

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6715523号
(P6715523)

(45) 発行日 令和2年7月1日(2020.7.1)

(24) 登録日 令和2年6月11日(2020.6.11)

(51) Int. Cl.		F I	
CO8L	63/02	(2006.01)	CO8L 63/02
CO8G	59/50	(2006.01)	CO8G 59/50
CO8K	3/013	(2018.01)	CO8K 3/013
CO8L	9/00	(2006.01)	CO8L 9/00

請求項の数 4 (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願2017-517590 (P2017-517590)	(73) 特許権者	314012076 パナソニックIPマネジメント株式会社 大阪府大阪市中央区城見2丁目1番61号
(86) (22) 出願日	平成28年3月3日(2016.3.3)	(74) 代理人	100095500 弁理士 伊藤 正和
(86) 国際出願番号	PCT/JP2016/001153	(72) 発明者	小谷 友規 大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内
(87) 国際公開番号	W02016/181591	(72) 発明者	余田 浩好 大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内
(87) 国際公開日	平成28年11月17日(2016.11.17)	(72) 発明者	岸 肇 兵庫県神戸市西区学園西町8-2-1 公立大学法人兵庫県立大学内
審査請求日	平成29年8月22日(2017.8.22)		
審判番号	不服2019-9154 (P2019-9154/J1)		
審判請求日	令和1年7月8日(2019.7.8)		
(31) 優先権主張番号	特願2015-97842 (P2015-97842)		
(32) 優先日	平成27年5月13日(2015.5.13)		
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

エポキシ樹脂と硬化剤と液状ゴムとを含有するエポキシ樹脂組成物であって、
前記エポキシ樹脂はビスフェノールA型ジグリシジルエーテルであり、前記硬化剤はポリオキシプロピレンジアミンであり、前記液状ゴムは末端にヒドロキシ基を有する液状ブタジエンゴムであり、

前記エポキシ樹脂組成物が硬化したとき、前記エポキシ樹脂が主成分のエポキシ樹脂リッチ相と前記液状ゴムが主成分の液状ゴムリッチ相とを有する相分離構造を形成し、かつ、JIS K 6253に規定のタイプEデュロメータで測定した硬さが80以下であることを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項2】

充填材をさらに含有することを特徴とする請求項1に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項3】

硬化した前記エポキシ樹脂組成物は、第1樹脂が三次元的に連続する第1樹脂相と、前記第1樹脂相と相違し、第2樹脂により形成される第2樹脂相とを備えた相分離構造を有し、

前記第1樹脂及び前記第2樹脂のいずれか一方に含まれる前記液状ゴムの含有量は、前記第1樹脂及び前記第2樹脂の他方に含まれる前記液状ゴムの含有量よりも多いことを特徴とする請求項1又は2に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項4】

前記エポキシ樹脂と硬化剤からなる成分と、前記液状ゴムとの体積比率が、70 : 30 ~ 20 : 80であることを特徴とする請求項1乃至3のいずれか一項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【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に関する。詳細には、本発明は、高い柔軟性を有するエポキシ樹脂組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

エポキシ樹脂は硬化剤と反応させると三次元架橋硬化物となり、得られた硬化物は機械的強度、耐熱性、電気絶縁性及び耐薬品性が高いなどの特徴を備えている。そのため、エポキシ樹脂は塗料、接着剤、積層板、封止材等として建材分野から電子材料分野まで幅広く用いられている。しかしながら、エポキシ樹脂は三次元に架橋しているが故に、その硬化物は脆く、耐衝撃性及び可撓性が低いことが知られている。また、例えば、半導体パッケージ材料に用いられる液状封止材やフレキシブルプリント配線板においては、可撓性に優れたエポキシ樹脂が求められている。

【0003】

そのため、可撓性を改善するために、エポキシ樹脂にゴム変性やシリコン変性などの柔軟性の高い骨格を導入し、樹脂自体の性質を改良する試みが検討されている。例えば、特許文献1では、柔軟性骨格及び極性結合基を有するビスフェノールA型エポキシ樹脂と、二個以上のチオール基を有するポリチオールとを含有して成るエポキシ樹脂組成物が開示されている。このようにエポキシ樹脂に柔軟性骨格を含有させることで、その柔軟性骨格の部分で硬化物が変形して柔軟性、可撓性を有することになり、応力を吸収することが可能となる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開2006-36935号公報

【発明の概要】

【0005】

しかしながら、エポキシ樹脂に柔軟性骨格を含有させるだけでは、柔軟性をさらに高めることが難しい。また、たとえ柔軟性骨格を含有させたとしても、例えば充填材が添加された場合、柔軟性が損なわれる恐れがあった。

【0006】

本発明は、このような従来技術の有する課題に鑑みてなされたものである。そして、本発明の目的は、高い柔軟性を有するエポキシ樹脂組成物を提供することにある。

【0007】

上記課題を解決するために、本発明の態様に係るエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂と硬化剤と液状ゴムとを含有する。そして、当該エポキシ樹脂組成物が硬化したとき、2以上の相に分離した相分離構造を形成し、かつ、JIS K6253に規定のタイプEデュロメータで測定した硬さが80以下である。

【図面の簡単な説明】

【0008】

【図1】図1は相分離構造を説明するための概略図であり、(a)は海島構造を示し、(b)は連続球状構造を示し、(c)は複合分散構造を示し、(d)は共連続構造を示す。

【図2】図2は、実施例1の樹脂板の断面をレーザー顕微鏡で観察した結果を示す写真である。

【図3】図3(a)は、実施例1の樹脂板の断面を顕微鏡で観察した結果を示す写真である。図3(b)は、図3(a)のa)地点及びb)地点におけるラマンスペクトルを示す

10

20

30

40

50

グラフである。

【図4】図4は、実施例1の樹脂板の断面をラマン分光分析した結果を示す。(a)はベンゼン環(DGEB A)に由来するラマンマッピング像を示し、(b)はC=C結合(ブタジエン)に由来するラマンマッピング像を示す。

【図5】図5は、実施例2の樹脂板の断面をレーザー顕微鏡で観察した結果を示す写真である。

【図6】図6(a)は、実施例2の樹脂板の断面を顕微鏡で観察した結果を示す写真である。図6(b)は、図6(a)における符号Bで示す範囲の拡大写真である。図6(c)は、図6(b)のa)地点及びb)地点におけるラマンスペクトルを示すグラフである。

【図7】図7は、実施例2の樹脂板の断面をラマン分光分析した結果を示す。(a)はベンゼン環(DGEB A)に由来するラマンマッピング像を示し、(b)はC=C結合(ブタジエン)に由来するラマンマッピング像を示す。

【図8】図8は、実施例3の樹脂板の断面を走査型電子顕微鏡で観察した結果を示す写真である。

【図9】図9は、実施例4の樹脂板の断面を走査型電子顕微鏡で観察した結果を示す写真である。

【発明を実施するための形態】

【0009】

以下、本実施形態に係るエポキシ樹脂組成物について詳細に説明する。なお、図面の寸法比率は説明の都合上誇張されており、実際の比率とは異なる場合がある。

【0010】

本実施形態に係るエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂と硬化剤と液状ゴムとから形成される樹脂組成物である。そして、当該エポキシ樹脂組成物が硬化したとき、2以上の相に分離した相分離構造を形成している。

