

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges
Eigentum

Internationales Büro

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum
30. Dezember 2015 (30.12.2015)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2015/197281 A1

(51) Internationale Patentklassifikation:

B22F 1/00 (2006.01) *B23K 35/365* (2006.01)
B22F 7/04 (2006.01) *B23K 35/02* (2006.01)
B23K 35/34 (2006.01) *H01L 23/00* (2006.01)
B23K 35/36 (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2015/061567

(22) Internationales Anmeldedatum:
26. Mai 2015 (26.05.2015)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
14174684.2 27. Juni 2014 (27.06.2014) EP

(71) Anmelder: **HERAEUS DEUTSCHLAND GMBH & CO. KG** [DE/DE]; Herausstr. 12-14, 63450 Hanau (DE).

(72) Erfinder: **SCHÄFER, Michael**; Am Luhnfeld 42, 36093 Künzell (DE). **SCHMITT, Wolfgang**; Berliner Straße 6 d, 63110 Rodgau (DE).

(74) Anwalt: **HERAEUS IP**; HERAEUS HOLDING GmbH, Herausstr. 12 - 14, 63450 Hanau (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL,

AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), europäisches (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).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)

(54) Title: METAL PREPARATION AND THE USE OF SAME FOR CONNECTING COMPONENTS

(54) Bezeichnung : METALLZUBEREITUNG UND DEREN VERWENDUNG ZUM VERBINDEN VON BAU-ELEMENTEN

(57) Abstract: The invention relates to a metal preparation that comprises: (A) 40 to < 80 wt.% of at least one metal, present in the form of particles that have a coating containing at least one organic compound, and (B) > 20 to 50 wt.% of an organic solvent.

(57) Zusammenfassung: Metallzubereitung, die (A) 40 bis < 80 Gew.-% wenigstens eines Metalls, das in Form von Partikeln vorliegt, die ein Coating aufweisen, das wenigstens eine organische Verbindung enthält, und (B) > 20 bis 50 Gew.-% organisches Lösemittel umfasst.



WO 2015/197281 A1

Metallzubereitung und deren Verwendung zum Verbinden von Bauelementen

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Metallzubereitung und ein Verfahren zum Verbinden von Bauelementen, bei dem diese Metallzubereitung eingesetzt wird.

5

Im Bereich der Leistungs- und Konsumerelektronik stellt das Verbinden von Bauelementen, wie LEDs oder sehr dünnen Siliziumchips, die eine hohe Druck- und Temperaturempfindlichkeit aufweisen, eine besondere Herausforderung dar.

10 Aus diesem Grund werden solche druck- und temperaturempfindlichen Bauelemente häufig durch Kleben miteinander verbunden. Die Klebetechnik besitzt jedoch den Nachteil, dass damit Kontaktstellen zwischen den Bauelementen geschaffen werden, die eine nur unzureichende Wärmeleitfähigkeit bzw. elektrische Leitfähigkeit aufweisen.

15 Um dieses Problem zu lösen, werden die zu verbindenden Bauelemente häufig gesintert. Die Sintertechnik stellt ein sehr einfaches Verfahren zum stabilen Verbinden von Bauelementen dar. Dabei werden sogenannte Sinterpasten eingesetzt und durch Druckverfahren wie Schablonendruck oder Siebdruck oder durch Dispensen appliziert.

20 Das Arbeiten mit herkömmlichen Metallsinterpasten stößt an Grenzen, sobald Bauelemente mit problematischer Oberflächenbeschaffenheit mittels Sinterverfahren verbunden werden sollen. Im Rahmen der Erfindung sind unter Bauelementen mit problematischer Oberflächenbeschaffenheit insbesondere solche zu verstehen, die eine nichtebene und/oder saugende und/oder offenporige Oberfläche und/oder eine komplizierte
25 Oberflächentopographie aufweisen.

Im Rahmen der Erfindung sind unter Bauelementen mit komplizierter Oberflächentopographie insbesondere solche zu verstehen, die eine Vertiefungen (Kavitäten) und/oder Wölbungen und/oder Krümmungen und/oder Sicken aufweisende und/oder raue Oberfläche aufweisen.
30

Aufgabe der Erfindung ist die Bereitstellung eines Sinterverfahrens zur stabilen Verbindung von Bauelementen, insbesondere auch solcher Bauelemente mit einer problematischen Oberflächenbeschaffenheit. Mit dem Verfahren sollen Kontaktstellen zwischen zu verbindenden Bauelementen gebildet werden, die eine niedrige Porosität und eine hohe elektrische und thermische Leitfähigkeit aufweisen. Eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung besteht darin, eine zur Durchführung eines derartigen Sinterverfahrens geeignete Metallzubereitung bereitzustellen.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Verbinden von Bauelementen, bei dem man (a) eine Sandwichanordnung bereitstellt, die wenigstens (a1) ein Bauelement 1, (a2) ein Bauelement 2 und (a3) ein Sintermittel aufweist, das sich zwischen Bauelement 1 und Bauelement 2 befindet, und (b) die Sandwichanordnung sintert, dadurch gekennzeichnet, dass das Sintermittel aus einer Metallzubereitung, die (A) 40 bis < 80 Gew.-% (Gewichts-%) wenigstens eines Metalls, das in Form von Partikeln vorliegt, die ein Coating aufweisen, das wenigstens eine organische Verbindung enthält, und (B) > 20 bis 50 Gew.-% organisches Lösemittel umfasst, durch Sprühauftrag appliziert worden ist.

Die Erfindung betrifft ferner eine Metallzubereitung, die (A) 40 bis < 80 Gew.-% wenigstens eines Metalls, das in Form von Partikeln vorliegt, die ein Coating aufweisen, das wenigstens eine organische Verbindung enthält, und (B) > 20 bis 50 Gew.-% organisches Lösemittel umfasst.

Die erfindungsgemäße Metallzubereitung enthält 40 bis < 80 Gew.-%, vorzugsweise 50 bis < 80 Gew.-%, mehr bevorzugt 60 bis 75 Gew.-% wenigstens eines Metalls, das in Form von Partikeln vorliegt, die ein Coating aufweisen, das wenigstens eine organische Verbindung enthält. Die hier gemachten Gewichtsangaben schließen das Gewicht der Coatingverbindungen auf den Partikeln mit ein.

Unter den Begriff Metall fallen sowohl reine Metalle als auch Metalllegierungen.

Im Rahmen der Erfindung bezieht sich der Begriff Metall auf Elemente, die im Periodensystem der Elemente in der selben Periode wie Bor, aber links von Bor, in der selben Periode wie Silizium, aber links von Silizium, in der selben Periode wie Germanium, aber links von Germanium, und in der selben Periode wie Antimon, aber links von Antimon stehen, sowie auf alle Elemente, die eine höhere Ordnungszahl als 55 aufweisen.

Als reine Metalle werden im Rahmen der Erfindung Metalle verstanden, die ein Metall mit einer Reinheit von wenigstens 95 Gew.-%, bevorzugt wenigstens 98 Gew.-%, mehr bevorzugt wenigstens 99 Gew.-% und noch mehr bevorzugt wenigstens 99,9 Gew.-% enthalten.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform handelt es sich bei dem Metall um Kupfer, Silber, Gold, Nickel, Palladium, Platin oder Aluminium, insbesondere Silber.

