

(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
2022年9月15日(15.09.2022)



(10) 国際公開番号
WO 2022/191109 A1

(51) 国際特許分類:
H01R 11/01 (2006.01) *C08L 101/00* (2006.01)
B23K 1/00 (2006.01) *C09J 7/35* (2018.01)
B23K 35/14 (2006.01) *C09J 9/02* (2006.01)
B23K 35/26 (2006.01) *C09J 11/04* (2006.01)
B23K 35/363 (2006.01) *C09J 11/06* (2006.01)
B23K 35/40 (2006.01) *C09J 201/00* (2006.01)
C08K 3/08 (2006.01) *C22C 12/00* (2006.01)
C08K 5/09 (2006.01)

特願 2021-159847 2021年9月29日(29.09.2021) JP

(71) 出願人: 日東電工株式会社 (NITTO DENKO CORPORATION) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 加藤 雅俊 (KATO, Masatoshi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 新田 あゆみ(NITTA, Ayumi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 小坂 尚史(KOSAKA, Naofumi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/009645

(22) 国際出願日: 2022年3月7日(07.03.2022)

(25) 国際出願の言語: 日本語

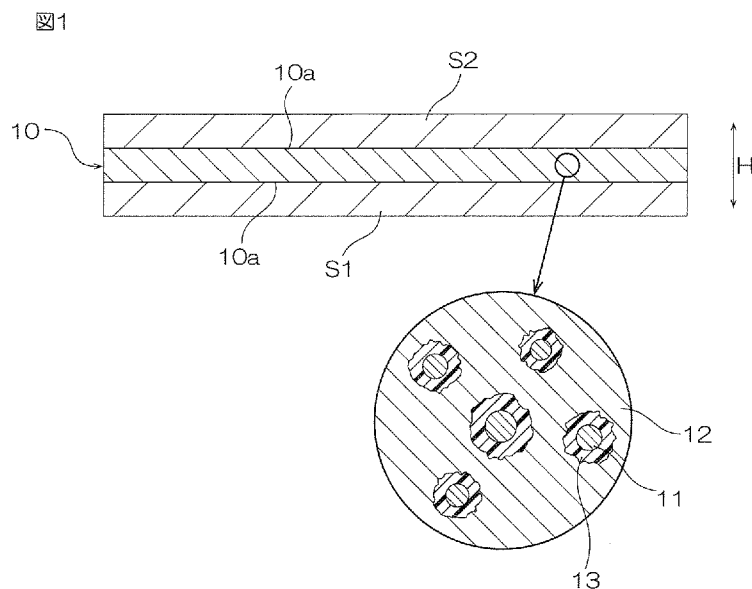
(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2021-037818 2021年3月9日(09.03.2021) JP

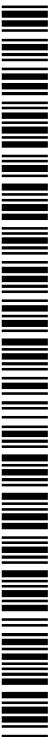
(74) 代理人: 岡本 寛之, 外(OKAMOTO, Hiroyuki et al.); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原4丁

(54) Title: BONDING SHEET AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: 接合シートおよびその製造方法



(57) Abstract: A bonding sheet according to the present invention contains a matrix resin, solder particles, and a flux agent. With respect to this bonding sheet, the solder particles are dispersed in the matrix resin, and the flux agent is unevenly distributed around the solder particles in the matrix resin. A method for producing a bonding sheet according to the present invention comprises: a first step in which a flux agent solution is prepared by dissolving a flux agent in a first solvent; a second step in which a mixed composition is prepared by mixing a second solvent, a matrix resin component, solder particles and the flux agent solution with each other; and a third step in which a coating film is formed by applying the mixed composition onto a base material, and the coating film is subsequently dried, thereby forming a bonding sheet.



WO 2022/191109 A1

目 5 番 3 6 号 O N E S T 新大阪スクエア 3
階 いくみ特許事務所内 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約 : 本発明の接合シートは、マトリックス樹脂と、ハンダ粒子と、フラックス剤とを含有する。接合シートは、ハンダ粒子が、マトリックス樹脂中に分散しており、フラックス剤は、マトリックス樹脂中において、ハンダ粒子のまわりに偏在している。本発明の接合シートの製造方法は、第1溶媒にフラックス剤を溶解させてフラックス剤溶液を調製する第1工程と、第2溶媒、マトリックス樹脂成分、ハンダ粒子、およびフラックス剤溶液を混合して混合組成物を調製する第2工程と、混合組成物を基材上に塗布して塗膜を形成した後、当該塗膜を乾燥させて接合シートを形成する第3工程とを含む。

明 細 書

発明の名称：接合シートおよびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、接合シートおよびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来より、配線回路基板の端子と電子部品の端子との接合、または、2つの配線回路基板の端子間の接合には、接合シートが用いられる。ハンダ接合には、ハンダ粒子、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、およびフラックス剤を含有する接合シートが用いられる。例えば、はんだ粒子、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、およびブロック化カルボン酸を含有する接合シートが知られている（例えば特許文献1参照）。

[0003] 接合シートは、まず、配線回路基板の端子と、電子部品の端子との間に配置される。次に、接合シートは、加熱される。これにより、熱硬化性樹脂は一旦軟化し、ハンダ粒子は、端子間に集まり凝集する（セルフアライメント）。凝集したハンダ材料まわりで熱硬化性樹脂の硬化が進行する。ハンダ材料は、その後の降温によって凝固し、ハンダ部を形成する。ハンダ部まわりには、熱硬化性樹脂が硬化樹脂部を形成する。

[0004] 特許文献1に記載の接合シートは、フラックス剤としてブロック化カルボン酸を含有する。ブロック化カルボン酸は、加熱工程において、熔融し、ハンダ粒子表面の酸化膜を除去する。この酸化膜除去により、ハンダ粒子は凝集しやすくなる。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2013-224362号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、特許文献1に記載の接合シートでは、ブロック化カルボン

酸は、ハンダ粒子のまわり以外にも、マトリックス樹脂（熱可塑性樹脂および熱硬化性樹脂）全体に、均一に分散している。つまり、接合シートにおいて、ハンダ粒子のまわりに存在して、ハンダ粒子の酸化膜の除去に寄与するフラックス剤以外にも、ハンダ粒子のまわりに存在せず、ハンダ粒子の酸化膜の除去に寄与しない余剰のフラックス剤が存在する。そうすると、余剰のフラックス剤によるハンダ部の金属腐食により、抵抗値が上昇してしまう不具合がある。

[0007] 本発明は、ハンダ粒子の凝集を促進できながら、ハンダ部の抵抗値上昇を抑制でき、耐久性を向上することができる接合シート、および、そのような接合シートの製造方法を提供する。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明 [1] は、マトリックス樹脂と、ハンダ粒子と、フラックス剤とを含有する接合シートであって、前記ハンダ粒子は、前記マトリックス樹脂中に分散しており、前記フラックス剤は、前記マトリックス樹脂中において、前記ハンダ粒子のまわりに偏在している、接合シートである。

[0009] 本発明 [2] は、前記ハンダ粒子のまわりに偏在している前記フラックス剤に、前記ハンダ粒子由来の金属が含まれている、上記 [1] に記載の接合シートを含んでいる。

[0010] 本発明 [3] は、前記ハンダ粒子の酸素濃度を x_1 ppm、前記ハンダ粒子 100 重量部に対する前記フラックス剤の含有量を y_1 mmol とした場合、下記式 (1) を満たす、上記 [1] または [2] に記載の接合シートを含んでいる。

$$0.045 \leq y_1 / x_1 \leq 0.090 \quad (1)$$

[0011] 本発明 [4] は、前記ハンダ粒子のメジアン径 (D_{50}) を x_2 μ m、前記ハンダ粒子 100 重量部に対する前記フラックス剤の含有量を y_2 mol とした場合、下記式 (2) を満たす、上記 [1] ~ [3] のいずれかに記載の接合シートを含んでいる。

$$0.150 < x_2 y_2 < 0.300 \quad (2)$$

- [0012] 本発明 [5] は、前記フラックス剤が、25℃で固体のカルボン酸である、上記 [1] ~ [4] のいずれかに記載の接合シートを含んでいる。
- [0013] 本発明 [6] は、前記ハンダ粒子の融点が、150℃以下である、上記 [1] ~ [5] のいずれかに記載の接合シートを含んでいる。
- [0014] 本発明 [7] は、30 μm以下の厚さを有する、上記 [1] ~ [6] のいずれかに記載の接合シートを含んでいる。
- [0015] 本発明 [8] は、第1溶媒にフラックス剤を溶解させてフラックス剤溶液を調製する第1工程と、第2溶媒と、マトリックス樹脂成分と、ハンダ粒子と、前記フラックス剤溶液とを混合して混合組成物を調製する第2工程と、前記混合組成物を基材上に塗布して塗膜を形成した後、前記塗膜を乾燥させて接合シートを形成する、第3工程とを含む、接合シートの製造方法である。

発明の効果

- [0016] 本発明の接合シートでは、フラックス剤が、マトリックス樹脂中において、ハンダ粒子のまわりに偏在する。そのため、ハンダ粒子表面の酸化膜を効率よく除去して、ハンダ粒子を凝集させることができる。また、フラックス剤をハンダ粒子の周りに偏在させているため、ハンダ粒子のまわり以外の余剰のフラックス剤を低減でき、ハンダ部の抵抗値上昇を抑制することができる。その結果、耐久性を向上することができる。
- [0017] 本発明の接合シートの製造方法は、第1溶媒にフラックス剤を溶解させてフラックス剤溶液を調製する第1工程を含んでいる。そのため、上記の接合シートを確実に製造できる。

図面の簡単な説明

- [0018] [図1]図1は、本発明の接合シートの一実施形態の断面模式図である。
- [図2]図2Aおよび図2Bは、本発明の接合シート製造方法の一実施形態における一部の工程を表す。図2Aは塗膜形成工程を表し、図2Bは乾燥工程を表す。
- [図3]図3A~Cは、図1に示す接合シートを用いたハンダ接合方法の一例の

工程図である。図3Aは用意工程を表し、図3Bは積層工程を表し、図3Cは加熱工程を表す。

[図4]図4は、実施例1の接合シートの断面の、走査電子顕微鏡（SEM）の画像処理図である。

[図5]図5は、比較例1の接合シートの断面の、走査電子顕微鏡（SEM）の画像処理図である。

[図6]図6は、実施例1の接合シートの断面の、エネルギー分散型X線分析（EDX）の画像処理図である。

[図7]図7A～Cは、フラックスの偏在状態を評価するための、実施例1および比較例2の接合シートの断面の、走査電子顕微鏡（SEM）の画像処理図である。図7Aおよび図7Bは、実施例1の接合シートの断面の、走査電子顕微鏡（SEM）の画像処理図である。図7Cは、比較例2の接合シートの断面の、走査電子顕微鏡（SEM）の画像処理図である。