【0011】

上述のように、エポキシ樹脂は硬化剤と反応させると三次元架橋硬化物となり、得られた硬化物は機械的強度、耐熱性、電気絶縁性及び耐薬品性が高いなどの特徴を備えている。しかしながら、エポキシ樹脂は三次元に架橋しているため、その硬化物は柔軟性が低いことが知られている。

【0012】

そのため、本実施形態のエポキシ樹脂組成物では、エポキシ樹脂に柔軟性を付与するために液状ゴムを添加している。液状ゴムは、架橋反応や鎖延長反応によってゴム弾性体となる合成ゴムである。そして、このような液状ゴムを添加することで、液状ゴムの柔軟性に起因してエポキシ樹脂組成物の柔軟性も高めることが可能となる。

【0013】

さらに、本実施形態では、エポキシ樹脂組成物が硬化したとき、2以上の相に分離した相分離構造を形成している。具体的には、主としてエポキシ樹脂と硬化剤とが反応して得られた硬化物からなるエポキシ樹脂リッチ相と、主として液状ゴムからなる液状ゴムリッチ相とを有する相分離構造を備えている。このような相分離構造を形成することにより液状ゴムリッチ相が高分散し、エポキシ樹脂組成物の柔軟性を高め、可撓性を有することが可能となる。また、相分離構造を形成することで、エポキシ樹脂リッチ相の内部に液状ゴムリッチ相が包含されるか、液状ゴムリッチ相の内部にエポキシ樹脂リッチ相が包含されるか、または隣接するエポキシ樹脂リッチ相の間に液状ゴムリッチ相が介在することになる。そのため、液状ゴムリッチ相が緩衝材としての役割を果たすため、内部応力を吸収し、柔軟性及び可撓性を高めることが可能となる。

【0014】

より詳細に説明すると、本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、第1樹脂が三次元的に連続する第1樹脂相と、第1樹脂相と相違し、第2樹脂により形成される第2樹脂相とを備えた相分離構造を有していることが好ましい。そして、第1樹脂及び第2樹脂のいずれか一方に含まれる液状ゴムの含有量は、第1樹脂及び第2樹脂の他方に含まれる液状ゴムの

10

20

30

40

50

含有量よりも多いことが好ましい。このように、エポキシ樹脂組成物が第1樹脂相と第2樹脂相の二相に分離し、さらに第1樹脂に含まれる液状ゴムの含有量が第2樹脂よりも多いか、又は第2樹脂に含まれる液状ゴムの含有量が第1樹脂よりも多くすることで、柔軟性をより高めることができる。

【0015】

本実施形態における相分離構造とは、海島構造、連続球状構造、複合分散構造、共連続構造のいずれかをいう。海島構造は、図1(a)に示すように、体積の小さい分散相2が連続相1に分散された構造をいい、微粒子状や球状の分散相2が連続相1の中に散在する構造である。連続球状構造は、図1(b)に示すように、略球状の分散相2が連結し、連続相1中に分散した構造である。複合分散構造は、図1(c)に示すように、分散相2が連続相1の中に散在し、さらに分散相2中に連続相1を構成する樹脂が散在している構造である。共連続構造は、図1(d)に示すように、連続相1と分散相2とが複雑な三次元の網目状を形成している構造である。

10

【0016】

なお、海島構造、連続球状構造、複合分散構造及び共連続構造のような相分離構造は、樹脂組成物の硬化速度や反応温度等の硬化条件、並びにエポキシ樹脂及び液状ゴムの相溶性及び配合比を制御することにより得ることができる。また、本実施形態のエポキシ樹脂組成物では、エポキシ樹脂、硬化剤及び液状ゴムからなる樹脂成分と、充填材との含有比率を調整することにより、上述の海島構造や共連続構造といった相分離構造を選択することが可能となる。

20

【0017】

上述のように、エポキシ樹脂組成物では、第1樹脂相を構成する第1樹脂に含まれる液状ゴムの含有量が第2樹脂相を構成する第2樹脂よりも多いか、又は第2樹脂に含まれる液状ゴムの含有量が第1樹脂よりも多いことが好ましい。つまり、第1樹脂に含まれる液状ゴムの含有量が質量比で第2樹脂よりも多いか、又は第2樹脂に含まれる液状ゴムの含有量が質量比で第1樹脂よりも多いことが好ましい。また、第1樹脂に含まれる液状ゴムの含有量がモル比で第2樹脂よりも多いか、又は第2樹脂に含まれる液状ゴムの含有量がモル比で第1樹脂よりも多いことが好ましい。

【0018】

エポキシ樹脂組成物では、第1樹脂相を構成する第1樹脂がエポキシ樹脂及び液状ゴムのいずれか一方を主成分とし、第2樹脂相を構成する第2樹脂がエポキシ樹脂及び液状ゴムの他方を主成分とすることも好ましい。つまり、第1樹脂は、エポキシ樹脂及び液状ゴムのいずれか一方を50質量%以上含有することが好ましく、70質量%以上含有することがより好ましく、90質量%以上含有することが特に好ましい。また、第2樹脂は、エポキシ樹脂及び液状ゴムの他方を50質量%以上含有することが好ましく、70質量%以上含有することがより好ましく、90質量%以上含有することが特に好ましい。

30

【0019】

ここで、上述の相分離構造において、エポキシ樹脂が主成分のエポキシ樹脂リッチ相は、エポキシ樹脂と硬化剤とが反応してなる硬化物だけでなく、液状ゴムも含有していることが好ましい。つまり、エポキシ樹脂リッチ相はエポキシ樹脂が主成分であるが、液状ゴムも含有していることにより、エポキシ樹脂リッチ相自体の柔軟性も向上するため、得られるエポキシ樹脂組成物全体の柔軟性をより高めることが可能となる。また、逆に、液状ゴムが主成分の液状ゴムリッチ相は、液状ゴムだけでなく、エポキシ樹脂と硬化剤とが反応してなる硬化物も含有していることが好ましい。つまり、液状ゴムリッチ相は液状ゴムが主成分であるが、当該硬化物も含有していることにより、液状ゴムリッチ相の硬度も向上するため、液状ゴムリッチ相の耐久性を高めることが可能となる。

40

【0020】

本実施形態のエポキシ樹脂組成物が海島構造である場合、連続相1は、エポキシ樹脂リッチ相であってもよく、また液状ゴムリッチ相であってもよい。ただ、連続相1を液状ゴムリッチ相とした場合、液状ゴムリッチ相がエポキシ樹脂リッチ相を覆う構成となる。そ

50

のため、液状ゴムリッチ相の割合が増加することから、エポキシ樹脂組成物の硬さがより低下し、柔軟性をさらに高めることが可能となる。

【0021】

本実施形態において、エポキシ樹脂は、公知のものを用いることができる。例えば、ビスフェノールAとエピクロロヒドリンとの縮合反応により得られるビスフェノールA型エポキシ樹脂を使用することができる。また、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ナフタレンジオール型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂を用いることができる。クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、環状脂肪族エポキシ樹脂、複素環式エポキシ樹脂（トリグリシジルイソシアヌレート、ジグリシジルヒダントイン等）を用いることもできる。さらに、これらのエポキシ樹脂を種々の材料で変性させた変性エポキシ樹脂等も使用することができる。また、これらのエポキシ樹脂の臭素化物、塩素化物等のハロゲン化物も用いることができる。エポキシ樹脂は、これらのうちの一種を単独で使用してもよく、二種以上を組み合わせ使用してもよい。この中でも、エポキシ樹脂は、ビスフェノールA型エポキシ樹脂であることが特に好ましい。

