

(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  
2016年8月11日(11.08.2016)



(10) 国際公開番号  
**WO 2016/125537 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*C09J 7/00* (2006.01) *C09J 161/04* (2006.01)  
*C08L 63/00* (2006.01) *C09J 163/00* (2006.01)  
*C09J 11/04* (2006.01) *C09J 163/04* (2006.01)  
*C09J 11/06* (2006.01) *C09J 171/10* (2006.01)  
*C09J 109/02* (2006.01) *H01L 21/60* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/050624
- (22) 国際出願日: 2016年1月12日(12.01.2016)
- (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 2015-018702 2015年2月2日(02.02.2015) JP
- (71) 出願人: ナミックス株式会社(NAMICS CORPORATION) [JP/JP]; 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川 3 9 9 3 番地 Niigata (JP).
- (72) 発明者: 川本 里美(KAWAMOTO Satomi); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川 3 9 9 3 番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP). 福原 佳英(FUKUHARA Yoshihide); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川 3 9 9 3 番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP). 曽根 裕美(SONE Hiromi); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川 3 9 9 3 番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP). 齋藤 篤志(SAITO Atsushi); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川 3 9 9 3 番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP). 発地 豊和(HOTCHI Toyokazu); 〒9503131 新潟県新潟市
- 北区濁川 3 9 9 3 番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP).
- (74) 代理人: 渡辺 望稔, 外(WATANABE Mochitoshi et al.); 〒1010032 東京都千代田区岩本町 2 丁目 3 番 3 号 友泉岩本町ビル 6 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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), ユーロシェア (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:  
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: FILM-SHAPED ADHESIVE AND SEMICONDUCTOR DEVICE USING SAME

(54) 発明の名称: フィルム状接着剤、それを用いた半導体装置

(57) Abstract: Provided are: a film-shaped adhesive suitable as an NCF and being void-free, having excellent electrical connection properties and reliability thereof, having excellent surface flatness, and not being prone to cracking; and a semiconductor device which uses this film-shaped adhesive as an NCF during manufacturing of the semiconductor device. This film adhesive is characterized by containing an epoxy resin (A), a bisphenol-F-type phenoxy resin (B), a phenol-resin-based curing agent (C), a modified imidazole compound (D), a silica filler (E), oxyquinoline (F), and a butadiene/acrylonitrile/methacrylic acid copolymer, the content of component (A) being 19.3-33.8 parts by mass, the content of component (B) being 7.5-9.1 parts by mass, the content of component (D) being 1.915-5 parts by mass, the content of component (E) being 30-60 parts by mass, the content of component (F) being 2.5-10 parts by mass, the liquid epoxy resin of component (A) containing a phenol novolak-type epoxy resin and a liquid epoxy resin, the ratio of the phenol novolak-type epoxy resin in the epoxy resin of component (A) being 46% or greater, and the equivalent ratio of component (C) to component (A) being 0.25-0.75.

(57) 要約: NCFとして好適な、ボイドフリーであり、電気的接続性およびその信頼性に優れ、クラックが生じにくく、表面平坦性に優れるフィルム状接着剤、および、半導体装置の製造時に、本発明のフィルム状接着剤をNCFとして用いた半導体装置の提供。本発明のフィルム用接着剤は、(A)エポキシ樹脂、(B)ビスフェノールF型フェノキシ樹脂、(C)フェノール樹脂系硬化剤、(D)変性イミダゾール化合物、(E)シリカフィラー、(F)オキシキノリン、および、(G)ブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体を含有し、(A)成分の含有量が19.3~33.8質量部であり、(B)成分の含有量が7.5~9.1質量部であり、(D)成分の含有量が1.915~5質量部であり、(E)成分の含有量が30~60質量部であり、(F)成分の含有量が2.5~10質量部であり、(A)成分の液状エポキシ樹脂は、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、および、液状エポキシ樹脂を含有し、(A)成分のエポキシ樹脂に占めるフェノールノボラック型エポキシ樹脂の割合が46%以上であり、(A)成分に対する(C)成分の当量比が0.25~0.75であることを特徴とする。

WO 2016/125537 A1

## 明 細 書

発明の名称：フィルム状接着剤、それを用いた半導体装置

### 技術分野

[0001] 本発明は、半導体実装時にNCF (Non Conductive Film) として使用されるフィルム状接着剤、および、これを用いた半導体装置に関する。

### 背景技術

[0002] 従来より、半導体実装においては、IC (Integrated Circuit) チップの電極 (バンプ) が形成されている面と、基板の電極 (電極パッド) が形成された面とを対峙させ、ICチップのバンプと基板の電極パッドとを電氣的に接続するフリップチップ法が行われている。

このフリップチップ法では、電極同士の接続部分を外部から保護し、ICチップと基板との線膨張係数の違いに起因する応力を緩和するために、通常、電極接続後に、アンダーフィル剤と呼ばれる液状の熱硬化性接着剤を半導体チップと基板との間に流し込み硬化させるようにする。

近年、ICチップの微細化が急速に進んでいる。これに伴い、隣接する電極間のピッチや、半導体チップと基板との間のギャップが益々狭くなる傾向にある。このため、毛細管現象を利用してアンダーフィル剤をICチップと基板との間に流し込むと、ボイドが発生したり、アンダーフィル剤の流し込みに長時間を要する等の問題が発生してしまう。

このため、NCP (Non Conductive Paste) と呼ばれる液状の接着剤、もしくは、NCF (Non Conductive Film) と呼ばれるフィルム状の接着剤を予め基板に塗布、もしくは、貼付し、その後、熱加圧ボンダー等による熱加圧で樹脂を硬化させ、ICチップのバンプと基板の電極パッドとを接続する、いわゆる先入れ法が試みられている (特許文献1 参照)。

ICチップの微細化に伴い、バンプ材料として、バンプをより小径にでき

る銅バンプが多く用いられるようになってきている。

[0003] また、近年の電子機器の小型化および機能複合化の進展に伴って、1つの半導体パッケージ内に複数の半導体チップを搭載した形態が広く用いられるようになってきている。搭載する形態としては、基板上に2次元的に複数のチップを配置する方法よりも、チップを3次元的に積層してワイヤボンディングで電氣的に接続することによって半導体パッケージの小型化が可能となるいわゆるチップスタック技術が広く適用されている。このチップスタックへは、ペースト状、フィルム状の接着剤が使用されている。しかし、ペースト状接着剤は高流動性であるため、電極汚染の可能性がある、フィルム状の接着剤を使用することが一般的である。一方、チップスタックパッケージの更なる小型化、薄型化および高速伝送に対応した半導体チップ接続技術としてフリップチップ接続技術が注目されている。フリップチップ実装技術としては超音波接合や異方導電性接着剤による接続技術が提案されている（特許文献2参照）。

[0004] NCFとして使用されるフィルム状接着剤に要求される特性として、ボイドフリーであり、電氣的接続性およびその信頼性に優れることが求められる。また、フィルム特性として、クラックが生じにくく、表面平坦性に優れることが求められる。また、NCFとして使用する際の作業性、すなわち、取り回し性に優れることが求められる。

上述したように、銅バンプは小径となるため、バンプ当たりの接続強度が低くなる。そのため、電氣的接続の信頼性が特に要求される。また、ICチップの微細化により、隣接する電極間のピッチや、ICと基板との間のギャップが狭くなることにより、ボイドが存在すると、接続強度の低下や配線間のショート不良が発生しやすくなる。そのため、ボイドフリーであることが特に要求される。

[0005] はんだ接続を目的としたNCFとして使用されるフィルム状接着剤は、良好なはんだ接続を行うために、必須成分として、フラックス活性剤を含有することが求められる。フラックス活性剤は、はんだ、被着金属表面の酸化膜

を還元して、濡れ性を高め、例えば半導体素子と基板との接続信頼性を向上させる成分である。

上述した特許文献2には、同文献に記載のフィルム状接着剤に、フラックス活性剤を含有させることが記載されていない。

特許文献3に記載の接着フィルムでは、フラックス活性化合物として、フェノール性水酸基含有化合物、および、カルボキシル基を含む化合物が例示されている。しかしながら、例示されたこれらの化合物をフラックス活性剤として含有するフィルム状接着剤をNCFとして使用した場合、以下の問題がある。