発明を実施するための形態

[0019] 図1は、本発明の接合シートの一実施形態としての接合シート10の断面模式図である（接合シート10が基材S1、S2間に挟まれた状態を例示的に図示する）。接合シート10は、2つの接合対象物をハンダ接合するために用いられる。接合シート10は、所定の厚さのシート形状を有し、厚さ方向Hと直交する方向（面方向）に延びる。また、接合シート10は、長尺シート形状を有してもよい。接合シート10が長尺シート形状を有する場合、巻き回されたロールの形態を有してもよい。あるいは、接合シート10は枚葉形態を有してもよい。

[0020] 接合シートの厚さは、例えば、 $30\mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは $25\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $20\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $15\mu\text{m}$ 以下である。接合シートが薄いほど、接合対象物の微細ピッチ化に対応できる。接合シートの厚さは、接合シートのハンドリング性の観点から、例えば、 $3\mu\text{m}$ 以上、好ましくは $5\mu\text{m}$ 以上である。

[0021] 接合シートは、マトリックス樹脂、ハンダ粒子、およびフラックス剤を含

有する。

- [0022] マトリックス樹脂は、熱硬化性樹脂と、熱可塑性樹脂とを含有する。接合シートの成形性の観点から、好ましくは、熱硬化性樹脂は、室温（25℃）で液状であり、かつ、熱可塑性樹脂は室温（25℃）で固体である。
- [0023] 熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ジアリルフタレート樹脂、シリコン樹脂、フェノール樹脂、熱硬化性アクリル樹脂、熱硬化性ポリエステル、熱硬化性ポリイミドおよび熱硬化性ポリウレタンが挙げられる。好ましくは、エポキシ樹脂および熱硬化性ポリウレタンが挙げられ、さらに好ましくは、エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0024] エポキシ樹脂としては、例えば、芳香族エポキシ樹脂、含窒素環エポキシ樹脂、脂肪族エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、グリシジルエーテル型エポキシ樹脂およびグリシジルアミン型エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0025] 芳香族エポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノール型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂およびトリフェニルメタン型エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0026] ビスフェノール型エポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、水素添加ビスフェノールA型エポキシ樹脂およびダイマー酸変性ビスフェノール型エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0027] ノボラック型エポキシ樹脂としては、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂およびビフェニル型エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0028] フルオレン型エポキシ樹脂としては、例えば、ビスアリーールフルオレン型エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0029] トリフェニルメタン型エポキシ樹脂としては、例えば、トリスヒドロキシフェニルメタン型エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0030] 含窒素環エポキシ樹脂としては、例えば、トリエポキシプロピルイソシアヌレート（トリグリシジルイソシアヌレート）およびヒダントインエポキシ

樹脂が挙げられる。

- [0031] 脂環式エポキシ樹脂としては、例えば、ジシクロ環型エポキシ樹脂が挙げられる。
- [0032] エポキシ樹脂は、市販品を用いることができる。具体的には、j E R（登録商標）828（ビスフェノールA型エポキシ樹脂、三菱ケミカル社製）が用いられる。
- [0033] エポキシ樹脂のエポキシ当量は、例えば80g/e q以上であり、好ましくは100g/e q以上であり、より好ましくは150g/e q以上であり、また、例えば、500g/e q以下であり、好ましくは400g/e q以下であり、より好ましくは250g/e q以下である。
- [0034] エポキシ樹脂として、好ましくは、室温（25℃）で液状のビスフェノール型エポキシ樹脂、より好ましくは、室温（25℃）で液状のビスフェノールA型エポキシ樹脂が用いられる。
- [0035] 熱硬化性樹脂の硬化温度は、例えば、90℃以上であり、好ましくは140℃以上であり、また、例えば、250℃以下であり、好ましくは、230℃以下であり、より好ましくは、200℃以下であり、さらに好ましくは、160℃以下である。
- [0036] 熱硬化性樹脂は、好ましくは室温（25℃）で液状である。熱硬化性樹脂が室温で液状であれば、接着信頼性が高まる。液状とは、室温（25℃）で粘度200Pa・s以下の液体または流動体である。
- [0037] これらの熱硬化性樹脂は、単独使用または2種類以上併用することができる。
- [0038] マトリックス樹脂における熱硬化性樹脂の割合は、例えば、50質量%以上、好ましくは60質量%以上であり、また、90質量%以下、好ましくは80質量%以下である。また、接合シートにおける熱硬化性樹脂の割合は、例えば、10質量%以上、好ましくは20質量%以上であり、また、50質量%以下、好ましくは30質量%以下である。熱硬化性樹脂の割合が、上記下限に満たない場合には、ハンダ接合後に十分な補強効果が得られない場合

がある。一方、この割合が上記上限を超える場合には、シート状に成形することが困難となる場合がある。

[0039] 熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を用いる場合、マトリックス樹脂は、エポキシ樹脂の硬化剤として、フェノール樹脂をさらに含有してもよい。そのようなフェノール樹脂としては、例えば、ノボラック型フェノール樹脂およびレゾール型フェノール樹脂が挙げられる。ノボラック型フェノール樹脂としては、例えば、フェノールノボラック樹脂、フェノールアラルキル樹脂、クレゾールノボラック樹脂、tert-ブチルフェノールノボラック樹脂、およびニルフェノールノボラック樹脂が挙げられる。

[0040] 熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリオレフィン（例えば、ポリエチレン、ポリプロピレンおよびエチレン-プロピレン共重合体）、アクリル樹脂、フェノキシ樹脂、ポリエステル、ポリ酢酸ビニル、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリアクリロニトリル、ポリアミド（ナイロン（登録商標））、ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリエチレンテレフタレート、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリアリルスルホン、熱可塑性ポリイミド、熱可塑性ポリウレタン、ポリアミノビスマレイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ビスマレイミドトリアジン樹脂、ポリメチルペンテン、フッ化樹脂、液晶ポリマー、オレフィン-ビニルアルコール共重合体、アイオノマー、ポリアリレート、アクリロニトリル-エチレン-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体、アクリロニトリル-スチレン共重合体およびブタジエンスチレン共重合体が挙げられる。

[0041] 熱可塑性樹脂として、好ましくは、アクリル樹脂およびポリエステルが挙げられ、さらに好ましくは、アクリル樹脂が挙げられる。

[0042] アクリル樹脂は、アクリルポリマーからなり、そのようなアクリルポリマーは、例えば、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸プロピル、(メタ)アクリル酸ブチル、(メタ)アクリル

酸ヘキシル、(メタ)アクリル酸オクチル、(メタ)アクリル酸デシル、(メタ)アクリル酸ドデシルなどの炭素数1~12のアルキル部分を有する(メタ)アクリル酸アルキルエステルを主成分として含有するモノマーの重合体である。「(メタ)アクリル酸」とは、アクリル酸および/またはメタクリル酸を意味する。モノマーは、単独使用または併用することができる。

[0043] モノマーは、(メタ)アクリル酸アルキルエステルと共重合可能な1種または2種以上の共重合性モノマーを含んでいてもよい。共重合性モノマーは、官能基含有ビニルモノマーおよび芳香族ビニルモノマーを含む。共重合性モノマーは、アクリルポリマーの凝集力の確保など、アクリルポリマーの改質に役立つ。

[0044] 官能基含有ビニルモノマーとしては、例えば、カルボキシ基含有ビニルモノマー、酸無水物ビニルモノマー、水酸基含有ビニルモノマー、スルホ基含有ビニルモノマー、リン酸基含有ビニルモノマー、シアノ基含有ビニルモノマー、およびグリシジル基含有ビニルモノマーが挙げられる。好ましくは、水酸基含有ビニルモノマーが挙げられる。

[0045] 芳香族ビニルモノマーとしては、例えば、スチレン、クロロスチレン、クロロメチルスチレン、および α -メチルスチレンが挙げられる。

[0046] アクリルポリマーとして、市販品を用いることができ、具体的には、水酸基含有スチレンアクリルポリマーとしてUH-2170(東亜合成社製)が挙げられる。

[0047] アクリル樹脂のガラス転移温度 T_g は、例えば -100°C 以上、好ましくは -50°C 以上であり、また、例えば 100°C 以下、好ましくは 50°C 以下である。

[0048] アクリル樹脂のガラス転移温度(T_g)は、Foxの式に基づき求められる。

[0049] 熱可塑性樹脂の軟化温度は、例えば、 40°C 以上であり、好ましくは、 45°C 以上であり、さらに好ましくは、 50°C 以上であり、最も好ましくは、 55°C 以上であり、また、例えば、 140°C 以下であり、好ましくは、 12

0℃以下であり、さらに好ましくは、100℃以下であり、最も好ましくは、80℃以下である。

[0050] 熱可塑性樹脂の重量平均分子量 (Mw) は、例えば8000以上、好ましくは1万以上であり、また、例えば200万以下であり、好ましくは150万以下である。アクリル樹脂の重量平均分子量 (標準ポリスチレン換算値) は、GPCによって算出される。重量平均分子量 (Mw) が、上記範囲である場合は、シート状に成形するとき、ピンホールが生じることを抑制することができる。

[0051] 熱可塑性樹脂は、好ましくは室温 (25℃) で固形 (固体) である。熱可塑性樹脂が室温で固形であれば、保形性を担保して、接合シートのシート形状を維持することができる。

[0052] これらの熱可塑性樹脂は、単独使用または2種類以上併用することができる。

[0053] マトリックス樹脂における熱可塑性樹脂の割合は、例えば、10質量%以上、好ましくは20質量%以上であり、また、50質量%以下、好ましくは40質量%以下である。また、接合シートにおける熱可塑性樹脂の割合は、好ましくは2質量%以上、より好ましくは5質量%以上、さらに好ましくは10質量%以上であり、また、好ましくは50質量%以下、より好ましくは30質量%以下、さらに好ましくは20質量%以下である。上記範囲内であれば、接合シートの成形性と、接合シートの接合対象物に対する接合強度とを、両立することができる。

[0054] マトリックス樹脂において、熱硬化性樹脂と熱可塑性樹脂とは互いに相溶している。

[0055] ハンダ粒子を形成するハンダ材料は、例えば、ハンダ金属である。ハンダ金属は、環境適正の観点から、鉛を含有しないハンダ材料 (鉛フリーハンダ) が挙げられる。そのようなハンダ材料としては、例えば、錫-ビスマス系合金および錫-銀系合金が挙げられる。

錫-ビスマス系合金としては、例えば、錫-ビスマス合金 (Sn-Bi) お

よび錫－ビスマス－インジウム合金（Sn－Bi－In）が挙げられる。錫－銀系合金としては、例えば、錫－銀合金（Sn－Ag）および錫－銀－銅合金（Sn－Ag－Cu）が挙げられる。低温接合の観点からは、ハンダ材料としては、好ましくは、錫－ビスマス合金、および錫－ビスマス－インジウム合金が挙げられる。

[0056] 錫－ビスマス合金における錫の含有割合は、例えば、20質量%以上であり、好ましくは、30質量%以上であり、また、例えば、50質量%以下であり、好ましくは、45質量%以下である。錫－ビスマス合金におけるビスマスの含有割合は、例えば、50質量%以上であり、好ましくは、55質量%以上であり、また、例えば、80質量%以下であり、好ましくは、70質量%以下である。