10

【0022】

エポキシ樹脂を硬化させるための硬化剤としては、エポキシ基と反応し得る活性基を有する化合物であれば、如何なるものも用いることができる。公知のエポキシ硬化剤を適宜用いることができるが、特にアミノ基、酸無水物基、ヒドロキシフェニル基を有する化合物が適している。例えば、ジシアンジアミド及びその誘導体、有機酸ヒドラジット、アミンイミド、脂肪族アミン、芳香族アミン、3級アミン、ポリアミンの塩、マイクロカプセル型硬化剤、イミダゾール型硬化剤、酸無水物、フェノールノボラック等が挙げられる。硬化剤は、これらのうちの一種を単独で使用してもよく、二種以上を組み合わせ使用してもよい。この中でも、硬化剤は、脂肪族アミンであることが特に好ましい。

20

【0023】

脂肪族アミンとしては、エチレンジアミン、1,3 ジアミノプロパン、1,4 ジアミノプロパン、ヘキサメチレンジアミン、2,5 ジメチルヘキサメチレンジアミン、トリメチルヘキサメチレンジアミン、ジエチレントリアミン、イミノビスプロピルアミン、ビス(ヘキサメチレン)トリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、N ヒドロキシエチルエチレンジアミン、テトラ(ヒドロキシエチル)エチレンジアミン等が挙げられる。また、トリエチレングリコールジアミン、テトラエチレングリコールジアミン、ジエチレングリコールビス(プロピルアミン)、ポリオキシプロピレンジアミン、ポリオキシプロピレントリアミン類等も挙げられる。

30

【0024】

また、上記の硬化剤と併用して各種の硬化促進剤を用いることができる。例えば硬化促進剤としては、第3級アミン系硬化促進剤、尿素誘導体系硬化促進剤、イミダゾール系硬化促進剤、ジアザピシクロウンデセン(DBU)系硬化促進剤を挙げることができる。また、有機りん系硬化促進剤(例えば、ホスフィン系硬化促進剤等)、オニウム塩系硬化促進剤(例えば、ホスホニウム塩系硬化促進剤、スルホニウム塩系硬化促進剤、アンモニウム塩系硬化促進剤等)を挙げることができる。さらに、金属キレート系硬化促進剤、酸及び金属塩系硬化促進剤等も挙げることができる。

40

【0025】

本実施形態において、液状ゴムは、原料ポリマーが液状であり、さらに加工処理後にはゴム弾性を示す液状ポリマーを使用することができる。そして、原料ポリマーとしては、例えばブタジエン、イソプレン、アクリロニトリル-ブタジエン、及びスチレン-ブタジエンからなる群より選ばれる少なくとも一つを使用することができる。そのため、液状ゴムは、ブタジエンゴム、イソプレンゴム、アクリロニトリル-ブタジエンゴム、及びスチレン-ブタジエンゴムからなる群より選ばれる少なくとも一つを含有することが好ましい。また、液状ゴムは、ブタジエンゴム、イソプレンゴム、アクリロニトリル-ブタジエンゴム、及びスチレン-ブタジエンゴムからなる群より選ばれる少なくとも一つからなるこ

50

とがより好ましい。この中でも、液状ゴムは、ブタジエンゴムからなることが特に好ましい。

【0026】

なお、加工処理後に液状ゴムが良好なゴム状弾性を発揮するには、最終的に三次元網目状構造を有する必要がある。そのため、液状ゴムにおける分子の末端は官能基を有することが好ましい。このような官能基としては、例えば、ヒドロキシ基(-OH)、カルボキシ基(-COOH)、チオール基(-SH)、アミノ基(-NH₂, -NHR, -NRR')、ハロゲン基(-Cl, -Br, -I)からなる群より選ばれる少なくとも一つを挙げることができる。なお、液状ゴムにおける分子の末端はヒドロキシ基を有することが特に好ましい。

10

【0027】

液状ゴムにおける分子の末端が官能基を有することにより、三次元網目状構造を形成しやすくなるだけでなく、エポキシ樹脂と液状ゴムとの相溶性を高めることが可能となる。そして、これらの相溶性が高まることにより、エポキシ樹脂と硬化剤が反応して相構造を形成した場合でも、エポキシ樹脂リッチ相の内部に液状ゴムが残存しやすくなる。そのため、液状ゴムの柔軟性に起因してエポキシ樹脂リッチ相の柔軟性も向上させることが可能となる。

【0028】

本実施形態のエポキシ樹脂組成物において、エポキシ樹脂と硬化剤からなる成分と、液状ゴムとの体積比率が80:20~20:80(エポキシ樹脂と硬化剤からなる成分:液状ゴム)であることが好ましく、70:30~60:40であることがより好ましい。エポキシ樹脂と硬化剤からなる成分と、液状ゴムとの体積比率がこの範囲内であることにより、エポキシ樹脂組成物は相分離構造を効果的に形成することが可能となる。また、エポキシ樹脂組成物における液状ゴム成分の体積比率が20体積%以上の場合には、エポキシ樹脂組成物の柔軟性を高め、硬度の向上を抑制することが可能となる。また、液状ゴム成分の体積比率が80体積%以下の場合には、エポキシ樹脂組成物の硬化性が低下して脆くなってしまうことを防ぐことが可能となる。

20

【0029】

本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤及び液状ゴムに加え、充填材をさらに含有してもよい。充填材はエポキシ樹脂及び液状ゴムと比較して高い熱伝導性を有しているため、充填材を含有することにより、エポキシ樹脂組成物の熱伝導性を向上させることが可能となる。また、エポキシ樹脂、硬化剤及び液状ゴムは電気絶縁性を有しているため、充填材が電気絶縁性を有している場合には、得られるエポキシ樹脂組成物も電気絶縁性を備えることが可能となる。

30

【0030】

充填材は、エポキシ樹脂組成物の全体に分散していてもよく、またエポキシ樹脂リッチ相及び液状ゴムリッチ相の一方に偏在してもよい。エポキシ樹脂リッチ相及び液状ゴムリッチ相の一方に偏在することにより、充填材-充填材間の距離を小さくなる。そのため、充填材同士の接触が増加して熱伝導パスが形成されやすくなることから、エポキシ樹脂組成物の熱伝導性を向上させることが可能となる。

40

【0031】

このような充填材としては無機化合物からなることが好ましく、例えば、ホウ化物、炭化物、窒化物、酸化物、ケイ化物、水酸化物及び炭酸塩からなる群より選ばれる少なくとも一つであることが好ましい。具体的には、充填材は、例えば、酸化マグネシウム(MgO)、酸化アルミニウム(アルミナ、Al₂O₃)、窒化ホウ素(BN)、窒化アルミニウム(AlN)、水酸化アルミニウム(Al(OH)₃)、二酸化ケイ素(SiO₂)、炭酸マグネシウム(MgCO₃)、水酸化マグネシウム(Mg(OH)₂)、炭酸カルシウム(CaCO₃)、クレー、タルク、マイカ、酸化チタン(TiO₂)、酸化亜鉛(ZnO)からなる群より選ばれる少なくとも一種を含むことができる。熱伝導性と充填のし易さ等の観点から、充填材は、MgO、Al₂O₃、BN及びAlNからなる群より選ば