Als Metalllegierungen werden metallische Gemische aus wenigstens zwei Komponenten verstanden, von denen wenigstens eine ein Metall ist.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform wird als Metalllegierung eine Legierung eingesetzt, die Kupfer, Aluminium, Nickel und/oder Edelmetalle enthält. Die Metalllegierung umfasst vorzugsweise wenigstens ein Metall, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Kupfer, Silber, Gold, Nickel, Palladium, Platin und Aluminium besteht. Besonders bevorzugte Metalllegierungen enthalten wenigstens zwei Metalle, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus Kupfer, Silber, Gold, Nickel, Palladium, Platin und Aluminium besteht. Es kann ferner bevorzugt sein, dass der Anteil der Metalle, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus Kupfer, Silber, Gold, Nickel, Palladium, Platin und Aluminium besteht, an der Metalllegierung wenigstens 90 Gew.-%, vorzugsweise wenigstens 95 Gew.-%, mehr bevorzugt wenigstens 99 Gew.-% und noch mehr bevorzugt 100 Gew.-% beträgt. Bei der Legierung kann es sich beispielsweise um eine Legierung handeln, die Kupfer und Silber, Kupfer, Silber und Gold, Kupfer und Gold, Silber und Gold, Silber und Palladium, Platin und Palladium oder Nickel und Palladium enthält.

In der erfindungsgemäßen Metallzubereitung können als Metall ein reines Metall, mehrere Arten von reinen Metallen, eine Art von Metalllegierung, mehrere Arten von Metalllegierungen oder Mischungen davon enthalten sein.

5 Das Metall liegt in der Metallzubereitung in Form von Partikeln vor.

Die Metallpartikel können von unterschiedlicher Gestalt sein. Beispielsweise können die Metallpartikel in der Form von Flakes oder einer sphärischen (kugeligen) Form vorliegen. Gemäß einer besonders bevorzugten Ausführungsform weisen die Metallpartikel die Form von Flakes auf. Dies schließt jedoch nicht aus, dass von den eingesetzten Metallpartikeln auch ein untergeordneter Anteil eine andere Form aufweisen kann. Es ist jedoch bevorzugt, dass wenigstens 70 Gew.-%, mehr bevorzugt wenigstens 80 Gew.-%, noch mehr bevorzugt wenigstens 90 Gew.-% oder 100 Gew.-% der Partikel in der Form von Flakes vorliegen.

15 Die Metallpartikel sind gecoatet.

Unter einem Coating von Partikeln wird eine festhaftende Schicht auf der Oberfläche von Partikeln verstanden.

20 Das Coating der Metallpartikel enthält wenigstens eine Art von Coatingverbindungen.

Bei diesen Coatingverbindungen handelt es sich um organische Verbindungen.

25 Bei den organischen Verbindungen, die als Coatingverbindungen dienen, handelt es sich um kohlenstoffhaltige Verbindungen, die eine Agglomeration der Metallpartikel verhindern.

30 Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform tragen die Coatingverbindungen wenigstens eine funktionelle Gruppe. Als funktionelle Gruppen kommen insbesondere Carbonsäuregruppen, Carboxylatgruppen, Estergruppen, Ketogruppen, Aldehydgruppen, Aminogruppen, Amidgruppen, Azogruppen, Imidgruppen oder Nitrilgruppen in Betracht.

Bevorzugte funktionelle Gruppen sind Carbonsäuregruppen und Carbonsäureestergruppen. Die Carbonsäuregruppe kann deprotoniert sein.

5 Bei den Coatingverbindungen mit wenigstens einer funktionellen Gruppe handelt es sich vorzugsweise um gesättigte, einfach ungesättigte oder mehrfach ungesättigte organische Verbindungen.

Diese Coatingverbindungen mit wenigstens einer funktionellen Gruppe können ferner verzweigt oder unverzweigt sein.

10

Die Coatingverbindungen mit wenigstens einer funktionellen Gruppe weisen vorzugsweise 1 bis 50, mehr bevorzugt 2 bis 24, noch mehr bevorzugt 6 bis 24 und noch mehr bevorzugt 8 bis 20 Kohlenstoffatome auf.

15 Die Coatingverbindungen können ionisch oder nichtionisch sein.

Vorzugsweise kommen als Coatingverbindungen freie Fettsäuren, Fettsäuresalze oder Fettsäureester zum Einsatz.

20 Die freien Fettsäuren, Fettsäuresalze und Fettsäureester sind vorzugsweise unverzweigt.

Ferner sind die freien Fettsäuren, Fettsäuresalze oder Fettsäureester vorzugsweise gesättigt.

25

Bevorzugte Fettsäuresalze sind die Salze von Ammonium, Monoalkylammonium, Dialkylammonium, Trialkylammonium, Aluminium, Kupfer, Lithium, Natrium und Kalium.

30 Bevorzugte Ester sind Alkylester, insbesondere Methylester, Ethylester, Propylester und Butylester.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform handelt es sich bei den freien Fettsäuren, Fettsäuresalzen oder Fettsäureestern um Verbindungen mit 8 bis 24, mehr bevorzugt 10 bis 24 und noch mehr bevorzugt 12 bis 18 Kohlenstoffatomen.

- 5 Bevorzugte Coatingverbindungen sind Caprylsäure (Octansäure), Caprinsäure (Decansäure), Laurinsäure (Dodecansäure), Myristinsäure (Tetradecansäure), Palmitinsäure (Hexadecansäure), Margarinsäure (Heptadecansäure), Stearinsäure (Octadecansäure), Arachinsäure (Eicosansäure/Icosansäure), Behensäure (Docosansäure), Lignocerin-
säure (Tetracosansäure) sowie die entsprechenden Ester und Salze.

10

Besonders bevorzugte Coatingverbindungen sind Dodecansäure, Octadecansäure, Aluminiumstearat, Kupferstearat, Natriumstearat, Kaliumstearat, Natriumpalmitat und Kaliumpalmitat.

- 15 Die Coatingverbindungen können mittels herkömmlicher und aus dem Stand der Technik bekannter Verfahren auf die Oberfläche der Metallpartikel aufgetragen werden.

Beispielsweise ist es möglich, die Coatingverbindungen, insbesondere die vorstehend erwähnten Stearate oder Palmitate, in Lösemitteln aufzuschlämmen und die aufgeschlammten Coatingverbindungen in Kugelmøhlen mit den Metallpartikeln zu vermahlen. Nach dem Mahlen werden die mit den Coatingverbindungen beschichteten Metallpartikel getrocknet und anschließend entstaubt.

20

Vorzugsweise beträgt der Anteil an organischen Verbindungen, insbesondere der Anteil
25 an Verbindungen, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus freien Fettsäuren, Fettsäuresalzen und Fettsäureestern besteht, die vorzugsweise 8 bis 24, mehr bevorzugt 10 bis 24 und noch mehr bevorzugt 12 bis 18 Kohlenstoffatome aufweisen, an dem gesamten Coating wenigstens 60 Gew.-%, mehr bevorzugt wenigstens 70 Gew.-%, noch mehr bevorzugt wenigstens 80 Gew.-%, noch mehr bevorzugt wenigstens 90 Gew.-%,
30 insbesondere wenigstens 95 Gew.-%, wenigstens 99 Gew.-% oder 100 Gew.-%.

Üblicherweise beträgt der Anteil der Coatingverbindungen, vorzugsweise der Coatingverbindungen, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus freien Fettsäuren, Fettsäuresalzen und Fettsäureestern mit 8 bis 24, mehr bevorzugt 10 bis 24 und noch mehr bevorzugt 12 bis 18 Kohlenstoffatomen besteht, 0,01 bis 2 Gew.-%, vorzugsweise 0,3 bis 1,5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der gecoateten Metallpartikel.

Der Coatinggrad, der als Verhältnis der Masse an Coatingverbindungen zur Oberfläche der Metallpartikel definiert ist, beträgt vorzugsweise 0,00005 bis 0,03 g, mehr bevorzugt 0,0001 bis 0,02 g an Coatingverbindungen pro Quadratmeter (m²) Oberfläche der Metallpartikel.

Die erfindungsgemäße Metallzubereitung enthält > 20 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 25 bis 40 Gew.-% organisches Lösemittel (B), d.h. ein organisches Lösemittel oder ein Gemisch mindestens zweier organischer Lösemittel.

