

(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
2023年10月5日(05.10.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/191023 A1

(51) 国際特許分類:

B22F 1/00 (2022.01) *B22F 9/00* (2006.01)
B22F 1/054 (2022.01) *B22F 9/20* (2006.01)
B22F 1/06 (2022.01) *B82Y 30/00* (2011.01)
B22F 1/07 (2022.01) *B82Y 40/00* (2011.01)
B22F 1/102 (2022.01) *C22C 1/04* (2023.01)
B22F 1/103 (2022.01) *C22C 32/00* (2006.01)
B22F 1/16 (2022.01) *H01L 21/52* (2006.01)
B22F 7/08 (2006.01)

特願 2022-167366 2022年10月19日(19.10.2022) JP

特願 2022-167371 2022年10月19日(19.10.2022) JP

(71) 出願人: 京セラ株式会社 (KYOCERA CORPORATION) [JP/JP]; 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 Kyoto (JP).

(72) 発明者: 野々村航希 (NONOMURA Kouki); 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 京セラ株式会社内 Kyoto (JP). 菊池知直 (KIKUCHI Tomonao); 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 京セラ株式会社内 Kyoto (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人大谷特許事務所 (OHTANI PATENT OFFICE); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門ESビル7階 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/013459

(22) 国際出願日: 2023年3月31日(31.03.2023)

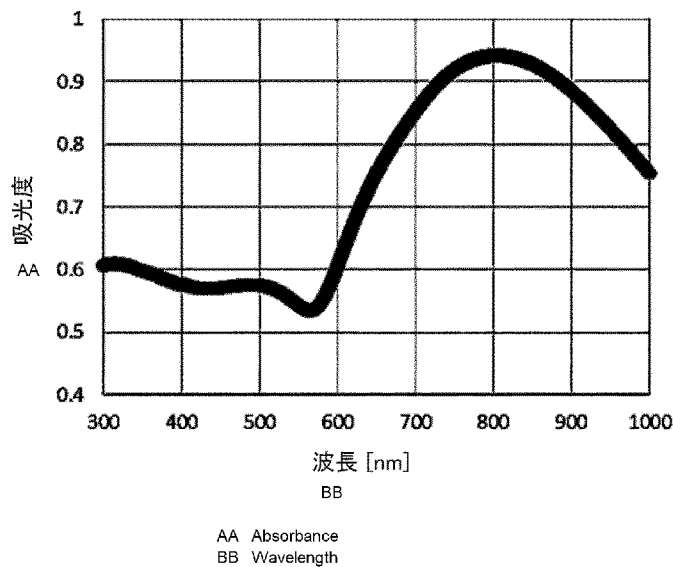
(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2022-061331 2022年3月31日(31.03.2022) JP

(54) Title: OXIDE-CONTAINING COPPER PARTICLES, PASTE COMPOSITION, SEMICONDUCTOR DEVICE, ELECTRICAL COMPONENT AND ELECTRONIC COMPONENT

(54) 発明の名称: 酸化物含有銅粒子、ペースト組成物、半導体装置、電気部品及び電子部品



(57) Abstract: The present invention provides: oxide-containing copper particles which enable the achievement of a paste composition that is capable of forming a bonding layer having high denseness, high bonding strength and high bonding reliability; a paste composition which uses the oxide-containing copper particles; and a semiconductor device, an electrical component and an electronic component. With respect to oxide-containing copper particles according to the present disclosure, the absorption spectrum as measured with a spectrophotometer by dispersing the oxide-containing copper particles in ethanol that has a mass of 1×10^6 times the mass of the oxide-containing copper particles has an absorption peak within the wavelength range of 600 nm to 1,000 nm.

(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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: 緻密度が高く、接合強度が高く、接合信頼性が高い接合層を形成できるペースト組成物を得ることができる酸化物含有銅粒子、及びこれを用いたペースト組成物、並びに、半導体装置、電気部品及び電子部品を提供する。本開示の酸化物含有銅粒子は、酸化物含有銅粒子を 1×10^6 倍の質量のエタノール中に分散させて分光光度計にて測定した吸収スペクトルが、波長600～1000nmの範囲内に吸収ピークを有する。

明 細 書

発明の名称：

酸化物含有銅粒子、ペースト組成物、半導体装置、電気部品及び電子部品
技術分野

[0001] 本開示は、酸化物含有銅粒子、及びこれを用いたペースト組成物、並びに、半導体装置、電気部品及び電子部品に関する。

背景技術

[0002] 半導体装置、各種電気部品及び電子部品においては、各部材の接合のための接着剤として、高熱伝導性ペーストが用いられている。

半導体装置は、高集積化及び高速動作化に伴う発熱が増大しており、安定した動作性を得るために、例えば、半導体素子等の発熱部材と、放熱部材とを、高熱伝導性接着剤（ペースト）で接合させて、熱を放散させる等の対策が採られている。また、ベアチップのダイボンド、LEDチップの接着、又は、電極とリード線の接着等においては、高熱伝導性の導電性ペーストが用いられている。

[0003] 高熱伝導性の導電性ペーストの一つとして、銅粒子を含むペースト組成物が提案されている。このようなペースト組成物は、プリントドエレクトロニクスへの適用も検討されている。例えば、特許文献1及び2には、銅原料を低温で焼結させた酸化物含有銅粒子を導電性ペーストの構成材料とすることが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2020-29392号公報

特許文献2：国際公開第2022/045252号

発明の概要

[0005] 本開示は、以下に関する。

[1] 酸化物含有銅粒子を 1×10^6 倍の質量のエタノール中に分散させて

分光光度計にて測定した吸収スペクトルが、波長600～1000nmの範囲内に吸収ピークを有する、酸化物含有銅粒子。

図面の簡単な説明

[0006] [図1]実施例4の酸化物含有銅粒子の吸収スペクトルである。

[図2]比較例2の酸化物含有銅粒子の吸収スペクトルである。

[図3]実施例4の酸化物含有銅粒子の走査電子顕微鏡による観察画像である。

[図4]比較例2の酸化物含有銅粒子の走査電子顕微鏡による観察画像である。

発明を実施するための形態

[0007] 特許文献1及び2に記載されているような酸化物含有銅粒子を用いた導電性ペーストは、略球状の粒子である。このため、焼結して接合した際、接合層に空孔が生じ、緻密度が低く、また、十分な接合強度が得られにくく、接合信頼性が低くなる虞がある。

[0008] 本開示は、緻密度が高く、接合強度が高く、接合信頼性が高い接合層を形成できるペースト組成物を得ることができる酸化物含有銅粒子、及びこれを用いたペースト組成物、並びに、半導体装置、電気部品及び電子部品である。