50

れる少なくとも一種を含むことが好ましい。また、充填材は、 MgO 、 Al_2O_3 及び BN からなる群より選ばれる少なくとも一種を含有することが特に好ましい。また、充填材は、酸化マグネシウム (MgO)、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、窒化ホウ素 (BN)、窒化アルミニウム (AlN)、水酸化アルミニウム ($Al(OH)_3$)、二酸化ケイ素 (SiO_2)、炭酸マグネシウム ($MgCO_3$)、水酸化マグネシウム ($Mg(OH)_2$)、炭酸カルシウム ($CaCO_3$)、クレー、タルク、マイカ、酸化チタン (TiO_2)、酸化亜鉛 (ZnO) からなる群より選ばれる少なくとも一種からなる粒子であってもよい。

【0032】

エポキシ樹脂組成物に含まれる充填材の量は特に限定されない。ただ、充填材の量は、エポキシ樹脂組成物の全体の0～60体積%であることが好ましい。充填材の量がこの範囲内であることにより、エポキシ樹脂組成物は相分離構造を効果的に形成することが可能となる。なお、充填材の量が多くてもエポキシ樹脂組成物の柔軟性を高めることは可能である。ただ、充填材の量が過剰の場合にはエポキシ樹脂組成物の相分離構造が維持することができず、硬度が高まる可能性がある。そのため、充填材の量は、エポキシ樹脂組成物の全体の60体積%以下であることが好ましい。

10

【0033】

充填材の平均粒子径は特に限定されないが、例えば $0.5\ \mu m \sim 50\ \mu m$ であることが好ましい。充填材の平均粒子径がこの範囲内であることにより、エポキシ樹脂組成物中に充填材を高分散させやすくなる。つまり、平均粒子径がこの範囲であることにより、樹脂の粘度が過度に高くなることを抑制でき、樹脂の流動性が確保されるため、作業性及び成形性が良好となる。なお、充填材の平均粒子径は、好ましくは $0.5\ \mu m \sim 20\ \mu m$ であり、より好ましくは $1\ \mu m \sim 10\ \mu m$ である。

20

【0034】

エポキシ樹脂組成物の内部に含まれている充填材の平均粒子径は、エポキシ樹脂組成物を焼成して充填材を単離することにより、測定することができる。なお、本明細書において、「平均粒子径」はメジアン径を意味する。また、メジアン径は、積算(累積)重量百分率が50%となる粒子径(d_{50})を意味する。メジアン径は、例えば、レーザー回折式粒度分布測定装置「SALD2000」(株式会社島津製作所製)を用いて測定することができる。

30

【0035】

充填材の形状は特に限定されず、例えば球状又は多面体状であってもよく、また鱗片状、薄片状、フレーク状等、薄片形状を有する板状であってもよい。ただ、充填材は球状であることが好ましい。このような形状であることにより、エポキシ樹脂組成物中に充填材を高分散させやすくなる。

【0036】

充填材は、樹脂との相溶性や接着性を向上させるために、カップリング処理などの表面処理を行ったり分散剤などを添加して、エポキシ樹脂組成物中への分散性を向上させてもよい。また、表面処理剤を適宜選択することにより、相分離構造において、より効果的に充填材を偏在させることができる。

40

【0037】

表面処理には、脂肪酸、脂肪酸エステル、高級アルコール、硬化油等の有機系表面処理剤を用いることができる。また、表面処理には、シリコンオイル、シランカップリング剤、アルコキシシラン化合物、シリル化材等の無機系表面処理剤も用いることができる。これらの表面処理剤を用いることにより、耐水性が向上する場合があります。さらに樹脂中への分散性が向上する場合があります。処理方法としては特に限定されないが、(1)乾式法、(2)湿式法、(3)インテグラルブレンド法等がある。

【0038】

(1) 乾式法

乾式法とは、ヘンシェルミキサー、ナウターミキサー、振動ミルのような機械的な攪拌

50

により充填材を攪拌しながら、これに表面処理剤を滴下して表面処理を行う方法である。表面処理剤としてシランを用いる場合には、シランをアルコール溶剤で希釈した溶液や、シランをアルコール溶剤で希釈し、さらに水を添加した溶液、シランをアルコール溶剤で希釈し、さらに水及び酸を添加した溶液等が使用できる。表面処理剤の調製方法はシランカップリング剤の製造会社のカタログ等に記載されているが、シランの加水分解速度や充填材の種類によって、調製方法を適宜決定する。

【0039】

(2) 湿式法

湿式法とは、充填材を表面処理剤に直接浸漬して行う方法である。使用できる表面処理剤は、上記乾式法と同様である。また、表面処理剤の調製方法も乾式法と同様である。

10

【0040】

(3) インテグラルブレンド法

インテグラルブレンド法は、樹脂とフィラーとを混合するとき、表面処理剤を原液又はアルコール等で希釈して混合機の中に直接添加し、攪拌する方法である。表面処理剤の調製方法は乾式法及び湿式法と同様であるが、インテグラルブレンド法で行う場合の表面処理剤の量は、乾式法及び湿式法に比べて多くすることが一般的である。

【0041】

乾式法及び湿式法においては、表面処理剤の乾燥を必要に応じて行う。アルコール等を使用した表面処理剤を添加した場合は、アルコールを揮発させる必要がある。アルコールが最終的に配合物に残ると、アルコールがガスとして発生しポリマー分に悪影響を及ぼす。したがって、乾燥温度は、使用した溶剤の沸点以上にすることが好ましい。さらに、表面処理剤としてシランを用いた場合には、充填材と反応しなかったシランを迅速に除去するために、装置を用いて高い温度（例えば、100 ~ 150）に加熱することが好ましい。ただ、シランの耐熱性も考慮し、シランの分解点未満の温度に保つことが好ましい。処理温度は約80 ~ 150、処理時間は0.5 ~ 4時間が好ましい。乾燥温度と時間を処理量により適宜選択することによって、溶剤や未反応シランも除去することが可能となる。

20

【0042】

表面処理剤としてシランを用いる場合、充填材の表面を処理するのに必要なシラン量は次式で計算することができる。

30

$$[\text{シラン量 (g)}] = [\text{充填材の量 (g)}] \times [\text{充填材の比表面積 (m}^2/\text{g)}] / [\text{シランの最小被覆面積 (m}^2/\text{g)}]$$

【0043】

「シランの最小被覆面積」は次の計算式で求めることができる。

$$[\text{シランの最小被覆面積 (m}^2/\text{g)}] = (6.02 \times 10^{23}) \times (1.3 \times 10^{-20} \text{ (m}^2)) / [\text{シランの分子量}]$$

式中、「 6.02×10^{23} 」はアボガドロ定数であり、「 1.3×10^{-20} 」は1分子のシランが覆う面積（ 0.13 nm^2 ）である。

【0044】

必要なシラン量は、この計算式で計算されるシラン量の0.5倍以上1.0倍未満であることが好ましい。シラン量が1.0倍以上であっても本実施形態の効果を発揮することができる。しかし、シラン量が1.0倍以上の場合には未反応分が残り、機械物性の低下や耐水性の低下などの物性低下を引き起こす恐れがあるため、上限は1.0倍未満が好ましい。また、下限値を上記計算式で計算される量の0.5倍としたのは、この量であっても樹脂へのフィラー充填性の向上には十分効果があるためである。

40

【0045】

本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、本実施形態の効果を阻害しない程度であれば添加剤が含まれていてもよい。具体的には、エポキシ樹脂組成物は、着色剤、難燃剤、難燃助剤、繊維強化材、製造上の粘度調整のための減粘剤、トナー（着色剤）の分散性向上のための分散調整剤、離型剤等が含まれていてもよい。これらは公知のものを使用することが

