

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：93129043

※ 申請日期：93/09/24

※IPC 分類：(22C 45/00

G11B 5/117

B32B 15/00

一、發明名稱：(中文/英文)

磁性基材之積層體及其製造方法

Laminate from Magnetic Base Material, and Method for Production Thereof

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

三井化學股份有限公司

MITSUI CHEMICALS INC. (三井化学株式会社)

代表人：(中文/英文)

中西宏幸 / Hiroyuki NAKANISHI

住居所或營業所地址：(中文/英文)

日本國東京都港區東新橋一丁目5番2號

5-2, Higashi-Shimbashi 1-chome, Minato-ku, Tokyo 105-7117 Japan

國 籍：(中文/英文)

日本 / Japan

三、發明人：(共 3 人)

姓 名：(中文/英文)

(1)吉田光伸 / YOSHIDA Mitsunobu

(2)丸子展弘 / MARUKO Nobuhiro

(3)渡邊洋 / WATANABE Hiroshi (渡辺洋)

國 籍：(中文/英文)

(1)~(3)日本 / Japan

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 日本；2003/09/26；2003-336589
- 2.
- 3.
- 4.
- 5.

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於被附加有高分子化合物之磁性金屬薄板、其積層體及其製造方法。

【先前技術】

習知，在將磁性金屬材料當作薄板使用之情況，向來係將單板之薄板予以複數片積層而使用。其方法係例如在使用非晶質金屬薄帶作為磁性金屬材料之情況，由於非晶質金屬薄帶之厚度為 $10\sim 50\mu\text{m}$ 左右之厚度，故將特定之黏接劑均勻地塗佈於其表面，或浸漬在黏接劑中，以進行積層。在日本專利特開昭 58-175654(專利文獻 1)中，記載有一種積層體之製造方法，其特徵為，將塗佈有以高耐熱性高分子化合物作為主要成份之黏接劑之非晶質金屬薄帶予以重疊，再以下壓輥壓緊，然後加熱黏接。但是，在塗佈樹脂予以積層時，僅有規定膜厚，對於黏接之狀態並無特別記載。

又，在先前技術中，所塗佈之樹脂為了抑制磁性金屬薄板間之渦電流，係以積極地謀求電的絕緣及提升交流電特性之方式使用。例如，在美國專利 4201837 號公報(專利文獻 2)中，記載有作為使用樹脂之較佳態樣，有以提升交流電之特性之方式使用樹脂，此係將金屬層間以樹脂絕緣之意。此外，在 W003/060175 號公報(專利文獻 3)中，雖記載有關於由非晶質金屬與耐熱性樹脂所構成之磁性基材之積層體，但關於在具體使用時之發熱性等之課題並未記載。

然而，不管根據該等任一方法，若欲積極地謀求電的絕緣，若以抑制渦電流用之金屬薄板彼此不接觸之方式而使樹脂膜厚增加，則積層體中所佔磁性金屬體積之佔有比率（體積佔有率）會變低。又，在將積層體作為磁芯使用之情況，雖因鐵損（iron loss）而發熱，但樹脂之熱傳導率一般較金屬之熱傳導率低上 10~100 倍，故隔著樹脂層將熱釋放出方面較為不利，隨著樹脂層變厚，有積層體亦容易充滿熱之問題。此問題在將先前技術之磁性積層體使用作為磁芯之情況，因額定電力低，所以成為小型化、高輸出化之障礙。

<專利文獻 1>日本專利特開昭 58-175654

<專利文獻 2>美國專利 4201837 號公報

<專利文獻 3>W003/060175 號公報

【發明內容】

（發明所欲解決之問題）

本發明之目的在於，有鑑於在將使磁性金屬薄板與樹脂予以積層之磁性基材作為磁芯使用之情況，提供一種進行必要之絕緣並防止體積佔有率之降低之低發熱性之磁性基材。

（解決問題之手段）

本案發明者等適當地控制樹脂塗膜厚度與積層方法，發現藉由使 JIS H 0505 所規定之體積電阻率在 $0.1 \sim$ 未滿 $10^8 \Omega \text{ cm}$ 之範圍內，可使體積佔有率降低且改善放熱性。結果發現，可達成磁芯等之應用零件、裝置之小型化及高輸出

化，而完成本發明。

亦即，本發明提供一種磁性基材之積層體，其特徵為，係由高分子化合物層與磁性金屬薄板所構成之磁性基材之積層體，金屬彼此在薄板間為局部接觸，垂直於積層體之黏接面的方向之由 JIS H 0505 所定義之體積電阻率為 $0.1 \sim$ 未滿 $10^8 \Omega \text{ cm}$ 。

又，本發明之較佳態樣之一為，上述高分子化合物層覆蓋上述磁性金屬薄板之積層黏接面之面積的 50% 以上，垂直於積層體之黏接面的方向之由 JIS H 0505 所定義之體積電阻率為 $1 \Omega \text{ cm}$ 以上、 $10^6 \Omega \text{ cm}$ 以下。