Bei dem oder den organischen Lösemitteln handelt es sich um als Bestandteile von dem Fachmann bekannten und eingangs schon erwähnten Metallsinterpasten üblicherweise verwendete organische Lösemittel. Beispiele sind Terpeneole, N-Methyl-2-pyrrolidon, Ethylenglykol, Dimethylacetamid, 1-Tridecanol, 2-Tridecanol, 3-Tridecanol, 4-Tridecanol, 5-Tridecanol, 6-Tridecanol, Isotridecanol, mit Ausnahme einer Methylsubstitution am vorletzten C-Atom unsubstituierte 1-Hydroxy-C16-C20-alkane wie 16-Methylheptadecan-1-ol, dibasische Ester (vorzugsweise Dimethylester der Glutar-, Adipin- oder Bernsteinsäure oder Mischungen davon), Glycerin, Diethylenglykol, Triethylenglykol und aliphatische, insbesondere gesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffe mit 5 bis 32 C-Atomen, mehr bevorzugt 10 bis 15 C-Atomen und noch mehr bevorzugt 10 bis 13 C-Atomen. Solche aliphatischen Kohlenwasserstoffe werden beispielsweise von Exxon Mobil unter der Marke Exxsol™ oder unter der Marke Isopar M™ vertrieben.

Die erfindungsgemäße Metallzubereitung kann 0 bis 12 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 12 Gew.-%, mehr bevorzugt 1 bis 10 Gew.-% und noch mehr bevorzugt 2 bis 8 Gew.-% wenigstens eines Metallprecursors (C) enthalten.

Unter Metallprecursor wird im Rahmen der Erfindung eine Verbindung verstanden, die wenigstens ein Metall enthält und unter Freisetzung des Metalls zersetzbar ist. Vorzugsweise handelt es sich dabei um eine Verbindung, die sich bei Temperaturen von unterhalb 200°C unter Freisetzung des Metalls zersetzt. Vorzugsweise wird demnach bei Verwendung eines Metallprecursors beim Sinterprozess in situ ein Metall gebildet. Es kann auf einfache Weise ermittelt werden, ob es sich bei einer Verbindung um einen Metallprecursor handelt. So kann beispielsweise eine Zubereitung, die eine zu testende Verbindung enthält, auf ein Substrat mit einer Silberoberfläche abgeschieden, auf 200°C erhitzt und bei dieser Temperatur für 20 Minuten belassen werden. Danach wird überprüft, ob sich unter diesen Bedingungen die zu testende Verbindung zu einem Metall zersetzt hat. Hierzu kann beispielsweise vor dem Test der Gehalt der metallhaltigen Zubereitungsbestandteile ausgewogen und daraus die theoretische Masse des Metalls berechnet werden. Nach dem Test wird die Masse des auf dem Substrat abgeschiedenen Materials gravimetrisch bestimmt. Entspricht die Masse des auf dem Substrat abgeschiedenen Materials der theoretischen Masse des Metalls, wobei die üblichen Messabweichungen zu berücksichtigen sind, handelt es sich bei der getesteten Verbindung um einen Metallprecursor.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform handelt es sich bei dem Metallprecursor um einen endotherm zersetzbaren Metallprecursor. Unter endotherm zersetzbarem Metallprecursor soll ein Metallprecursor verstanden werden, dessen thermische Zersetzung, vorzugsweise unter Schutzgasatmosphäre, einen endothermen Vorgang darstellt. Bei dieser thermischen Zersetzung soll es zur Freisetzung von Metall aus dem Metallprecursor kommen.

Gemäß einer weiteren bevorzugten Ausführungsform weist der Metallprecursor ein Metall auf, das auch im partikelförmigen Metall (A) enthalten ist.

Vorzugsweise umfasst der Metallprecursor als Metall wenigstens ein Element, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Kupfer, Silber, Gold, Nickel, Palladium und Platin besteht.

Es kann bevorzugt sein, als Metallprecursor zersetzbare Carbonate, Lactate, Formiate, Citrate, Oxide oder Fettsäuresalze, vorzugsweise Fettsäuresalze mit 6 bis 24 Kohlenstoffatomen, der genannten Metalle zu verwenden.

5 In besonderen Ausführungsformen werden als Metallprecursor Silbercarbonat, Silber(I)lactat, Silber(II)-formiat, Silbercitrat, Silberoxid (zum Beispiel AgO oder Ag_2O), Kupfer(II)-lactat, Kupferstearat, Kupferoxide (zum Beispiel Cu_2O oder CuO) oder Goldoxide (zum Beispiel Au_2O oder AuO) eingesetzt.

10 Gemäß einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird als Metallprecursor Silbercarbonat, Silber(I)-oxid oder Silber(II)-oxid verwendet.

Falls vorhanden, liegt der Metallprecursor in der Metallzubereitung vorzugsweise in der Form von Partikeln vor.

15

Die Metallprecursor-Partikel können die Form von Flakes oder eine sphärische (kugelige) Form aufweisen. Vorzugsweise liegen die Partikel des Metallprecursors als Flakes vor.

20 Die erfindungsgemäße Metallzubereitung kann ferner 0 bis 10 Gew.-%, vorzugsweise 0 bis 8 Gew.-% wenigstens eines Sinterhilfsmittels (D) enthalten. Beispiele für Sinterhilfsmittel sind organische Peroxide, anorganische Peroxide und anorganische Säuren, wie beispielsweise in WO2011/026623 A1 beschrieben.

25 Die erfindungsgemäße Metallzubereitung kann neben den vorstehend erläuterten Bestandteilen (A) bis (D) 0 bis 15 Gew.-%, vorzugsweise 0 bis 12 Gew.-%, mehr bevorzugt 0,1 bis 10 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer Inhaltsstoffe (E) enthalten. Bei diesen weiteren Inhaltsstoffen kann es sich vorzugsweise um üblicherweise in Metallsinterpasten eingesetzte Inhaltsstoffe handeln. Beispielsweise können in der erfindungsgemäßen Metallzubereitung als weitere Inhaltsstoffe Dispersionsmittel, Tenside,

30 Entschäumer, Bindemittel, Polymere wie Cellulosederivate, beispielsweise Methylcellulose, Ethylcellulose, Ethylmethylcellulose, Carboxycellulose, Hydroxypropylcellulose,

Hydroxyethylcellulose, Hydroxymethylcellulose, und/oder viskositätssteuernde Mittel enthalten sein.

5 Demgemäß enthält die erfindungsgemäße Metallzubereitung neben den Bestandteilen (A) und (B) 0 bis 12 Gew.-% wenigstens eines Metallprecursors (C), 0 bis 10 Gew.-% wenigstens eines Sinterhilfsmittels (D) und 0 bis 15 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer Inhaltsstoffe (E) ausgewählt unter Dispersionsmitteln, Tensiden, Entschäumern, Bindemitteln, Polymeren und/oder viskositätssteuernden Mitteln. In einer Ausführungsform besteht die erfindungsgemäße Metallzubereitung aus den Bestandteilen (A) und
10 (B) sowie 0 bis 12 Gew.-% wenigstens eines Metallprecursors (C), 0 bis 10 Gew.-% wenigstens eines Sinterhilfsmittels (D) und 0 bis 15 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer Inhaltsstoffe (E) ausgewählt unter Dispersionsmitteln, Tensiden, Entschäumern, Bindemitteln, Polymeren und/oder viskositätssteuernden Mitteln.

15 Die Summe der Gew.-% der Bestandteile (A) bis (E) kann beispielsweise 100 Gew.-% betragen, bezogen auf die erfindungsgemäße Metallzubereitung, d.h. vor ihrer Sprühapplikation. Dementsprechend kann die Herstellung der erfindungsgemäßen Metallzubereitung durch Vermischen der Bestandteile (A) bis (E) erfolgen. Dabei können übliche dem Fachmann bekannte Vorrichtungen verwendet werden, beispielsweise Rührwerke.
20 Alternativ können die Bestandteile (A), ein Teil von (B) und (C) bis (E) vermischt werden unter Verwendung beispielsweise von Rührwerken und/oder Dreiwalzwerken, gefolgt von einer Komplettierung durch Vermischen mit dem verbliebenen Anteil von (B).