50

できるが、例えば、以下のようなものを挙げることができる。

【0046】

着色剤としては、例えば、酸化チタン等の無機系顔料、有機系顔料等、あるいはそれらを主成分とするトナーを用いることができる。これらは一種を単独で使用してもよく、二種以上を組み合わせ使用してもよい。

【0047】

難燃剤としては、有機系難燃剤、無機系難燃剤、反応系難燃剤などが挙げられる。これらは一種を単独で使用してもよく、二種以上を組み合わせ使用してもよい。なお、エポキシ樹脂組成物に難燃剤を含有させる場合は難燃助剤を併用することが好ましい。難燃助剤としては、三酸化ニアンチモン、四酸化ニアンチモン、五酸化ニアンチモン、アンチモン酸ナトリウム、酒石酸アンチモン等のアンチモン化合物、ホウ酸亜鉛、メタホウ酸バリウム、水和アルミナ、酸化ジルコニウム、ポリリン酸アンモニウム、酸化スズ、酸化鉄などが挙げられる。これらは一種を単独で使用してもよく、二種以上を組み合わせ使用してもよい。

10

【0048】

このように、本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂と硬化剤と液状ゴムとを含有する。そして、当該エポキシ樹脂組成物が硬化したとき、2以上の相に分離した相分離構造を形成し、かつ、JIS K 6253に規定のタイプEデュロメータで測定した硬さが80以下である。このように、本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂及び液状ゴムの含有量が相対的に異なる複数の相からなる相分離構造を有しているため、硬度が低下し、柔軟性を高めることが可能となる。

20

【0049】

なお、エポキシ樹脂組成物は、日本工業規格JIS K 6253（加硫ゴム及び熱可塑性ゴム - 硬さの求め方）に規定のタイプEデュロメータで測定した硬さが80以下であることが好ましく、70以下であることがより好ましい。エポキシ樹脂組成物の硬さが80以下であることにより、例えば接着剤や、半導体素子の封止材などに好適に用いることが可能となる。なお、エポキシ樹脂組成物の硬さの下限は特に限定されないが、例えばJIS K 6253に規定のタイプEデュロメータで測定した硬さが3以上であることが好ましい。

【0050】

高柔軟性を有する本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、接着剤、電子基板、放熱部材、その他電子機器に好適に用いることができる。また、当該エポキシ樹脂組成物を用いて半導体素子等の部材を封止することも好ましい。

30

【0051】

次に、本実施形態のエポキシ樹脂組成物の製造方法について説明する。まず、エポキシ樹脂、硬化剤及び液状ゴムを添加して混練し、未硬化状態の樹脂組成物を製造する。この際、必要に応じて充填材を添加する。各成分の混練は一段で行ってもよく、各成分を逐次添加して多段的に行ってもよい。各成分を逐次添加する場合は、任意の順序で添加することができる。

【0052】

各成分の混練及び添加方法としては、例えば、まずエポキシ樹脂に、液状ゴムの一部又は全量を混練し粘度を調整する。次に、逐次的に残りの液状ゴム、硬化剤、充填材及び添加剤を添加しながら混練する。添加順序は特に限定されないが、樹脂組成物の保存安定性の観点から、硬化剤は最後に添加することが好ましい。

40

【0053】

上述のように、樹脂組成物には、必要に応じて、着色剤、難燃剤、難燃助剤、繊維強化材、減粘剤、分散調整剤、離型剤等の添加剤を添加してもよい。また、これらの添加剤の添加順序も特に制限されず、任意の段階で添加することができるが、上述のように硬化剤は最後に添加することが好ましい。

【0054】

50

樹脂組成物の製造に用いる混練機械装置としては、従来公知のものを用いることができる。具体的には、ロールミル、プラネタリーミキサー、ニーダー、エクストルーダー、パンバリーミキサー、攪拌翼を供えた混合容器、横型混合槽などを挙げることができる。

【0055】

樹脂組成物を製造する際の混練温度は、混練できれば特に限定されないが、例えば10～150の範囲が好ましい。150を超えるとエポキシ樹脂と硬化剤との部分的な硬化反応が開始し、得られる樹脂組成物の保存安定性が低下する場合がある。10より低いと樹脂組成物の粘度が高く、実質的に混練が困難となる場合がある。好ましくは20～120であり、さらに好ましくは30～100の範囲である。

【0056】

この未硬化の樹脂組成物の成形方法は任意の方法が可能であり、成形形状は任意の形状が可能である。例えば、成形手段としては、圧縮成形（直圧成形）、トランスファー成形、射出成形、押し出し成形、スクリーン印刷等の各種手段を用いることができる。最後に樹脂組成物を加熱してエポキシ樹脂と硬化剤とを反応させ、硬化させることで、本実施形態のエポキシ樹脂組成物を得ることができる。

【0057】

このように、本実施形態のエポキシ樹脂組成物は、まずエポキシ樹脂と硬化剤と液状ゴムとを混練する。この際、エポキシ樹脂と液状ゴムは互いに相溶した状態となる。そして、加熱によりエポキシ樹脂と硬化剤が反応し硬化することで、これらの樹脂の相溶性が低下し、エポキシ樹脂リッチ相と液状ゴムリッチ相とに相分離する。ただ、上述のように、エポキシ樹脂と硬化剤が反応して相構造を形成した場合でも、エポキシ樹脂リッチ相の内部に液状ゴムが残存しているため、エポキシ樹脂リッチ相の柔軟性を高め、得られるエポキシ樹脂組成物の柔軟性を向上させることが可能となる。

【実施例】

【0058】

以下、本実施形態を実施例及び比較例によりさらに詳細に説明するが、本実施形態はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0059】

実施例及び比較例の樹脂組成物を製造するに際し、以下のエポキシ樹脂、硬化剤、液状ゴム及び充填材を用いた。

【0060】

[エポキシ樹脂]

(1) エポキシ樹脂A (ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル (DGEBA)、三菱化学株式会社製 jER (登録商標) 834、エポキシ当量：250 g/eq)

(2) エポキシ樹脂B (ビスフェノールA型ジグリシジルエーテル (DGEBA)、三菱化学株式会社製 jER (登録商標) 1001、エポキシ当量：474 g/eq)

【0061】

[硬化剤]

ポリエーテルアミン (ポリオキシプロピレンジアミン、ハンツマン社製ジェファーミン (登録商標) D2000、活性水素当量：514 g/eq)

【0062】

[液状ゴム]

水酸基末端液状ブタジエンゴム (出光興産株式会社製 Polybd (登録商標) R-45HT)

【0063】

[充填材]

アルミナ (昭和電工株式会社製アルミナビーズ (登録商標) CB-A09S、平均粒子径：9 μm)

【0064】

[実施例1]

10

20

30

40

50

まず、表 1 に示す配合量で、加温したエポキシ樹脂 B に硬化剤及び液状ゴムを添加することにより、樹脂混合物を得た。次に、当該樹脂混合物を 150 に温めた金型に投入し、乾燥オープンにて 150 で 4 時間保持することにより、本例の樹脂板を得た。なお、得られた樹脂板の厚みは 12 mm であった。

【 0 0 6 5 】

[実施例 2]

表 1 に示すように配合量を変更した以外は実施例 1 と同様にして、本例の樹脂板を得た。なお、得られた樹脂板の厚みは 12 mm であった。

【 0 0 6 6 】

[実施例 3]

