

(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3月2日(02.03.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/033930 A1

- (51) 国際特許分類:
H01B 1/22 (2006.01) H01L 21/60 (2006.01)
C09J 9/02 (2006.01) H05K 1/14 (2006.01)
C09J 201/00 (2006.01) H05K 3/32 (2006.01)
H01B 1/00 (2006.01) H05K 3/34 (2006.01)
H01B 5/16 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/074527
- (22) 国際出願日: 2016年8月23日(23.08.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-165220 2015年8月24日(24.08.2015) JP
- (71) 出願人: 積水化学工業株式会社(SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 伊藤 将大(ITU, Masahiro); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 定永 周治郎(SADANAGA, Shuujiro); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 石澤 英亮(ISHIZAWA, Hideaki); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 久保田 敬士(KUBOTA, Takashi); 〒

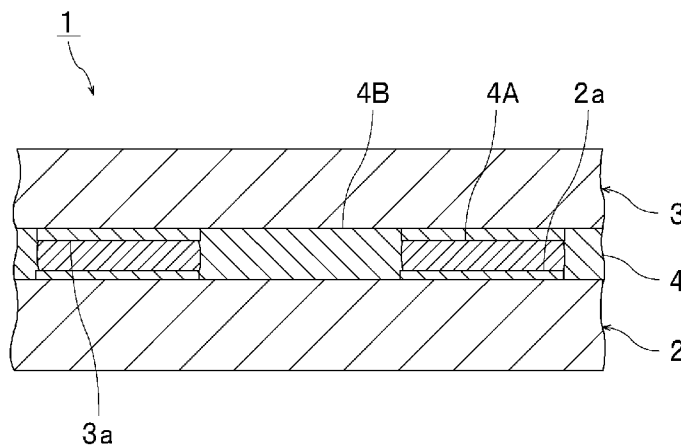
5288585 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).

- (74) 代理人: 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所(MIYAZAKI & METSUGI); 〒5400028 大阪府大阪市中央区常盤町1丁目3番8号 中央大通F Nビル Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, 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) 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: ELECTROCONDUCTIVE MATERIAL AND CONNECTION STRUCTURE

(54) 発明の名称: 導電材料及び接続構造体



(57) Abstract: [Problem] To provide an electroconductive material with which it is possible to suppress the occurrence of black soot in a cured object, selectively dispose solder in electroconductive particles on an electrode, and improve electroconductive reliability. [Solution] An electroconductive material according to the present invention includes, in an outer surface portion of an electroconductive part, a plurality of electroconductive particles that have solder, a heat-curable component, and flux, and includes as the heat-curable component or the flux a compound having an isocyanuric backbone, the viscosity of the electroconductive material at the melting point of the solder in the electroconductive particles being 0.1-20 Pa·s.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2017/033930 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

硬化物において黒いすすの発生を抑制し、電極上に導電性粒子におけるはんだを選択的に配置することができ、導通信頼性を高めることができる導電材料を提供する。【解決手段】本発明に係る導電材料は、導電部の外表面部分に、はんだを有する複数の導電性粒子と、熱硬化性成分と、フラックスとを含み、前記熱硬化性成分又は前記フラックスとして、イソシアヌル骨格を有する化合物を含み、前記導電性粒子における前記はんだの融点での導電材料の粘度が $0.1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上、 $20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下である。

明 細 書

発明の名称：導電材料及び接続構造体

技術分野

[0001] 本発明は、はんだを有する導電性粒子を含む導電材料に関する。また、本発明は、上記導電材料を用いた接続構造体に関する。

背景技術

[0002] 異方性導電ペースト及び異方性導電フィルム等の異方性導電材料が広く知られている。上記異方性導電材料では、バインダー中に導電性粒子が分散されている。

[0003] 上記異方性導電材料は、各種の接続構造体を得るために、例えば、フレキシブルプリント基板とガラス基板との接続（FOG（Film on Glass））、半導体チップとフレキシブルプリント基板との接続（COF（Chip on Film））、半導体チップとガラス基板との接続（COG（Chip on Glass））、並びにフレキシブルプリント基板とガラスエポキシ基板との接続（FOB（Film on Board））等に使用されている。

[0004] 上記異方性導電材料により、例えば、フレキシブルプリント基板の電極とガラスエポキシ基板の電極とを電氣的に接続する際には、ガラスエポキシ基板上に、導電性粒子を含む異方性導電材料を配置する。次に、フレキシブルプリント基板を積層して、加熱及び加圧する。これにより、異方性導電材料を硬化させて、導電性粒子を介して電極間を電氣的に接続して、接続構造体を得る。

[0005] 上記異方性導電材料の一例として、下記の特許文献1には、導電性粒子と、該導電性粒子の融点で硬化が完了しない樹脂成分とを含む異方性導電材料が記載されている。上記導電性粒子としては、具体的には、錫（Sn）、インジウム（In）、ビスマス（Bi）、銀（Ag）、銅（Cu）、亜鉛（Zn）、鉛（Pb）、カドミウム（Cd）、ガリウム（Ga）及びタリウム（

T1)等の金属や、これらの金属の合金が挙げられている。

[0006] 特許文献1では、上記導電性粒子の融点よりも高く、かつ上記樹脂成分の硬化が完了しない温度に、異方性導電樹脂を加熱する樹脂加熱ステップと、上記樹脂成分を硬化させる樹脂成分硬化ステップとを経て、電極間を電氣的に接続することが記載されている。また、特許文献1には、特許文献1の図8に示された温度プロファイルで実装を行うことが記載されている。特許文献1では、異方性導電樹脂が加熱される温度にて硬化が完了しない樹脂成分内で、導電性粒子が溶融する。

[0007] 下記の特許文献2には、熱硬化性樹脂を含む樹脂層と、はんだ粉と、硬化剤とを含み、上記はんだ粉と上記硬化剤とが上記樹脂層中に存在する接着テープが開示されている。この接着テープは、フィルム状であり、ペースト状ではない。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開2004-260131号公報

特許文献2：WO2008/023452A1

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明者らは、従来のはんだ粉や、はんだ層を表面に有する導電性粒子を含む異方性導電材料では、異方性導電材料の硬化物において、はんだに由来する黒いすすが含まれることがあることを見出した。特に、はんだがフラックスによりフラックス作用を受けるときに、黒いすすが発生しやすい。この黒いすすは、電極間の接続抵抗を高くし、導通信頼性を低下させる。

[0010] また、特許文献1に記載の異方性導電材料を用いて、特許文献1に記載の方法で電極間を電氣的に接続すると、はんだを含む導電性粒子が電極（ライン）上に効率的に配置されないことがある。また、特許文献1の実施例では、はんだの融点以上の温度で、はんだを十分に移動させるために、一定温度

に保持しており、接続構造体の製造効率が低くなる。特許文献1の図8に示された温度プロファイルで実装を行うと、接続構造体の製造効率が低くなる。

[0011] また、特許文献2に記載の接着テープは、フィルム状であり、ペースト状ではない。特許文献2に記載のような組成を有する接着テープでは、はんだ粉を電極（ライン）上に効率的に配置することは困難である。例えば、特許文献2に記載の接着テープでは、はんだ粉の一部が、電極が形成されていない領域（スペース）にも配置されやすい。電極が形成されていない領域に配置されたはんだ粉は、電極間の導通に寄与しない。

[0012] 本発明の目的は、硬化物において黒いすずの発生を抑制し、更に電極上に導電性粒子におけるはんだを選択的に配置することができ、導通信頼性を高めることができる導電材料を提供することである。また、本発明の目的は、上記導電材料を用いた接続構造体を提供することである。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明の広い局面によれば、導電部の外表面部分に、はんだを有する複数の導電性粒子と、熱硬化性成分と、フラックスとを含み、前記熱硬化性成分又は前記フラックスとして、イソシアヌル骨格を有する化合物を含み、前記導電性粒子における前記はんだの融点での導電材料の粘度が $0.1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上、 $20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下である、導電材料が提供される。

[0014] 前記イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量の、前記フラックスの含有量に対する重量比が、 0.5 以上、 20 以下であることが好ましい。前記イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量の、前記導電性粒子の含有量に対する重量比が、 0.05 以上、 0.5 以下であることが好ましい。

[0015] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記イソシアヌル骨格を有する化合物の分子量が、 200 以上、 1000 以下である。

[0016] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電材料は、前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物又はイソシアヌル骨格を有する熱硬化剤を含む。

- [0017] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電材料は、前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物を含む。
- [0018] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電材料は、前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物を含む。
- [0019] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物と、前記イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物とを含む。
- [0020] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物が、イソシアヌル骨格を有さず、かつ芳香族骨格又は脂環式骨格を有する熱硬化性化合物である。
- [0021] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電材料は、リン酸化合物を含む。
- [0022] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電性粒子は、はんだ粒子である。
- [0023] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電材料は、25℃で液状であり、導電ペーストである。
- [0024] 本発明の広い局面によれば、少なくとも1つの第1の電極を表面に有する第1の接続対象部材と、少なくとも1つの第2の電極を表面に有する第2の接続対象部材と、前記第1の接続対象部材と前記第2の接続対象部材とを接続している接続部とを備え、前記接続部が、上述した導電材料の硬化物であり、前記第1の電極と前記第2の電極とが前記接続部中のはんだ部により電気的に接続されている、接続構造体が提供される。
- [0025] 本発明に係る接続構造体のある特定の局面では、前記第1の電極と前記接続部と前記第2の電極との積層方向に前記第1の電極と前記第2の電極との対向し合う部分を見たときに、前記第1の電極と前記第2の電極との対向し合う部分の面積100%中の50%以上に、前記接続部中のはんだ部が配置されている。

発明の効果

[0026] 本発明に係る導電材料は、導電部の外表面部分に、はんだを有する複数の導電性粒子と、熱硬化性成分と、フラックスとを含み、上記熱硬化性成分又は上記フラックスとして、イソシアヌル骨格を有する化合物を含み、上記導電性粒子における上記はんだの融点での導電材料の粘度が $0.1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上、 $20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下であるので、導電材料の硬化物において、黒いすすの発生を抑制することができる。さらに、電極上に導電性粒子におけるはんだを選択的に配置することができ、導通信頼性を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]図1は、本発明の一実施形態に係る導電材料を用いて得られる接続構造体を模式的に示す断面図である。

[図2]図2(a)～(c)は、本発明の一実施形態に係る導電材料を用いて、接続構造体を製造する方法の一例の各工程を説明するための断面図である。

[図3]図3は、接続構造体の変形例を示す断面図である。

[図4]図4は、導電材料に使用可能な導電性粒子の第1の例を示す断面図である。

[図5]図5は、導電材料に使用可能な導電性粒子の第2の例を示す断面図である。

[図6]図6は、導電材料に使用可能な導電性粒子の第3の例を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0028] 以下、本発明の詳細を説明する。

[0029] (導電材料)

本発明に係る導電材料は、複数の導電性粒子と、バインダーとを含む。上記導電性粒子は、導電部を有する。上記導電性粒子は、導電部の外表面部分に、はんだを有する。はんだは、導電部に含まれ、導電部の一部又は全部である。上記バインダーは、上記導電材料に含まれる導電性粒子を除く成分である。

[0030] 本発明に係る導電材料は、上記バインダーとして、熱硬化性成分と、フラ

ックスとを含む。上記熱硬化性成分は、熱硬化性化合物を含む。上記熱硬化性成分は、熱硬化剤を含むことが好ましい。

[0031] 本発明に係る導電材料は、上記熱硬化性成分又は上記フラックスとして、イソシアヌル骨格を有する化合物を含む。上記イソシアヌル骨格を有する化合物は、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性成分であってもよく、イソシアヌル骨格を有するフラックスであってもよく、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物又はイソシアヌル骨格を有する熱硬化剤であってもよい。上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性成分は、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物であってもよく、イソシアヌル骨格を有する熱硬化剤であってもよい。

[0032] 本発明に係る導電材料では、上記導電性粒子における上記はんだの融点での導電材料の粘度は $0.1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上、 $20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下である。

[0033] 本発明では、上記の構成が備えられているので、導電材料の硬化物において、はんだに由来する黒いすすの発生を抑制することができる。導電材料の硬化物において、黒いすすが含まれると、電極間の接続抵抗が高くなり、導通信頼性が低下する。本発明では、黒いすすの発生を抑制するために、電極間の接続抵抗を低くすることができ、導通信頼性を高めることができる。

[0034] さらに、本発明では、上記の構成が備えられているので、特に上記導電材料の上記導電性粒子における上記はんだの融点での粘度が上述した範囲内であるため、電極上に導電性粒子におけるはんだを選択的に配置することができる。電極間を電氣的に接続した場合に、導電性粒子におけるはんだが、上下の対向した電極間に集まりやすく、導電性粒子におけるはんだを電極（ライン）上に効率的に配置することができる。

[0035] また、導電性粒子におけるはんだの一部が、電極が形成されていない領域（スペース）に配置され難く、電極が形成されていない領域に配置されるはんだの量をかなり少なくすることができる。本発明では、対向する電極間に位置していないはんだを、対向する電極間に効率的に移動させることができる。従って、電極間の導通信頼性を高めることができる。しかも、接続され

てはならない横方向に隣接する電極間の電氣的な接続を防ぐことができ、絶縁信頼性を高めることができる。

- [0036] はんだを電極上により一層効率的に配置するために、上記導電材料は、25℃で液状であることが好ましく、導電ペーストであることが好ましい。
- [0037] はんだを電極上に効率的に配置するために、上記導電性粒子における上記はんだの融点での上記導電材料の粘度 (η_{mp}) は0.1 Pa·s以上、20 Pa·s以下である。はんだを電極上により一層効率的に配置する観点からは、上記粘度 (η_{mp}) は好ましくは1 Pa·s以上であり、好ましくは15 Pa·s以下、より好ましくは10 Pa·s以下である。上記粘度 (η_{mp}) が上記下限以上及び上記上限以下であると、導電接続時に、初期から中期にわたって、導電性粒子又ははんだが効率的に移動する。
- [0038] 上記粘度は、STRESSTECH (EOLOGICA社製) 等を用いて、歪制御1 rad、周波数1 Hz、昇温速度20℃/分、及び測定温度範囲40~200℃ (但し、はんだの融点が200℃を超える場合には温度上限をはんだの融点とする) の条件で測定可能である。上記はんだの融点は、200℃以下であってもよい。
- [0039] 上記導電材料は、導電ペースト及び導電フィルム等として使用され得る。上記導電材料は、異方性導電材料であることが好ましい。上記導電ペーストは異方性導電ペーストであることが好ましい。上記導電フィルムは異方性導電フィルムであることが好ましい。上記導電材料は、電極の電氣的な接続に好適に用いられる。上記導電材料は、回路接続材料であることが好ましい。
- [0040] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する化合物の分子量は、好ましくは200以上、より好ましくは300以上であり、好ましくは1000以下、より好ましくは600以下である。
- [0041] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記導電材料100重量%中、上記イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量は、好ましくは5重量%以上、より好ましくは10重量%以上であり、好ましくは30重量%以下、より好ましくは20重量%以下である。

[0042] 以下、上記導電材料に含まれる各成分を説明する。

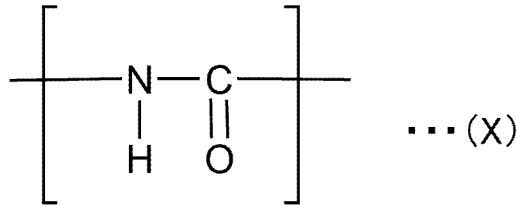
[0043] (導電性粒子)

上記導電性粒子は、接続対象部材の電極間を電氣的に接続する。上記導電性粒子は、導電部の外表面部分にはんだを有する。上記導電性粒子は、はんだ粒子であってもよい。上記はんだ粒子ははんだにより形成されている。上記はんだ粒子は、はんだを導電部の外表面部分に有する。上記はんだ粒子は、上記はんだ粒子の中心部分及び導電部の外表面部分のいずれもがはんだである粒子である。上記はんだ粒子は、中心部分及び導電部の外表面部分のいずれもがはんだにより形成されている。上記導電性粒子は、基材粒子と、該基材粒子の表面上に配置された導電部とを有していてもよい。この場合に、上記導電性粒子は、導電部の外表面部分に、はんだを有する。