Die erfindungsgemäße Metallzubereitung weist eine Viskosität auf, die eine Sprühapplikation erlaubt. Beispielsweise liegt die Viskosität in einem Bereich von 1 bis 3 Pa·s, bevorzugt 1,2 bis 2 Pa·s, gemessen nach DIN 53018 (bei 23 °C, CSR-Messung bei einer Scherrate von $D = 10 \text{ s}^{-1}$). Die erfindungsgemäße Metallzubereitung kann zur Herstellung eines Sintermittels, insbesondere in Form einer Schicht eines Sintermittels, durch
25 Sprühauftrag und damit in einem Sinterverfahren eingesetzt werden. Unter Sintern wird
30 das Verbinden von zwei oder mehr Bauelementen durch Erhitzen unter Vermeidung dessen, dass die Metallpartikel (A) die flüssige Phase erreichen, verstanden.

Dementsprechend betrifft die vorliegende Erfindung, wie schon gesagt, ein Verfahren zum Verbinden von Bauelementen, bei dem man (a) eine Sandwichanordnung bereitstellt, die wenigstens (a1) ein Bauelement 1, (a2) ein Bauelement 2 und (a3) ein Sintermittel aufweist, das sich zwischen den Bauelementen (zwischen den Kontaktflächen bildenden Oberflächen bzw. Oberflächenanteilen der Bauelemente) befindet, und (b) die Sandwichanordnung sintert, dadurch gekennzeichnet, dass das Sintermittel aus einer Metallzubereitung, die (A) 40 bis < 80 Gew.-% wenigstens eines Metalls, das in Form von Partikeln vorliegt, die ein Coating aufweisen, das wenigstens eine organische Verbindung enthält, und (B) > 20 bis 50 Gew.-% organisches Lösemittel umfasst, durch Sprühauftrag appliziert worden ist.

Das erfindungsgemäße Verfahren umfasst demgemäß die Schritte:

- (i) Bereitstellen wenigstens zweier Bauelemente 1 und 2,
- (ii) Sprühapplizieren der erfindungsgemäßen Metallzubereitung auf eine eine Kontaktfläche bildende Oberfläche oder Oberflächenanteil wenigstens eines der Bauelemente unter Bildung des Sintermittels,
- (iii) Ausbilden der besagten Sandwichanordnung durch Verbinden der Bauelemente über das Sintermittel, und
- (iv) Sintern der Sandwichanordnung.

Das unter Verwendung des aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung durch Sprühauftrag hergestellten Sintermittels, insbesondere als Schicht vorliegenden Sintermittels, durchgeführte Sinterverfahren kann unter Druckanwendung oder drucklos durchgeführt werden. Drucklose Durchführbarkeit des Sinterverfahrens bedeutet, dass trotz Verzichts auf die Anwendung von mechanischem Druck eine hinreichend feste Verbindung zwischen den Bauelementen erzielt wird. Die Möglichkeit, den Sinterprozess drucklos durchzuführen, erlaubt es, druckempfindliche, beispielsweise zerbrechliche oder in ihrem Gefüge mechanisch empfindliche Bauelemente im Sinterverfahren einzusetzen. In ihrem Gefüge mechanisch empfindliche Elektronikbauelemente erleiden bei unzulässiger Druckbelastung elektrische Fehlfunktionen.

Unter dem Verbinden von wenigstens zwei Bauelementen wird das Befestigen eines ersten Bauelements auf einem zweiten Bauelement verstanden. In diesem Zusammenhang bedeutet „auf“ lediglich, dass eine Kontaktfläche des ersten Bauelements mit einer Kontaktfläche des zweiten Bauelements verbunden wird, wobei es auf die relative Lage der beiden Bauelemente oder der Sandwichanordnung, die die wenigstens zwei Bauelemente enthält, nicht ankommt.

Im Rahmen der Erfindung soll der Begriff Bauelement vorzugsweise Einzelteile umfassen. Diese Einzelteile sind vorzugsweise nicht weiter zerlegbar.

Gemäß besonderen Ausführungsformen werden als Bauelemente Bauteile bezeichnet, die in der Elektronik verwendet werden.

Demgemäß kann es sich bei den Bauelementen beispielsweise um Dioden, LEDs (light emitting diodes, lichtemittierende Dioden), DCB (direct copper bonded)-Substrate, Leadframes, MIDs (molded interconnect devices), Dies, IGBTs (insulated-gate bipolar transistors, Bipolartransistoren mit isolierter Gate-Elektrode), ICs (integrated circuits, integrierte Schaltungen), Sensoren, Verbindungselemente (z.B. Clips), Kühlkörper (vorzugsweise Aluminium-Kühlkörper oder Kupfer-Kühlkörper) oder andere passive Bauelemente (zum Beispiel Widerstände, Kondensatoren oder Spulen) handeln.

Die zu verbindenden Bauelemente können gleichartige oder verschiedenartige Bauelemente sein.

Ein besonderer Vorteil der vorliegenden Erfindung liegt darin, dass die Bauelemente nicht zwingend eine ebene Oberfläche oder, präziser ausgedrückt, nicht zwingend eine ebene Kontaktfläche aufweisen müssen, über die die Sandwichanordnung ausgebildet bzw. die Sinterverbindung zwischen den Bauelementen vorgenommen wird. Vielmehr eröffnet die vorliegende Erfindung die Möglichkeit, auch Bauelemente mit problematischer Oberflächenbeschaffenheit über ihre nichtebenen und/oder saugenden und/oder offenporigen und/oder komplizierte Oberflächentopographie aufweisenden Oberflächen

bzw. Oberflächenanteile mit anderen Bauelementen zu besagten Sandwichanordnungen zusammenzufügen bzw. per Sinterverfahren zu verbinden.

Ausführungsformen der Erfindung betreffen die Verbindung von LED mit Leadframe, von LED mit keramischem Substrat, von Dies, Dioden, IGBTs oder ICs mit Leadframes, keramischen Substraten oder DCB-Substraten, von Sensor mit Leadframe oder keramischem Substrat. Die Verbindung kann beispielsweise zwischen Aluminium-, Kupfer- oder Silberkontaktflächen der Bauelemente mit Aluminium-, Kupfer- oder Silberkontaktflächen der Substrate erfolgen, d.h. es kann zur Ausbildung beispielsweise einer Aluminium-Kupfer-, Aluminium-Silber-, Aluminium-Aluminium-, Kupfer-Silber-, Kupfer-Kupfer- oder Silber-Silber-Verbindung kommen.

Wie im vorhergehenden Absatz schon beschrieben, können die Bauelemente - soweit sie nicht ohnehin aus Metall bestehen - wenigstens eine Metallisierungsschicht umfassen. Diese Metallisierungsschicht ist vorzugsweise Teil des Bauelements. Die Metallisierungsschicht befindet sich vorzugsweise an wenigstens einer Oberfläche des Bauelements.

Die Verbindung der Bauelemente wird mittels des aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung durch Sprühauftrag hergestellten Sintermittels bevorzugt über besagte Metallisierungsschicht bzw. -schichten vorgenommen.

Die Metallisierungsschicht kann reines Metall aufweisen. So kann es bevorzugt sein, wenn die Metallisierungsschicht wenigstens 50 Gew.-%, mehr bevorzugt wenigstens 70 Gew.-%, noch mehr bevorzugt wenigstens 90 Gew.-% oder aber 100 Gew.-% an reinem Metall aufweist. Das reine Metall ist beispielsweise aus der Gruppe ausgewählt, die aus Aluminium, Kupfer, Silber, Gold, Palladium und Platin besteht.

