(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
2017 年 8 月 17 日(17.08.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/138255 A1

(51) 国際特許分類:
C09J 7/00 (2006.01)　*C09J 201/00* (2006.01)
C09J 11/04 (2006.01)　*H01B 1/22* (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01)　*H01L 21/301* (2006.01)
C09J 157/12 (2006.01)　*H01L 21/60* (2006.01)
C09J 163/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/087661

(22) 国際出願日: 2016 年 12 月 16 日(16.12.2016)

(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 2016-023613 2016 年 2 月 10 日(10.02.2016) JP

(71) 出願人: 古河電気工業株式会社 (**FURUKAWA ELECTRIC CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1008322 東京都千代田区丸の内二丁目２番３号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 三原　尚明 (**MIHARA Naoaki**); 〒1008322 東京都千代田区丸の内二丁目２番３号　古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 切替　徳之 (**KIRIKAE Noriyuki**); 〒1008322 東京都千代田区丸の内二丁目２番３号　古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP). 杉山　二朗 (**SUGIYAMA Jirou**); 〒1008322 東京都千代田区丸の内二丁目２番３号 古河電気工業株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: アインゼル・フェリックス＝ラインハルト, 外 (**EINSEL Felix-Reinhard** et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内１丁目６番２号　新丸の内センタービルディング　ゾンデルホフ＆アインゼル法律特許事務所 Tokyo (JP).

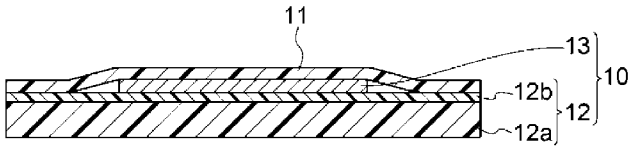
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, 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).

[続葉有]

(54) **Title**: ELECTRICALLY CONDUCTIVE ADHESIVE FILM, AND DICING/DIE-BONDING FILM USING SAME

(54) 発明の名称 : 導電性接着フィルムおよびこれを用いたダイシング・ダイボンディングフィルム



(57) **Abstract**: The purpose of the present invention is to provide: an electrically conductive adhesive film which is suitably used as an electrically conductive bonding material when bonding a semiconductor chip (particularly a power device) to the top of an element carrying part of a lead frame or to the top of a circuit electrode part of an insulating substrate, and is capable of forming, between the semiconductor chip and the top of the element carrying part of the lead frame or the circuit electrode part of the insulating substrate, a bonding layer which exhibits both excellent mounting reliability and heat resistance after bonding and sintering, while being lead free; and a dicing/die-bonding film using said electrically conductive adhesive film. This electrically conductive adhesive film includes: metal particles (Q); a resin (M); and a prescribed organic phosphine (A) and/or a prescribed sulfide-based compound (B). The electrically conductive adhesive film has a storage elastic modulus at 1 Hz measured after sintering of not more than 20 GPa, and has a heating weight reduction rate when heated for 2 hours at 250°C under a nitrogen atmosphere of less than 1%.

(57) 要約: 例えば半導体チップ（特にパワーデバイス）をリードフレームの素子担持部上または絶縁基板の回路電極部上に接合する際の導電接合材として好適に用いられ、鉛フリーを達成しつつ、接合・焼結後の耐熱性と実装信頼性の双方に優れた接合層を、半導体チップとリードフレームの素子担持部上または絶縁基板の回路電極部間に形成することが可能な導電性接着フィルムおよびこれを用いたダイシング・ダイボンディングフィルムを提供すること。　本発明の導電性接着フィルムは、金属粒子（Ｑ）と、樹脂（Ｍ）と、所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくともと一方とを含み、焼結後の状態で測定した１Ｈｚにおける貯蔵弾性率が、２０ＧＰａ以下であり、窒素雰囲気下、２５０℃で２時間加熱したときの加熱重量減少率が、１%未満である。

WO 2017/138255 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

明　細　書

発明の名称 ：

導電性接着フィルムおよびこれを用いたダイシング・ダイボンディングフィルム

技術分野

[0001] 本発明は、導電性接着フィルムおよびこれを用いたダイシング・ダイボンディングフィルムに関する。

背景技術

[0002] 半導体装置は、一般に、リードフレームの素子担持部上または絶縁基板の回路電極部上に、半導体素子（チップ）を接合するためのダイマウント材を形成する工程と、リードフレーム上もしくは回路電極上のダイマウント材表面に半導体素子を搭載し、リードフレームの素子担持部もしくは絶縁基板の回路電極部と半導体素子とを接合する工程と、半導体素子の電極部と、リードフレームの端子部もしくは絶縁基板の端子部を電気的に接合するワイヤボンディング工程と、このようにして組み立てた半導体装置を樹脂被覆するモールド工程とを経て製造される。

[0003] ここで、リードフレームの素子担持部もしくは絶縁基板の回路電極部と半導体素子とを接合する際には、接合材が用いられている。例えば、ＩＧＢＴやＭＯＳ－ＦＥＴ等のパワー半導体の接合材としては、高融点で耐熱性のある鉛を８５質量％以上含んだ鉛はんだが広く用いられてきた。しかし、近年、鉛の有害性が問題視されており、接合材についても鉛フリーの要求が高まってきている。

[0004] また、ＳｉＣパワー半導体は、Ｓｉパワー半導体と比較して、低損失であるとともに、高速および高温での動作が可能であるという特徴があり、次世代パワー半導体として期待されている。このようなＳｉＣパワー半導体は、理論上２００℃以上での動作が可能であるが、インバータ等のシステムの高出力高密度化を実用化する上では、接合材を含む周辺材料についても耐熱性

の向上が望まれている。

[0005] これらの背景から、近年では、鉛フリータイプで、高融点の各種接合材料が評価されている。このような高融点の鉛フリータイプの接合材料としては、例えば特許文献１で開示されているＡｕ－Ｓｎ系合金やＡｕ－Ｇｅ系合金等のＡｕ系合金などがあり、これらは電気伝導および熱伝導が良好で、化学的にも安定である点で注目されている。しかし、このようなＡｕ系合金材料は、貴金属を含むため材料コストが高くなり、また、よりよい実装信頼性を得るためには高価な高温真空リフロー装置が必要となるため、未だ実用化には至っていない。

[0006] また、多くの鉛フリーはんだは、鉛はんだよりも濡れ性が悪いという問題がある。そのため、鉛フリーはんだを接合材として用いた場合には、ダイパッド部分にはんだが塗れ拡がらず、はんだ抜けなどの接合不良を発生するリスクが高くなる。特に、濡れ性の問題は、鉛フリーはんだの融点が高くなる程、悪化する傾向にあるため、耐熱性と実装信頼性とを両立することが困難であった。

[0007] このような課題を解決する為、特許文献２や特許文献３では、Ｃｕ系はんだやＳｎ系はんだ等の拡散焼結型のはんだの研究が進められている。これら拡散焼結型のはんだは、未焼結の状態では低融点であり実装温度を低温化でき、さらに、拡散焼結反応後の状態では不可逆的に高融点化するため、従来の鉛フリーはんだでは困難であった耐熱性と実装信頼性との両立が期待されている。しかし、拡散焼結型はんだも、従来の鉛フリーはんだ同様に、濡れ性の問題があり、大面積を接合する際には、はんだ抜けのリスクは回避できない。また、拡散焼結型はんだは、焼結体の状態では硬くて脆いため、応力緩和性に乏しく、耐熱疲労特性が低いという問題があり、十分な接合信頼性が得られるまでには至っていなかった。

[0008] また、鉛はんだや鉛フリーはんだの多くは、金属の酸化被膜を除去する目的で、カルボン酸やアルコール等のフラックスを添加する事が一般的である。しかし、これらフラックス成分は、吸湿し易い上に、ブリードアウトし易

く、このような吸湿水分とブリードアウトの発生が、半導体素子の封止パッケージにおける吸湿後の耐リフロー信頼性（ＭＳＬ）に悪影響を与えることが知られている。そこで、一般的には、はんだリフロー実装後に、フラックス洗浄が行われているが、このような処理は、その手間や洗浄廃液の処理の問題がある。一方で、これらの問題を回避すべく、吸湿およびブリードアウトの原因となるカルボン酸やアルコール等のフラックス成分の添加量を低減すると、酸化膜の除去性能が不足し、導電性やその他の性能が十分に発揮されないという問題が生じる。そのため、未だ十分な解決には至っていない。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：特開２００６－０３２８８８号公報

特許文献2：特開２００７－１５２３８５号公報

特許文献3：特開２００２－２６３８８０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] そこで本発明は、例えば半導体チップ（特にパワーデバイス）をリードフレームの素子担持部上または絶縁基板の回路電極部上に接合する際の導電接合材として好適に用いられ、鉛フリーを達成しつつ、接合・焼結後の耐熱性と実装信頼性の双方に優れた接合層を、半導体チップとリードフレームの素子担持部上または絶縁基板の回路電極部間に形成することが可能な導電性接着フィルムおよびこれを用いたダイシング・ダイボンディングフィル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

[0011] 本発明者らは、鋭意検討した結果、特に、金属粒子（Ｑ）と、樹脂（Ｍ）と、所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくもとも一方とを組み合わせ、かつ、貯蔵弾性率および加熱重量減少率をそれぞれ所定の範囲とすることによって、例えば半導体チップ（特にパ

ワーデバイス）と、リードフレームの素子担持部上または絶縁基板の回路電極部との間に、鉛フリーで、接合・焼結後の耐熱性と実装信頼性の双方に優れた接合層を形成することが可能な、導電接合材として用いるのに好適な導電性接着フィルムが得られることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0012] すなわち、本発明の要旨構成は、以下のとおりである。

［１］ 金属粒子（Ｑ）と、樹脂（Ｍ）と、下記一般式（１）で示される有機ホスフィン類（Ａ）および下記一般式（２）で示されるスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくとも一方とを含み、

焼結後の状態で測定した１Ｈｚにおける貯蔵弾性率が、２０ＧＰａ以下であり、

窒素雰囲気下、２５０℃で２時間加熱したときの加熱重量減少率が、１％未満である、導電性接着フィルム。

[化1]



