(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
2019年9月6日(06.09.2019)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2019/167286 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 23/373 (2006.01)　*C09J 11/04* (2006.01)
B32B 27/18 (2006.01)　*C09J 201/00* (2006.01)
C09J 7/20 (2018.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2018/008184

(22) 国際出願日：　2018年3月2日(02.03.2018)

(25) 国際出願の言語：　日本語

(26) 国際公開の言語：　日本語

(71) 出願人: 日立化成株式会社(**HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.**) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 石田　恭久 (**ISHIDA, Yasuhisa**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 高瀬 有司 (**TAKASE, Yuji**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 平野 寿枝 (**HIRANO, Kazue**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 小畑 和仁 (**OBATA, Kazuhito**); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人太陽国際特許事務所 (**TAIYO, NAKAJIMA & KATO**); 〒1600022 東京都新宿区新宿４丁目３番１７号 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, 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), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：
— 国際調査報告（条約第21条(3)）

WO 2019/167286 A1

(54) **Title:** HEAT DISSIPATION SHEET FOR LEAD FRAME, METHOD FOR MANUFACTURING LEAD FRAME WITH HEAT DISSIPATION SHEET, AND LEAD FRAME WITH HEAT DISSIPATION SHEET

(54) 発明の名称：リードフレーム用放熱シート、放熱シート付きリードフレームの製造方法及び放熱シート付きリードフレーム

(57) **Abstract:** This heat dissipation sheet for a lead frame is provided with an adhesive layer and an insulation layer, the insulation layer being in an A-stage or B-stage state.

(57) 要約：接着層と、絶縁層と、を備え、前記絶縁層がＡステージ又はＢステージの状態であるリードフレーム用放熱シート。

明　細　書

発明の名称 ：

リードフレーム用放熱シート、放熱シート付きリードフレームの製造方法及び放熱シート付きリードフレーム

技術分野

[0001] 本発明は、リードフレーム用放熱シート、放熱シート付きリードフレームの製造方法及び放熱シート付きリードフレームに関する。

背景技術

[0002] 近年、電子機器の小型化、大容量化、高性能化等の進行に伴い、半導体パッケージ、配線板等の消費電力量が増大し、発熱量が益々増大している。また、半導体素子の高密度化に伴い、半導体素子の単位面積あたりの発熱量も益々増大している。このため、半導体パッケージ、配線板等から発生する熱をより効率的に放散（放熱）させる放熱構造及び放熱材料が望まれている。

[0003] 放熱の一般的な方法として、半導体パッケージ等の発熱体と、アルミニウム製又は銅製の放熱体との間にグリース又は樹脂シートを挟んで密着させ、外部に熱を伝達する方法が採用されている。例えば、特許文献１には、熱伝導性シリコーン組成物（グリース）が開示されている。また、特許文献２には、絶縁性非球状粒子及び有機高分子化合物を含む組成物からなる層（Ａ）と、絶縁性樹脂組成物からなる層（Ｂ）とが積層された熱伝導シート（樹脂シート）が開示されている。また、特許文献３には、無機絶縁性材料からなるフィラー及び接着剤を含む第１の接着剤層と、第１の接着剤層の少なくとも一方の面上に形成され、実質的に接着剤のみからなる第２の接着剤層とを有する絶縁性樹脂膜（樹脂シート）が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第３１９５２７７号公報

特許文献2：特開２０１１－２３０４７２号公報

特許文献3：特開２００９－２１５３０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] ところで、被着体に対する接着性及び放熱性のバランスを良好とすることを目的として、フィラー（無機充填材）の含有量が異なる層を備える放熱シート、例えば、被着体と接着する接着層及び当該接着層の被着体側の面とは反対側に積層された絶縁層とを備える放熱シートとすることがある。このとき、接着層と絶縁層との間で界面剥離が生じて、接着層と絶縁層との密着性が悪化してしまうおそれがある。

[0006] 本開示の一形態は、接着層と絶縁層との界面剥離が抑制されたリードフレーム用放熱シート、放熱シート付きリードフレームの製造方法及び放熱シート付きリードフレームを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 前記課題を達成するための具体的手段は以下の通りである。

＜１＞ 接着層と、絶縁層とを備え、前記絶縁層がＡステージ又はＢステージの状態であるリードフレーム用放熱シート。

＜２＞ 前記絶縁層の硬化率が１０％以下である＜１＞に記載のリードフレーム用放熱シート。

＜３＞ 前記絶縁層に対する前記接着層の厚さ比率（接着層／絶縁層）が１．０以下である＜１＞又は＜２＞に記載のリードフレーム用放熱シート。

＜４＞ 前記接着層を硬化させる前の１５５℃において、前記接着層及び前記絶縁層とともに放熱層を備える場合の放熱シートの変形率が２．０％以上である＜１＞～＜３＞のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

＜５＞ 前記接着層を硬化させる前の１５５℃において、前記接着層及び前記絶縁層とともに放熱層を備える場合の放熱シートの変形率が１５％以下である＜１＞～＜４＞のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

＜６＞ 前記接着層及び前記絶縁層はそれぞれ無機充填材を含み、前記接着

層中の無機充填材の含有率が５０体積％以上であり、前記絶縁層中の無機充填材の含有率が６０体積％以上であり、前記絶縁層に対する前記接着層の無機充填材の体積含有率の比（接着層／絶縁層）が１．００以下である＜１＞～＜５＞のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

＜７＞　前記接着層がＢステージの状態である＜１＞～＜６＞のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

＜８＞　放熱層をさらに備え、前記接着層と、前記絶縁層と、前記放熱層とをこの順で備える＜１＞～＜７＞のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

[0008] ＜９＞　＜１＞～＜８＞のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シートを前記接着層を介し、チップが実装されたリードフレームと接着させる放熱シート付きリードフレームの製造方法。

[0009] ＜１０＞　チップと、前記チップが実装されたリードフレームと、＜１＞～＜８＞のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シートと、を備える放熱シート付きリードフレーム。

発明の効果

[0010] 本開示の一形態によれば、接着層と絶縁層との界面剥離が抑制されたリードフレーム用放熱シート、放熱シート付きリードフレームの製造方法及び放熱シート付きリードフレームを提供することができる。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明する。但し、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。以下の実施形態において、その構成要素（要素ステップ等も含む）は、特に明示した場合を除き、必須ではない。数値及びその範囲についても同様であり、本発明を制限するものではない。

本開示において「工程」との語には、他の工程から独立した工程に加え、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の目的が達成されれば、当該工程も含まれる。

本開示において「～」を用いて示された数値範囲には、「～」の前後に記載される数値がそれぞれ最小値及び最大値として含まれる。

本開示中に段階的に記載されている数値範囲において、一つの数値範囲で記載された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、本開示中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

本開示において各成分は該当する物質を複数種含んでいてもよい。接着層又は絶縁層中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合、接着層又は絶縁層中の各成分の含有率は、特に断らない限り、接着層又は絶縁層中に存在する当該複数種の物質の合計の含有率を意味する。

本開示において各成分に該当する粒子は複数種含んでいてもよい。接着層又は絶縁層中に各成分に該当する粒子が複数種存在する場合、各成分の粒子径は、特に断らない限り、接着層又は絶縁層中に存在する当該複数種の粒子の混合物についての値を意味する。