Andererseits kann die Metallisierungsschicht auch eine Legierung aufweisen. Die Legierung der Metallisierungsschicht enthält vorzugsweise wenigstens ein Metall, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Aluminium, Silber, Kupfer, Gold, Nickel, Palladium und Platin besteht.

Die Metallisierungsschicht kann auch einen mehrlagigen Aufbau aufweisen. So kann es beispielsweise bevorzugt sein, wenn wenigstens eine Oberfläche der zu verbindenden Bauelemente eine Metallisierungsschicht aus mehreren Lagen umfasst, die die vorstehend genannten reinen Metalle und/oder Legierungen aufweisen.

Im erfindungsgemäßen Verfahren werden wenigstens zwei Bauelemente durch Sintern miteinander verbunden.

10 Dazu werden zunächst die zwei oder mehr Bauelemente miteinander in Kontakt gebracht. Das Kontaktieren erfolgt dabei über das aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung durch Sprühauftrag applizierte Sintermittel. Zu diesem Zweck wird eine Sandwichanordnung bereitgestellt, bei der sich zwischen jeweils zwei der wenigstens zwei Bauelemente aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung hergestelltes, d.h.

15 durch Sprühauftrag appliziertes Sintermittel befindet. Mit anderen Worten, die erfindungsgemäße Metallzubereitung wird zwecks Herstellung des Sintermittels, oder präziser ausgedrückt, zwecks Herstellung einer Schicht des Sintermittels, auf wenigstens eines der wenigstens zwei Bauelemente bzw. auf eine Kontaktfläche eines der wenigstens zwei Bauelemente durch Sprühauftrag aufgebracht.

20 Sollen daher zwei Bauelemente, Bauelement 1 und Bauelement 2, miteinander verbunden werden, so befindet sich das aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung hergestellte, d.h. durch Sprühauftrag applizierte Sintermittel vor dem eigentlichen Sintern zwischen Bauelement 1 und Bauelement 2 bzw. zwischen Kontaktflächen der beiden Bauelemente. Andererseits ist es denkbar, dass mehr als zwei Bauelemente miteinander

25 verbunden werden. Beispielsweise können drei Bauelemente, Bauelement 1, Bauelement 2 und Bauelement 3, auf eine Weise miteinander verbunden werden, dass Bauelement 2 zwischen Bauelement 1 und Bauelement 3 liegt. In diesem Fall befindet sich das durch Sprühauftrag aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung hergestellte Sintermittel sowohl zwischen Bauelement 1 und Bauelement 2 als auch zwischen Bauelement 2 und Bauelement 3.

30

Die einzelnen Bauelemente liegen in einer Sandwichanordnung vor und werden miteinander verbunden. Unter Sandwichanordnung ist eine Anordnung zu verstehen, bei der sich zwei Bauelemente übereinander befinden, wobei die Bauelemente beispielsweise parallel zueinander angeordnet sein können.

5

Die Sandwichanordnung aus wenigstens zwei Bauelementen und dazwischen befindlichem Sintermittel kann hergestellt werden, indem zunächst eine Kontaktfläche in Form wenigstens eines Anteils einer Oberfläche, beispielsweise einer nichtebenen und/oder saugenden und/oder offenporigen und/oder komplizierte Oberflächentopographie aufweisenden Oberfläche, eines Bauelements 1 durch Sprühauftrag der erfindungsgemäßen Metallzubereitung mit dem Sintermittel bzw. mit einer Schicht des Sintermittels versehen wird. Dabei kann es zweckmäßig sein, das betreffende Bauelement bzw. dessen mit dem Sintermittel zu versehende Kontaktfläche vor und/oder während des Sprühauftrags zu erwärmen, beispielsweise auf eine Temperatur oberhalb Raumtemperatur bis 150 °C, bevorzugt 80 bis 120 °C. Damit kann eine Entfernung oder Verdunstung organischen Lösemittels aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung schon während des Sprühauftrags unterstützt werden. Im Anschluß an die Sprühbeschichtung des Bauelements 1 sowie einen gegebenenfalls durchgeführten, in der weiteren Folge noch beschriebenen Trocknungsschritt kann das andere Bauelement 2 mit seiner Kontaktfläche auf die wie zuvor beschrieben gebildete Sintermittelschicht unter Ausbildung der Sandwichanordnung aufgesetzt werden. Dabei kann die Kontaktfläche des Bauelements 2 unbeschichtet sein oder eine in analoger Weise wie beim Bauelement 1 gebildete Sintermittelschicht aufweisen.

25 In der vorliegenden Beschreibung und den Ansprüchen wird der Begriff „Sprühauftrag“ im Zusammenhang mit der Applikation der erfindungsgemäßen Metallzubereitung zwecks Herstellung des Sintermittels bzw. einer Schicht des Sintermittels benutzt. Sprühauftrag bedeutet dabei ein berührungsloses, unter Zerstäubung der erfindungsgemäßen Metallzubereitung erfolgendes Auftragsverfahren wie Inkjetauftrag, pneumatisches Sprühen oder Airless-Sprühen. Beim Inkjetauftrag können als Sprühorgane im 30 Inkjetdruck übliche Druckvorrichtungen verwendet werden.

Beim pneumatischen und beim Airless-Sprühen können in der Beschichtungstechnologie übliche Sprühorgane verwendet werden, beispielsweise Spritzpistolen. Der Sprühauftrag kann manuell oder mittels eines Beschichtungsautomaten oder -roboters erfolgen. Der Beschichtungsvorgang kann in einem oder in mehrmals wiederholten Schritten erfolgen. Ein in mehrmals wiederholten Schritten durchgeführter Sprühauftrag stellt eine Möglichkeit dar, die Schichtdicke der Sintermittelschicht nach Wunsch auszubilden. Beim Beschichtungsvorgang können Stellen des oder der Bauelemente, die nicht beschichtet werden sollen, in geeigneter Weise abgedeckt werden, beispielsweise durch Abkleben oder Abdecken mit Schablonen.

10

Wie gesagt, im Anschluss an den Sprühauftrag der erfindungsgemäßen Metallzubereitung wird die mit dem Sintermittel versehene Oberfläche bzw. Kontaktfläche des einen Bauelements mit einer Oberfläche bzw. Kontaktfläche des damit zu verbindenden Bauelements über das Sintermittel in Kontakt gebracht. Somit befindet sich zwischen zu verbindenden Bauelementen eine Schicht des aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung per Sprühauftrag applizierten Sintermittels.

15

Die Nassschichtdicke des Sintermittels zwischen zu verbindenden Bauelementen liegt vorzugsweise im Bereich von 10 bis 100 μm , bevorzugt 20 bis 40 μm . Unter Nassschichtdicke wird der Abstand zwischen den einander gegenüberliegenden Oberflächen bzw. Kontaktflächen der zu verbindenden Bauelemente vor einem gegebenenfalls stattfindenden Trocknen und vor dem Sintern verstanden. Über die Häufigkeit der Beschichtungsschritte und/oder die Durchflußrate (pro Zeiteinheit sprühappliziertes Volumen an erfindungsgemäßer Metallzubereitung) und/oder die Bewegungsgeschwindigkeit des oder der eingesetzten Sprühorgane kann die Nassschichtdicke der Sintermittelschicht nach Wunsch eingestellt werden.

