

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-290190

(P2005-290190A)

(43) 公開日 平成17年10月20日(2005.10.20)

(51) Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C O 8 L 63/00	C O 8 L 63/00	A 4 J O O 2
C O 8 G 59/32	C O 8 G 59/32	4 J O 3 6
C O 8 L 79/00	C O 8 L 79/00	Z
H O 1 F 5/06	H O 1 F 5/06	Q

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 17 頁)

(21) 出願番号	特願2004-106809 (P2004-106809)	(71) 出願人	000003067
(22) 出願日	平成16年3月31日 (2004.3.31)		T D K株式会社
			東京都中央区日本橋 1 丁目 1 3 番 1 号
		(74) 代理人	100088155
			弁理士 長谷川 芳樹
		(74) 代理人	100092657
			弁理士 寺崎 史朗
		(74) 代理人	100108213
			弁理士 阿部 豊隆
		(74) 代理人	100127247
			弁理士 赤堀 龍吾
		(72) 発明者	関 淳一
			東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T
			D K 株式会社内
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物、コイル体及びインダクタ

(57) 【要約】

【課題】 エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相溶性に優れるエポキシ樹脂組成物を提供すること。

【解決手段】 ウレタン変性エポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

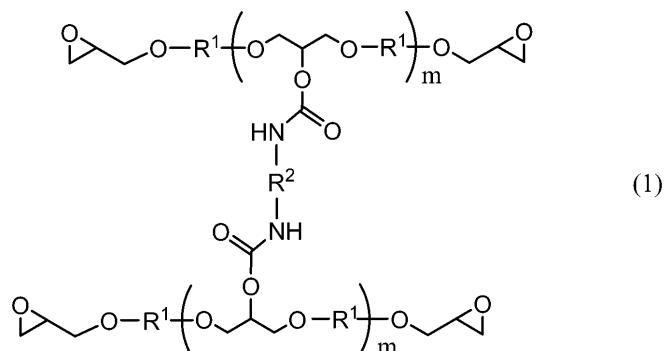
【請求項 1】

ウレタン変性エポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂を含有することを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項 2】

前記ウレタン変性エポキシ樹脂が下記一般式(1)で表される樹脂を含有することを特徴とする請求項 1 記載のエポキシ樹脂組成物。

【化 1】



10

[式中、 R^1 及び R^2 は 2 価の有機基を示し、 m は正の数を示す。]

20

【請求項 3】

ウレタン変性エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を更に含有することを特徴とする請求項 1 又は 2 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】

当該エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂の全質量に対して、前記ウレタン変性エポキシ樹脂を 20 質量%以上含有することを特徴とする請求項 3 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 5】

当該エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂 100 質量部に対して、前記カルボジイミド樹脂を 30 ~ 70 質量部含有することを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載のエポキシ樹脂組成物。

30

【請求項 6】

磁性材料からなる本体コアと、該本体コアに捲回された巻線と、を備えるコイル体の少なくとも一部が、加水分解性基を有する熱硬化性樹脂と、多孔質フィラ-と、を含有する樹脂組成物からなる硬化物で被覆されていることを特徴とするコイル体。

【請求項 7】

磁性材料からなる有底筒体と、
該有底筒体内に収容されたコイル体と、
磁性材料からなる蓋体と、
ウレタン変性エポキシ樹脂と、カルボジイミド樹脂と、を含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物と、
を備え、

40

前記有底筒体及び前記蓋体が、前記硬化物で接着されていることを特徴とするインダクタ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、エポキシ樹脂組成物、コイル体及びインダクタに関する。

【背景技術】

【0002】

50

エポキシ樹脂組成物は、一般に多官能性エポキシ化合物と硬化剤とから構成されており、フェノール樹脂やメラミン樹脂と同様に熱硬化性を有する。このエポキシ樹脂組成物は、接着剤の他、接着性、強靱性、耐熱性、電気絶縁性、耐食性などの特性を生かして広範な産業分野に使用されている。

【0003】

しかし、上述したエポキシ樹脂組成物は保存安定性が不十分となる傾向にある。そこで、この保存安定性に加え耐熱性や接着性等の向上を意図して、エポキシ樹脂とポリカルボジイミド樹脂とからなるエポキシ樹脂組成物が提案されている（例えば、特許文献1参照）。

【特許文献1】特開平5-320611号公報

10

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

しかしながら、上記従来のエポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂とからなるエポキシ樹脂組成物から得られる硬化物においては、機械的強度が低下し、また、ボイドが発生するという問題が生ずる。

【0005】

本発明者は上記問題を解決することを目的として、かかる硬化物の機械的強度の低下やボイドの発生を要因を検討したところ、その要因がエポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相分離によるものであることを見出した。更に、本発明者はかかる相分離の要因を詳細に検討したところ、その要因がエポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相溶性が不十分であることに起因することを見出した。

20

【0006】

本発明は、かかる知見に基づいてなされたものであり、エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相溶性に優れるエポキシ樹脂組成物、並びにこれを用いて形成されたコイル体及びインダクタを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らは、上記知見に基づいて鋭意研究を重ねた結果、特定構造を有するエポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂とを組み合わせることで上記課題が解決されることを見出し、本発明を完成させた。

30

【0008】

すなわち、本発明のエポキシ樹脂組成物は、ウレタン変性エポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂を含有することを特徴とする。

【0009】

本発明によれば、エポキシ樹脂にウレタン結合を導入することで、カルボジイミド樹脂との親和性を高めることができる。したがって、エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相溶性に優れるエポキシ樹脂組成物を得ることができる。なお、本発明者は、DMA（動的熱機械分析装置）分析により得られる $\tan \delta$ （損失弾性率/貯蔵弾性率）の転移点を示すピーク形状から、本発明のエポキシ樹脂組成物を構成するエポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂が相溶性に優れることを確認している。ここで、ウレタン変性エポキシ樹脂とは、当該エポキシ樹脂を構成する分子鎖のなかで最長の分子鎖を有する主鎖にウレタン基が結合したものをいう。