まず、表 1 に示す配合量で、加温したエポキシ樹脂 A 及びエポキシ樹脂 B に、硬化剤、液状ゴム及び充填材を添加することにより、樹脂混合物を得た。次に、当該樹脂混合物を 150 に温めた金型に投入し、乾燥オープンにて 150 で 4 時間保持することにより、本例の樹脂板を得た。なお、得られた樹脂板の厚みは 12 mm であった。

【 0 0 6 7 】

[実施例 4]

表 1 に示すように配合量を変更した以外は実施例 3 と同様にして、本例の樹脂板を得た。なお、得られた樹脂板の厚みは 12 mm であった。

【 0 0 6 8 】

[比較例 1]

まず、表 1 に示す配合量で、加温したエポキシ樹脂 B に硬化剤を添加することにより、樹脂混合物を得た。次に、当該樹脂混合物を 150 に温めた金型に投入し、乾燥オープンにて 150 で 4 時間保持することにより、本例の樹脂板を得た。なお、得られた樹脂板の厚みは 12 mm であった。

【 0 0 6 9 】

[比較例 2]

まず、表 1 に示す配合量で、加温したエポキシ樹脂 A 及びエポキシ樹脂 B に、硬化剤及び充填材を添加することにより、樹脂混合物を得た。次に、当該樹脂混合物を 150 に温めた金型に投入し、乾燥オープンにて 150 で 4 時間保持することにより、本例の樹脂板を得た。なお、得られた樹脂板の厚みは 12 mm であった。

【 0 0 7 0 】

[比較例 3]

表 1 に示すように配合量を変更した以外は比較例 2 と同様にして、本例の樹脂板を得た。なお、得られた樹脂板の厚みは 12 mm であった。

【 0 0 7 1 】

表 1 には、各例におけるエポキシ樹脂、硬化剤、液状ゴム（ブタジエンゴム）及び充填材（アルミナ）の配合量（質量部）を示す。また、エポキシ樹脂、硬化剤、液状ゴム及び充填材の比重から求めた樹脂板全体における液状ゴムの体積比率（vol%）、樹脂成分中における液状ゴムの体積比率（vol%）、樹脂板全体におけるアルミナの体積比率（vol%）も合わせて示す。

【 0 0 7 2 】

10

20

30

40

【表 1】

	製品名	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2	比較例 3	
配合量 (質量部)	エポキシ樹脂A	0	0	50	20	0	50	20	
	エポキシ樹脂B	100	100	50	80	100	50	80	
	硬化剤 (ポリエーテルアミン)	108	108	157	128	108	157	128	
	液状ゴム (ブタジエンゴム)	74	93	117	58	0	0	0	
充填材 (アルミナ)	0	0	256	190	0	0	166	146	
	樹脂板全体における 液状ゴムの体積比率 (vol%)	30.0	35.0	29.8	19.9	0	0	0	0
	樹脂成分中における 液状ゴムの体積比率 (vol%)	30.0	35.0	35.1	23.4	0	0	0	0
	樹脂板全体における アルミナの体積比率 (vol%)	0	0	15.0	15.0	0	15.0	15.0	15.0
	タイプEデュロメータ で測定した硬さ	E65	E15	E58	E77	E81	E85	E88	E88

【0073】

[評価]

実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 ~ 3 で得られた各樹脂板に対して、次のように硬度を測定し、さらに断面観察と成分分析も行った。

【0074】

(硬度測定)

実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 ~ 3 で得られた各樹脂板に対して、JIS K6253 に従い、タイプEデュロメータを用いて硬度を測定した。測定結果を表 1 に合わせて示す。

【0075】

10

20

30

40

50

(断面観察)

実施例 1 及び 2 で得られた樹脂板に対して、まず、クロスセクションポリッシャ(登録商標、日本電子株式会社製 SM-09010)を用いて、観察断面を作製した。そして、断面形成後、レーザー顕微鏡(キーエンス株式会社製レーザマイクロスコープ VK-9700)を用いて断面観察を行った。実施例 1 の樹脂板の観察結果を図 2 に示し、実施例 2 の樹脂板の観察結果を図 5 に示す。

【0076】

また、実施例 3 及び 4 で得られた樹脂板に対して、まず機械研磨により観察断面を作製した。そして、断面形成後、走査型電子顕微鏡(キーエンス株式会社製 3Dリアルサーフェスビュー顕微鏡 VE-9800)を用いて断面観察を行った。実施例 3 の樹脂板の観察結果を図 8 に示し、実施例 4 の観察結果を図 9 に示す。

【0077】

(成分分析)

上記方法で作製した実施例 1 及び 2 の樹脂板の観察断面に対して、顕微レーザーラマン分析装置(HORIBA JOBIN YVON社製、顕微レーザーラマン分光装置 LabRAM HR-800)を用いて、相分離構造を形成する樹脂成分の同定を行った。実施例 1 の樹脂板の分析結果を図 3 及び図 4 に示し、実施例 2 の分析結果を図 6 及び図 7 に示す。

【0078】

ここで、図 3(a)は実施例 1 の樹脂板に対する顕微鏡写真であり、図 3(b)は図 3(a)の a) 地点及び b) 地点におけるラマンスペクトルを示すグラフである。また、図 4(a)はベンゼン環(DGEB A)に由来するラマンマッピング像を示し、図 4(b)は C=C 結合(ブタジエン)に由来するラマンマッピング像を示す。図 6(a)は実施例 2 の樹脂板に対する顕微鏡写真であり、図 6(b)は図 6(a)における符号 B で示す範囲の拡大写真である。そして、図 6(c)は、図 6(b)の a) 地点及び b) 地点におけるラマンスペクトルを示すグラフである。また、図 7(a)はベンゼン環(DGEB A)に由来するラマンマッピング像を示し、図 7(b)は C=C 結合(ブタジエン)に由来するラマンマッピング像を示す。

【0079】

(実施例 1 及び 2 の樹脂板と比較例 1 の樹脂板との対比)

表 1 より、実施例 1 及び 2 の樹脂板は、比較例 1 の樹脂板と比較して硬さが低く、高い柔軟性を示した。このように実施例 1 及び 2 の樹脂板が比較例 1 に比べて高い柔軟性を示した理由は、次の通りと推測される。

【0080】

図 2 に示すように、断面観察の結果、実施例 1 の樹脂板は相分離構造を有し、さらに海相 3 及び島相 4 を有する海島構造を形成していることが分かる。そして、断面をラマン分光分析した結果、図 3 に示すように、海相 a) ではベンゼン環の伸縮振動に由来するピークが観測され、島相 b) では C=C 結合の伸縮振動に由来するピークが観測された。つまり、海相 a) ではベンゼン環を含有する DGEB A に由来するピークが観測され、島相 b) ではブタジエンを含有する液状ゴムに由来するピークが観測された。この結果から、実施例 1 の樹脂板は、エポキシ樹脂リッチ相からなる海相と、液状ゴムリッチ相からなる島相とで構成される海島構造を形成していることが分かる。

【0081】

そして、図 4(a)より、海相 3 ではエポキシ樹脂(DGEB A)が主成分として存在し、図 4(b)より、島相 4 ではブタジエンゴムが主成分として存在していることが分かる。さらに、図 4(b)より、エポキシ樹脂が主成分の海相 3 に、ブタジエンゴムが幾分含有されていることが分かる。このように柔軟なブタジエンゴム成分が島相 4 だけでなく海相 3 にも含有されているため、実施例 1 の樹脂板の柔軟性が向上していると推測される。