NCFを使用して、上述した手順により、ICチップの bumps と基板の電極パッドとを接続する場合、生産効率の観点より熱加圧時間は短い方が好ましい。しかし、特許文献3に記載の接着フィルムをNCFとして使用した場合235℃にて30秒の時間を有してしまい生産効率が悪い。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0006] 特許文献1：特開2013-122957号公報

特許文献2：特開2012-67302号公報

特許文献3：国際公開WO2010/073583号

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、上記した従来技術における問題点を解決するため、NCFとして好適な、ボイドフリーであり、電気的接続性およびその信頼性に優れ、クラックが生じにくく、表面平坦性に優れるフィルム状接着剤、および、半導体装置の製造時に、本発明のフィルム状接着剤をNCFとして用いた半導体装置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

[0008] 上記の目的を達成するため、本発明は、

- (A) エポキシ樹脂、
- (B) ビスフェノールF型フェノキシ樹脂、
- (C) フェノール樹脂系硬化剤、
- (D) 変性イミダゾール化合物、
- (E) シリカフィラー
- (F) オキシキノリン、および、

(G) ブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体を含有し、

(A) 成分の含有量が19.3～33.8質量部であり、(B) 成分の含有量が7.5～9.1質量部であり、(D) 成分の含有量が1.9～5質量部であり、(E) 成分の含有量が30～60質量部であり、(F) 成分の含有量が2.5～10質量部であり、(G) 成分の含有量が0.7～2.3質量部であり、((A) 成分のエポキシ樹脂は、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、および、液状エポキシ樹脂を含有し、(A) 成分のエポキシ樹脂に占めるフェノールノボラック型エポキシ樹脂の割合が46%以上であり、(A) 成分に対する(C) 成分の当量比が0.25～0.75であることを特徴とするフィルム状接着剤を提供する。

[0009] 本発明のフィルム状接着剤は、さらに、(H) シランカップリング剤を含有してもよい。

[0010] 本発明のフィルム状接着剤において、前記(C) 成分のフェノール樹脂系硬化剤が、クレゾールノボラック型フェノール樹脂であることが好ましい。

[0011] 本発明のフィルム状接着剤は、フィルム状接着剤に含まれる固形樹脂成分100質量部に対する、液状成分の質量部が18～33質量部であることが好ましい。

[0012] 本発明のフィルム状接着剤は、(A) 成分、(B) 成分、(C) 成分、(D) 成分、および、(G) 成分の合計量に対する、フィルム状接着剤に含まれる固形樹脂成分の含有量の割合が70～85であることが好ましい。

[0013] また、本発明は、半導体装置の製造時に、本発明のフィルム状接着剤をNCFとして用いた半導体装置を提供する。

[0014] また、本発明の半導体装置は、銅バンプを有することが好ましい。

### 発明の効果

[0015] 本発明のフィルム状接着剤は、ボイドフリーであり、電氣的接続性およびその信頼性に優れ、クラックが生じにくく、表面平坦性に優れ、かつ、NCFとして使用する際の作業性、すなわち、取り回し性に優れるため、NCF、特に、銅バンプを有する半導体装置の製造時に使用するNCFとして好適である。

### 発明を実施するための形態

[0016] 以下、本発明のフィルム状接着剤について詳細に説明する。

本発明のフィルム状接着剤は、以下に示す（A）～（G）成分を必須成分として含有する。

[0017] （A）エポキシ樹脂

（A）成分のエポキシ樹脂は、本発明のフィルム状接着剤の主剤をなす成分である。

本発明のフィルム状接着剤は、（A）成分として、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、および、液状エポキシ樹脂を含有する。

（A）成分として、フェノールノボラック型エポキシ樹脂を用いるのは、高い架橋密度の硬化物を得ることができ、耐熱性、耐薬品性などの特性を得ることができるからである。

（A）成分としてのフェノールノボラック型エポキシ樹脂は、軟化点が0～70℃であることが、フィルム形成性、実装性の理由から好ましく、10～65℃であることがより好ましい。

[0018] （A）成分として使用する、液状エポキシ樹脂とは常温で液状のエポキシ樹脂を意味する。（A）成分として、フェノールノボラック型エポキシ樹脂に加えて、液状エポキシ樹脂を用いるのは、液状エポキシ樹脂を用いることによって、接着性や耐湿度性などの特性を付与させながら、NCFの加熱時の粘度を下げることで、NCFの貼り付けや、半導体部品の実装時の粘度を低くすることができる。これにより実装性等の作業性が改善される。ま

た、NCFに適度な可撓性を付与することができる。

(A) 成分として使用する、本発明における液状エポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂の平均分子量が約400以下のもの；p-グリシジルオキシフェニルジメチルトリスビスフェノールAジグリシジルエーテルのような分岐状多官能ビスフェノールA型エポキシ樹脂；ビスフェノールF型エポキシ樹脂；フェノールノボラック型エポキシ樹脂の平均分子量が約570以下のもの；ビニル（3，4-シクロヘキセン）ジオキシド、3，4-エポキシシクロヘキシルカルボン酸（3，4-エポキシシクロヘキシル）メチル、アジピン酸ビス（3，4-エポキシ-6-メチルシクロヘキシルメチル）、2-（3，4-エポキシシクロヘキシル）5，1-スピロ（3，4-エポキシシクロヘキシル）-m-ジオキサンのような脂環式エポキシ樹脂；3，3'，5，5'-テトラメチル-4，4'-ジグリシジルオキシビフェニルのようなビフェニル型エポキシ樹脂；ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジル、3-メチルヘキサヒドロフタル酸ジグリシジル、ヘキサヒドロテレフタル酸ジグリシジルのようなグリシジルエステル型エポキシ樹脂；ジグリシジルアニリン、ジグリシジルトルイジン、トリグリシジル-p-アミノフェノール、テトラグリシジル-m-キシリレンジアミン、テトラグリシジルのビス（アミノメチル）シクロヘキサンのようなグリシジルアミン型エポキシ樹脂；ならびに1，3-ジグリシジル-5-メチル-5-エチルヒダントインのようなヒダントイン型エポキシ樹脂；ナフタレン環含有エポキシ樹脂が例示される。また、1，3-ビス（3-グリシドキシプロピル）-1，1，3，3-テトラメチルジシロキサンのようなシリコーン骨格をもつエポキシ樹脂も使用することができる。さらに、（ポリ）エチレングリコールジグリシジルエーテル、（ポリ）プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ブタンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテルのようなジエポキシド化合物；トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテルのようなトリエポキシド化合物等も例示され

る。

中でも好ましくは、液状ビスフェノール型エポキシ樹脂、液状アミノフェノール型エポキシ樹脂、シリコーン変性エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂である。さらに好ましくは液状ビスフェノールA型エポキシ樹脂、液状ビスフェノールF型エポキシ樹脂、p-アミノフェノール型液状エポキシ樹脂、1,3-ビス(3-グリシドキシプロピル)テトラメチルジシロキサンである。

[0019] 本発明のフィルム状接着剤では、(A)成分のエポキシ樹脂に占めるフェノールノボラック型エポキシ樹脂の割合が46%以上である。(A)成分のエポキシ樹脂に占めるフェノールノボラック型エポキシ樹脂の割合が46%未満だと、耐熱性、耐湿性、耐ヒートサイクル性等の低下の問題がある。

(A)成分のエポキシ樹脂に占めるフェノールノボラック型エポキシ樹脂の割合は55%以上が好ましく、60%以上がより好ましい。

上述したように、フェノールノボラック型エポキシ樹脂の割合が46%以上であるため、(A)成分のエポキシ樹脂に占める液状エポキシ樹脂の割合は54%以下である。(A)成分のエポキシ樹脂に占める液状エポキシ樹脂の割合は45%以下が好ましく、40%以下がより好ましい。