40

【0010】

さらに、本発明者は、かかるDMA分析から、本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、室温時において柔軟性があり、高温時（175℃）において高い弾性率を有することを確認している。したがって、本発明のエポキシ樹脂組成物から得られる硬化物は、上記従来のエポキシ樹脂組成物に比して、優れた機械的強度及び耐熱性を有し、また、相溶性に優れる樹脂組成物となるのでボイドの発生を防止することができる。

【0011】

50

なお、本発明により上述の効果が得られる原因は必ずしも明確ではないが、本発明者は以下の通り推察する。すなわち、本発明のエポキシ樹脂組成物に含有されるウレタン変性エポキシ樹脂はN原子を含むウレタン基を有するために、カルボジイミド樹脂のカルボジイミド基（ $N=C=N$ 基）との親和性が高められ、その結果、エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相溶性が優れるようになると考えられる。このため、本発明のエポキシ樹脂組成物においては、エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との界面で十分な結合力が得られるようになる。その結果、本発明のエポキシ樹脂組成物から得られる硬化物は、機械的強度が向上し、また、相溶性に優れる樹脂組成物となるのでボイドの発生が防止されるものと推察される。

【0012】

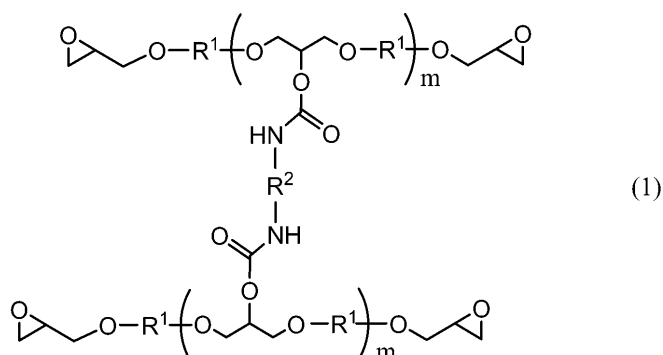
10

また、本発明のエポキシ樹脂組成物においては、ウレタン変性エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を更に含有することができる。これにより、エポキシ樹脂組成物中でウレタン変性エポキシ樹脂がいわゆる相溶化剤として機能することができるため、本来非相溶性のエポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂が優れた相溶性を有することができる。なお、このことについて本発明者は、DMAのtan 分析により確認している（実施例参照）。

【0013】

さらに、上記ウレタン変性エポキシ樹脂は、下記一般式（1）で表される樹脂を含有することが好ましい。

【化1】



20

上記一般式（1）中、 R^1 及び R^2 は2価の有機基を示し、 m は正の数を示す。なお、 m で表される繰り返し数は、平均値である。

【0014】

上記一般式（1）で表されるウレタン変性エポキシ樹脂を用いると、上述した効果が一層顕著に発現することができる。

【0015】

またさらに、上記エポキシ樹脂は、ウレタン変性エポキシ樹脂以外の可撓性エポキシ樹脂を含有することができる。これにより、さらに低応力なエポキシ樹脂組成物を得ることができる。

【0016】

40

さらにまた、上記エポキシ樹脂は、シラン変性エポキシ樹脂を含有していてもよい。これにより、エポキシ樹脂組成物の硬化物の耐熱性を一層高めることができる。

【0017】

また、当該エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂の全質量に対して、上記ウレタン変性エポキシ樹脂を20質量%以上含有することが好ましい。これにより、エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相溶性が一層高められるので、上記効果を顕著に発現することができる。

【0018】

さらに、当該エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂100質量部に対して、上記カルボジイミド樹脂を30～70質量部含有することが好ましい。これにより、エポキシ

50

樹脂組成物の硬化物の耐熱性を一層高めることができる。

【0019】

本発明のエポキシ樹脂組成物は、上述の優れた特性を有することから、例えば、接着剤、封止材料として使用することができる。このような用途に使用することで、耐熱性に優れ、機械的強度が高い硬化物を提供することができる。

【0020】

本発明はさらに、磁性材料からなる本体コアと、該本体コアに捲回された巻線と、を備えるコイル体の少なくとも一部が、加水分解性基を有する熱硬化性樹脂と、多孔質フィラ-と、を含有する樹脂組成物からなる硬化物で被覆されていることを特徴とするコイル体を提供する。かかる硬化物は上述した本発明の樹脂組成物から得られるものであるため、加熱冷却に伴う膨張収縮に起因した応力が十分に緩和されている。したがって、本発明のコイル体は、その被覆面に剥離やクラックが抑制された強固な硬化物を形成することができる。なお、本発明のコイル体としては、例えば、コイル部品が挙げられ、この場合の本体コアは磁心となる。ここで、「硬化物」とは、本発明の接着剤を硬化させて得られる固体材料を意味し、その形状は特に限定されず、膜状であっても、板状であってもよい。

10

【0021】

さらに、本発明のインダクタは、磁性材料からなる有底筒体と、該有底筒体内に収容されたコイル体と、磁性材料からなる蓋体と、ウレタン変性エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂と、を含有するエポキシ樹脂組成物の硬化物とを備え、上記有底筒体及び上記蓋体が、上記硬化物で接着されていることを特徴とする。

20

【0022】

有底筒体及び蓋体の接着面は、本発明の接着剤を硬化させた硬化物で構成されている。かかる硬化物は、十分な機械的強度及び耐熱性を有し、また、ボイドの発生が防止されている。このため、かかる接着剤の硬化物により、有底筒体及び蓋体は十分に密着される。したがって、本発明のインダクタは、コイル体を気密封止することができるので、インダクタンスの著しい低下が防止される。

【発明の効果】

【0023】

本発明によれば、エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂との相溶性に優れるエポキシ樹脂組成物を提供することができる。本発明はまた、このエポキシ樹脂組成物を用いて形成されたコイル体及びインダクタを提供することが可能になる。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0024】

以下、必要に応じて図面を参照しつつ、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。なお、図面中、同一要素には同一符号を付すこととし、重複する説明は省略する。また、上下左右等の位置関係は、特に断らない限り、図面に示す位置関係に基づくものとする。更に、図面の寸法比率は図示の比率に限られるものではない。

【0025】

(エポキシ樹脂組成物)

本実施形態にかかるエポキシ樹脂組成物は、ウレタン変性エポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂を含有するものである。