・・・(1)



・・・(2)

ただし、上記一般式（１）および（２）においてＲは、それぞれ独立して、有機基を示し、Ｒはいずれも互いに同一であっても異なっていてもよい。

［２］ 前記一般式（１）および（２）のそれぞれにおいて、Ｒの少なくとも１つは、アリール基である、上記［１］に記載の導電性接着フィルム。

［３］ 前記一般式（１）および（２）において、Ｒは、それぞれ独立して、その一部にビニル基、アクリル基、メタクリル基、マレイン酸エステル基、マレイン酸アミド基、マレイン酸イミド基、１級アミノ基、２級アミノ基、チオール基、ヒドロシリル基、ヒドロホウ素基、フェノール性水酸基およびエポキシ基から選択されるいずれか１種以上を有する、上記［１］または［２］に記載の導電性接着フィルム。

［４］ 前記有機ホスフィン類（Ａ）は、ｐ－スチリルジフェニルホスフィ

ン含む、上記［１］～［３］のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

［５］　前記スルフィド系化合物（Ｂ）は、ビス（アクリロイルチオフェニル）スルフィドおよびビス（メタクリロイルチオフェニル）スルフィドの少なくとも一方を含む、上記［１］～［４］のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

［６］　Ｂステージ状態において、６０℃で１Ｈｚにおける損失弾性率（Ｇ’’）と貯蔵弾性率（Ｇ’）との比（Ｇ’’／Ｇ’）で定義される損失正接（ｔａｎδ）が、１．４以上である、上記［１］～［５］のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

［７］　前記樹脂（Ｍ）は、熱硬化性樹脂（Ｍ１）を含み、

前記金属粒子（Ｑ）が、銅、ニッケル、アルミニウムおよびスズの群から選択される１種の金属またはこれらの群から選択される２種以上を含有する合金からなる第１の金属粒子（Ｑ１）を含む、上記［１］～［６］のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

［８］　前記熱硬化性樹脂（Ｍ１）は、イミド基を１分子中に２単位以上有するマレイン酸イミド化合物を含む、上記［７］に記載の導電性接着フィルム。

［９］　前記熱硬化性樹脂（Ｍ１）は、脂肪族ジオールのグリシジルエーテルに由来する分子骨格を有するエポキシ樹脂を含む、上記［７］に記載の導電性接着フィルム。

［１０］　前記熱硬化性樹脂（Ｍ１）が、フェノールノボラック樹脂をさらに含む、上記［８］または［９］に記載の導電性接着フィルム。

［１１］　前記金属粒子（Ｑ）が、前記第１の金属粒子（Ｑ１）と、該第１の金属粒子（Ｑ１）とは異なる金属成分系の第２の金属粒子（Ｑ２）とを含む混合物であり、

前記第１の金属粒子（Ｑ１）および前記第２の金属粒子（Ｑ２）が、互いに、金属間化合物を形成し得る金属成分を含む、上記［７］～［１０］のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

［１２］　前記第２の金属粒子（Ｑ２）が、銅、ニッケル、アルミニウム、スズ、亜鉛、チタン、銀、金、インジウム、ビスマス、ガリウムおよびパラジウムの群から選択される１種の金属またはこれらの群から選択される２種以上を含有する合金からなる、上記［１１］に記載の導電性接着フィルム。

［１３］　上記［１］～［１２］のいずれか１項に記載の導電性接着フィルムと、ダイシングテープとを貼り合せてなる、ダイシング・ダイボンディングフィルム。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、金属粒子（Ｑ）と、樹脂（Ｍ）と、所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくもとも一方とを含み、焼結後の状態で測定した１Ｈｚにおける貯蔵弾性率が、２０ＧＰａ以下であり、窒素雰囲気下、２５０℃で２時間加熱したときの加熱重量減少率が、１％未満であることによって、例えば半導体チップ（特にパワーデバイス）と、リードフレームの素子担持部上または絶縁基板の回路電極部との間に、鉛フリーで、接合・焼結後の耐熱性と実装信頼性の双方に優れた接合層を形成することが可能な、導電接合材として用いるのに好適な導電性接着フィルムおよびこれを用いたダイシング・ダイボンディングフィルムを提供することができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]本発明の実施形態に係るダイシング・ダイボンディングフィルムの層構成を示す断面図である。

[図2]本発明のダイシング・ダイボンディングフィルムを半導体に貼合した状態を示す図である。

[図3]ダイシング工程を説明するための図である。

[図4]ピックアップ工程を説明するための図である。

[図5]ダイボンディング工程を説明するための図である。

[図6]樹脂モールドした半導体素子（装置）の断面を示す図である。

発明を実施するための形態

[0015] 本発明に従う導電性接着フィルムおよびこれを用いたダイシング・ダイボンディングフィルムの実施形態について、以下で詳細に説明する。

[0016] ＜導電性接着フィルム＞

本実施形態に係る導電性接着フィルムは、金属粒子（Ｑ）と、樹脂（Ｍ）と、所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくもとも一方とを含む。また、導電性接着フィルムは、必要に応じて、さらに各種添加剤を含有してもよい。

なお、ここでいう「金属粒子」とは、特に区別して記載しない限りは、単一の金属成分からなる金属粒子のことを意味するだけではなく、２種以上の金属成分からなる合金粒子のことも意味する。

[0017] ［１］金属粒子（Ｑ）

本実施形態に係る導電性接着フィルムにおいて、金属粒子（Ｑ）は、銅（Ｃｕ）、ニッケル（Ｎｉ）、アルミニウム（Ａｌ）およびスズ（Ｓｎ）の群から選択される１種の金属またはこれらの群から選択される２種以上を含有する合金からなる第１の金属粒子（Ｑ１）を含むことが好ましい。このような第１の金属粒子（Ｑ１）は、導電性および熱伝導性に優れ、比較的安価で、イオンマイグレーションが起こりにくい点で、導電性接着フィルムの金属粒子（Ｑ）として好適である。なお、金属粒子（Ｑ）は、第１の金属粒子（Ｑ１）のみからなるものであってもよいし、あるいは、第１の金属粒子（Ｑ１）に加えて、他の金属粒子を１種以上含む混合物であってもよい。

[0018] 金属粒子（Ｑ）は、第１の金属粒子（Ｑ１）と、この第１の金属粒子（Ｑ１）とは異なる金属成分系の第２の金属粒子（Ｑ２）とを含む混合物であり、第１の金属粒子（Ｑ１）および第２の金属粒子（Ｑ２）は、互いに、金属間化合物を形成し得る金属成分を含むことが好ましい。第１の金属粒子（Ｑ１）と第２の金属粒子（Ｑ２）とが、互いに、金属間化合物を形成し得る金属を含んでいることにより、金属粒子（Ｑ）全体として、未焼結の状態では低融点の金属または合金でありながら、焼結後の状態では高融点の金属間化合物を形成することが可能になる。その結果、このような金属粒子によれば

、実装温度の低温化を達成しつつ、焼結後は実装温度以上の温度でも性能が劣化することなく優れた耐熱性を発揮することが可能となる。

[0019] このような金属間化合物を形成し得る金属成分の組み合わせとしては、適宜選択できるが、例えば、Ｃｕ－Ｓｎ系、Ｎｉ－Ｓｎ系、Ａｇ－Ｓｎ系、Ｃｕ－Ｚｎ系、Ｎｉ－Ｚｎ系、Ｎｉ－Ｔｉ系、Ｓｎ－Ｔｉ系、Ａｌ－Ｔｉ系等の組合せが挙げられる。なお、これらの金属間化合物を形成し得る組み合わせに対応した各金属成分は、第１の金属粒子（Ｑ１）および第２の金属粒子（Ｑ２）のそれぞれに、組み合わせごとに各１種ずつ含まれていることが好ましい。また、実装温度をできるだけ低めに設定する必要がある場合には、低融点のＳｎを含む組合せが好ましく、特にＣｕ－Ｓｎ系またはＮｉ－Ｓｎ系の組み合わせがより好ましい。

[0020] また、第２の金属粒子（Ｑ２）は、第１の金属粒子（Ｑ１）とは異なる金属成分系をもち、かつ、第１の金属粒子（Ｑ１）とともに、互いに、金属間化合物を形成し得る金属成分を含んでいればよく、特には限定されないが、好ましくは、銅（Ｃｕ）、ニッケル（Ｎｉ）、アルミニウム（Ａｌ）、スズ（Ｓｎ）、 亜鉛（Ｚｎ）、チタン（Ｔｉ）、銀（Ａｇ）、金（Ａｕ）、インジウム（Ｉｎ）、ビスマス（Ｂｉ）、ガリウム（Ｇａ）およびパラジウム（Ｐｄ）の群から選択される１種の金属またはこれらの群から選択される２種以上を含有する合金からなっている。具体的には、例えば、第１の金属粒子（Ｑ１）がＣｕ粒子である場合には、第２の金属粒子（Ｑ２）は、Ｃｕとともに金属間化合物を形成し得る金属粒子、例えばＳｎ粒子またはＳｎを含有する合金粒子であることが好ましい。

[0021] また、第１の金属粒子（Ｑ１）および第２の金属粒子（Ｑ２）の少なくとも一方は、２種以上の金属成分を含んでなる合金粒子であることが好ましい。第１の金属粒子（Ｑ１）および第２の金属粒子（Ｑ２）の少なくとも一方が合金粒子であることにより、全体としての金属粒子（Ｑ）をさらに低融点化できる。このような合金粒子としては、例えば、銅（Ｃｕ）、ニッケル（Ｎｉ）、アルミニウム（Ａｌ）、スズ（Ｓｎ）、亜鉛（Ｚｎ）、チタン（Ｔ

ｉ）、銀（Ａｇ）、金（Ａｕ）、インジウム（Ｉｎ）、ビスマス（Ｂｉ）、ガリウム（Ｇａ）およびパラジウム（Ｐｄ）から選択される少なくとも２種を含有する合金であることが好ましい。具体的には、このような合金粒子としては、Ｓｎ等に、ＺｎやＢｉ、Ａｇ、Ｉｎ、Ｇａ、Ｐｄ等を加えて、予め合金化して粒子化したものが挙げられる。