此外，使用於本發明之磁性基材之積層體的磁性基材，亦可使用 2 種類以上之磁性金屬薄板。

又，上述磁性金屬薄板以由非晶質金屬、奈米結晶磁性金屬或矽鋼板所選出之至少二種以上之金屬為本發明較佳態樣之一，上述磁性金屬薄板以非晶質金屬與矽鋼板為更佳態樣之一。

本發明之磁性基材之積層體係將由高分子化合物層與磁性金屬薄板所構成之磁性基材重疊 2 片以上，可以使金屬彼此在薄板間局部接觸的方式，以 $0.2 \sim 100 \text{ MPa}$ 加壓而製得。

又，在將高分子化合物以磁性金屬薄板面積之 50% 以上之方式塗佈在該磁性金屬薄板上後，進行乾燥，將所得之磁性金屬薄板衝孔並重疊，且藉由填隙 (calking) 等進行塑性變形，再將其於 $0.2 \sim 100 \text{ MPa}$ 下一邊加壓一邊加熱，使

之積層成一體化以製造磁性基材的積層體，係為本發明的較佳態樣之一。

本發明之磁性基材之積層體可使用於變壓器、感應器、天線之任一者中。

又，本發明之磁性基材之積層體可使用於馬達或發電機之定子或轉子之磁芯材料。

(發明效果)

藉由本發明之方法，藉由將體積電阻率限制在 $0.1 \sim$ 未滿 $10^8 \Omega \text{ cm}$ 之範圍內，成為具有高體積佔有率與高熱傳導率之磁性積層體，可實現由本發明之磁性積層體所構成之溫度上升低之磁芯。

【實施方式】

(磁性金屬薄板)

本發明所使用之磁性金屬薄板只要為公知金屬磁性體，均可使用。具體而言，可舉出矽含量為 $3\% \sim 6.5\%$ 之已實用化之矽鋼板、高導磁合金、奈米結晶金屬磁性材料、非晶質金屬磁性材料。特別以發熱少、屬低損失材料之材料為佳，以非晶質金屬磁性材料、奈米結晶金屬磁性材料較適合使用。

本發明中所謂「磁性金屬薄板」係指將以矽鋼板或高導磁合金為代表之磁性金屬材料作成薄板狀之物，但亦有使用非晶質金屬薄帶或奈米結晶磁性金屬薄帶之意。又，本發明所使用之「磁性基材」係將高分子化合物與上述磁性金屬薄板予以積層所得者。

本發明中，「矽鋼板」係使用矽含量為 3%~6.5%者。作為此類矽鋼板之例，具體而言有方向性電磁鋼板或無方向性電磁鋼板等，而以使用新日鐵(股)所製品化之無方向性電磁鋼板(海萊特柯爾、薄的海萊特柯爾、高張力海萊特柯爾、荷姆柯爾、歇米柯爾)、或杰富意鋼鐵(股)所製品化之 Fe-Si 中含矽量為 6.5%之超級 E 柯爾等為佳。

(高分子化合物)

本發明所用之高分子化合物可使用周知之被稱為樹脂者。本發明中，有將「高分子化合物」記載成「樹脂」或將「樹脂」記載成「高分子化合物」之情況，若無特別限定，係指同一物。特別在提昇金屬磁性材料之磁特性而需要 200℃ 以上之熱處理之情況，將低彈性率之耐熱樹脂予以複合，可有效地發揮優異性能。又，矽鋼板等之材料相較於非晶質金屬磁性材料或奈米結晶金屬磁性材料，因損失大、發熱溫度高，故在使用於馬達或變壓器之電力電子(Power electronics)用途之情況，藉由應用耐熱樹脂，可提昇額定溫度而隨之達成額定輸出之提昇或機器之小型化。本發明所使用之耐熱性樹脂係因有以提昇非晶質金屬薄帶或奈米結晶金屬磁性薄帶之磁特性之最佳熱處理溫度進行熱處理之情況，故必需選定於該熱處理溫度下之熱分解少之材料。例如非晶質金屬薄帶之熱處理溫度係因構成非晶質金屬薄帶之組成及目的之磁特性而異，提昇良好磁特性之溫度約在 200℃~700℃ 之範圍，而以 300℃~600℃ 之範圍為佳。

本發明所使用之耐熱性樹脂可舉出熱塑性樹脂、非熱塑性樹脂、熱固性樹脂。其中以使用熱塑性樹脂為佳。

作為本發明所使用之耐熱性樹脂，係在 120℃ 下進行 4 小時之乾燥作為前處理，其後使用 DTA-TG 測量在氮氣環境下於 300℃ 保持 2 小時的重量減少量，使用通常為 1% 以下（以 0.3% 以下為佳）者。具體之樹脂可舉出聚醯亞胺系樹脂、含矽樹脂、酮系樹脂、聚醯胺系樹脂、液晶聚合物、腈系樹脂、硫醚系樹脂、聚酯系樹脂、芳酯系樹脂、碲系樹脂、醯亞胺系樹脂、醯胺醯亞胺系樹脂。其中以使用聚醯亞胺系樹脂、碲系樹脂、醯胺醯亞胺系樹脂為佳。

