(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 2 月 23 日(23.02.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/029993 A1

(51) 国際特許分類:
H01B 1/22 (2006.01) *H01R 11/01* (2006.01)
C08G 75/08 (2006.01) *H05K 3/32* (2006.01)
H01B 1/00 (2006.01) *H01B 5/00* (2006.01)
H01L 21/60 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/072776

(22) 国際出願日: 2016 年 8 月 3 日(03.08.2016)

(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 2015-162196 2015 年 8 月 19 日(19.08.2015) 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: 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). 高橋　英之(TAKAHASHI, Hideyuki); 〒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). 西岡　敬三(NISHIOKA, Keizo); 〒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ＦＮビル Osaka (JP).

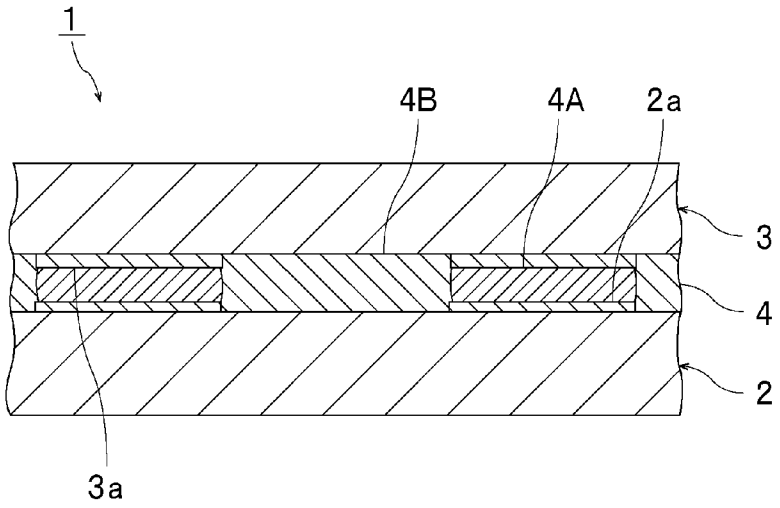
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG,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

[続葉有]

(54) **Title**: ELECTRICALLY CONDUCTIVE MATERIAL, AND CONNECTING STRUCTURE

(54) 発明の名称 : 導電材料及び接続構造体



(57) **Abstract**: Provided is an electrically conductive material in which a hardened material has excellent transparency, and in which the hardened material has excellent heat resistance and is therefore resistant to discoloration. The electrically conductive material according to the present invention includes: a plurality of electrically conductive particles comprising solder on an outer surface part of an electrically conductive part; a thermosetting compound; and a thermosetting agent. The thermosetting compound includes thermosetting compounds comprising a thiirane group and a triazine skeleton.

(57) 要約: 硬化物の透明性に優れており、硬化物が耐熱性に優れているので変色し難い導電材料を提供する。　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、熱硬化性化合物と、熱硬化剤とを含み、上記熱硬化性化合物が、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含む。

WO 2017/029993 A1

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:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

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気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気的に接続して、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）、銀（Ａｇ）及

びタリウム（ＴＩ）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、電極間を電気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] 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ペーストでは、硬化物の透明性が低いことがある。さらに、硬化物の耐熱性が低く、高温下に晒された硬化物が変色することがある。

[0010] 本発明の目的は、硬化物の透明性に優れており、硬化物が耐熱性に優れているので変色し難い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

[0011] 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、熱硬化性化合物と、熱硬化剤とを含み、前記熱硬化性化合

物が、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含む、導電材料が提供される。

[0012] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物の融点が１４０℃以上である。

[0013] 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、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物とは異なる熱硬化性化合物を含む。

[0014] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電性粒子の酸価が０．１ｍｇ／ＫＯＨ以上、１０ｍｇ／ＫＯＨ以下である。