[0044] なお、上記はんだ粒子を用いた場合と比べて、はんだにより形成されていない基材粒子と基材粒子の表面上に配置されたはんだ部とを備える導電性粒子を用いた場合には、電極上に導電性粒子が集まりにくくなり、導電性粒子同士のはんだ接合性が低いために、電極上に移動した導電性粒子が電極外に移動しやすくなる傾向があり、電極間の位置ずれの抑制効果も低くなる傾向がある。従って、上記導電性粒子は、はんだ粒子であることが好ましい。

[0045] 接続構造体における接続抵抗を効果的に低くし、ボイドの発生を効果的に抑制する観点からは、上記導電性粒子の外表面（はんだの外表面）に、カルボキシル基又はアミノ基が存在することが好ましく、カルボキシル基が存在することが好ましく、アミノ基が存在することが好ましい。上記導電性粒子の外表面（はんだの外表面）に、 $\text{Si}-\text{O}$ 結合、エーテル結合、エステル結合又は下記式（X）で表される基を介して、カルボキシル基又はアミノ基を含む基が共有結合していることが好ましく、エーテル結合、エステル結合又は下記式（X）で表される基を介して、カルボキシル基又はアミノ基を含む基が共有結合していることがより好ましい。カルボキシル基又はアミノ基を含む基は、カルボキシル基とアミノ基との双方を含んでいてもよい。なお、下記式（X）において、右端部及び左端部は結合部位を表す。

[0046] [化1]



[0047] はんだの表面に水酸基が存在する。この水酸基とカルボキシル基を含む基とを共有結合させることにより、他の配位結合（キレート配位）等にて結合させる場合よりも強い結合を形成できるため、電極間の接続抵抗を低くし、かつボイドの発生を抑えることが可能な導電性粒子が得られる。

[0048] 上記導電性粒子では、はんだの表面と、カルボキシル基を含む基との結合形態に、配位結合が含まれていなくてもよく、キレート配位による結合が含まれていなくてもよい。

[0049] 接続構造体における接続抵抗を効果的に低くし、ボイドの発生を効果的に抑制する観点からは、上記導電性粒子は、水酸基と反応可能な官能基とカルボキシル基又はアミノ基とを有する化合物（以下、化合物Xと記載することがある）を用いて、はんだの表面の水酸基に、上記水酸基と反応可能な官能基を反応させることにより得られることが好ましい。上記反応では、共有結合を形成させる。はんだの表面の水酸基と上記化合物Xにおける上記水酸基と反応可能な官能基とを反応させることで、はんだの表面にカルボキシル基又はアミノ基を含む基が共有結合している導電性粒子を容易に得ることができ、はんだの表面にエーテル結合又はエステル結合を介してカルボキシル基又はアミノ基を含む基が共有結合している導電性粒子を得ることもできる。上記はんだの表面の水酸基に上記水酸基と反応可能な官能基を反応させることで、はんだの表面に、上記化合物Xを共有結合の形態で化学結合させることができる。

[0050] 上記水酸基と反応可能な官能基としては、水酸基、カルボキシル基、エステル基及びカルボニル基等が挙げられる。水酸基又はカルボキシル基が好ましい。上記水酸基と反応可能な官能基は、水酸基であってもよく、カルボキ

シル基であってもよい。

[0051] 水酸基と反応可能な官能基を有する化合物としては、レブリン酸、グルタル酸、グリコール酸、コハク酸、リンゴ酸、シュウ酸、マロン酸、アジピン酸、5-ケトヘキサン酸、3-ヒドロキシプロピオン酸、4-アミノ酪酸、3-メルカプトプロピオン酸、3-メルカプトイソブチル酸、3-メチルチオプロピオン酸、3-フェニルプロピオン酸、3-フェニルイソブチル酸、4-フェニル酪酸、デカン酸、ドデカン酸、テトラデカン酸、ペンタデカン酸、ヘキサデカン酸、9-ヘキサデセン酸、ヘプタデカン酸、ステアリン酸、オレイン酸、バクセン酸、リノール酸、(9, 12, 15)-リノレン酸、ノナデカン酸、アラキジン酸、デカン二酸及びドデカン二酸等が挙げられる。グルタル酸又はグリコール酸が好ましい。上記水酸基と反応可能な官能基を有する化合物は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。上記水酸基と反応可能な官能基を有する化合物は、カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物であることが好ましい。

[0052] 上記化合物Xは、フラックス作用を有することが好ましく、上記化合物Xは、はんだの表面に結合した状態でフラックス作用を有することが好ましい。フラックス作用を有する化合物は、はんだの表面の酸化膜及び電極の表面の酸化膜を除去可能である。カルボキシル基はフラックス作用を有する。

[0053] フラックス作用を有する化合物としては、レブリン酸、グルタル酸、グリコール酸、コハク酸、5-ケトヘキサン酸、3-ヒドロキシプロピオン酸、4-アミノ酪酸、3-メルカプトプロピオン酸、3-メルカプトイソブチル酸、3-メチルチオプロピオン酸、3-フェニルプロピオン酸、3-フェニルイソブチル酸及び4-フェニル酪酸等が挙げられる。グルタル酸又はグリコール酸が好ましい。上記フラックス作用を有する化合物は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0054] 接続構造体における接続抵抗を効果的に低くし、ボイドの発生を効果的に抑制する観点からは、上記化合物Xにおける上記水酸基と反応可能な官能基が、水酸基又はカルボキシル基であることが好ましい。上記化合物Xにおけ

る上記水酸基と反応可能な官能基は、水酸基であってもよく、カルボキシ基であってもよい。上記水酸基と反応可能な官能基がカルボキシ基である場合には、上記化合物Xは、カルボキシ基を少なくとも2個有することが好ましい。カルボキシ基を少なくとも2個有する化合物の一部のカルボキシ基を、はんだの表面の水酸基に反応させることで、はんだの表面にカルボキシ基を含む基が共有結合している導電性粒子が得られる。

[0055] 上記導電性粒子の製造方法は、例えば、導電性粒子を用いて、該導電性粒子、水酸基と反応可能な官能基とカルボキシ基とを有する化合物、触媒及び溶媒を混合する工程を備える。上記導電性粒子の製造方法では、上記混合工程により、はんだの表面に、カルボキシ基を含む基が共有結合している導電性粒子を容易に得ることができる。

[0056] また、上記導電性粒子の製造方法では、導電性粒子を用いて、該導電性粒子、上記水酸基と反応可能な官能基とカルボキシ基とを有する化合物、上記触媒及び上記溶媒を混合し、加熱することが好ましい。混合及び加熱工程により、はんだの表面に、カルボキシ基を含む基が共有結合している導電性粒子をより一層容易に得ることができる。

[0057] 上記溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール及びブタノール等のアルコール溶媒や、アセトン、メチルエチルケトン、酢酸エチル、トルエン及びキシレン等が挙げられる。上記溶媒は有機溶媒であることが好ましく、トルエンであることがより好ましい。上記溶媒は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0058] 上記触媒としては、p-トルエンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸及び10-カンファースルホン酸等が挙げられる。上記触媒は、p-トルエンスルホン酸であることが好ましい。上記触媒は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0059] 上記混合時に加熱することが好ましい。加熱温度は好ましくは90℃以上、より好ましくは100℃以上であり、好ましくは130℃以下、より好ましくは110℃以下である。

[0060] 接続構造体における接続抵抗を効果的に低くし、ボイドの発生を効果的に抑制する観点からは、上記導電性粒子は、イソシアネート化合物を用いて、はんだの表面の水酸基に、上記イソシアネート化合物を反応させる工程を経て得られることが好ましい。上記反応では、共有結合を形成させる。はんだの表面の水酸基と上記イソシアネート化合物とを反応させることで、はんだの表面に、イソシアネート基に由来する基の窒素原子が共有結合している導電性粒子を容易に得ることができる。上記はんだの表面の水酸基に上記イソシアネート化合物を反応させることで、はんだの表面に、イソシアネート基に由来する基を共有結合の形態で化学結合させることができる。

[0061] また、イソシアネート基に由来する基には、シランカップリング剤を容易に反応させることができる。上記導電性粒子を容易に得ることができるので、上記カルボキシル基を含む基が、カルボキシル基を有するシランカップリング剤を用いた反応により導入されているか、又は、シランカップリング剤を用いた反応の後に、シランカップリング剤に由来する基にカルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物を反応させることで導入されていることが好ましい。上記導電性粒子は、上記イソシアネート化合物を用いて、はんだの表面の水酸基に、上記イソシアネート化合物を反応させた後、カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物を反応させることにより得られることが好ましい。

[0062] 接続構造体における接続抵抗を効果的に低くし、ボイドの発生を効果的に抑制する観点からは、上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物が、カルボキシル基を複数有することが好ましい。

[0063] 上記イソシアネート化合物としては、ジフェニルメタン-4, 4'-ジイソシアネート (MDI)、ヘキサメチレンジイソシアネート (HDI)、トルエンジイソシアネート (TDI) 及びイソホロンジイソシアネート (IPDI) 等が挙げられる。これら以外のイソシアネート化合物を用いてもよい。この化合物をはんだの表面に反応させた後、残イソシアネート基と、その残イソシアネート基と反応性を有し、かつカルボキシル基を有する化合物を

反応させることで、はんだの表面に上記式 (X) で表される基を介して、カルボキシル基を導入することができる。

[0064] 上記イソシアネート化合物としては、不飽和二重結合を有し、かつイソシアネート基を有する化合物を用いてもよい。例えば、2-アクリロイルオキシエチルイソシアネート及び2-イソシアナトエチルメタクリレートが挙げられる。この化合物のイソシアネート基をはんだの表面に反応させた後、残存している不飽和二重結合に対し反応性を有する官能基を有し、かつカルボキシル基を有する化合物を反応させることで、はんだの表面に上記式 (X) で表される基を介して、カルボキシル基を導入することができる。

[0065] 上記シランカップリング剤としては、3-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン（信越シリコン社製「KBE-9007」）、及び3-イソシアネートプロピルトリメトキシシラン（MOMENTIVE社製「Y-5187」）等が挙げられる。上記シランカップリング剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0066] 上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物としては、レブリン酸、グルタル酸、グリコール酸、コハク酸、リンゴ酸、シュウ酸、マロン酸、アジピン酸、5-ケトヘキサン酸、3-ヒドロキシプロピオン酸、4-アミノ酪酸、3-メルカプトプロピオン酸、3-メルカプトイソブチル酸、3-メチルチオプロピオン酸、3-フェニルプロピオン酸、3-フェニルイソブチル酸、4-フェニル酪酸、デカン酸、ドデカン酸、テトラデカン酸、ペンタデカン酸、ヘキサデカン酸、9-ヘキサデセン酸、ヘプタデカン酸、ステアリン酸、オレイン酸、バクセン酸、リノール酸、(9, 12, 15)-リノレン酸、ノナデカン酸、アラキジン酸、デカン二酸及びドデカン二酸等が挙げられる。グルタル酸、アジピン酸又はグリコール酸が好ましい。上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0067] 上記イソシアネート化合物を用いて、はんだの表面の水酸基に、上記イソシアネート化合物を反応させた後、カルボキシル基を複数有する化合物の一

部のカルボキシル基を、はんだの表面の水酸基と反応させることで、カルボキシル基を含む基を残存させることができる。

[0068] 上記導電性粒子の製造方法では、導電性粒子を用いて、かつ、イソシアネート化合物を用いて、はんだの表面の水酸基に、上記イソシアネート化合物を反応させた後、カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物を反応させて、はんだの表面に、上記式(X)で表される基を介して、カルボキシル基を含む基が結合している導電性粒子を得る。上記導電性粒子の製造方法では、上記の工程により、はんだの表面に、カルボキシル基を含む基が導入された導電性粒子を容易に得ることができる。

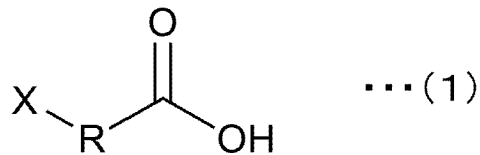
[0069] 上記導電性粒子の具体的な製造方法としては、以下の方法が挙げられる。有機溶媒に導電性粒子を分散させ、イソシアネート基を有するシランカップリング剤を添加する。その後、導電性粒子のはんだの表面の水酸基とイソシアネート基との反応触媒を用い、はんだの表面にシランカップリング剤を共有結合させる。次に、シランカップリング剤のケイ素原子に結合しているアルコキシ基を加水分解することで、水酸基を生成させる。生成した水酸基に、カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物のカルボキシル基を反応させる。

[0070] また、上記導電性粒子の具体的な製造方法としては、以下の方法が挙げられる。有機溶媒に導電性粒子を分散させ、イソシアネート基と不飽和二重結合を有する化合物を添加する。その後、導電性粒子のはんだの表面の水酸基とイソシアネート基との反応触媒を用い、共有結合を形成させる。その後、導入された不飽和二重結合に対して、不飽和二重結合、及びカルボキシル基を有する化合物を反応させる。

[0071] 導電性粒子のはんだの表面の水酸基とイソシアネート基との反応触媒としては、錫系触媒（ジブチル錫ジラウレート等）、アミン系触媒（トリエチレンジアミン等）、カルボキシレート触媒（ナフテン酸鉛、酢酸カリウム等）、及びトリアルキルホスフィン触媒（トリエチルホスフィン等）等が挙げられる。

[0072] 接続構造体における接続抵抗を効果的に低くし、ボイドの発生を効果的に抑制する観点からは、上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物は、下記式(1)で表される化合物であることが好ましい。下記式(1)で表される化合物は、フラックス作用を有する。また、下記式(1)で表される化合物は、はんだの表面に導入された状態でフラックス作用を有する。

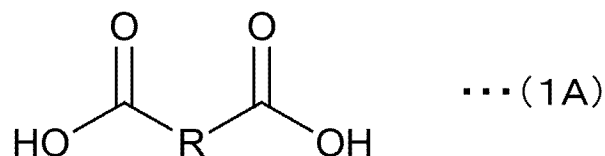
[0073] [化2]



[0074] 上記式(1)中、Xは、水酸基と反応可能な官能基を表し、Rは、炭素数1~5の2価の有機基を表す。該有機基は、炭素原子と水素原子と酸素原子とを含んでいてもよい。該有機基は炭素数1~5の2価の炭化水素基であってもよい。上記有機基の主鎖は2価の炭化水素基であることが好ましい。該有機基では、2価の炭化水素基にカルボキシル基や水酸基が結合していてもよい。上記式(1)で表される化合物には、例えばクエン酸が含まれる。

[0075] 上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物は、下記式(1A)又は下記式(1B)で表される化合物であることが好ましい。上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物は、下記式(1A)で表される化合物であることが好ましく、下記式(1B)で表される化合物であることがより好ましい。

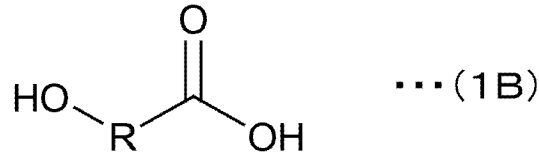
[0076] [化3]



[0077] 上記式(1A)中、Rは、炭素数1~5の2価の有機基を表す。上記式(1A)中のRは上記式(1)中のRと同様である。

[0078]

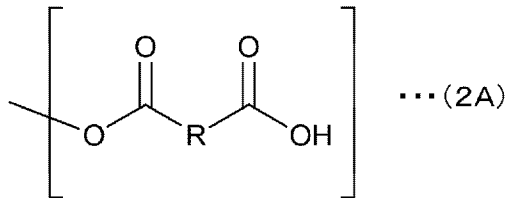
[化4]