40

【0026】

まず、ウレタン変性エポキシ樹脂について説明する。ウレタン変性エポキシ樹脂は、上述のように当該エポキシ樹脂を構成する分子鎖のなかで最長の分子鎖を有する主鎖に、ウレタン基を有するものである。このようなウレタン変性エポキシ樹脂は、例えば、以下の(a)又は(b)の方法により得ることができる。

(a) エポキシ基と水酸基とを有する化合物と、末端にイソシアネート基を有する化合物とを反応させる方法。

(b) ジオール化合物にジイソシアネート化合物を反応させて末端に未反応のイソシアネート基を有するウレタンプレポリマーを得、次いで、このウレタンプレポリマーと分子中

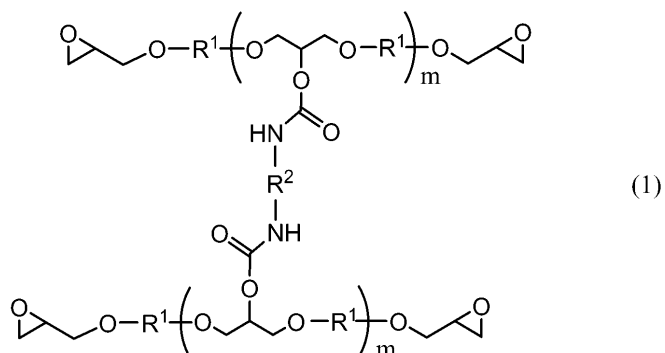
50

に水酸基を有するエポキシ樹脂とを反応させる方法。なお、分子中に水酸基を有するエポキシ樹脂は、例えば、ビスフェノール A 等のジオール化合物とエピクロロヒドリンとを反応させて得られる。

【 0 0 2 7 】

このような方法により得られるウレタン変性エポキシ樹脂としては、下記式 (1) で表されるものが好ましい。

【 化 2 】



10

【 0 0 2 8 】

上記一般式 (1) 中、 R^1 は 2 価の有機基を示す。 R^1 としては、5 員環骨格、6 員環骨格、ナフタレン骨格又はアントラセン骨格を有する 2 価の有機基が好適である。 R^1 の好適な具体例としては、例えば、ビスフェノール A、ビスフェノール F、ビスフェノール S、ビスフェノール AD から水素原子を除いた残基が挙げられる。

20

【 0 0 2 9 】

上記一般式 (1) 中、 R^2 は 2 価の有機基を示す。 R^2 としては、上記 (b) の方法で使用するジイソシアネート化合物からイソシアネート基を除いた残基、上述したウレタンプレポリマーからイソシアネート基を除いた残基が挙げられる。なお、ジイソシアネート化合物からイソシアネート基を除いた残基としては、例えば、トリレン基、キシリレン基、ピフェニレン基が挙げられる。

【 0 0 3 0 】

また、上記一般式 (1) 中、 m は正の数を示す。 m は好ましくは 1 ~ 2、より好ましくは 1 ~ 1.5 である。

30

【 0 0 3 1 】

なお、上記一般式 (1) で表されるウレタン変性エポキシ樹脂は商業的に入手することも可能であり、例えば、EPU-78-13S、その他 EPU シリーズ (以上商品名、旭電化製) が挙げられる。

【 0 0 3 2 】

ウレタン変性エポキシ樹脂のエポキシ当量 (g / e q) としては、好ましくは 100 ~ 400、より好ましくは 150 ~ 300、更に好ましくは 150 ~ 250 である。かかるエポキシ当量が 100 未満であると、吸水率の増加等により耐湿性が低下する傾向にあり、一方、400 を超えると、硬化性等のハンドリング性が低下する傾向にある。

40

【 0 0 3 3 】

なお、上述したウレタン変性エポキシ樹脂は、単独で又は 2 種以上を組み合わせ使用することができる。

【 0 0 3 4 】

本実施形態にかかるエポキシ樹脂組成物は、上述したウレタン変性エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂を更に含有することができる。かかるエポキシ樹脂としては、特に限定されるものではなく従来公知のエポキシ樹脂を使用することができる。中でも、かかるエポキシ樹脂としては、低応力性の向上や耐熱性の向上の観点から、ウレタン変性エポキシ樹脂以外の可撓性エポキシ樹脂、シラン変性エポキシ樹脂が好適に使用される。

50

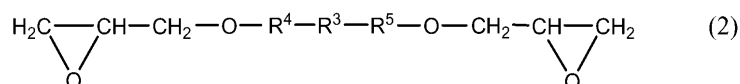
【 0 0 3 5 】

ウレタン変性エポキシ樹脂以外の可撓性エポキシ樹脂としては、当該エポキシ樹脂を構成する分子鎖のなかで最長の分子鎖を有する主鎖に、オキシアルキレン基、アルキレン基、シロキサン基、エチレン性不飽和二重結合基、イミド基及びエステル基からなる群より選ばれる少なくとも1種を有するエポキシ樹脂が挙げられる。具体的には、エーテル型のエポキシ樹脂、ゴム変性エポキシ樹脂、シリコーン変性エポキシ樹脂、エポキシ化ポリオレフィン樹脂、ポリチオール系のエポキシ樹脂、ポリエステル系のエポキシ樹脂が挙げられる。

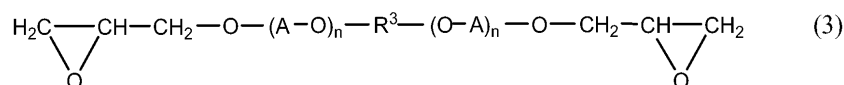
【 0 0 3 6 】

これらの可撓性エポキシ樹脂の中でも、下記一般式(2)で表されるものが好ましく、
下記一般式(3)で表されるものがより好ましい。

【 化 3 】



【 化 4 】



【 0 0 3 7 】

上記一般式(2)及び(3)中、 R^3 は2価の有機基を示す。 R^3 としては、下記一般式(4)で示される2価の有機基が好ましい。



【 0 0 3 8 】

ここで、 Ar^1 及び Ar^2 は、同一であっても異なってもよく、5員環骨格、6員環骨格、ナフタレン骨格若又はアントラセン骨格を有する2価の有機基を示し、 X は、2価の炭化水素基、スルホニル基、スルフィド基、エーテル基を示す。このように $-\text{R}^4-\text{R}^3-\text{R}^5-$ 基が2価の芳香族基を有する場合には、可撓性エポキシ樹脂の主鎖を構成する $-\text{R}^4-\text{R}^3-\text{R}^5-$ 基は、当該芳香族基の炭素原子数を除いた炭素原子数が2以上であることが好ましい。一方、かかる $-\text{R}^4-\text{R}^3-\text{R}^5-$ 基が2価の芳香族基を有しない場合には、 $-\text{R}^4-\text{R}^3-\text{R}^5-$ 基を構成する炭素原子数の合計が4以上(例えば、 $-\text{R}^4-\text{R}^3-\text{R}^5-$ 基がテトラメチレン基であるもの)であることが好ましい。