20

25

Während des Sprühauftrags der erfindungsgemäßen Metallzubereitung werden Tröpfchen gebildet, die auf ihrem Weg vom Sprühorgan zur zu beschichtenden Bauelementoberfläche organisches Lösemittel in die Umgebungsluft abgeben. Mit anderen Worten, beim Auftreffen auf die zu beschichtende Bauelementoberfläche hat der Anteil an organischem Lösemittel abgenommen, beispielsweise um 30 bis 70 %, bezogen auf den

30

ursprünglichen Anteil an organischem Lösemittel in der erfindungsgemäßen Metallzubereitung, d.h. zur Sprühapplikation bereiten Metallzubereitung. Beispielsweise liegt der Gehalt an organischem Lösemittel im unmittelbar zuvor aus der erfindungsgemäßen Metallzubereitung sprühapplizierten Sintermittel bei 10 bis 20 Gew.-%.

5

Vor dem Sintern kann, wie schon gesagt, ein Trocknungsschritt durchgeführt werden, d.h. eine Entfernung von organischem Lösemittel aus dem Sintermittel. Gemäß einer Ausführungsform liegt der Anteil an organischem Lösemittel in dem Sintermittel nach einer solchen Trocknung beispielsweise bei 0 bis 5 Gew.-%, bezogen auf den ursprünglichen Anteil an organischem Lösemittel in der erfindungsgemäßen Metallzubereitung. Mit anderen Worten, gemäß dieser Ausführungsform werden beispielsweise 95 bis 100 Gew.-% des oder der ursprünglich in der erfindungsgemäßen Metallzubereitung enthaltenen organischen Lösemittel bei einer solchen Trocknung entfernt.

10

15 Findet ein Trocknen statt, so kann die Trocknung im Falle des drucklosen Sinterns nach der Herstellung der Sandwichanordnung, also nach der Kontaktierung der zu verbindenden Bauelemente erfolgen. Im Falle des Drucksinterns kann die Trocknung auch nach dem Sprühauftrag der erfindungsgemäßen Metallzubereitung auf die wenigstens eine Oberfläche des Bauelements und vor der Kontaktierung mit dem zu verbindenden Bauelement erfolgen.

20

Die Trocknungstemperatur liegt vorzugsweise im Bereich von 50 bis 150 °C (Objekttemperatur).

25 Es versteht sich, dass die Trocknungszeit abhängig ist von der Zusammensetzung der erfindungsgemäßen Metallzubereitung bzw. der daraus durch Sprühauftrag hergestellten Schicht aus Sintermittel und der Größe der Verbindungsfläche der zu sinternden Sandwichanordnung. Die Trocknungszeiten liegen im Bereich von beispielsweise 5 bis 45 Minuten.

30

Die Sandwichanordnung aus den wenigstens zwei Bauelementen und dem dazwischen befindlichen Sintermittel wird schließlich einem Sinterprozess unterworfen.

Das eigentliche Sintern erfolgt bei einer Temperatur von beispielsweise 200 bis 250 °C entweder als druckloser Prozess oder als Drucksintern.

- 5 Beim Drucksintern liegt der Prozessdruck vorzugsweise unter 40 MPa und mehr bevorzugt unter 5 MPa. Beispielsweise liegt der Prozessdruck im Bereich von 1 bis 30 MPa und mehr bevorzugt im Bereich von 1 bis 5 MPa.

Die Sinterzeit liegt beispielsweise im Bereich von 2 bis 60 Minuten, beim Drucksintern
10 beispielsweise im Bereich von 2 bis 5 Minuten, beim Drucklossintern beispielsweise im Bereich von 30 bis 60 Minuten.

Der Sinterprozess kann in einer Atmosphäre erfolgen, die keinen besonderen Beschränkungen unterliegt. So kann das Sintern einerseits in einer Atmosphäre durchgeführt werden, die Sauerstoff enthält. Andererseits ist es auch möglich, das Sintern in sauerstofffreier Atmosphäre durchzuführen. Unter sauerstofffreier Atmosphäre ist im
15 Rahmen der Erfindung eine Atmosphäre zu verstehen, deren Sauerstoffgehalt nicht mehr als 10 ppm, vorzugsweise nicht mehr als 1 ppm und noch mehr bevorzugt nicht mehr als 0,1 ppm beträgt.

20 Das Sintern wird in einer herkömmlichen, zum Sintern geeigneten Vorrichtung durchgeführt, in der sich die vorstehend beschriebenen Prozessparameter einstellen lassen.

Es konnte festgestellt werden, dass die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren bzw.
25 unter Verwendung der erfindungsgemäßen Metallzubereitung geschaffenen Sinterverbindungen innerhalb als auch zur Bauelementkontaktfläche hin keine oder in nur geringem Maße Hohlräume aufweisen, was der Haftung, Festigkeit und Wärmeleitfähigkeit der Sinterverbindung zuträglich ist. Ferner hat sich gezeigt, dass das erfindungsgemäße Verfahren zu einer weitgehend horizontalen, d.h. parallel zur beschichteten Oberfläche
30 orientierten Ausrichtung von Metallflakes innerhalb der Sintermittelschicht führt.

Es wird angenommen, dass letzteres Verhalten der Metallflakes das Risiko der Beschädigung oder Zerstörung von druckempfindlichen, beispielsweise zerbrechlichen oder in ihrem Gefüge mechanisch empfindlichen Bauelementen beim Sintern mindert.

- 5 Die Erfindung wird im Folgenden anhand von Beispielen erläutert, die jedoch nicht als einschränkend verstanden werden sollen.

Beispiele

1. Herstellung erfindungsgemäßer Metallzubereitungen:

- 10 Zunächst wurden die erfindungsgemäßen Metallzubereitungen 1 bis 3 durch Vermischen der einzelnen Bestandteile gemäß nachfolgender Tabelle hergestellt. Alle Mengenangaben bedeuten Gew.-%.

	Metallzubereitung		
	1	2	3
Silberpartikel ¹⁾	70	62	45
Exxsol™ D60	15	19,5	14
Terpineol	14,7	18,1	39
Ethylcellulose	0,3	0,4	2
Summe	100	100	100

- 15 ¹⁾ Silberflakes mit einem mittleren Teilchendurchmesser (d₅₀) von 4,50 µm und einem Coating von 0,7 Gew.-% Oktansäure/Stearinsäure (Gewichtsverhältnis 1:1)

2. Sprühapplikation und Drucksintern der Metallzubereitungen:

- Die Metallzubereitungen 1 bis 3 wurden mittels Sprühauftrag unter Verwendung eines Lackierautomaten (Lackierautomat DD-500 der Fa. DIMA, Sprühdruk 1,4 bar) in 150 µm tiefe rechteckige Kavitäten (4 · 6 mm²) eines 500 µm dicken galvanisch versilberten Kupferblechs in einer Nassschichtdicke von 30 µm appliziert. Zum Schutz der die Kavitäten umgebenden Flächen wurde eine 100 µm-Edelstahlschablone so über dem versilberten Kupferblech angeordnet, dass sich die durch Sprühen zu beschichtenden Kavitäten direkt unter den Öffnungen der Schablone befanden.

Der Lackierautomat DD-500 war so programmiert, dass der Sprühauftrag durch ein gezieltes Abfahren der Schablonenöffnungen mit möglichst geringer Entstehung von Overspray erfolgte. Über die Bewegungsgeschwindigkeit des Sprühorgans konnte eine Sintermittelschicht mit gleichmäßiger Dicke erhalten werden.

5

Das so partiell sprühbeschichtete versilberte Kupferblech wurde 15 Minuten bei 120 °C Objekttemperatur im Umluft-Trockenschrank getrocknet, um während der Sprühapplikation nicht verdunstetes Lösemittel weitestgehend zu entfernen.