[0057] ハンダ粒子の融点（ハンダ材料の融点）は、例えば、100℃以上であり、好ましくは130℃以上であり、また、例えば、240℃以下であり、好ましくは200℃以下、より好ましくは160℃以下であり、さらに好ましくは150℃以下である。ハンダ材料の融点は、示差走査熱量測定（DSC）により求めることができる（以下、フラックス剤の場合も同様）。ハンダ粒子の融点が、上記範囲内であれば、シート形成時の加熱工程におけるハンダの融解を抑制可能である。また、ハンダ集積による実装時に、実装部周辺に印加される熱による影響を抑制することができる。

[0058] ハンダ粒子の形状としては、例えば、球形状、板形状、および針形状が挙げられ、好ましくは球形状が挙げられる。

[0059] ハンダ粒子のメジアン径（粒子径） D_{50} は、例えば、10nm以上、好ましくは、1 μ m以上である。粒子径 D_{50} が上記下限以上であると、2つの接合対象物間に適切にハンダ部を形成できる。ハンダ粒子の粒子径 D_{50} は、例えば、10 μ m以下、好ましくは8 μ m以下、より好ましくは6 μ m以下、さらに好ましくは5 μ m以下、特に好ましくは4 μ m以下である。粒子径 D_{50} が上記上限以下であると、接合シート中でのハンダ粒子の分散性を向上できる。また、接合シートの薄層化を図ることができる。ハンダ粒子の粒子径 D_{50}

。は、体積基準の粒度分布におけるメジアン径（小径側から体積累積頻度が50％に達する粒径）であり、例えば、レーザー回折・散乱法によって得られる粒度分布に基づいて求められる（以下、フラックス剤の場合も同様）。

[0060] ハンダ粒子の表面は、一般的に、ハンダ材料の酸化物からなる酸化膜で被覆されている。その酸化膜の厚みは、例えば、1～20nmである。

[0061] ハンダ粒子の酸素濃度は、公知の方法により測定でき、例えば、窒素・酸素同時分析装置（EMGA-650、堀場製作所社製）により測定することができる。ハンダ粒子の酸素濃度は、好ましくは、低い濃度である。ハンダ粒子の酸素濃度は、例えば、100ppm以上、好ましくは、350ppm以上、より好ましくは、550ppm以上、より好ましくは、700ppm以上であり、また、例えば、3000ppm以下であり、好ましくは、2500ppm以下であり、より好ましくは、2000ppm以下、さらに好ましくは、1400ppm以下である。ハンダ粒子の酸素濃度が、上記範囲内であると、効率的にハンダ粒子を集積することができる。

[0062] ハンダ粒子は、単独使用または2種以上を併用することができる。

[0063] 接合シートにおけるハンダ粒子の含有量は、マトリックス樹脂100質量部に対して、例えば、50質量部以上、好ましくは100質量部以上、より好ましくは120質量部以上である。また、接合シートにおけるハンダ粒子の割合は、例えば、5質量%以上、好ましくは10質量%以上、より好ましくは20質量%以上、さらに好ましくは30質量%以上、特に好ましくは40質量%以上、最も好ましくは50質量%以上である。ハンダ粒子の含有量が上記下限以上であると、ハンダ接合過程におけるハンダ粒子の凝集性を確保できる。また、接合シートにおけるハンダ粒子の含有量は、マトリックス樹脂100質量部に対して、例えば、600質量部以下、好ましくは450質量部以下、より好ましくは170質量部以下である。また、接合シートにおけるハンダ粒子の割合は、例えば、80質量%以下、好ましくは70質量%以下、より好ましくは60質量%以下である。ハンダ粒子の含有量が上記上限以下であると、接合シートの成形性に優れる。

- [0064] ハンダ粒子は、マトリックス樹脂中に均一に分散している。つまり、ハンダ粒子は、マトリックス樹脂中に均一な濃度で分布している。なお、「均一な濃度」とは、マトリックス樹脂に対するハンダ粒子の含有量に基づく基準濃度に対して、±20%、好ましくは、±10%の分布幅を有する。濃度分布は、例えば、走査電子顕微鏡（SEM）により、観察できる。
- [0065] フラックス剤は、ハンダ粒子を加熱により溶融させる時に、ハンダ粒子の表面にある酸化膜を除去（活性化）する。
- [0066] フラックス剤としては、例えば、有機酸、キノリノール誘導体、および金属カルボニル酸塩が挙げられる。有機酸としては、例えば、カルボン酸が挙げられる。カルボン酸としては、モノカルボン酸、ジカルボン酸、およびトリカルボン酸が挙げられる。モノカルボン酸としては、例えば、グリコール酸、乳酸、および2-ヒドロキシブタン酸が挙げられる。ジカルボン酸としては、例えば、酒石酸、リンゴ酸、アジピン酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、ピメリン酸、スベリン酸、およびセバシン酸が挙げられる。トリカルボン酸としては、例えば、クエン酸が挙げられる。酸化膜除去機能の観点から、フラックス剤は、好ましくは、カルボン酸であり、より好ましくは、ジカルボン酸であり、さらに好ましくは、リンゴ酸、およびマロン酸である。
- [0067] 接合シートの成形性の観点から、フラックス剤は、好ましくは、25℃で固体である。フラックス剤の融点は、25℃より高く、好ましくは80℃以上、より好ましくは100℃以上、さらに好ましくは120℃以上である。フラックス剤の融点は、例えば、200℃以下であり、好ましくは180℃以下、より好ましくは160℃以下である。接合シートの成形性と上記酸化膜除去機能との両立の観点から、フラックス剤は、好ましくは、25℃で固体のカルボン酸である。
- [0068] フラックス剤の形状としては、特に制限されず、例えば、板形状、針形状、および球形状が挙げられる。
- [0069] フラックス剤の粒子径 D_{50} は、例えば、2 μm 以上であり、好ましくは3

μm 以上であり、また、例えば、 $20\mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは $10\mu\text{m}$ 以下であり、より好ましくは $6\mu\text{m}$ 以下である。フラックス剤の粒子径 D_{50} が、上記範囲内であれば、フラックス剤の分散性を向上できる。

[0070] これらのフラックス剤は、単独使用または2種類以上併用することができる。

[0071] 接合シートにおけるフラックス剤の含有量は、マトリックス樹脂100質量部に対して、例えば、1質量部以上、好ましくは5質量部以上、より好ましくは7.5質量部以上、さらに好ましくは10質量部以上である。また、接合シート10におけるフラックス剤の割合は、例えば、1質量%以上、好ましくは2質量%以上、より好ましくは3質量%以上である。フラックス剤の含有量が、上記下限以上であると、ハンダ接合過程でハンダ粒子の凝集性を確保することができる。また、接合シートにおけるフラックス剤の含有量は、マトリックス樹脂100質量部に対して、例えば、50質量部以下、好ましくは20質量部以下、より好ましくは17.5質量部以下、さらに好ましくは15質量部以下、特に好ましくは12.5質量部以下、最も好ましくは10質量部以下である。また、接合シートにおけるフラックス剤の割合は、例えば50質量%以下、好ましくは20質量%以下、より好ましくは10質量%以下、さらに好ましくは8質量%以下、特に好ましくは7質量%以下、最も好ましくは5質量%以下である。フラックス剤の含有量が、上記上限以下であると、接合シートの成形性に優れる。

[0072] 接合シートでは、好ましくは、上記ハンダ粒子の酸素濃度を $x_1\text{ppm}$ 、上記ハンダ粒子100重量部に対する上記フラックス剤の含有量を $y_1\text{mmol}$ とした場合、下記式(1)を満たす。

$$0.045 \leq y_1 / x_1 \leq 0.090 \quad (1)$$

[0073] 上記 y_1 / x_1 は、例えば、0.045以上であり、好ましくは、0.050以上であり、また、例えば、0.099以下であり、好ましくは、0.090以下であり、より好ましくは、0.080以下である。 y_1 / x_1 が、上記範囲内であると、ハンダ粒子が集積しやすく、また余剰の酸が少ないため

に接続後のハンダ部の腐食を起因とした抵抗値上昇を抑制することができる。

[0074] 接合シートは、好ましくは、上記ハンダ粒子のメジアン径 (D_{50}) を $x_2 \mu\text{m}$ 、上記ハンダ粒子 100 重量部に対する上記フラックス剤の含有量を $y_2 \text{mol}$ とした場合、下記式 (2) を満たす。

$$0.150 < x_2 y_2 < 0.300 \quad (2)$$

[0075] 上記 $x_2 y_2$ は、例えば、0.150 以上であり、好ましくは、0.155 以上であり、より好ましくは、0.157 以上であり、また、例えば、0.314 以下であり、好ましくは、0.300 以下であり、より好ましくは、0.270 以下である。 $x_2 y_2$ が、上記範囲内であると、ハンダ粒子が集積しやすく、また余剰の酸が少ないために接続後のハンダ部の腐食を起因とした抵抗値上昇を抑制することができる。

[0076] フラックス剤は、マトリックス樹脂中において、ハンダ粒子のまわりに偏在する。つまり、フラックス剤は、マトリックス樹脂中において、ハンダ粒子のまわりの濃度が、ハンダ粒子のまわり以外の濃度よりも高い濃度で分布している。なお、「ハンダ粒子のまわり」とは、具体的には、ハンダ粒子の直径の 2 倍、好ましくは、1.5 倍の範囲であり、「ハンダ粒子のまわりの濃度が、それ以外の濃度よりも高い」とは、まわり以外の最低濃度に対して、まわりの最高濃度が 2 倍、好ましくは、5 倍である。濃度分布は、例えば、走査電子顕微鏡 (SEM) により、確認できる。このように、フラックス剤をハンダ粒子のまわりに偏在させれば、ハンダ粒子表面の酸化膜を効率よく除去して、ハンダ粒子を凝集させることができる。また、フラックス剤をハンダ粒子の周りに偏在させているため、ハンダ粒子のまわり以外の余剰のフラックス剤を低減でき、ハンダ部の抵抗値上昇を抑制することができる。

[0077] また、ハンダ粒子のまわりに偏在するフラックス剤には、好ましくは、ハンダ粒子由来の金属が含まれている。ハンダ粒子由来の金属は、含有されるハンダ粒子 (ハンダ金属) の種類に対応する。例えば、ハンダ粒子として錫およびビスマスが含有される場合には、錫とビスマスである。ハンダ粒子由

来の金属の測定方法は、例えば、エネルギー分散型X線分析（EDX）が挙げられる。フラックス剤における、ハンダ粒子の含有量は、例えば、マトリックス樹脂100質量部に対して、50質量部以上であり、好ましくは、100質量部以上であり、また、例えば、500質量部以下であり、好ましくは、300質量部以下である。ハンダ粒子の含有量が、上記範囲内であれば、効率よくハンダ粒子の酸化膜を除去し、電極に対してブリッジ形成することなく集積させることができる。