[0020] 本発明のフィルム状接着剤において、(A)成分の含有量は19.3～33.8質量部である。(A)成分の含有量が19.3質量部より少ないと、T<sub>g</sub>低下による耐熱性、耐リフロー性の低下の問題がある。一方、(A)成分の含有量が33.8質量部より多いと、硬化前のフィルム状接着剤の靱性の低下の問題がある。

本発明のフィルム状接着剤において、(A)成分の含有量は20～31質量部であることが好ましく、20.5～26質量部であることがより好ましく、20.9～25.8質量部であることがさらに好ましい。

[0021] 本発明のフィルム状接着剤において、(B)成分のビスフェノールF型フェノキシ樹脂はフィルム形成剤をなす成分である。

(B)成分のビスフェノールF型フェノキシ樹脂は、軟化点が50～11

0℃であることが実装性の理由から好ましく、60～100℃であることがより好ましい。

[0022] 本発明のフィルム状接着剤において、(B)成分の含有量は7.5～9.1質量部である。(B)成分の含有量が7.5質量部より少ないと、十分なフィルム形成能が得られず、膜厚の均一性や靱性に劣る。一方、(B)成分の含有量が9.1質量部より多いと、粘度が高くなり、流動性が低下する。

本発明のフィルム状接着剤において、(B)成分の含有量は7.8～9.1質量部であることがより好ましく、8.0～9.1質量部であることがさらに好ましい。

[0023] 本発明のフィルム状接着剤において、(C)成分のフェノール樹脂系硬化剤は、(A)成分のエポキシ樹脂の硬化剤をなす成分である。

(C)成分のフェノール樹脂系硬化剤の具体例としては、ノボラック型、レゾール型があるが、レゾール型は加熱硬化時に発ガスを伴った反応を起こしやすく、本発明の用途ではボイドの発生源となりやすい。そのため、加熱硬化時にこのような反応を伴わないノボラック型の使用が好ましい。ノボラック型の具体例としては、例えば、フェノールノボラック型フェノール樹脂、クレゾールノボラック樹脂、フェノールアラルキル（フェニレン、ビフェニレン骨格を含む）樹脂、ナフトールアラルキル樹脂、トリフェノールメタン樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂等が挙げられる。

これらの中でもフェノールノボラック型フェノール樹脂、クレゾールノボラック樹脂が、耐薬品性、耐熱性の理由から好ましく、フェノールノボラック型フェノール樹脂がより好ましい。

[0024] 本発明のフィルム状接着剤において、(A)成分に対する(C)成分の当量比、すなわち、(A)のエポキシ樹脂のエポキシ基1当量に対する、(C)成分のフェノール樹脂系硬化剤の当量比（以下、「(C)成分の当量比」という。）が0.25～0.75である。(C)成分の当量比が上記範囲外であると、密着性、耐熱性の低下によりデラミネーション等が発生し易くなる。

本発明のフィルム状接着剤において、（Ｃ）成分の当量比が０．２５～０．７１であることが好ましく、０．３～０．７１であることがより好ましい。

[0025] 本発明のフィルム状接着剤において、（Ｄ）成分の変性イミダゾール化合物は、（Ａ）成分のエポキシ樹脂の硬化促進剤をなす成分である。

（Ｄ）成分の変性イミダゾール化合物は、イミダゾールを尿素やイソシアネート化合物でアダクトし、さらにその表面をイソシアネート化合物でブロックすることによりカプセル化したものや、イミダゾールをエポキシ化合物でアダクトし、さらにその表面をイソシアネート化合物でブロックすることによりカプセル化したものを指す。具体的には、例えば、ノバキュアＨＸ３９４１ＨＰ、ノバキュアＨＸＡ３０４２ＨＰ、ノバキュアＨＸＡ３９２２ＨＰ、ノバキュアＨＸＡ３７９２、ノバキュアＨＸ３７４８、ノバキュアＨＸ３７２１、ノバキュアＨＸ３７２２、ノバキュアＨＸ３０８８、ノバキュアＨＸ３７４１、ノバキュアＨＸ３７４２、ノバキュアＨＸ３６１３（いずれも旭化成ケミカルズ社製、商品名）等、アミキュアＰＮ－４０Ｊ（味の素ファインテクノ株式会社製、商品名）、フジキュアＦＸＲ－１１２１株式会社Ｔ＆Ｋ　ＴＯＫＡ製、商品名）を挙げることができる。

[0026] 本発明のフィルム状接着剤において、（Ｄ）成分の含有量は１．９～５質量部である。（Ｄ）成分の含有量が上記範囲外であると、硬化速度の遅延や促進が起こり、実装時間の長時間化や可使時間が短くなる等の問題がある。

本発明のフィルム状接着剤において、（Ｄ）成分の含有量は１．９～４質量部であることが好ましい。

[0027] 本発明のフィルム状接着剤において、（Ｅ）成分のシリカフィラーは、実装された半導体パッケージの信頼性を向上させる目的で添加される。

（Ｅ）成分のシリカフィラーとして、シランカップリング剤等で表面処理が施されたものを使用してもよい。表面処理が施されたシリカフィラーを使用した場合、シリカフィラーの凝集を防止する効果が期待される。

[0028] 本発明のフィルム状接着剤において、（Ｅ）成分の含有量は３０～６０質

量部である。(E)成分の含有量が30質量部より少ないと、ヒートサイクル試験等における信頼性低下等の問題がある。一方、(E)成分の含有量が60質量部より多いと、粘度の増加による流動性の低下、透明性の低下等の問題がある。

[0029] (E)成分のシリカフィラーの平均粒径は、0.01～1 $\mu$ mであることが狭ギャップへの浸透性、光透過性の理由から好ましく、0.05～0.3 $\mu$ mであることがより好ましい。ここで、フィラーの形状は特に限定されず、球状、不定形、りん片状等のいずれの形態であってもよい。なお、フィラーの形状が球状以外の場合、フィラーの平均粒径とは該フィラーの平均最大径を意味する。

[0030] (F) オキシキノリン

本発明のフィルム状接着剤において、(F)成分のオキシキノリンは、NCFとして使用される本発明のフィルム状接着剤のフラックス活性剤をなす成分である。

本発明のフィルム状接着剤は、フラックス活性剤として、(F)成分のオキシキノリンを含有することにより、本発明のフィルム状接着剤をNCFとして使用した場合、電氣的接続性およびその信頼性が高い。

[0031] 本発明のフィルム状接着剤において、(F)成分の含有量は2.5～10質量部である。(F)成分の含有量が2.5質量部より少ないと、接続性、特にはんだ濡れ性が低下する等の問題がある。一方、(F)成分の含有量が10質量部より多いと、ボイドが発生しやすくなる等の問題がある。

本発明のフィルム状接着剤において、(F)成分の含有量は3～9質量部であることが好ましく、4～8質量部であることがより好ましい。

[0032] (G) ブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体

本発明のフィルム状接着剤において、(G)成分のブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体は、硬化前のフィルム状接着剤の靱性を向上させる成分である。硬化前のフィルム状接着剤の靱性が向上することにより、本発明のフィルム状接着剤の電氣的接続性およびその信頼性が向上する

。

[0033] 本発明のフィルム状接着剤において、(G)成分の含有量は0.7～2.3質量部である。

(G)成分の含有量が0.7質量部より少ないと、硬化前のフィルム状接着剤が十分な強靱性を得られない等の問題がある。一方、(G)成分の含有量が2.3質量部より多いと、粘度が上がり流動性が不十分となる等の問題がある。

(G)成分の含有量は0.7～2.3質量部であることがより好ましく、(G)成分の含有量は0.9～2質量部であることがさらに好ましい。

[0034] 本発明のフィルム状接着剤は、上記(A)～(G)成分以外に、以下に述べる成分を必要に応じて含有してもよい。

[0035] (H)：シランカップリング剤

本発明のフィルム状接着剤は、NCFとして使用した際に、ICチップや基板に対する密着性を向上させるために、(H)成分としてシランカップリング剤を含有してもよい。

(H)成分のシランカップリング剤としては、エポキシ系、アミノ系、ビニル系、メタクリル系、アクリル系、メルカプト系等の各種シランカップリング剤を用いることができる。これらの中でも、アミノ系シランカップリング剤が、密着性が高い等の理由から好ましい。