[0015] 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、フラックスを含む。

[0016] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記フラックスが、アミド基と芳香族骨格とを有するフラックスであるか、又は、アミド基を有し、かつカルボン酸又はカルボン酸無水物とｐＫａが９．５以下であるアミノ基含有化合物との反応物であるフラックスである。

[0017] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記フラックスが、２５℃で固体である。

[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、カルボジイミド化合物を含む。

[0019] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電性粒子は、はんだ粒子である。

[0020] 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、前記導電性粒子の表面に付着していない絶縁性粒子を含む。

[0021] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電性粒子の平均粒子径が１μｍ以上、４０μｍ以下である。

[0022] 本発明に係る導電材料のある特定の局面では、前記導電材料１００重量％中、前記導電性粒子の含有量が１０重量％以上、８０重量％以下である。

[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、前記接続部の材料が、上述した導電材料であり、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。

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、熱硬化性化合物と、熱硬化剤とを含み、上記熱硬化性化合物が、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含むので、硬化物の透明性に優れており、硬化物が耐熱性に優れているので変色し難い。

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、熱硬化性成分を含む。上記熱硬化性成分は、熱硬化性化合物と、熱硬化剤とを含む。

[0031] 本発明に係る導電材料では、上記熱硬化性化合物が、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含む。

[0032] 本発明では、上記の構成が備えられているので、硬化物の透明性を高めることができ、更に硬化物が耐熱性に優れているので、硬化物が高温下に晒されても変色し難くすることができる。

[0033] さらに、本発明では、電極幅が狭くても導電性粒子におけるはんだを電極上に効率的に配置することができる。電極幅が狭い場合に、電極上に導電性粒子のはんだを寄せ集めにくい傾向があるが、本発明では、電極幅が狭くても、電極上にはんだを充分に寄せ集めることができる。本発明では、上記の構成が備えられているので、電極間を電気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位置しやすく、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。また、本発明では、電極幅が広いと、導電性粒子におけるはんだが電極上により一層効率的に配置される。

[0034] 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気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。

[0035] さらに、本発明では、導電材料の硬化物の耐熱性を高めることができる。特に、光半導体装置に導電材料を用いた場合に、光照射時に発熱し、導電材料の硬化物が高温下に晒される。本発明に係る導電材料は、硬化物の耐熱性に優れているので、光半導体装置に好適に用いることができる。特に、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を用いているので、導電材料の硬化物の耐熱性が高くなる。

[0036] また、本発明では、導電材料の硬化物の屈折率を高めることができる。特に、本発明では、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を用いているので、導電材料の硬化物の屈折率が高くなる。導電材料の硬化物の屈折率をより一層高める観点からは、上記熱硬化性化合物は、トリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含むことが好ましく、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含むことがより好ましく、本発明では、上記熱硬化性化合物は、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含む。上記熱硬化性化合物の屈折率は、好ましくは１．７５以上、より好ましくは１．８以上であり、好ましくは１．９以下、より好ましくは１．８５以下である。上記熱硬化性化合物の屈折率が、上記下限以上であると、導電材料の硬化物の屈折率をより一層高めることができる。

[0037] 上記熱硬化性化合物の屈折率は、カルニュー精密屈折計を用いて測定することができる。上記カルニュー精密屈折計としては、例えば、島津製作所社製「ＫＰＲ－３０００」が用いられる。

[0038] さらに、本発明では、導電材料の硬化物の吸水率を低くすることができる。特に、本発明では、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を用いているので、導電材料の硬化物の吸水率が低くなる。導電材料の硬化物の吸水率をより一層低くする観点からは、上記熱硬化性化合物は、トリ

アジン骨格を有する熱硬化性化合物を含むことが好ましく、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含むことがより好ましく、本発明では、上記熱硬化性化合物は、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含む。上記熱硬化性化合物の吸水率は、好ましくは２％以下、より好ましくは１．５％以下である。上記熱硬化性化合物の吸水率が、上記上限以下であると、導電材料の硬化物の吸水率をより一層低くすることができる。上記熱硬化性化合物の吸水率の下限は、特に限定されない。上記熱硬化性化合物の吸水率は、０．１％以上であってもよい。導電材料の硬化物の吸水率をより一層低くする観点からは、上記熱硬化性化合物の吸水率は、低い方が好ましい。