【 0 0 3 9 】

Ar^1 及び Ar^2 の好ましい具体例としては、フェニレン基を代表とする、ナフタレン型、アントラセン型のアリーレン基が挙げられる。

【 0 0 4 0 】

X の具体例としては、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{SO}_2-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 等が挙げられる。

【 0 0 4 1 】

R^3 の好適な具体例としては、ビスフェノールA化合物、ビスフェノールF化合物、ビスフェノールS化合物、ビスフェノールAD化合物等から水酸基を除いた残基が挙げられる。

【 0 0 4 2 】

また、 R^4 及び R^5 は2価の有機基を示し、かつ、 R^2 及び R^3 の少なくとも一方が、オキシアルキレン基、アルキレン基、シロキサン基、シアノ基を含んでもよいエチレン基、ブタジエン基、チオール基、アゾ基(例えば、 $-\text{N}=\text{N}-$)、イミン基(例えば、 $-\text{CH}=\text{N}-$)、カルボニル基及びアシル基からなる群より選ばれる1種以上の基を含むものである。

10

20

30

40

50

【 0 0 4 3 】

これらの中で R^4 及び R^5 としては、 $-(O-A)_n-$ 又は $-(A-O)_n-$ で表されるオキシアルキレン基が好ましい。A は炭素数が 1 ~ 8 のアルキレン基を示し、n は 1 ~ 3 の整数を示す。このようなオキシアルキレン基としては、例えば、オキシメチレン基、オキシエチレン基、オキシプロピレン基、オキシブチレン基、テトラメチレン基、オキシペンチレン基、オキシヘキシレン基が挙げられる。これらの中でも、オキシエチレン基、オキシプロピレン基が好ましい。なお、オキシプロピレン基としては、プロピレン基の 2 級炭素が酸素原子に結合していてもよく、1 級炭素が酸素原子に結合していてもよい。

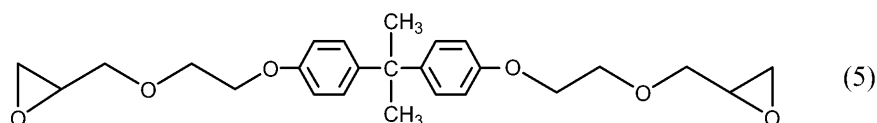
【 0 0 4 4 】

このような可撓性エポキシ樹脂は、例えば、以下のようにして得ることができる。エーテル型の可撓性エポキシ樹脂の製造方法としては、例えば、グリセリン、(ポリ)エチレングリコール、(ポリ)プロピレングリコール等の多価アルコールとエピクリルヒドリンとを反応させてグリシジルエーテルを得、次いで、このグリシジルエーテルに、ビスフェノール A、ビスフェノール F、ビスフェノール A D、カテコール、レゾルシノール等の多価フェノールを反応させる方法が挙げられる。また、ビスフェノール A、ビスフェノール F、ビスフェノール A D、カテコール、レゾルシノール等の多価フェノールとグリセリン、(ポリ)エチレングリコール、(ポリ)プロピレングリコール等の多価アルコールとを反応させた後、エピクリルヒドリンを更に反応させてもエーテル型の可撓性エポキシ樹脂を得ることができる。一方、エステル型の可撓性エポキシ樹脂の製造方法としては、例えば、p-ヒドロキシ安息香酸や -ヒドロキシナフトエ酸等のヒドロキシカルボン酸とエピクリルヒドリンとを反応させてグリシジルエーテルエステルを得、或いは、フタル酸やテレフタル酸等のポリカルボン酸とエピクリルヒドリンとを反応させてポリグリシジルエステルを得、次いで、これらのエステル化合物のうちの少なくとも 1 種にビスフェノール A、ビスフェノール F、ビスフェノール A D、カテコール、レゾルシノール等の多価フェノールを反応させる方法が挙げられる。

【 0 0 4 5 】

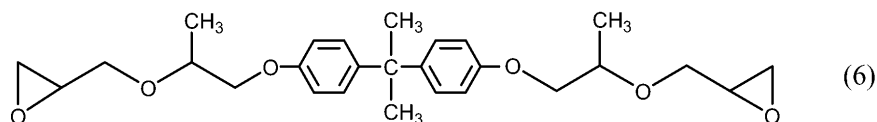
また、このようにして得られる可撓性エポキシ樹脂としては、下記式 (5) 又は (6) で表されるものが特に好ましい。

【 化 5 】



30

【 化 6 】



40

【 0 0 4 6 】

なお、上記式 (5) 又は (6) で表される可撓性エポキシ樹脂は商業的に入手することも可能である。上記式 (4) で表される可撓性エポキシ樹脂としては、例えば、EP4000S (商品名、旭電化製) が挙げられ、上記式 (5) で表される可撓性エポキシ樹脂としては、例えば、ZX-1627 (商品名、東都化成製) が挙げられる。

【 0 0 4 7 】

ウレタン変性エポキシ樹脂以外の可撓性エポキシ樹脂のエポキシ当量 (g / eq) としては、好ましくは 200 ~ 600、より好ましくは 200 ~ 400、更に好ましくは 250 ~ 300 である。かかるエポキシ当量が 200 未満であると、可撓性が不十分となる傾向にあり、一方、600 を超えると、硬化性等のハンドリング性が低下する傾向にある。