[0022] 金属粒子（Ｑ）１００質量％における、第１の金属粒子（Ｑ１）の含有量は、好ましくは１０～１００質量％であり、より好ましくは３０～８０質量％である。また、金属粒子（Ｑ）１００質量％における、第２の金属粒子（Ｑ２）の含有量は、好ましくは０～９０質量％であり、より好ましくは２０～７０質量％である。なお、金属粒子（Ｑ）は、第１の金属粒子（Ｑ１）および第２の金属粒子（Ｑ２）に加え、必要に応じて、単一金属または合金からなるその他の金属粒子（Ｑｎ）をさらに１種以上含んでいてもよく、その含有量は、金属粒子（Ｑ）１００質量％中に、好ましくは５０質量％以下である。

[0023] なお、金属粒子（Ｑ）は、環境負荷低減の観点から、Ｐｂ（鉛）、Ｈｇ（水銀）、Ｓｂ（アンチモン）およびＡｓ（ヒ素）を実質的に含有しないことが好ましい。なお、これらの成分の含有量は、金属粒子（Ｑ）１００質量％中に、合計して０．１質量％未満であることが好ましい。

[0024] また、金属粒子（Ｑ）の形状は、特に限定されるものではなく、球状粒子やデンドリック状粒子、鱗片状、スパイク状等を適宜用いることができる。また、金属粒子（Ｑ）の粒子径も特に限定されないが、平均粒子径（Ｄ５０）が、２０μｍ以下であることが好ましい。金属粒子（Ｑ）の粒子径を、上記範囲とすることにより、導電性接着フィルムを比較的薄膜（例えば、４０μｍ以下）に形成できる。また、第１の金属粒子（Ｑ１）と第２の金属粒子（Ｑ２）とを用いる場合には、例えば、第１金属粒子（Ｑ１）は、平均粒子径（Ｄ５０）が２０μｍ以下であり、第２金属粒子（Ｑ２）は、平均粒子径（Ｄ５０）が７μｍ未満であることがより好ましい。なお、本発明において平均粒子径（Ｄ５０）は、レーザー回折散乱式粒度分布測定法による測定に

基づいて算出された値とする。なお、平均粒子径（ｄ５０）の測定条件は、後述する実施例の項で説明する。

[0025] 本実施形態に係る導電性接着フィルムにおける金属粒子（Ｑ）の含有量は、好ましくは７０～９６質量％であり、より好ましくは８０～９４質量％である。上記範囲とすることにより、導電性接着フィルムを成形する際の成形性がよくなるとともに、フィルムとしての取り扱い性も良好で、さらに、接着・焼結後には、優れた導電性を発揮し得る。

[0026] ［２］樹脂（Ｍ）

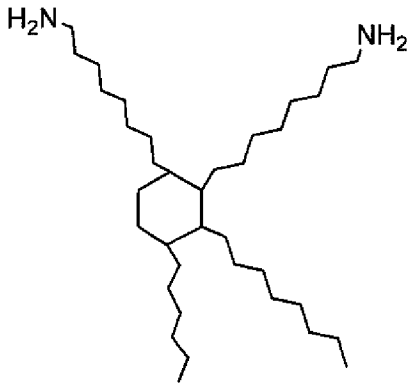
本実施形態に係る導電性接着フィルムにおいて、樹脂（Ｍ）は、熱硬化性樹脂（Ｍ１）を含むことが好ましい。導電性接着フィルムが、熱硬化性樹脂（Ｍ１）を含むことにより、未焼結の状態では、フィルム性（成形のしやすさ、取り扱いやすさ等）に寄与し、焼結後の状態では、熱サイクルによって、半導体素子と基材（リードフレーム等）との間に生じる応力等を緩和する役割を果たす。

[0027] 熱硬化性樹脂（Ｍ１）は、特に、耐熱性と金属粒子（Ｑ）を混ぜた際のフィルム性の観点から、イミド基を１分子中に２単位以上含むマレイン酸イミド化合物を含むマレイン酸イミド樹脂（以下、「マレイミド樹脂」ということがある。）または脂肪族ジオールのグリシジルエーテルに由来する分子骨格を有するエポキシ樹脂を含むことが好ましく、マレイン酸イミド樹脂を含むことがより好ましい。特に、上記いずれかの樹脂を含有する熱硬化性樹脂（Ｍ１）は応力緩和性に優れるため、焼結後の導電性接着フィルムにおいて、耐熱疲労特性を向上できる。その結果、このような熱硬化性樹脂（Ｍ１）を含む導電性接着フィルムによれば、従来の金属のみの鉛フリーはんだの問題点であった、硬くて脆いという耐熱疲労特性の欠点を克服できる。

[0028] マレイン酸イミド樹脂としては、例えば、マレイン酸またはその無水物と、ジアミンまたはポリアミンとを縮合すること等により得られる。また、マレイン酸イミド樹脂は、炭素数１０以上の脂肪族アミンに由来する骨格を含むものが、応力緩和性の観点から好ましく、特に、炭素数３０以上であり、

下記構造式（３）のような骨格を有するものがより好ましい。また、マレイン酸イミド化合物は、数平均分子量が３０００以上のものであることが好ましい。

[0029] [化2]



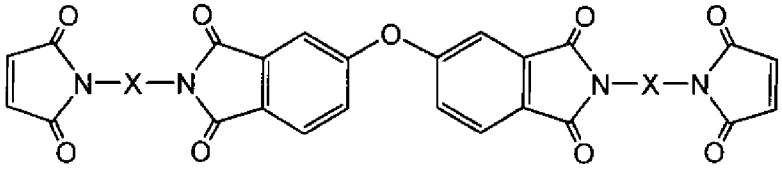
・・・（３）

[0030] マレイン酸イミド樹脂には、マレイン酸以外の酸成分、例えば、ベンゼンテトラカルボン酸またはその無水物、ヒドロキシフタル酸ビスエーテルまたはその無水物等に由来する骨格を含むことにより、分子量やガラス転移温度Ｔｇなどを調整してもよい。また、マレイン酸イミド樹脂の硬化剤としては、フェノールノボラック樹脂やラジカル発生剤等が好ましい。

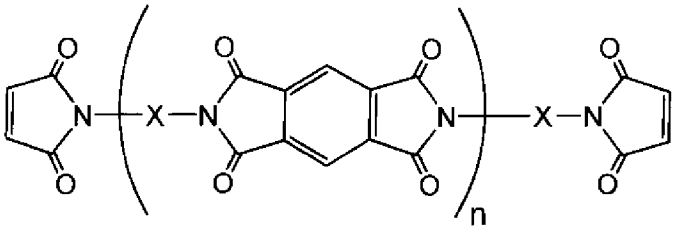
[0031] また、このようなマレイン酸イミド樹脂としては、例えば、下記構造式（４）～（６）に示されるビスマレイミド樹脂等が好適に用いられる。

[0032]

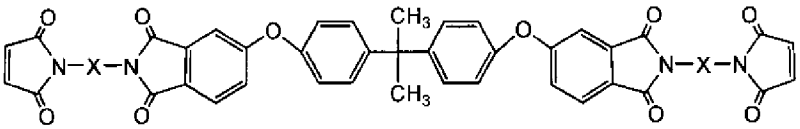
[化3]



・・・（4）



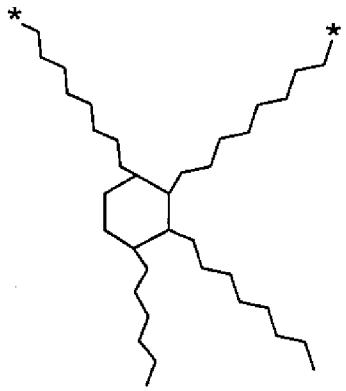
・・・（5）



・・・（6）

[0033] 但し、上記式（５）において、ｎは、１～１０の整数である。また、上記式（４）～（６）において、「Ｘ」の部分は、下記構造式（７）で表される「$C_{36}H_{72}$」の骨格である。なお、下記式（７）において、「＊」はＮとの結合部位を意味する。

[化4]



・・・（7）

[0034] また、脂肪族ジオールのグリシジルエーテルに由来する分子骨格を有するエポキシ樹脂としては、例えばエチレングリコール変性型エポキシ樹脂、プロピレングリコール変性型エポキシ樹脂、ブタンジオール変性型エポキシ樹

脂等が挙げられる。これらのエポキシ樹脂は、柔軟性の観点から好ましい。また、このようなエポキシ樹脂は、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂やビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、分子量の大きなエポキシ樹脂であるフェノキシ樹脂等と混合して用いることが、接着強度と柔軟性を両立する観点からより好ましい。

[0035] また、上記のようなエポキシ樹脂の硬化剤としては、酸無水物、フェノールノボラック樹脂、アミン、イミダゾール系化合物やジシアンジアミド等を選択できる。中でも、フェノールノボラック樹脂およびイミダゾール系化合物が好ましい。

[0036] 熱硬化性樹脂（Ｍ１）は、フェノールノボラック樹脂をさらに含むことが好ましい。例えば、上記マレイン酸イミド樹脂またはエポキシ樹脂と、フェノールノボラック樹脂とを組み合わせて用いることにより、フェノールノボラック樹脂が硬化剤として作用し、導電性接着フィルの接着性が更に向上する。

[0037] 本実施形態に係る導電性接着フィルムにおける樹脂（Ｍ）の含有量は、好ましくは４～３０質量％であり、より好ましくは６～２０質量％である。上記範囲とすることにより、未焼結の状態では、フィルム性（成形のしやすさ、取り扱いやすさ等）に優れ、焼結した状態では、熱サイクルによって、半導体素子と基材（リードフレーム等）との間に生じる応力等の緩和性に優れる。なお、樹脂（Ｍ）は、１種の樹脂のみからなるものであってもよいし、２種以上の樹脂を混合したものであってもよい。また、必要に応じて上記以外の樹脂をさらに含有してもよい。

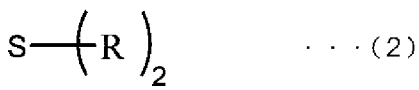
[0038] ［３］有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）