[0039] 上記熱硬化性化合物の吸水率は、以下のようにして測定することができる。

[0040] 熱硬化性化合物５ｇを水分計に入れ、１０５℃で５時間乾燥させた後の重量を測定することにより、吸水率を算出することができる。上記水分計としては、例えば、島津製作所社製「ＭＯＣ６３ｕ」が用いられる。

[0041] さらに、本発明では、電極間の位置ずれを防ぐことができる。本発明では、導電材料を上面に配置した第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）。

[0042] 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。はんだを電極上により一層効率的に配置するために、上記導電材料の２５℃での粘度（η２５）は好ましくは１０Ｐａ・ｓ以上、より好ましくは５０Ｐａ・ｓ以上、更に好ましくは１００Ｐａ・ｓ以上であり、好ましくは８００Ｐａ・ｓ以下、より好ましくは６００Ｐａ・ｓ以下、更に好ましくは５００Ｐ

ａ・ｓ以下である。上記粘度（η２５）は、配合成分の種類及び配合量により適宜調整可能である。また、フィラーの使用により、粘度を比較的高くすることができる。

[0043] 上記粘度（η２５）は、例えば、Ｅ型粘度計（東機産業社製「ＴＶＥ２２Ｌ」）等を用いて、２５℃及び５ｒｐｍの条件で測定可能である。

[0044] 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。上記導電ペーストは異方性導電ペーストであることが好ましく、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。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する観点からは、上記導電材料は、導電ペーストであることが好ましい。上記導電材料は、電極の電気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。

[0045] 以下、上記導電材料に含まれる各成分を説明する。

[0046] （導電性粒子）

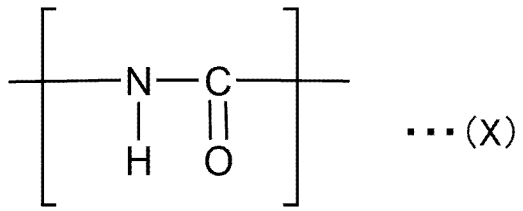
上記導電性粒子は、接続対象部材の電極間を電気的に接続する。上記導電性粒子は、導電部の外表面部分にはんだを有する。上記導電性粒子は、はんだにより形成されたはんだ粒子であってもよい。上記はんだ粒子は、はんだを導電部の外表面部分に有する。上記はんだ粒子は、中心部分及び導電部の外表面部分とのいずれもがはんだにより形成されている。上記はんだ粒子は、上記はんだ粒子の中心部分及び導電性の外表面のいずれもがはんだである粒子である。上記導電性粒子は、基材粒子と、該基材粒子の表面上に配置された導電部とを有していてもよい。この場合に、上記導電性粒子は、導電部の外表面部分に、はんだを有する。

[0047] 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、はんだにより形成されたはんだ粒子で

あることが好ましい。

[0048] 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、Ｓｉ－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。

[0049] [化1]



・・・(X)

[0050] 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。

[0051] 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。

[0052] 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はんだ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。

[0053] 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。

[0054] 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。

[0055] 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。

[0056] 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。

[0057] 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、カルボキシル基であってもよい。上記水酸基と反応可能な官能基がカルボキシル基である場合には、上記化合物Ｘは、カルボキシル基を少なくとも２個有することが好ましい。カルボキシル基を少なくとも２個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に反応させることで、はんだの表面にカルボキシル基を含む基が共有結合している導電性粒子が得られる。

[0058] 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ル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、カルボキシル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。

[0059] 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ル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、カルボキシル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。

[0060] 上記溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール、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。