[0078] 本発明の接合シートは、必要により、上記成分以外に、例えば、熱硬化性樹脂に対する硬化剤および／または硬化促進剤、ハンダ粒子と熱可塑性樹脂との密着強度を向上させる観点から、シランカップリング剤などの添加剤を適宜の割合で含有することができる。

[0079] 接合シートは、以下の製造方法によって製造できる。この製造方法は、本発明の接合シート製造方法の一実施形態である。

[0080] まず、上述のフラックス剤を第1溶媒に溶解させて、フラックス剤溶液を調製する（第1工程）。第1溶媒は、フラックス剤を溶解可能な溶媒であり、フラックス剤の種類に応じて選択される。

[0081] 第1溶媒としては、フラックス剤が溶解する溶媒であれば、限定されない。第1溶媒としては、例えば、水、アルコール、カルボン酸、およびケトンが挙げられる。アルコールとしては、例えば、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、およびブタノールが挙げられる。カルボン酸としては、ギ酸および酢酸が挙げられる。ケトンとしては、例えば、アセトン、メチルエチルケトンおよびメチルイソブチルケトンが挙げられる。フラックス剤として、室温（25℃）で固体のカルボン酸が用いられる場合、第1溶媒としては、好ましくは、アルコールまたはケトンが用いられ、より好ましくは、アセトンが用いられる。

[0082] 本製造方法では、フラックス剤が本工程で第1溶媒に溶解されるため、フラックス剤として、比較的大きなフラックス粒子であっても適切に用いることができる。

[0083] フラックス剤溶液のフラックス剤濃度（不揮発成分濃度）は、次の第2工程での他成分との混合性の観点から、例えば、10質量%以上、好ましくは20質量%以上、より好ましくは25質量%以上であり、また、例えば、50質量%以下、好ましくは40質量%以下、より好ましくは35質量%以下である。

[0084] 本製造方法では、次に、第2溶媒と、上述のマトリックス樹脂の成分（熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、および必要に応じて配合される他の成分）と、ハンダ粒子と、フラックス剤溶液とを混合して、混合組成物を調製する（第2工程）。第2溶媒は、好ましくは、フラックス剤の少なくとも一部が溶解する溶媒である。第2溶媒としては、例えば、ケトン、アルキルエステル、脂肪族炭化水素、および芳香族炭化水素が挙げられる。好ましくは、ケトンが挙げられる。ケトンとしては、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、およびシクロヘキサノンが挙げられる。アルキルエステルとしては、例えば、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸イソブチル、および酢酸アミルが挙げられる。脂肪族炭化水素としては、例えば、n-ヘキサン、n-ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン、およびメチルシクロヘキサンが挙げられる。芳香族炭化水素としては、例えば、トルエン、キシレン、およびエチルベンゼンが挙げられる。第2溶媒は、単独で用いられてもよいし、二種類以上が併用されてもよい。第2溶媒は、第1溶媒と同一種類であってもよく、また異なる種類であってもよい。混合組成物の固形分濃度は、次の第3工程での塗膜の形成のしやすさの観点から、例えば、50質量%以上、好ましくは60質量%以上、より好ましくは65質量%以上であり、また、例えば、90質量%以下、好ましくは80質量%以下、より好ましくは75質量%以下である。

[0085] 次に、図2Aに示すように、混合組成物を基材S1上に塗布して塗膜10Aを形成した後、図2Bに示すように、塗膜10Aを乾燥させて接合シート10を形成する（第3工程）。基材S1としては、例えばプラスチックフィルムが挙げられる。当該プラスチックフィルムとしては、例えば、ポリエチ

レンテレフタレートフィルム、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、およびポリエステルフィルムが挙げられる。基材の表面は、好ましくは表面離型処理されている。

[0086] 本工程では、好ましくは、加熱によって接合シート10を乾燥させる。乾燥温度は、熱可塑性樹脂の軟化温度以上であって、ハンダ粒子およびフラックス剤の融点未満であり、かつ、熱硬化性樹脂の硬化温度未満である。乾燥温度は、好ましくは60℃以上、より好ましくは75℃以上であり、また、好ましくは130℃以下、より好ましくは120℃以下である。

[0087] 第3工程の前または後に、基材S1上の接合シート10の上に、基材S2を積層してもよい。基材S2としては、基材S1に関して上記したプラスチックフィルムを用いることができる（接合シート10が基材S1、S2間に挟まれた状態を、図1に例示的に図示する）。

[0088] 以上のようにして、接合シート10を製造できる。

[0089] 本製造方法では、上述のように、第1工程において、フラックス剤が第1溶媒に溶解される。第2工程では、フラックス剤は、第1溶媒に溶解している状態で、他の成分（マトリックス樹脂の成分、ハンダ粒子）と混合される。そのため、第3工程において形成される塗膜では、フラックス剤が、マトリックス樹脂中において、ハンダ粒子のまわりに偏在する。その結果、ハンダ粒子表面の酸化膜を効率よく除去して、ハンダ粒子を凝集させることができる。また、フラックス剤をハンダ粒子の周りに偏在させているため、ハンダ粒子のまわり以外の余剰の、フラックス剤量を低減でき、ハンダ部の抵抗値上昇を抑制することができる。

[0090] 図3は、接合シート10を用いたハンダ接合方法の一例を示す。

[0091] 本方法では、まず、図3Aに示すように、配線回路基板30と、電子部品40と、接合シート10とを用意する（用意工程）。配線回路基板30は、一方の接合対象物の一例であり、基板31と、複数の端子32とを有する。基板31は、例えば、平板形状を有する絶縁基板である。端子32は、金属からなる。複数の端子32は、互いに離隔している。

端子32の最大長さは、例えば、10 μ m以上であり、例えば、200 μ m以下である。

端子32間の間隔は、例えば、10 μ m以上であり、例えば、200 μ m以下である。電子部品40は、他方の接合対象物の一例であり、本体部41と、複数の端子42とを有する。端子42は、金属からなる。複数の端子42は、互いに離隔している。複数の端子42は、配線回路基板30の複数の端子32に対向する配置およびサイズで設けられている。接合シート10については、ハンダ粒子11と、マトリックス樹脂12とを図示する。

[0092] 次に、図3Bに示すように、配線回路基板30と、接合シート10と、電子部品40とを、この順で積層する（積層工程）。具体的には、配線回路基板30と電子部品40とを、対応する端子32、42どうしが対向する配置で、かつ端子32、42が接合シート10中に埋設されるように、接合シート10を介して圧着させる。これにより、積層体Wが得られる。配線回路基板30および電子部品40は、接合シート10を介して仮接合されている。

[0093] 次に、積層体Wを加熱して、図3Cに示すように、各端子32、42間にハンダ部11Aを形成する（加熱工程）。加熱温度は、ハンダ粒子11およびフラックス剤の融点以上の温度であり、熱可塑性樹脂の軟化点以上の温度であり、かつ、熱硬化性樹脂の硬化温度以上の温度である。加熱温度は、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂、ハンダ粒子およびフラックス剤の種類に応じて適宜に決定され、例えば、120 $^{\circ}$ C以上であり、好ましくは130 $^{\circ}$ C以上であり、また、例えば、170 $^{\circ}$ C以下であり、好ましくは160 $^{\circ}$ C以下である。また、加熱時間は、例えば、3秒以上であり、また、例えば、60秒以下、好ましくは30秒以下である。

[0094] 加熱工程における上述のような短時間加熱により、接合シート10内において、熱可塑性樹脂は一旦溶融し、フラックス剤は、溶融してハンダ粒子表面の酸化膜除去機能を発揮する。ハンダ粒子は、溶融して凝集し、端子32、42間に寄り集まり凝集する（セルフアライメント）。凝集したハンダ材料まわりで、熱硬化性樹脂の硬化が進行する。加熱工程終了後に降温するこ

とにより、端子32、42間に凝集したハンダ材料が凝固してハンダ部11Aが形成される。これにより、配線回路基板30と電子部品40とが接合シート10により接合されるとともに、端子32、42間がハンダ部11Aによって電氣的に接続される。ハンダ部11Aまわりには、マトリックス樹脂12由来の硬化樹脂部12Aが形成される。硬化樹脂部12Aは、少なくとも部分的に硬化が進行した熱硬化性樹脂と、固化した熱可塑性樹脂とを含み、好ましくは、完全硬化状態の熱硬化性樹脂と、固化した熱可塑性樹脂とを含む。

[0095] 以上のようにして、接合シート10を用いて配線回路基板30に対して電子部品40を実装できる。

[0096] [作用効果]

従来の接合シートでは、フラックス剤は、ハンダ粒子のまわり以外にも、マトリックス樹脂（熱可塑性樹脂および熱硬化性樹脂）全体に、均一に分散している。つまり、接合シートにおいて、ハンダ粒子のまわりに存在して、ハンダ粒子の酸化膜の除去に寄与するフラックス剤以外にも、ハンダ粒子のまわりに存在せず、ハンダ粒子の酸化膜の除去に寄与しない余剰のフラックス剤が、存在する。この場合、必要となるフラックス剤の量は、マトリックス樹脂全体に分散しているハンダ粒子がハンダ粒子表面に到達する必要があるため、フラックス剤をハンダ粒子の周りに偏在させる場合と比較して、多くなる。その結果、余剰のフラックス剤によるハンダ部の金属腐食により、抵抗値が上昇してしまう不具合がある。

[0097] しかしながら、接合シート10は、図1の拡大図に示すように、フラックス剤13が、マトリックス樹脂12中において、ハンダ粒子11のまわりに偏在している。そのため、ハンダ粒子表面の酸化膜を効率よく除去するために必要なフラックス剤以外の、余剰のフラックス剤量を低減できる。その結果、余剰のフラックス剤によるハンダ部の抵抗値上昇を、抑制することができる。その結果、耐久性を向上することができる。

[0098] 本製造方法では、第1工程において、フラックス剤が第1溶媒に溶解され

ている。そのため、フラックス剤が、接合シート10の乾燥にともなって、マトリックス樹脂中において、ハンダ粒子のまわりに偏在する。その結果、必要となるフラックス剤の全体量を抑制でき、ハンダ部の抵抗値上昇を抑制することができる。

[0099] [変形例]

なお、図3Aの実施形態では、電子部品40および配線回路基板30と、接合シート10との積層において、接合シート10を、電子部品40および配線回路基板30の間に配置しているが、例えば、図示しないが、一方の配線回路基板30の上に接合シート10を、配線回路基板30の端子32とが接触するように積層し、その後、その接合シート10の上に、電子部品40を、端子42とが接合シート10に接触するように積層することもできる。つまり、一方の配線回路基板30の上に、接合シート10と他方の電子部品40とを順次積層することもできる。上述した接合方法では、電子部品40および配線回路基板30を、接合シート10によって接合することにより電子部品を製造したが、配線回路基板30と他の配線回路基板とを接合シート10によって接合することにより、電子部品を製造することもできる。