本開示において「層」との語には、当該層が存在する領域を観察したときに、当該領域の全体に形成されている場合に加え、当該領域の一部にのみ形成されている場合も含まれる。

本開示において「積層」との語は、層を積み重ねることを示し、二以上の層が結合されていてもよく、二以上の層が着脱可能であってもよい。

[0012] ＜リードフレーム用放熱シート＞

本開示のリードフレーム用放熱シート（以下、「放熱シート」とも称する）は、接着層と、絶縁層と、を備え、前記絶縁層がＡステージ又はＢステージの状態である。この放熱シートは、接着層を介してチップが実装されたリードフレーム（以下、「リードフレーム」とも称する）と貼り付けて使用される。

本開示の放熱シートでは、絶縁層がＡステージ又はＢステージの状態であり、絶縁層の硬化率が比較的低いため、接着層と絶縁層との密着性に優れて

おり、接着層と絶縁層との界面剥離が抑制される。

また、本開示の放熱シートは、必要に応じて、接着層と、絶縁層と、放熱層とがこの順になるように後述する放熱層を備えていてもよい。

[0013] 本開示において、Ａステージとは、樹脂ワニス等の樹脂組成物を用いて接着層又は絶縁層を形成し、必要に応じて乾燥処理を行った状態をいう。

Ｂステージとは、Ａステージの接着層又は絶縁層をさらに加熱加圧処理して得られる状態をいい、具体的には硬化率が５０％未満の状態をいう。

[0014] 例えば、接着層及び絶縁層は、硬化率がそれぞれ１０％以下であってもよい。なお、接着層及び絶縁層の硬化率は、接着層及び絶縁層を加熱する際の硬化発熱を測定することにより求められ、具体的には、後述の実施例に記載の方法により測定することができる。

[0015] ［接着層］

本開示の放熱シートは、接着層を備える。接着層は、被着体であるリードフレームと接着する層である。

[0016] 接着層は、樹脂成分を含んでいてもよく、例えば、フェノキシ樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリフェニルスルホン樹脂、アクリル樹脂、メタクリル樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリエステル樹脂等の熱可塑性樹脂、エポキシ樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、シリコーン樹脂等の熱硬化性樹脂などを含んでいてもよい。樹脂成分としては、１種を単独で用いても２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0017] 接着層は、熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂をともに含んでいてもよく、例えば、ポリアミドイミド樹脂及びエポキシ樹脂をともに含んでいてもよい。

[0018] 接着層は、ポリアミドイミド樹脂の少なくとも１種を含むことが好ましい。ポリアミドイミド樹脂としては、接着性、耐熱性等の観点から、シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂を含むことが好ましい。

[0019] シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂は、公知の化合物から適宜選択することができる。中でも、シロキサン変性ジアミンを用いて合成されるシロキ

サン変性ポリアミドイミド樹脂であることが好ましい。このようなシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂としては、日立化成株式会社のＫＳ９００３、ＫＳ９００６、ＫＳ９９００Ｆ等が挙げられる。

[0020] 接着層におけるポリアミドイミド樹脂の含有率は特に制限されず、接着性と耐熱性の観点から、接着層の固形分中に２質量％～１０質量％であることが好ましく、３質量％～８質量％であることがより好ましく、４質量％～７質量％であることがさらに好ましい。

なお、ポリアミドイミド樹脂中におけるシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂の含有率は、６０質量％～１００質量％であってもよく、８０質量％～１００質量％であってもよく、９０質量％～１００質量％であってもよい。

[0021] 接着層は、エポキシ樹脂の少なくとも１種を含むことが好ましい。接着層がエポキシ樹脂を含むことで耐熱性がより向上する傾向にある。

エポキシ樹脂としては特に制限されず、通常用いられるエポキシ樹脂から適宜選択することができる。中でも、接着層がポリアミドイミド樹脂を含む場合、エポキシ樹脂は、１分子中に２以上のエポキシ基を有するエポキシ樹脂であって、ポリアミドイミド樹脂（好ましくは、シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂）と相溶可能なエポキシ樹脂を含むことが好ましい。

ここで、相溶可能とはエポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを所望の比率で混合した場合に、目視にて均一に混合された状態が確認可能であることをいう。

[0022] エポキシ樹脂として具体的には、フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ等のフェノール化合物及びα－ナフトール、β－ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種のフェノール性化合物と、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド等の脂肪族アルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものであるノボラック型エポキシ樹脂（フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エ

ポキシ樹脂等）；上記フェノール性化合物と、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等の芳香族アルデヒド化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるトリフェニルメタン型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂；上記フェノール化合物及びナフトール化合物と、アルデヒド化合物とを酸性触媒下で共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したものである共重合型エポキシ樹脂；ビスフェノールＡ、ビスフェノールＦ等のジグリシジルエーテルであるジフェニルメタン型エポキシ樹脂；アルキル置換又は非置換のビフェノールのジグリシジルエーテルであるビフェニル型エポキシ樹脂；スチルベン系フェノール化合物のジグリシジルエーテルであるスチルベン型エポキシ樹脂；ビスフェノールＳ等のジグリシジルエーテルである硫黄原子含有エポキシ樹脂；ブタンジオール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等のアルコール類のグリシジルエーテルであるエポキシ樹脂；フタル酸、イソフタル酸、テトラヒドロフタル酸等の多価カルボン酸化合物のグリシジルエステルであるグリシジルエステル型エポキシ樹脂；アニリン、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等の窒素原子に結合した活性水素をグリシジル基で置換したものであるグリシジルアミン型エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエンとフェノール化合物の共縮合樹脂をエポキシ化したものであるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂；分子内のオレフィン結合をエポキシ化したものであるビニルシクロヘキセンジエポキシド、３，４－エポキシシクロヘキシルメチル－３，４－エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、２－（３，４－エポキシ）シクロヘキシル－５，５－スピロ（３，４－エポキシ）シクロヘキサン－ｍ－ジオキサン等の脂環型エポキシ樹脂；パラキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるパラキシリレン変性エポキシ樹脂；メタキシリレン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるメタキシリレン変性エポキシ樹脂；テルペン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるテルペン変性エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるジシクロペンタジエン変性エポキシ樹脂；シ

クロペンタジエン変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるシクロペンタジエン変性エポキシ樹脂；多環芳香環変性フェノール樹脂のグリシジルエーテルである多環芳香環変性エポキシ樹脂；ナフタレン環含有フェノール樹脂のグリシジルエーテルであるナフタレン型エポキシ樹脂；ハロゲン化フェノールノボラック型エポキシ樹脂；ハイドロキノン型エポキシ樹脂；トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂；オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂；フェノールアラルキル樹脂、ナフトールアラルキル樹脂等のアラルキル型フェノール樹脂をエポキシ化したものであるアラルキル型エポキシ樹脂；などが挙げられる。これらのエポキシ樹脂は、１種を単独で用いても２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0023] 中でも、エポキシ樹脂は、熱伝導率の観点から、環状骨格を有するエポキシ樹脂を含むことが好ましく、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂の少なくとも一方を含むことがより好ましく、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂をともに含むことがさらに好ましい。

[0024] 接着層におけるエポキシ樹脂の含有率は特に制限されず、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性の観点から、接着層の固形分中に５．５質量％～１５質量％であることが好ましく、６質量％～１４質量％であることがより好ましく、７質量％～１３質量％であることがさらに好ましい。