[0009] 以下、本開示について、一実施形態を参照しながら詳細に説明する。

本開示における酸化物含有銅粒子とは、金属銅及び少なくとも1種の銅酸化物を含む粒子を意味する。以下、単に、銅粒子とも言う。

[0010] なお、本明細書において、「XX～YY」との記載は、「XX以上YY以下」を意味する。また、本明細書において、数値範囲（例えば、含有量等の範囲）について、段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせ得る。また、本明細書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。

[0011] [酸化物含有銅粒子]

本開示の酸化物含有銅粒子は、該酸化物含有銅粒子を 1×10^6 倍の質量のエタノール中に分散させて分光光度計にて測定した吸収スペクトルが、波長

600～1000nmの範囲内に吸収ピークを有する。

銅粒子が、このような光吸収特性を有していることにより、緻密度が高く、接合強度が高く、接合信頼性が高い接合層を形成できるペースト組成物を得ることができる。

本開示のペースト組成物が、緻密度が高く、接合強度が高く、接合信頼性が高い接合層を形成できる理由と、上記の光吸収特性との相関は明らかではない。前記理由は、銅粒子の形状に主たる要因があり、また、銅酸化物の還元程度等も関与していると推測される。

[0012] 前記吸収ピークは、波長610～900nmの範囲内であってもよく、波長620～850nmの範囲内であってもよい。

なお、当該波長の範囲内に吸収ピークを有する当該銅粒子は、吸収波長の補色である緑色がかった色を呈しやすい。

[0013] 当該銅粒子の吸収スペクトルは、波長600～1000nmの範囲内に少なくとも1つの吸収ピークがあればよく、2つ以上の吸収ピークがあってもよい。また、波長600～1000nmの範囲外にも、吸収ピークがあってもよい。

[0014] 前記銅粒子の吸収スペクトルにおいて、波長600～1000nmの範囲内の連続する50nmの区間の最大平均吸光度（A2）が、波長400～450nmの範囲の平均吸光度の平均値（A1）の1.25倍以上であってもよい。

吸光度比（A2/A1）は、1.30～3.50であってもよく、1.50～3.00であってもよい。

[0015] 前記吸収スペクトルは、銅粒子を分散媒に十分に分散させる観点から、銅粒子を 1×10^6 倍の質量のエタノール中に分散させて試料液を調製し、該試料液について、分光光度計にて吸光度を測定することにより求められる。前記吸収スペクトルは、具体的には、実施例に記載の方法により測定できる。

[0016] 前記銅粒子は、プレート状粒子であってもよい。

前記銅粒子の厚さは、5～50nmであってもよく、8～40nmであっ

てもよく、10～30nmであってもよい。

前記銅粒子の長径は、30～300nmであってもよく、50～200nmであってもよく、75～150nmであってもよく、かつ、前記長径が前記厚さよりも大きくてもよい。

[0017] 前記銅粒子のアスペクト比（長径／厚さ）は、1.5～10.0であってもよく、2.0～9.0であってもよく、3.0～8.0であってもよい。

[0018] 銅粒子は、上記のようなプレート状粒子であることにより、球状粒子よりも粒子同士の接触面積が大きくなる。上記のようなプレート状粒子を用いたペースト組成物から形成された接合層は、緻密度が高くなり、接合強度が高くなり、接合信頼性が高くなりやすいと推測される。

[0019] 前記銅粒子の厚さ及び長径は、それぞれ、走査電子顕微鏡（SEM）観察において撮影した画像から抽出した少なくとも200個の粒子の測長値の中央値である。前記銅粒子の厚さ及び長径は、実施例に記載の方法により測定できる。なお、プレート状粒子は、略平行な一对の平面を有する形状であり、該一对の平面間の距離を「厚さ」とし、該平面における最も長い径を「長径」とする。

[0020] 前記銅粒子は、通常、不活性ガス雰囲気下、100～250℃に加熱して焼結される。

不活性ガスとしては、例えば、窒素、アルゴン、ヘリウム等が挙げられる。入手容易性及び価格の観点から、窒素であってもよい。

加熱温度は、焼結性の観点から、120～230℃であってもよく、150～200℃であってもよい。

焼結は、常圧下であってもよく、加圧下であってもよい。

加熱時間は、加熱温度及び焼結体の形態等に応じて適宜設定される。十分な焼結の進行の観点から、例えば、5～180分間であってもよく、10～120分間であってもよく、30～90分間であってもよい。

[0021] [酸化物含有銅粒子の製造方法]

本開示の酸化物含有銅粒子の製造方法は、特に限定されるものではない。

例えば、銅化合物を、形状安定化剤の存在下、還元性化合物を用いて還元する方法が挙げられる。銅化合物、形状安定化剤及び還元性化合物は、有機溶剤中で混合してもよい。

[0022] (銅化合物)

銅化合物としては、例えば、酸化銅、水酸化銅、窒化銅、カルボン酸銅等が挙げられる。銅化合物としては、本開示の銅粒子を高収率で得る観点から、酸化銅であってもよい。銅化合物は、1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0023] 酸化銅としては、酸化銅 (I) (亜酸化銅: Cu_2O)、酸化銅 (II) (CuO) が挙げられる。生産性の観点から、酸化銅 (I) であってもよい。

水酸化銅としては、水酸化銅 (II)、水酸化銅 (I) が挙げられる。

窒化銅としては、窒化銅 (II)、窒化銅 (I) が挙げられる。

カルボン酸銅としては、例えば、ギ酸銅 (I)、酢酸銅 (I)、プロピオン酸銅 (I)、酪酸銅 (I)、吉草酸銅 (I)、ヘキサン酸銅 (I)、オクタン酸銅 (I)、デカン酸銅 (I) 等、また、ギ酸銅 (II)、酢酸銅 (II)、プロピオン酸銅 (II)、酪酸銅 (II)、吉草酸銅 (II)、ヘキサン酸銅 (II)、オクタン酸銅 (II)、デカン酸銅 (II)、クエン酸銅 (II) 等のカルボン酸銅無水物又は水和物が挙げられる。カルボン酸銅は、市販のものを使用してもよい。公知の方法で合成したものを使用してもよい。カルボン酸銅としては、入手容易性及び本開示の銅粒子の製造効率の観点から、酢酸銅 (II) 一水和物であってもよい。

[0024] (形状安定化剤)

形状安定化剤としては、例えば、アミン化合物、カルボン酸及びリン酸エステルよりなる群から選択される少なくとも1種であってもよく、アミン化合物とカルボン酸との組み合わせであってもよい。

形状安定化剤は、本開示の銅粒子である酸化物含有銅の少なくとも一部を被覆することにより、本開示の所定の光吸収特性が得られやすい。また、当該銅粒子を用いたペースト組成物の流動性が向上する。