又，本發明中，在不需要 200℃ 以上之耐熱性之情況，雖不限定於此，但若具體列舉本發明所使用之熱塑性樹脂，有聚醚碲、聚醚醯亞胺、聚醚酮、聚對苯二甲酸乙二酯、尼龍、聚對苯二甲酸丁二酯、聚碳酸酯、聚二苯醚、聚苯硫、聚碲、聚醯胺、聚醯胺醯亞胺、聚乳酸、聚乙烯、聚丙烯等，其中以使用聚醚碲、聚醚醯亞胺、聚醚酮、聚乙烯、聚丙烯、環氧樹脂、矽樹脂、橡膠系樹脂（氯丁二烯橡膠、矽橡膠）等為佳。

又，本發明之樹脂層之厚度係以 $0.1\mu\text{m}\sim 1\text{mm}$ 之範圍為佳，而以 $1\mu\text{m}\sim 10\mu\text{m}$ 較佳，以 $2\mu\text{m}\sim 6\mu\text{m}$ 特佳。

（體積電阻率）

本發明經深入研究，結果發現在將磁性基材之積層體用於磁芯等之用途之情況，作為影響用以提昇額定電力之熱傳導率之因子，垂直於積層體之黏接面之方向、即垂直於

磁性基材之積層體之高分子化合物面之方向的 JIS H 0505 所規定之體積電阻率係屬重要相關因子。一般，在由磁性金屬薄板與高分子化合物製得之磁性基材之積層體中，若藉由為絕緣體之高分子化合物使磁性金屬薄板完全絕緣，體積電阻率係在 $10^8 \Omega \text{ cm}$ 以上，又，若為絕緣不充分的狀態，則為 $10^{-8} \Omega \text{ cm}$ 以下。在本發明中，體積電阻率為 $0.1 \sim$ 未滿 $10^8 \Omega \text{ cm}$ 、最好為 $10^3 \Omega \text{ cm} \sim 10^8 \Omega \text{ cm}$ 之時，因熱傳導率變高，故為較佳。本案發明人等並未堅持於特定之理論，該體積電阻率之變化原因可認為係因金屬薄板上之細微凹凸彼此間之些微接觸而生成電的導通點。

電之導通點可考慮為藉由磁性金屬薄板上之細微凹凸間的些微接觸所生成。積層一體化及電之導通步驟係於磁性金屬薄板間，在樹脂流動之狀態下予以加壓保持使之一體化而進行。所施加之壓力係隨著磁性金屬薄板表面之粗糙度或所使用樹脂之種類、樹脂之厚度，最佳條件有所不同，通常係使用 $0.2 \sim 100 \text{ MPa}$ 之壓力，而以 $1 \sim 100 \text{ MPa}$ 為佳。

電之導通點可考慮為藉由金屬薄板上之細微凹凸間的些微接觸所生成。積層一體化及電之導通步驟係於磁性金屬薄板間，在樹脂流動之狀態下予以加壓保持使之一體化而進行。在使用熱塑性樹脂之情況，於加熱後、冷卻過程中，在保持流動狀態之期間亦以加壓狀態為佳。例如，在使用熱固性樹脂之情況，以加壓至所需之熱硬化結束為止為佳。藉由加壓，金屬薄板間有效地接觸，可有效地減低體積電阻率。特別於減低熱塑性樹脂之體積電阻率之情

況，藉由在熱塑性樹脂之玻璃轉移溫度以上之溫度區域施加 2MPa~30MPa 之較大壓力，可有效地從金屬薄板間押出樹脂，謀求金屬薄板彼此間之接觸。又，作為謀求金屬薄板間之電導通之方法，亦可使用樹脂之硬化收縮或表面張力而謀求電導通。依此所得之磁性金屬之積層體具有本發明之體積電阻率。

(塗佈方法)

本發明中所使用之塗佈方法可使用公知技術，無特別限制。更具體地說，可對磁性金屬薄板之原料利用公知之輥塗佈機等之塗佈裝置，以將樹脂溶解於有機溶劑而成之樹脂清漆於薄板上製作塗膜，使之乾燥，利用將耐熱性樹脂附加於非晶質金屬薄板之方法來製作磁性基材。通常，塗佈厚度應依所使用之磁性金屬薄板表面之粗糙度而加以調節，而為實現本發明之上述的體積電阻率，磁性金屬薄板間之局部接觸係屬必要，而且，從磁性基材強度之觀點言之亦以於磁性金屬薄板上塗佈較多樹脂為佳，故應以覆蓋磁性金屬薄板之至少 50% 以上、較佳為 90% 以上、更佳為 95% 以上之面積的方式塗佈。

又，塗佈之清漆塗膜厚度亦隨使用之磁性金屬薄板之表面粗糙度而異，但通常以 $0.1\mu\text{m}\sim 1\text{mm}$ 左右為佳。在減少鐵損方面，若體積佔有率大則可減少鐵損，故清漆之塗膜厚度較薄，以作成 $0.1\mu\text{m}\sim 10\mu\text{m}$ 左右為佳。又，樹脂清漆之黏度以 $0.005\sim 200\text{Pa}\cdot\text{s}$ 之濃度範圍為佳。又以 $0.01\sim 50\text{Pa}\cdot\text{s}$ 之濃度範圍更佳， $0.05\sim 5\text{Pa}\cdot\text{s}$ 之範圍最佳。此處所