なお、エポキシ樹脂中におけるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂の合計の含有率は、６０質量％～１００質量％であってもよく、８０質量％～１００質量％であってもよく、９０質量％～１００質量％であってもよい。

[0025] トリフェニルメタン型エポキシ樹脂に対するジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂の含有比率（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂／トリフェニルメタン型エポキシ樹脂）は、質量基準で、１．０～３．０であることが好ましく、１．３～２．７であることがより好ましく、１．５～２．５であることがさらに好ましい。

[0026] 接着層において、エポキシ樹脂に対するポリアミドイミド樹脂の含有比率（ポリアミドイミド樹脂／エポキシ樹脂）は、質量基準で、０．２５～１．００であることが好ましく、０．３５～０．７５であることがより好ましく、０．５０～０．６５であることがさらに好ましい。

[0027] 本開示の放熱シートは、熱伝導性の観点から、絶縁層に対する接着層の厚さ比率（接着層／絶縁層）は、１．０以下であることが好ましく、０．９以下であることがより好ましく、０．８以下であることがさらに好ましく、０．７以下であることが特に好ましい。

[0028] また、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性の観点から、絶縁層に対する接着層の厚さ比率（接着層／絶縁層）は、０．３以上であることが好ましく、０．４以上であることがより好ましく、０．５以上であることがさらに好ましい。

[0029]（接着層の平均厚さ）

接着層の平均厚さは、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性及び熱伝導性の観点から、例えば、５０μｍ～１５０μｍであることが好ましく、６０μｍ～１３０μｍであることがより好ましく、７０μｍ～１１０μｍであることがさらに好ましい。

なお、接着層の平均厚さは、マイクロメーター（例えば、株式会社ミツトヨ、マイクロメーター　ＩＰ６５）、多層膜厚測定器（例えば、株式会社キーエンス、ＳＩ－Ｔシリーズ）等を用いて、９点の厚さを測定し、その算術平均値として算出することができる。

また、接着層及び絶縁層が積層された放熱シートでは、接着層の平均厚さ及び後述する絶縁層の平均厚さは、多層膜厚測定器（例えば、株式会社キーエンス、ＳＩ－Ｔシリーズ）を用いて、接着層及び絶縁層のそれぞれの９点の厚さを測定し、その算術平均値として算出することができる。

[0030] また、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性の観点から、接着層を硬化させる前の１５５℃において、接着層及び絶縁層とともに放熱層を備える場合の放熱シートの変形率は、２％以上であることが好ましく、３％

以上であることがより好ましく、５％以上であることがさらに好ましい。ここで、前述の変形率が高いと、接着層を介して放熱シートをリードフレームに接着する際に、接着層が変形しやすくなる傾向にあり、その結果、リードフレームの貼り付け性が良好となる傾向にある。

なお、本開示において、前述の変形率は、接着層及び絶縁層とともに放熱層（例えば、銅箔）を備える放熱シートを用いて実施例にて記載の方法により測定することができる。

[0031] 一方、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性の観点から、接着層を硬化させる前の１５５℃において、接着層及び絶縁層とともに放熱層を備える場合の放熱シートの変形率は、１５％以下であってもよく、１２％以下であってもよく、１０％以下であってもよい。

[0032] 接着層は無機充填材を含んでいてもよい。無機充填材としては、絶縁性の無機充填材が好ましく、具体的には、体積抵抗率が10^{10}Ω・ｍ以上である無機充填材が好ましい。無機充填材としては、アルミナ、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、窒化ケイ素、結晶性シリカ、非晶性シリカ、炭化ケイ素等の粒子が挙げられる。無機充填材としては、熱伝導性の観点から、アルミナ、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、結晶性シリカ、非晶性シリカ、及び炭化ケイ素からなる群より選択される少なくとも１種の粒子を含むことが好ましく、絶縁性及び熱伝導性を両立する観点から、アルミナ、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、及び結晶性シリカからなる群より選択される少なくとも１種の粒子を含むことがより好ましい。また、体積抵抗率は、それぞれの素材の板状試験片を用いて、ＪＩＳ　Ｋ　７１９４：１９９４に記載の４端子法にて測定すればよい。

[0033] 無機充填材は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。無機充填材を２種以上併用する態様としては、例えば、成分は異なるものの平均粒子径を同じくする無機充填材を２種以上併用する態様、平均粒子径は異なるものの成分を同じくする無機充填材を２種以上併用する態様、並びに

平均粒子径及び成分の異なる無機充填材を２種以上併用する態様が挙げられる。

[0034] 無機充填材の粒子形状は特に制限されず、球状、扁平状、丸み状、破砕状、凝集粒子状等が挙げられる。無機充填材を高充填し、接着層の厚さ方向に熱伝導パスを形成する観点から、球状、丸み状、又は凝集粒子状が好ましい。窒化ホウ素粒子のように一次粒子が比較的大きく扁平状であるものは、一次粒子においてもアスペクト比が小さいものが好ましい。

[0035] 無機充填材の体積平均粒子径は、絶縁性及び熱伝導性の観点から、例えば、１００μｍ以下であることが好ましく、７０μｍ以下であることがより好ましく、５０μｍ以下であることがさらに好ましい。無機充填材の体積平均粒子径の下限値は特に制限されず、例えば、０．２μｍ以上であることが好ましく、０．４μｍ以上であることがより好ましい。無機充填材の体積平均粒子径を１００μｍ以下とすることで、接着層の平坦性が向上し、密着性がより向上する傾向にある。一方、無機充填材の体積平均粒子径を０．２μｍ以上とすることで、無機充填材間の接触確率が増加して熱伝導パスが形成されやすくなり、熱伝導性がより向上する傾向にある。

[0036] なお、無機充填材の体積平均粒子径は、レーザー回折散乱法、３Ｄ　ＣＴ法、又は走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）を用いる方法で測定することができる。フィラーの粒度分布が広い場合には、複数の手法を組み合わせた方がより精度良く測定することができる。

[0037] レーザー回折散乱法を用いる場合、まず、接着層から無機充填材を抽出し、レーザー回折散乱粒度分布測定装置（例えば、ベックマン・コールター株式会社、ＬＳ２３０）を用いることで、体積平均粒子径を測定可能である。具体的には、まず、水及び０．０１質量％～０．１質量％の分散剤であるヘキサメタリン酸ナトリウムとともに、無機充填材を１質量％～５質量％の範囲内で添加し、試料液を調製する。この試料液を超音波振動機（例えば、シャープマニュファクチャリングシステム株式会社、型番：ＵＴ－１０６、出力：１００Ｗ）を用いて温度２３℃下において３分間～５分間振動して分散

する。分散した試料液の約２ｍＬ程度をセルに注入し、２５℃で、レーザー回折散乱粒度分布測定装置により粒度分布を測定する。積算した体積が５０％の場合における粒子径（Ｄ５０％）を体積平均粒子径とする。

[0038] ３Ｄ　ＣＴ法を用いる場合、例えば、株式会社島津製作所のＳＭＸ－１６０ＣＴＳを用いることで無機充填材の体積平均粒子径を測定可能である。具体的には、接着層を１０ｍｍ角に切り出して試料台に配置し、そこにＸ線を照射することで、体積平均粒子径を測定可能である。測定条件としては、Ｘ線管電圧を４０ｋＶとし、Ｘ線管電流を１００ｍＡとして撮影した三次元像から、マトリックス樹脂、無機充填材、及びボイドの割合を画像解析により分析して、各成分の割合に基づいて無機充填材の体積平均粒子径を算出することができる。なお、マトリックス樹脂と無機充填材との組み合わせによっては、無機充填材の判別が難しいことがある。その場合は他の手法と組み合わせて体積平均粒子径を測定することがより好ましい。