[0025] アミン化合物としては、例えば、ジプロピルアミン、ブチルアミン、ジブチルアミン、ヘキシルアミン、シクロヘキシルアミン、ヘプチルアミン、オクチルアミン、ノニルアミン、デシルアミン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、ドデシルアミン、オレイルアミン、モノエタノールアミン、2-アミノエトキシ-2-エタノール、3-アミノ-1-プロパノール、3-アミノ-2-プロパノール、4-アミノ-1-ブタノール、3-アミノ-1-ヘキサノール、2-(2-アミノエトキシ)エタノール等のモノアミン；エチレンジアミン、N,N-ジメチルエチレンジアミン、N,N'-ジメチルエチレンジアミン、N,N-ジエチルエチレンジアミン、N,N'-ジエチルエチレンジアミン、1,3-プロパンジアミン、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジアミン、N,N-ジメチル-1,3-ジアミノプロパン、N,N'-ジメチル-1,3-ジアミノプロパン、N,N-ジエチル-1,3-ジアミノプロパン、1,4-ジアミノブタン、1,5-ジアミノ-2-メチルペンタン、1,6-ジアミノヘキサン、N,N'-ジメチル-1,6-ジアミノヘキサン、1,7-ジアミノヘプタン、1,8-ジアミノオクタン等のジアミンが挙げられる。アミン化合物は、1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。アミン化合物は、アミノアルコールであってもよく、アミノアルコールの分子量は、80以上であってもよく、150以下であってもよい。

[0026] カルボン酸としては、例えば、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉草酸、ヘキサン酸、ヘプタン酸、オクタン酸、オクチル酸、ノナン酸、デカン酸、オレイン酸、ステアリン酸、イソステアリン酸等のモノカルボン酸；シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ジグリコール酸等のジカルボン酸が挙げられる。カルボン酸は、安息香酸、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、サリチル酸、没食子酸等の芳香族カルボン酸であってもよく、グリコール酸、乳酸、タルトロン酸、リンゴ酸、グリセリン酸、ヒドロキシ酪酸、酒石酸、クエン酸、イソクエン酸等のヒドロキシ酸であってもよい。カルボン酸

は、1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。カルボン酸は、モノカルボン酸であってもよい。モノカルボン酸の分子量は、80以上であってもよく、150以下であってもよい。

[0027] リン酸エステルは、大気中での加熱によって生成する銅粒子表面の酸化被膜を除去し、銅粒子の焼結性を高めることができる。また、リン酸エステルは、ペースト組成物中の銅粒子の潤滑性を高めることができる。リン酸エステルは、還元反応後に添加してもよい。

リン酸エステルとしては、例えば、アルキルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテルリン酸塩等が挙げられる。リン酸エステルは、酸価及びアミン価が、いずれも、 130 mg KOH/g 以下であってもよく、 120 mg KOH/g 以下であってもよく、 110 mg KOH/g 以下であってもよい。酸価とアミン価との比（酸価／アミン価）は、 $0\sim 1.5$ であってもよく、 $0\sim 1.2$ であってもよい。

なお、酸価はJIS K 0070：1992、アミン価はJIS K 7237：1995に準拠した方法により求められる。

[0028] 形状安定化剤の合計使用量は、銅化合物1モルに対して、 $0.1\sim 10$ モルであってもよく、 $0.5\sim 8$ モルであってもよく、 $1\sim 5$ モルであってもよい。

形状安定化剤として、例えば、アミン化合物及びカルボン酸を使用する場合、アミン化合物及びカルボン酸の配合モル比は、 $1/5\sim 5/1$ であってもよく、 $1/3\sim 3/1$ であってもよく、 $1/2\sim 2/1$ であってもよい。

[0029] （還元性化合物）

還元性化合物は、銅化合物を還元し、金属銅を遊離させる還元力を有するものであれば、特に限定されない。還元性化合物としては、例えば、ヒドラジン誘導体が挙げられる。還元性化合物は、1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

ヒドラジン誘導体としては、例えば、ヒドラジン－水和物、メチルヒドラ

ジン、エチルヒドラジン、*n*-プロピルヒドラジン、イソプロピルヒドラジン、*n*-ブチルヒドラジン、イソブチルヒドラジン、*sec*-ブチルヒドラジン、*tert*-ブチルヒドラジン、*n*-ペンチルヒドラジン、イソペンチルヒドラジン、ネオペンチルヒドラジン、*tert*-ペンチルヒドラジン、*n*-ヘキシルヒドラジン、イソヘキシルヒドラジン、*n*-ヘプチルヒドラジン、*n*-オクチルヒドラジン、*n*-ノニルヒドラジン、*n*-デシルヒドラジン、*n*-ウンデシルヒドラジン、*n*-ドデシルヒドラジン、シクロヘキシルヒドラジン、フェニルヒドラジン、4-メチルフェニルヒドラジン、ベンジルヒドラジン、2-フェニルエチルヒドラジン、2-ヒドラジノエタノール、アセトヒドラジン等が挙げられる。

[0030] 還元性化合物の使用量は、銅化合物 1 モルに対して、0.1～10 モルであってもよく、0.5～5 モルであってもよく、0.8～3 モルであってもよい。

[0031] (有機溶剤)

有機溶剤は、銅化合物、形状安定化剤及び還元性化合物の混合によって生成する錯体等の性質を阻害することなく、均一な反応を行うことができるものであれば、特に限定されない。有機溶剤は、還元性化合物に対して相溶性を示すものであってもよい。

有機溶剤としては、例えば、1-プロパノール、2-プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,2-プロパンジオール、ブチルセロソルブ、エチルカルビトール、ブチルカルビトール等のアルコール；ブチルカルビトールアセテート、エチルカルビトールアセテート、ジエチレングリコールジエチルエーテル等が挙げられる。有機溶剤は、1 種単独で用いてもよく、2 種以上を併用してもよい。

[0032] 有機溶剤を使用する場合の使用量は、銅化合物、形状安定化剤及び還元性化合物を均一に混合できればよい。有機溶剤の使用量は、例えば、形状安定化剤の体積に対して 0.1～500 体積倍であってもよい。

[0033] 銅化合物の還元反応は、十分な反応進行の観点から、加熱してもよい。反応温度は、 $-20\sim 140^{\circ}\text{C}$ であってもよく、 $25\sim 120^{\circ}\text{C}$ であってもよく、 $40\sim 100^{\circ}\text{C}$ であってもよい。反応時間は、十分な反応進行の観点から、 $20\sim 360$ 分であってもよく、 $30\sim 300$ 分であってもよく、 $40\sim 240$ 分であってもよい。

[0034] 還元反応を行った容器の内容物が液状物（混合液）である場合、例えば、遠心分離等により固形物を分離してもよい。得られた固形物は、有機溶剤で洗浄してもよく、さらに、遠心分離等により、銅粒子のケーキとして得てもよい。