【0082】

また、図5に示すように、断面観察の結果、実施例2の樹脂板も相分離構造を有し、さらに海相5及び島相6を有する海島構造を形成していることが分かる。そして、断面をラマン分光分析した結果、図6に示すように、島相a)ではベンゼン環の伸縮振動に由来するピークが観測され、島相と海相の境界付近b)ではC=C結合の伸縮振動に由来するピークが観測された。つまり、島相a)ではベンゼン環を含有するDGEBAに由来するピークが観測され、島相と海相の境界付近b)ではブタジエンを含有する液状ゴムに由来するピークが観測された。この結果から、実施例2の樹脂板は、エポキシ樹脂リッチ相からなる島相と、液状ゴムリッチ相からなる海相とで構成される海島構造を形成していることが分かる。

【0083】

そして、図7(a)より、島相6ではエポキシ樹脂(DGEBA)が主成分として存在し、図7(b)より、海相5ではブタジエンゴムが主成分として存在していることが分かる。このように柔軟なブタジエンゴム成分が連続相を形成しているため、実施例2の樹脂板は、実施例1よりもさらに柔軟性が向上していると推測される。

【0084】

(実施例3の樹脂板と比較例2の樹脂板との対比)

表1より、実施例3の樹脂板は、比較例2の樹脂板と比較して、充填材の体積比率が同じであるにも関わらず硬さが低く、高い柔軟性を示した。また、図8に示すように、断面観察の結果、実施例3の樹脂板も相分離構造を有し、さらに海相7及び島相8を有する海島構造を形成していることが分かる。

【0085】

そして、断面をラマン分光分析した結果、島相8ではベンゼン環の伸縮振動に由来するピークが観測され、海相7ではC=C結合の伸縮振動に由来するピークが観測された。つまり、島相8ではベンゼン環を含有するDGEBAに由来するピークが観測され、海相7ではブタジエンを含有する液状ゴムに由来するピークが観測された。この結果から、実施例3の樹脂板は、液状ゴムリッチ相からなる海相7と、エポキシ樹脂リッチ相からなる島相8とで構成される海島構造を形成していることが分かった。

【0086】

なお、図8及びラマン分光分析の結果、海相7である液状ゴムリッチ相に充填材9が偏在していることが分かった。そして、これらの結果から、実施例3の樹脂板が比較例2と比べて高い柔軟性を理由は、フィラー成分を含有しても、エポキシ樹脂リッチ相と液状ゴムリッチ相からなる相分離構造が保持されているためと推測される。

【0087】

(実施例4の樹脂板と比較例3の樹脂板との対比)

表1より、実施例4の樹脂板は、比較例3の樹脂板と比較して、充填材の体積比率が同じであるにも関わらず硬さが低く、高い柔軟性を示した。また、図9に示すように、断面観察の結果、実施例4の樹脂板も相分離構造を有し、さらに一方の相10及び他方の相11を有する共連続構造を形成していることが分かる。

【0088】

そして、断面をラマン分光分析した結果、共連続構造の一方の相10ではベンゼン環の伸縮振動に由来するピークが観測され、他方の相11ではC=C結合の伸縮振動に由来するピークが観測された。つまり、一方の相10ではベンゼン環を含有するDGEBAに由来するピークが観測され、他方の相11ではブタジエンを含有する液状ゴムに由来するピークが観測された。この結果から、実施例4の樹脂板は、エポキシ樹脂リッチ相(一方の相10)と、液状ゴムリッチ相(他方の相11)とで構成される共連続構造を形成していることが分かった。

【0089】

なお、図9及びラマン分光分析の結果、他方の相11(液状ゴムリッチ相)に充填材12が偏在していることが分かった。そして、これらの結果から、実施例4の樹脂板が比較例3と比べて高い柔軟性を理由は、フィラー成分が含有しても、エポキシ樹脂リッチ相と

10

20

30

40

50

液状ゴムリッチ相からなる相分離構造が保持されているためと推測される。

【0090】

また、実施例3及び実施例4より、相分離構造は、海島構造及び共連続構造ともに形成が可能であり、自由に選択できることが分かる。

【0091】

特願2015-097842号(出願日:2015年5月13日)の全内容は、ここに援用される。

【0092】

以上、実施例に沿って本発明の内容を説明したが、本発明はこれらの記載に限定されるものではなく、種々の変形及び改良が可能であることは、当業者には自明である。

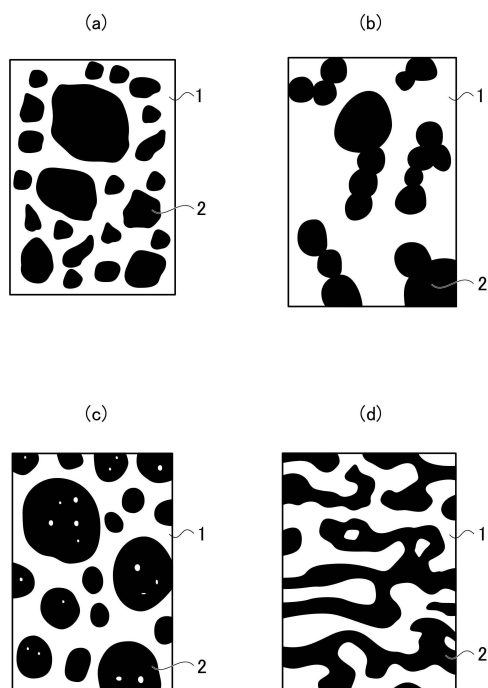
10

【産業上の利用可能性】

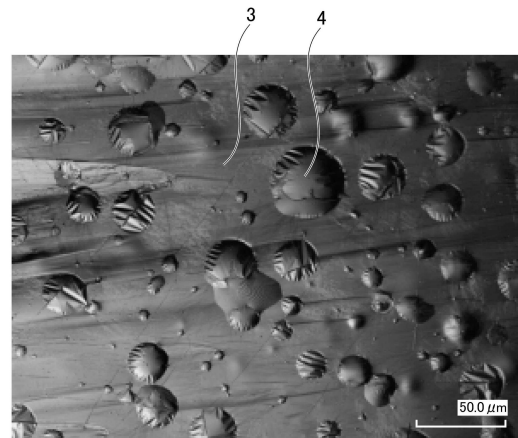
【0093】

本発明のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂を主成分とする相と液状ゴムを主成分とする相を備えた相分離構造を有しているため、硬度が低下し、柔軟性を高めることが可能となる。