[0039] ＳＥＭを用いる方法により無機充填材の体積平均粒子径を求める場合、ＳＥＭ　ＦＩＢ（Ｆｏｃｕｓｅｄ　Ｉｏｎ　Ｂｅａｍ）を用いることが可能であり、例えば、ＦＩＢ光学系とＳＥＭ光学系との両者を備えている株式会社日立ハイテクノロジーズ、ｎａｎｏ　ＤＵＥ’Ｔ　ＮＢ５０００型を用いることで測定可能である。具体的には、接着層に対して垂直にＧａイオンビームを入射して断面加工を行いながら、傾けて設置したＳＥＭで観察を行うことができる。加工ピッチは１ｎｍ～１００ｎｍで撮影を行うことがよいが、撮影したい無機充填材のサイズに合わせてピッチを調整することが好ましい。撮影した三次元像から、無機充填材の組織を二値化により抽出して、粒子が球であると仮定して、体積平均粒子径を算出可能である。

[0040] 接着層中の無機充填材の含有率は、熱伝導性の観点から、５０体積％以上であることが好ましく、５５体積％以上であることがより好ましく、６０体積％以上であることがさらに好ましい。

[0041] 接着層中の無機充填材の含有率は、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性の観点から、７３体積％以下であることが好ましく、７２体積％

以下であることがより好ましく、７０体積％以下であることがさらに好ましい。

[0042]（添加剤）

接着層は、必要に応じてエポキシ樹脂の硬化剤、硬化促進剤等の添加剤をさらに含んでもよい。エポキシ樹脂の硬化剤、硬化促進剤としては、エポキシ樹脂と反応するもの、又は硬化を促進させるものであれば制限ない。例えば、アミン化合物、イミダゾール化合物、酸無水物化合物等を挙げることができる。

[0043] アミン化合物としては、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルメタン、グアニル尿素等を挙げることができる。また酸無水物化合物としては、無水フタル酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、メチルハイミック酸等を挙げることができる。イミダゾール化合物としては、アルキル基置換イミダゾール、ベンゾイミダゾール化合物等を挙げることができる。

[0044] さらに接着層は、シランカップリング剤、耐電食性向上剤、難燃剤、防錆剤、分散剤、相溶化剤、可塑剤、レベリング剤等の添加剤を含んでいてもよい。

[0045]（接着層の形成方法）

接着層の形成方法は特に制限されない。例えば、接着層用ワニスを用いて、所望の平均厚さの接着層を形成することができる。接着層用ワニスは、撹拌器、らいかい器、３本ロール、プラネタリーミキサー、ニーダー、混練機等の装置を適宜組み合わせて、例えば、エポキシ樹脂、ポリアミドイミド樹脂、無機充填材及び有機溶剤を一括又は分割して混合及び撹拌することにより調製することができる。有機溶剤としては、メタノール、エタノール、１－プロパノール、２－プロパノール、１－ブタノール、シクロヘキサノール等のアルコール溶剤；メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、シクロペンタノン等のケトン溶剤；ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド溶剤などが挙げられる。

[0046] 接着層の形成方法としては、コンマコート法、ダイコート法、ディップ法

等の塗工法、スクリーン印刷等の印刷法、押出成形法、プレス成形法、射出成形法等の成形法などが挙げられる。また、形成された接着層は、乾燥処理して有機溶剤の少なくとも一部を除去することが好ましい。乾燥方法としては、常圧下又は減圧下での加熱乾燥、自然乾燥、凍結乾燥等が挙げられる。

[0047] 塗工法又は印刷法により接着層を形成する場合、支持体上に接着層を形成することが好ましい。支持体としては、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルム、ポリテトラフルオロエチレン（ＰＴＦＥ）フィルム、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリメチルペンテンフィルム、ポリイミドフィルム等のプラスチックフィルムなどが挙げられる。これらのフィルムに対して、必要に応じてプライマー処理、紫外線処理、コロナ放電処理、研磨処理、エッチング処理、離型処理等の表面処理を行ってもよい。

[0048] また、接着層はＡステージの状態であってもよく、Ｂステージの状態であってもよい。Ｂステージの状態の接着層は、例えば、Ａステージの状態である接着層を加熱加圧処理することにより得られる。接着層を加熱加圧処理する条件としては、接着層の組成に応じて適宜選択でき、例えば、加熱温度４０℃～２００℃、圧力０．１ＭＰａ～１００ＭＰａ、及び加熱加圧時間０．３分間～３０分間の条件を挙げることができる。

なお、Ａステージの状態である接着層を加熱加圧処理する場合、接着層と絶縁層との密着性の観点から、ともにＡステージの状態である接着層及び絶縁層を積層させ、積層させた接着層及び絶縁層を加熱加圧処理することが好ましい。

[0049] また、接着層の硬化率は、４０％以下であることが好ましく、３０％以下であることがより好ましく、２０％～３０％であることがさらに好ましい。

[0050] ［絶縁層］

本開示の放熱シートは、絶縁層を備え、かつ絶縁層はＡステージ又はＢステージの状態である。すなわち、絶縁層は、リードフレームに接着層を介して放熱シートが貼り付けられる際、Ａステージ又はＢステージの状態である。

[0051] 絶縁層は、樹脂成分を含んでいてもよく、例えば、接着層が含み得る前述の樹脂成分を含んでいてもよい。樹脂成分としては、１種を単独で用いても２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0052] 絶縁層は、熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂をともに含んでいてもよく、例えば、ポリアミドイミド樹脂及びエポキシ樹脂をともに含んでいてもよい。

[0053] 絶縁層は、ポリアミドイミド樹脂の少なくとも１種を含むことが好ましい。ポリアミドイミド樹脂としては、接着性、耐熱性等の観点から、シロキサン変性ポリアミドイミド樹脂を含むことが好ましい。

[0054] 絶縁層におけるポリアミドイミド樹脂の含有率は特に制限されず、耐熱性の観点から、絶縁層の固形分中に２質量％～１０質量％であることが好ましく、３質量％～８質量％であることがより好ましく、４質量％～７質量％であることがさらに好ましい。

なお、ポリアミドイミド樹脂中におけるシロキサン変性ポリアミドイミド樹脂の含有率は、６０質量％～１００質量％であってもよく、８０質量％～１００質量％であってもよく、９０質量％～１００質量％であってもよい。

[0055] 絶縁層は、エポキシ樹脂の少なくとも１種を含むことが好ましい。エポキシ樹脂を含むことで耐熱性がより向上する傾向にある。

絶縁層に含まれ得るエポキシ樹脂としては特に制限されず、前述の接着層に含まれ得るエポキシ樹脂と同様であり、絶縁層と接着層との密着性の観点から、接着層及び絶縁層は同じエポキシ樹脂を含むことが好ましい。

[0056] 絶縁層におけるエポキシ樹脂の含有率は特に制限されず、耐熱性、放熱性等のバランスの観点から、絶縁層の固形分中に２質量％～８質量％であることが好ましく、２．５質量％～６．５質量％であることがより好ましく、３質量％～６質量％であることがさらに好ましい。