洗浄は、形状安定化剤及び還元性化合物等が十分に除去されればよく、洗浄方法は特に限定されるものではない。

洗浄用の有機溶剤は、アルコールであってもよい。アルコールとしては、例えば、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、エチレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,2-プロパンジオール、ジエチレングリコール、ブチルセロソルブ、エチルカルビトール、ブチルカルビトール等が挙げられる。洗浄用の有機溶剤は、1種単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0035] [ペースト組成物]

本開示のペースト組成物は、上述した本開示の酸化物含有銅粒子を含む。

ペースト組成物中の銅粒子の含有量は、 $10\sim 95$ 質量％であってもよく、 $20\sim 90$ 質量％であってもよく、 $30\sim 85$ 質量％であってもよい。

なお、本開示においては、ペースト組成物中の有機溶剤を除いた成分である不揮発分を、銅粒子の含有量とみなす。

[0036] ペースト組成物は、当該ペースト組成物の使用時の取り扱い性及び粘度等の観点から、有機溶剤で希釈されていてもよい。

有機溶剤としては、銅粒子の分散性及びペースト組成物の焼結の際の揮発性の観点から、例えば、1-プロパノール、2-プロパノール、エチレング

リコール、1, 3-プロパンジオール、1, 2-プロパンジオール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、3-メチル-1, 5-ペンタンジオール、グリセリン、ポリエチレングリコール等が挙げられる。有機溶剤は、1種単独であってもよく、2種以上が併用されていてもよい。希釈用の有機溶剤は、銅粒子の洗浄用の有機溶剤と同じであってもよい。

[0037] 本開示のペースト組成物は、銅粒子、有機溶剤及び銅粒子の製造に由来の成分の他、必要に応じて、一般的な導電性ペーストに適用される公知の添加剤を適宜含んでいてもよい。

添加剤としては、例えば、熱硬化性樹脂、硬化促進剤、ゴム及びシリコン等の低応力化剤、カップリング剤、消泡剤、界面活性剤、顔料及び染料等の着色剤、重合禁止剤、酸化防止剤等が挙げられる。添加剤は、1種単独であってもよく、2種以上が併用されていてもよい。

[0038] 本開示のペースト組成物は、銅粒子、有機溶剤、及び必要に応じて使用される添加剤の混合物を、例えば、ディスパース、ニーダー、3本ロールミル、プラネタリーミキサー等の混練機にて混練し、脱泡することにより、調製できる。

[0039] 本開示のペースト組成物の硬化物は、本開示の銅粒子の焼結体を含み、高熱伝導性であり、放熱性が高い。このため、本開示のペースト組成物を、素子又は放熱部材の基板等の接合材料として使用した場合、装置の熱伝導性が向上したり、装置内部の熱の外部への放散性が改善される。したがって、本開示のペースト組成物を用いることにより、半導体装置、電気部品及び電子部品等の各種製品の動作性を安定化させることができる。

[0040] [半導体装置]

本開示の半導体装置は、少なくとも一部が、上述した本開示のペースト組成物を用いて接合されている。半導体装置としては、例えば、半導体素子と素子支持部材となる基板とが、前記ペースト組成物を用いて接合されたものが挙げられる。ペースト組成物は、ダイボンドとして使用してもよい。

[0041] 本開示のペースト組成物を接合に用いることにより、緻密度が高く、接合強度が高い接合層が形成される。前記接合層は、繰り返しの温度変化を受けても、熱抵抗の変化率が低く、接合信頼性が高いため、安定した動作性を有する半導体装置が得られる。

[0042] 半導体素子は、公知の半導体素子でよく、例えば、トランジスタ、ダイオード等が挙げられ、また、SiC、GaN等が用いられたワイドバンドギャップ半導体素子、LED等の発光素子が挙げられる。

素子支持部材としては、例えば、銅板、銀めっき銅板、Ni/Pd、Ti/Pd/Au、Ni/Pd/Au等でめっき処理したリードフレーム（PPF; Pre Plated Lead frame）、ガラスエポキシ板、セラミックス部材等が挙げられる。

[0043] ペースト組成物を接合に用いて形成された接合層の接合強度は、接合の目的及び対象にもよるが、十分な接合強度の観点から、20MPa以上であってもよく、30MPa以上であってもよく、40MPa以上であってもよい。

前記接合強度は、ダイシェア強度であり、具体的には、実施例に記載の方法により測定できる。

[0044] 接合層の緻密度は、接合強度及び接合信頼性の観点から、78%以上であってもよく、80%以上であってもよく、82%以上であってもよい。

前記緻密度は、接合層における焼結体部分が占める割合であり、具体的には、実施例に記載の方法により測定できる。

[0045] [電気部品及び電子部品]

本開示の電気部品又は電子部品は、少なくとも一部が、上述した本開示のペースト組成物を用いて接合されている。電気部品又は電子部品としては、例えば、発熱部材と放熱部材とが、前記ペースト組成物を用いて接合されたものが挙げられる。ペースト組成物は、放熱部材用接着剤として使用してもよい。

[0046] 本開示のペースト組成物を接合に用いることにより、緻密度が高く、接合

強度が高い接合層が形成される。前記接合層は、冷熱サイクル（ヒートサイクル）負荷を繰り返し受けても、熱抵抗の変化率が低く、接合信頼性が高いため、熱放散性が高く、発熱部材の温度上昇を低減することができ、安定した動作性を有する電気部品又は電子部品が得られる。

[0047] 発熱部材としては、例えば、光ピックアップ、パワートランジスタ等が挙げられる。発熱部材は、前記半導体素子、又は該半導体素子を有する部材であってもよい。

放熱部材としては、例えば、ヒートシンク、ヒートスプレッダー等が挙げられる。

なお、発熱部材と放熱部材とは、ペースト組成物を介して直接接着させてもよく、他の熱伝導率の高い部材を間に挟んで間接的に接着させてもよい。

実施例

[0048] 次に、実施例により本開示を具体的に説明するが、本開示は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

[0049] [酸化物含有銅粒子の製造]

各実施例及び比較例の酸化物含有銅粒子の製造に用いた化合物は、以下のとおりである。

<銅化合物>

・ FRC-D70：亜酸化銅；古河ケミカルズ株式会社製；比表面積 $0.2 \text{ m}^2/\text{g}$

・ FRC-D30：亜酸化銅；古河ケミカルズ株式会社製；比表面積 $0.5 \text{ m}^2/\text{g}$

・ FRC-O5B：亜酸化銅；古河ケミカルズ株式会社製；比表面積 $2.3 \text{ m}^2/\text{g}$

<アミン化合物>

・ 4-アミノ-1-ブタノール；東京化成工業株式会社製

・ 2-（2-アミノエトキシ）エタノール；東京化成工業株式会社製

・ 6-アミノ-1-ヘキサノール；東京化成工業株式会社製

- ・ 3-アミノ-1-プロパノール；東京化成工業株式会社製
- ・ n-オクチルアミン；東京化成工業株式会社製

<カルボン酸>

- ・ ヘキサン酸；東京化成工業株式会社製
- ・ オクタン酸；東京化成工業株式会社製
- ・ 酢酸；東京化成工業株式会社製
- ・ デカン酸；東京化成工業株式会社製