謂之樹脂清漆係指樹脂或樹脂之先質分散或溶解於有機溶劑之狀態之液體。

(衝孔步驟及填隙步驟)

塗佈有本發明之樹脂之磁性金屬薄板(亦即磁性基材)，可藉由衝孔並將之重疊所需之片數，藉由塑性變形以接合而作成積層體。可使用填隙作為藉塑性變形而接合之方法。此步驟係先利用公知之磁性金屬薄板的形狀加工技術之加壓衝孔加工，切割成指定之形狀，接著破壞材料之一部份，並將兩片以上金屬薄板接合之公知的填隙加工，將多塊磁性金屬薄板接合，作成積層體。以使用輔助填隙步驟作為填隙步驟為佳。但是，衝孔之磁性金屬薄板材料在薄至數十 μm ~數百 μm 之情況，僅以填隙難以達成充分的接合強度，故藉由本發明之一邊加壓一邊加熱一體化步驟，進行樹脂連接。

(積層一體化)

本發明中之「積層一體化」係指在將由高分子化合物層與磁性金屬薄板所構成之磁性基材的積層體重疊所需之片數後，一邊加壓、一邊加熱，使高分子化合物間熔黏，以使磁性基材之間結合。

在製作附加樹脂於金屬磁性薄板之磁性基材之積層體時，例如，可藉由使用熱壓或熱輥等而予以積層一體化。加壓時之溫度係因耐熱樹脂之種類而異，但以在本發明所使用之高分子化合物之玻璃轉移溫度以上之軟化或熔融溫度附近使之積層黏接為佳。高分子化合物塗佈於磁性金屬

薄板上後，溶劑即被去除。其後，將磁性金屬薄板積層多片，使之積層一體化，同時進行電之導通點之生成步驟。

(熱處理方法)

本發明之磁性金屬薄板在可藉由對磁性金屬薄板熱處理而改善鐵損或透磁率等磁特性之情況，以進行熱處理為佳。此時，在所塗佈之樹脂不因熱處理而失去金屬間黏接力之範圍內進行熱處理係屬重要。作為經此熱處理而大幅提昇磁特性之磁性金屬薄板，有非晶質磁性金屬薄帶或奈米結晶金屬磁性薄帶材料等。作為用以提升磁特性之熱處理溫度，通常係在非活性氣體環境下或真空下進行，而使良好磁特性提昇之溫度係約為 300℃~700℃，以 350℃~600℃ 為佳。又，亦可視目的而於磁場中進行。

[實施例]

體積佔有率係由如下式定義之式而計算。

(體積佔有率(%))=((((非晶質金屬薄帶厚度)×(積層片數))/(積層後之積層體厚度))×100

體積電阻率係以 JIS H 0505 為基準而導出。

熱傳導率係以 JIS R 1611 為基準而求出。

(實施例 1)

使用霍尼韋爾(Honeywell)公司製之 Metglas:

2605TCA(商品名)作為磁性金屬薄板，其為寬度約 142mm、厚度約 25 μm 之具有 Fe₇₈B₁₃Si₉(原子%)之組成的非晶質金屬薄帶。於該薄帶之整個單面上，利用輥塗佈機將 E 型黏度計測定時 25℃ 下黏度約 0.3Pa·s 之聚醯胺酸溶液予以

塗佈，在 140℃ 下乾燥後，於 260℃ 下進行硬化(curing)，附加約 4 微米之耐熱樹脂(聚醯亞胺樹脂)於非晶質金屬薄帶之單面。聚醯亞胺樹脂係將 3,3'-二胺基二苯基醚與 3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐以 1:0.98 之比例混合，並於室溫下在二甲基乙醯胺溶劑中進行縮聚合而得者。

進一步將塗佈樹脂所得之磁性基材切割成 50mm 方形，積層 50 片之後，在氮氣環境中以 270℃、10MPa 加壓 30 分鐘，使之積層一體化後，在 370℃、1MPa 下進行 2 小時之熱處理。其後，測定體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，以作為評估用。並測量由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

另外，本發明之體積電阻率係以 JIS H 0505 為基準而導出。測定體積電阻率之樣本形狀係作成 40×40×0.7(mm)之長方體形狀。電阻率之測定係使用惠普公司製 HP4284A，使探針接觸測定樣本之上下面，測定直流電阻值，並自測定之電阻值與樣本形狀，使用 JIS H 0505 之平均截面積法而導出。

溫度上升之測定係施加交變磁場而進行。亦即，將本實施例之磁性基材以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀，將其積層 50 片後，在氮氣環境中以 270℃、10MPa，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化，再於 370℃、1MPa 下進行 2 小時之熱處理。於 1 次側施行 25 轉、2 次側施行 25 轉被覆銅線，利用交流放大器對 1 次捲線施加 1kHz 之電流，施加 1T 交變磁場。藉由 K 型熱電偶測定溫度上升(表