[0079] 上記式(1B)中、Rは、炭素数1～5の2価の有機基を表す。上記式(1B)中のRは上記式(1)中のRと同様である。

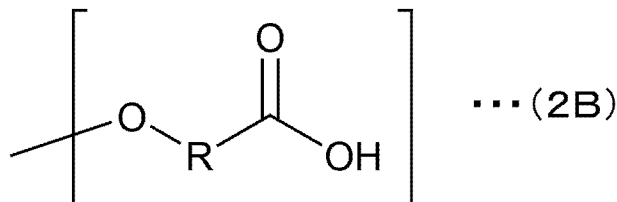
[0080] はんだの表面に、下記式(2A)又は下記式(2B)で表される基が結合していることが好ましい。はんだの表面に、下記式(2A)で表される基が結合していることが好ましく、下記式(2B)で表される基が結合していることがより好ましい。なお、下記式(2A)及び下記式(2B)において、左端部は結合部位を表す。

[0081] [化5]



[0082] 上記式(2A)中、Rは、炭素数1～5の2価の有機基を表す。上記式(2A)中のRは上記式(1)中のRと同様である。

[0083] [化6]



[0084] 上記式(2B)中、Rは、炭素数1～5の2価の有機基を表す。上記式(2B)中のRは上記式(1)中のRと同様である。

[0085] はんだの表面の濡れ性を高める観点からは、上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物の分子量は、好ましくは10000以下、より好ましくは1000以下、更に好ましくは500以下である。

[0086] 上記分子量は、上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物が重合体ではない場合、及び上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物の構造式が特定できる場合は、当該構造式から算出できる分子量を意味する。また、上記カルボキシル基を少なくとも1つ有する化合物が重合体である場合は、重量平均分子量を意味する。

[0087] 導電接続時に導電性粒子の凝集性を効果的に高めることができることから、上記導電性粒子は、導電性粒子本体と、上記導電性粒子本体の表面上に配置されたアニオンポリマーとを有することが好ましい。上記導電性粒子は、導電性粒子本体をアニオンポリマー又はアニオンポリマーとなる化合物で表面処理することにより得られることが好ましい。上記導電性粒子は、アニオンポリマー又はアニオンポリマーとなる化合物による表面処理物であることが好ましい。上記アニオンポリマー及び上記アニオンポリマーとなる化合物はそれぞれ、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。上記アニオンポリマーは、酸性基を有するポリマーである。

[0088] 導電性粒子本体をアニオンポリマーで表面処理する方法としては、アニオンポリマーとして、例えば(メタ)アクリル酸を共重合した(メタ)アクリルポリマー、ジカルボン酸とジオールとから合成されかつ両末端にカルボキシル基を有するポリエステルポリマー、ジカルボン酸の分子間脱水縮合反応により得られかつ両末端にカルボキシル基を有するポリマー、ジカルボン酸とジアミンとから合成されかつ両末端にカルボキシル基を有するポリエステルポリマー、並びにカルボキシル基を有する変性ポバール(日本合成化学社製「ゴーセネックスT」)等を用いて、アニオンポリマーのカルボキシル基と、導電性粒子本体の表面の水酸基とを反応させる方法が挙げられる。

[0089] 上記アニオンポリマーのアニオン部分としては、上記カルボキシル基が挙げられ、それ以外には、トシル基($p\text{-H}_3\text{CC}_6\text{H}_4\text{S}(=\text{O})_2-$)、スルホン酸イオン基($-\text{SO}_3^-$)、及びリン酸イオン基($-\text{PO}_4^-$)等が挙げられる。

[0090] また、表面処理の他の方法としては、導電性粒子本体の表面の水酸基と反

応する官能基を有し、さらに、付加、縮合反応により重合可能な官能基を有する化合物を用いて、この化合物を導電性粒子本体の表面上にてポリマー化する方法が挙げられる。導電性粒子本体の表面の水酸基と反応する官能基としては、カルボキシル基、及びイソシアネート基等が挙げられ、付加、縮合反応により重合する官能基としては、水酸基、カルボキシル基、アミノ基、及び（メタ）アクリロイル基が挙げられる。

[0091] 上記アニオンポリマーの重量平均分子量は好ましくは2000以上、より好ましくは3000以上であり、好ましくは10000以下、より好ましくは8000以下である。上記重量平均分子量が上記下限以上及び上記上限以下であると、導電性粒子の表面に十分な量の電荷、及びフラックス性を導入することができる。これにより、導電接続時に導電性粒子の凝集性を効果的に高めることができ、かつ、接続対象部材の接続時に、電極の表面の酸化膜を効果的に除去することができる。

[0092] 上記重量平均分子量が上記下限以上及び上記上限以下であると、導電性粒子本体の表面上にアニオンポリマーを配置することが容易であり、導電接続時にはんだ粒子の凝集性を効果的に高めることができ、電極上に導電性粒子をより一層効率的に配置することができる。

[0093] 上記重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）により測定されたポリスチレン換算での重量平均分子量を示す。

[0094] アニオンポリマーの重量平均分子量は、導電性粒子中のはんだを溶解し、アニオンポリマーの分解を起こさない希塩酸等により、導電性粒子を除去した後、残存しているアニオンポリマーの重量平均分子量を測定することで求めることができる。

[0095] アニオンポリマーの導電性粒子の表面における導入量に関しては、導電性粒子1gあたりの酸価が、好ましくは1mg KOH以上、より好ましくは2mg KOH以上であり、好ましくは10mg KOH以下、より好ましくは6mg KOH以下である。

[0096] 上記酸価は以下のようにして測定可能である。導電性粒子1gを、アセト

ン36gに添加し、超音波にて1分間分散させる。その後、指示薬として、フェノールフタレインを用い、0.1mol/Lの水酸化カリウムエタノール溶液にて滴定する。

[0097] 次に、図面を参照しつつ、導電性粒子の具体例を説明する。

[0098] 図4は、導電材料に使用可能な導電性粒子の第1の例を示す断面図である。

[0099] 図4に示す導電性粒子21は、はんだ粒子である。導電性粒子21は、全体がはんだにより形成されている。導電性粒子21は、基材粒子をコアに有さず、コアシェル粒子ではない。導電性粒子21は、中心部分及び導電部の外表面部分のいずれもがはんだにより形成されている。

[0100] 図5は、導電材料に使用可能な導電性粒子の第2の例を示す断面図である。

[0101] 図5に示す導電性粒子31は、基材粒子32と、基材粒子32の表面上に配置された導電部33とを備える。導電部33は、基材粒子32の表面を被覆している。導電性粒子31は、基材粒子32の表面が導電部33により被覆された被覆粒子である。

[0102] 導電部33は、第2の導電部33Aと、はんだ部33B（第1の導電部）とを有する。導電性粒子31は、基材粒子32と、はんだ部33Bとの間に、第2の導電部33Aを備える。従って、導電性粒子31は、基材粒子32と、基材粒子32の表面上に配置された第2の導電部33Aと、第2の導電部33Aの外表面上に配置されたはんだ部33Bとを備える。

[0103] 図6は、導電材料に使用可能な導電性粒子の第3の例を示す断面図である。

[0104] 上記のように、導電性粒子31における導電部33は2層構造を有する。図6に示す導電性粒子41は、単層の導電部として、はんだ部42を有する。導電性粒子41は、基材粒子32と、基材粒子32の表面上に配置されたはんだ部42とを備える。

[0105] 上記基材粒子としては、樹脂粒子、金属粒子を除く無機粒子、有機無機ハ

イブリッド粒子及び金属粒子等が挙げられる。上記基材粒子は、金属を除く基材粒子であることが好ましく、樹脂粒子、金属粒子を除く無機粒子又は有機無機ハイブリッド粒子であることが好ましい。上記基材粒子は、銅粒子であってもよい。上記基材粒子は、コアと、該コアの表面上に配置されたシェルとを有していてもよく、コアシェル粒子であってもよい。上記コアが有機コアであってもよく、上記シェルが無機シェルであってもよい。

[0106] 上記樹脂粒子を形成するための樹脂として、種々の有機物が好適に用いられる。上記樹脂粒子を形成するための樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリイソブチレン、ポリブタジエン等のポリオレフィン樹脂；ポリメチルメタクリレート及びポリメチルアクリレート等のアクリル樹脂；ポリカーボネート、ポリアミド、フェノールホルムアルデヒド樹脂、メラミンホルムアルデヒド樹脂、ベンゾグアナミンホルムアルデヒド樹脂、尿素ホルムアルデヒド樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂、尿素樹脂、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、飽和ポリエステル樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリスルホン、ポリフェニレンオキサイド、ポリアセタール、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、ジビニルベンゼン重合体、並びにジビニルベンゼン系共重合体等が挙げられる。上記ジビニルベンゼン系共重合体等としては、ジビニルベンゼン-スチレン共重合体及びジビニルベンゼン-（メタ）アクリル酸エステル共重合体等が挙げられる。上記樹脂粒子の硬度を好適な範囲に容易に制御できるので、上記樹脂粒子を形成するための樹脂は、エチレン性不飽和基を有する重合性単量体を1種又は2種以上重合させた重合体であることが好ましい。

[0107] 上記樹脂粒子を、エチレン性不飽和基を有する重合性単量体を重合させて得る場合には、該エチレン性不飽和基を有する重合性単量体としては、非架橋性の単量体と架橋性の単量体とが挙げられる。

[0108] 上記非架橋性の単量体としては、例えば、スチレン、 α -メチルスチレン

等のスチレン系単量体；（メタ）アクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸等のカルボキシル基含有単量体；メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、セチル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート等のアルキル（メタ）アクリレート化合物；2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、グリセロール（メタ）アクリレート、ポリオキシエチレン（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレート等の酸素原子含有（メタ）アクリレート化合物；（メタ）アクリロニトリル等のニトリル含有単量体；メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、プロピルビニルエーテル等のビニルエーテル化合物；酢酸ビニル、酪酸ビニル、ラウリン酸ビニル、ステアリン酸ビニル等の酸ビニルエステル化合物；エチレン、プロピレン、イソプレン、ブタジエン等の不飽和炭化水素；トリフルオロメチル（メタ）アクリレート、ペンタフルオロエチル（メタ）アクリレート、塩化ビニル、フッ化ビニル、クロルスチレン等のハロゲン含有単量体等が挙げられる。

[0109] 上記架橋性の単量体としては、例えば、テトラメチロールメタンテトラ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタンジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、グリセロールトリ（メタ）アクリレート、グリセロールジ（メタ）アクリレート、（ポリ）エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、（ポリ）プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、（ポリ）テトラメチレングリコールジ（メタ）アクリレート、1,4-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート等の多官能（メタ）アクリレート化合物；トリアリル（イソ）シアヌレート、トリアリルトリメリテート、ジビニルベンゼン、ジアリルフタレート、ジアリル

アクリルアミド、ジアリルエーテル、並びに、 γ -（メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、トリメトキシシリルスチレン、ビニルトリメトキシシラン等のシラン含有単量体等が挙げられる。

[0110] 上記エチレン性不飽和基を有する重合性単量体を、公知の方法により重合させることで、上記樹脂粒子を得ることができる。この方法としては、例えば、ラジカル重合開始剤の存在下で懸濁重合する方法、並びに非架橋の種粒子を用いてラジカル重合開始剤とともに単量体を膨潤させて重合する方法等が挙げられる。

[0111] 上記基材粒子が金属を除く無機粒子又は有機無機ハイブリッド粒子である場合には、基材粒子を形成するための無機物としては、シリカ、アルミナ、チタン酸バリウム、ジルコニア及びカーボンブラック等が挙げられる。上記無機物は、金属ではないことが好ましい。上記シリカにより形成された粒子としては特に限定されないが、例えば、加水分解性のアルコキシシリル基を2つ以上有するケイ素化合物を加水分解して架橋重合体粒子を形成した後に、必要に応じて焼成を行うことにより得られる粒子が挙げられる。上記有機無機ハイブリッド粒子としては、例えば、架橋したアルコキシシリルポリマーとアクリル樹脂とにより形成された有機無機ハイブリッド粒子等が挙げられる。

[0112] 上記基材粒子が金属粒子である場合に、該金属粒子を形成するための金属としては、銀、銅、ニッケル、ケイ素、金及びチタン等が挙げられる。上記基材粒子が金属粒子である場合に、該金属粒子は銅粒子であることが好ましい。但し、上記基材粒子は金属粒子ではないことが好ましい。

[0113] 上記基材粒子の粒子径は、好ましくは0.1 μm 以上、より好ましくは1 μm 以上、更に好ましくは1.5 μm 以上、特に好ましくは2 μm 以上であり、好ましくは100 μm 以下、より好ましくは50 μm 以下、より一層好ましくは40 μm 以下、更に好ましくは20 μm 以下、更に一層好ましくは10 μm 以下、特に好ましくは5 μm 以下、最も好ましくは3 μm 以下である。上記基材粒子の粒子径が上記下限以上であると、導電性粒子と電極との

接触面積が大きくなるため、電極間の導通信頼性をより一層高めることができ、導電性粒子を介して接続された電極間の接続抵抗をより一層低くすることができる。上記基材粒子の粒子径が上記上限以下であると、導電性粒子が十分に圧縮されやすく、電極間の接続抵抗をより一層低くことができ、更に電極間の間隔をより小さくすることができる。

[0114] 上記基材粒子の粒子径は、基材粒子が真球状である場合には、直径を示し、基材粒子が真球状ではない場合には、最大径を示す。

[0115] 上記基材粒子の粒子径は、 $2\ \mu\text{m}$ 以上、 $5\ \mu\text{m}$ 以下であることが特に好ましい。上記基材粒子の粒子径が $2\ \mu\text{m}$ 以上、 $5\ \mu\text{m}$ 以下の範囲内であると、電極間の間隔をより小さくことができ、かつ導電部の厚みを厚くしても、小さい導電性粒子を得ることができる。

[0116] 上記基材粒子の表面上に導電部を形成する方法、並びに上記基材粒子の表面上又は上記第2の導電部の表面上にはんだ部を形成する方法は特に限定されない。上記導電部及び上記はんだ部を形成する方法としては、例えば、無電解めっきによる方法、電気めっきによる方法、物理的な衝突による方法、メカノケミカル反応による方法、物理的蒸着又は物理的吸着による方法、並びに金属粉末もしくは金属粉末とバインダーとを含むペーストを基材粒子の表面にコーティングする方法等が挙げられる。無電解めっき、電気めっき又は物理的な衝突による方法が好適である。上記物理的蒸着による方法としては、真空蒸着、イオンプレーティング及びイオンスパッタリング等の方法が挙げられる。また、上記物理的な衝突による方法では、例えば、シーターコンポーザ（徳寿工作所社製）等が用いられる。

[0117] 上記基材粒子の融点は、上記導電部及び上記はんだ部の融点よりも高いことが好ましい。上記基材粒子の融点は、好ましくは 160°C を超え、より好ましくは 300°C を超え、更に好ましくは 400°C を超え、特に好ましくは 450°C を超える。なお、上記基材粒子の融点は、 400°C 未満であってもよい。上記基材粒子の融点は、 160°C 以下であってもよい。上記基材粒子の軟化点は 260°C 以上であることが好ましい。上記基材粒子の軟化点は2

60℃未満であってもよい。

[0118] 上記導電性粒子は、単層のはんだ部を有していてもよい。上記導電性粒子は、複数の層の導電部（はんだ部、第2の導電部）を有していてもよい。すなわち、上記導電性粒子では、導電部を2層以上積層してもよい。上記導電部が2層以上の場合、上記導電性粒子は、導電部の外表面部分にはんだを有することが好ましい。

[0119] 上記はんだは、融点が450℃以下である金属（低融点金属）であることが好ましい。上記はんだ部は、融点が450℃以下である金属層（低融点金属層）であることが好ましい。上記低融点金属層は、低融点金属を含む層である。上記導電性粒子におけるはんだは、融点が450℃以下である金属粒子（低融点金属粒子）であることが好ましい。上記低融点金属粒子は、低融点金属を含む粒子である。該低融点金属とは、融点が450℃以下の金属を示す。低融点金属の融点は好ましくは300℃以下、より好ましくは160℃以下である。また、上記導電性粒子におけるはんだは錫を含むことが好ましい。上記はんだ部に含まれる金属100重量%中及び上記導電性粒子におけるはんだに含まれる金属100重量%中、錫の含有量は好ましくは30重量%以上、より好ましくは40重量%以上、更に好ましくは70重量%以上、特に好ましくは90重量%以上である。上記導電性粒子におけるはんだに含まれる錫の含有量が上記下限以上であると、導電性粒子と電極との導通信頼性がより一層高くなる。