50

【 0 0 4 8 】

なお、ウレタン変性エポキシ樹脂以外の可撓性エポキシ樹脂は、単独で又は２種以上を組み合わせ使用することができる。

【 0 0 4 9 】

また、本実施形態にかかるエポキシ樹脂組成物においては、シラン変性エポキシ樹脂を含有していてもよい。このシラン変性エポキシ樹脂は、加水分解性を有することが好ましい。このシラン変性エポキシ樹脂は、例えば、以下の方法により得ることができる。ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ、ビスフェノールＳ、ビスフェノールＡＤ、クレゾール、レゾルシン、ナフトール、ヒドロキシアントラセンからなる群より選ばれる少なくとも１種の化合物と、エピクロロヒドリンとを反応させてエポキシ樹脂を得、次いで、このエポキシ樹脂の側鎖に存在する水酸基に、加水分解性を有するシラン化合物、例えば、アルキルトリアルコキシシラン又はテトラアルコキシシランを縮合反応させる方法が挙げられる。なお、加水分解性を有するシラン化合物の代わりにその部分加水分解物を用いることにより、エポキシ樹脂の側差に加水分解性を有するシロキサン基（シロキシ基）を導入することができる。

10

【 0 0 5 0 】

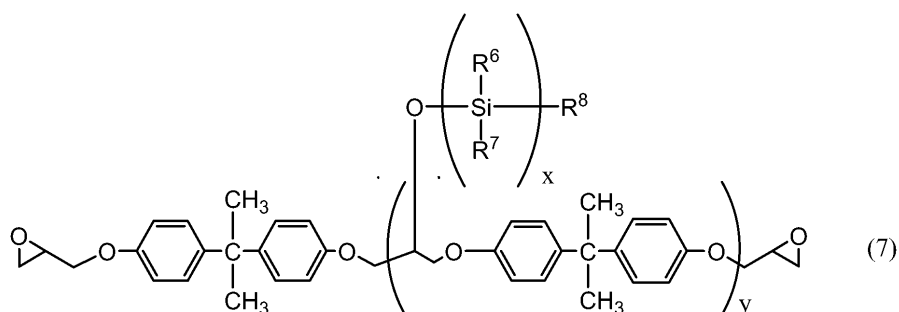
このような方法で得られるシラン変性エポキシ樹脂は、主鎖を構成するエポキシ樹脂の熱的に弱い部位にシリル基又はシロキサン基を導入した構造を有しており、且つソル・ゲル反応により架橋可能な加水分解性基を有しているために、優れた耐熱性を有することができる。

20

【 0 0 5 1 】

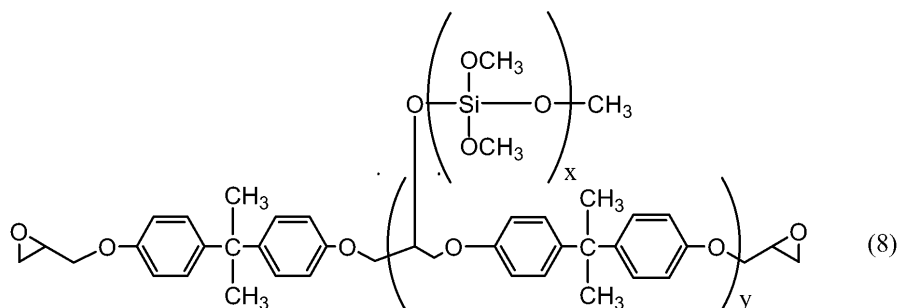
このような構造を有するシラン変性エポキシ樹脂としては、下記一般式（７）で表されるものが好ましく、下記一般式（８）で表されるものがより好ましい。

【 化 ７ 】



30

【 化 ８ 】



40

【 0 0 5 2 】

上記一般式（７）及び（８）中、 R^6 、 R^7 及び R^8 はそれぞれ独立に、アルコキシ基、アセトキシ基、オキシム基、プロペノキシ基を示し、アルコキシ基が好ましい。また、上記一般式（７）及び（８）中、 x 及び y はそれぞれ正の整数を示す。 x は好ましくは 1 ~ 10、より好ましくは 1 ~ 7 であり、 y は好ましくは 1 ~ 5、より好ましくは 1 ~ 2 である。

50

【 0 0 5 3 】

シラン変性エポキシ樹脂のエポキシ当量 (g / e q) は、好ましくは 1 0 0 ~ 5 0 0 、より好ましくは 1 0 0 ~ 4 0 0 、更に好ましくは 1 0 0 ~ 3 0 0 である。なお、かかるエポキシ樹脂は、商業的に入手することができ、例えば、コンポセラン E 2 0 1、コンポセラン E 2 0 2、コンポセラン E 1 0 2、コンポセラン E 1 0 3 (以上、荒川化学工業 (株) 製、商品名) が挙げられる。

【 0 0 5 4 】

なお、上述したシラン変性エポキシ樹脂は、単独で又は 2 種以上を組み合わせ使用することができる。

【 0 0 5 5 】

また、ウレタン変性エポキシ樹脂の含有量は、当該エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂の全質量に対して、好ましくは 2 0 質量 % 以上、より好ましくは 5 0 質量 % 以上、更に好ましくは 7 0 質量 % 以上である。かかる含有量が 2 0 質量 % 未満であると、エポキシ樹脂組成物の相溶性が不十分となる傾向にある。

【 0 0 5 6 】

次に、本実施形態にかかるカルボジイミド樹脂について説明する。

カルボジイミド樹脂は、 $R^9 - N = C = N -$ で示される少なくとも 1 種の繰り返し単位を含有する単独重合体又は共重合体である。なお、 R^9 は後述するジイソシアネート化合物のイソシアネート基を除いた残基である。

【 0 0 5 7 】

かかるカルボジイミド樹脂は、例えば、触媒存在下、少なくとも 1 種のジイソシアネート化合物のイソシアネート基を脱炭酸縮合反応によりカルボジイミド化させることによって得ることができる。ジイソシアネート化合物としては、例えば、脂肪族系ジイソシアネート化合物、脂環式系ジイソシアネート化合物、芳香族系ジイソシアネート化合物、芳香 - 脂肪族系ジイソシアネート化合物が挙げられる。これらのジイソシアネート化合物は単独で又は 2 種以上を組み合わせ使用することができる。