面溫度與室溫之差)。

結果示於表 1。

(實施例 2)

使用霍尼韋爾公司製之 Metglas: 2714A(商品名)作為磁性金屬薄板，其為寬度約 50mm、厚度約 $15\mu\text{m}$ 之具有 $\text{Co}_{66}\text{Fe}_4\text{Ni}_1(\text{BSi})_{29}$ (原子%)之組成的非晶質金屬薄帶。於該薄帶之整個單面上，利用輥塗佈機將 E 型黏度計測定時 25°C 下黏度約 $0.3\text{Pa}\cdot\text{s}$ 之聚醯胺酸溶液予以塗佈，在 140°C 下乾燥後，於 260°C 下進行硬化，附加約 4 微米之耐熱樹脂(聚醯亞胺樹脂)於非晶質金屬薄帶之單面。聚醯亞胺樹脂係將 3,3'-二胺基二苯基醚與 3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐以 1:0.98 之比例混合，並於室溫下在二甲基乙醯胺溶劑中進行縮聚合而得者。

進一步將塗佈樹脂所得之磁性基材切割成 30mm 方形，積層 50 片之後，在氮氣環境中以 270°C 、10MPa 加壓 30 分鐘，使之積層一體化後，在 400°C 、1MPa 下進行 2 小時之熱處理。其後，測定體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，作為評估用。並測定由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，將本實施例之磁性基材以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 50 片後，在氮氣環境中以 270°C 、10MPa 之條件，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化。再於 400°C 、1MPa 下進行 2 小時之熱處理。於 1 次側施行 25 轉、2 次側施行

25 轉被覆銅線，利用交流放大器施加 1kHz 之電流，並施加 0.3T 之交變磁場。藉由 K 型熱電偶測定溫度上升（表面溫度與室溫之差）。

結果示於表 1。

（實施例 3）

使用日立金屬（股）製之 Finemet（商品名）FT-3 作為磁性金屬薄板，其為寬度約 35mm、厚度約 $18\mu\text{m}$ 之具有 Fe、Cu、Nb、Si、B 之元素組成的奈米結晶磁性金屬薄帶。塗佈與實施例 1 同樣的樹脂，作成磁性基材，將其切割成 30mm 方形，積層 50 片之後，在氮氣環境中以 270°C 、10MPa 加壓 30 分鐘，使之積層一體化後，在 550°C 、1MPa 下進行 1.5 小時之熱處理。其後，測定體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，作為評估用。並測定由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，自本實施例之磁性基材以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 50 片後，在氮氣環境中以 270°C 、10MPa 之條件，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化。再於 550°C 、1MPa 下進行 2 小時之熱處理。於 1 次側施行 25 轉、2 次側施行 25 轉被覆銅線，利用交流放大器施加 1kHz 之電流，並施加 0.3T 之交變磁場。藉由熱電偶測定溫度上升（表面溫度與室溫之差）。

結果示於表 1。

（實施例 4）

使用新日本製鐵(股)製之薄的海萊特柯爾(商品名)20HTH1500作為磁性金屬薄板，其為寬度約150mm、厚度約 $200\mu\text{m}$ 之矽鋼板。塗佈與實施例1同樣的樹脂，作成磁性基材，將其切割成30mm方形，積層5片之後，在氮氣環境中以 270°C 、10MPa加壓30分鐘，使之積層一體化。之後，測定體積佔有率與由JISH 0505所規定之體積電阻率，作為評估用。並測定由JISR 1611所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，自本實施例之磁性基材以模具衝孔出外徑40mm、內徑25mm之環形狀。將此環積層5片後，在氮氣環境中以 270°C 、10MPa之條件，用熱壓機加壓30分鐘使之積層一體化。於1次側施行25轉、2次側施行25轉被覆銅線，利用交流放大器施加1kHz之電流，並施加0.3T之交變磁場。藉由熱電偶測定溫度上升(表面溫度與室溫之差)。

結果示於表1。

(實施例5)

使用霍尼韋爾公司製之Metglas: 2605TCA(商品名)作為磁性金屬薄板，其為寬度約142mm、厚度約 $25\mu\text{m}$ 之具有 $\text{Fe}_{78}\text{B}_{13}\text{Si}_9$ (原子%)之組成的非晶質金屬薄帶。將作為環氧樹脂之YDB-530(東都化成)90份、YDCN-704(東都化成)10份；作為硬化劑之二氰基二醯胺3份；作為硬化促進劑之咪唑2E4MZ 0.1份；以及作為溶劑之甲基賽路蘇30份子以混合，並適量添加甲基乙基酮，調製固形份50%之清漆。將此清漆塗佈於磁性金屬薄帶，製作以 150°C 、20秒半硬