<還元性化合物>

- ・ ヒドラジノー水和物；富士フイルム和光純薬株式会社製

<有機溶剤>

- ・ 1-プロパノール；東京化成工業株式会社製
- ・ エタノール；東京化成工業株式会社製
- ・ ジエチレングリコール；東京化成工業株式会社製

[0050] (実施例1)

2000 mL 容の丸底フラスコに、亜酸化銅（FRC-D70）10 mmol、4-アミノ-1-ブタノール20 mmol、ヘキサン酸20 mmol、ヒドラジノー水和物10 mmol、及び1-プロパノール400 mLを入れ、250 rpmで攪拌しながら80℃のオイルバスで加熱し、180分間混合した。得られた混合液を、遠心分離し（25℃、10000 rpm、15分間；以下、同条件。）、上澄み液を除去した。残留物にエタノールを添加し、真空自転公転ミキサー（25℃、1000 rpm）にて、10分間攪拌して洗浄した後、遠心分離し、上澄み液を除去し、この操作を4回繰り返した。さらに、エタノールをジエチレングリコールに変更し、上記の洗浄、遠心分離及び上澄み液の除去と同一の操作を2回繰り返し、酸化物含有銅粒子のケーキを得た。

[0051] (実施例2～4、比較例1及び2)

表1に示す原料成分を用い、それ以外は実施例1と同一の操作を行うことにより、各酸化物含有銅粒子のケーキを得た。

[0052] [酸化物含有銅粒子の測定評価]

実施例及び比較例で製造した酸化物含有銅粒子（ケーキ）について、以下の測定評価を行った。評価結果を表 1 に示す。

[0053] （吸光度測定）

サンプル瓶に酸化物含有銅粒子のケーキを採取し、酸化物含有銅粒子に対して 1×10^6 倍の質量のエタノールを添加した。このサンプル瓶を超音波洗浄機に 10 分間浸漬させて分散処理し、酸化物含有銅粒子のエタノール分散液（試料液）を調製した。

この試料液について、分光光度計（紫外可視近赤外分光光度計「V-570」、日本分光製）にて、波長 300～1000 nm の吸光度を測定した。

吸収ピークは、実施例 1～4 については、波長 600～1000 nm の範囲内に 1 つあった。比較例 1 及び 2 については、波長 600～1000 nm の範囲内にピークはなかった。

また、波長 400～450 nm の範囲の平均吸光度の平均値（A1）及び波長 600～1000 nm の範囲内の連続する 50 nm の区間の最大平均吸光度（A2）を求め、その吸光度比（A2/A1）を算出した。

実施例 4 及び比較例 2 についての吸収スペクトルを、代表例として、図 1 及び 2 にそれぞれ示す。

[0054] （走査電子顕微鏡（SEM）観察）

カーボンテープを貼り付けた真鍮製試料台に、酸化物含有銅粒子のケーキを塗布し、窒素雰囲気下、90℃で3時間乾燥させて、試料を作製した。

この試料を、SEM（ショットキー電界放出形走査電子顕微鏡「JSM-F100」、日本電子株式会社製；加速電圧 15 kV、倍率 10 万倍；以下、同じ。）にて観察した。SEM 画像における 200 個の粒子について測長し、粒子の厚さ及び長径を求めた。表 1 には、厚さ及び長径は、それぞれの中央値を示す。

また、実施例 4 及び比較例 2 についての SEM 画像を、代表例として、図 3 及び 4 にそれぞれ示す。

[0055] [焼結体の特性評価]

実施例及び比較例で製造した酸化物含有銅粒子の焼結体について、以下の測定評価を行った。これらの評価結果も、表 1 に併せて示す。

[0056] (接合強度)

実施例及び比較例で製造した酸化物含有銅粒子（ケーキ）を、ジエチレングリコールで希釈し、不揮発分 80 質量%のペースト組成物を調製した。

調製したペースト組成物を用いて、Ni/Pdめっきを施した銅基板に、Ti/Pd/Auめっきを施した窒化アルミニウム片（3 mm×3 mm、厚さ 200 μm）を接着させ、窒素雰囲気（水素 3 体積%含有）下、200℃で 60 分間加熱して、銅粒子を焼結させた接合試験片（封止樹脂なし試験片）を作製した。

接合試験片について、接合強度試験機（「4000 Plus ボンドテスター」、Norton DAGE 製；室温（25℃）、基板から負荷治具までの距離 0.15 mm、負荷速度 30 mm/分）にて、ダイシェア強度（接合強度）を測定した。

[0057] (緻密度)

封止樹脂なし試験片をエポキシ樹脂で包埋した後、厚さ方向に切断加工した試料を、SEM 観察し、接合層断面の二値化画像において焼結体部分が占める面積割合を求め、これを緻密度とした。

[0058] (冷熱サイクル試験)

前記ペースト組成物を用いて、QFP (Quad Flat Package) フレームの Ni/Pd/Auめっきを施したダイパッド（4 mm×4 mm）に、Ti/Auめっきを施したシリコンチップ（3 mm×3 mm、厚さ 200 μm）を接着させ、窒素雰囲気（水素 3 体積%含有）下、200℃で 60 分間加熱して、銅粒子を焼結させた。これを、封止用エポキシ樹脂（「KEG3000D」、京セラ株式会社製）でモールド封止し、接合試験片（封止樹脂あり試験片）を作製した。

封止樹脂なし試験片及び封止樹脂あり試験片について、冷熱サイクル試験

(1 サイクル: $-40^{\circ}\text{C} \sim 120^{\circ}\text{C} / 30$ 分、2000 サイクル) を行った。過渡熱抵抗測定装置(「Simcenter T3Ster」、シーメンス社製)にて、試験前後の接合部の熱抵抗の変化率を測定した。表1には、この熱抵抗の変化率を示す。変化率が低いほど、接合信頼性は高く、10%を超える場合は、接合信頼性が低く、不良と評価した。

[0059] [表1]