なお、エポキシ樹脂中におけるトリフェニルメタン型エポキシ樹脂及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂の合計の含有率は、６０質量％～１００質量％であってもよく、８０質量％～１００質量％であってもよく、９０質量％～１００質量％であってもよい。

[0057] トリフェニルメタン型エポキシ樹脂に対するジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂の含有比率（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂／トリフェニルメタン型エポキシ樹脂）は、質量基準で、１．０～３．０であることが好ましく、１．３～２．７であることがより好ましく、１．５～２．５であることがさらに好ましい。

[0058] 絶縁層において、エポキシ樹脂に対するポリアミドイミド樹脂の含有比率（ポリアミドイミド樹脂／エポキシ樹脂）は、質量基準で、０．７５～１．５０であることが好ましく、１．００～１．４０であることがより好ましく、１．１０～１．３０であることがさらに好ましい。

[0059]（絶縁層の平均厚さ）

絶縁層の平均厚さは、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性及び熱伝導性の観点から、例えば、５０μｍ～２００μｍであることが好ましく、７０μｍ～１７０μｍであることがより好ましく、９０μｍ～１５０μｍであることがさらに好ましい。

なお、絶縁層の平均厚さは、マイクロメーター（例えば、株式会社ミツトヨ、マイクロメーター　ＩＰ６５）、多層膜厚測定器（例えば、株式会社キーエンス、ＳＩ－Ｔシリーズ）等を用いて、９点の厚さを測定し、その算術平均値として算出することができる。

[0060] 絶縁層は無機充填材を含んでいてもよい。絶縁層が含み得る無機充填材としては、前述の接着層が含み得る無機充填材と同様である。

[0061] 絶縁層中の無機充填材の含有率は、熱伝導性の観点から、６０体積％以上であることが好ましく、６５体積％以上であることがより好ましく、７０体積％以上であることがさらに好ましい。

[0062] 絶縁層中の無機充填材の含有率は、８０体積％以下であってもよく、７８体積％以下であってもよく、７５体積％以下であってもよい。

[0063] 絶縁層に対する接着層の無機充填材の体積含有率の比（接着層／絶縁層）は、放熱シートに対するリードフレームの貼り付け性と熱伝導性との両立の観点から、１．００以下であることが好ましく、０．７０～０．９９である

ことがより好ましく、０．７５～０．９８であることがさらに好ましい。

[0064] また、絶縁層は、必要に応じて前述の添加剤を含んでいてもよい。絶縁層の形成方法は、前述の接着層の形成方法と同様である。

本開示の放熱シートは、例えば、支持体上に接着層を形成し、かつ別の支持体上に絶縁層を形成し、次いで、ともにＡステージの状態である接着層及び絶縁層が接触するように積層させて得られるものであってもよい。これにより、接着層及び絶縁層がともにＡステージの状態である放熱シートが得られる。

また、本開示の放熱シートは、例えば、支持体上に接着層を形成し、かつ別の支持体上に絶縁層を形成し、次いで、ともにＡステージの状態である接着層及び絶縁層が接触するように積層させた後、接着層及び絶縁層を加熱加圧処理して得られるものであってもよい。これにより、接着層及び絶縁層がともにＢステージの状態である放熱シートが得られる。

[0065] 絶縁層の硬化率は、５０％未満であればよく、４０％以下であることが好ましく、３０％以下であることがより好ましく、２０％以下であることがさらに好ましく、１５％以下であることが特に好ましく、１０％以下であることが極めて好ましい。また、絶縁層の硬化率は、接着層の硬化率よりも小さくてもよく、接着層の硬化率よりも大きくてもよい。

[0066] ［放熱層］

本開示の放熱シートは、放熱層を備えていてもよい。この場合、接着層、絶縁層及び放熱層の順になるように放熱層が配置される。放熱層としては、特に制限されず、銅、アルミニウム、錫、鉛、銀、金及びニッケルからなる群より選択される少なくとも１種を含む金属板、金属箔等が挙げられる。一例として、放熱層として銅板、銅箔等を用いてもよい。

[0067] 放熱層の平均厚さとしては、例えば、１μｍ～５００μｍであってもよく、可とう性の観点から、１５０μｍ以下であることが好ましい。また、取り扱い性の観点から、１０μｍ以上であることが好ましい。

なお、放熱層の平均厚さは、マイクロメーター（例えば、株式会社ミツト

ヨ、マイクロメーター　ＩＰ６５）、多層膜厚測定器（例えば、株式会社キーエンス、ＳＩ－Ｔシリーズ）等を用いて、９点の厚さを測定し、その算術平均値として算出することができる。

[0068] また、金属箔としては、ニッケル、ニッケル－リン合金、ニッケル－スズ合金、ニッケル－鉄合金、鉛、鉛－スズ合金等を中間層とし、この両面に銅層を設けた３層構造の複合箔、アルミニウム箔と銅箔とを複合した２層構造の複合箔などが挙げられる。中間層の両面に銅層を設けた３層構造の複合箔では、一方の銅層の厚さを０．５μｍ～１５μｍとし、他方の銅層の厚さを１０μｍ～３００μｍとすることが好ましい。

[0069] ＜放熱シート付きリードフレームの製造方法＞

本開示の放熱シート付きリードフレームの製造方法は、リードフレーム用放熱シートを前記接着層を介し、チップが実装されたリードフレームと接着させることにより、放熱シート付きリードフレームを製造する。リードフレーム用放熱シートを前述のリードフレームと接着させる際、接着層及び絶縁層を加熱して硬化させてもよい。

[0070] 例えば、本開示の製造方法では、前述の放熱シートを準備し、準備した放熱シートを加熱する。そして、加熱した放熱シートにおける接着層と、リードフレームとを接触させ、荷重を加えることにより、接着層を介し、放熱シートとリードフレームとを接着させることができる。これにより、放熱シート付きリードフレームが得られる。

[0071] ＜放熱シート付きリードフレーム＞

本開示の放熱シート付きリードフレームは、チップと、前記チップが実装されたリードフレームと、本開示のリードフレーム用放熱シートと、を備える。この放熱シート付きリードフレームは、例えば、前述の放熱シート付きリードフレームの製造方法により得られる。

実施例

[0072] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0073] （実施例１）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

まず、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社、商品名：ＥＰＰＮ－５０２Ｈ）１．３質量部及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社、商品名：ＨＰ－７２００Ｌ）２．６質量部をＤＭＡＣ（ジメチルアセトアミド）３．６質量部に溶解させた。次に、ポリアミドイミド樹脂（日立化成株式会社、商品名：ＫＳ９９００Ｆ、固形分５０質量％）９．７質量部をエポキシ樹脂溶液に添加した。

以上のように、エポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを混合及び撹拌して混合物を調製した。

次いで、この混合物と以下に示す３種類の無機充填材とを混練し、所望の粘度となるようにジメチルアセトアミド及びメチルエチルケトンを混練物に添加して絶縁層用ワニスを調製した。

・無機充填材

（ａ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＳ－５０ＳＴ－Ｅ、平均粒子径１０μｍ）６１．８質量部

（ｂ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－４７Ｈ、平均粒子径２μｍ）１６．７質量部

（ｃ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－１６０ＳＧ、平均粒子径０．５μｍ）４．０質量部

[0074] 前述のようにして調製した絶縁層用ワニスを、厚さが１２５μｍとなるようにＰＥＴ（ポリエチレンテレフタレート）へ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0075] （２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