化之磁性基材。樹脂厚度係調製成硬化後 $4\mu\text{m}$ 。將附加半硬化狀態之樹脂而得之磁性基材切割成 50mm 方形，積層 50 片之後，在氮氣環境中以 270°C 、 10MPa 加壓 30 分鐘，使之積層一體化後，在 150°C 、 10MPa 下進行 2 小時之硬化處理。其後，測定體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，作為評估用。並測定由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，以與積層板同樣的方法，自於金屬薄帶上塗佈有半硬化樹脂之材料以模具衝孔出外徑 40mm 、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 50 片後，以 150°C 、 10MPa 之條件以熱壓機加壓使之積層一體化。於 1 次側施行 25 轉、2 次側施行 25 轉被覆銅線，利用交流放大器對 1 次繞組施加 1kHz 之電流，並施加 1T 之交變磁場。藉由 K 型熱電偶測定溫度上升（表面溫度與室溫之差）。

結果示於表 1。

（實施例 6）

使用新日本製鐵（股）製之薄的海萊特柯爾（商品名）20HTH1500 作為磁性金屬薄板，其為寬度約 150mm 、厚度約 $200\mu\text{m}$ 之矽鋼板。與實施例 5 同樣地塗佈 $6\mu\text{m}$ 樹脂，得到磁性基材。

此外，將使上述樹脂半硬化所得之磁性基材切割成 30mm 方形，積層 5 片之後，以 150°C 、 10MPa 加壓 30 分鐘，使之積層一體化。之後，測定體積佔有率與由 JIS H 0505

所規定之體積電阻率，作為評估用。並測定由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，自本實施例之磁性基材以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 5 片後，以 150℃、10MPa 之條件，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化。於 1 次側施行 25 轉、2 次側施行 25 轉被覆銅線，利用交流放大器施加 1kHz 之電流，並施加 0.3T 之交變磁場。藉由熱電偶測定溫度上升（表面溫度與室溫之差）。

結果示於表 1。

（實施例 7）

使用實施例 1 所使用之霍尼韋爾公司製之 Metglas：2605TCA（商品名）作為磁性金屬薄板，其寬度約 142mm、厚度約 25 μ m，以與實施例 1 相同之方法，賦予 4 微米之耐熱樹脂（聚醯亞胺樹脂），得到磁性基材。

進一步將磁性基材切割成 50mm 方形，積層 50 片之後，於氮氣環境中以 270℃、10MPa 加壓 30 分鐘，使之積層一體化後，以 370℃、15MPa 熱處理 2 小時。之後，測定體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，作為評估用。並測定由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，自本實施例之磁性基材以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 50 片後，於氮氣環境中以 270℃、10MPa 之條件，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化。再於 370℃、15MPa

下熱處理 2 小時。

與實施例 1 同樣地測定溫度上升。

結果示於表 1。

(實施例 8)

使用實施例 1 所使用之霍尼韋爾公司製之 Metglas: 2605TCA(商品名)作為磁性金屬薄板，其寬度約 142mm、厚度約 $25\mu\text{m}$ ，以與實施例 1 相同之方法，賦予 6 微米之耐熱樹脂(聚醯亞胺樹脂)，得到磁性基材。

進一步將磁性基材切割成 50mm 方形，積層 50 片之後，於氮氣環境中以 270°C 、10MPa 加壓 30 分鐘，使之積層一體化後，以 450°C 、100MPa 熱處理 2 小時。之後，測定體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，作為評估用。並測定由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，自本實施例之磁性基材以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 50 片後，於氮氣環境中以 270°C 、10MPa 之條件，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化。再於 450°C 、100MPa 下熱處理 2 小時。

與實施例 1 同樣地測定溫度上升。

結果示於表 1。

(實施例 9)

使用霍尼韋爾公司製之 Metglas: 2605TCA(商品名)作為磁性金屬薄板，其為寬度約 213mm、厚度約 $25\mu\text{m}$ 之具有 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ (原子%)之組成的非晶質金屬薄帶。

將 3,3'-二胺基二苯基醚與 3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐以 1:0.98 之比例混合，於室溫下於二甲基乙醯胺溶劑中進行縮聚合，作成聚醯胺酸溶液（黏度 0.3MPa，室溫，使用 E 型黏度計）。將此聚醯胺酸溶液分別附加於薄帶及矽鋼板（新日本製鐵（股）製：薄的海萊特柯爾，20HTH1500（寬度 200mm、厚度 200 μ m））之單面，以 140℃ 乾燥後，在 260℃ 下聚醯亞胺化，在非晶質金屬薄帶之單面上附加厚度約 4 μ m 之耐熱樹脂（聚醯亞胺樹脂），製成磁性基材。

接著，將該磁性基材切成 50mm 方形後，交互重疊 10 層，以熱輥與加壓輥在大氣中以 260℃ 進行 30 分鐘、5MPa 之加壓黏著，製作積層體。進而為顯現磁特性，利用輸送帶爐在 370℃（1MPa）氮氣環境中進行 2 小時之熱處理，作成磁性基材。其後，測定體積佔有率與由 JISH 0505 所規定之體積電阻率以作為評估用。再測定由 JISR 1611 所規定之熱傳導率。