[0120] なお、上記錫の含有量は、高周波誘導結合プラズマ発光分光分析装置（堀場製作所社製「ICP-AES」）、又は蛍光X線分析装置（島津製作所社製「EDX-800HS」）等を用いて測定可能である。

[0121] 上記はんだを導電部の外表面部分に有する導電性粒子を用いることで、はんだが溶融して電極に接合し、はんだが電極間を導通させる。例えば、はんだと電極とが点接触ではなく面接触しやすいため、接続抵抗が低くなる。また、はんだを導電部の外表面部分に有する導電性粒子の使用により、はんだと電極との接合強度が高くなる結果、はんだと電極との剥離がより一層生じ

難くなり、導通信頼性が効果的に高くなる。

[0122] 上記はんだ部及び上記はんだ粒子を構成する低融点金属は特に限定されない。該低融点金属は、錫、又は錫を含む合金であることが好ましい。該合金は、錫－銀合金、錫－銅合金、錫－銀－銅合金、錫－ビスマス合金、錫－亜鉛合金、錫－インジウム合金等が挙げられる。電極に対する濡れ性に優れることから、上記低融点金属は、錫、錫－銀合金、錫－銀－銅合金、錫－ビスマス合金、錫－インジウム合金であることが好ましい。錫－ビスマス合金、錫－インジウム合金であることがより好ましい。

[0123] 上記はんだ（はんだ部）を構成する材料は、JIS Z3001：溶接用語に基づき、液相線が450℃以下である溶加材であることが好ましい。上記はんだの組成としては、例えば亜鉛、金、銀、鉛、銅、錫、ビスマス、インジウムなどを含む金属組成が挙げられる。低融点で鉛フリーである錫－インジウム系（117℃共晶）、又は錫－ビスマス系（139℃共晶）が好ましい。すなわち、上記はんだは、鉛を含まないことが好ましく、錫とインジウムとを含むはんだ、又は錫とビスマスとを含むはんだであることが好ましい。

[0124] 上記はんだと電極との接合強度をより一層高めるために、上記導電性粒子におけるはんだは、ニッケル、銅、アンチモン、アルミニウム、亜鉛、鉄、金、チタン、リン、ゲルマニウム、テルル、コバルト、ビスマス、マンガン、クロム、モリブデン、パラジウム等の金属を含んでいてもよい。また、はんだと電極との接合強度をさらに一層高める観点からは、上記導電性粒子におけるはんだは、ニッケル、銅、アンチモン、アルミニウム又は亜鉛を含むことが好ましい。はんだ部又は導電性粒子におけるはんだと電極との接合強度をより一層高める観点からは、接合強度を高めるためのこれらの金属の含有量は、上記導電性粒子におけるはんだ100重量%中、好ましくは0.0001重量%以上であり、好ましくは1重量%以下である。

[0125] 上記第2の導電部の融点は、上記はんだ部の融点よりも高いことが好ましい。上記第2の導電部の融点は好ましくは160℃を超え、より好ましくは

300℃を超え、更に好ましくは400℃を超え、更に一層好ましくは450℃を超え、特に好ましくは500℃を超え、最も好ましくは600℃を超える。上記はんだ部は融点が低いために導電接続時に溶融する。上記第2の導電部は導電接続時に溶融しないことが好ましい。上記導電性粒子は、はんだを溶融させて用いられることが好ましく、上記はんだ部を溶融させて用いられることが好ましく、上記はんだ部を溶融させてかつ上記第2の導電部を溶融させずに用いられることが好ましい。上記第2の導電部の融点が上記はんだ部の融点よりも高いことによって、導電接続時に、上記第2の導電部を溶融させずに、上記はんだ部のみを溶融させることができる。

[0126] 上記はんだ部の融点と上記第2の導電部の融点との差の絶対値は、0℃を超え、好ましくは5℃以上、より好ましくは10℃以上、更に好ましくは30℃以上、特に好ましくは50℃以上、最も好ましくは100℃以上である。

[0127] 上記第2の導電部は、金属を含むことが好ましい。上記第2の導電部を構成する金属は、特に限定されない。該金属としては、例えば、金、銀、銅、白金、パラジウム、亜鉛、鉛、アルミニウム、コバルト、インジウム、ニッケル、クロム、チタン、アンチモン、ビスマス、ゲルマニウム及びカドミウム、並びにこれらの合金等が挙げられる。また、上記金属として、錫ドーパ酸化インジウム（ITO）を用いてもよい。上記金属は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0128] 上記第2の導電部は、ニッケル層、パラジウム層、銅層又は金層であることが好ましく、ニッケル層又は金層であることがより好ましく、銅層であることが更に好ましい。導電性粒子は、ニッケル層、パラジウム層、銅層又は金層を有することが好ましく、ニッケル層又は金層を有することがより好ましく、銅層を有することが更に好ましい。これらの好ましい導電部を有する導電性粒子を電極間の接続に用いることにより、電極間の接続抵抗がより一層低くなる。また、これらの好ましい導電部の表面には、はんだ部をより一層容易に形成できる。

- [0129] 上記はんだ部の厚みは、好ましくは $0.005\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.01\ \mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $10\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $1\ \mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは $0.3\ \mu\text{m}$ 以下である。はんだ部の厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、十分な導電性が得られ、かつ導電性粒子が硬くなりすぎずに、電極間の接続の際に導電性粒子が充分に変形する。
- [0130] 上記導電性粒子の平均粒子径は、好ましくは $0.5\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $1\ \mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは $3\ \mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $100\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $50\ \mu\text{m}$ 以下、更に好ましくは $40\ \mu\text{m}$ 以下、特に好ましくは $30\ \mu\text{m}$ 以下である。上記導電性粒子の平均粒子径が上記下限以上及び上記上限以下であると、電極上に導電性粒子におけるはんだをより一層効率的に配置することができ、電極間に導電性粒子におけるはんだを多く配置することが容易であり、導通信頼性がより一層高くなる。
- [0131] 上記導電性粒子の「平均粒子径」は、数平均粒子径を示す。導電性粒子の平均粒子径は、例えば、任意の導電性粒子 50 個を電子顕微鏡又は光学顕微鏡にて観察し、平均値を算出することにより求められる。
- [0132] 上記導電性粒子の形状は特に限定されない。上記導電性粒子の形状は、球状であってもよく、扁平状などの球形状以外の形状であってもよい。
- [0133] 上記導電材料 100 重量%中、上記導電性粒子の含有量は好ましくは 1 重量%以上、より好ましくは 2 重量%以上、更に好ましくは 10 重量%以上、特に好ましくは 20 重量%以上、最も好ましくは 30 重量%以上であり、好ましくは 80 重量%以下、より好ましくは 60 重量%以下、更に好ましくは 50 重量%以下である。上記導電性粒子の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、電極上に導電性粒子におけるはんだをより一層効率的に配置することができ、電極間に導電性粒子におけるはんだを多く配置することが容易であり、導通信頼性がより一層高くなる。導通信頼性をより一層高める観点からは、上記導電性粒子の含有量が多い方が好ましい。
- [0134] (熱硬化性化合物)
上記熱硬化性化合物は、加熱により硬化可能な化合物である。上記熱硬化

性化合物としては、オキセタン化合物、エポキシ化合物、エピスルフィド化合物、(メタ)アクリル化合物、フェノール化合物、アミノ化合物、不飽和ポリエステル化合物、ポリウレタン化合物、シリコン化合物及びポリイミド化合物等が挙げられる。導電材料の硬化性及び粘度をより一層良好にし、接続信頼性をより一層高める観点から、エポキシ化合物又はエピスルフィド化合物が好ましく、エポキシ化合物がより好ましい。上記導電材料は、エポキシ化合物を含むことが好ましい。上記熱硬化性化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0135] 上記エポキシ化合物としては、芳香族エポキシ化合物が挙げられる。レゾルシノール型エポキシ化合物、ナフタレン型エポキシ化合物、ビフェニル型エポキシ化合物、及びベンゾフェノン型エポキシ化合物等の結晶性エポキシ化合物が好ましい。常温(23℃)で固体であり、かつ溶融温度がはんだの融点以下であるエポキシ化合物が好ましい。溶融温度は好ましくは100℃以下、より好ましくは80℃以下、好ましくは40℃以上である。上記の好ましいエポキシ化合物を用いることで、接続対象部材を貼り合わせた段階では、粘度が高く、搬送等の衝撃により、加速度が付与された際に、第1の接続対象部材と、第2の接続対象部材との位置ずれを抑制することができ、なおかつ、硬化時の熱により、導電材料の粘度を大きく低下させることができ、はんだの凝集を効率よく進行させることができる。

[0136] 黒いすすの発生を抑制する観点から、上記導電材料は、上記熱硬化性成分及び上記熱硬化性化合物として、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物を含むことが好ましい。導電材料の硬化性を高め、接続信頼性を高める観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物は、エポキシ基又はチラン基を有することが好ましく、イソシアヌル骨格を有するエポキシ化合物又はイソシアヌル骨格を有するエピスルフィド化合物であることが好ましい。イソシアヌル骨格を有するエポキシ化合物が特に好ましい。上記導電材料は、イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物を含んでいてもよい。

[0137] 上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物としてはトリアジントリグ

リシジルエーテル等が挙げられ、日産化学工業社製TEPICシリーズ（TEPIC-G、TEPIC-S、TEPIC-SS、TEPIC-HP、TEPIC-L、TEPIC-PAS、TEPIC-VL、TEPIC-UC）等が挙げられる。

[0138] 上記イソシアヌル骨格を有するエピスルフィド化合物は、例えば、イソシアヌル骨格を有するエポキシ化合物のエポキシ基をチラン基に変換することにより得られる。この変換方法は、公知である。

[0139] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物の分子量は、好ましくは200以上、より好ましくは300以上であり、好ましくは1000以下、より好ましくは600以下である。

[0140] 導電材料の硬化性を高め、接続信頼性を高める観点からは、上記導電材料は、上記熱硬化性成分及び上記熱硬化性化合物として、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物とともに、イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物を含むことが好ましい。導電材料の硬化性及び硬化物の耐熱性を高め、接続信頼性を高める観点からは、上記イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物は、芳香族骨格又は脂環式骨格を有することが好ましく、イソシアヌル骨格を有さず、かつ芳香族骨格又は脂環式骨格を有する熱硬化性化合物であることが好ましい。

[0141] 上記導電材料100重量%中、上記熱硬化性化合物の全体の含有量は、好ましくは20重量%以上、より好ましくは40重量%以上、更に好ましくは50重量%以上であり、好ましくは99重量%以下、より好ましくは98重量%以下、更に好ましくは90重量%以下、特に好ましくは80重量%以下である。上記熱硬化性化合物の含有量が、上記下限以上及び上記上限以下であると、導電性粒子におけるはんだを電極上により一層効率的に配置し、電極間の位置ずれをより一層抑制し、電極間の導通信頼性をより一層高めることができる。耐衝撃性をより一層高める観点からは、上記熱硬化性化合物の含有量が多い方が好ましい。導電材料の硬化性及び粘度をより一層良好にし

、接続信頼性をより一層高める観点から、上記導電材料100重量%中、上記エポキシ化合物の含有量は、好ましくは10重量%以上、より好ましくは15重量%以上であり、好ましくは50重量%以下、より好ましくは30重量%以下である。

[0142] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記導電材料100重量%中、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性成分の含有量は、好ましくは5重量%以上、より好ましくは10重量%以上であり、好ましくは30重量%以下、より好ましくは20重量%以下である。

[0143] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記導電材料100重量%中、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物の含有量は、好ましくは5重量%以上、より好ましくは10重量%以上であり、好ましくは30重量%以下、より好ましくは20重量%以下である。

[0144] 導電材料の硬化性を高め、接続信頼性を高める観点からは、上記導電材料100重量%中、上記イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物の含有量は、好ましくは1重量%以上、より好ましくは2重量%以上であり、好ましくは20重量%以下、より好ましくは15重量%以下である。

[0145] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量の、上記フラックスの含有量に対する重量比（イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量／フラックスの含有量）は、好ましくは0.5以上、より好ましくは3以上であり、好ましくは20以下、より好ましくは15以下であり、1以下であってもよい。上記フラックスがイソシアヌル骨格を有するフラックスを含む場合に、上記フラックスの含有量には、イソシアヌル骨格を有するフラックスの含有量も含まれる。

[0146] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性成分の含有量の、上記フラックスの含有量に対する重量比（イソシアヌル骨格を有する熱硬化性成分の含有量／フラックスの含有量）は、好ましくは0.5以上、より好ましくは3以上であり、好ましくは20以下、より好ましくは15以下である。

[0147] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物の含有量の、上記フラックスの含有量に対する重量比（イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物の含有量／フラックスの含有量）は、好ましくは0.5以上、より好ましくは3以上であり、好ましくは20以下、より好ましくは15以下である。

[0148] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量の、上記導電性粒子の含有量に対する重量比（イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量／導電性粒子の含有量）は、好ましくは0.05以上、より好ましくは0.1以上であり、好ましくは0.5以下、より好ましくは0.4以下である。

[0149] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性成分の含有量の、上記導電性粒子の含有量に対する重量比（イソシアヌル骨格を有する熱硬化性成分の含有量／導電性粒子の含有量）は、好ましくは0.05以上、より好ましくは0.1以上であり、好ましくは0.5以下、より好ましくは0.4以下である。

[0150] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物の含有量の、上記導電性粒子の含有量に対する重量比（イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物の含有量／導電性粒子の含有量）は、好ましくは0.05以上、より好ましくは0.1以上であり、好ましくは0.5以下、より好ましくは0.4以下である。

[0151] （熱硬化剤）

上記熱硬化剤は、上記熱硬化性化合物を熱硬化させる。上記熱硬化剤としては、イミダゾール硬化剤、フェノール硬化剤、チオール硬化剤、アミン硬化剤、酸無水物硬化剤、熱カチオン開始剤（熱カチオン硬化剤）及び熱ラジカル発生剤等がある。上記熱硬化剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0152] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、イソシアヌル骨格を有する熱硬化剤又はチオール硬化剤が好ましい。黒いすすの発生をより一層抑制

する観点からは、イソシアヌル骨格を有する熱硬化剤が好ましく、チオール硬化剤が好ましい。上記導電材料は、イソシアヌル骨格を有さない熱硬化剤を含んでいてもよい。

[0153] 上記イミダゾール硬化剤としては、特に限定されず、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテート、2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジン及び2,4-ジアミノ-6-[2'-メチルイミダゾリル-(1')] -エチル-s-トリアジンイソシアヌル酸付加物等が挙げられる。

[0154] 上記チオール硬化剤としては、特に限定されず、トリメチロールプロパントリス-3-メルカプトプロピオネート、ペンタエリスリトールテトラキス-3-メルカプトプロピオネート及びジペンタエリスリトールヘキサ-3-メルカプトプロピオネート等が挙げられる。

[0155] 上記チオール硬化剤の溶解度パラメーターは、好ましくは9.5以上であり、好ましくは12以下である。上記溶解度パラメーターは、Fedors法にて計算される。例えば、トリメチロールプロパントリス-3-メルカプトプロピオネートの溶解度パラメーターは9.6、ジペンタエリスリトールヘキサ-3-メルカプトプロピオネートの溶解度パラメーターは11.4である。

[0156] 上記アミン硬化剤としては、特に限定されず、ヘキサメチレンジアミン、オクタメチレンジアミン、デカメチレンジアミン、3,9-ビス(3-アミノプロピル)-2,4,8,10-テトラスピロ[5.5]ウンデカン、ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタン、メタフェニレンジアミン及びジアミノジフェニルスルホン等が挙げられる。