【 0 0 5 8 】

ジイソシアネート化合物としては、例えば、2, 4 - トリレンジイソシアネート、2, 6 - トリレンジイソシアネート、4, 4', 4'' - トリフェニルメチレントリイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ヘキサメチレン - 1, 6 - ジイソシアネート、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、4, 4' - ビフェニレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、3, 3' - ジメチルフェニルメタン - 4, 4' - ジイソシアネート、3, 3' - ジメチルジフェニル - 4, 4' - ジイソシアネートが挙げられ、これらの混合物を使用してもよい。

【 0 0 5 9 】

また、硬化触媒としては、例えば、1 - フェニル - 2 - ホスホレン - 1 - オキシド、3 - メチル - 2 - ホスホロン - 1 - オキシドが挙げられる。

【 0 0 6 0 】

さらに、カルボジイミド樹脂を製造する際に、フェニルイソシアネート、トリルイソシアネート、シクロヘキシルイソシアネート、メチルイソシアネート等のモノイソシアネート化合物を併用して、カルボジイミド樹脂の末端を封止し分子量を調整してもよい。

【 0 0 6 1 】

このようなカルボジイミド樹脂は商業的に入手するも可能であり、例えば、1 0 M - S P、I M - 2 5 P (以上、商品名、日清紡製)、9 0 1 0 (商品名) が挙げられる。

【 0 0 6 2 】

また、カルボジイミド樹脂のカルボジイミド基は、エポキシ樹脂組成物を硬化させる際に下記式 (9) に示す自己架橋反応により 3 量体を形成することができる。これにより、エポキシ樹脂組成物の硬化物の T g が向上し、高耐熱性を発現することができる。

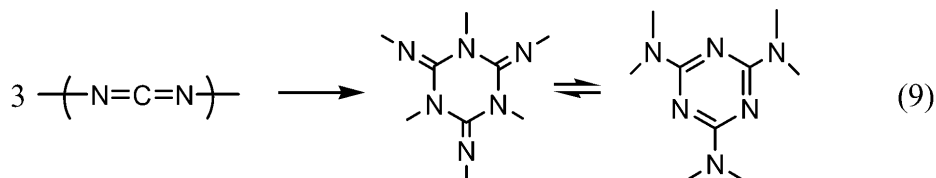
10

20

30

40

【化 9】



【0063】

さらに、カルボジイミド樹脂のカルボジイミド基は、無機材料の活性水素と反応することが可能であるため、電子部品等の部材との密着性が高められる。

10

【0064】

カルボジイミド樹脂の含有量は、当該エポキシ樹脂組成物に含まれるエポキシ樹脂 100 質量部に対して、好ましくは 30 ~ 70 質量部、より好ましくは 30 ~ 50 質量部、更に好ましくは 40 ~ 50 質量部である。カルボジイミド樹脂の含有量が 30 質量部未満であると、エポキシ樹脂組成物の耐熱性が不十分となる傾向にある。一方、かかる含有量が 70 質量部を超えると、硬化時の過大な発熱による熱応力で接着力が低下する傾向にある。また、同時に樹脂組成物のポットライフ等のハンドリング性が低下する可能性がある。

【0065】

本実施形態にかかるエポキシ樹脂組成物は、ウレタン変性エポキシ樹脂とカルボジイミド樹脂とを必須成分とするものであるが、当該エポキシ樹脂組成物の粘度やポットライフに影響を与えない範囲で、必要に応じて硬化剤、その他添加剤を含有することができる。

20

【0066】

硬化剤としては、従来公知の硬化剤を配合することができ、例えば、イミダゾール類（その誘導体を含む）、フェノール類、ジシアンジアミド、アミン類、酸無水物類が挙げられる。これらのうちの少なくとも 1 種の硬化剤を配合することで、熱硬化性樹脂の硬化反応を促進することができる。

【0067】

イミダゾール類としては、例えば、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 - ウンデシルイミダゾール、2 - ヘプタデシルイミダゾール、2 - メチル - 4 - エチルイミダゾール、2 - フェニル - 4 - メチルイミダゾール、1 - ブチルイミダゾール、1 - プロピル - 2 - イチルイミダゾール、1 - ベンジル - 2 - 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 - ウンデシルイミダゾール、1 - シアノエチル - 2 - フェニルイミダゾール、1 - アジン - 2 - メチルイミダゾール、1 - アジン - 2 - ウンデシルイミダゾールが挙げられる。フェノール類としては、例えば、ザイロック型フェノール、ジヒドロキシナフタレンが挙げられる。アミン類としては、例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラアミン、ジメチルエタノールアミン、ジメチルベンジルアミン、2, 4, 6 - トリス（ジメチルアミノ）フェノール、1, 8 ジアザビスクロ〔5, 4, 0〕ウンデセンが挙げられる。酸無水物としては、例えば、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水ヘキサヒドロフタル酸、無水ピロペリット酸が挙げられる。

30

40

【0068】

硬化剤の含有量は、エポキシ樹脂 100 質量部に対して、好ましくは 5 ~ 50 質量部、より好ましくは 5 ~ 40 質量部、更に好ましくは 5 ~ 30 質量部である。硬化剤の含有量が 5 質量部未満であると、エポキシ樹脂組成物の硬化反応が不十分となり架橋密度が低下する傾向がある。一方、かかる含有量が 50 質量部を超えると、含有量に見合うだけの硬化反応の促進効果が得られず経済的に不利になる傾向がある。

【0069】

また、添加剤としては、例えば、カップリング剤、改質剤、補強剤、無機フィラー、着色剤を含有することができる。カップリング剤としては、グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、グリシドキシプロピルエチルト

50

リメトキシシラン等が挙げられる。改質剤としては、液状ゴム、シリコン系ゴムパウダー、アクリル系ゴムパウダー、ブタジエン系ゴムパウダー等が挙げられる。補強剤としては、ガラス繊維、液晶ポリマー、炭素繊維等が挙げられる。無機フィラーとしては、シリカ、アルミナ、炭酸カルシウム、酸化チタン、マイカ、ゼオライト、活性炭等が挙げられる。着色剤としては、カーボンブラック、チタン白、有機系染料等が挙げられる。

【0070】

(接着剤)