実施例

[0100] 以下に実施例および比較例を示し、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は、何らそれらに限定されない。

[0101] [実施例1]

以下のようにして、実施例1の接合シートを作製した。

[0102] まず、フラックス剤としてのリンゴ酸（粒子径 D_{50} は $4.4\mu\text{m}$ 、融点は 130°C 、室温（ 25°C ）で固体）を溶媒（アセトン）に加えて溶解させ、固形分濃度（不揮発成分濃度） 33% のフラックス剤溶液を調製した（第1工程）。

[0103] 次に、熱硬化性樹脂としてのエポキシ樹脂（商品名「JER828」、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、エポキシ当量 $184\sim 194\text{g/eq}$ 、室温（ 25°C ）で液状、三菱ケミカル社製） 60 質量部と、熱可塑性樹脂とし

てのアクリル樹脂（商品名「ARUFON UH-2170」、水酸基含有スチレンアクリルポリマー、室温（25℃）で固体、東亜合成社製）40質量部と、ハンダ粒子（42質量%Sn-58質量%B i合金、融点139℃、球形状、粒子径 D_{50} は3 μ m、酸素濃度1100ppm）150質量部と、フラックス剤溶液とを、メチルエチルケトン（MEK）に加えて混合し、固形分濃度72質量%の混合組成物を調製した（第2工程）。この混合組成物におけるフラックス剤の含有量は10質量部である。

[0104] 次に、混合組成物を基材（はく離ライナー）上に塗布して塗膜を形成した後、当該塗膜を乾燥させた（第3工程）。乾燥温度は80℃とし、乾燥時間は5分間とした。これにより、基材（はく離ライナー）上に、厚さ10 μ mの接合シートを形成した。実施例1の接合シートの組成を、表1に示す（以下の実施例および比較例の接合シートの組成も表1および表2に示す）。表1および表2において、組成物の組成を表す各数値の単位は、相対的な“質量部”である。

[0105] [実施例2]

第2工程において、混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）の配合量を10質量部に代えて17.5質量部とし、固形分濃度63質量%の混合組成物を調製した（第2工程）こと以外は、実施例1の接合シートと同様にして、接合シートを作製した。

[0106] [実施例3]

第2工程において、混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）の配合量を10質量部に代えて20質量部とし、固形分濃度61質量%の混合組成物を調製した（第2工程）こと以外は、実施例1の接合シートと同様にして、実施例3の接合シートを作製した。

[0107] [実施例4]

第1工程において、フラックス剤としてのリンゴ酸に代えて、マロン酸（粒子径 D_{50} は4.5 μ m、融点は135℃、室温（25℃）で固体）を使用し、第2工程において、混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）10質量

部に代えて、フラックス剤（マロン酸）10質量部とし、固形分濃度72質量%の混合組成物を調製した（第2工程）こと以外は、実施例1の接合シートと同様にして、実施例4の接合シートを作製した。

[0108] 〔実施例5〕

第1工程において、フラックス剤としてのリンゴ酸に代えて、マロン酸を使用し、第2工程において、混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）10質量部に代えて、フラックス剤（マロン酸）20質量部とし、固形分濃度61質量%の混合組成物を調製した（第2工程）こと以外は、実施例1の接合シートと同様にして、実施例5の接合シートを作製した。

[0109] 〔実施例6〕

第2工程において、混合組成物中のハンダ粒子として、ハンダ粒子（42質量%Sn-58質量%B i合金，融点139℃，球形状，粒子径 D_{50} は5 μ m，酸素濃度650ppm）を使用し、固形分濃度72質量%の混合組成物を調製した（第2工程）こと以外は、実施例1の接合シートと同様にして、実施例6の接合シートを作製した。

[0110] 〔実施例7〕

第2工程において、混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）10質量部に代えて、フラックス剤（リンゴ酸）17.5質量部とし、混合組成物中のハンダ粒子として、ハンダ粒子（42質量%Sn-58質量%B i合金，融点139℃，球形状，粒子径 D_{50} は3 μ m，酸素濃度1500ppm）を使用し、固形分濃度61質量%の混合組成物を調製した（第2工程）こと以外は、実施例1の接合シートと同様にして、実施例7の接合シートを作製した。

[0111] 〔実施例8〕

第2工程において、混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）10質量部に代えて、フラックス剤（リンゴ酸）20質量部とし、混合組成物中のハンダ粒子として、ハンダ粒子（42質量%Sn-58質量%B i合金，融点139℃，球形状，粒子径 D_{50} は3 μ m，酸素濃度1500ppm）を使用し

、固形分濃度 61 質量%の混合組成物を調製した（第 2 工程）こと以外は、実施例 1 の接合シートと同様にして、実施例 8 の接合シートを作製した。

[0112] 〔実施例 9〕

第 2 工程において、混合組成物中のハンダ粒子として、ハンダ粒子（42 質量% Sn - 58 質量% Bi 合金，融点 139℃，球形状，粒子径 D_{50} は 3 μm ，酸素濃度 300 ppm）を使用し、固形分濃度 61 質量%の混合組成物を調製した（第 2 工程）こと以外は、実施例 1 の接合シートと同様にして、実施例 9 の接合シートを作製した。

[0113] 〔実施例 10〕

第 2 工程において、混合組成物中のハンダ粒子として、ハンダ粒子（42 質量% Sn - 58 質量% Bi 合金，融点 139℃，球形状，粒子径 D_{50} は 7 μm ，酸素濃度 500 ppm）を使用し、固形分濃度 72 質量%の混合組成物を調製した（第 2 工程）こと以外は、実施例 1 の接合シートと同様にして、実施例 10 の接合シートを作製した。

[0114] 〔比較例 1〕

熱硬化性樹脂としてのエポキシ樹脂（商品名「JER 828」，ビスフェノール A 型エポキシ樹脂，エポキシ当量 184 ~ 194 g / eq，室温（25℃）で液状，三菱ケミカル社製）60 質量部と、熱可塑性樹脂としてのアクリル樹脂（商品名「ARUFON UH-2170」，水酸基含有スチレンアクリルポリマー，室温（25℃）で固体，東亜合成社製）40 質量部と、ハンダ粒子（42 質量% Sn - 58 質量% Bi 合金，融点 139℃，球形状，粒子径 D_{50} は 3 μm ，酸素濃度 1100 ppm）150 質量部と、フラックス剤（リンゴ酸）50 質量部とを、メチルエチルケトン（MEK）に加えて混合し、固形分濃度 70 質量%の混合組成物を調製した。

[0115] 次に、混合組成物を基材（はく離ライナー）上に塗布して塗膜を形成した後、当該塗膜を乾燥させた（第 3 工程）。乾燥温度は 80℃とし、乾燥時間は 5 分間とした。これにより、基材（はく離ライナー）上に、厚さ 10 μm の接合シートを形成した。

[0116] 〔比較例 2〕

混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）の配合量を 50 質量部に代えて 20 質量部としたこと以外は、比較例 1 の接合シートと同様にして、接合シートを作製した。

[0117] 〔比較例 3〕

混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）の配合量を 50 質量部に代えて 17.5 質量部としたこと以外は、比較例 1 の接合シートと同様にして、接合シートを作製した。

[0118] 〔比較例 4〕

混合組成物中のフラックス剤（リンゴ酸）の配合量を 50 質量部に代えて 10 質量部としたこと以外は、比較例 1 の接合シートと同様にして、接合シートを作製した。

[0119] 〔走査電子顕微鏡（SEM）観察〕

サンプルの断面は、以下のようにして調製した。FIB-SEM装置（「Helios G4 UX」, Thermo Fisher Scientific社製）を用いて、加速電圧 30 kV, 温度 -160°C の条件で Ga イオンビームを照射することで試料断面を調整した。上記のようにして調整された接合シートの断面について、FIB-SEM装置（「Helios G4 UX」, Thermo Fisher Scientific社製）を用いて加速電圧 2 kV, 温度 -160°C の条件下で反射電子像を得た。

実施例 1 および比較例 1 の接合シートの断面を、走査電子顕微鏡（SEM）により観察した。実施例 1 の走査電子顕微鏡（SEM）の画像処理図を、図 4 に示す。また、比較例 1 の走査電子顕微鏡（SEM）の画像処理図を、図 5 に示す。

[0120] 図 4 では、ハンダ粒子 11 は、マトリックス樹脂 12 中に分散しており、フラックス剤 13 は、マトリックス樹脂 12 中において、ハンダ粒子 11 のまわりに偏在していた。

[0121] 図 5 では、ハンダ粒子 11 は、マトリックス樹脂 12 中に分散しているが

、フラックス剤13は、マトリックス樹脂12中において、ハンダ粒子11のまわりに偏在していなかった。

[0122] [エネルギー分散型X線分析 (EDX)]

SEM観察の場合と同様に断面出しを実施したサンプルについて、EDX装置(「Energy-*X*MAX150」、Oxford Instruments社製)を用いて加速電圧7kV、-160℃の条件で断面部分の元素マッピングを実施した。

実施例1の接合シートの断面について、エネルギー分散型X線分析(EDX)を行った。エネルギー分散型X線分析(EDX)の画像処理図を、図6に示す。

[0123] 図6の中央上段の図は、実施例1の接合シートの断面の、走査電子顕微鏡(SEM)の画像処理図を示す。

[0124] 図6の右側上段の図は、マトリックス樹脂12部分における、ハンダ粒子11由来の金属(Bi、Sn)の含有の有無を示すエネルギー分散型X線分析(EDX)の画像処理図である。図6の右側上段の図に示すように、マトリックス樹脂12部分では、ハンダ粒子11由来の金属(Bi、Sn)は、検出されなかった。

[0125] 図6の右側下段の図は、ハンダ粒子11部分における、ハンダ粒子11の金属(Bi、Sn)の含有の有無を示すエネルギー分散型X線分析(EDX)の画像処理図である。図6の右側下段の図に示すように、ハンダ粒子11のSnリッチ相では、ハンダ粒子11の金属であるSnが検出された。

[0126] 図6の中央下段の図は、ハンダ粒子11部分における、ハンダ粒子11の金属(Bi、Sn)の含有の有無を示すエネルギー分散型X線分析(EDX)の画像処理図である。図6の中央下段の図に示すように、ハンダ粒子11のBiリッチ相では、ハンダ粒子11の金属であるBiが検出された。

[0127] 図6の左側下段の図は、フラックス剤13部分における、ハンダ粒子11由来の金属(Bi、Sn)の含有の有無を示すエネルギー分散型X線分析(EDX)の画像処理図である。図6の左側下段の図に示すように、フラック

ス剤 13 部分では、ハンダ粒子 11 由来の金属 (Bi、Sn) が検出された。

[0128] 図 6 の左側上段の図は、フラックス剤 13 部分における、ハンダ粒子 11 由来の金属 (Bi、Sn) の含有の有無を示すエネルギー分散型 X 線分析 (EDX) の画像処理図である。図 6 の左側上段の図に示すように、フラックス剤 13 部分では、ハンダ粒子 11 由来の金属 (Bi、Sn) が検出された。

