリフェニルホスフィン、ジフェニルホスフィン等が挙げられる。

[0030] 更に、本発明の樹脂組成物には、発明を阻害しない範囲で必要に応じて、カップリング剤、カーボンブラックや合成染料等の着色剤、消泡剤、レベリ

ング剤、難燃剤等を配合することができる。

[0031] 次に、本発明の注型用エポキシ樹脂組成物の製造方法について詳細に説明する。本発明の注型用エポキシ樹脂組成物は、主剤成分と硬化剤成分からなる注型用エポキシ樹脂組成物を混合及び／又は混練して得ることができる。より具体的には、例えば、主剤成分は、ビスフェノール型エポキシ樹脂に、無機充填材の一部、及び必要に応じて配合される各種成分を混合して製造することができる。また、硬化剤成分は、酸無水物に、無機充填材の残分、硬化促進剤、及び必要に応じて配合される各種成分を混合して製造することができる。次いで、主剤成分と硬化剤成分とを、ミキサー等の混合機、及び／又はニーダ、ロール等の混練機を用いて、混合及び／又は混練することにより注型用エポキシ樹脂組成物を得ることができる。本発明の樹脂組成物は、全成分を混合して保存する一液タイプ、又は主剤成分と硬化剤成分を各保存し注型に際して混合する二液タイプのいずれでも適用できる。

[0032] このようにして得られた注型用エポキシ樹脂組成物は、電気コイル等の電気・電子部品の注型及び絶縁封止に用いることで、優れた信頼性を与えることができる。

[0033] 次に、本発明の電気・電子装置について詳細に説明する。本発明の電気・電子部品装置は、電気コイル等・コンデンサー等の電気・電子部品に本発明の注型用エポキシ樹脂組成物を注型し、硬化させて得ることができ、注型時及び／又は注型前後に注型用エポキシ樹脂組成物を真空脱泡することが好ましい。真空脱泡をすることで、注型用エポキシ樹脂組成物に含まれた空気等を除き、エポキシ樹脂組成物の硬化物中にボイドの少ない電気・電子部品を得ることができる。

本発明のエポキシ樹脂組成物を用いて注型する場合、加熱が行われ、硬化させる。この場合、成形硬化条件は、例えば80～100℃で4～8時間加熱硬化した後、更に110～150℃で5～10時間の後硬化である。

実施例

[0034] 以下、実施例及び比較例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明は

これらに限定されるものではない。特に断りがない限り「部」は質量部を表し、「%」は質量%を表し、「ppm」は質量ppmを表す。分方法及び測定方法を以下に示す。また、各種当量の単位は全て「g／eq.」である。

[0035] (1) エポキシ当量：

JIS K 7236規格に準拠して測定を行った。

[0036] (2) 粘度：

JIS K 7233規格、4.2単一円筒回転粘度計法に準拠して測定を行った。具体的には、ブルックフィールド型粘度計を用い、25℃での測定を行った。単位はmPa・sである。

[0037] (3) エポキシ樹脂のn=0体含有量、n=2体以上の合計含有量：

GPC測定により求めた。単位は面積%である。GPC測定条件を次に示す。

(GPC測定条件)

装置：GPC-8220システム（東ソー社製）

カラム：TSK-GEL（東ソー社製）

G2000H_{XL}×2本+G1000H_{XL}

温度：40℃

溶離液：テトラヒドロフラン

流量：1.0mL／分

検出器：RI

試料濃度：0.1g／10mL（テトラヒドロフラン）

試料注入量：25μL

[0038] (4) ガラス転移温度（T_g）：

JIS K 7121規格、転移温度測定方法に基づき、示差走査熱量計（DSC）を用いて、昇温速度10℃／分の条件で測定した。

[0039] (5) 耐熱衝撃性：

JIS C 2105規格、6.5.6.0A耐クラック性試験に従い、試験片を各7個作製し、表1に示す温度サイクル条件で冷熱サイクル性試験

を行った。試験片のクラック性の評価判定は6. 5. 6. 0 Aに従って行い、試験片7個中に2個以上クラックが入ったサイクル数を測定し、次の3段階評価法によって評価した。

○：11サイクル以上、△：7～10サイクル、×：6サイクル以下

[0040] [表1]

サイクル数	温度サイクル条件			
	低温保持		高温保持	
	温度 (°C)	時間 (分)	温度 (°C)	時間 (分)
1	-10	30	100	30
2	-20	30	100	30
3	-30	30	100	30
4	-35	30	100	30
5	-40	30	100	30
6	-45	30	100	30
7	-50	30	100	30
8	-55	30	100	30
9	-60	30	100	30
10	-60	30	110	30
11	-60	30	115	30
12	-60	30	120	30