本実施形態にかかる接着剤は、上述したエポキシ樹脂組成物からなるものである。かかる接着剤は、ウレタン変性エポキシ樹脂を含有することでカルボジイミド樹脂との相溶性に優れるので、樹脂組成物中における相分離が防止される。このため、かかる接着剤から得られる硬化物は、従来に比して機械的強度が向上するとともに、ボイドの発生が防止される。したがって、電子部品の接着を目的としてかかる接着剤を使用すれば、電子部品の部材間の隙間を十分な密着性をもって気密封止することができる。

10

【0071】

(インダクタ及びコイル体)

次に、インダクタについて説明する。図1は、本実施形態にかかるインダクタの概略斜視図である。図2は、本実施形態にかかるインダクタのI-I方向に沿ってとられた断面図である。本実施形態にかかるインダクタ10は、蓋体1と、有底筒体3と、コイル体5と、接着層7とを備える。蓋体1及び有底筒体3は、磁性材料であるNi-Zn系のフェライト材から構成されている。接着層7は、ウレタン変性エポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂を含有する樹脂組成物からなる接着剤の硬化物で構成されている。接着層7の側面には、蓋体1の外周部が接着している。また、接着層7の底面には、有底筒体3の開口端が接着している。接着層7の膜厚は、特に限定されないが、例えば、1mm程度である。このように、蓋体1及び有底筒体3の開口端は接着層7を介して接着されており、有底筒体3の開口が接着層7及び蓋体1で密封されている。

20

【0072】

また、蓋体1と有底筒体3との接着形態としては、特に限定されず、図3に示すように蓋体1と有底筒体3とが当接することなく接着層7を介して接着されていてもよい。この場合、蓋体1の底部と有底筒体3の開口端とが接着層7を介して接着されていてもよく、また、蓋体1の底部と有底筒体3の内周壁とが接着層7を介して接着されていてもよく、さらに、蓋体1の底部と有底筒体3の外周壁とが接着層7を介して接着されていてもよい。

30

【0073】

図4(a)、(b)は、それぞれ本実施形態にかかるコイル体の例を示す断面図である。図4(a)に示すコイル体5は、絶縁材料が被覆された銅からなる巻線2がドラム型の本体コア4に捲回されたものである。図4(b)に示すコイル体5は、絶縁材料が被覆された銅からなる巻線2が筒状の本体コア4に捲回されたものである。なお、コイル体の構造は、図4(a)、(b)に限定されるものではない。また、巻線2は、これを本体コア4に固定するために上述した本実施形態の樹脂組成物からなる硬化物で被覆されていてもよい。

40

【0074】

このように本実施形態にかかるインダクタ10は、蓋体1及び有底筒体3が接着層7を介して接着されている。インダクタ10は、接着層7を構成する硬化物の機械的強度及び耐熱性が向上するとともに、ボイドの発生が抑制されている。したがって、蓋体1及び有底筒体3は十分な密着性をもって接着されているので、インダクタ10のインダクタンスの低下が防止される。

【0075】

次に、インダクタ10の製造方法を説明する。まず、蓋体1、有底筒体3、コイル体5及び接着剤を準備する。接着剤としては、ウレタン変性エポキシ樹脂及びカルボジイミド樹脂を含有するエポキシ樹脂組成物を使用する。次いで、有底筒体3にコイル体5を収容

50

した後、有底筒体 3 に蓋体 1 を載置する。次に、蓋体 1 及び有底筒体 3 の隙間に接着剤を塗布し、熱硬化させる。これにより、熱硬化された接着剤は、接着層 7 を形成する。なお、接着剤の塗布には、ディスペンサー等を使用することができる。このようにして、インダクタ 10 が製造される。

【0076】

上記実施形態においては、インダクタ 10 の蓋体 1 及び有底筒体 3 の接着に本発明の接着剤を使用する場合を説明した。本実施形態の接着剤は、比較的膜厚の厚い接着層 7 を形成することを目的に使用することもできる。また、本実施形態の接着剤は、インダクタ以外の他の電子部品、例えば、コネクタ、リレー、コンデンサ、スイッチ、トランス等に備えられる各部材の接着に使用することができる。また、半導体素子の封止材料としても適用可能である。さらに、上記実施形態においては、インダクタ 10 の有底筒体 3 内に收容されたコイル体 5 として、当該コイル体の少なくとも一部が上述した本実施形態の樹脂組成物からなる硬化物により被覆されたものを用いてもよい。

【実施例】

【0077】

以下、実施例及び比較例に基づき本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に何ら限定されるものではない。

【0078】

(実施例 1)

(エポキシ樹脂組成物の調製)

可撓性エポキシ樹脂 80 質量部 (EP4000S、旭電化(株)製)、ウレタン変性エポキシ樹脂 (EPU-78-13S)、カルボジイミド樹脂 (10M-SP、日清紡製)、及び硬化剤 25 質量部 (PN23、味の素ファインテクノ(株)製)を混合容器に秤量して、常温で 1 分間手混合した後、自公転方式のミキサー (ハイブリッドミキサー HM500、キーエンス製)で 30 分間混合した。次いで、自公転方式のミキサーで 2 分間脱泡を行い、実施例 1 のエポキシ樹脂組成物を得た。

【0079】

(実施例 2 ～ 3 及び比較例 1)

各材料及び配合量を表 1 に記載のものに代えたこと以外は、実施例 1 と同様の方法により実施例 2 ～ 3 及び比較例 1 のエポキシ樹脂組成物をそれぞれ調製した。なお、表 1 中のカルボジイミド樹脂及び硬化剤の配合量は、エポキシ樹脂 100 質量部に対する質量 (質量部) を意味する。

【表 1】

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1
エポキシ樹脂	EP4000S	80	30	—	100
	EPU-78-13S	20	70	100	—
カルボジイミド樹脂	10M-SP	50	50	50	50
硬化剤	イミダゾール系潜在性硬化剤	25	25	—	25
	アミン系潜在性硬化剤	—	—	25	—