[0129] [集積評価]

各接合シートについて、加熱によるハンダ粒子の集積評価を行った。まず、2 枚の配線回路基板を、接合シートを介して貼り合わせて、サンプルを用意した。各配線回路基板は、透明なガラス基板と、その上に形成された複数の端子 (幅 $30\ \mu\text{m}$) とを有する。複数の端子は、ガラス基板の一方向上において、並列に配置されている (隣り合う端子間のスペースは $30\ \mu\text{m}$)。サンプルでは、一方の配線回路基板の端子と他方の配線回路基板の端子とが対向するように、2 枚の配線回路基板が接合シートを介して接合されている。次に、サンプルを、 160°C 、30 秒間加熱処理した。加熱処理中、デジタルマイクロスコープ (商品名「VHX-7000」、キーエンス社製) を使用して、200 倍の拡大倍率で、サンプルにおける配線回路基板間の接合シートを観察した。30 秒の加熱処理後のハンダ粒子の集積状態を評価した。評価基準は以下の 1-4 とした。

1 : すべてのハンダ粒子が集積し、端子間に未集積ハンダ粒子が確認されなかった。

2 : ハンダ粒子は集積したが、端子間に未集積のハンダ粒子が確認された。

3 : ハンダ粒子の集積は見られたが、半分以上のハンダ粒子が未集積であった。

4 : ハンダ粒子の集積はほとんど確認されなかった。

結果を表 1 および表 2 に示す。

[0130] [抵抗値測定による耐久性評価]

各接合シートについて、次のようにして抵抗値測定による耐久性評価を行った。まず、2つの配線回路基板を、接合シートを介して貼り合わせて、サンプルを用意した。各配線回路基板は、透明なガラス基板と、その上に形成された複数の端子（幅 $30\mu\text{m}$ ）とを有する。複数の端子は、ガラス基板の一方向上において、並列に配置されている（隣り合う端子間のスペースは $30\mu\text{m}$ ）。サンプルでは、一方の配線回路基板の端子と他方の配線回路基板の端子とが対向するように、2つの配線回路基板が接合シートを介して接合されている。次に、このサンプルを、 160°C 、20秒間で加熱処理した。次に、サンプルの降温後、加熱処理を経た接合シートを介して対向する一对の端子間の抵抗値を測定し、耐久試験前の抵抗値とした。その後、サンプルを 60°C 、90%相対湿度（RH）の恒温恒湿槽の中に3週間静置し、取り出してから室温環境（ 25°C 、50%RH）にて同様に抵抗値を測定、耐久試験後の抵抗値とした。抵抗値測定には、デジタルマルチメーター PC-500a（三和電気計器社製）を使用した。耐久試験前の抵抗値に比して耐久試験後の抵抗値が15倍超過になったものを×、10倍超過15倍以下になったものを△、1倍超過10倍以下になったものを○、変化のなかったものを◎とした。なお、比較例3、4は、ハンダ粒子の集積が十分でなかったため、耐久性評価はしなかった。また、×、△は、余剰のフラックス剤によるハンダ金属の腐食により、抵抗値が上昇したことによる。

[0131] [フラックス偏在状態]

フラックスの偏在状態の評価は以下のようにして評価した。アセトン溶解リンゴ酸（実施例1）、および粉体リンゴ酸（比較例2）を用いた評価の例を示す。実施例1および比較例2の各例について、走査電子顕微鏡での観察画像を画像処理ソフト“Image J”を用いて評価した。

ハンダ粒子の中心部分から、ハンダ粒子径の1.5倍までを切り抜き、樹脂部分（除ハンダ粒子部分）とフラックス部分の面積比（フラックス部の割合）を算出した。それ以外に当たる部分について、同様の大きさの部分を取り取り、フラックス部の割合を算出した。

偏在状態の評価として、ハンダ粒子の周辺におけるフラックス部の割合と、それ以外でのフラックス部の割合を比較した。

結果として、（ハンダ粒子の周辺でのフラックス部の割合）／（それ以外でのフラックス部の割合）が、5倍より大きい場合を◎、2倍以上5倍未満の場合を○、それ以外を×として評価した。結果を、表1および表2に示す

。

[0132]

[表1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	
表 1 銅ペースト用 (製品名) 銅ペースト用 銅ペースト用	エボキン(JER 828)	60	60	60	60	60	60	
	アクリル(UH2170)粉体リンゴ酸	40	40	40	40	40	40	
	アセトン溶解リンゴ酸(固形分)	10	17.5	20	-	-	10	17.5
	溶解マロン酸(固形分)	-	-	-	10	20	-	-
	Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度500ppm、粒径7um	-	-	-	-	-	-	-
	Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度650ppm、粒径5um	-	-	-	-	-	150	-
	Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度300ppm、粒径3um	-	-	-	-	-	-	-
	Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度1100ppm、粒径3um	150	150	150	150	150	-	-
	Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度1500ppm、粒径3um	-	-	-	-	-	-	150
	y_1/x_1	0.050	0.086	0.099	0.064	0.127	0.061	0.063
	x_2/y_2	0.157	0.276	0.314	0.202	0.404	0.261	0.276
	集積評価	1	1	1	1	2	1	1
抵抗値測定による耐久性評価	◎	○	△	◎	△	◎	○	
フラックス偏在状態	◎	◎	○	◎	○	◎	◎	

[0133]

[表2]

	実施例 8	実施例 9	実施例 10	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
エポキシ(JER 828)	60	60	60	60	60	60	60
アクリル(UH2170)	40	40	40	40	40	40	40
粉体リンゴ酸	-	-	-	50	20	17.5	10
アセトン溶解リンゴ酸 (固形分)	20	10	10	-	-	-	-
溶解マロン酸 (固形分)	-	-	-	-	-	-	-
Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度500ppm、粒径7 μm	-	-	150	-	-	-	-
Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度650ppm、粒径5 μm	-	-	-	-	-	-	-
Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度300ppm、粒径3 μm	-	150	-	-	-	-	-
Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度1100ppm、粒径3 μm	-	-	-	150	150	150	150
Sn42-Bi58 (ハンダ粒子) 酸素濃度1500ppm、粒径3 μm	150	-	-	-	-	-	-
y_1/x_1	0.073	0.132	0.079	0.248	0.099	0.086	0.050
x_2/y_2	0.314	0.276	0.366	0.786	0.314	0.276	0.157
集積評価	1	1	1	1	2	3	4
抵抗値測定による耐久性評価	△	◎	◎	×	△	(-)	(-)
フラックス偏在状態	○	◎	◎	×	×	×	×

表 2

(阻 断 層)
図 5-1 の 組 成

[0134] なお、上記発明は、本発明の例示の実施形態として提供したが、これは単なる例示にすぎず、限定的に解釈してはならない。当該技術分野の当業者には

よって明らかな本発明の変形例は、後記請求の範囲に含まれるものである。

産業上の利用可能性

[0135] 本発明の接合シートおよびその製造方法は、例えば、配線回路基板の端子と電子部品の端子との接合、2つの配線回路基板の端子間の接合において、好適に用いられる。

符号の説明

[0136]	10	接合シート
	10a	表面
	H	厚さ方向
	10A	塗膜
	11	ハンダ粒子
	11A	ハンダ部
	12	マトリックス樹脂
	12A	硬化樹脂部
	13	フラックス剤
	S1、S2	基材
	30	配線回路基板
	40	電子部品

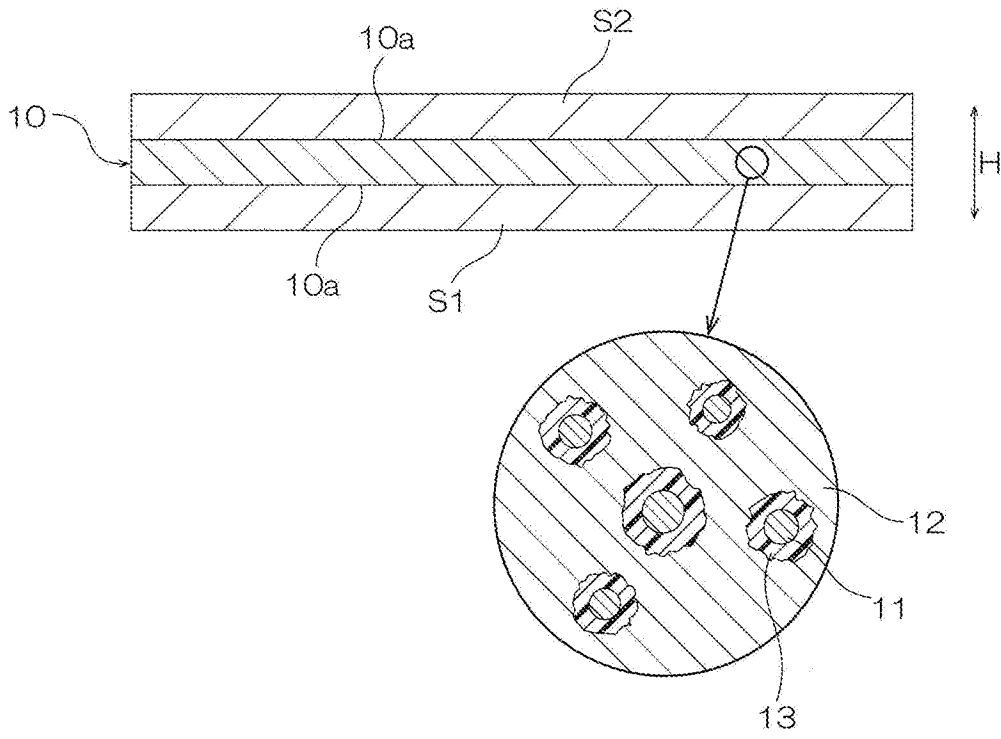
請求の範囲

- [請求項1] マトリックス樹脂と、ハンダ粒子と、フラックス剤とを含有する接合シートであって、
- 前記ハンダ粒子は、前記マトリックス樹脂中に分散しており、
- 前記フラックス剤は、前記マトリックス樹脂中において、前記ハンダ粒子のまわりに偏在している、接合シート。
- [請求項2] 前記ハンダ粒子のまわりに偏在している前記フラックス剤に、前記ハンダ粒子由来の金属が含まれている、請求項1に記載の接合シート。
- [請求項3] 前記ハンダ粒子の酸素濃度を x_1 ppm、前記ハンダ粒子100重量部に対する前記フラックス剤の含有量を y_1 mmolとした場合、下記式(1)を満たす、請求項1または2に記載の接合シート。
- $$0.045 \leq y_1 / x_1 \leq 0.090 \quad (1)$$
- [請求項4] 前記ハンダ粒子のメジアン径(D_{50})を x_2 μ m、前記ハンダ粒子100重量部に対する前記フラックス剤の含有量を y_2 molとした場合、下記式(2)を満たす、請求項1～3のいずれか一項に記載の接合シート。
- $$0.150 < x_2 y_2 < 0.300 \quad (2)$$
- [請求項5] 前記フラックス剤が、25℃で固体のカルボン酸である、請求項1～4のいずれか一項に記載の接合シート。
- [請求項6] 前記ハンダ粒子の融点が、150℃以下である、請求項1～5のいずれか一項に記載の接合シート。
- [請求項7] 30 μ m以下の厚さを有する、請求項1～6のいずれか一項に記載の接合シート。
- [請求項8] 第1溶媒にフラックス剤を溶解させてフラックス剤溶液を調製する第1工程と、
- 第2溶媒と、マトリックス樹脂成分と、ハンダ粒子と、前記フラックス剤溶液とを混合して混合組成物を調製する第2工程と、