表1

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2
原料成分 [mmol]							
銅化合物	亜酸化銅 (FRC-D70)	10	—	10	10	—	—
	亜酸化銅 (FRC-D30)	—	10	—	—	—	—
	亜酸化銅 (FRC-05B)	—	—	—	—	10	10
アミン化合物	4-アミノ-1-ブタノール	20	—	—	—	—	—
	2-(2-アミノエトキシ)エタノール	—	20	20	—	—	—
	6-アミノ-1-ヘキサノール	—	—	—	20	—	—
	3-アミノ-1-プロパノール	—	—	—	—	20	—
	n-オクチルアミン	—	—	—	—	—	20
カルボン酸	ヘキサン酸	20	—	—	—	—	—
	オクタン酸	—	20	20	20	—	—
	酢酸	—	—	—	—	20	—
	デカン酸	—	—	—	—	—	20
還元性化合物	ヒドラジーン水和物	10	10	10	10	10	10
評価							
銅粒子	吸収ピーク波長 [nm]	633	641	695	805	576	579
	吸光度比 (A2/A1)	1.42	1.32	2.77	1.65	1.16	1.24
	厚さ [nm]	19	25	11	18	202	72
	長径 [nm]	80	92	81	117	202	72
接合強度 [MPa]		41	45	70	76	15	10
緻密度 [%]		84	85	88	89	75	72
熱抵抗変化率 [%] (冷熱サイクル試験)	封止樹脂なし	7	5	2	2	125	186
	封止樹脂あり	5	2	1	1	113	186

[0060] 吸収スペクトルが、吸収ピークを波長600～1000 nmの範囲内に有する、酸化物含有銅粒子(実施例1～4)は、粒子形状がプレート状であるのに対して(図3参照)、前記波長範囲内に吸収ピークを有しない銅粒子(比較例1及び2)は、粒子形状が略球状であった(図4参照)。

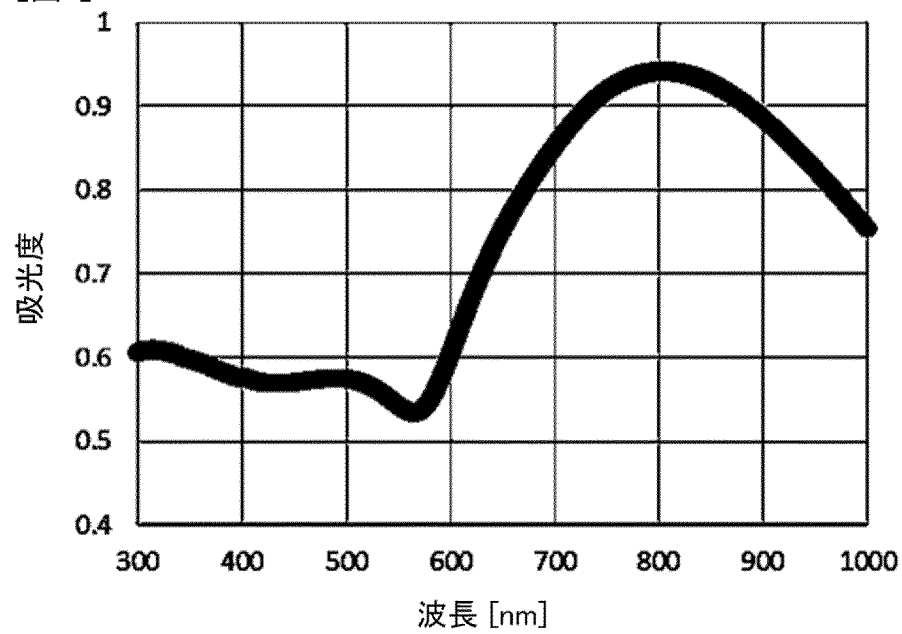
実施例1～4のペースト組成物は、緻密度が高く、接合強度が高く、接合

信頼性が高い接合層を形成できることが認められた。

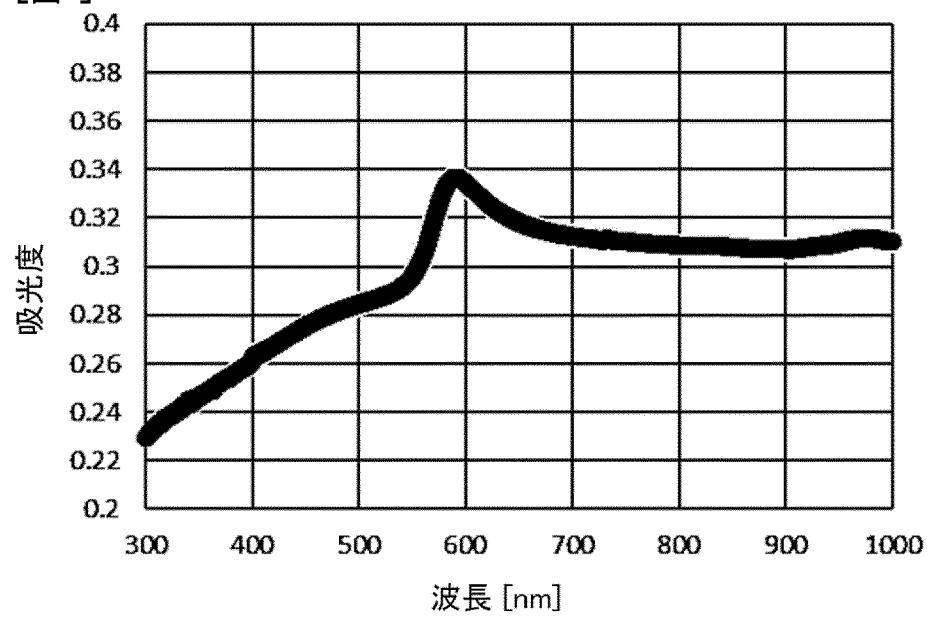
請求の範囲

- [請求項1] 酸化物含有銅粒子を 1×10^6 倍の質量のエタノール中に分散させて分光光度計にて測定した吸収スペクトルが、波長 $600 \sim 1000$ nm の範囲内に吸収ピークを有する、酸化物含有銅粒子。
- [請求項2] 前記吸収スペクトルは、波長 $600 \sim 1000$ nm の範囲内の連続する 50 nm の区間の最大平均吸光度が、波長 $400 \sim 450$ nm の範囲の平均吸光度の平均値の 1.25 倍以上である、請求項 1 に記載の酸化物含有銅粒子。
- [請求項3] 厚さが $5 \sim 50$ nm、長径が $30 \sim 300$ nm であり、かつ、前記長径が前記厚さよりも大きい、請求項 1 又は 2 に記載の酸化物含有銅粒子。
- [請求項4] 請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の酸化物含有銅粒子を含む、ペースト組成物。
- [請求項5] 少なくとも一部が、請求項 4 に記載のペースト組成物を用いて接合されている、半導体装置。
- [請求項6] 少なくとも一部が、請求項 4 に記載のペースト組成物を用いて接合されている、電気部品。
- [請求項7] 少なくとも一部が、請求項 4 に記載のペースト組成物を用いて接合されている、電子部品。