結果示於表 1。

（實施例 10）

使用非晶質金屬薄帶（霍尼韋爾公司製，Metglas（註冊商標）：2605TCA，寬度約 213mm、厚度約 25 μ m 之具有 $\text{Fe}_{78}\text{Si}_9\text{B}_{13}$ （at%）之組成的非晶質金屬薄帶）作為磁性金屬薄板。在此薄帶之兩面整面上，附加黏度 0.3Pa·s 之聚醯胺酸溶液，於 150℃ 下使溶劑揮發後，在 250℃ 下製成聚醯亞胺樹脂，於磁性金屬薄板之單面上附加厚度約 4 微米之耐熱性樹脂（聚醯亞胺樹脂），製作非晶質金屬薄帶。作為

耐熱性樹脂，使用屬聚醯亞胺之先質的以 3,3'-二胺基二苯基醚為二胺、雙(3,4-二羧基苯基)醚二酐為四羧酸二酐而得之聚醯胺酸，溶解於二甲基乙醯胺溶劑，並塗佈在非晶質金屬薄帶上，藉由以 250℃ 在非晶質金屬薄帶上加熱，製成聚醯亞胺樹脂，得到磁性基材。

將此磁性基材衝孔成 50mm 方形之條狀，進行積層並藉由填隙而製作積層體。再於 270℃、5MPa 下加熱 30 分鐘，使非晶質金屬薄帶之聚醯亞胺樹脂層熔融，並使金屬薄帶彼此黏接，使之積層一體化。此積層體之體積佔有率係 90%。進一步於 370℃、1MPa 下對積層體進行 2 小時之熱處理。

結果示於表 1。

(比較例 1)

使用霍尼韋爾公司製之 Metglas: 2605TCA(商品名)作為磁性金屬薄板，其為寬度約 142mm、厚度約 25 μm 之具有 $\text{Fe}_{78}\text{B}_{13}\text{Si}_9$ (原子%)之組成的非晶質金屬薄帶。於該薄帶之整個單面上，利用輥塗佈機將 E 型黏度計測定時 25℃ 下黏度約 0.3Pa·s 之聚醯胺酸溶液予以塗佈，在 140℃ 下乾燥後，於 260℃ 下進行硬化，附加約 6 微米之耐熱樹脂(聚醯亞胺樹脂)於非晶質金屬薄帶之單面。聚醯亞胺樹脂係將 3,3'-二胺基二苯基醚與 3,3',4,4'-聯苯四羧酸二酐以 1:0.98 之比例混合，並於室溫下在二甲基乙醯胺溶劑中進行縮聚合而得者。

進一步將塗佈樹脂所得之磁性基材切割成 50mm 方形，積

層 50 片之後，在氮氣環境中，除了在 370℃、0.05MPa 下進行 2 小時之熱處理以外，其餘與實施例 1 相同地進行處理。其後，測量體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，以作為評估用。再測量由 JIS R 1611 所規定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，以與積層板同樣的方法，自於金屬薄帶上塗佈有樹脂之材料以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 50 片後，在氮氣環境中以 270℃、10MPa 之條件，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化。再於 370℃、0.05MPa 下進行 2 小時之熱處理。於 1 次側施行 25 轉、2 次側施行 25 轉被覆銅線，利用交流放大器施加 1kHz 之電流，並施加 1T 之交變磁場。藉由熱電偶測定溫度上升（表面溫度與室溫之差）。

結果示於表 1。

（比較例 2）

使用於實施例 1 所使用之霍尼韋爾公司製之 Metglas：2605TCA（商品名）作為磁性金屬薄板，其寬度約 142mm、厚度約 25 μ m，以與實施例 1 相同的方法附加 4 μ m 之耐熱樹脂（聚醯亞胺樹脂）。

進一步將塗佈樹脂所得之磁性基材切割成 50mm 方形，積層 50 片之後，在氮氣環境中以 270℃、10MPa 加壓 30 分鐘使之積層一體化後，於 450℃、800MPa 下進行 2 小時之熱處理。其後，測量體積佔有率與由 JIS H 0505 所規定之體積電阻率，以作為評估用。再測量由 JIS R 1611 所規

定之熱傳導率。

為了測定施加交變磁場時之溫度上升，以與積層板同樣的方法，自於金屬薄帶上塗佈有樹脂之材料以模具衝孔出外徑 40mm、內徑 25mm 之環形狀。將此環積層 50 片後，在氮氣環境中以 270℃、10MPa 之條件，用熱壓機加壓 30 分鐘使之積層一體化。再於 450℃、800MPa 下進行 2 小時之熱處理。

與實施例 1 同樣地測定溫度上升。

將上述結果整理於下表。

(表 1)

	體積電阻率 $\Omega \text{ cm}$	體積佔有率 %	熱傳導率 W/mk	溫度上升 $^{\circ}\text{C}$
實施例 1	1.2×10^2	87	3	15
實施例 2	9×10^2	80	3	5
實施例 3	5×10^2	91	2.8	8
實施例 4	6×10^2	95	2.4	20
實施例 5	1.5×10^2	87	2.9	18
實施例 6	6.7×10^2	95	2.5	20
實施例 7	1.1×10^2	88	3.1	17
實施例 8	0.8×10^2	91	3.3	23
比較例 1	1.2×10^8	78	0.12	35
比較例 2	0.05	93	3.5	30