アミノ系シランカップリング剤の具体例としては、N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン（商品名：KBM573、信越化学株式会社製）、N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン（商品名：KBM602、信越化学株式会社製）、N-2-(アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン（商品名：KBM603、信越化学株式会社製）、3-アミノプロピルトリメトキシシラン（商品名：KBM903、信越化学株式会社製）、3-アミノプロピルトリエトキシシラン（商品名：KBE903、信越化学株式会社製）、3-トリエトキシシリル-N-(1,3-ジメチル-2-ブチリデン)プロピルアミン（商品名：

K B E 9 1 0 3、信越化学株式会社製）等が挙げられる。

（H）成分としてシランカップリング剤を含有させる場合、（H）成分の含有量は0.3～0.6質量部であることが好ましく、0.3～0.5質量部であることがより好ましい。

[0036] （その他の配合剤）

本発明のフィルム状接着剤は、上記（A）～（H）成分以外の成分を必要に応じてさらに含有してもよい。このような成分の具体例としては、消泡剤、表面調整剤、レオロジー調整剤、着色剤、可塑剤、分散剤、沈降防止剤、増粘剤、艶消し剤等が挙げられる。各配合剤の種類、配合量は常法通りである。

[0037] 本発明のフィルム状接着剤は、フィルム状接着剤に含まれる固形樹脂成分100質量部に対する、液状成分の質量部が18～33質量部であることが流動性、フィルム形成性等の理由から好ましく、18.5～32.8質量部であることがより好ましく、18.8～32.6質量部であることがさらに好ましい。

上述したフィルム状接着剤の各成分のうち、たとえば、（A）成分としてのフェノールノボラック型エポキシ樹脂、（B）成分としてのビスフェノールF型フェノキシ樹脂、（C）成分としてのフェノール樹脂系硬化剤、（D）成分としての変性イミダゾール化合物、（F）成分としてのオキシキノリン、（G）成分としてのブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体が固形樹脂成分であり、（A）成分としての液状エポキシ樹脂、（H）成分としてのシランカップリング剤が液状樹脂成分である。

[0038] 本発明のフィルム状接着剤は、（A）成分、（B）成分、（C）成分、（D）成分、および、（G）成分の合計量に対する、フィルム状接着剤に含まれる固形樹脂成分の含有量の割合が70～85であることが、フィルム形成性等の理由から好ましく、71～84であることがより好ましく、72～83であることがさらに好ましい。

[0039] （フィルム状接着剤の製造）

本発明のフィルム状接着剤は、慣用の方法により製造することができる。  
例えば、溶剤の存在下または非存在下で、上記（Ａ）成分～（Ｇ）成分、含有させる場合はさらに（Ｈ）成分、ならびに、さらに必要に応じて配合するその他の配合剤を加熱真空混合ニーダーにより混合して樹脂組成物を調製する。

上記（Ａ）成分～（Ｇ）成分、含有させる場合はさらに（Ｈ）成分、ならびに、さらに必要に応じて配合するその他の配合剤が所望の含有割合となるように、所定の溶剤濃度に溶解し、それらを１０～８０℃に加温された反応釜に所定量投入し、回転数１００～１０００rpmで回転させながら、常圧混合を３時間行った後、真空下（最大１Ｔorr）でさらに３～６０分混合攪拌することができる。

上記の手順で調製された樹脂組成物を溶剤で希釈してワニスとし、これを支持体の少なくとも片面に塗布し、乾燥させた後、支持体付のフィルム状接着剤、または、支持体から剥離したフィルム状接着剤として提供することができる。

[0040] ワニスとして使用可能な溶剤としては、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類；トルエン、キシレン等の芳香族溶剤；ジオクチルフタレート、ジブチルフタレート等の高沸点溶剤等が挙げられる。溶剤の使用量は特に限定されず、従来から使用されている量とすることができるが、好ましくは、固形分に対して２０～９０質量％である。

[0041] 支持体は、フィルム状接着剤の製造方法における所望の形態により適宜選択され、特に限定されないが、例えば、銅、アルミニウム等の金属箔、ポリエステル、ポリエチレン等の樹脂のキャリアフィルム等が挙げられる。本発明のフィルム状接着剤を、支持体から剥離したフィルムの形態として提供する場合、支持体は、シリコン化合物等の離型剤で離型処理されていることが好ましい。

[0042] ワニスを塗布する方法は、特に限定されないが、例えば、スロットダイ方式、グラビア方式、ドクターコーター方式等が挙げられ、所望のフィルムの

厚みなどに応じて適宜選択される。塗布は、乾燥後に形成されるフィルムの厚みが、所望の厚みになるように行われる。このような厚みは、当業者であれば、溶剤含有量から導くことができる。

[0043] 乾燥の条件は、ワニスに使用される溶剤の種類や量、ワニスの使用量や塗布の厚みなどに応じて適宜設計され、特に限定されるものではないが、例えば、60～100℃であり、大気圧下で行うことができる。

[0044] 次に本発明のフィルム状接着剤の特性について述べる。

[0045] 本発明のフィルム状接着剤は、ボイドフリーであり、後述する実施例に記載の手順でボイドを観察した際に、ボイドが認められない。

上述したように、ICチップの微細化により、隣接する電極間のピッチや、ICと基板との間のギャップが狭くなることにより、ボイドが存在すると、接続強度の低下や配線間のショート不良が発生しやすくなる。本発明のフィルム状接着剤は、ボイドフリーであるため、これらの問題が生じることがない。

[0046] 本発明のフィルム状接着剤は、電氣的接続性およびその信頼性に優れている。

[0047] 本発明のフィルム状接着剤は、耐クラック性が高く、後述する実施例に記載の手順で耐クラック性評価を実施した際に、クラックの発生が認められない。

[0048] 本発明のフィルム状接着剤は、表面平坦性が良好であり、後述する実施例に記載の手順で表面平坦性評価を実施した際に、凹凸の存在が認められない。

[0049] 本発明のフィルム状接着剤は、短時間での実装が可能であり、生産性が高い。

本発明のフィルム状接着剤は、フラックス効果を併せ持っており、はんだ接続性に優れる。

[0050] 本発明のフィルム状接着剤は、上記の特性により、NCF、特に、銅バンブを有する半導体装置の製造時に使用するNCFとして好適である。

[0051] 次に本発明のフィルム状接着剤の使用手順を以下に示す。

本発明のフィルム状接着剤を用いて半導体パッケージを実装する場合、基板上の半導体チップを実装する位置へフィルム状接着剤を所望の形状にてラミネータ等で貼り付ける。

また、半導体回路が形成されたウエハ上へラミネータ等にて貼り付けた後、ダイサー等により個々のチップへ切り出すこともできる。ラミネーション条件は特に限定されないが、加熱、加圧、減圧などの条件を適宜組み合わせることができる。特に微細な凹凸へボイド等の欠陥なく貼り付けるためには、加熱温度は40～120℃、減圧度は50kPa以下、圧力は0.5MPa以上が好ましい。

フィルム状接着剤をラミネーション等により貼り付けた後、フリップチップボンダー等により基板上のチップ搭載位置へ加熱圧着によって半導体チップを実装する。加熱圧着条件は特に限定されないが、半導体チップサイズ、 bumps 材質、 bumps 数等により加熱圧着条件を適宜選択することができる。

加熱温度は50～300℃、時間は1～20秒、圧力は5～450Nであることが好ましい。

[0052] 本発明の半導体装置は、半導体装置の製造時に、本発明のフィルム状接着剤として使用したものである限り特に限定されない。本発明の半導体装置の具体例としては、フリップチップ構造を有する半導体装置が挙げられる。フリップチップは、 bumps と呼ばれる突起状の電極を有しており、この電極を介して基板等の電極と接続される。 bumps 材質としては、はんだ、金、銅等が上げられる。フリップチップと接続される基板としてはFR-4等の単層、または積層された有機基板、シリコン、ガラス、セラミックなどの無機基板があり、銅および銅上への金メッキまたはスズメッキ、はんだ層等を形成した電極が用いられる。フリップチップ構造の半導体装置としては、DRAM (Dynamic Random Access Memory) 等のメモリーデバイス、CPU (Central Processing Unit) GPU (Graphics Processing Unit) 等のプ