本実施形態に係る導電性接着フィルムは、下記一般式（１）で示される有機ホスフィン類（Ａ）および下記一般式（２）で示されるスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくもとも一方を含む。

[化5]



・・・(1)



・・・(2)

ただし、上記一般式（１）および（２）においてＲは、それぞれ独立して、有機基を示し、Ｒは互いに同一であっても異なっていてもよい。

[0039] これらの化合物は、本実施形態に係る導電性接着フィルムにおいて、金属粒子（Ｑ）表面の酸化膜を除去する働きを助ける、フラックスとしての機能を有し、特に、Ｃｕ、Ｓｎ、ＮｉおよびＡｌのような酸化しやすい金属に対して、より効果的に作用する。また、これらの化合物は、従来一般的に用いられてきたカルボン酸やアルコール等のフラックスに比べて、極めて吸湿し難く、耐吸湿性に優れている。

[0040] 上記一般式（１）および（２）において、Ｒは、それぞれ独立して、アルキル基、アリール基、官能基を有する有機基、ヘテロ原子を有する有機基、および不飽和結合を有する有機基から選択されるいずれかであることが好ましく、Ｒの少なくとも１つは、アリール基であることが好ましい。

[0041] 上記アルキル基は、直鎖状、分岐状及び環状のいずれであってもよく、置換基を有していてもよい。アルキル基は、直鎖状又は分岐状であることが好ましい。また、上記アルキル基は、炭素数が３以上であることが好ましく、炭素数が４～１８であることがより好ましく、炭素数が６～１５であることが更に好ましい。このようなアルキル基としては、具体的には、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ステアリル基およびイソステアリル基等が挙げられる。

[0042] 上記アリール基は、置換基を有していてもよく、炭素数が６～１０であることが好ましい。このようなアリール基としては、例えば、フェニル基、トリル基、キシリル基、クメニル基、１－ナフチル基等が挙げられる。

[0043] 上記官能基を有する有機基は、炭素数が１～１０であることが好ましく、

炭素数が１～６であることがより好ましく、炭素数が１～３であることが更に好ましい。また、上記有機基が有する官能基としては、クロロ基、ブロモ基、フルオロ基等が挙げられる。また、このような官能基を有する有機基としては、具体的には、クロロエチル基、フルオロエチル基、クロロプロピル基、ジクロロプロピル基、フルオロプロピル基、ジフルオロプロピル基、クロロフェニル基およびフルオロフェニル基等が挙げられる。

[0044] 上記ヘテロ原子を有する有機基は、炭素数が３以上であることが好ましく、炭素数が４～１８であることがより好ましく、炭素数が６～１５であることが更に好ましい。また、上記有機基が有するヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子、硫黄原子等が挙げられる。また、このようなヘテロ原子を有する有機基としては、具体的には、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、メチルスルホキシド基、エチルスルホキシド基およびフェニルスルホキシド基等が挙げられる。

[0045] 上記不飽和結合を有する有機基は、炭素数が３以上であることが好ましく、炭素数が４～１８であることがより好ましく、炭素数が６～１５であることが更に好ましい。このような不飽和結合を有する有機基としては、具体的には、プロペニル基、プロピニル基、ブテニル基、ブチニル基、オレイル基、フェニル基、ビニルフェニル基およびアルキルフェニル基等が挙げられる。中でも、ビニルフェニル基を有することがより好ましい。

[0046] また、上記一般式（１）および（２）において、Ｒは、それぞれ独立して、その一部にビニル基、アクリル基、メタクリル基、マレイン酸エステル基、マレイン酸アミド基、マレイン酸イミド基、１級アミノ基、２級アミノ基、チオール基、ヒドロシリル基、ヒドロホウ素基、フェノール性水酸基およびエポキシ基から選択されるいずれか１種以上を有することが好ましい。中でも、ビニル基やアクリル基、メタクリル基、２級アミノ基を有することがより好ましい。

[0047] 具体的には、有機ホスフィン類（Ａ）は、ｐ－スチリルジフェニルホスフィンを含むことが好ましい。このような化合物は、反応性の高いビニル基を

有する事で低ブリードアウトである点で好適である。

[0048] また、スルフィド系化合物（Ｂ）は、ビス（ヒドロキシフェニル）スルフィド、ビス（アクリロイルチオフェニル）スルフィド、２－メチルチオフェノチアジン、ビス（２－メタクリロイルチオエチル）スルフィドおよびビス（メタクリロイルチオフェニル）スルフィドの少なくとも１種を含むことが好ましく、ビス（アクリロイルチオフェニル）スルフィドおよびビス（メタクリロイルチオフェニル）スルフィドの少なくとも一方を含むことがより好ましい。これらの化合物は、反応性の高いフェノール性水酸基、アクリル基、メタクリル基を有することで低ブリードアウトである点で好適であり、中でも、アクリル基やメタクリル基を有する化合物が最も好適である。

[0049] また、有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）は、それぞれ単独で用いることもできるが、両方を組み合わせて用いてもよい。本実施形態に係る導電性接着フィルムが、有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）の両方を含むことにより、導電性接着フィルムの接着力を向上できる。

[0050] また、このような有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）は、前述の熱硬化性樹脂（Ｍ１）がマレイミド樹脂を含む場合に、マレイミド樹脂と共重合体を形成し得るため、熱硬化性樹脂成分としても作用する。また、有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）は、吸湿しにくく、分子量が十分に大きく、かつ重合性であるため、フラックス成分として用いた場合にブリードアウトを有効に防止できる。したがって、吸湿しやすいアルコールやカルボン酸に替えて、このような有機ホスフィン類（Ａ）やスルフィド系化合物（Ｂ）を用いることにより、フラックス洗浄を経なくても、ブリードアウトのリスクを低減でき、十分な信頼性、特に吸湿後の耐リフロー性を担保できる。

[0051] また、焼結時等のブリードアウトを抑制する点で、有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）の数平均分子量は、２６０以上であることが好ましい。また、有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（

Ｂ）の数平均分子量を２６０以上とすると共に、上述のようにマレイミド樹脂と反応させて硬化させることにより、ブリードアウトを更に低減できる。その結果、ブリードアウトによる基板（リードフレーム等）の表面汚染を防止でき、パッケージ信頼性を向上できる。

[0052] 本実施形態に係る導電性接着フィルムにおける有機ホスフィン類（Ａ）の含有量は、好ましくは０．５～１０．０質量％であり、より好ましくは１．０～５．０質量％である。上記範囲とすることにより、金属酸化膜の除去能が十分に発揮される。

[0053] 本実施形態に係る導電性接着フィルムにおけるスルフィド系化合物（Ｂ）の含有量は、好ましくは０．５～８．０質量％であり、より好ましくは１．０～４．０質量％である。上記範囲とすることにより、金属酸化膜の除去能が十分に発揮される。

[0054] なお、本実施形態に係る導電性接着フィルムが有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）を両方含有する場合には、その含有量の合計は、好ましくは０．５～１０．０質量％であり、より好ましくは１．０～５．０質量％である。

[0055] また、上記有機ホスフィン類（Ａ）およびスルフィド系化合物（Ｂ）は、それぞれ１種類で用いてもよいし、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0056] ［４］その他の成分

本実施形態に係る導電性接着フィルムは、上記成分の他に、本発明の目的を外れない範囲で、各種添加剤を含んでいてもよい。このような添加剤としては、必要に応じて適宜選択できるが、例えば、分散剤、ラジカル重合開始剤、レベリング剤、可塑剤等が挙げられる。

[0057] 本実施形態に係る導電性接着フィルムは、フィルム形状を有している。そのため、例えば、パワー半導体素子を基板に接続する際に、従来のはんだや導電ペーストよりも取り扱いが容易になる。具体的には、本実施形態に係る導電性接着フィルムは、パワー半導体が形成されたウェハの裏面に貼り付けて、ウェハを素子毎に分割・チップ化する際（ダイシング工程）に、ウェハ

ごと分割することが可能となる。そのため、素子（ウェハ）の裏面全体に、過不足なく導電性接着フィルムを形成できることから、従来のはんだの濡れ性やはみ出し等の問題を生じることなく、良好な実装が可能となる。また、予め所定の厚さに導電性接着フィルムを形成できるため、従来のはんだや導電ペーストに比べて、ダイボンド後の素子の高さ制御を精度よく、容易に行うことができる。

[0058] 本実施形態の導電性接着フィルムの作製方法は、特に限定されず、公知の方法により行うことができる。例えば、上記各成分を適量秤量し、公知の方法により混合して、さらに得られた混合物を、公知の方法により膜状に成形する方法等が挙げられる。このような混合方法としては、例えば、回転翼による撹拌混合、ホモジナイザーによる混合、プラネタリーミキサーによる混合およびニーダーによる混合等が挙げられる。また、成形方法としては、例えば、上記混合物を溶媒に溶解・分散させたワニスを基材上に塗布した後乾燥させる方法、導電性接着フィルムを高温下で溶融した後基材に塗布する溶融塗布法、導電性接着フィルムを基材とともに高圧にてプレスする方法、導電性接着フィルムを溶融した後押出し機を用いて押出した後に延伸する押出し法、上記ワニスをスクリーンメッシュ（スクリーン印刷）や金属版（グラビア印刷）に充填して転写する印刷法等が挙げられる。

[0059] 導電性接着フィルムの厚さは、５～１００μｍが好ましく、２０～５０μｍがより好ましい。導電性接着フィルムの厚さを上記範囲とすることにより、電気抵抗および熱抵抗を抑制しつつも、十分な接着力を得ることが可能となる。

[0060] また、本実施形態に係る導電性接着フィルムは、焼結後の状態で測定した１Ｈｚにおける貯蔵弾性率が、２０ＧＰａ以下である。貯蔵弾性率を上記範囲とすることにより、強固な接着力を発揮しつつ、適度な柔軟性を有し、冷熱衝撃試験（ＴＣＴ）にて評価される耐熱疲労性において、優れた性能を発揮することができる。また、貯蔵弾性率は、好ましくは１０００～２００００ＭＰａ、さらに好ましくは５０００～２００００ＭＰａである。なお、貯