[0157] 上記熱カチオン開始剤としては、ヨードニウム系カチオン硬化剤、オキソニウム系カチオン硬化剤及びスルホニウム系カチオン硬化剤等が挙げられる。上記ヨードニウム系カチオン硬化剤としては、ビス(4-tert-ブチ

ルフェニル) ヨードニウムヘキサフルオロホスファート等が挙げられる。上記オキソニウム系カチオン硬化剤としては、トリメチルオキソニウムテトラフルオロボラート等が挙げられる。上記スルホニウム系カチオン硬化剤としては、トリ-*p*-トリルスルホニウムヘキサフルオロホスファート等が挙げられる。

[0158] 上記熱ラジカル発生剤としては、特に限定されず、アゾ化合物及び有機過酸化物等が挙げられる。上記アゾ化合物としては、アゾビスイソブチロニトリル (AIBN) 等が挙げられる。上記有機過酸化物としては、ジ-*t*er-*t*-ブチルペルオキシド及びメチルエチルケトンペルオキシド等が挙げられる。

[0159] 上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化剤としては、トリス- [(3-メルカプトプロピオニルオキシ)-エチル]-イソシアヌレート等が挙げられる。

[0160] 上記熱硬化剤の反応開始温度は、好ましくは50℃以上、より好ましくは70℃以上、更に好ましくは80℃以上であり、好ましくは250℃以下、より好ましくは200℃以下、更に好ましくは150℃以下、特に好ましくは140℃以下である。上記熱硬化剤の反応開始温度が上記下限以上及び上記上限以下であると、はんだが電極上により一層効率的に配置される。上記熱硬化剤の反応開始温度は80℃以上、140℃以下であることが特に好ましい。

[0161] はんだを電極上により一層効率的に配置する観点からは、上記熱硬化剤の反応開始温度は、上記導電性粒子におけるはんだの融点よりも、高いことが好ましく、5℃以上高いことがより好ましく、10℃以上高いことが更に好ましい。

[0162] 上記熱硬化剤の反応開始温度は、DSCでの発熱ピークの立ち上がり開始の温度を意味する。

[0163] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化剤の分子量は、好ましくは200以上、より好ましくは300

以上であり、好ましくは1000以下、より好ましくは600以下である。

[0164] 上記熱硬化剤の含有量は特に限定されない。上記熱硬化性化合物100重量部に対して、上記熱硬化剤の含有量は、好ましくは0.01重量部以上、より好ましくは1重量部以上であり、好ましくは200重量部以下、より好ましくは100重量部以下、更に好ましくは75重量部以下である。熱硬化剤の含有量が上記下限以上であると、導電材料を十分に硬化させることが容易である。熱硬化剤の含有量が上記上限以下であると、硬化後に硬化に関与しなかった余剰の熱硬化剤が残存し難くなり、かつ硬化物の耐熱性がより一層高くなる。

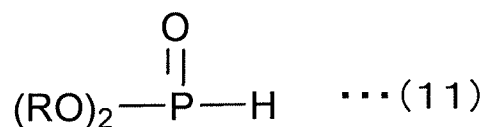
[0165] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記導電材料100重量%中、上記イソシアヌル骨格を有する熱硬化剤の含有量は、好ましくは5重量%以上、より好ましくは10重量%以上であり、好ましくは30重量%以下、より好ましくは20重量%以下である。

[0166] (リン酸化合物)

電極上にはんだをより一層効率的に集める観点からは、上記導電材料は、リン酸化合物を含むことが好ましい。上記リン酸化合物は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0167] 電極上にはんだをより一層効率的に集める観点からは、上記リン酸化合物は、亜リン酸又は亜リン酸エステルであることが好ましく、亜リン酸エステルであることがより好ましく、亜リン酸エステルは、下記式(11)で表される亜リン酸エステルであることがより好ましい。

[0168] [化7]



[0169] 上記式(11)中、Rは、炭素数1以上、15以下の有機基であることが好ましく、炭素数6以上、15以下の有機基であることがより好ましい。

[0170] 上記リン酸化合物は、炭素数6以上、15以下の有機基を1個以上有する

ことが好ましく、炭素数6以上、15以下の炭化水素基を1個以上有することがより好ましく、炭素数6以上、15以下のアリール基を1個以上有することが特に好ましい。上記リン酸化合物は、これらの各基を2個有していてもよい。特にアリール基を1個以上有する亜リン酸が好ましく、アリール基を2個有する亜リン酸がより好ましく、ジフェニル亜リン酸又はジベンジル亜リン酸が更に好ましい。アリール基を2個有する亜リン酸は、フェニル基を1個有していてもよく、フェニル基を2個有していてもよく、ベンジル基を1個有していてもよく、ベンジル基を2個有していてもよい。

[0171] 上記リン酸化合物1gを水10gに溶解させた水溶液のpHを測定する。上記水溶液のpHは、好ましくは3.5以上、より好ましくは3.7以上、更に好ましくは5以上であり、好ましくは6以下である。上記水溶液のpHは、5以下であってもよい。上記水溶液のpHが上記下限以上及び上記上限以下であると、電極上にはんだがより一層効率的に集まる。上記水溶液のpHは、3を超えていてもよく、4を超えていてもよく、5を超えていてもよく、7以上であってもよい。

[0172] 上記水溶液のpHは、pH計（HORIBA社製「D-72」）、電極ToupH 電極 9615-10Dを用いて測定することができる。

[0173] 電極上にはんだをより一層効率的に集める観点からは、上記亜リン酸エステルは、亜リン酸モノエステル又は亜リン酸ジエステルであることが好ましい。電極上にはんだをより一層効率的に集める観点からは、上記リン酸化合物は、（メタ）アクリロイル基を有さないことが好ましく、（メタ）アクリレート化合物ではないことが好ましい。

[0174] 上記リン酸化合物は、リン酸又はリン酸化合物とイミダゾール化合物との反応物であってもよい。

[0175] 電極上にはんだをより一層効率的に配置し、導通信頼性をより一層高める観点からは、上記導電材料100重量%中、上記リン酸化合物の含有量は好ましくは0.1重量%以上、より好ましくは1重量%以上であり、好ましくは15重量%以下、より好ましくは10重量%以下である。

[0176] (フラックス)

上記導電材料は、フラックスを含む。フラックスの使用により、はんだを電極上により一層効果的に配置することができる。はんだがフラックスによりフラックス作用を受けるときに、黒いすすが発生しやすい。しかし、本発明では、イソシアヌル骨格を有する化合物を用いているために、黒いすすの発生を抑制することができる。上記フラックスは特に限定されない。フラックスとして、はんだ接合等に一般的に用いられているフラックスを使用できる。

[0177] 上記フラックスとしては、例えば、塩化亜鉛、塩化亜鉛と無機ハロゲン化合物との混合物、塩化亜鉛と無機酸との混合物、熔融塩、リン酸、リン酸の誘導体、有機ハロゲン化合物、ヒドラジン、有機酸及び松脂等が挙げられる。上記フラックスは1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0178] 上記熔融塩としては、塩化アンモニウム等が挙げられる。上記有機酸としては、乳酸、クエン酸、ステアリン酸、グルタミン酸及びグルタル酸等が挙げられる。上記松脂としては、活性化松脂及び非活性化松脂等が挙げられる。上記フラックスは、カルボキシル基を2個以上有する有機酸又は松脂であることが好ましい。上記フラックスは、カルボキシル基を2個以上有する有機酸であってもよく、松脂であってもよい。カルボキシル基を2個以上有する有機酸、松脂の使用により、電極間の導通信頼性がより一層高くなる。

[0179] 上記松脂はアビエチン酸を主成分とするロジン類である。フラックスは、ロジン類であることが好ましく、アビエチン酸であることがより好ましい。この好ましいフラックスの使用により、電極間の導通信頼性がより一層高くなる。

[0180] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、イソシアヌル骨格を有するフラックスが好ましい。上記導電材料は、イソシアヌル骨格を有さないフラックスを含んでいてもよい。

[0181] 上記イソシアヌル骨格を有するフラックスとしては、カルボキシル基とイ

ソシアヌル骨格とを有する化合物等が挙げられる。上記イソシアヌル骨格を有するフラックスの市販品としては、C I C酸及びM A C I C - 1（四国化成工業社製）等が挙げられる。上記導電材料は、イソシアヌル骨格を有さないフラックスを含んでいてもよい。

[0182] 上記フラックスの活性温度（融点）は、好ましくは50℃以上、より好ましくは70℃以上、更に好ましくは80℃以上であり、好ましくは200℃以下、より好ましくは190℃以下、より一層好ましくは160℃以下、更に好ましくは150℃以下、更に一層好ましくは140℃以下である。上記フラックスの活性温度が上記下限以上及び上記上限以下であると、フラックス効果がより一層効果的に発揮され、はんだが電極上により一層効率的に配置される。上記フラックスの活性温度（融点）は80℃以上、190℃以下であることが好ましい。上記フラックスの活性温度（融点）は80℃以上、140℃以下であることが特に好ましい。

[0183] フラックスの活性温度（融点）が80℃以上、190℃以下である上記フラックスとしては、コハク酸（融点186℃）、グルタル酸（融点96℃）、アジピン酸（融点152℃）、ピメリン酸（融点104℃）、スベリン酸（融点142℃）等のジカルボン酸、安息香酸（融点122℃）、リンゴ酸（融点130℃）等が挙げられる。

[0184] また、上記フラックスの沸点は200℃以下であることが好ましい。

[0185] はんだを電極上により一層効率的に配置する観点からは、上記フラックスの融点は、上記導電性粒子におけるはんだの融点よりも、高いことが好ましく、5℃以上高いことがより好ましく、10℃以上高いことが更に好ましい。

[0186] はんだを電極上により一層効率的に配置する観点からは、上記フラックスの融点は、上記熱硬化剤の反応開始温度よりも、高いことが好ましく、5℃以上高いことがより好ましく、10℃以上高いことが更に好ましい。

[0187] 上記フラックスは、導電材料中に分散されていてもよく、導電性粒子の表面上に付着していてもよい。

- [0188] フラックスの融点が、はんだの融点より高いことにより、電極部分にはんだを効率的に凝集させることができる。これは、接合時に熱を付与した場合、接続対象部材上に形成された電極と、電極周辺の接続対象部材の部分とを比較すると、電極部分の熱伝導率が電極周辺の接続対象部材部分の熱伝導率よりも高いことにより、電極部分の昇温が速いことに起因する。導電性粒子におけるはんだの融点を超えた段階では、導電性粒子におけるはんだは溶解するが、表面に形成された酸化被膜は、フラックスの融点（活性温度）に達していないので、除去されない。この状態で、電極部分の温度が先に、フラックスの融点（活性温度）に達するため、優先的に電極上に来た導電性粒子におけるはんだの表面の酸化被膜が除去されることや、活性化したフラックスにより導電性粒子におけるはんだの表面の電荷が中和されることにより、はんだが電極の表面上に濡れ広がることができる。これにより、電極上に効率的にはんだを凝集させることができる。
- [0189] 上記フラックスは、加熱によりカチオンを放出するフラックスであることが好ましい。加熱によりカチオンを放出するフラックスの使用により、はんだを電極上により一層効率的に配置することができる。
- [0190] 上記加熱によりカチオンを放出するフラックスとしては、上記熱カチオン開始剤が挙げられる。
- [0191] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記イソシアヌル骨格を有するフラックスの分子量は、好ましくは200以上、より好ましくは300以上であり、好ましくは1000以下、より好ましくは600以下である。
- [0192] 上記導電材料100重量%中、上記フラックスの含有量は好ましくは0.5重量%以上であり、好ましくは30重量%以下、より好ましくは25重量%以下である。フラックスの含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、はんだ及び電極の表面に酸化被膜がより一層形成され難くなり、さらに、はんだ及び電極の表面に形成された酸化被膜をより一層効果的に除去できる。

[0193] 黒いすすの発生をより一層抑制する観点からは、上記導電材料100重量%中、上記イソシアヌル骨格を有するフラックスの含有量は、好ましくは5重量%以上、より好ましくは10重量%以上であり、好ましくは30重量%以下、より好ましくは20重量%以下である。

[0194] (他の成分)

上記導電材料は、必要に応じて、例えば、充填剤、増量剤、軟化剤、可塑性剤、重合触媒、硬化触媒、着色剤、酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、紫外線吸収剤、滑剤、帯電防止剤及び難燃剤等の各種添加剤を含んでいてもよい。

[0195] (接続構造体及び接続構造体の製造方法)

本発明に係る接続構造体は、少なくとも1つの第1の電極を表面に有する第1の接続対象部材と、少なくとも1つの第2の電極を表面に有する第2の接続対象部材と、上記第1の接続対象部材と、上記第2の接続対象部材とを接続している接続部とを備える。本発明に係る接続構造体では、上記接続部の材料が、上述した導電材料であり、上記接続部が、上述した導電材料の硬化物である。本発明に係る接続構造体では、上記第1の電極と上記第2の電極とが、上記接続部中のはんだ部により電氣的に接続されている。

[0196] 上記接続構造体の製造方法は、上述した導電材料を用いて、少なくとも1つの第1の電極を表面に有する第1の接続対象部材の表面上に、上記導電材料を配置する工程と、上記導電材料の上記第1の接続対象部材側とは反対の表面上に、少なくとも1つの第2の電極を表面に有する第2の接続対象部材を、上記第1の電極と上記第2の電極とが対向するように配置する工程と、上記導電性粒子におけるはんだの融点以上に上記導電材料を加熱することで、上記第1の接続対象部材と上記第2の接続対象部材とを接続している接続部を、上記導電材料により形成し、かつ、上記第1の電極と上記第2の電極とを、上記接続部中のはんだ部により電氣的に接続する工程とを備える。好ましくは、上記熱硬化性成分、熱硬化性化合物の硬化温度以上に上記導電材料を加熱する。

[0197] 本発明に係る接続構造体及び上記接続構造体の製造方法では、特定の導電材料を用いているので、複数の導電性粒子におけるはんだが第1の電極と第2の電極との間に集まりやすく、はんだを電極（ライン）上に効率的に配置することができる。また、はんだの一部が、電極が形成されていない領域（スペース）に配置され難く、電極が形成されていない領域に配置されるはんだの量をかなり少なくすることができる。従って、第1の電極と第2の電極との間の導通信頼性を高めることができる。しかも、接続されてはならない横方向に隣接する電極間の電氣的な接続を防ぐことができ、絶縁信頼性を高めることができる。

[0198] また、複数の導電性粒子におけるはんだを電極上に効率的に配置し、かつ電極が形成されていない領域に配置されるはんだの量をかなり少なくするためには、導電フィルムではなく、導電ペーストを用いることが好ましい。

[0199] 電極間でののはんだ部の厚みは、好ましくは10 μ m以上、より好ましくは20 μ m以上であり、好ましくは100 μ m以下、より好ましくは80 μ m以下である。電極の表面上のはんだ濡れ面積（電極の露出した面積100%中のはんだが接している面積）は、好ましくは50%以上、より好ましくは60%以上、更に好ましくは70%以上であり、好ましくは100%以下である。

[0200] 本発明に係る接続構造体の製造方法では、上記第2の接続対象部材を配置する工程及び上記接続部を形成する工程において、加圧を行わず、上記導電材料には、上記第2の接続対象部材の重量が加わることが好ましく、上記第2の接続対象部材を配置する工程及び上記接続部を形成する工程において、上記導電材料には、上記第2の接続対象部材の重量の力を超える加圧圧力は加わらないことが好ましい。これらの場合には、複数のはんだ部において、はんだ量の均一性をより一層高めることができる。さらに、はんだ部の厚みをより一層効果的に厚くすることができ、複数の導電性粒子におけるはんだが電極間に多く集まりやすくなり、複数の導電性粒子におけるはんだを電極（ライン）上により一層効率的に配置することができる。また、複数の導電

性粒子におけるはんだの一部が、電極が形成されていない領域（スペース）に配置され難く、電極が形成されていない領域に配置される導電性粒子におけるはんだの量をより一層少なくすることができる。従って、電極間の導通信頼性をより一層高めることができる。しかも、接続されてはならない横方向に隣接する電極間の電氣的な接続をより一層防ぐことができ、絶縁信頼性をより一層高めることができる。