- 10 Anschließend wurde das Sintermittel in Form der getrockneten Metallzubereitung mit Siliziumchips mit Silberkontaktfläche ($4 \cdot 6 \text{ mm}^2$) in Kontakt gebracht. Das anschließende Sintern erfolgte bei einem Sinterdruck von 20 MPa, einer Sintertemperatur von 230°C und einer Sinterdauer von 2 Minuten. Die dabei zwischen den Siliziumchips und dem versilberten Kupferblech gebildete Sinterverbindung erreichte eine zufriedenstellende Festigkeit.
- 15

Patentansprüche

- 5 1. Metallzubereitung, die (A) 40 bis < 80 Gew.-% wenigstens eines Metalls, das in Form von Partikeln vorliegt, die ein Coating aufweisen, das wenigstens eine organische Verbindung enthält, und (B) > 20 bis 50 Gew.-% organisches Lösemittel umfasst.
- 10 2. Metallzubereitung nach Anspruch 1,
wobei das wenigstens eine Metall ausgewählt ist aus der aus Kupfer, Silber, Gold, Nickel, Palladium, Platin und Aluminium bestehenden Gruppe.
- 15 3. Metallzubereitung nach Anspruch 1 oder 2,
wobei die Metallpartikel die Form von Flakes aufweisen.
4. Metallzubereitung nach Anspruch 1, 2 oder 3,
wobei die wenigstens eine organische Verbindung ausgewählt ist aus der aus freien Fettsäuren, Fettsäuresalzen und Fettsäureestern bestehenden Gruppe.
- 20 5. Metallzubereitung nach einem der vorhergehenden Ansprüche,
wobei das organische Lösemittel (B) ein einziges oder ein Gemisch mindestens zweier organischer Lösemittel ist, ausgewählt unter Terpeneolen, N-Methyl-2-pyrrolidon, Ethylenglykol, Dimethylacetamid, 1-Tridecanol, 2-Tridecanol, 3-Tridecanol, 4-Tridecanol, 5-Tridecanol, 6-Tridecanol, Isotridecanol, mit Ausnahme einer Methylsubstitution am vorletzten C-Atom unsubstituierten 1-Hydroxy-C16-C20-alkanen, dibasischen Estern, Glycerin, Diethylenglykol, Triethylenglykol und aliphatischen Kohlenwasserstoffen mit 5 bis 32 C-Atomen.
- 25

6. Metallzubereitung nach einem der vorhergehenden Ansprüche,
enthaltend neben den Bestandteilen (A) und (B) 0 bis 12 Gew.-% wenigstens ei-
nes Metallprecursors (C), 0 bis 10 Gew.-% wenigstens eines Sinterhilfsmittels (D)
5 und 0 bis 15 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer Inhaltsstoffe (E) ausgewählt
unter Dispersionsmitteln, Tensiden, Entschäumern, Bindemitteln, Polymeren
und/oder viskositätssteuernden Mitteln.
7. Metallzubereitung nach einem der vorhergehenden Ansprüche,
10 dadurch gekennzeichnet,
dass sie eine Viskosität im Bereich von 1 bis 3 Pa·s aufweist, gemessen nach DIN
53018 (bei 23 °C, CSR-Messung bei einer Scherrate von $D = 10 \text{ s}^{-1}$).
8. Verfahren zum Verbinden von Bauelementen, bei dem man (a) eine Sandwichan-
15 ordnung bereitstellt, die wenigstens (a1) ein Bauelement 1, (a2) ein Bauelement 2
und (a3) ein Sintermittel aufweist, das sich zwischen Bauelement 1 und Bauele-
ment 2 befindet, und (b) die Sandwichanordnung sintert,
dadurch gekennzeichnet,
dass das Sintermittel aus einer Metallzubereitung nach einem der vorhergehenden
20 Ansprüche durch Sprühauftrag appliziert worden ist.
9. Verfahren nach Anspruch 8 umfassend die Schritte:
- (i) Bereitstellen wenigstens zweier Bauelemente 1 und 2,
 - (ii) Sprühapplizieren der Metallzubereitung auf eine eine Kontaktfläche bildende
25 Oberfläche oder Oberflächenanteil wenigstens eines der Bauelemente unter
Bildung des Sintermittels,
 - (iii) Ausbilden der besagten Sandwichanordnung durch Verbinden der Bauele-
mente über das Sintermittel, und
 - (iv) Sintern der Sandwichanordnung.
- 30
10. Verfahren nach Anspruch 8 oder 9,
wobei man unter Druckerwendung oder drucklos sintert.

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 10,
wobei es sich bei den Bauelementen um in der Elektronik verwendete Teile handelt.
- 5
12. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 11,
wobei wenigstens eines der Bauelemente eine nichtebene und/oder saugende und/oder offenporige und/oder komplizierte Oberflächentopographie aufweisende Oberfläche oder einen nichtebenen und/oder saugenden und/oder offenporigen und/oder komplizierte Oberflächentopographie aufweisenden Oberflächenanteil aufweist und wobei die Sandwichanordnung über besagte Oberfläche oder besagten Oberflächenanteil ausgebildet wird.
- 10
13. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 12,
wobei die mit dem Sintermittel zu versehenen Bauelementoberfläche(n) oder der oder die mit dem Sintermittel zu versehende(n) Bauelementoberflächenanteil(e) vor und/oder während des Sprühauftrags der Metallzusammensetzung erwärmt werden.
- 15
14. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 13,
wobei der Sprühauftrag ausgewählt ist unter Inkjetauftrag, pneumatischem Sprühen und Airless-Sprühen.
- 20
15. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 14,
wobei das Sintermittel eine Nassschichtdicke von 10 bis 100 μm aufweist.
- 25

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2015/061567

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

- 1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

- 2. Claims Nos.: **1-15 (in part)**
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

See additional sheet

- 3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

- 1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
- 2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
- 3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

- 4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2015/061567

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 INV. B22F1/00 B22F7/04 B23K35/34 B23K35/36 B23K35/365
 B23K35/02 H01L23/00
 ADD.
 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)
 B22F B23K H01L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
 EPO-Internal, WPI Data, COMPENDEX, INSPEC

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2011/026623 A1 (HERAEUS GMBH W C [DE]; SCHAEFER MICHAEL [DE]; SCHMITT WOLFGANG [DE]; Z) 10 March 2011 (2011-03-10) cited in the application page 1, line 3 - line 8 page 10, line 25 - line 26 page 24, line 12 - page 25, line 27 examples -----	1-15
A	EP 2 425 920 A1 (HERAEUS MATERIALS TECH GMBH [DE]) 7 March 2012 (2012-03-07) paragraph [0001] - paragraph [0002] paragraph [0081] - paragraph [0086] examples -----	1-15
A	DE 10 2010 042721 A1 (BOSCH GMBH ROBERT [DE]) 26 April 2012 (2012-04-26) the whole document -----	1-15
	-/--	

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	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"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
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 26 August 2015	Date of mailing of the international search report 02/09/2015
--	---

Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Morra, Valentina
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2015/061567

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2014/073494 A1 (KITAGAWA IND CO LTD [JP]) 15 May 2014 (2014-05-15) the whole document -----	1-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/061567

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2011026623	A1	10-03-2011	
		CN 102596486 A	18-07-2012
		DE 102009040076 A1	10-03-2011
		DK 2396140 T3	18-03-2013
		EP 2396140 A1	21-12-2011
		JP 5667190 B2	12-02-2015
		JP 2013504148 A	04-02-2013
		KR 20120048709 A	15-05-2012
		SG 178347 A1	29-03-2012
		US 2012153011 A1	21-06-2012
		US 2015021378 A1	22-01-2015
		WO 2011026623 A1	10-03-2011

EP 2425920	A1	07-03-2012	
		CN 102441741 A	09-05-2012
		DE 102010044326 A1	08-03-2012
		EP 2425920 A1	07-03-2012
		JP 2012084514 A	26-04-2012
		KR 20140014327 A	06-02-2014
		SG 178710 A1	29-03-2012
		TW 201215468 A	16-04-2012
		US 2012055707 A1	08-03-2012

DE 102010042721	A1	26-04-2012	
		DE 102010042721 A1	26-04-2012
		EP 2629911 A2	28-08-2013
		US 2013216847 A1	22-08-2013
		WO 2012052252 A2	26-04-2012

WO 2014073494	A1	15-05-2014	
		JP 2014095137 A	22-05-2014
		WO 2014073494 A1	15-05-2014

Continuation of Box II.2

Claims 1-15 (in part)

The present claim 1 relates to an extremely large number of possible compounds and methods, of which only a small proportion is supported and disclosed in accordance with PCT Articles 6 and 5; see examples.