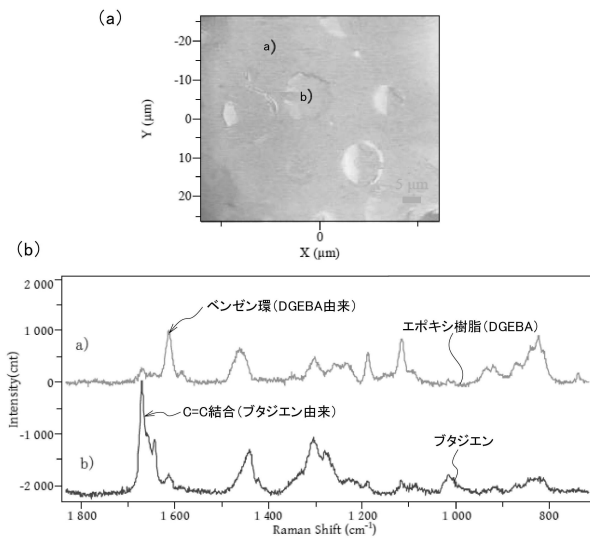
【図1】



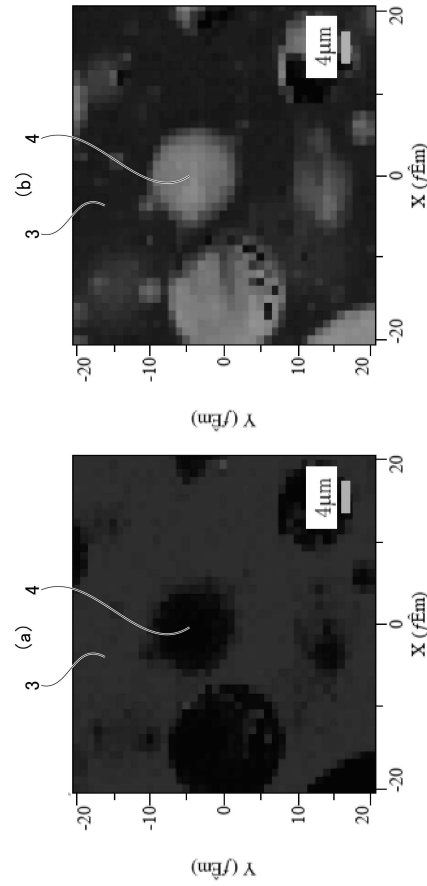
【図2】



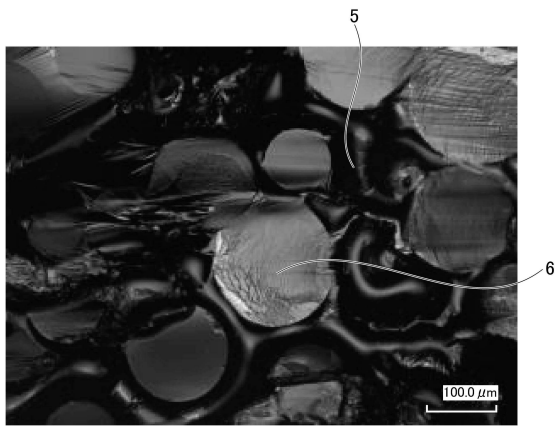
【 図 3 】



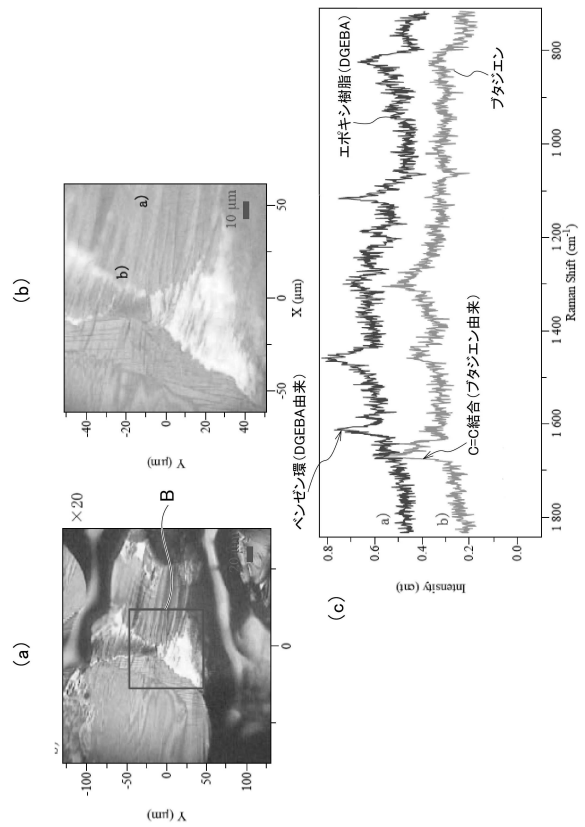
【 図 4 】



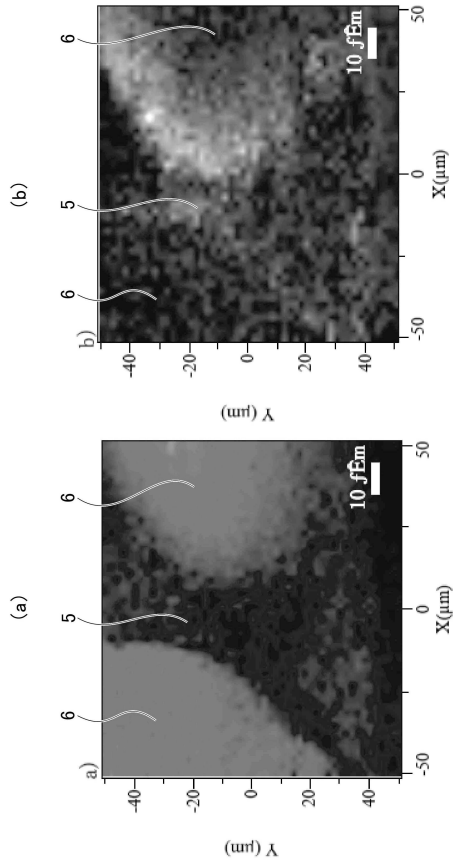
【 図 5 】



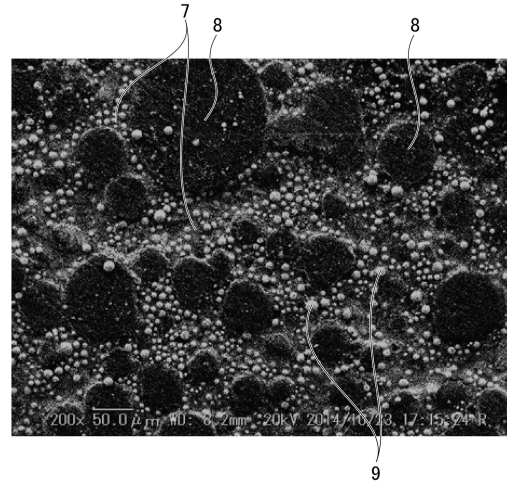
【 図 6 】



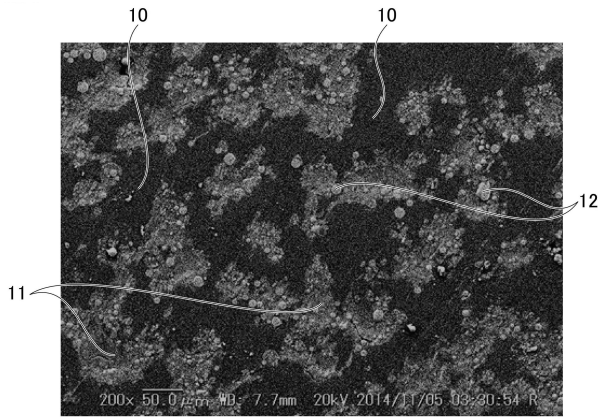
【 図 7 】



【 図 8 】



【 図 9 】



フロントページの続き

(72)発明者 森 智宏

兵庫県神戸市西区学園西町8 - 2 - 1 公立大学法人兵庫県立大学内

合議体

審判長 近野 光知

審判官 大熊 幸治

審判官 橋本 栄和

(56)参考文献 特開平5 - 39409 (JP, A)

特開2011 - 1424 (JP, A)

特開昭57 - 105447 (JP, A)

特表2008 - 505996 (JP, A)

特開2015 - 40289 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08G 59/00- 59/72

C08L 1/00-101/14

C08K 3/00- 13/08