[0201] さらに、上記第2の接続対象部材を配置する工程及び上記接続部を形成する工程において、加圧を行わず、上記導電材料に、上記第2の接続対象部材の重量が加われば、接続部が形成される前に電極が形成されていない領域（スペース）に配置されていたはんだが第1の電極と第2の電極との間により一層集まりやすくなり、複数の導電性粒子におけるはんだを電極（ライン）上により一層効率的に配置することができることも、見出した。本発明では、導電フィルムではなく、導電ペーストを用いるという構成と、加圧を行わず、上記導電ペーストには、上記第2の接続対象部材の重量が加わるようにするという構成とを組み合わせることに、本発明の効果をより一層高いレベルで得るために大きな意味がある。

[0202] なお、WO 2008/023452 A1では、はんだ粉を電極表面に押し流して効率よく移動させる観点からは、接着時に所定の圧力で加圧するとよいことが記載されており、加圧圧力は、はんだ領域をさらに確実に形成する観点では、例えば、0 MPa以上、好ましくは1 MPa以上とすることが記載されており、更に、接着テープに意図的に加える圧力が0 MPaであっても、接着テープ上に配置された部材の自重により、接着テープに所定の圧力が加わってもよいことが記載されている。WO 2008/023452 A1では、接着テープに意図的に加える圧力が0 MPaであってもよいことは記載されているが、0 MPaを超える圧力を付与した場合と0 MPaとした場合との効果の差異については、何ら記載されていない。また、WO 2008/023452 A1では、フィルム状ではなく、ペースト状の導電ペーストを用いることの重要性についても何ら認識されていない。

[0203] また、導電フィルムではなく、導電ペーストを用いれば、導電ペーストの塗布量によって、接続部及びはんだ部の厚みを調整することが容易になる。一方で、導電フィルムでは、接続部の厚みを変更したり、調整したりするためには、異なる厚みの導電フィルムを用意したり、所定の厚みの導電フィルムを用意したりしなければならないという問題がある。また、導電フィルムでは、導電ペーストと比べて、はんだの溶融温度で、導電フィルムの溶融粘度を十分に下げることができず、はんだの凝集が阻害されやすい傾向がある。

[0204] 以下、図面を参照しつつ、本発明の具体的な実施形態を説明する。

[0205] 図1は、本発明の一実施形態に係る導電材料を用いて得られる接続構造体を模式的に示す断面図である。

[0206] 図1に示す接続構造体1は、第1の接続対象部材2と、第2の接続対象部材3と、第1の接続対象部材2と第2の接続対象部材3とを接続している接続部4とを備える。接続部4は、上述した導電材料により形成されている。本実施形態では、導電材料は、導電性粒子として、はんだ粒子を含む。

[0207] 接続部4は、複数のはんだ粒子が集まり互いに接合したはんだ部4Aと、熱硬化性成分が熱硬化された硬化物部4Bとを有する。

[0208] 第1の接続対象部材2は表面（上面）に、複数の第1の電極2aを有する。第2の接続対象部材3は表面（下面）に、複数の第2の電極3aを有する。第1の電極2aと第2の電極3aとが、はんだ部4Aにより電氣的に接続されている。従って、第1の接続対象部材2と第2の接続対象部材3とが、はんだ部4Aにより電氣的に接続されている。なお、接続部4において、第1の電極2aと第2の電極3aとの間に集まったはんだ部4Aとは異なる領域（硬化物部4B部分）では、はんだは存在しない。はんだ部4Aとは異なる領域（硬化物部4B部分）では、はんだ部4Aと離れたはんだは存在しない。なお、少量であれば、第1の電極2aと第2の電極3aとの間に集まったはんだ部4Aとは異なる領域（硬化物部4B部分）に、はんだが存在していてもよい。

[0209] 図1に示すように、接続構造体1では、第1の電極2aと第2の電極3aとの間に、複数のはんだ粒子が集まり、複数のはんだ粒子が溶融した後、はんだ粒子の溶融物が電極の表面を濡れ拡がった後に固化して、はんだ部4Aが形成されている。このため、はんだ部4Aと第1の電極2a、並びにはんだ部4Aと第2の電極3aとの接続面積が大きくなる。すなわち、はんだ粒子を用いることにより、導電部の外表面部分がニッケル、金又は銅等の金属である導電性粒子を用いた場合と比較して、はんだ部4Aと第1の電極2a、並びにはんだ部4Aと第2の電極3aとの接触面積が大きくなる。このため、接続構造体1における導通信頼性及び接続信頼性が高くなる。

[0210] なお、加熱により、一般にフラックスは次第に失活する。

[0211] なお、図1に示す接続構造体1では、はんだ部4Aの全てが、第1、第2の電極2a、3a間の対向している領域に位置している。図3に示す変形例の接続構造体1Xは、接続部4Xのみが、図1に示す接続構造体1と異なる。接続部4Xは、はんだ部4XAと硬化物部4XBとを有する。接続構造体1Xのように、はんだ部4XAの多くが、第1、第2の電極2a、3aの対向している領域に位置しており、はんだ部4XAの一部が第1、第2の電極2a、3aの対向している領域から側方にはみ出しているはんだ部4XAは、はんだ部4XAの一部であり、はんだ部4XAから離れたはんだではない。なお、本実施形態では、はんだ部から離れたはんだの量を少なくすることができるが、はんだ部から離れたはんだが硬化物部中に存在しているもよい。

[0212] はんだ粒子の使用量を少なくすれば、接続構造体1を得ることが容易になる。はんだ粒子の使用量を多くすれば、接続構造体1Xを得ることが容易になる。

[0213] 導通信頼性をより一層高める観点からは、上記第1の電極と上記接続部と上記第2の電極との積層方向に上記第1の電極と上記第2の電極との対向し合う部分をみたときに、上記第1の電極と上記第2の電極との対向し合う部

分の面積100%中の50%以上（より好ましくは60%以上、更に好ましくは70%以上、特に好ましくは80%以上、最も好ましくは90%以上）に、上記接続部中のはんだ部が配置されていることが好ましい。

[0214] 次に、本発明の一実施形態に係る導電材料を用いて、接続構造体1を製造する方法の一例を説明する。

[0215] 先ず、第1の電極2aを表面（上面）に有する第1の接続対象部材2を用意する。次に、図2（a）に示すように、第1の接続対象部材2の表面上に、熱硬化性成分11Bと、複数のはんだ粒子11Aとを含む導電材料11を配置する（第1の工程）。用いた導電材料11は、熱硬化性成分11Bとして、熱硬化性化合物と熱硬化剤とを含む。

[0216] 第1の接続対象部材2の第1の電極2aが設けられた表面上に、導電材料11を配置する。導電材料11の配置の後に、はんだ粒子11Aは、第1の電極2a（ライン）上と、第1の電極2aが形成されていない領域（スペース）上との双方に配置されている。

[0217] 導電材料11の配置方法としては、特に限定されないが、ディスペンサーによる塗布、スクリーン印刷、及びインクジェット装置による吐出等が挙げられる。

[0218] また、第2の電極3aを表面（下面）に有する第2の接続対象部材3を用意する。次に、図2（b）に示すように、第1の接続対象部材2の表面上の導電材料11において、導電材料11の第1の接続対象部材2側とは反対側の表面上に、第2の接続対象部材3を配置する（第2の工程）。導電材料11の表面上に、第2の電極3a側から、第2の接続対象部材3を配置する。このとき、第1の電極2aと第2の電極3aとを対向させる。

[0219] 次に、はんだ粒子11Aの融点以上に導電材料11を加熱する（第3の工程）。好ましくは、熱硬化性成分11B（バインダー）の硬化温度以上に導電材料11を加熱する。この加熱時には、電極が形成されていない領域に存在していたはんだ粒子11Aは、第1の電極2aと第2の電極3aとの間に集まる（自己凝集効果）。導電フィルムではなく、導電ペーストを用いた場

合には、はんだ粒子 1 1 A が、第 1 の電極 2 a と第 2 の電極 3 a との間に効果的に集まる。また、はんだ粒子 1 1 A は溶融し、互いに接合する。また、熱硬化性成分 1 1 B は熱硬化する。この結果、図 2 (c) に示すように、第 1 の接続対象部材 2 と第 2 の接続対象部材 3 とを接続している接続部 4 を、導電材料 1 1 により形成する。導電材料 1 1 により接続部 4 が形成され、複数のはんだ粒子 1 1 A が接合することによってはんだ部 4 A が形成され、熱硬化性成分 1 1 B が熱硬化することによって硬化物部 4 B が形成される。

[0220] 本実施形態では、上記第 2 の工程及び上記第 3 の工程において、加圧を行わない方が好ましい。この場合には、導電材料 1 1 には、第 2 の接続対象部材 3 の重量が加わる。このため、接続部 4 の形成時に、はんだ粒子 1 1 A が、第 1 の電極 2 a と第 2 の電極 3 a との間に効果的に集まる。なお、上記第 2 の工程及び上記第 3 の工程の内の少なくとも一方において、加圧を行えば、はんだ粒子が第 1 の電極と第 2 の電極との間に集まろうとする作用が阻害される傾向が高くなる。

[0221] また、本実施形態では、加圧を行っていないため、導電材料を塗布した第 1 の接続対象部材に、第 2 の接続対象部材を重ね合わせた際に、第 1 の接続対象部材の電極と第 2 の接続対象部材の電極とのアライメントがずれた状態で、第 1 の接続対象部材と第 2 の接続対象部材とが重ね合わされた場合でも、そのずれを補正して、第 1 の接続対象部材の電極と第 2 の接続対象部材の電極とを接続させることができる（セルフアライメント効果）。これは、第 1 の接続対象部材の電極と第 2 の接続対象部材の電極との間に自己凝集した溶融したはんだが、第 1 の接続対象部材の電極と第 2 の接続対象部材の電極との間のはんだと導電材料のその他の成分とが接する面積が最小となる方がエネルギー的に安定になるため、その最小の面積となる接続構造であるアライメントのあった接続構造にする力が働くためである。この際、導電材料が硬化していないこと、及び、その温度、時間にて、導電材料の導電性粒子以外の成分の粘度が十分低いことが望ましい。

[0222] このようにして、図 1 に示す接続構造体 1 が得られる。なお、上記第 2 の

工程と上記第3の工程とは連続して行われてもよい。また、上記第2の工程を行った後に、得られる第1の接続対象部材2と導電材料11と第2の接続対象部材3との積層体を、加熱部に移動させて、上記第3の工程を行ってもよい。上記加熱を行うために、加熱部材上に上記積層体を配置してもよく、加熱された空間内に上記積層体を配置してもよい。

[0223] 上記第3の工程における上記加熱温度は、好ましくは140℃以上、より好ましくは160℃以上であり、好ましくは450℃以下、より好ましくは250℃以下、更に好ましくは200℃以下である。

[0224] 上記第3の工程における加熱方法としては、はんだの融点以上及び熱硬化性成分の硬化温度以上に、接続構造体全体を、リフロー炉を用いて又はオーブンを用いて加熱する方法や、接続構造体の接続部のみを局所的に加熱する方法が挙げられる。

[0225] 上記第1、第2の接続対象部材は、特に限定されない。上記第1、第2の接続対象部材としては、具体的には、半導体チップ、半導体パッケージ、LEDチップ、LEDパッケージ、コンデンサ及びダイオード等の電子部品、並びに樹脂フィルム、プリント基板、フレキシブルプリント基板、フレキシブルフラットケーブル、リジッドフレキシブル基板、ガラスエポキシ基板及びガラス基板等の回路基板などの電子部品等が挙げられる。上記第1、第2の接続対象部材は、電子部品であることが好ましい。

[0226] 上記第1の接続対象部材及び上記第2の接続対象部材の内の少なくとも一方が、樹脂フィルム、フレキシブルプリント基板、フレキシブルフラットケーブル又はリジッドフレキシブル基板であることが好ましい。上記第2の接続対象部材が、樹脂フィルム、フレキシブルプリント基板、フレキシブルフラットケーブル又はリジッドフレキシブル基板であることが好ましい。樹脂フィルム、フレキシブルプリント基板、フレキシブルフラットケーブル及びリジッドフレキシブル基板は、柔軟性が高く、比較的軽量であるという性質を有する。このような接続対象部材の接続に導電フィルムを用いた場合には、はんだが電極上に集まりにくい傾向がある。これに対して、導電ペースト

を用いることで、樹脂フィルム、フレキシブルプリント基板、フレキシブルフラットケーブル又はリジッドフレキシブル基板を用いたとしても、はんだを電極上に効率的に集めることで、電極間の導通信頼性を十分に高めることができる。樹脂フィルム、フレキシブルプリント基板、フレキシブルフラットケーブル又はリジッドフレキシブル基板を用いる場合に、半導体チップなどの他の接続対象部材を用いた場合と比べて、加圧を行わないことによる電極間の導通信頼性の向上効果がより一層効果的に得られる。

[0227] 上記接続対象部材の形態にはペリフェラルやエリアアレイなどが存在する。各部材の特徴として、ペリフェラル基板では、電極が基板の外周部のみに存在する。エリアアレイ基板では、面内に電極が存在する。

[0228] 上記接続対象部材に設けられている電極としては、金電極、ニッケル電極、錫電極、アルミニウム電極、銅電極、モリブデン電極、銀電極、SUS電極、及びタングステン電極等の金属電極が挙げられる。上記接続対象部材がフレキシブルプリント基板である場合には、上記電極は金電極、ニッケル電極、錫電極、銀電極又は銅電極であることが好ましい。上記接続対象部材がガラス基板である場合には、上記電極はアルミニウム電極、銅電極、モリブデン電極、銀電極又はタングステン電極であることが好ましい。なお、上記電極がアルミニウム電極である場合には、アルミニウムのみで形成された電極であってもよく、金属酸化物層の表面にアルミニウム層が積層された電極であってもよい。上記金属酸化物層の材料としては、3価の金属元素がドーピングされた酸化インジウム及び3価の金属元素がドーピングされた酸化亜鉛等が挙げられる。上記3価の金属元素としては、Sn、Al及びGa等が挙げられる。

[0229] 上記接続対象部材の形態にはペリフェラルやエリアアレイなどが存在する。各部材の特徴として、ペリフェラル基板では、電極が基板の外周部のみに存在する。エリアアレイ基板では、面内に電極が存在する。

[0230] 以下、実施例及び比較例を挙げて、本発明を具体的に説明する。本発明は、以下の実施例のみに限定されない。

[0231] 熱硬化性化合物：

三菱化学社製「YL980」、ビスフェノールA型エポキシ樹脂

日産化学工業社製「TEPIC-PAS」、イソシアヌル骨格を有するエポキシ化合物

TEPIC-PASの変性物：日産化学工業社製「TEPIC」のエポキシ基をチラン基に変換した化合物（合成品）、イソシアヌル骨格を有するエピスルフィド化合物

日産化学工業社製「TEPIC-VL」

日産化学工業社製「TEPIC-UC」

[0232] 熱硬化剤：

旭化成イーマテリアルズ社製「HXA3922HP」

SC有機化学工業株式会社製「TEMPIC」

[0233] 硬化促進剤：

四国化成工業社製「2MA-OK」、イミダゾール硬化促進剤

[0234] リン酸化合物：

城北化学工業社製「JP260」、ジフェニルヒドロフェンホスファイト、 $(C_6H_5-O)_2P(=O)H$

[0235] フラックス：

グルタル酸

四国化成工業社製「CIC」

四国化成工業社製「MACIC-1」

[0236] 導電性粒子：

SnBiはんだ粒子（平均粒子径 $30\mu m$ ）、三井金属社製、Sn42Bi58

[0237] （実施例1～11及び比較例1）

（1）異方性導電ペーストの作製

下記の表1，2に示す成分を下記の表1，2に示す配合量で配合して、異方性導電ペーストを得た。

[0238] (2) 第1の接続構造体（エリアアレイ基板）の作製

第1の接続対象部材として、半導体チップ本体（サイズ5×5 mm、厚み0.4 mm）の表面に、400 μmピッチで250 μmの銅電極が、エリアアレイにて配置されており、最表面にパッシベーション膜（ポリイミド、厚み5 μm、電極部の開口径200 μm）が形成されている半導体チップを準備した。銅電極の数は、半導体チップ1個当たり、10個×10個の合計100個である。