まず、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社、商品名：ＥＰＰＮ－５０２Ｈ）３．５質量部及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社、商品名：ＨＰ－７２００Ｌ）７．０質量部をＤＭＡＣ６．６質量部に溶解させた。次に、ポリアミドイミド樹脂（日立化成株式会

社、商品名：ＫＳ９９００Ｆ、固形分５０質量％）１１．３質量部をエポキシ樹脂溶液に添加した。

以上のように、エポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを混合及び撹拌して混合物を調製した。

次いで、この混合物と以下に示す３種類の無機充填材とを混練し、所望の粘度となるようにジメチルアセトアミド及びメチルエチルケトンを混練物に添加して接着層用ワニスを調製した。

・無機充填材

（ａ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＳ－５０ＳＴ－Ｅ、平均粒子径１０μｍ）５２．９質量部

（ｂ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－４７Ｈ、平均粒子径２μｍ）１４．３質量部

（ｃ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－１６０ＳＧ、平均粒子径０．５μｍ）３．４質量部

[0076] 前述のようにして調製した接着層用ワニスを、厚さが７５μｍとなるようにＰＥＴ（ポリエチレンテレフタレート、支持体）へ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の接着層を形成した。

[0077] （３）放熱シートの作製

前述のようにして形成した絶縁層及び接着層を、ＰＥＴに接していない面同士を対面させた後、絶縁層側のＰＥＴを剥離し、ＰＥＴを剥離した絶縁層の面上に銅箔(日本軽金属株式会社、厚さ４００μｍ）を配置し、温度１４０℃及び圧力２．０ＭＰａの条件で加熱加圧成形を３分間行い、銅箔、絶縁層及び接着層を一体化し、放熱シート（銅箔／絶縁層／接着層／ＰＥＴ）を作製した。

[0078] （４）硬化物の作製

前述のようにして作製した放熱シートの接着層側のＰＥＴを剥がし、ＰＥＴを剥がした接着層面に銅箔（日本電解株式会社、商品名：ＧＴＳ－１０５、厚さ１０５μｍ、電解銅箔）を配置し、温度１８０℃及び圧力４．０ＭＰ

ａの条件で加熱加圧成形を１２０分間行い、接着層に銅箔が貼り付けられた硬化物（ａ）を得た。

また、前述のようにして形成した絶縁層及び接着層のＰＥＴが配置されていない面同士が対面するように積層し両面のＰＥＴを剥離した。ＰＥＴを剥離した両面に銅箔（日本電解株式会社、商品名：ＧＴＳ－１０５、厚さ１０５μｍ、電解銅箔）をそれぞれ配置し、温度１８０℃及び圧力４．０ＭＰａの条件で加熱加圧成形を１２０分間行い、硬化物（ｂ）を得た。

[0079]（実施例２）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

実施例１と同様にして絶縁層用ワニスを調製し、かつＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0080]（２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

まず、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社、商品名：ＥＰＰＮ－５０２Ｈ）３．２質量部及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社、商品名：ＨＰ－７２００Ｌ）６．４質量部をＤＭＡＣ６．０質量部に溶解させた。次に、ポリアミドイミド樹脂（日立化成株式会社、商品名：ＫＳ９９００Ｆ、固形分５０質量％）１０．３質量部をエポキシ樹脂溶液に添加した。

以上のように、エポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを混合及び撹拌して混合物を調製した。

次いで、この混合物と以下に示す３種類の無機充填材とを混練し、所望の粘度となるようにジメチルアセトアミド及びメチルエチルケトンを混練物に添加して接着層用ワニスを調製した。

・無機充填材

（ａ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＳ－５０ＳＴ－Ｅ、平均粒子径１０μｍ）５４．７質量部

（ｂ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－４７Ｈ、平均粒子径２μｍ）１４．８質量部

（ｃ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－１６０ＳＧ、平均粒子径０．５μｍ）３．５質量部

[0081] 前述のようにして調製した接着層用ワニスを、厚さが７５μｍとなるようにＰＥＴ（ポリエチレンテレフタレート）へ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の接着層を形成した。

[0082] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0083] （実施例３）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

実施例１と同様にして絶縁層用ワニスを調製し、かつＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0084] （２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

まず、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社、商品名：ＥＰＰＮ－５０２Ｈ）２．７質量部及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社、商品名：ＨＰ－７２００Ｌ）５．４質量部をＤＭＡＣ５．１質量部に溶解させた。次に、ポリアミドイミド樹脂（日立化成株式会社、商品名：ＫＳ９９００Ｆ、固形分５０質量％）８．８質量部をエポキシ樹脂溶液に添加した。

以上のように、エポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを混合及び撹拌して混合物を調製した。

次いで、この混合物と以下に示す３種類の無機充填材とを混練し、所望の粘度となるようにジメチルアセトアミド及びメチルエチルケトンを混練物に添加して接着層用ワニスを調製した。

・無機充填材

（ａ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＳ－５０ＳＴ－Ｅ、平均粒子径１０μｍ）５７．７質量部

（ｂ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－４７Ｈ、平均

粒子径２μｍ）１５．６質量部

（ｃ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－１６０ＳＧ、平均粒子径０．５μｍ）３．７質量部

[0085] 前述のようにして調製した接着層用ワニスを、厚さが７５μｍとなるようにＰＥＴ（ポリエチレンテレフタレート）へ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の接着層を形成した。

[0086] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0087] （実施例４）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

実施例１と同様にして絶縁層用ワニスを調製し、かつＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0088] （２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

まず、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社、商品名：ＥＰＰＮ－５０２Ｈ）２．４質量部及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社、商品名：ＨＰ－７２００Ｌ）４．９質量部をＤＭＡＣ４．６質量部に溶解させた。次に、ポリアミドイミド樹脂（日立化成株式会社、商品名：ＫＳ９９００Ｆ、固形分５０質量％）７．８質量部をエポキシ樹脂溶液に添加した。

以上のように、エポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを混合及び撹拌して混合物を調製した。

次いで、この混合物と以下に示す３種類の無機充填材とを混練し、所望の粘度となるようにジメチルアセトアミド及びメチルエチルケトンを混練物に添加して接着層用ワニスを調製した。

・無機充填材

（ａ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＳ－５０ＳＴ－Ｅ、平均粒子径１０μｍ）５９．５質量部

（ｂ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－４７Ｈ、平均粒子径２μｍ）１６．１質量部

（ｃ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－１６０ＳＧ、平均粒子径０．５μｍ）３．８質量部

[0089] 前述のようにして調製した接着層用ワニスを、厚さが７５μｍとなるようにＰＥＴ（ポリエチレンテレフタレート）へ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の接着層を形成した。

[0090] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0091] （実施例５）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

まず、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社、商品名：ＥＰＰＮ－５０２Ｈ）１．２質量部及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社、商品名：ＨＰ－７２００Ｌ）２．４質量部をＤＭＡＣ（ジメチルアセトアミド）３．２質量部に溶解させた。次に、ポリアミドイミド樹脂（日立化成株式会社、商品名：ＫＳ９９００Ｆ、固形分５０質量％）８．７質量部をエポキシ樹脂溶液に添加した。