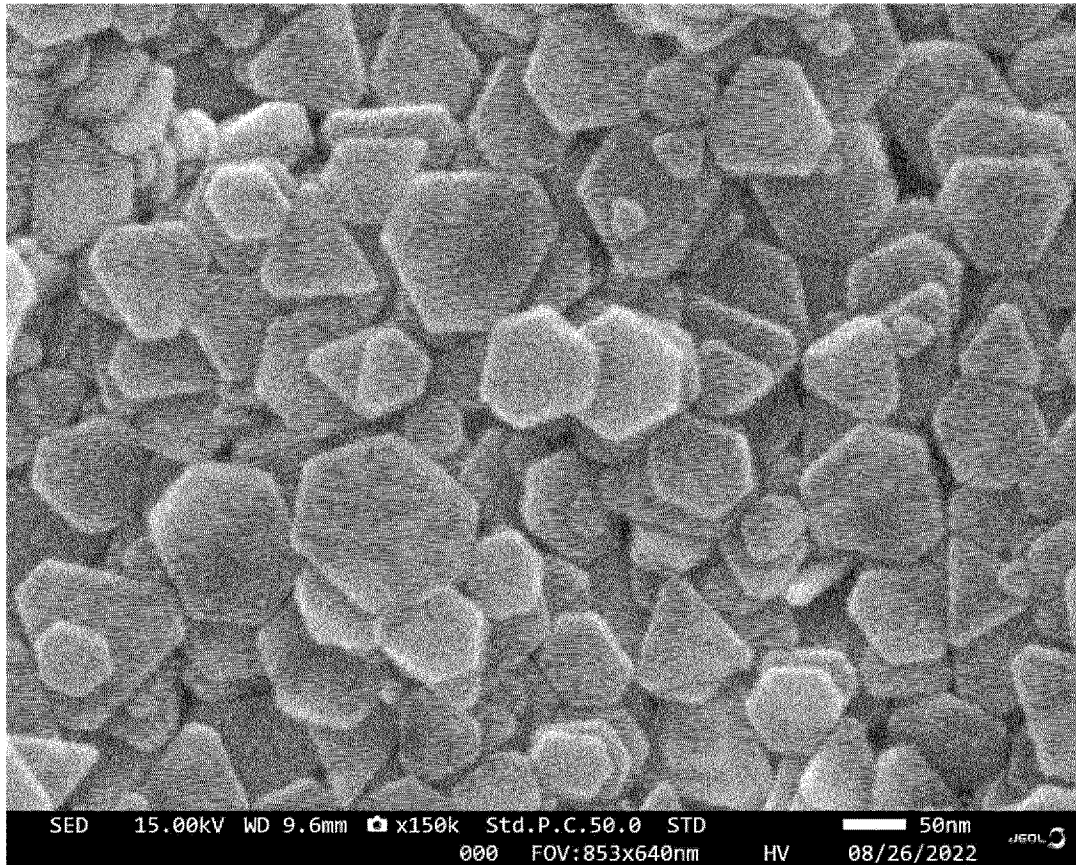
[図1]



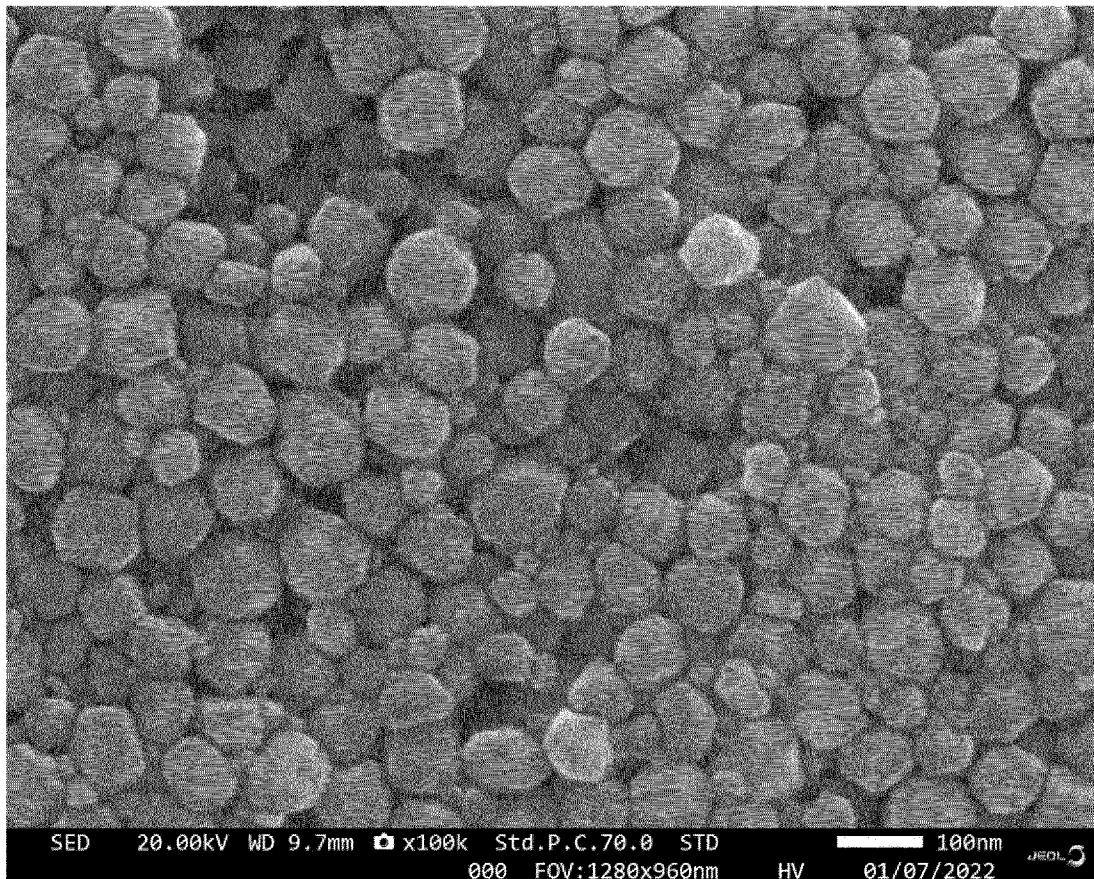
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/013459

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B22F 1/00(2022.01)i; **B22F 1/054**(2022.01)i; **B22F 1/06**(2022.01)i; **B22F 1/07**(2022.01)i; **B22F 1/102**(2022.01)i; **B22F 1/103**(2022.01)i; **B22F 1/16**(2022.01)i; **B22F 7/08**(2006.01)i; **B22F 9/00**(2006.01)i; **B22F 9/20**(2006.01)i; **B82Y 30/00**(2011.01)i; **B82Y 40/00**(2011.01)i; **C22C 1/04**(2023.01)i; **C22C 32/00**(2006.01)i; **H01L 21/52**(2006.01)i
 FI: B22F1/00 L; B22F1/054; B22F1/06; B22F1/07; B22F1/102; B22F1/103; B22F1/16; B22F7/08 C; B22F9/00 B; B22F9/20 E; B82Y30/00; B82Y40/00; C22C1/04 A; C22C32/00 B; H01L21/52 E