蔵弾性率の測定方法は、後述する実施例の項で説明する。

[0061] 本実施形態に係る導電性接着フィルムは、窒素雰囲気下、２５０℃で２時間加熱したときの加熱重量減少率が、１％未満である。加熱重量減少率を上記範囲とすることにより、導電性接着フィルムを焼結した際に、主に樹脂が熱分解しないため、優れた低ブリードアウト性によって信頼性を確保できる。なお、加熱重量減少率の測定方法は、後述する実施例の項で説明する。

[0062] また、本実施形態に係る導電性接着フィルムは、ＤＳＣ（示差走査熱量測定）による分析を行った場合に、１００～２５０℃の温度範囲における吸熱ピークが、焼結を行う前の状態（未焼結状態）では少なくとも１つ観測され、かつ焼結を行った後の状態（焼結状態）では消失することが好ましい。

[0063] 未焼結状態で、上記温度範囲にて観測される少なくとも１つの吸熱ピークは、少なくとも１種の金属成分を含む金属または合金の融点を意味する。すなわち、未焼結の導電性接着フィルムを、上記温度範囲で加熱（焼結）する際に、特定の金属成分が溶融し、被着体表面にその成分が濡れ広がり、低温での実装に有利に働くことを示している。一方で、焼結状態では、上記温度範囲にて吸熱ピークは観測されないが、これは、上記温度範囲に少なくとも１種の金属成分を含む金属または合金の金属成分（または合金）の融点がないことを意味している。すなわち、一度溶融した金属が、金属間の拡散反応により、焼結後に高融点をもつ金属間化合物を形成し、その結果、優れた耐熱性を有することができることを示している。

[0064] このような導電性接着フィルムは、低温での焼結（実装）が可能でありながら、焼結後（実装後）は、優れた耐熱性を発揮し、高融点鉛フリーはんだでワイヤーボンドしたり、リフロー処理を施したりしても不具合を生じることがない。なお、上記導電性接着フィルムの耐熱温度は、好ましくは２５０℃以上、更に好ましくは３００℃以上である。また、上記導電性接着フィルムを用いて半導体チップ等を実装する際の好適な実装温度は、好ましくは１００～２５０℃であり、更に好ましくは１００～２００℃である。

[0065] なお、ＤＳＣの測定装置としては、例えば株式会社日立ハイテクサイエン

ス製　ＤＳＣ７０００Ｘ等が挙げられる。また、測定条件としては、測定温度範囲室温～３５０℃、昇温速度５℃／分、窒素流量２０ｍＬ／分、アルミニウム製サンプルパンで測定する。

[0066] また、本実施形態に係る導電性接着フィルムは、Ｂステージ状態において、６０℃で１Ｈｚにおける損失弾性率（Ｇ”）と貯蔵弾性率（Ｇ’）との比（Ｇ”／Ｇ’）で定義される損失正接（ｔａｎδ）が、１．４以上であることが好ましい。上記条件におけるｔａｎδが大きいほど、導電性接着フィルムが柔軟性に優れていることを示している。なお、損失弾性率（Ｇ”）、貯蔵弾性率（Ｇ’）およびｔａｎδの測定および算出方法は、後述する実施例の項で説明する。また、ここでＢステージ状態とは、ＤＳＣ測定における熱硬化性樹脂分に由来する硬化前発熱量の８０％以上を保持している状態を意味している。

[0067] 更に、本実施形態に係る導電性接着フィルムは、ダイシングテープと貼り合わせてダイシング・ダイボンディングフィルムとすることで、導電性接着フィルムとダイシングテープとを一度にウェハに貼合でき、工程を省略化できる。

[0068] 上記した実施態様について、図面に基づいて説明する。

図１は、本発明にかかるダイシング・ダイボンディングフィルム１０を示す断面図である。ダイシング・ダイボンディングフィルム１０は、主にダイシングテープ１２、導電性接着フィルム１３から構成されている。ダイシング・ダイボンディングフィルム１０は、半導体加工用テープの一例であり、使用工程や装置にあわせて予め所定形状に切断（プリカット）されていてもよいし、半導体ウェハ１枚分ごとに切断されていてもよいし、長尺のロール状を呈していてもよい。

[0069] ダイシングテープ１２は、支持基材１２ａと、その上に形成された粘着剤層１２ｂとから構成されている。

剥離処理ＰＥＴフィルム１１は、ダイシングテープ１２を覆っており、粘着剤層１２ｂや導電性接着フィルム１３を保護している。

[0070] 支持基材１２ａとしては、放射線透過性であることが好ましく、具体的には、通常、プラスチック、ゴムなどを用い、放射線を透過する限りにおいて特に制限されるものではない。

[0071] 粘着剤層１２ｂの粘着剤のベース樹脂組成物は、特に限定されるものではなく、通常の放射線硬化性粘着剤が用いられる。好ましくは水酸基などのイソシアネート基と反応しうる官能基を有するアクリル系粘着剤がある。特に制限されるものではないが、アクリル系粘着剤はヨウ素価が３０以下であり、放射線硬化性炭素－炭素二重結合構造を有するのが好ましい。

[0072] 本実施形態に係る導電性接着フィルム１３の構成としては、上述した通り、金属粒子（Ｑ）と、樹脂（Ｍ）と、所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくもとも一方とを含む導電性接着フィルムであることが、半導体パワー素子を金属リードフレームに接合する際、耐熱性と実装信頼性に優れ、かつ環境への負荷の小さい点で非常に好ましい。

[0073] （ダイシング・ダイボンディングフィルムの使用方法）

半導体装置の製造にあたり、本実施形態のダイシング・ダイボンディングフィルム１０を好適に使用することができる。

[0074] まず、ダイシング・ダイボンディングフィルム１０から剥離処理ＰＥＴフィルム１１を取り除き、図２に示す通り、半導体ウェハ１に導電性接着フィルム１３を貼り付けてダイシングテープ１２の側部をリングフレーム２０で固定する。リングフレーム２０はダイシング用フレームの一例である。導電性接着フィルム１３はダイシングテープ１２の半導体ウェハ１が貼合される部位に積層されている。ダイシングテープ１２のリングフレーム２０と接する部位には導電性接着フィルム１３はない。

[0075] その後、図３に示す通り、ダイシングテープ１２の下面を吸着ステージ２２で吸着・固定しながら、ダイシングブレード２１を用いて半導体ウェハ１を所定サイズにダイシングし、複数の半導体チップ２を製造する。

[0076] その後、図４に示す通り、リングフレーム２０によりダイシングテープ１

２を固定した状態で、テープ突き上げリング３０を上昇させ、ダイシングテープ１２の中央部を上方に撓ませるとともに、紫外線などの放射線をダイシングテープ１２に照射し、ダイシングテープ１２を構成する接着剤層１２ｂの粘着力を弱める。その後、半導体チップごとにこれに対応した位置で突き上げピン３１を上昇させ、半導体チップ２を吸着コレット３２によりピックアップする。

[0077] その後は、図５に示す通り、ピックアップした半導体チップ２を、リードフレーム４などの支持部材や他の半導体チップ２に接着（ダイボンディング工程）し、導電性接着フィルムを焼結させる。

[0078] その後、図６に示す通り、ＡｌワイヤＷの付設や樹脂モールド等の工程を経ることにより、半導体装置が得られる。

[0079] 以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の概念および特許請求の範囲に含まれるあらゆる態様を含み、本発明の範囲内で種々に改変することができる。

実施例

[0080] 以下、本発明を実施例に基づきさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

[0081] ＜原料＞

以下に、使用した原料の略称を示す。

［金属粒子（Ｑ）］

＜第１の金属粒子（Ｑ１）＞

・球状銅粉：三井金属鉱業株式会社製　ＭＡ－Ｃ０５Ｋ、平均粒子径（Ｄ５０）は５μｍである。

＜第２の金属粒子（Ｑ２）＞

・球状スズ粉：三井金属鉱業株式会社製　ＳＴ－３、平均粒子径（Ｄ５０）は７μｍである。

[0082] なお、上記金属粒子の平均粒子径（Ｄ５０）は、レーザー回折計（株式会社島津製作所製、ＳＡＬＤ－３１００）で測定した。

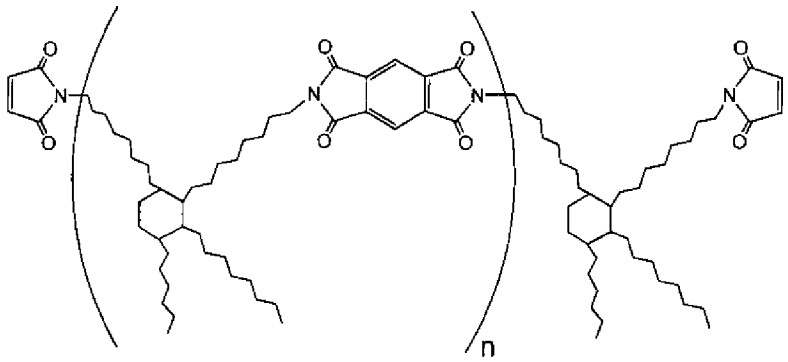
[0083] ［熱硬化性樹脂（Ｍ１）］

・マレイミド樹脂

ＢＭＩ－３０００および重合開始剤としてパーブチル（登録商標）Ｏを、質量比１００：５で混合した混合物。

ＢＭＩ－３０００：ＤＥＳＩＧＮＥＲ　ＭＯＬＥＣＵＬＥＳ　ＩＮＣ製、数平均分子量３０００、下記構造式（８）で表されるビスマレイミド樹脂。下記式（８）において、ｎは１～１０の整数である。なお、脂肪族アミンに由来する骨格は、炭素数３６である。

[化6]