[0041] (6) 電気特性 (絶縁性) :

JIS K 6911規格に従い、120°Cにおける硬化物の体積固有抵抗値を測定し、次の2段階評価法にて、評価した。

○：120°Cの体積固有抵抗値が、 $10^{13} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上

×：120°Cの体積固有抵抗値が、 $10^{13} \Omega \cdot \text{cm}$ 未満

[0042] (7) 注型性 :

注型用エポキシ樹脂組成物150gを、70°Cで加熱した後、直ちに、90°Cに予熱してある金型 (隙間4mm、寸法160mm×180mm) に、常圧下で垂直方向より流し入れ、金型内への注型が完了するまでの時間 (分) を測定した。なお、全く注入できなかった場合は「x」とした。

[0043] 実施例及び比較例で使用了略号の説明は以下のとおりである。

[エポキシ樹脂]

R 1 ～ R 7、R H 1 ～ R H 4 : 合成例 1 ～ 7、比較合成例 1 ～ 4 で得られたエポキシ樹脂

A 1 : ビスフェノール A 型液状エポキシ樹脂 (日鉄ケミカル & マテリアル社製、エポトート Y D - 1 2 8、エポキシ当量 1 8 7、 $n = 0$ 体含有量 8 0 面積%、 $n = 2$ 体以上の合計含有量 2 面積%)

A 2 : ビスフェノール F 型液状エポキシ樹脂 (日鉄ケミカル & マテリアル社製、エポトート Y D F - 1 7 0、エポキシ当量 1 6 7 g / e q、 $n = 0$ 体含有量 7 0 面積%、 $n = 2$ 体以上の合計含有量 0. 2 面積%)

A 3 : テトラメチルビスフェノール F 型結晶性エポキシ樹脂 (日鉄ケミカル & マテリアル社製、エポトート Y S L V - 8 0 X Y、エポキシ当量 1 8 7、 $n = 0$ 体含有量 9 2 面積%、 $n = 2$ 体以上の合計含有量 0. 3 面積%、融点 8 0 °C)

A 4 : ビスフェノール F 型固形エポキシ樹脂 (日鉄ケミカル & マテリアル社製、エポトート Y D F - 2 0 0 1、エポキシ当量 4 8 5、 $n = 0$ 体含有量 1 0 面積%、 $n = 2$ 体以上の合計含有量 7 5 面積%)

A 5 : ビスフェノール F 型固形エポキシ樹脂 (日鉄ケミカル & マテリアル社製、エポトート Y D F - 2 0 0 4、エポキシ当量 9 5 0、 $n = 0$ 体含有量 4 面積%、 $n = 2$ 体以上の合計含有量 9 0 面積%)

A 6 : ビスフェノール A 型固形エポキシ樹脂 (日鉄ケミカル & マテリアル社製、エポトート Y D - 0 1 2、エポキシ当量 6 2 0、 $n = 0$ 体含有量 5 面積%、 $n = 2$ 体以上の合計含有量 8 5 面積%)

[0044] [硬化剤]

B 1 : 3 又は 4 - メチル - 1, 2, 3, 6 - テトラヒドロ無水フタル酸 (日立化成社製、H N - 2 2 0 0 R、2 5 °C における粘度 = 7 0 m P a · s)

[0045] [無機充填剤]

C 1 : 水酸化アルミニウム (住友化学社製、C - 3 0 1 N、B E T 比表面積 = 4. 0 m² / g、D 5 0 = 1. 5 μ m、D 9 8 = 6 4 μ m)

C 2 : 溶融シリカ (龍森社製、ヒューズレックス S Y、D 5 0 = 2 0 μ m、

D 9 8 = 9 6 μ m)

C 3 : 溶融シリカ (龍森社製、ヒューズレックス R D - 2 0、D 5 0 = 7 μ m、D 9 8 = 3 2 μ m)

[0046] [硬化促進剤]

D 1 : 1 - ベンジル - 2 - メチルイミダゾール (四国化成工業社製、キュアゾール 1 B 2 M Z)

[0047] [その他添加剤]

E 1 : 分散剤 (共栄社化学社製、フローレン G - 7 0 0、重量平均分子量 2, 7 0 0、酸価 6 0 m g K O H / g)

E 2 : 消泡剤 (モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製、T S A 7 2 0)

E 3 : 湿潤分散剤 (ビックケミー社製、B Y K - 1 1 0)