ロセッサデバイス、LED (Light Emitting Diode) 等の発光素子、LCD (Liquid Crystal Display) 等に使用されるドライバーIC等が挙げられる。

なお、上述したフィルム状接着剤の特性により、本発明の半導体装置は銅パンパを有することが好ましい。

## 実施例

[0053] 以下、実施例により、本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0054] (実施例1～13、比較例1～14)

下記表に示す配合割合となるように、各原料を配合して塗工用ワニスを調製した。ここで、(A)～(C)成分は、それぞれメチルエチルケトンへ50wt%の濃度となるように溶解させた後、これらを所定の配合割合になるように混合した。次に、(E)～(H)成分を所定量添加して分散させた。分散後、さらに(D)成分を添加し、均一になるように攪拌し、塗工用ワニスを調製した。塗工用ワニスを離型処理された50 $\mu$ m厚のPET(ポリエチレンテレフタレート)上へ塗工し、80℃にて10分間乾燥してメチルエチルケトンを除去し、35 $\mu$ m厚のフィルムを作製した。なお、表中の各組成に関する数値は質量部を表している。

[0055] フィルム状接着剤の作成時に使用した成分は以下の通り。

(A) エポキシ樹脂

(A1) フェノールノボラック型エポキシ樹脂(軟化点約50℃)、商品名YDPN638(新日鉄住金化学株式会社製)

(A2) 液状エポキシ樹脂

(A2a) ビスフェノールA型エポキシ樹脂/ビスフェノールF型エポキシ樹脂混合タイプ、商品名EXA835LV(DIC株式会社製)

(A2b) ビスフェノールA型エポキシ樹脂、商品名HX3088(旭化成イーマテリアルズ株式会社製)のエポキシ成分

(B) ビスフェノールF型フェノキシ樹脂、商品名FX-316(新日鉄住

金化学株式会社製)

(B<sup>1</sup>) ビスフェノールF型フェノキシ樹脂、商品名1256 (三菱化学株式会社製)

(C) フェノール樹脂系硬化剤

クレゾールノボラック型フェノール樹脂、商品名KA-1180 (DIC株式会社製)

(C<sup>1</sup>) エチレングリコール ビスアンヒドロトリメリテート、商品名TMEG-S (新日本理化株式会社製)

(D) 変性イミダゾール化合物

マイクロカプセル型変性イミダゾール化合物、商品名HX3088 (旭化成イーマテリアルズ株式会社製) の変性イミダゾール化合物成分

(E) シリカフィラー

商品名Sciqas (堺化学工業株式会社製)、平均粒径0.1  $\mu$ m

(F) オキシキノリン、和光純薬工業株式会社製

(F<sup>1</sup>) フェノールフタリン、東京化成工業株式会社製

(G) ブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体

商品名XER-32C (JSR株式会社製)

(G<sup>1</sup>) ブタジエン・アクリロニトリル共重合体

商品名N2205 (JSR株式会社製)

(H) シランカップリング剤

フェニルアミノプロピルシラン、商品名KBM573 (信越化学株式会社製)

[0056] 上記の手順で作製したフィルムを用いて、以下の評価を実施した。

(フィルム特性)

耐クラック：PET上に形成されたフィルムを、フィルム切断機にて10mm幅にて切断し、フィルム側面におけるワレ、欠けの発生の有無を確認した。評価結果を下記表に示す。表中の評価は以下の通り。

発生無 ○

発生有 ×

表面平坦性：P E T上に形成されたフィルムを、目視にて観察し、凹み、スジの発生の有無を確認した。表中の評価は以下の通り。

発生無 ○

発生有 ×

[0057] 上記の手順で作製したフィルムをN C Fとして使用し、下記手順により、基板上に半導体チップを実装した。使用した基板は抵抗値測定パッドとソルダーレジスト開口部を有している。使用した半導体チップは、7. 3 m m角で銅バンプを有している。

基板を予め窒素雰囲気下にて加熱乾燥を行った。基板の加熱乾燥終了後、上記の手順で作製したフィルムを約8 m m□に切り出し、基板チップ搭載位置へ載せた。その後、ラミネータ（株式会社名機製作所社製、商品名M L P 5 0 0 / 6 0 0）にてラミネートを行った。ラミネート後、フリップチップボンダー（パナソニックファクトリーソリューションズ株式会社製、商品名F C B 3）にて接続を行った。接続後、加熱オーブン中で、1 6 5 °Cで6 0分間後硬化を行った。

[0058] 上記の手順で基板上に半導体チップを実装した試験片を使用して、以下の評価を実施した。

（ボイド（初期））

C－S A M：上記の手順で作製した試験片について、超音波探傷装置にてチップ下の状態の観察を行った。画像上、ボイドが観察されたものを不良品とした。7試験片について評価を行った。結果を下記表に示す。表中の記載は、異常値になったサンプル数／測定サンプル数を示している。

平面研磨：上記の手順で作製した試験片について、チップ部分を研磨にて除去し、ソルダーレジスト開口部を観察した。顕微鏡にて観察し、ボイドが観察されたものを不良品とした。2試験片について評価を行った。結果を下記表に示す。表中の記載は、異常値になったサンプル数／測定サンプル数を示している。

（接続（初期））

抵抗値：上記の手順で作製した試験片の抵抗値を、基板上に設けられた抵抗値測定パッドを用いて抵抗値を測定した。28～32Ωの抵抗値を示したものを合格とした。結果を下記表に示す。表中の記載は、異常値になったサンプル数／測定サンプル数を示している。また、全てのサンプルが合格だった場合を接続状態が○とし、1サンプルでも不合格があった場合は接続状態が×とした。

接続状態：上記の手順で作製した試験片について、チップ部分を研磨にて除去し、光学顕微鏡にて、はんだ形状を上面から観察します。基板電極上へ濡れ広がりを確認されたものを○とし、されなかったものを×とした。なお、濡れ広がり、はんだ色が基板電極上へ広がっていることが確認されるか否かで判定した。

（吸湿リフロー）

上記の手順でC-SAMによる観察と、抵抗値の測定を行った5試験片を、30℃／60％RHの環境下にて192時間放置した後、260℃リフローを3回通過させた。吸湿リフローの実施後、上記と同様の手順で、C-SAMによる観察と、抵抗値の測定を実施した。

[0059]

[表1]

|                        | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 実施例5 | 実施例6 | 実施例7 |
|------------------------|------|------|------|------|------|------|------|
| (A1)                   | 16.0 | 12.8 | 18.2 | 16.0 | 16.0 | 16.0 | 16.0 |
| (A2a)                  | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 3.8  |
| (A2b)                  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 5.5  |
| (B)                    | 8.5  | 8.5  | 8.5  | 9.1  | 8    | 7.5  | 8.5  |
| (B')                   |      |      |      |      |      |      |      |
| (C)                    | 6.4  | 9.6  | 4.2  | 6.4  | 6.4  | 6.4  | 6.4  |
| (C')                   |      |      |      |      |      |      |      |
| (D)                    | 3.1  | 3.1  | 3.1  | 3.1  | 3.1  | 3.1  | 1.9  |
| (E)                    | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 |
| (F)                    | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  |
| (F')                   |      |      |      |      |      |      |      |
| (G)                    | 1.3  | 1.3  | 1.3  | 0.7  | 1.8  | 2.3  | 1.3  |
| (G')                   |      |      |      |      |      |      |      |
| (H)                    | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  |
| 合計                     | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 硬化剤当量比((C)/(A))        | 0.41 | 0.71 | 0.25 | 0.41 | 0.41 | 0.41 | 0.38 |
| 液状成分／<br>固形樹脂成分100質量部) | 20.5 | 20.5 | 20.5 | 20.5 | 20.5 | 20.5 | 24.1 |
| フィルム特性                 |      |      |      |      |      |      |      |
| 耐クラック                  | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    |
| 表面平坦性                  | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    |
| ボイド(初期)                |      |      |      |      |      |      |      |
| C-SAM                  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  |
| 平面研磨                   | 0/2  | 0/2  | 0/2  | 0/2  | 0/2  | 0/2  | 0/2  |
| 接続(初期)                 |      |      |      |      |      |      |      |
| 抵抗値                    | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  |
| 接続状態                   | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    |
| ボイド(耐吸湿リフロー)           |      |      |      |      |      |      |      |
| C-SAM                  | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  |
| 接続(耐吸湿リフロー)            |      |      |      |      |      |      |      |
| 抵抗値                    | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  | 0/5  |