・・・（８）

・フェノールノボラック樹脂

Ｈ－４：明和化成株式会社製。

・エポキシ樹脂１

ＹＤ－１２８、ＹＤ－０１３、ＹＰ－５０および２ＰＨＺを、質量比１５：５：１０：１で混合した混合物。

ＹＤ－１２８：新日鉄住金化学株式会社製、ビスフェノールＡ型液状エポキシ樹脂。

ＹＤ－０１３：新日鉄住金化学株式会社製、ビスフェノールＡ型固形エポキシ樹脂。（以下において同じ。）

ＹＰ－５０：新日鉄住金化学株式会社製、フェノキシ樹脂。（以下において同じ。）

２ＰＨＺ：四国化成工業株式会社製、２－フェニル－４，５－ジヒドロキシメチルイミダゾール。（以下において同じ。）

・エポキシ樹脂２

ＥＰ４０００Ｌ、ＹＤ－０１３、ＹＰ－５０および２ＰＨＺを、質量比２０：５：５：１で混合した混合物。

ＥＰ４０００Ｌ：株式会社ＡＤＥＫＡ製、プロピレングリコール変性型エポキシ樹脂。

・フェノールノボラック樹脂

Ｈ－４：明和化成株式会社製。

[0084] ［フラックス］

・有機ホスフィン類

ＤＰＰＳＴ（登録商標）：北興化学工業株式会社製、ジフェニルホスフィノスチレン。

・スルフィド系化合物１

東京化成工業株式会社製、ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルフィド

・スルフィド系化合物２

住友精化株式会社製、ビス（４－メタクリロイルチオフェニル）スルフィド

[0085] ・テトラエチレングリコール：東京化成工業株式会社製

・アビエチン酸：東京化成工業株式会社製

[0086] ［ダイシングテープ］

・乾燥後の粘着剤組成物の厚さが５μｍとなるように、支持基材上に粘着剤組成物を塗工し、１２０℃で３分間乾燥させて得た。

粘着剤組成物：ｎ－オクチルアクリレート（大阪有機化学工業株式会社製）、２－ヒドロキシエチルアクリレート（大阪有機化学工業株式会社製）、メタクリル酸（東京化成工業株式会社製）および重合開始剤としてベンゾイルペルオキシド（東京化成工業株式会社製）を、質量比２００：１０：５：２で混合した混合物を、適量のトルエン中に分散し、反応温度および反応時間を調整し、官能基を持つアクリル樹脂の溶液を得た。次に、このアクリル樹脂溶液１００質量部に対し、ポリイソシアネートとしてコロネートＬ（東

ソー株式会社製）を２質量部追加し、さらに追加溶媒として適量のトルエンを加えて攪拌し、粘着剤組成物を得た。

支持基材：低密度ポリエチレンよりなる樹脂ビーズ（日本ポリエチレン株式会社製　ノバテックＬＬ）を１４０℃で溶融し、押し出し機を用いて、厚さ１００μｍの長尺フィルム状に成形して得た。

[0087] ＜導電性接着フィルムの作製＞

（実施例１）

実施例１では、上記材料のうち表１に示す材料を、金属粒子（Ｑ）９１．５質量％、樹脂（Ｍ）５．５質量％およびフラックス３質量％の比率となるように混合物を調製し、これに溶剤としてトルエンを加えてスラリー化し、プラネタリーミキサーにて撹拌後、離型処理されたＰＥＴフィルム上に薄く塗布して、１２０℃で２分間乾燥し、厚さ４０μｍの導電性接着フィルムを得た。なお、ここで用いた金属粒子（Ｑ）は、第１金属粒子（Ｑ１）としての球状銅粉のみからなる。

[0088] （実施例２）

実施例２では、金属粒子（Ｑ）１００質量％中に、第１金属粒子（Ｑ１）として球状銅粉が６０質量％、第２金属粒子（Ｑ２）として球状スズ粉が４０質量％の比率となるように、金属粒子（Ｑ）を調整した以外は、実施例１と同様の方法にて、導電性接着フィルムを得た。

[0089] （実施例３）

実施例３では、樹脂（Ｍ）としてマレイミド樹脂を、フラックスとして有機ホスフィン類をそれぞれ用い、金属粒子（Ｑ）１００質量％中に、第１金属粒子（Ｑ１）として球状銅粉が６０質量％、第２金属粒子（Ｑ２）として球状スズ粉が４０質量％の比率となるように、金属粒子（Ｑ）を調整した以外は、実施例１と同様の方法にて、導電性接着フィルムを得た。

[0090] （実施例４）

実施例４では、フラックスとしてスルフィド系化合物２を用いた以外は、実施例３と同様の方法にて、導電性接着フィルムを得た。

[0091]（実施例５）

実施例５では、有機ホスフィン類が２５質量％およびスルフィド系化合物２が７５質量％の比率となるよう調製されたフラックスを用いた以外は、実施例４と同様の方法にて、導電性接着フィルムを得た。

[0092]（実施例６）

実施例６では、マレイミド樹脂３が９５質量％およびフェノールノボラック樹脂が５質量％の比率となるように調製された樹脂（Ｍ）を用いた以外は、実施例５と同様の方法にて、導電性接着フィルムを得た。

[0093]（比較例１および２）

比較例１および２では、上記材料のうち表１に示す材料を、金属粒子（Ｑ）８５質量％、樹脂（Ｍ）８質量％、およびフラックス７質量％の比率となるように混合物を調製した以外は、実施例１と同様の方法にて、導電性接着フィルムを得た。

[0094]（比較例３）

比較例３では、上記材料のうち表１に示す材料を用いた以外は、実施例１と同様の方法にて、導電性接着フィルムを作製した。しかし、乾燥後の塗膜は、極めて脆く、硬い固体状のもので、粘接着性もなく、導電性接着フィルムとして用いることはできなかった。

[0095]＜ダイシング・ダイボンディングフィルムの作製＞

上記のようにして得られた、上記実施例および比較例に係る導電性接着フィルムを、ダイシングテープと貼り合わせて、ダイシング・ダイボンディングフィルム（導電性接着フィルム／粘着剤組成物／支持基材）を得た。

[0096]＜評価＞

上記のようにして得られた、上記実施例および比較例に係る、導電性接着フィルムおよびダイシング・ダイボンディングフィルムを用いて、下記に示す特性評価を行った。各特性の評価条件は下記の通りである。結果を表１に示す。

[0097]［貯蔵弾性率（柔軟性）］

上記本実施例および比較例に係る導電性接着フィルムをテフロン（登録商標）シート上で、窒素雰囲気下、２５０℃で、２時間加熱して焼結させた後、５ｍｍ×３０ｍｍの短冊状に切断して測定用サンプルを得た。次に、この測定用サンプルについて、動的粘弾性測定装置ＤＭＡ（株式会社ユービーエム製Ｅ４０００）を用いて、周波数１Ｈｚ、ひずみ量０．３％のせん断条件で、室温における貯蔵弾性率を測定した。

[0098] ［加熱重量減少率（安定性）］

上記本実施例および比較例に係る導電性接着フィルムを示差熱・熱重量測定計ＴＧ－ＤＴＡ（株式会社島津製作所製　ＤＴＧ６０）を用いて、窒素雰囲気下、２５０℃で、２時間加熱したときの加熱重量減少率を測定した。

[0099] ［ＰＫＧ剥離の有無（耐吸湿性）］

上記本実施例および比較例に係るダイシング・ダイボンディングフィルムを、裏面がＡｕメッキされたＳｉウェハの表面に１００℃で貼合した後、５ｍｍ角にダイシングして、個片化したチップ（Ａｕメッキ／Ｓｉウエハ／導電性接着フィルム）を得た。このチップを、Ａｇメッキされた金属リードフレーム上に、１４０℃でダイボンディングした後、２３０℃で３時間焼結し、チップを覆うようにエポキシ系のモールド樹脂（京セラケミカル株式会社製、ＫＥ－Ｇ３００）にて封止して、測定用サンプルを得た。

得られた測定用サンプルについて、ＪＥＤＥＣ　Ｊ－ＳＴＤ－０２０Ｄ１に定める吸湿後リフロー試験（鉛フリーはんだ準拠）のＭＳＬ－Ｌｖ１および２を下記の条件で、それぞれ行った。その後、超音波画像装置（株式会社日立パワーソリューション製、ＦｉｎｅＳＡＴ）にて内部に剥離が生じていないかを観察した。本実施例では、少なくともＭＳＬ－Ｌｖ２でＰＫＧ剥離がない場合を合格とした。

（吸湿条件）

・ＭＳＬ－Ｌｖ１は、８５℃、８５％ＲＨにて１６８時間である。

・ＭＳＬ－Ｌｖ２は、８５℃、６０％ＲＨにて１６８時間である。

（リフロー　等級温度）

・ＭＳＬ－Ｌｖ１および２は、いずれも２６０℃である。

[0100] ［せん断接着力（接着性・耐熱性）］

上記本実施例および比較例に係るダイシング・ダイボンディングフィルムを、裏面がＡｕメッキされたＳｉウェハの表面に１００℃で貼合した後、５ｍｍ角にダイシングして、個片化したチップ（Ａｕメッキ／Ｓｉウエハ／導電性接着フィルム）を得た。このチップを、Ａｇメッキされた金属リードフレーム上に、１４０℃でダイボンディングした後、２３０℃で３時間焼結して、測定用サンプルを得た。

得られた測定用サンプルについて、冷熱衝撃試験（以下、「ＴＣＴ」という。）の前後における、導電性接着フィルムのせん断接着力を測定した。

（ＴＣＴ前の接着力）

得られた測定サンプルについて、ダイシェアー測定機（ノードソン・アドバンスト・テクノロジー株式会社製　万能型ボンドテスタ　シリーズ４０００）を用い、ボンドテスタの引っ掻きツールを上記測定サンプルの半導体チップの側面に１００μｍ／ｓで衝突させて、チップ／リードフレーム接合が破壊した際の応力を、２６０℃におけるせん断接着力として測定した。本実施例では、ＴＣＴ前のせん断接着力は、３ＭＰａ以上を合格レベルとした。

（ＴＣＴ後の接着力）

次に、冷熱衝撃試験（ＴＣＴ）として、得られた測定用サンプルを、－４０～＋１５０℃の温度範囲で２００サイクル処理し、この処理後のサンプルについて、上記ＴＣＴ前の接着力と同様の方法でせん断接着力を測定した。本実施例では、ＴＣＴ後のせん断接着力は、１ＭＰａ以上を合格レベルとした。