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)

B22F1/00; B22F1/054; B22F1/06; B22F1/07; B22F1/102; B22F1/103; B22F1/16; B22F7/08; B22F9/00; B22F9/20; B82Y30/00; B82Y40/00; C22C1/04; C22C32/00; H01L21/52

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 1971-2023
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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	JP 2020-035979 A (KYOCERA CORPORATION) 05 March 2020 (2020-03-05) claims 1-7, paragraphs [0088]-[0108], tables 1, 2	1-7
X	WO 2022/045252 A1 (NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION HOKKAIDO UNIVERSITY) 03 March 2022 (2022-03-03) claims 1-10, paragraphs [0033]-[0093], table 1	1-7
A	JP 2020-029392 A (NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION HOKKAIDO UNIVERSITY) 27 February 2020 (2020-02-27) entire text	1-7
A	KR 10-2011-0008386 A (INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION, DANKOOK UNIVERSITY) 27 January 2011 (2011-01-27) entire text	1-7



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

02 May 2023

Date of mailing of the international search report

23 May 2023

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
 Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/013459**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2020-084242 A (KYOCERA CORPORATION) 04 June 2020 (2020-06-04) entire text	1-7
A	JP 2016-196705 A (KYORITSU KAGAKU SANGYO KABUSHIKI KAISHA) 24 November 2016 (2016-11-24) entire text	1-7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2023/013459

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
JP	2020-035979	A	05 March 2020	WO	2020/044982	A1	
				TW	202014259	A	
WO	2022/045252	A1	03 March 2022	CN	115461173	A	
JP	2020-029392	A	27 February 2020	(Family: none)			
KR	10-2011-0008386	A	27 January 2011	(Family: none)			
JP	2020-084242	A	04 June 2020	WO	2020/105497	A1	
				TW	202026074	A	
JP	2016-196705	A	24 November 2016	(Family: none)			

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B22F 1/00(2022.01)i; B22F 1/054(2022.01)i; B22F 1/06(2022.01)i; B22F 1/07(2022.01)i; B22F 1/102(2022.01)i; B22F 1/103(2022.01)i; B22F 1/16(2022.01)i; B22F 7/08(2006.01)i; B22F 9/00(2006.01)i; B22F 9/20(2006.01)i; B82Y 30/00(2011.01)i; B82Y 40/00(2011.01)i; C22C 1/04(2023.01)i; C22C 32/00(2006.01)i; H01L 21/52(2006.01)i FI: B22F1/00 L; B22F1/054; B22F1/06; B22F1/07; B22F1/102; B22F1/103; B22F1/16; B22F7/08 C; B22F9/00 B; B22F9/20 E; B82Y30/00; B82Y40/00; C22C1/04 A; C22C32/00 B; H01L21/52 E																				
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）） B22F1/00; B22F1/054; B22F1/06; B22F1/07; B22F1/102; B22F1/103; B22F1/16; B22F7/08; B22F9/00; B22F9/20; B82Y30/00; B82Y40/00; C22C1/04; C22C32/00; H01L21/52 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2023年</td> </tr> </table> 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）			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年										
日本国実用新案公報	1922 - 1996年																			
日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年																			
日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年																			
日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年																			
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 2020-035979 A（京セラ株式会社）05.03.2020（2020 - 03 - 05） 請求項1-7, 段落[0088]-[0108], 表1-2</td> <td>1-7</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>WO 2022/045252 A1（国立大学法人北海道大学）03.03.2022（2022 - 03 - 03） 請求項1-10, 段落[0033]-[0093], 表1</td> <td>1-7</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2020-029392 A（国立大学法人北海道大学）27.02.2020（2020 - 02 - 27） 全文</td> <td>1-7</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>KR 10-2011-0008386 A（INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION, DANKOOK UNIVERSITY）27.01.2011（2011 - 01 - 27） 全文</td> <td>1-7</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2020-084242 A（京セラ株式会社）04.06.2020（2020 - 06 - 04） 全文</td> <td>1-7</td> </tr> </tbody> </table>			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	JP 2020-035979 A（京セラ株式会社）05.03.2020（2020 - 03 - 05） 請求項1-7, 段落[0088]-[0108], 表1-2	1-7	X	WO 2022/045252 A1（国立大学法人北海道大学）03.03.2022（2022 - 03 - 03） 請求項1-10, 段落[0033]-[0093], 表1	1-7	A	JP 2020-029392 A（国立大学法人北海道大学）27.02.2020（2020 - 02 - 27） 全文	1-7	A	KR 10-2011-0008386 A（INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION, DANKOOK UNIVERSITY）27.01.2011（2011 - 01 - 27） 全文	1-7	A	JP 2020-084242 A（京セラ株式会社）04.06.2020（2020 - 06 - 04） 全文	1-7
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	JP 2020-035979 A（京セラ株式会社）05.03.2020（2020 - 03 - 05） 請求項1-7, 段落[0088]-[0108], 表1-2	1-7																		
X	WO 2022/045252 A1（国立大学法人北海道大学）03.03.2022（2022 - 03 - 03） 請求項1-10, 段落[0033]-[0093], 表1	1-7																		
A	JP 2020-029392 A（国立大学法人北海道大学）27.02.2020（2020 - 02 - 27） 全文	1-7																		
A	KR 10-2011-0008386 A（INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION, DANKOOK UNIVERSITY）27.01.2011（2011 - 01 - 27） 全文	1-7																		
A	JP 2020-084242 A（京セラ株式会社）04.06.2020（2020 - 06 - 04） 全文	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抵触するものではなく、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 02.05.2023		国際調査報告の発送日 23.05.2023																		
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 中西 哲也 4E 1191 電話番号 03-3581-1101 内線 3425																		

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
A	JP 2016-196705 A (協立化学産業株式会社) 24.11.2016 (2016 - 11 - 24) 全文	1-7

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/013459

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2020-035979	A	05.03.2020	WO	2020/044982	A1	
				TW	202014259	A	
WO	2022/045252	A1	03.03.2022	CN	115461173	A	
JP	2020-029392	A	27.02.2020	(ファミリーなし)			
KR	10-2011-0008386	A	27.01.2011	(ファミリーなし)			
JP	2020-084242	A	04.06.2020	WO	2020/105497	A1	
				TW	202026074	A	
JP	2016-196705	A	24.11.2016	(ファミリーなし)			