ウレタン変性エポキシ樹脂以外の可撓性エポキシ樹脂：EP4000S、エポキシ当量 (g / eq) 260、旭電化(株)製、商品名、

ウレタン変性エポキシ樹脂：EPU-78-13S、エポキシ当量 (g / eq) 210、旭電化(株)製、商品名、

カルボジイミド樹脂：10M-SP、日清紡製、商品名、

イミダゾール系潜在性硬化剤：、PN23、味の素ファインテクノ(株)製、商品名、

アミン系潜在性硬化剤：、MY24、味の素ファインテクノ(株)製、商品名。

【 0 0 8 0 】

(T g、貯蔵弾性率の測定)

以下のようにして D M A (動的熱機械分析装置) 分析により、T g 及び貯蔵弾性率を測定した。まず、アルミ製の容器 (3 c m × 高さ 1 c m) に、実施例 1 ~ 3 及び比較例 1 で得たエポキシ樹脂組成物 2 0 g をそれぞれ投入し、1 3 0 / 3 0 分で加熱硬化させた。次に、得られた硬化物を 4 0 m m × 5 m m × 0 . 4 m m の大きさに切削加工して、D M A 測定用サンプルを作製した。次に、得られた D M A 測定用の各サンプルについて、D M S 6 1 0 0 (セイコーインスツルメンツ社製) を用いて動的粘弾性を測定し硬化物の T g、並びに室温及び 1 7 5 における貯蔵弾性率を求めた。測定結果を表 2 に示す。なお、測定条件は、温度領域 3 0 ~ 2 5 0 、昇温速度 5 / 分、荷重 6 4 . 5 g f、引っ張りモードとした。また、この D M A 分析から硬化物の t a n の温度依存性についても検討を行った。その結果を図 5 に示す。なお、図 5 中、A は実施例 1、B は実施例 2、C は実施例 3、D は比較例 1 の測定結果をそれぞれ示す。

10

【表 2】

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1
T g	DMA, °C	1 5 7	1 2 1	1 4 9	1 4 1
貯蔵弾性率	室温, GPa	2 . 7	2 . 8	1 . 9	3 . 2
	175°C, MPa	8 3	1 5 3	4 6	4 1

20

【図面の簡単な説明】

【 0 0 8 1 】

【図 1】本発明にかかるインダクタの一例を示す概略斜視図である。

【図 2】本発明にかかるインダクタの一例を示す断面図である。

【図 3】本発明にかかるインダクタの他の例を示す断面図である。

【図 4】(a)、(b) は、それぞれ本発明にかかるインダクタのコイル体の例を示す断面図である。

【図 5】本発明にかかるエポキシ樹脂組成物の硬化物の t a n の温度依存性の一例を示す図である。

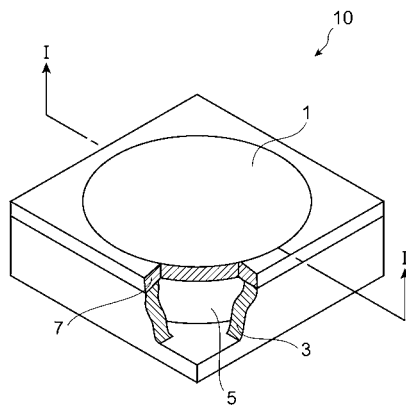
【符号の説明】

30

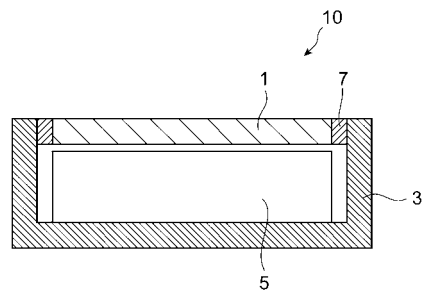
【 0 0 8 2 】

1 ... 蓋体、3 ... 有底筒体、5 ... コイル体、7 ... 接着層、1 0 ... インダクタ。

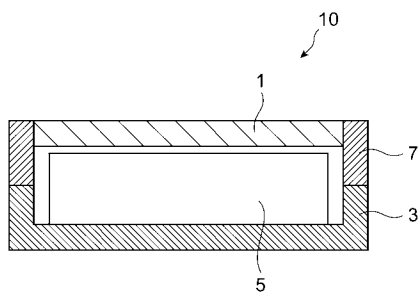
【図 1】



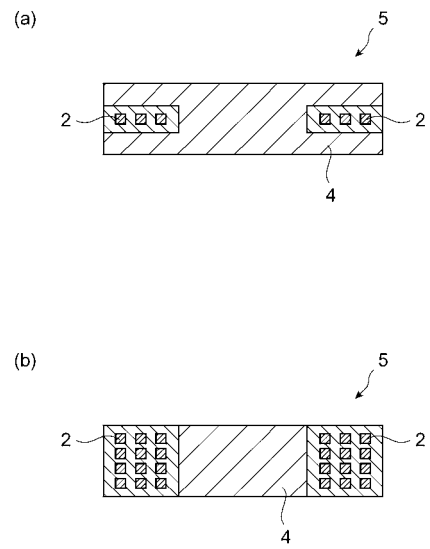
【図 2】



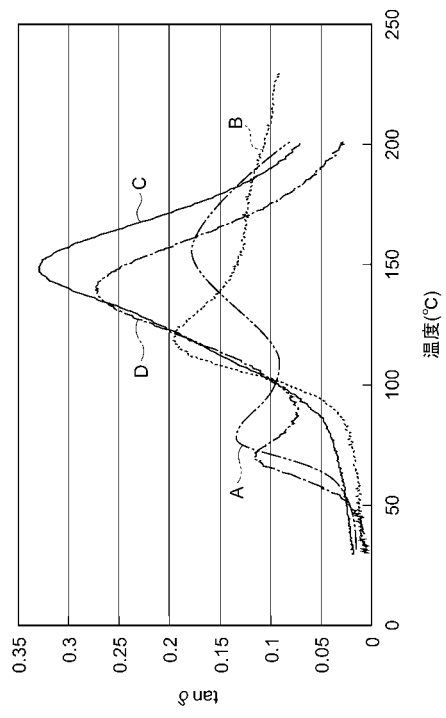
【図 3】



【図 4】



【 図 5 】



フロントページの続き

F ターム(参考) 4J002 CD013 CD13W CD203 CM05X GH01 GQ00
4J036 AB09 AD08 CB20 CC03 DB05 DB15 DC01 DC31 DC41 FB07
JA01 JA07