前記混合組成物を基材上に塗布して塗膜を形成した後、前記塗膜を乾燥させて接合シートを形成する、第3工程とを含む、接合シートの製造方法。

[図1]

図1



[図2]

図2A

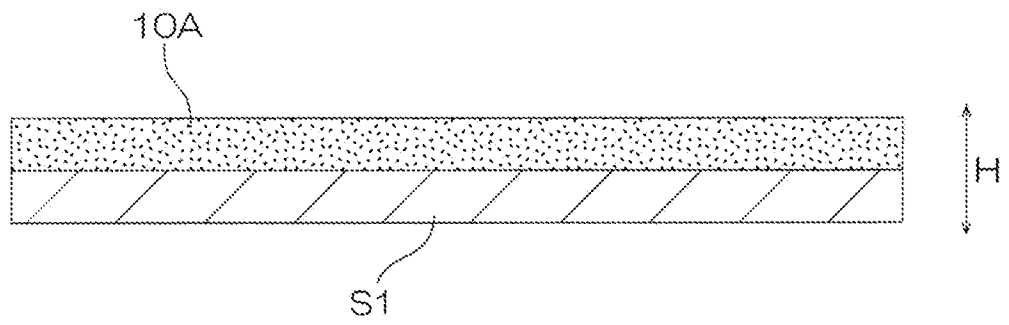
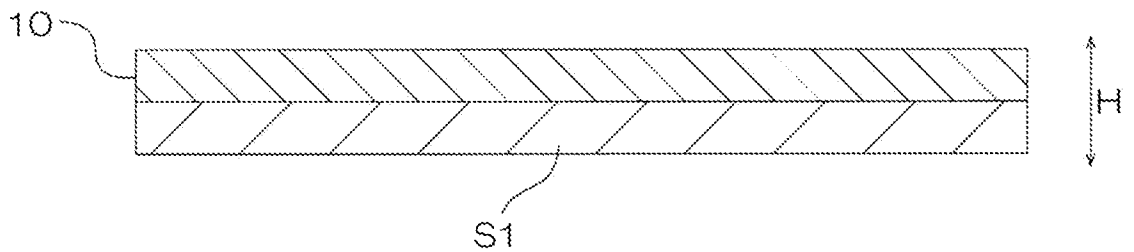
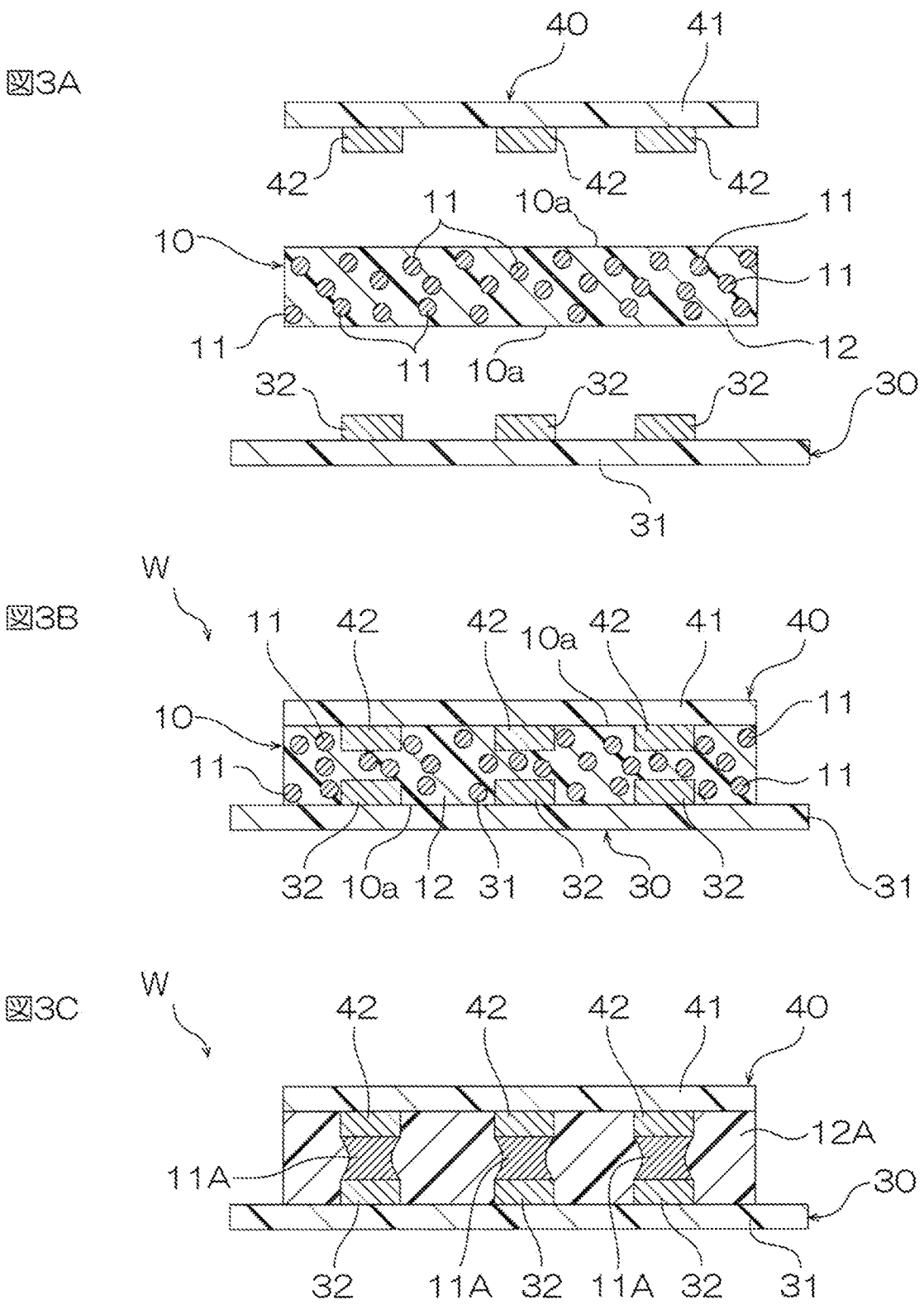


図2B



[図3]



[図4]



図4

[図5]

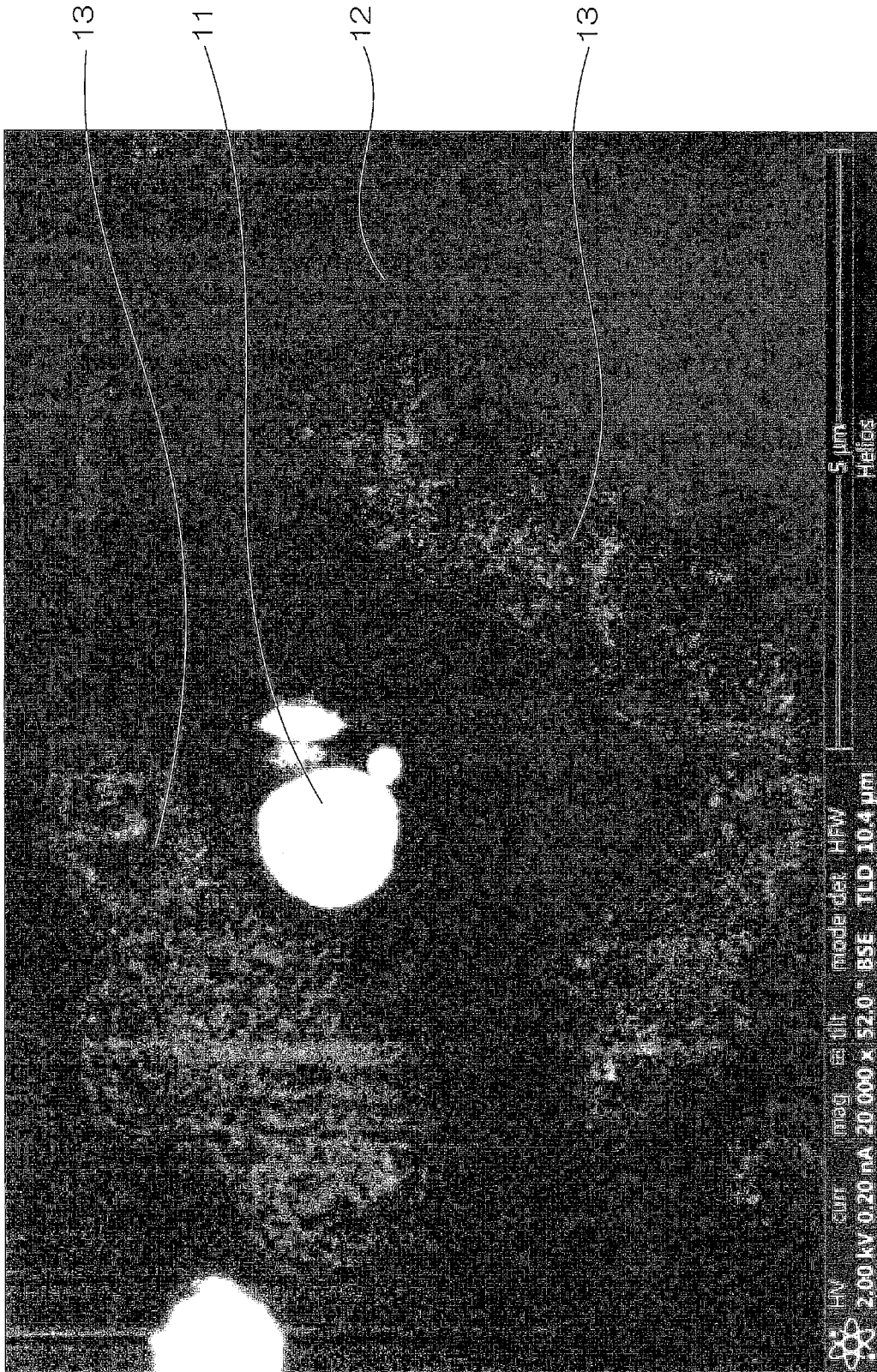


図5

[図7]