[0239] 第2の接続対象部材として、ガラスエポキシ基板本体（サイズ20×20 mm、厚み1.2 mm、材質FR-4）の表面に、第1の接続対象部材の電極に対して、同じパターンとなるように、銅電極が配置されており、銅電極が配置されていない領域にソルダーレジスト膜が形成されているガラスエポキシ基板を準備した。銅電極の表面とソルダーレジスト膜の表面との段差は、15 μmであり、ソルダーレジスト膜は銅電極よりも突出している。

[0240] 上記ガラスエポキシ基板の上面に、作製直後の異方性導電ペーストを厚さ100 μmとなるように塗工し、異方性導電ペースト層を形成した。次に、異方性導電ペースト層の上面に半導体チップを電極同士が対向するように積層した。異方性導電ペースト層には、上記半導体チップの重量は加わる。その状態から、異方性導電ペースト層の温度が、昇温開始から5秒後に139℃（はんだの融点）となるように加熱した。さらに、昇温開始から15秒後に、異方性導電ペースト層の温度が160℃となるように加熱し、異方性導電ペーストを硬化させ、接続構造体を得た。加熱時には、加圧を行わなかった。

[0241] (3) 第2の接続構造体（ペリフェラル基板）の作製

第1の接続対象部材として、半導体チップ本体（サイズ5×5 mm、厚み0.4 mm）の表面に、400 μmピッチで250 μmの銅電極が、チップ外周部に配置（ペリフェラル）されており、最表面にパッシベーション膜（ポリイミド、厚み5 μm、電極部の開口径200 μm）が形成されている半導体チップを準備した。銅電極の数は、半導体チップ1個当たり、10個×

4 辺の合計 36 個である。

[0242] 第 2 の接続対象部材として、ガラスエポキシ基板本体（サイズ 20 × 20 mm、厚み 1.2 mm、材質 FR-4）の表面に、第 1 の接続対象部材の電極に対して、同じパターンとなるように、銅電極が配置されており、銅電極が配置されていない領域にソルダーレジスト膜が形成されている銅電極の表面とソルダーレジスト膜の表面との段差は、15 μm であり、ソルダーレジスト膜は銅電極よりも突出している。

[0243] 上記ガラスエポキシ基板の上面のペリフェラル部分に、作製直後の異方性導電ペーストを厚さ 100 μm となるように塗工し、異方性導電ペースト層を形成した。次に、異方性導電ペースト層の上面に半導体チップを電極同士が対向するように積層した。異方性導電ペースト層には、上記半導体チップの重量は加わる。その状態から、異方性導電ペースト層の温度が、昇温開始から 5 秒後に 139℃（はんだの融点）となるように加熱した。さらに、昇温開始から 15 秒後に、異方性導電ペースト層の温度が 160℃となるように加熱し、異方性導電ペーストを硬化させ、接続構造体を得た。加熱時には、加圧を行わなかった。

[0244] （評価）

（1）粘度

異方性導電ペーストの導電性粒子におけるはんだの融点℃での粘度（ η_{mp} ）を、STRESSTECH（EOLOGICA 社製）を用いて、歪制御 1 rad、周波数 1 Hz、昇温速度 20℃/分、及び測定温度範囲 40～200℃の条件で測定した。

[0245] （2）黒いすすの発生

得られた第 1、第 2 の接続構造体の接続部（硬化物部）において、はんだに由来する黒いすすが含まれているか否かを評価した。黒いすすの発生を以下の基準で判定した。

[0246] [黒いすすの判定基準]

○○○：黒いすすの発生なし、かつ薄く色付いた箇所もなし

- ○ : 黒いすすの発生なし、かつ薄く色付いた箇所はあり
- : 黒いすすがごくわずかに発生（接続抵抗に影響しない程度）
- △ : 黒いすすがわずかに発生（接続抵抗に少し影響する程度）
- × : 黒いすすが発生（接続抵抗にかなり影響する程度）

[0247] (3) 電極上のはんだの配置精度

得られた第1, 第2の接続構造体において、第1の電極と接続部と第2の電極との積層方向に第1の電極と第2の電極との対向し合う部分をみたときに、第1の電極と第2の電極との対向し合う部分の面積100%中の、接続部中のはんだ部が配置されている面積の割合Xを評価した。電極上のはんだの配置精度を下記の基準で判定した。

[0248] [電極上のはんだの配置精度の判定基準]

- ○ ○ : 割合Xが95%以上
- ○ : 割合Xが90%以上、95%未満
- : 割合Xが80%以上、90%未満
- △ : 割合Xが60%以上、80%未満
- × : 割合Xが60%未満

[0249] (4) 上下の電極間の導通信頼性

得られた第1, 第2の接続構造体（n = 15個）において、上下の電極間の接続抵抗をそれぞれ、4端子法により測定した。接続抵抗の平均値を算出した。なお、電圧 = 電流 × 抵抗の関係から、一定の電流を流した時の電圧を測定することにより接続抵抗を求めることができる。導通信頼性を下記の基準で判定した。

[0250] [導通信頼性の判定基準]

- ○ : 接続抵抗の平均値が8.0Ω以下
- : 接続抵抗の平均値が8.0Ωを超え、10.0Ω以下
- △ : 接続抵抗の平均値が10.0Ωを超え、15.0Ω以下
- × : 接続抵抗の平均値が15.0Ωを超える

[0251] (5) 隣接する電極間の絶縁信頼性

得られた第1, 第2の接続構造体 ($n = 15$ 個) において、温度 85°C 、及び湿度 85% の雰囲気中に 100 時間放置後、隣接する電極間に、 5V を印加し、抵抗値を 25 箇所測定した。絶縁信頼性を下記の基準で判定した。

[0252] [絶縁信頼性の判定基準]

○ ○ : 接続抵抗の平均値が $10^7 \Omega$ 以上

○ : 接続抵抗の平均値が $10^6 \Omega$ 以上、 $10^7 \Omega$ 未満

△ : 接続抵抗の平均値が $10^5 \Omega$ 以上、 $10^6 \Omega$ 未満

× : 接続抵抗の平均値が $10^5 \Omega$ 未満

[0253] 結果を下記の表1, 2に示す。

[0254]

[表1]

配合成分 (重量部)		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 1
熱硬化性化合物	YL980(イソシアヌル骨格無)	24	19	11	6	19	19	19	26
	TEPIC-PAS(イソシアヌル骨格有)	2	6	15	20				
	TEPIC-PASの変性物(イソシアヌル骨格有)					6			
	TEPIC-VL(イソシアヌル骨格有)						6		
	TEPIC-UC(イソシアヌル骨格有)							6	
	HXA3922HP	30	30	30	30	30	30	30	30
	TEMPIC(イソシアヌル骨格有)								
	2MA-OK	2	2	2	2	2	2	2	2
	JP280	1	1	1	1	1	1	1	1
	グルタル酸	4	2	1	1	2	2	2	4
フラックス	ClC酸								
	MACIC-1								
導電性粒子	SnBiはんだ粒子(30μm)	40	40	40	40	40	40	40	40
		1.5	2	5	8	7	3	5	3
評価	(1)粘度(ηmp)(Pa·s)	○	○	○	○	○	○	○	○
	(2)黒いすの発生(第1の接続構造体、エリアアレイ基板)	○	○	○	○	○	○	○	×
	(2)黒いすの発生(第2の接続構造体、ペリアエラル基板)	○	○	○	○	○	○	○	○
	(3)配置精度(第1の接続構造体、エリアアレイ基板)	○	○	○	○	○	○	○	○
	(3)配置精度(第2の接続構造体、ペリアエラル基板)	○	○	○	○	○	○	○	○
(4)導通信頼性(第1の接続構造体、エリアアレイ基板)	○	○	○	○	○	○	○	○	
(4)導通信頼性(第2の接続構造体、ペリアエラル基板)	○	○	○	○	○	○	○	○	
(5)絶縁信頼性(第1の接続構造体、エリアアレイ基板)	○	○	○	○	○	○	○	○	
(5)絶縁信頼性(第2の接続構造体、ペリアエラル基板)	○	○	○	○	○	○	○	○	

[0255]

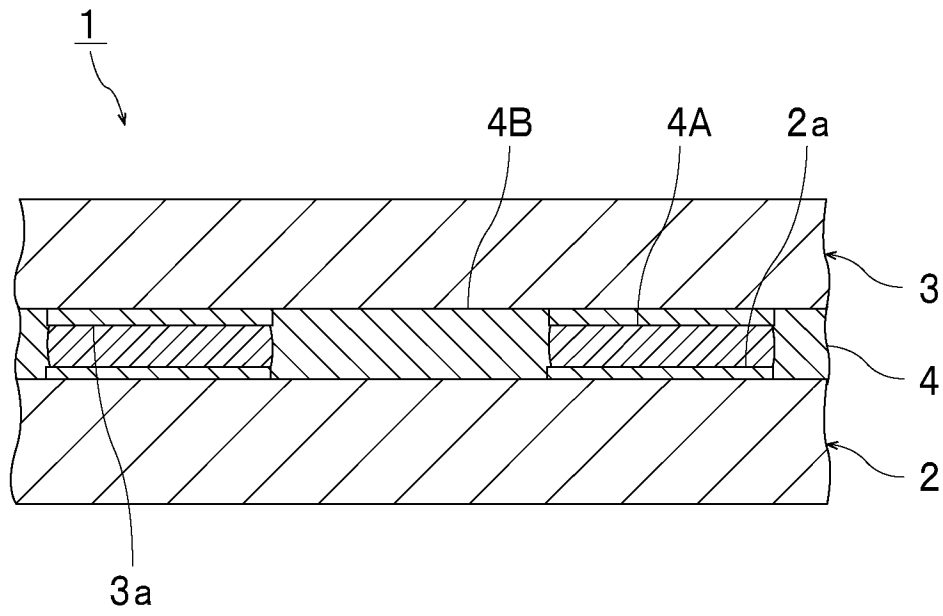
- 3…第2の接続対象部材
- 3 a…第2の電極
- 4, 4 X…接続部
- 4 A, 4 X A…はんだ部
- 4 B, 4 X B…硬化物部
- 1 1…導電材料
- 1 1 A…はんだ粒子（導電性粒子）
- 1 1 B…熱硬化性成分
- 2 1…導電性粒子（はんだ粒子）
- 3 1…導電性粒子
- 3 2…基材粒子
- 3 3…導電部（はんだを有する導電部）
- 3 3 A…第2の導電部
- 3 3 B…はんだ部
- 4 1…導電性粒子
- 4 2…はんだ部

請求の範囲

- [請求項1] 導電部の外表面部分に、はんだを有する複数の導電性粒子と、熱硬化性成分と、フラックスとを含み、
前記熱硬化性成分又は前記フラックスとして、イソシアヌル骨格を有する化合物を含み、
前記導電性粒子における前記はんだの融点での導電材料の粘度が $0.1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上、 $20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下である、導電材料。
- [請求項2] 前記イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量の、前記フラックスの含有量に対する重量比が、 0.5 以上、 20 以下である、請求項1に記載の導電材料。
- [請求項3] 前記イソシアヌル骨格を有する化合物の含有量の、前記導電性粒子の含有量に対する重量比が、 0.05 以上、 0.5 以下である、請求項1又は2に記載の導電材料。
- [請求項4] 前記イソシアヌル骨格を有する化合物の分子量が、 200 以上、 1000 以下である、請求項1～3のいずれか1項に記載の導電材料。
- [請求項5] 前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物又はイソシアヌル骨格を有する熱硬化剤を含む、請求項1～4のいずれか1項に記載の導電材料。
- [請求項6] 前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物を含む、請求項5に記載の導電材料。
- [請求項7] 前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物を含む、請求項1～6のいずれか1項に記載の導電材料。
- [請求項8] 前記熱硬化性成分として、イソシアヌル骨格を有する熱硬化性化合物と、前記イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物とを含む、請求項7に記載の導電材料。
- [請求項9] 前記イソシアヌル骨格を有さない熱硬化性化合物が、イソシアヌル骨格を有さず、かつ芳香族骨格又は脂環式骨格を有する熱硬化性化合物である、請求項7又は8に記載の導電材料。

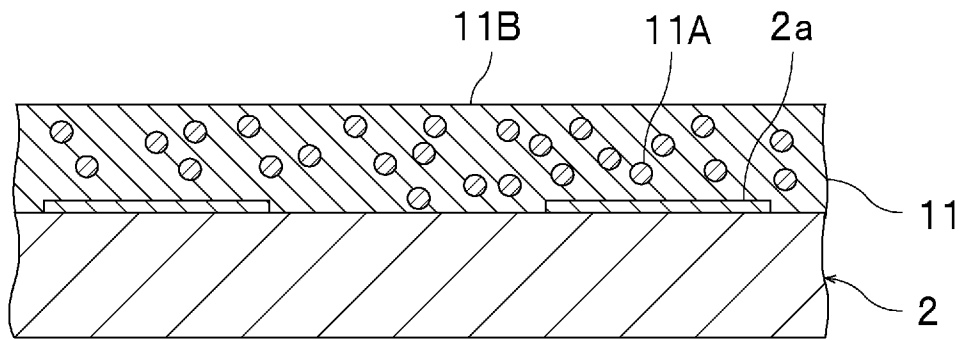
- [請求項10] リン酸化合物を含む、請求項1～9のいずれか1項に記載の導電材料。
- [請求項11] 前記導電性粒子は、はんだ粒子である、請求項1～10のいずれか1項に記載の導電材料。
- [請求項12] 25℃で液状であり、導電ペーストである、請求項1～11のいずれか1項に記載の導電材料。
- [請求項13] 少なくとも1つの第1の電極を表面に有する第1の接続対象部材と、
、
少なくとも1つの第2の電極を表面に有する第2の接続対象部材と、
、
前記第1の接続対象部材と前記第2の接続対象部材とを接続している接続部とを備え、
前記接続部が、請求項1～12のいずれか1項に記載の導電材料の硬化物であり、
前記第1の電極と前記第2の電極とが前記接続部中のはんだ部により電氣的に接続されている、接続構造体。
- [請求項14] 前記第1の電極と前記接続部と前記第2の電極との積層方向に前記第1の電極と前記第2の電極との対向し合う部分をみたときに、前記第1の電極と前記第2の電極との対向し合う部分の面積100%中の50%以上に、前記接続部中のはんだ部が配置されている、請求項13に記載の接続構造体。

[図1]

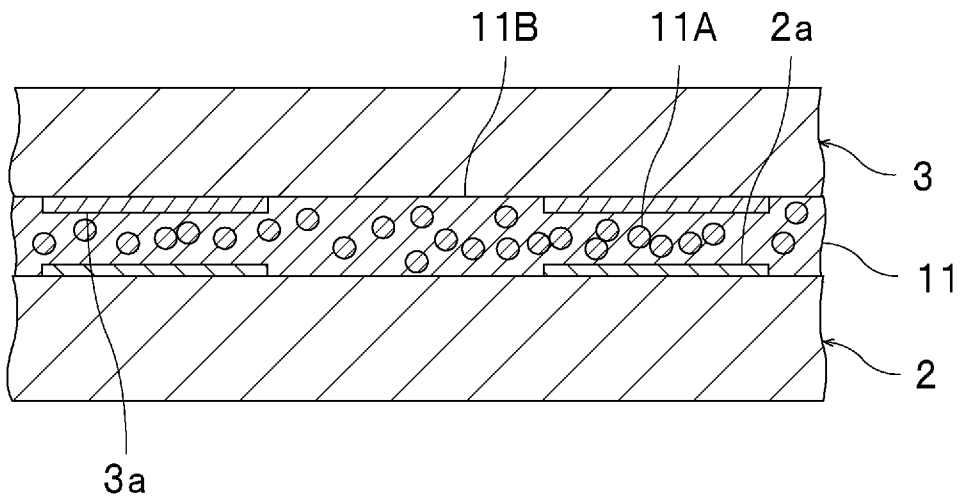


[図2]