由表 1 可知，藉由設定為本發明之體積電阻率，本發明之磁性金屬積層體之熱傳導率高、放熱性高，可將溫度上升壓低，對磁芯之小型化、高性能化有著顯著之效果。

(產業上之可利用性)

本發明可應用於使用軟磁性材料之多種用途。例如可當作電感、抗流線圈、高頻變壓器、低頻變壓器、電抗器、脈波變換器、升壓變壓器、雜訊過濾器、變壓器用變換器、

磁阻抗元件、磁致伸縮振動器、磁感應器、磁頭、電磁屏蔽、遮蔽連接器、遮蔽外殼、電波吸收體、馬達、發電器用芯、天線用芯、磁碟、磁應用運送系統、磁鐵、電磁螺線管、致動器用芯、印刷電路基板、磁芯等之各種電子機器或電子零件之功能之材料使用。

五、中文發明摘要：

本發明提供一種熱傳導率高之磁性基材之積層體，由於磁性金屬薄板與高分子化合物所構成之磁性基材之積層體在向外部釋放出因其鐵損(iron loss)所發出之熱時，熱傳導率低且放熱性不佳，故提出本發明用以解決上述問題。

作為其解決手段，係在由高分子化合物層與磁性金屬薄板所構成之磁性基材之積層體中，使用特徵為垂直於積層體之高分子化合物層面之方向上之由 JIS H 0505 所定義之體積電阻率未滿 $10^8 \Omega \text{ cm}$ 之磁性基材之積層體。該積層體係藉由對積層體予以加壓，將積層體內部之高分子化合物排出於積層體外部，並設置磁性金屬薄板間之電導通點者。

六、英文發明摘要：

When generated heat is released outwards due to the iron loss of a laminate of a magnetic base material from a magnetic metal thin plate and a polymer compound, the thermal conductivity and the radiation of heat are inferior; therefore, an object of the present invention is to provide a laminate from magnetic base material of high thermal conductivity.

In a laminate of magnetic base material from a polymer compound layer and a magnetic metal thin plate, a laminate from magnetic base material characterized in that the volume resistivity in the direction perpendicular to the plane of polymer compound layer of the laminate defined by JIS H 0505 being less than $10^8 \Omega \text{ cm}$ is used. By pressing the laminate, the polymer compound inside the laminate is extruded, and between the magnetic metal thin plates, electrical conducting points are arranged.

十、申請專利範圍：

1. 一種磁性基材之積層體，其特徵為，係由高分子化合物層與磁性金屬薄板所構成之磁性基材之積層體，金屬彼此在薄板間為局部接觸，垂直於積層體之黏接面方向之由 JIS H 0505 所定義之體積電阻率為 $0.1 \sim$ 未滿 $10^8 \Omega \text{ cm}$ 。

2. 如申請專利範圍第 1 項之磁性基材之積層體，其中，上述高分子化合物層係覆蓋上述磁性金屬薄板之積層黏接面面積之 50% 以上，垂直於積層體之黏接面方向之由 JIS H 0505 所定義之體積電阻率為 $1 \Omega \text{ cm}$ 以上、 $10^6 \Omega \text{ cm}$ 以下。

3. 如申請專利範圍第 1 項之磁性基材之積層體，其中，作為使用於上述磁性基材之積層體之構成磁性基材之磁性金屬薄板，係使用二種類以上之磁性金屬薄板。

4. 如申請專利範圍第 1 項之磁性基材之積層體，其中，上述磁性金屬薄板為由非晶質金屬、奈米結晶磁性金屬或矽鋼板所選出之至少二種以上之金屬。

5. 如申請專利範圍第 3 項之磁性基材之積層體，其中，上述磁性金屬薄板為非晶質金屬與矽鋼板。

6. 一種申請專利範圍第 1 項之磁性基材之積層體之製造方法，其特徵為，係將兩片以上之由高分子化合物層與磁性金屬薄板所構成之磁性基材重疊，使金屬彼此在薄板間以局部接觸的方式以 $0.2 \sim 100 \text{ MPa}$ 加壓。

7. 一種申請專利範圍第 1 項之磁性基材之積層體之製造方法，其特徵為，將高分子化合物以磁性金屬薄板面積之 50% 以上的方式塗佈在該磁性金屬薄板上後，進行乾燥，將

所得之磁性金屬薄板予以衝孔並重疊，且使之塑性變形，將之以 0.2~100MPa 加壓並加熱，使之積層一體化而得。

8. 如申請專利範圍第 7 項之磁性基材之積層體之製造方法，其中，塑性變形之方法係填隙(calking)步驟。

9. 如申請專利範圍第 1 或 3 項之磁性基材之積層體，其係使用於變壓器、感應線圈、天線之任何一者。

10. 如申請專利範圍第 1 或 3 項之磁性基材之積層體，其係使用在馬達或發電機之定子(stator)或轉子(rotor)之磁芯材料。

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第()圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無