[0060]

[表2]

|                        | 実施例8 | 実施例9 | 実施例10 | 実施例11 | 実施例12 | 実施例13 |
|------------------------|------|------|-------|-------|-------|-------|
| (A1)                   | 10.3 | 22.4 | 12.8  | 17.7  | 16.0  | 16.0  |
| (A2a)                  | 10   | 8.7  | 5     | 6.2   | 6.2   | 6.2   |
| (A2b)                  | 1.9  | 2.7  | 1.5   | 1.9   | 1.9   | 1.9   |
| (B)                    | 8.5  | 11.9 | 6.8   | 8.5   | 8.5   | 8.9   |
| (B')                   |      |      |       |       |       |       |
| (C)                    | 6.4  | 8.9  | 5.1   | 8.1   | 6.4   | 9.4   |
| (C')                   |      |      |       |       |       |       |
| (D)                    | 5    | 4.3  | 2.5   | 3.1   | 3.1   | 3.1   |
| (E)                    | 50.0 | 30.0 | 60.0  | 50.0  | 46.2  | 50.0  |
| (F)                    | 6.2  | 8.8  | 5     | 2.8   | 10    | 2.8   |
| (F')                   |      |      |       |       |       |       |
| (G)                    | 1.3  | 1.7  | 1     | 1.3   | 1.3   | 1.3   |
| (G')                   |      |      |       |       |       |       |
| (H)                    | 0.4  | 0.6  | 0.3   | 0.4   | 0.4   | 0.4   |
| 合計                     | 100  | 100  | 100   | 100   | 100   | 100   |
| 硬化剤当量比((C)/(A))        | 0.45 | 0.41 | 0.41  | 0.49  | 0.41  | 0.6   |
| 液状成分／<br>固形樹脂成分100質量部) | 32.6 | 20.6 | 20.5  | 20.5  | 18.8  | 20.7  |
| フィルム特性                 |      |      |       |       |       |       |
| 耐クラック                  | ○    | ○    | ○     | ○     | ○     | ○     |
| 表面平坦性                  | ○    | ○    | ○     | ○     | ○     | ○     |
| ボイド(初期)                |      |      |       |       |       |       |
| G-SAM                  | 0/7  | 0/7  | 0/7   | 0/7   | 0/7   | 0/7   |
| 平面研磨                   | 0/2  | 0/2  | 0/2   | 0/2   | 0/2   | 0/2   |
| 接続(初期)                 |      |      |       |       |       |       |
| 抵抗値                    | 0/7  | 0/7  | 0/7   | 0/7   | 0/7   | 0/7   |
| 接続状態                   | ○    | ○    | ○     | ○     | ○     | ○     |
| ボイド(耐吸湿リフロー)           |      |      |       |       |       |       |
| G-SAM                  | 0/5  | 0/5  | 0/5   | 0/5   | 0/5   | 0/5   |
| 接続(耐吸湿リフロー)            |      |      |       |       |       |       |
| 抵抗値                    | 0/5  | 0/5  | 0/5   | 0/5   | 0/5   | 0/5   |

[0061]

[表3]

|                        | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 | 比較例4 | 比較例5 | 比較例6 | 比較例7 |
|------------------------|------|------|------|------|------|------|------|
| (A1)                   | 22.4 | 21.7 | 7.9  | 20.2 | 11.2 | 16.0 | 16.0 |
| (A2a)                  | 6.2  | 2.4  | 11.6 | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 6.2  |
| (A2b)                  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 1.9  | 1.9  |
| (B)                    | 8.5  | 8.5  | 8.5  | 8.5  | 8.5  | 8.5  |      |
| (B')                   |      |      |      |      |      |      |      |
| (C)                    |      | 6.4  | 6.4  | 6.4  | 6.4  | 6.4  | 6.4  |
| (C')                   |      |      |      |      |      |      |      |
| (D)                    | 3.1  | 1.2  | 5.8  | 3.1  | 3.1  | 3.1  | 3.1  |
| (E)                    | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 | 50.0 |
| (F)                    | 6.2  | 6.2  | 6.2  | 2    | 11   |      | 6.2  |
| (F')                   |      |      |      |      |      | 6.2  |      |
| (G)                    | 1.3  | 1.3  | 1.3  | 1.3  | 1.3  | 1.3  | 9.8  |
| (G')                   |      |      |      |      |      |      |      |
| (H)                    | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  | 0.4  |
| 合計                     | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  | 100  |
| 硬化剤当量比((C)/(A))        | 0    | 0.38 | 0.47 | 0.35 | 0.51 | 0.41 | 0.41 |
| 液状成分／<br>固形樹脂成分100質量部) | 20.5 | 10.4 | 38.5 | 20.5 | 20.5 | 20.5 | 20.5 |
| フィルム特性                 |      |      |      |      |      |      |      |
| 耐クラック                  | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    |
| 表面平坦性                  | ○    | ○    | ○    | ○    | ○    | ×    | ○    |
| ボイド(初期)                |      |      |      |      |      |      |      |
| C-SAM                  | 5/7  | 2/7  | 0/7  | 0/7  | 7/7  | 2/7  | 7/7  |
| 平面研磨                   | 2/2  | 2/2  | 0/2  | 0/2  | 2/2  | 2/2  | 2/2  |
| 接続(初期)                 |      |      |      |      |      |      |      |
| 抵抗値                    | 0/7  | 0/7  | 5/7  | 0/7  | 0/7  | 0/7  | 7/7  |
| 接続状態                   | ○    | ○    | ×    | ×    | ○    | ×    | ×    |
| ボイド(耐吸湿リフロー)           |      |      |      |      |      |      |      |
| C-SAM                  | 未評価  | 未評価  | 未評価  | 0/5  | 未評価  | 未評価  | 未評価  |
| 接続(耐吸湿リフロー)            |      |      |      |      |      |      |      |
| 抵抗値                    | 未評価  | 未評価  | 未評価  | 5/5  | 未評価  | 未評価  | 未評価  |

[0062]

[表4]