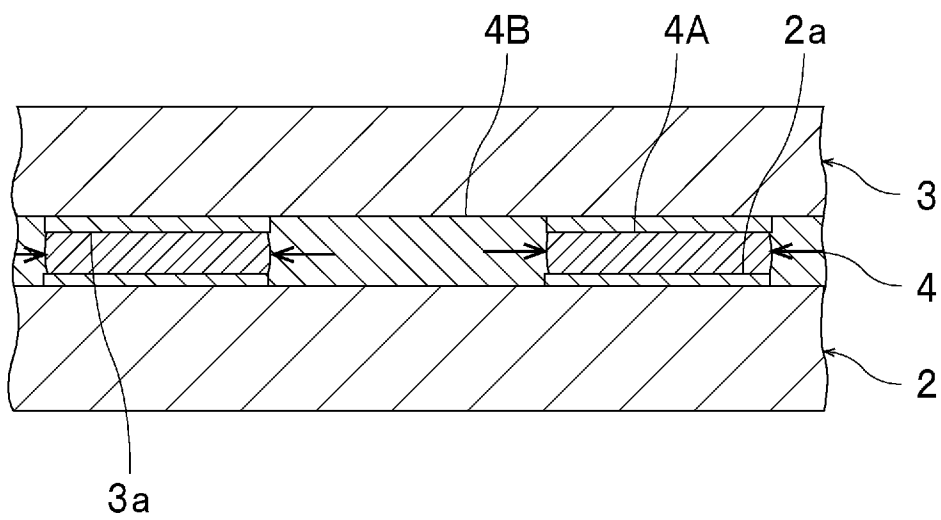
(a)



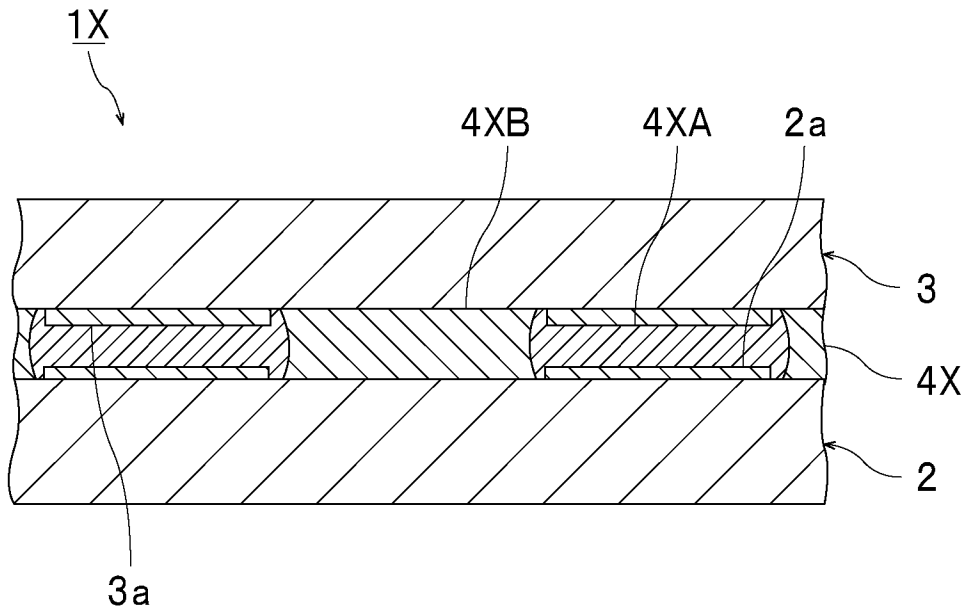
(b)



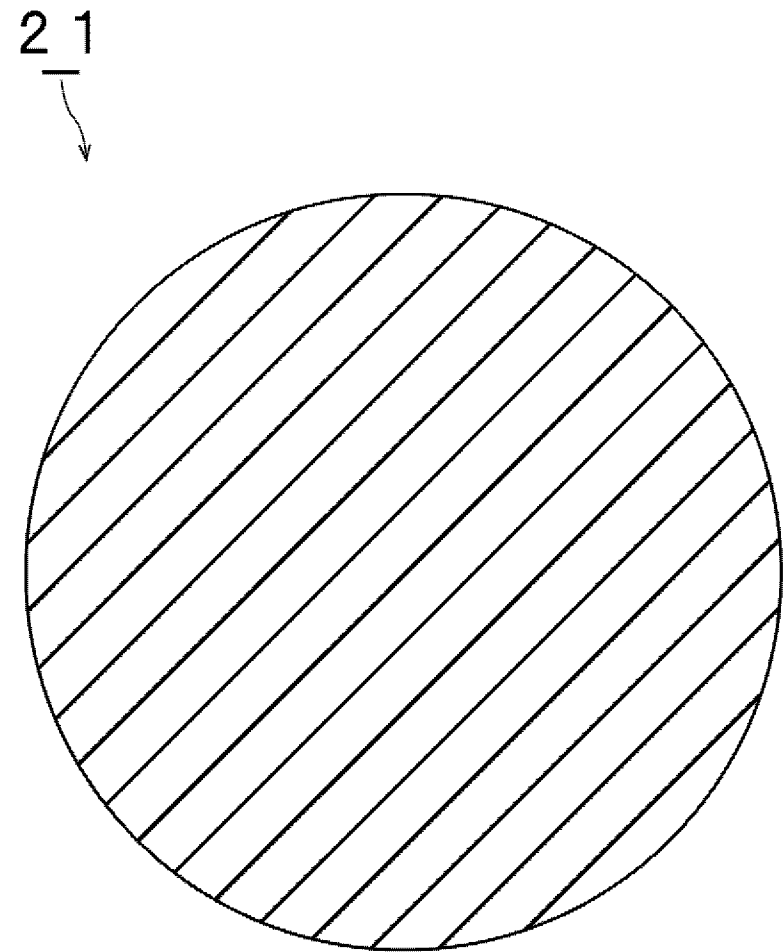
(c)



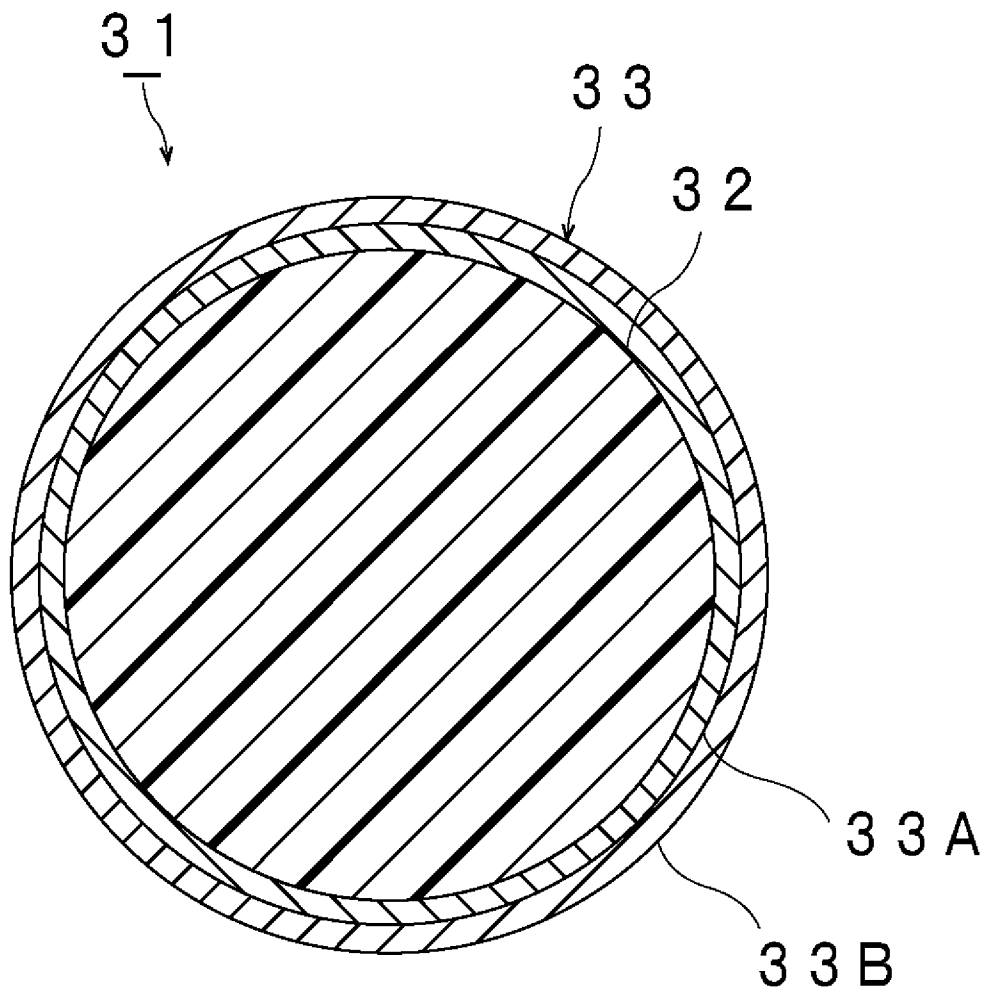
[図3]



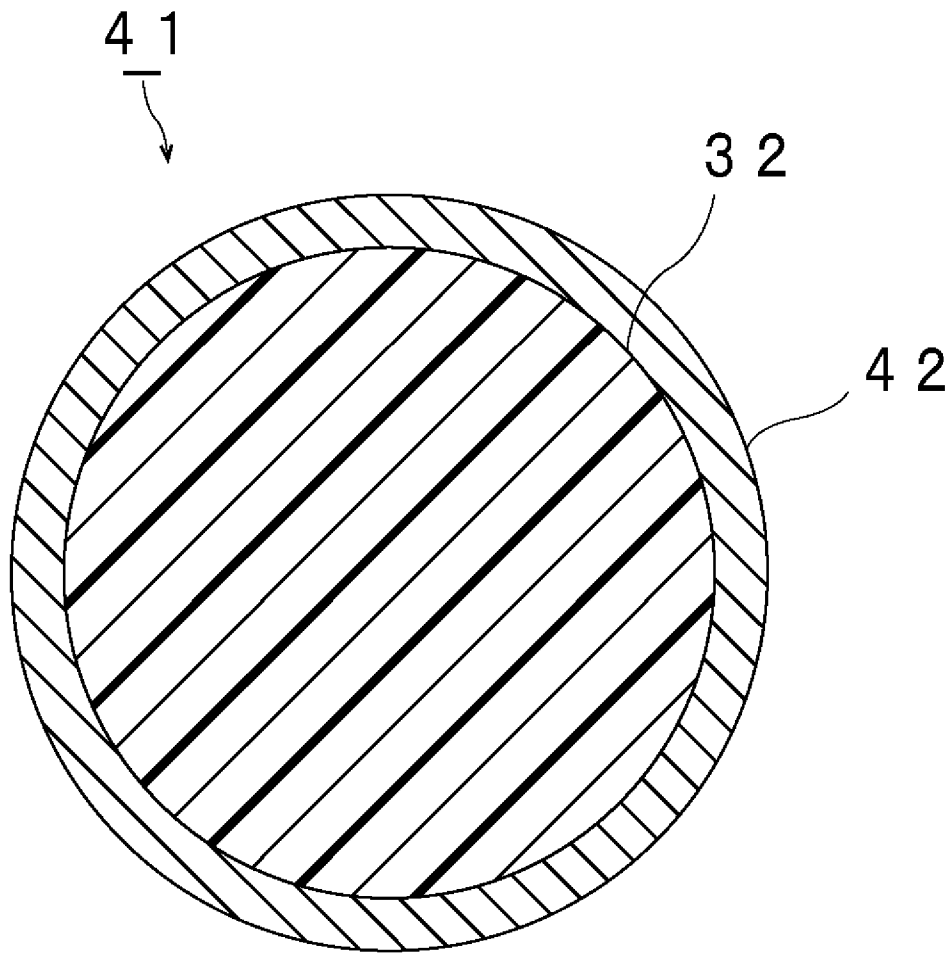
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/074527

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>H01B1/22(2006.01)i, C09J9/02(2006.01)i, C09J201/00(2006.01)i, H01B1/00(2006.01)i, H01B5/16(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i, H05K1/14(2006.01)i, H05K3/32(2006.01)i, H05K3/34(2006.01)i</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) <i>H01B1/22, C09J9/02, C09J201/00, H01B1/00, H01B5/16, H01L21/60, H05K1/14, H05K3/32, H05K3/34</i>												
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched <table border="0"> <tr> <td><i>Jitsuyo Shinan Koho</i></td> <td><i>1922-1996</i></td> <td><i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i></td> <td><i>1996-2016</i></td> </tr> <tr> <td><i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i></td> <td><i>1971-2016</i></td> <td><i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i></td> <td><i>1994-2016</i></td> </tr> </table>			<i>Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1922-1996</i>	<i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i>	<i>1996-2016</i>	<i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1971-2016</i>	<i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1994-2016</i>		
<i>Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1922-1996</i>	<i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i>	<i>1996-2016</i>									
<i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1971-2016</i>	<i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1994-2016</i>									
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.										
A	JP 2013-258139 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 26 December 2013 (26.12.2013), paragraphs [0019], [0097] (Family: none)	1-14										
A	WO 2014/112541 A1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 24 July 2014 (24.07.2014), paragraphs [0104], [0113]; table 1, example 3 & JP 5681327 B2 & CN 104540869 A & KR 10-2015-0109322 A & TW 201446827 A	1-14										
A	JP 2013-77557 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 25 April 2013 (25.04.2013), paragraphs [0127] to [0128] (Family: none)	1-14										
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.												
* Special categories of cited documents: <table border="0"> <tr> <td>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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)</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</td> <td>“&” document member of the same patent family</td> </tr> <tr> <td>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</td> <td></td> </tr> </table>			“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	
“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 18 November 2016 (18.11.16)		Date of mailing of the international search report 29 November 2016 (29.11.16)										
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/JP2016/074527

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2004-260131 A (Japan Science and Technology Agency), 16 September 2004 (16.09.2004), entire text; all drawings & WO 2004/070827 A1 & EP 1615263 A1 & CN 1820361 A & US 2007/0001313 A1 whole document; figures	10
P,A	WO 2015/186704 A1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 10 December 2015 (10.12.2015), claim 1 & JP 5860191 B1 & CN 105900180 A & TW 201606797 A	1-14

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
 Int.Cl. H01B1/22(2006.01)i, C09J9/02(2006.01)i, C09J201/00(2006.01)i, H01B1/00(2006.01)i, H01B5/16(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i, H05K1/14(2006.01)i, H05K3/32(2006.01)i, H05K3/34(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. H01B1/22, C09J9/02, C09J201/00, H01B1/00, H01B5/16, H01L21/60, H05K1/14, H05K3/32, H05K3/34

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 1971-2016年
 日本国実用新案登録公報 1996-2016年
 日本国登録実用新案公報 1994-2016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
A	JP 2013-258139 A（積水化学工業株式会社）2013.12.26, 段落[0019], [0097]（ファミリーなし）	1-14
A	WO 2014/112541 A1（積水化学工業株式会社）2014.07.24, 段落[0104], [0113], [表1]実施例3 & JP 5681327 B2 & CN 104540869 A & KR 10-2015-0109322 A & TW 201446827 A	1-14
A	JP 2013-77557 A（積水化学工業株式会社）2013.04.25, 段落[0127]-[0128]（ファミリーなし）	1-14

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	の日の後に公表された文献
「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	「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
「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	「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
「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）	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 18.11.2016	国際調査報告の発送日 29.11.2016
--------------------------	--------------------------

国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 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） 大畑 通隆 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	4X	9443
--	---	----	------

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2004-260131 A (独立行政法人 科学技術振興機構) 2004. 09. 16, 全文, 全図 & WO 2004/070827 A1 & EP 1615263 A1 & CN 1820361 A & US 2007/0001313 A1, whole document and figures	10
P, A	WO 2015/186704 A1 (積水化学工業株式会社) 2015. 12. 10, 請求項 1 & JP 5860191 B1 & CN 105900180 A & TW 201606797 A	1-14