[0101] ［体積抵抗率（導電性）］

上記本実施例および比較例に係る導電性接着フィルムをテフロン（登録商標）シート上に載せて、２３０℃で３時間焼結し、測定用サンプルを得た。次に、この測定用サンプルについて、ＪＩＳ－Ｋ７１９４－１９９４に準拠して、四探針法により抵抗値を測定し、体積抵抗率を算出した。抵抗値の測

定には、株式会社三菱化学アナリテック製ロレスターＧＸを用いた。なお、体積抵抗率は、その逆数が導電率であり、体積抵抗率は小さいほど導電性に優れていることを意味している。本実施例では、体積抵抗率が、１０００μΩ・ｃｍ以下を合格ラインとした。

[0102] ［ｔａｎδ（柔軟性）］

上記１２０℃、２分間の乾燥工程により、Ｂステージ状態まで半硬化している本実施例および比較例に係る導電性接着フィルムを、厚さ１ｍｍまで熱圧着して積層し、プレート径８ｍｍΦの測定用サンプルを得た。次に、この測定用サンプルについて、動的粘弾性測定装置ＡＲＥＳ（レオロジカ社製）を用いて、周波数１Ｈｚ、ひずみ量０．３％のせん断条件で、６０℃における損失正接（ｔａｎδ）を測定した。

[0103]

[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		比較例1	比較例2	比較例3
接着フィルム構成成分	金属粒子(Q)	第1の金属粒子(Q1)	球状銅粉	球状銅粉	60%	球状銅粉	60%	球状銅粉	60%	球状銅粉	60%	球状銅粉	60%	球状銅粉	球状銅粉	球状銅粉
		第2の金属粒子(Q2)	-	球状ｽｽﾞ粉	40%	球状ｽｽﾞ粉	40%	球状ｽｽﾞ粉	40%	球状ｽｽﾞ粉	40%	球状ｽｽﾞ粉	40%	-	-	-
	樹脂(M)		エポキシ樹脂2	エポキシ樹脂2		マレイミド樹脂		マレイミド樹脂		マレイミド樹脂		マレイミド樹脂 フェノールポラック樹脂	95% 5%	エポキシ樹脂1	エポキシ樹脂1	エポキシ樹脂1
	フラックス		スルフィド系化合物1	スルフィド系化合物1		有機ホスフィン類		スルフィド系化合物2		有機ホスフィン類 スルフィド系化合物2	25% 75%	有機ホスフィン類 スルフィド系化合物2	25% 75%	**テトラエチレングリコール**	**アビエチン酸**	**アビエチン酸**
評価結果	貯蔵弾性率 [GPa]		5	19		9		11		11		18		**21**	**25**	**24hr以上に成形不可**
	加熱重量減少率 [%]		<1	<1		<1		<1		<1		<1		**2**	**3**	
	PKG剥離	MSL－Lv.2後	なし	なし		なし		なし		なし		なし		**あり**	**あり**	
		MSL－Lv.1後	あり	あり		なし		なし		なし		なし		あり	あり	
	せん断接着力 [MPa]	TCT前	9	14		15		18		19		24		4	3	
		TCT後	8	9		17		23		23		25		**0**	**0**	
	体積抵抗率 [μΩ・cm]		600	200		40		100		40		50		300	700	
	tanδ		1.4	1.3		2.0		2.3		2.1		2.4		10.0	10.1	

※表中、下線太字は、本発明の適正範囲外のもの、評価結果が本実施例における合格レベルに達していないものを示している。また、「%」は「質量%」を示している。

[0104] 上記結果から、実施例１～６に係る導電性接着フィルムは、金属粒子（Q

）と、樹脂（Ｍ）と、所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくもとも一方とを含み、焼結後の状態で測定した１Ｈｚにおける貯蔵弾性率が、２０ＧＰａ以下であり、窒素雰囲気下、２５０℃で２時間加熱したときの加熱重量減少率が、１％未満であるため、接合・焼結後の耐熱性と実装信頼性を併せ持つ、従来技術にない顕著な効果を奏することが確認された。

[0105] 一方、比較例１および２に係る導電性接着フィルムは、本発明で特定している所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）のいずれも含んでいないため、本発明に係る実施例１～６と比較して、接合・焼結後の耐熱性および実装信頼性のいずれもが劣っていた。具体的には、比較例１および２では、耐吸湿試験において、ＭＳＬ－Ｌｖ２でもＰＫＧ剥離が生じており、特に耐吸湿性が劣ることが確認された。また、ＴＣＴ後については、せん断接着力が著しく低下しており、耐熱衝撃性にも劣ることが確認された。

[0106] なお、比較例１は、体積抵抗率が実施例１よりも低く、一見すると導電性に優れているように見える。しかし、比較例１は、ＭＳＬ－Ｌｖ２の耐吸湿試験で既に剥離が生じており、この状態では抵抗値は無限大となるため、実用的な観点からは導電性に優れているとはいえない。また、比較例１は、ＴＣＴ後の接着力も著しく劣っている。

すなわち、実用性の観点からは、実施例１のように、それ自体の導電率が多少低くても、耐熱性および耐吸湿性に優れ、安定した導通が図れる、実装信頼性の高い導電性接着フィルムの方が望ましいと言える。

[0107] また、比較例３で作製した金属粒子（Ｑ）、樹脂（Ｍ）およびフラックスの混合物は、実施例１と同じ配合比率であるが、比較例３は、本発明で特定している所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）のいずれも含んでいないため、混合物がまとまらず、シート化できなかった。すなわち、本発明で特定している所定の有機ホスフィン類（Ａ）および所定のスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくとも一方を含有することにより

、金属粒子（Ｑ）の含有量を高めた場合であっても、良好なシート化が可能となることが確認された（実施例１～６）。

符号の説明

[0108] １：半導体ウェハ

１ａ：裏面Ａｕメッキ層

２：半導体チップ

４：金属リードフレーム

４ａ：Ａｇメッキ層

５：モールド樹脂

６：Ａｌワイヤ

１０：ダイシング・ダイボンディングフィルム

１１：剥離処理ＰＥＴフィルム

１２：ダイシングテープ

１２ａ：支持基材

１２ｂ：粘着剤層

１３：導電性接着フィルム

２０：リングフレーム

２１：ダイシングブレード

２２：吸着ステージ

３０：テープ突き上げリング

３１：突き上げピン

３２：吸着コレット

請求の範囲

[請求項1] 金属粒子（Ｑ）と、樹脂（Ｍ）と、下記一般式（１）で示される有機ホスフィン類（Ａ）および下記一般式（２）で示されるスルフィド系化合物（Ｂ）の少なくとも一方とを含み、

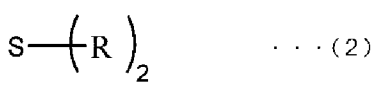
焼結後の状態で測定した１Ｈｚにおける貯蔵弾性率が、２０ＧＰａ以下であり、

窒素雰囲気下、２５０℃で２時間加熱したときの加熱重量減少率が、１％未満である、導電性接着フィルム。

[化1]



・・・（１）



・・・（２）

ただし、上記一般式（１）および（２）においてＲは、それぞれ独立して、有機基を示し、Ｒはいずれも互いに同一であっても異なっていてもよい。

[請求項2] 前記一般式（１）および（２）のそれぞれにおいて、Ｒの少なくとも１つは、アリール基である、請求項１に記載の導電性接着フィルム。

[請求項3] 前記一般式（１）および（２）において、Ｒは、それぞれ独立して、その一部にビニル基、アクリル基、メタクリル基、マレイン酸エステル基、マレイン酸アミド基、マレイン酸イミド基、１級アミノ基、２級アミノ基、チオール基、ヒドロシリル基、ヒドロホウ素基、フェノール性水酸基およびエポキシ基から選択されるいずれか１種以上を有する、請求項１または２に記載の導電性接着フィルム。

[請求項4] 前記有機ホスフィン類（Ａ）は、ｐ－スチリルジフェニルホスフィン含む、請求項１～３のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

[請求項5] 前記スルフィド系化合物（Ｂ）は、ビス（アクリロイルチオフェニ

ル）スルフィドおよびビス（メタクリロイルチオフェニル）スルフィドの少なくとも一方を含む、請求項１～４のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

[請求項6] Ｂステージ状態において、６０℃で１Ｈｚにおける損失弾性率（Ｇ’’）と貯蔵弾性率（Ｇ’）との比（Ｇ’’／Ｇ’）で定義される損失正接（ｔａｎδ）が、１．４以上である、請求項１～５のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

[請求項7] 前記樹脂（Ｍ）は、熱硬化性樹脂（Ｍ１）を含み、

前記金属粒子（Ｑ）が、銅、ニッケル、アルミニウムおよびスズの群から選択される１種の金属またはこれらの群から選択される２種以上を含有する合金からなる第１の金属粒子（Ｑ１）を含む、請求項１～６のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

[請求項8] 前記熱硬化性樹脂（Ｍ１）は、イミド基を１分子中に２単位以上有するマレイン酸イミド化合物を含む、請求項７に記載の導電性接着フィルム。

[請求項9] 前記熱硬化性樹脂（Ｍ１）は、脂肪族ジオールのグリシジルエーテルに由来する分子骨格を有するエポキシ樹脂を含む、請求項７に記載の導電性接着フィルム。

[請求項10] 前記熱硬化性樹脂（Ｍ１）が、フェノールノボラック樹脂をさらに含む、請求項８または９に記載の導電性接着フィルム。

[請求項11] 前記金属粒子（Ｑ）が、前記第１の金属粒子（Ｑ１）と、該第１の金属粒子（Ｑ１）とは異なる金属成分系の第２の金属粒子（Ｑ２）とを含む混合物であり、

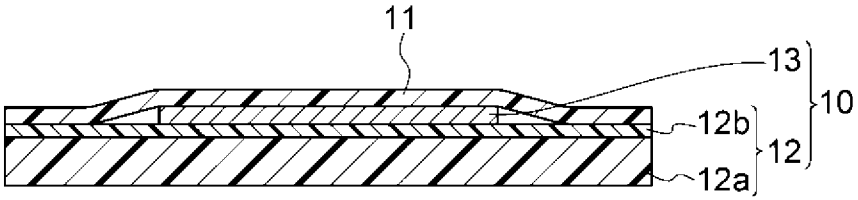
前記第１の金属粒子（Ｑ１）および前記第２の金属粒子（Ｑ２）が、互いに、金属間化合物を形成し得る金属成分を含む、請求項７～１０のいずれか１項に記載の導電性接着フィルム。