E 4 : シランカップリング剤 (モメンティブ・パフォーマンス・マテリアルズ・ジャパン社製、T S L - 8 3 5 0)

E 5 : 着色剤 (三菱ケミカル社製、M A - 8)

[0048] 合成例 1

攪拌機及び窒素導入管を備えた反応容器に、A 1 を 8 5 部、A 4 を 1 8 部、室温にて仕込み、窒素を導入しながら、1 0 0 °C まで昇温して均一混合して、エポキシ樹脂 (R 1) を得た。

[0049] 合成例 2 ~ 6 及び比較合成例 1 ~ 4

表 2 に示す各原料の仕込み量 (部) に従い、実施例 1 と同様操作を行い、エポキシ樹脂 (R 2 ~ R 6)、(R H 1 ~ R H 4) を得た。

[0050] 合成例 7

攪拌装置、温度計、及び窒素ガス導入装置を備えた反応容器に、室温下で、A 1 を 1 5 9 部、ビスフェノール F (日鉄ケミカル & マテリアル社製) を 4 1 部仕込み、窒素ガスを流し攪拌しながら 1 3 0 °C まで昇温し、n - ブチルトリフェニルホスホニウムブロミドを 0. 2 部添加した後、1 6 0 °C まで昇温し、同温度で 2 時間反応を行った。その後、A 1 を 8 0 0 部仕込み、更

に 160℃で2時間反応を行い、エポキシ樹脂（R7）を得た。

[0051] [表2]

	合成例							比較合成例			
	1	2	3	4	5	6	7	1	2	3	4
A 1	85	75	85	80	80			96	65		
A 2					10	88				75	75
A 3				10							
A 4	15	25			10				35	25	
A 5			15	10				4			
A 6						12					25
エポキシ樹脂	R1	R2	R3	R4	R5	R6	R7	RH1	RH2	RH3	RH4
エポキシ当量 (g/eq.)	206	221	213	203	197	183	212	193	238	200	204
粘度 (mPa・s)	70000	98000	80000	75000	61000	60000	80000	50000	150000	70000	110000
n=0 体含有量 (面積%)	68.6	62.5	68.6	73.6	72.0	62.2	67.0	77.0	55.5	55.0	53.8
n=2 体以上含有量 (面積%)	13.0	20.3	15.2	10.6	9.1	12.0	16.0	5.5	27.6	18.9	21.4

[0052] 実施例 1

合成例 1 で得られたエポキシ樹脂 (R 1) を 1 0 0 部、B 1 を 8 0 部、C 1 を 1 2 部、C 2 を 2 2 部、C 3 を 2 3 0 部、D 1 を 0. 5 部、E 1 を 6 部、E 2 を 0. 2 部、E 3 を 1. 9 部、E 4 を 0. 5 部、E 5 を 1 部、常温で 1 時間真空混練して注型用エポキシ樹脂組成物を得た。

[0053] 得られた注型用エポキシ樹脂組成物を、8 0℃／6 時間＋1 3 0℃／1 0 時間の条件で硬化させて硬化物を得た。

[0054] 実施例 2 ～ 7 及び比較例 1 ～ 4

表 3 に示す各原料の仕込み量 (部) に従い、実施例 1 と同様操作を行い、注型用エポキシ樹脂組成物、及び硬化物を得た。なお、C 1、C 2、C 3、D 1、E 1、E 2、E 3、E 4、E 5 の配合量は、実施例 1 と同じである。

[0055] 実施例 1 ～ 7 及び比較例 1 ～ 4 で得られた注型用エポキシ樹脂組成物を用いて測定した注型性、硬化物を用いて測定した T g、耐熱衝撃性、及び絶縁性をそれぞれ表 3 に示す。

[0056]

[0057] 表3から、本発明の注形用エポキシ樹脂組成物は、含浸性（注型性）に優れ、耐熱衝撃性の優れた硬化物が得られることが確認された。

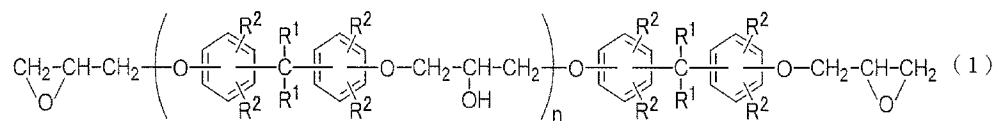
産業上の利用可能性

[0058] 本発明の注型用エポキシ樹脂組成物は、電気・電子部品の注型及び絶縁封止に用いることで、優れた信頼性を与えることができ、例えば、小型モーターや自動車用のイグニッションコイル等の製造に有用である。