The failure to meet the relevant requirements is so serious that it was taken into consideration for the purposes of determining the extent of the search in respect of claims 1-15 (PCT Guidelines 9.19 and 9.23).

The search in respect of claims 1-15 was restricted to the claimed compounds and methods which appear to be supported by the description and to a generalization of the structural formulae thereof, i.e. to a metal preparation comprising (A) 40 to < 80 wt% of at least one metal in the form of particles that have a coating containing at least one organic compound, and (B) > 20 to 50 wt% organic solvent, the at least one metal being selected from among the group consisting of copper, silver, gold, nickel, palladium, platinum and aluminium, and the at least one organic compound being selected from among the group consisting of free fatty acids, fatty acid salts and fatty acid esters.

The applicant is advised that claims relating to inventions in respect of which no international search report has been established cannot normally be the subject of an international preliminary examination (PCT Rule 66.1(e)). In its capacity as International Preliminary Examining Authority the EPO generally therefore will not carry out a preliminary examination for subject matter that has not been searched. This also applies in cases where the claims were amended after receipt of the international search report (PCT Article 19) or where the applicant submits new claims in the course of the procedure under PCT Chapter II. However, after entry into the regional phase before the EPO an additional search may be carried out in the course of the examination (cf. EPO Guidelines, C-IV, 7.2) if the defects that led to the declaration under PCT Article 17(2) have been corrected.

Feld Nr. II Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein internationaler Recherchenbericht erstellt:

1. Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche diese Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich

2. Ansprüche Nr. **1-15 (teilweise)**
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, dass eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
siehe BEIBLATT PCT/ISA/210

3. Ansprüche Nr.
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefasst sind.

Feld Nr. III Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Diese Internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.

2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung solcher Gebühren aufgefordert.

3. Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.

4. Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Dieser internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfasst:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- Der Anmelder hat die zusätzlichen Recherchegebühren unter Widerspruch entrichtet und die gegebenenfalls erforderliche Widerspruchsgebühr gezahlt.
- Die zusätzlichen Recherchegebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt, jedoch wurde die entsprechende Widerspruchsgebühr nicht innerhalb der in der Aufforderung angegebenen Frist entrichtet.
- Die Zahlung der zusätzlichen Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES		
INV.	B22F1/00 B23K35/02	B22F7/04 H01L23/00
	B23K35/34	B23K35/36 B23K35/365
ADD.		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE		
Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) B22F B23K H01L		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, WPI Data, COMPENDEX, INSPEC		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 2011/026623 A1 (HERAEUS GMBH W C [DE]; SCHAEFER MICHAEL [DE]; SCHMITT WOLFGANG [DE]; Z) 10. März 2011 (2011-03-10) in der Anmeldung erwähnt Seite 1, Zeile 3 - Zeile 8 Seite 10, Zeile 25 - Zeile 26 Seite 24, Zeile 12 - Seite 25, Zeile 27 Beispiele -----	1-15
A	EP 2 425 920 A1 (HERAEUS MATERIALS TECH GMBH [DE]) 7. März 2012 (2012-03-07) Absatz [0001] - Absatz [0002] Absatz [0081] - Absatz [0086] Beispiele -----	1-15
A	DE 10 2010 042721 A1 (BOSCH GMBH ROBERT [DE]) 26. April 2012 (2012-04-26) das ganze Dokument -----	1-15
	-/--	
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
26. August 2015		02/09/2015
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Morra, Valentina

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 2014/073494 A1 (KITAGAWA IND CO LTD [JP]) 15. Mai 2014 (2014-05-15) das ganze Dokument -----	1-15

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/061567

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2011026623 A1	10-03-2011	CN 102596486 A	18-07-2012
		DE 102009040076 A1	10-03-2011
		DK 2396140 T3	18-03-2013
		EP 2396140 A1	21-12-2011
		JP 5667190 B2	12-02-2015
		JP 2013504148 A	04-02-2013
		KR 20120048709 A	15-05-2012
		SG 178347 A1	29-03-2012
		US 2012153011 A1	21-06-2012
		US 2015021378 A1	22-01-2015
		WO 2011026623 A1	10-03-2011
EP 2425920 A1	07-03-2012	CN 102441741 A	09-05-2012
		DE 102010044326 A1	08-03-2012
		EP 2425920 A1	07-03-2012
		JP 2012084514 A	26-04-2012
		KR 20140014327 A	06-02-2014
		SG 178710 A1	29-03-2012
		TW 201215468 A	16-04-2012
		US 2012055707 A1	08-03-2012
DE 102010042721 A1	26-04-2012	DE 102010042721 A1	26-04-2012
		EP 2629911 A2	28-08-2013
		US 2013216847 A1	22-08-2013
		WO 2012052252 A2	26-04-2012
WO 2014073494 A1	15-05-2014	JP 2014095137 A	22-05-2014
		WO 2014073494 A1	15-05-2014

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Fortsetzung von Feld II.2

Ansprüche Nr.: 1-15(teilweise)

Der vorliegende Anspruch 1 bezieht sich auf eine extrem große Zahl möglicher Verbindungen und Verfahren. Stützung und Offenbarung im Sinne der Artikel 6 und 5 PCT lassen sich jedoch nur für einen sehr kleinen Teil der beanspruchten Verbindungen und Verfahren finden, siehe Beispiele.

Die Verletzung der einschlägigen Erfordernisse ist so schwerwiegend, dass sie bei der Bestimmung des Recherchenumfangs für die Ansprüche 1-15 berücksichtigt wurde (PCT-Richtlinien 9.19 und 9.23).

Die Recherche zu den Ansprüchen 1-15 wurde auf die beanspruchten Verbindungen und Verfahren beschränkt, die anscheinend durch die Beschreibung gestützt sind, sowie auf eine Verallgemeinerung ihrer strukturellen Formeln, d.h. auf eine Metallzubereitung, die (A) 40 bis < 80 Gew.-% wenigstens eines Metalls, das in Form von Partikeln vorliegt, die ein Coating aufweisen, das wenigstens eine organische Verbindung enthält, und (B) > 20 bis 50 Gew.-% organisches Lösemittel umfasst, wobei das wenigstens eine Metall ausgewählt ist aus der aus Kupfer, Silber, Gold, Nickel, Palladium, Platin und Aluminium bestehenden Gruppe und wobei die wenigstens eine organische Verbindung ausgewählt ist aus der aus freien Fettsäuren, Fettsäuresalzen und Fettsäureestern bestehenden Gruppe.

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, dass Patentansprüche auf Erfindungen, für die kein internationaler Recherchenbericht erstellt wurde, normalerweise nicht Gegenstand einer internationalen vorläufigen Prüfung sein können (Regel 66.1(e) PCT). In seiner Eigenschaft als mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde wird das EPA also in der Regel keine vorläufige Prüfung für Gegenstände durchführen, zu denen keine Recherche vorliegt. Dies gilt auch für den Fall, dass die Patentansprüche nach Erhalt des internationalen Recherchenberichtes geändert wurden (Art. 19 PCT), oder für den Fall, dass der Anmelder im Zuge des Verfahrens gemäss Kapitel II PCT neue Patentansprüche vorlegt. Nach Eintritt in die regionale Phase vor dem EPA kann jedoch im Zuge der Prüfung eine weitere Recherche durchgeführt werden (Vgl. EPA-Richtlinien C-IV, 7.2), sollten die Mängel behoben sein, die zu der Erklärung gemäss Art. 17 (2) PCT geführt haben.