[請求項12] 前記第２の金属粒子（Ｑ２）が、銅、ニッケル、アルミニウム、スズ、亜鉛、チタン、銀、金、インジウム、ビスマス、ガリウムおよび

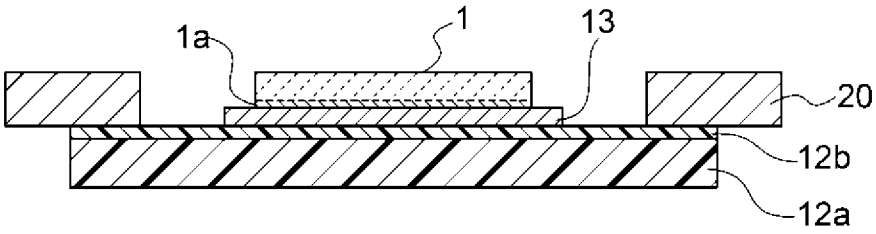
パラジウムの群から選択される１種の金属またはこれらの群から選択される２種以上を含有する合金からなる、請求項１１に記載の導電性接着フィルム。

[請求項13] 請求項１～１２のいずれか１項に記載の導電性接着フィルムと、ダイシングテープとを貼り合せてなる、ダイシング・ダイボンディングフィルム。

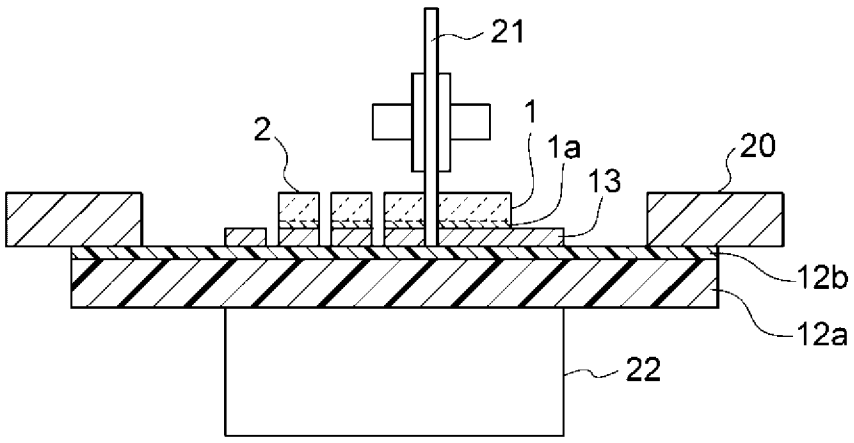
[図1]



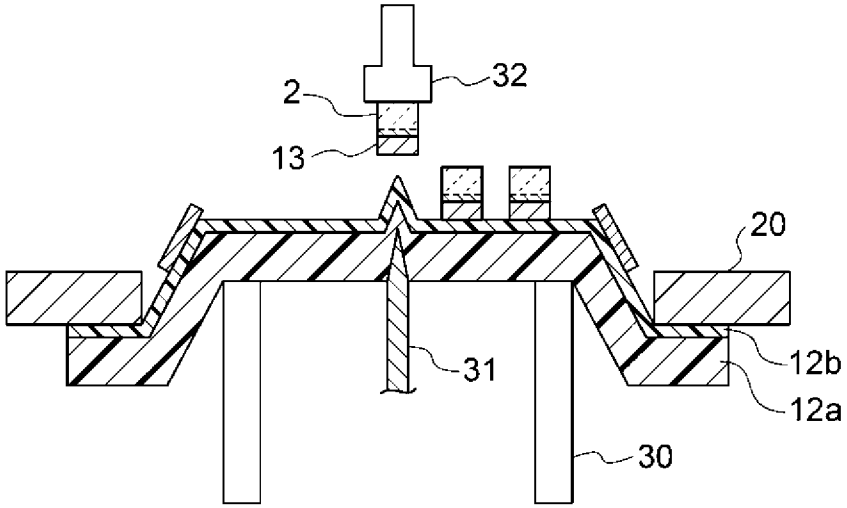
[図2]



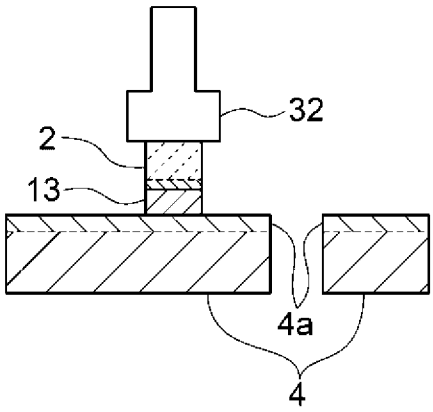
[図3]



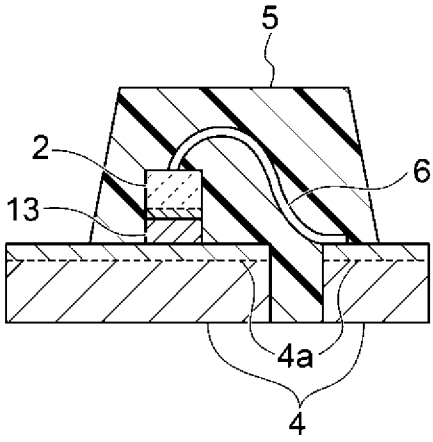
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/087661

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C09J7/00(2006.01)i, *C09J11/04*(2006.01)i, *C09J11/06*(2006.01)i, *C09J157/12*(2006.01)i, *C09J163/02*(2006.01)i, *C09J201/00*(2006.01)i, *H01B1/22*(2006.01)i, *H01L21/301*(2006.01)i, *H01L21/60*(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)
C09J1/00-201/10, H01B1/00, 1/20-1/24, H01L21/301, H01L21/60, B23K35/363

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2017 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2017

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.
Y A	JP 2003-211289 A (Fujitsu Ltd.), 29 July 2003 (29.07.2003), claims; paragraphs [0018] to [0019], [0025] to [0027], [0035], [0043]; fig. 4 to 5 (Family: none)	1-3,6-7,9-13 4-5,8
Y	JP 60-115622 A (Toshiba Corp.), 22 June 1985 (22.06.1985), claims; page 3, upper right column, line 18 to lower left column, line 18 (Family: none)	1-3,6-7,9-13

☒ 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
21 February 2017 (21.02.17)	07 March 2017 (07.03.17)
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/JP2016/087661

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2008-144141 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 26 June 2008 (26.06.2008), claims; paragraphs [0041] to [0047]; table 1 & US 2008/0113184 A1 claim 1; example 1; table 1 & KR 10-2008-0044175 A & CN 101200623 A & TW 200844205 A	1-3,6-7,9-13
Y	JP 2010-221260 A (Mitsubishi Materials Corp.), 07 October 2010 (07.10.2010), claims; paragraphs [0051] to [0052], [0079] (Family: none)	1-3,6-7,9-13
Y	JP 2005-276925 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 06 October 2005 (06.10.2005), claims; paragraphs [0048] to [0050] (Family: none)	13
A	JP 2015-193725 A (Tamura Corp.), 05 November 2015 (05.11.2015), claims; paragraph [0042] (Family: none)	1-13
A	JP 2015-516499 A (Henkel IP & Holding GmbH), 11 June 2015 (11.06.2015), claims; paragraph [0010] & US 2013/0306916 A1 claims 1, 8; paragraph [0009] & WO 2013/172993 A1 & EP 2850146 A1 & TW 201402771 A & CN 104302724 A & KR 10-2015-0018786 A	1-13

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０８７６６１

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09J7/00(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, C09J157/12(2006.01)i, C09J163/02(2006.01)i, C09J201/00(2006.01)i, H01B1/22(2006.01)i, H01L21/301(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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09J1/00-201/10, H01B1/00,1/20-1/24, H01L21/301, H01L21/60, B23K35/363

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	１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１７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
Y	JP 2003-211289 A (富士通株式会社) 2003.07.29, 特許請求の範囲、【0018】-【0019】【0025】-【0027】【0035】 【0043】、図 4-5 (ファミリーなし)	1-3, 6-7, 9-13
A		4-5, 8
Y	JP 60-115622 A (株式会社東芝) 1985.06.22, 特許請求の範囲、第 3 頁右上欄第 18 行-同頁左下欄第 18 行 (ファミリーなし)	1-3, 6-7, 9-13

☑　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 ２１．０２．２０１７	国際調査報告の発送日 ０７．０３．２０１７
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）　４Ｚ　９１５８ 澤村　茂実 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８０

様式ＰＣＴ／ＩＳＡ／２１０（第２ページ）（２０１５年１月）

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
Y	JP 2008-144141 A (信越化学工業株式会社) 2008.06.26, 特許請求の範囲、【0041】-【0047】、表１ & US 2008/0113184 A1 Claim 1、Example 1、TABLE 1 & KR 10-2008-0044175 A　& CN 101200623 A　& TW 200844205 A	1-3,6-7,9-13
Y	JP 2010-221260 A (三菱マテリアル株式会社) 2010.10.07, 特許請求の範囲、【0051】-【0052】【0079】 (ファミリーなし)	1-3,6-7,9-13
Y	JP 2005-276925 A (住友ベークライト株式会社) 2005.10.06, 特許請求の範囲、【0048】-【0050】 (ファミリーなし)	13
A	JP 2015-193725 A (株式会社タムラ製作所) 2015.11.05, 特許請求の範囲、【0042】 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 2015-516499 A (ヘンケル　アイピー　アンド　ホールディング　ゲゼルシャフト　ミット　ベシュレンクテル　ハフツング) 2015.06.11, 特許請求の範囲 、【0010】 & US 2013/0306916 A1 Claim 1,8、[0009] & WO 2013/172993 A1　& EP 2850146 A1　& TW 201402771 A & CN 104302724 A　& KR 10-2015-0018786 A	1-13