以上のように、エポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを混合及び撹拌して混合物を調製した。

次いで、この混合物と以下に示す３種類の無機充填材とを混練し、所望の粘度となるようにジメチルアセトアミド及びメチルエチルケトンを混練物に添加して絶縁層用ワニスを調製した。

・無機充填材

（ａ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＳ－５０ＳＴ－Ｅ、平均粒子径１０μｍ）６３．０質量部

（ｂ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－４７Ｈ、平均粒子径２μｍ）１７．１質量部

（ｃ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－１６０ＳＧ、平均粒子径０．５μｍ）４．０質量部

[0092] 前述のようにして調製した絶縁層用ワニスを、厚さが１２５μｍとなるようにＰＥＴ（ポリエチレンテレフタレート）へ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0093] （２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

実施例１と同様にして接着層用ワニスを調製し、かつＡステージの状態の接着層を形成した。

[0094] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0095] （実施例６）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

まず、トリフェニルメタン型エポキシ樹脂（日本化薬株式会社、商品名：ＥＰＰＮ－５０２Ｈ）１．６質量部及びジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（ＤＩＣ株式会社、商品名：ＨＰ－７２００Ｌ）３．１質量部をＤＭＡＣ（ジメチルアセトアミド）４．２質量部に溶解させた。次に、ポリアミドイミド樹脂（日立化成株式会社、商品名：ＫＳ９９００Ｆ、固形分５０質量％）１１．３質量部をエポキシ樹脂溶液に添加した。

以上のように、エポキシ樹脂とポリアミドイミド樹脂とを混合及び撹拌して混合物を調製した。

次いで、この混合物と以下に示す３種類の無機充填材とを混練し、所望の粘度となるようにジメチルアセトアミド及びメチルエチルケトンを混練物に添加して絶縁層用ワニスを調製した。

・無機充填材

（ａ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＳ－５０ＳＴ－Ｅ、平均粒子径１０μｍ）５９．６質量部

（ｂ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－４７Ｈ、平均

粒子径２μｍ）１６．２質量部

（ｃ）酸化アルミニウム（昭和電工株式会社、商品名：ＡＬ－１６０ＳＧ、平均粒子径０．５μｍ）３．８質量部

[0096] 前述のようにして調製した絶縁層用ワニスを、厚さが１２５μｍとなるようにＰＥＴ（ポリエチレンテレフタレート）へ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0097] （２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

実施例４と同様にして接着層用ワニスを調製し、かつＡステージの状態の接着層を形成した。

[0098] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0099] （実施例７）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

実施例１と同様にして絶縁層用ワニスを調製した。調製した絶縁層用ワニスを、厚さが１００μｍとなるようにＰＥＴへ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0100] （２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

実施例２と同様にして接着層用ワニスを調製し、かつＡステージの状態の接着層を形成した。

[0101] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0102] （実施例８）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

実施例７と同様にして絶縁層用ワニスを調製し、かつＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0103] （２）接着層用ワニスの調製及び接着層の形成

実施例２と同様にして接着層用ワニスを調製した。調製した接着層用ワニスを、厚さが１００μｍとなるようにＰＥＴへ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の接着層を形成した。

[0104] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0105] （参考例１）

（１）絶縁層用ワニスの調製及び絶縁層の形成

実施例１と同様にして絶縁層用ワニスを調製した。調製した絶縁層用ワニスを、厚さが１００μｍとなるようにＰＥＴへ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の絶縁層を形成した。

[0106] （２）接着層の形成

参考例１における絶縁層用ワニスを接着層用ワニスとした。接着層用ワニスを厚さが１００μｍとなるようにＰＥＴへ塗工し、加熱乾燥してＡステージの状態の接着層を形成した。

[0107] （３）放熱シートの作製及び（４）硬化物の作製

実施例１と同様の条件にて、放熱シート並びに硬化物（ａ）及び硬化物（ｂ）を作製した。

[0108] ［放熱シートの変形率測定］

各実施例及び参考例１にて作製した放熱シートを５ｍｍ×５ｍｍに切断した。切断により得られた測定用サンプルを熱機械分析装置（株式会社リガク、ＴＭＡ－８３１０）に配置し、荷重５０ｍＮ、５℃／分の条件下にて２０℃から１８０℃まで加熱した。１５５℃での変形率（％）を表１に示す。なお、１５５℃での変形率（％）は、２０℃における放熱シートの厚みを基準としたときの１５５℃における放熱シートの変形量（厚み変化）の割合を意味する。

[0109] ［リードフレームの貼り付け性］

各実施例及び参考例１にて作製した放熱シート（銅箔／絶縁層／接着層／

ＰＥＴ）のＰＥＴを剥離した後、銅箔が下になるように１３５℃のホットプレートに配置し、４０秒間加熱した。その後、放熱シートの接着層側にリードフレームを接触させ、１ＭＰａの荷重を加え、１分間放置した。その後、リードフレームを貼り合わせた放熱シートをホットプレートから移動させ、室温まで冷却した。冷却後、リードフレームを放熱シートから取り除き、接着層面の全体にリードフレームの後が残っていた場合をＯＫとし、接着層面にリードフレームの後が残っていない場合、又は、接着層面の一部にしかリードフレームの後が残っていない場合をＮＧとした。結果を表１に示す。

[0110] ［絶縁性］

各実施例及び参考例１にて作製した硬化物（ａ）の銅箔面をエッチングし、直径２０ｍｍの円電極を形成した。円電極を上向きに硬化物（ａ）を絶縁油（フロリナート）中に配し、ＡＣ（交流）４．００±０．０５ｋＶＲＭＳにて６０秒間印加し、短絡しなければＯＫとした。結果を表１に示す。

[0111] ［硬化率の測定］

前述のようにして形成した絶縁層及び接着層を、ＰＥＴに接していない面同士を対面させて積層し、温度１４０℃及び圧力２．０ＭＰａの条件で加熱加圧成形を３分間行い、放熱シート（ＰＥＴ／絶縁層／接着層／ＰＥＴ）を作製した。

次に、この放熱シートの絶縁層側の樹脂を１０ｍｇ削り取り、示差走査熱量計（ティー・エイ・インスツルメント・ジャパン株式会社、Ｄｉｓｃｏｖｅｒｙ　ＤＳＣ２３）を用い昇温１０℃／ｍｉｎで測定し、積層後の発熱量を求めた。また、積層前の絶縁層についても同様に発熱量を測定し積層前の発熱量を求めた。以下の式に基づき絶縁層の硬化率を求めた。

絶縁層の硬化率＝［（積層前の発熱量－積層後の発熱量）／積層前の発熱量］×１００

また、接着層の硬化率も絶縁層の硬化率の測定方法と同様にして求めた。

結果を表２に示す。

[0112] ［熱伝導率の測定］

各実施例及び参考例１にて作製した硬化物（ｂ）の両面の銅箔をエッチングし、銅箔を除去した硬化物（ｂ）を５０ｍｍ角に切断したサンプルについて、電子比重計を用いて大気中質量及び水中質量を測定して密度を求めた。