図7A

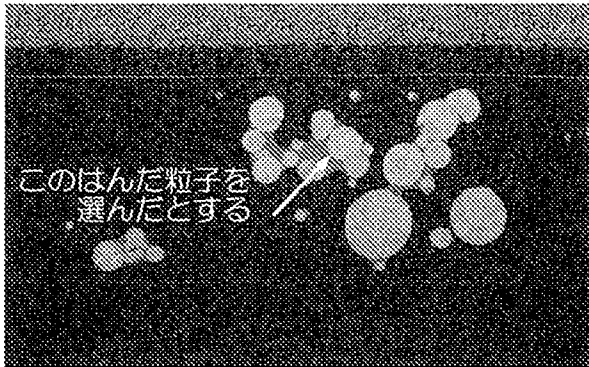
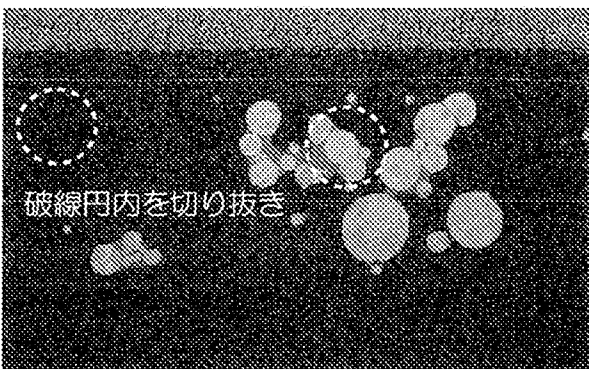


図7B

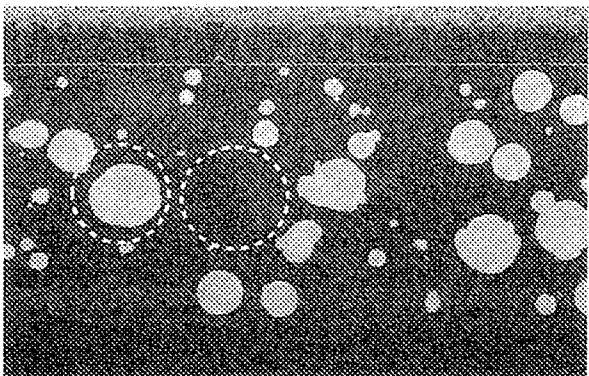


←ハンダ粒子を除いた樹脂部分について、フラックス/それ以外の面積を比較



←フラックス/それ以外の面積を比較

図7C



←ハンダ粒子を除いた樹脂部分について、フラックス/それ以外の面積を比較



←フラックス/それ以外の面積を比較

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/009645

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p>H01R 11/01(2006.01)i; B23K 1/00(2006.01)i; B23K 35/14(2006.01)i; B23K 35/26(2006.01)i; B23K 35/363(2006.01)i; B23K 35/40(2006.01)i; C08K 3/08(2006.01)i; C08K 5/09(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C09J 7/35(2018.01)i; C09J 9/02(2006.01)i; C09J 11/04(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; C09J 201/00(2006.01)i; C22C 12/00(2006.01)i</p> <p>FI: H01R11/01 501C; C09J7/35; C08L101/00; C08K3/08; C08K5/09; C09J201/00; C09J11/04; C09J11/06; B23K1/00 330E; B23K35/363 E; B23K35/40 340H; C09J9/02; C22C12/00; B23K35/26 310C; B23K35/14 D</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
H01R11/01; B23K1/00; B23K35/14; B23K35/26; B23K35/363; B23K35/40; C08K3/08; C08K5/09; C08L101/00; C09J7/35; C09J9/02; C09J11/04; C09J11/06; C09J201/00; C22C12/00		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
<p>Published examined utility model applications of Japan 1922-1996</p> <p>Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022</p> <p>Registered utility model specifications of Japan 1996-2022</p> <p>Published registered utility model applications of Japan 1994-2022</p>		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2016-131082 A (DEXERIALS CORP.) 21 July 2016 (2016-07-21) paragraphs [0016]-[0021], fig. 1A-1C	1, 7
Y	paragraphs [0016]-[0021], fig. 1A-1C	3-6
X	WO 2020/004510 A1 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 02 January 2020 (2020-01-02) paragraphs [0034]-[0035], [0056], fig. 1-2	1, 5, 7
Y	paragraphs [0034]-[0035], [0056], [0060], fig. 1-2	3, 4, 6
X	JP 2021-12758 A (SEKISUI CHEM. CO., LTD.) 04 February 2021 (2021-02-04) see paragraphs [0029]-[0039], [0054], [0057], [0065], [0111], [0115], [0122]	1, 3-7
Y	see paragraphs [0029]-[0039], [0054], [0057], [0065], [0111], [0115], [0122]	3-6
X	JP 2013-110403 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 06 June 2013 (2013-06-06) paragraphs [0059], [0061]-[0062]	1-2, 6-8
Y	paragraphs [0059], [0061]-[0062]	3-6
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
10 May 2022		24 May 2022
Name and mailing address of the ISA/JP		Authorized officer
<p>Japan Patent Office (ISA/JP)</p> <p>3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915</p> <p>Japan</p>		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/009645

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2016-131082	A	21 July 2016	US 2017/0359904 A1 paragraphs [0056]-[0061], fig. 1A-1C	
				WO 2016/114160 A1	
				KR 10-2017-0057363 A	
				CN 107112657 A	
WO	2020/004510	A1	02 January 2020	US 2021/0114147 A1 paragraphs [0064]-[0065], [0096], [0100], fig. 1-2	
				CN 112313032 A	
				KR 10-2021-0021544 A	
JP	2021-12758	A	04 February 2021	(Family: none)	
JP	2013-110403	A	06 June 2013	US 2014/0252607 A1 paragraphs [0113], [0116]-[0117]	
				WO 2013/062095 A1	
				CN 103907179 A	
				KR 10-2014-0084095 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>H01R 11/01(2006.01)i; B23K 1/00(2006.01)i; B23K 35/14(2006.01)i; B23K 35/26(2006.01)i; B23K 35/363(2006.01)i; B23K 35/40(2006.01)i; C08K 3/08(2006.01)i; C08K 5/09(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; C09J 7/35(2018.01)i; C09J 9/02(2006.01)i; C09J 11/04(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; C09J 201/00(2006.01)i; C22C 12/00(2006.01)i FI: H01R11/01 501C; C09J7/35; C08L101/00; C08K3/08; C08K5/09; C09J201/00; C09J11/04; C09J11/06; B23K1/00 330E; B23K35/363 E; B23K35/40 340H; C09J9/02; C22C12/00; B23K35/26 310C; B23K35/14 D</p>																													
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>H01R11/01; B23K1/00; B23K35/14; B23K35/26; B23K35/363; B23K35/40; C08K3/08; C08K5/09; C08L101/00; C09J7/35; C09J9/02; C09J11/04; C09J11/06; C09J201/00; C22C12/00</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2022年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2022年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2022年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2022年																			
日本国実用新案公報	1922 - 1996年																												
日本国公開実用新案公報	1971 - 2022年																												
日本国実用新案登録公報	1996 - 2022年																												
日本国登録実用新案公報	1994 - 2022年																												
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 2016-131082 A (デクセリアルズ株式会社) 21.07.2016 (2016 - 07 - 21) 段落0016-0021, 図1A-1C</td> <td>1, 7</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>段落0016-0021, 図1A-1C</td> <td>3-6</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>WO 2020/004510 A1 (日立化成株式会社) 02.01.2020 (2020 - 01 - 02) 段落0034-0035, 0056, 図1-2</td> <td>1, 5, 7</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>段落0034-0035, 0056, 0060, 図1-2</td> <td>3, 4, 6</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2021-12758 A (積水化学工業株式会社) 04.02.2021 (2021 - 02 - 04) 段落0029-0039, 0054, 0057, 0065, 0111, 0115, 0122参照</td> <td>1, 3-7</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>段落0029-0039, 0054, 0057, 0065, 0111, 0115, 0122参照</td> <td>3-6</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2013-110403 A (日立化成株式会社) 06.06.2013 (2013 - 06 - 06) 段落0059, 0061-0062</td> <td>1-2, 6-8</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>段落0059, 0061-0062</td> <td>3-6</td> </tr> </tbody> </table> <p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p> <p>* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献</p>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	X	JP 2016-131082 A (デクセリアルズ株式会社) 21.07.2016 (2016 - 07 - 21) 段落0016-0021, 図1A-1C	1, 7	Y	段落0016-0021, 図1A-1C	3-6	X	WO 2020/004510 A1 (日立化成株式会社) 02.01.2020 (2020 - 01 - 02) 段落0034-0035, 0056, 図1-2	1, 5, 7	Y	段落0034-0035, 0056, 0060, 図1-2	3, 4, 6	X	JP 2021-12758 A (積水化学工業株式会社) 04.02.2021 (2021 - 02 - 04) 段落0029-0039, 0054, 0057, 0065, 0111, 0115, 0122参照	1, 3-7	Y	段落0029-0039, 0054, 0057, 0065, 0111, 0115, 0122参照	3-6	X	JP 2013-110403 A (日立化成株式会社) 06.06.2013 (2013 - 06 - 06) 段落0059, 0061-0062	1-2, 6-8	Y	段落0059, 0061-0062	3-6
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号																											
X	JP 2016-131082 A (デクセリアルズ株式会社) 21.07.2016 (2016 - 07 - 21) 段落0016-0021, 図1A-1C	1, 7																											
Y	段落0016-0021, 図1A-1C	3-6																											
X	WO 2020/004510 A1 (日立化成株式会社) 02.01.2020 (2020 - 01 - 02) 段落0034-0035, 0056, 図1-2	1, 5, 7																											
Y	段落0034-0035, 0056, 0060, 図1-2	3, 4, 6																											
X	JP 2021-12758 A (積水化学工業株式会社) 04.02.2021 (2021 - 02 - 04) 段落0029-0039, 0054, 0057, 0065, 0111, 0115, 0122参照	1, 3-7																											
Y	段落0029-0039, 0054, 0057, 0065, 0111, 0115, 0122参照	3-6																											
X	JP 2013-110403 A (日立化成株式会社) 06.06.2013 (2013 - 06 - 06) 段落0059, 0061-0062	1-2, 6-8																											
Y	段落0059, 0061-0062	3-6																											
<p>国際調査を完了した日</p> <p>10.05.2022</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>24.05.2022</p>																												
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁 (ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>松永 謙一 3T 2925</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3368</p>																												

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/009645

引用文献			公表日	パテントファミリー文献		公表日
JP	2016-131082	A	21.07.2016	US 2017/0359904	A1	
				段落0056-0061, 図1A-1C		
				WO 2016/114160	A1	
				KR 10-2017-0057363	A	
				CN 107112657	A	

WO	2020/004510	A1	02.01.2020	US 2021/0114147	A1	
				段落0064-0065, 0096, 0100, 図1-2		
				CN 112313032	A	
				KR 10-2021-0021544	A	

JP	2021-12758	A	04.02.2021	(ファミリーなし)		

JP	2013-110403	A	06.06.2013	US 2014/0252607	A1	
				段落0113, 0116-0117		
				WO 2013/062095	A1	
				CN 103907179	A	
				KR 10-2014-0084095	A	