請求の範囲

[請求項1] エポキシ樹脂、酸無水物、及び無機物充填剤を含む注型用エポキシ樹脂組成物であって、エポキシ樹脂が下記一般式（１）で表されるビスフェノール型エポキシ樹脂であり、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定において、 $n = 0$ 体の含有量が60～75面積％であり、 $n = 2$ 体以上の含有量の合計が5～25面積％であり、無機充填材の平均粒径（ D_{50} ）が0.2～50 μm であり、エポキシ樹脂100質量部に対して、無機充填材が50～500質量部である注型用エポキシ樹脂組成物。

[化1]



式中、 R^1 及び R^2 はそれぞれ独立に、水素原子又は炭素数1～6の炭化水素基であり、 n は繰返し数で、平均で0.5～5の数である。

[請求項2] エポキシ樹脂の25℃における粘度が60000～100000 mPa・sである請求項1に記載の注型用エポキシ樹脂組成物。

[請求項3] エポキシ樹脂のエポキシ当量が180～250 g/eq.である請求項1に記載の注型用エポキシ樹脂組成物。

[請求項4] エポキシ樹脂がビスフェノールA型エポキシ樹脂とビスフェノールF型エポキシ樹脂の混合物である請求項1に記載の注型用エポキシ樹脂組成物。

[請求項5] 酸無水物が液状であり、その25℃における粘度が30～500 mPa・sである請求項1に記載の注型用エポキシ樹脂組成物。

[請求項6] 請求項1に記載の注型用エポキシ樹脂組成物が注型されてなることを特徴とする電気・電子部品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/010217

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C08G59/24 (2006.01) i, C08L63/02 (2006.01) i, C08K3/013 (2018.01) i
FI: C08G59/24, C08L63/02, C08K3/013

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. C08G59/24, C08L63/02, C08K3/013

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2021

Registered utility model specifications of Japan 1996-2021

Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 9-268222 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.) 14 October	1-6
Y	1997, claims 1, 2, paragraph [0011], examples 1-5	5
X	JP 2015-63629 A (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 09	1-6
Y	April 2015, claim 1, 11, 12, example 2, comparative example 2, table 1	5
X	JP 5-238799 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 17	1-3, 5
Y	September 1993, claims 1, 2, example 2, comparative example 11, table 1	5
X	JP 2007-197647 A (SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES,	1-4, 6
Y	LTD.) 09 August 2007, claim 1, paragraphs [0001], [0010], [0045], [0047], example 17, table 5	5



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27.04.2021

Date of mailing of the international search report
11.05.2021

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2021/010217

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 9-268222 A	14.10.1997	(Family: none)	
JP 2015-63629 A	09.04.2015	(Family: none)	
JP 5-238799 A	17.09.1993	(Family: none)	
JP 2007-197647 A	09.08.2007	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/24(2006.01)i; C08L 63/02(2006.01)i; C08K 3/013(2018.01)i FI: C08G59/24; C08L63/02; C08K3/013														
B. 調査を行った分野														
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08G59/24; C08L63/02; C08K3/013														
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの														
<table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2021年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年													
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）														
C. 関連すると認められる文献														
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号												
X	JP 9-268222 A（日本化薬株式会社）14.10.1997（1997 - 10 - 14） 請求項1, 2, [0011], 実施例1-5	1-6												
Y		5												
X	JP 2015-63629 A（住友ベークライト株式会社）09.04.2015（2015 - 04 - 09） 請求項1, 11, 12, 実施例2, 比較例2, 表1	1-6												
Y		5												
X	JP 5-238799 A（日立化成工業株式会社）17.09.1993（1993 - 09 - 17） 請求項1, 2, 実施例2, 比較例11, 表1	1-3, 5												
Y		5												
X	JP 2007-197647 A（住友電気工業株式会社）09.08.2007（2007 - 08 - 09） 請求項1, [0001], [0010], [0045], [0047], 実施例17, 表5	1-4, 6												
Y		5												
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</td> <td>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献	“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	
* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの													
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの													
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献														
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献														
国際調査を完了した日 27.04.2021	国際調査報告の発送日 11.05.2021													
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 今井 督 4J 5812 電話番号 03-3581-1101 内線 3457													

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/010217

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	9-268222	A	14.10.1997	(ファミリーなし)	
JP	2015-63629	A	09.04.2015	(ファミリーなし)	
JP	5-238799	A	17.09.1993	(ファミリーなし)	
JP	2007-197647	A	09.08.2007	(ファミリーなし)	