|                        | 比較例8 | 比較例9 | 比較例10 | 比較例11 | 比較例12 | 比較例13 | 比較例14 |
|------------------------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|
| (A1)                   | 19.0 | 16.0 | 16.0  | 16.0  | 16.0  | 15.0  | 16.0  |
| (A2a)                  | 6.2  | 6.2  | 6.2   | 6.2   | 6.2   | 6.2   | 6.2   |
| (A2b)                  | 1.9  | 1.9  | 1.9   | 1.9   | 1.9   | 1.9   | 1.9   |
| (B)                    | 8.5  | 8.5  | 9.3   | 7.3   |       | 8.5   | 9.8   |
| (B')                   |      |      |       |       | 8.5   |       |       |
| (C)                    | 3.4  | 6.4  | 6.4   | 6.4   | 6.4   |       | 6.4   |
| (C')                   |      |      |       |       |       | 7.4   |       |
| (D)                    | 3.1  | 3.1  | 3.1   | 3.1   | 3.1   | 3.1   | 3.1   |
| (E)                    | 50.0 | 50.0 | 50.0  | 50.0  | 50.0  | 50.0  | 50.0  |
| (F)                    | 6.2  | 6.2  | 6.2   | 6.2   | 6.2   | 6.2   | 6.2   |
| (F')                   |      |      |       |       |       |       |       |
| (G)                    | 1.3  |      | 0.5   | 2.5   | 1.3   | 1.3   |       |
| (G')                   |      | 1.3  |       |       |       |       |       |
| (H)                    | 0.4  | 0.4  | 0.4   | 0.4   | 0.4   | 0.4   | 0.4   |
| 合計                     | 100  | 100  | 100   | 100   | 100   | 100   | 100   |
| 硬化剤当量比((C)/(A))        | 0.19 | 0.41 | 0.41  | 0.41  | 0.41  | 0.28  | 0.41  |
| 液状成分／<br>固形樹脂成分100質量部) | 20.5 | 21.1 | 20.5  | 20.5  | 20.5  | 20.5  | 20.5  |
| フィルム特性                 |      |      |       |       |       |       |       |
| 耐クラック                  | ○    | ○    | ○     | ○     | ○     | ○     | ○     |
| 表面平坦性                  | ○    | ○    | ○     | ○     | ○     | ×     | ○     |
| ボイド(初期)                |      |      |       |       |       |       |       |
| C-SAM                  | 0/7  | 1/7  | 0/7   | 0/7   | 0/7   | 7/7   | 0/7   |
| 平面研磨                   | 0/2  | 2/2  | 0/2   | 2/2   | 0/2   | 2/2   | 0/2   |
| 接続(初期)                 |      |      |       |       |       |       |       |
| 抵抗値                    | 0/7  | 0/7  | 0/7   | 0/7   | 2/7   | 0/7   | 0/7   |
| 接続状態                   | ○    | ○    | ○     | ×     | ×     | ○     | ○     |
| ボイド(耐吸湿リフロー)           |      |      |       |       |       |       |       |
| C-SAM                  | 5/5  | 未評価  | 3/5   | 未評価   | 未評価   | 未評価   | 3/5   |
| 接続(耐吸湿リフロー)            |      |      |       |       |       |       |       |
| 抵抗値                    | 3/5  | 未評価  | 2/5   | 未評価   | 未評価   | 未評価   | 3/5   |

[0063] 実施例1～13は、いずれもフィルム特性（耐クラック性、表面平坦性）が良好であった。また、上記の手順で作製した試験片のボイドおよび接続性の評価が、作製初期および接続性吸湿リフロー後のいずれも良好であった。なお、実施例2、3は、(C)成分のフェノール樹脂系硬化剤の含有量を変えた実施例である。実施例4～6は、(G)成分のブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体の含有量を変えた実施例である。実施例7、8は(D)成分の変性イミダゾール化合物の含有量を変えた実施例である。実施例9、10は(E)成分のシリカフィラーの含有量を変えた実施例である。実施例11～13は(F)成分のオキシキノリンの含有量を変えた実施例である。実施例13は、実施例11に対し、(C)成分のフェノール樹脂系硬化剤の含有量を変えている。

比較例1は、(C)成分のフェノール樹脂系硬化剤を含有しない例であり

、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 2 は、(D) 成分の変性イミダゾール化合物の含有量が 1.9 質量部未満の例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 3 は、(D) 成分の変性イミダゾール化合物の含有量が 5 質量部超の例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期の接続性の評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 4 は、(F) 成分のオキシキノリンの含有量が 2.5 質量部未満の例であり、上記の手順で作製した試験片の吸湿リフロー後の接続性の評価が不合格であった。比較例 5 は、(F) 成分のオキシキノリンの含有量が 10 質量部超の例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 6 は、(F) 成分のオキシキノリンではなく、(F') 成分としてフェノールフタリンを使用した例であり、フィルムの表面平坦性、および、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 7 は、(B) 成分のビスフェノール F 型フェノキシ樹脂を含有しない例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価および接続の評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 8 は、(A) 成分のエポキシ樹脂に対する、(C) 成分のフェノール樹脂系硬化剤の当量比が 0.25 未満の例であり、上記の手順で作製した試験片の吸湿リフロー後のボイドの評価および接続の評価が不合格であった。比較例 9 は、(G) 成分のブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体ではなく、(G') 成分のブタジエン・アクリロニトリル共重合体を使用した例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価および接続の評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 10 は、(G) 成分のブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体の含有量が 0.7 質量部未満の

例であり、上記の手順で作製した試験片の吸湿リフロー後のボイドの評価および接続の評価が不合格であった。比較例 1 1 は、(G) 成分のブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体の含有量が 2.3 質量部超の例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価および接続の評価のうち、平面研磨による評価が不合格であった。比較例 1 2 は、(B) 成分のビスフェノール F 型フェノキシ樹脂ではなく、(B') 成分のビスフェノール F 型フェノキシ樹脂を使用した例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期の接続の評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 1 3 は、(C) フェノール樹脂系硬化剤ではなく、(C') 成分のエチレングリコール ビスアンヒドロトリメリテートを使用した例であり、上記の手順で作製した試験片の作成初期のボイドの評価が不合格であった。そのため、吸湿リフロー後の評価は実施しなかった。比較例 1 4 は、(G) 成分のブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体を含有しない例であり、上記の手順で作製した試験片の吸湿リフロー後のボイドの評価および接続の評価が不合格であった。

## 請求の範囲

- [請求項1]            (A) エポキシ樹脂、  
                      (B) ビスフェノールF型フェノキシ樹脂、  
                      (C) フェノール樹脂系硬化剤、  
                      (D) 変性イミダゾール化合物、  
                      (E) シリカフィラー、  
                      (F) オキシキノリン、および、  
                      (G) ブタジエン・アクリロニトリル・メタクリル酸共重合体を含む、  
                      (A) 成分の含有量が19.3～33.8質量部であり、(B)  
                      ) 成分の含有量が7.5～9.1質量部であり、(D) 成分の含有量  
                      が1.9～5質量部であり、(E) 成分の含有量が30～60質量部  
                      であり、(F) 成分の含有量が2.5～10質量部であり、(G) 成  
                      分の含有量が0.7～2.3質量部であり、(A) 成分のエポキシ樹  
                      脂は、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、および、液状エポキシ  
                      樹脂を含有し、(A) 成分のエポキシ樹脂に占めるフェノールノボラ  
                      ック型エポキシ樹脂の割合が46%以上であり、(A) 成分に対する  
                      (C) 成分の当量比が0.25～0.75であることを特徴とするフ  
                      ィルム状接着剤。
- [請求項2]            さらに、(H) シランカップリング剤を含有する、請求項1に記載  
                      のフィルム状接着剤。
- [請求項3]            前記(C) 成分のフェノール樹脂系硬化剤が、クレゾールノボラッ  
                      ク型フェノール樹脂である、請求項1または2に記載のフィルム状接  
                      着剤。
- [請求項4]            フィルム状接着剤に含まれる固形樹脂成分100質量部に対する、  
                      液状成分の質量部が18～33質量部である、請求項1～3のいずれ  
                      かに記載のフィルム状接着剤。
- [請求項5]            (A) 成分、(B) 成分、(C) 成分、(D) 成分、および、(G)  
                      ) 成分の合計量に対する、フィルム状接着剤に含まれる固形樹脂成分

の含有量の割合が70～85である、請求項1～4のいずれかに記載のフィルム状接着剤。

[請求項6]       半導体装置の製造時に、請求項1～5のいずれかに記載のフィルム状接着剤をNCFとして用いた半導体装置。

[請求項7]       銅バンプを有する、請求項6に記載の半導体装置。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/050624

| <b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b><br>C09J7/00(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i,<br>C09J11/06(2006.01)i, C09J109/02(2006.01)i, C09J161/04(2006.01)i,<br>C09J163/00(2006.01)i, C09J163/04(2006.01)i, C09J171/10(2006.01)i,<br>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                                                                                |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------|
| <b>B. FIELDS SEARCHED</b><br>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)<br>C09J7/00, C08L63/00, C09J11/04, C09J11/06, C09J109/02, C09J161/04,<br>C09J163/00, C09J163/04, C09J171/10, H01L21/60<br><br>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched<br>Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2016<br>Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2016 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2016<br><br>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                                                                                |
| <b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                                                                                |
| Category*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                                                                                                                                      | Relevant to claim No.                                                          |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | WO 2011/033743 A1 (Sumitomo Bakelite Co.,<br>Ltd.),<br>24 March 2011 (24.03.2011),<br>claims; paragraphs [0008], [0040] to [0086],<br>[0090] to [0103]; examples<br>& US 2012/0156502 A1<br>claims; paragraphs [0009], [0049] to [0103],<br>[0107] to [0122]; examples<br>& EP 2479228 A1 & CA 2774308 A<br>& CN 102549091 A & KR 10-2012-0064701 A<br>& TW 201130934 A | 1-7                                                                            |
| <input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                                                                                |
| * Special categories of cited documents:<br>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date<br>“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)<br>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed<br>“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<br>“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<br>“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<br>“&” document member of the same patent family |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                                                                                |
| Date of the actual completion of the international search<br>05 April 2016 (05.04.16)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         | Date of mailing of the international search report<br>12 April 2016 (12.04.16) |
| Name and mailing address of the ISA/<br>Japan Patent Office<br>3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,<br>Tokyo 100-8915, Japan                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         | Authorized officer<br><br>Telephone No.                                        |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/050624