次に、エッチングにより両面の銅箔を除去した硬化物（ｂ）を１０ｍｍ角に切断し、カーボンスプレーを用いて切断したサンプルの両面に黒化処理をした。

そして、キセノンフラッシュ法熱拡散率測定装置を用いて熱換算率α（ｍｍ^2／ｓ）を測定し、下記の式により、熱伝導率λ（Ｗ／（ｍ・Ｋ））を求めた。

熱伝導率・・・$\lambda = \rho \times Cp \times \alpha$

式中、λは熱伝導率、ρは密度、Ｃｐは比熱、αは熱拡散率を表す。また、Ｃｐは灰分Ａを用いて以下の式に基づき計算した。

Ｃｐ＝１．２－０．４５Ａ／１００

なお、灰分Ａは、以下の方法（１’）～（５’）の順に基づきにより算出した。

（１’）両面の銅箔をエッチングで除去した硬化物（ｂ）を試料とした。

（２’）ルツボの質量（Ｗ０）を計測し、そのルツボに試料を入れ、総質量（Ｗ１）を計測した。

（３’）試料の入ったルツボをマッフル炉内に投入し、６００℃、１時間の条件で試料を灰化させた。

（４’）灰化させた試料が室温に戻った後に、試料の入ったルツボを取り出し、総質量（Ｗ２）を計測した。

（５’）次式より、灰分Ａ（質量％）を算出した。

Ａ＝［(Ｗ２－Ｗ０）／（Ｗ１－Ｗ０）］×１００

熱伝導率の結果を表２に示す。

[0113] ［密着性］

各実施例及び参考例１にて作製した放熱シート（銅箔／絶縁層／接着層／ＰＥＴ）のＰＥＴを剥離した後、接着層を指で擦り、接着層が剥離しない場

合をＡ、容易に剥離した場合をＢとした。

結果を表２に示す。

[0114] [表1]

		参考例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	実施例8
接着層	充填量(体積%)	74	58	61	66	69	58	69	61	61
	厚み(μm)	100	75	75	75	75	75	75	75	100
絶縁層	充填量(体積%)	74	74	74	74	74	77	71	74	74
	厚み(μm)	100	125	125	125	125	125	125	100	100
厚さ比率(接着層/絶縁層)		1.00	0.60	0.60	0.60	0.60	0.60	0.60	0.75	1.00
体積含有率の比(接着層/絶縁層)		1.00	0.78	0.82	0.89	0.93	0.75	0.97	0.82	0.82
特性	１５５℃での放熱シートの変形率(%)	1.3	14	12	7	3	14	3	8	9
	リードフレームの貼り付け性	NG	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
	絶縁性	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK

[0115] [表2]

	参考例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	実施例８
接着層の硬化率(%)	24	25	24	27	26	26	24	27	23
絶縁層の硬化率(%)	6	5	5	5	4	5	5	6	5
熱伝導率(W/(m･K)	3.3	2.0	2.2	2.6	2.9	2.1	2.7	2.1	2.0
接着層と絶縁層の密着性	A	A	A	A	A	A	A	A	A

[0116] 絶縁層がＡステージ又はＢステージである実施例１～８及び参考例１では、接着層と絶縁層の密着性に優れていた。

また、１５５℃での放熱シートの変形率が２．０％以上である実施例１～８では、１５５℃での放熱シートの変形率が２．０％未満である参考例１と比較して、リードフレームの貼り付け性が良好であった。

[0117] 本明細書に記載された全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本明細書に参照により取り込まれる。

請求の範囲

[請求項1] 接着層と、絶縁層とを備え、

前記絶縁層がＡステージ又はＢステージの状態であるリードフレーム用放熱シート。

[請求項2] 前記絶縁層の硬化率が１０％以下である請求項１に記載のリードフレーム用放熱シート。

[請求項3] 前記絶縁層に対する前記接着層の厚さ比率（接着層／絶縁層）が１．０以下である請求項１又は請求項２に記載のリードフレーム用放熱シート。

[請求項4] 前記接着層を硬化させる前の１５５℃において、前記接着層及び前記絶縁層とともに放熱層を備える場合の放熱シートの変形率が２．０％以上である請求項１～請求項３のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

[請求項5] 前記接着層を硬化させる前の１５５℃において、前記接着層及び前記絶縁層とともに放熱層を備える場合の放熱シートの変形率が１５％以下である請求項１～請求項４のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

[請求項6] 前記接着層及び前記絶縁層はそれぞれ無機充填材を含み、

前記接着層中の無機充填材の含有率が５０体積％以上であり、前記絶縁層中の無機充填材の含有率が６０体積％以上であり、

前記絶縁層に対する前記接着層の無機充填材の体積含有率の比（接着層／絶縁層）が１．００以下である請求項１～請求項５のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

[請求項7] 前記接着層がＢステージの状態である請求項１～請求項６のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート。

[請求項8] 放熱層をさらに備え、

前記接着層と、前記絶縁層と、前記放熱層とをこの順で備える請求項１～請求項７のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シート

。

[請求項9] 請求項１～請求項８のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シートを前記接着層を介し、チップが実装されたリードフレームと接着させる放熱シート付きリードフレームの製造方法。

[請求項10] チップと、

前記チップが実装されたリードフレームと、

請求項１～請求項８のいずれか１項に記載のリードフレーム用放熱シートと、

を備える放熱シート付きリードフレーム。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/008184

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int. Cl. H01L23/373(2006.01)i, B32B27/18(2006.01)i, C09J7/20(2018.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J201/00(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int. Cl. H01L23/373, B32B27/18, C09J1/00-C09J201/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2018
Registered utility model specifications of Japan 1996-2018
Published registered utility model applications of Japan 1994-2018

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2013-216038 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 24 October 2013, paragraphs [0110], [0114], [0115], [0124], [0133], [0149], [0165], fig. 1 (Family: none)	1-6, 8-10 7
Y	JP 2013-201338 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 03 October 2013, paragraphs [0050], [0108], [0109], fig. 2 (Family: none)	7
A	JP 2011-070930 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 07 April 2011, paragraphs [0140], [0157]-[0164] (Family: none)	1-10

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
17.04.2018	01.05.2018
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/008184

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 2016-078038 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 16 May 2016, paragraphs [0021], [0048]-[0050] (Family: none)	1-10
A	JP 2015-173232 A (NITTOSHINKO CORP.) 01 October 2015, paragraphs [0033], [0034], [0043], fig. 1, 2 (Family: none)	1-10

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１８／００８１８４

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01L23/373(2006.01)i, B32B27/18(2006.01)i, C09J7/20(2018.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J201/00(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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01L23/373, B32B27/18, C09J1/00-C09J201/10

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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１８年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X Y	JP 2013-216038 A（日立化成株式会社）2013.10.24, 段落[0110], [0114]-[0115], [0124], [0133], [0149], [0165], 図１（ファミリーなし）	1-6, 8-10 7
Y	JP 2013-201338 A（積水化学工業株式会社）2013.10.03, 段落[0050], [0108]-[0109], 図２（ファミリーなし）	7
A	JP 2011-070930 A（積水化学工業株式会社）2011.04.07, 段落[0140], [0157]-[0164]（ファミリーなし）	1-10

☑　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	国際調査報告の発送日
１７．０４．２０１８	０１．０５．２０１８

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
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）　５Ｄ　４４５１
多賀　和宏
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３５５１

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2016-078038 A（日立化成株式会社）2016.05.16, 段落[0021],[0048]-[0050]（ファミリーなし）	1-10
A	JP 2015-173232 A（日東シンコー株式会社）2015.10.01, 段落[0033]-[0034],[0043],図 1-2（ファミリーなし）	1-10