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | Relevant to claim No. |
|-----------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | WO 2011/048774 A1 (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.),<br>28 April 2011 (28.04.2011),<br>claims; paragraphs [0008] to [0010], [0024] to [0025], [0039] to [0040]; examples<br>& US 2012/0199988 A1<br>claims; paragraphs [0008] to [0010], [0090] to [0091], [0107] to [0111]; examples<br>& EP 2492956 A1 & CN 102668051 A<br>& TW 201126621 A & KR 10-2012-0095925 A<br>& JP 2011-211156 A              | 1-7                   |
| A         | WO 2010/052871 A1 (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.),<br>14 May 2010 (14.05.2010),<br>claims; paragraphs [0007] to [0010], [0031] to [0032], [0043], [0114] to [0157]; examples<br>& US 2011/0221075 A1<br>claims; paragraphs [0009] to [0013], [0049] to [0050], [0061], [0192] to [0236]; examples<br>& EP 2384103 A1 & CN 102204420 A<br>& TW 201027640 A & KR 10-2011-0082073 A<br>& JP 2014-96608 A | 1-7                   |
| A         | JP 2013-171927 A (Denso Corp.),<br>02 September 2013 (02.09.2013),<br>claims; paragraphs [0009], [0025] to [0030];<br>examples<br>(Family: none)                                                                                                                                                                                                                                                    | 1-7                   |
| A         | WO 2008/004287 A1 (Ablestik (Japan) Co., Ltd.),<br>10 January 2008 (10.01.2008),<br>claims; paragraphs [0005], [0010] to [0011];<br>examples<br>& US 2010/0044088 A1<br>claims; paragraphs [0008], [0017]; examples<br>& EP 2042580 A1                                                                                                                                                              | 1-7                   |
| A         | JP 11-284114 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.),<br>15 October 1999 (15.10.1999),<br>entire text<br>(Family: none)                                                                                                                                                                                                                                                                                      | 1-7                   |
| A         | JP 2000-017240 A (Nitto Denko Corp.),<br>18 January 2000 (18.01.2000),<br>entire text<br>(Family: none)                                                                                                                                                                                                                                                                                             | 1-7                   |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/050624

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                       | Relevant to claim No. |
|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 2002-348486 A (National Starch and Chemical Investment Holding Corp.),<br>04 December 2002 (04.12.2002),<br>entire text<br>& US 6344157 B1<br>entire text<br>& EP 1032038 A2 & KR 10-2002-0066988 A<br>& CN 1373480 A | 1-7                   |
| A         | JP 2006-225426 A (Ablestik (Japan) Co., Ltd.),<br>31 August 2006 (31.08.2006),<br>entire text<br>(Family: none)                                                                                                          | 1-7                   |
| P,A       | JP 2015-137299 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.),<br>30 July 2015 (30.07.2015),<br>entire text<br>(Family: none)                                                                                                           | 1-7                   |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2016/050624

Continuation of A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

(International Patent Classification (IPC))

H01L21/60(2006.01) i

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

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09J7/00(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i,  
C09J109/02(2006.01)i, C09J161/04(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, C09J163/04(2006.01)i,  
C09J171/10(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i

## 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（I P C））

Int.Cl. C09J7/00, C08L63/00, C09J11/04, C09J11/06, C09J109/02, C09J161/04, C09J163/00, C09J163/04,  
C09J171/10, H01L21/60

## 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

|             |                     |
|-------------|---------------------|
| 日本国実用新案公報   | 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1 9 7 1 - 2 0 1 6 年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1 9 9 6 - 2 0 1 6 年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1 9 9 4 - 2 0 1 6 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<br>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<br>請求項の番号 |
|-----------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| A               | WO 2011/033743 A1（住友ベークライト株式会社）2011.03.24,<br>請求の範囲, 段落[0008], [0040]-[0086], [0090]- [0103], 実施例<br>& US 2012/0156502 A1, 特許請求の範囲, 段落[0009],<br>[0049]-[0103], [0107]- [0122], 実施例<br>& EP 2479228 A1 & CA 2774308 A & CN 102549091 A<br>& KR 10-2012-0064701 A & TW 201130934 A | 1-7            |

☒ 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。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「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  
「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）  
「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

「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矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「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  
「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  
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 5 . 0 4 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

1 2 . 0 4 . 2 0 1 6

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

仁科 努

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 0

4 Z

4 0 7 9

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                |
|-----------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号 |
| A                     | WO 2011/048774 A1 (住友ベークライト株式会社) 2011.04.28,<br>請求の範囲, 段落[0008]-[0010], [0024]-[0025], [0039]- [0040],<br>実施例<br>& US 2012/0199988 A1, 特許請求の範囲, 段落[0008]-[0010],<br>[0090]-[0091], [0107]- [0111], 実施例<br>& EP 2492956 A1 & CN 102668051 A & TW 201126621 A<br>& KR 10-2012-0095925 A & JP 2011-211156 A                | 1-7            |
| A                     | WO 2010/052871 A1 (住友ベークライト株式会社) 2010.05.14,<br>請求の範囲, 段落[0007]-[0010], [0031]-[0032], [0043], [0114]-<br>[0157], 実施例<br>& US 2011/0221075 A1, 特許請求の範囲, 段落[0009]-[0013],<br>[0049]-[0050], [0061], [0192]- [0236], 実施例<br>& EP 2384103 A1 & CN 102204420 A & TW 201027640 A<br>& KR 10-2011-0082073 A & JP 2014-96608 A | 1-7            |
| A                     | JP 2013-171927 A (株式会社デンソー) 2013.09.02,<br>特許請求の範囲, 段落[0009], [0025]-[0030], 実施例<br>(ファミリーなし)                                                                                                                                                                                                                           | 1-7            |
| A                     | WO 2008/004287 A1 (日本エイブルスティック株式会社) 2008.01.10,<br>請求の範囲, 段落[0005], [0010]-[0011], 実施例<br>& US 2010/0044088 A1, 特許請求の範囲, 段落[0008], [0017],<br>実施例<br>& EP 2042580 A1                                                                                                                                                    | 1-7            |
| A                     | JP 11-284114 A (日立化成工業株式会社) 1999.10.15, 全文<br>(ファミリーなし)                                                                                                                                                                                                                                                                 | 1-7            |
| A                     | JP 2000-017240 A (日東電工株式会社) 2000.01.18, 全文<br>(ファミリーなし)                                                                                                                                                                                                                                                                 | 1-7            |
| A                     | JP 2002-348486 A (ナショナル スターチ アンド ケミカル イ<br>ンベストメント ホールディング コーポレイション) 2002.12.04,<br>全文<br>& US 6344157 B1, 全文<br>& EP 1032038 A2 & KR 10-2002-0066988 A & CN 1373480 A                                                                                                                                                  | 1-7            |
| A                     | JP 2006-225426 A (日本エイブルスティック株式会社) 2006.08.31,<br>全文<br>(ファミリーなし)                                                                                                                                                                                                                                                       | 1-7            |

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                             |                |
|-----------------------|-------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号 |
| P, A                  | JP 2015-137299 A (住友ベークライト株式会社) 2015.07.30, 全文<br>(ファミリーなし) | 1-7            |