[0061] 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。

[0062] 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。

[0063] 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。

[0064] 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。

[0065] 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。

[0066] 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。

[0067] 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。

[0068] 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（信越シリコーン社製「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。

[0069] 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。

[0070] 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。

[0071] 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。

[0072] 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。

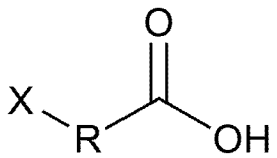
[0073] また、上記導電性粒子の具体的な製造方法としては、以下の方法が挙げら

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。

[0074] 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。

[0075] 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。

[0076] [化2]



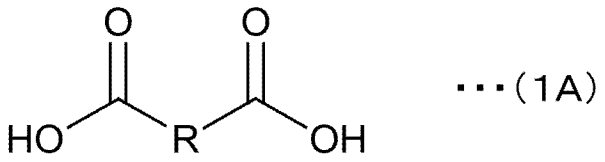
・・・（1）

[0077] 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。

[0078] 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。

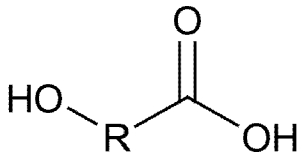
[0079] [化3]



・・・（1A）

[0080] 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。

[0081] [化4]

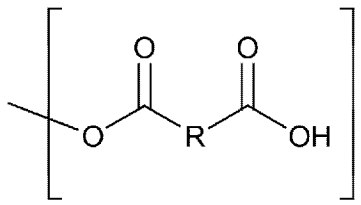


・・・（1B）

[0082] 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。

[0083] 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。

[0084] [化5]

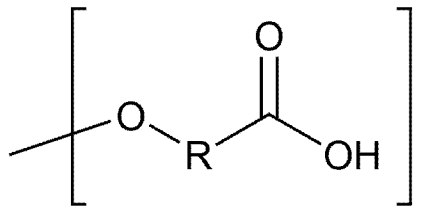


・・・（2A）

[0085] 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。

[0086]

[化6]



・・・（2B）

[0087] 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。

[0088] 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。

[0089] 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。

[0090] 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。

[0091] 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。

[0092] 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－$H_3CC_6H_4S$（＝Ｏ）$_2$－）、スルホン酸イオン基（－SO_3^-）、及びリン酸イオン基（－PO_4^-）等が挙げられる。

[0093] 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。

[0094] 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。

[0095] 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、導電接続時に導電性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。

[0096] 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（ＧＰ

Ｃ）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。

[0097] 導電性粒子本体を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た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、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。

[0098] 次に、図面を参照しつつ、導電性粒子の具体例を説明する。

[0099] 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。

[0100] 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。

[0101] 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。

[0102] 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。

[0103] 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。

[0104] 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。

[0105] 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。

[0106] 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。

[0107] 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。

[0108] 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。

[0109] 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。

[0110] 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、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。

[0111] 「（メタ）アクリレート」の用語は、アクリレートとメタクリレートとを示す。「（メタ）アクリル」の用語は、アクリルとメタクリルとを示す。「（メタ）アクリロイル」の用語は、アクリロイルとメタクリロイルとを示す。

[0112] 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。

[0113] 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。

[0114] 上記有機無機ハイブリッド粒子は、コアと、該コアの表面上に配置されたシェルとを有するコアシェル型の有機無機ハイブリッド粒子であることが好ましい。上記コアが有機コアであることが好ましい。上記シェルが無機シェ

ルであることが好ましい。電極間の接続抵抗を効果的に低くする観点からは、上記基材粒子は、有機コアと上記有機コアの表面上に配置された無機シェルとを有する有機無機ハイブリッド粒子であることが好ましい。

[0115] 上記有機コアを形成するための材料としては、上述した樹脂粒子を形成するための樹脂等が挙げられる。

[0116] 上記無機シェルを形成するための材料としては、上述した基材粒子を形成するための無機物が挙げられる。上記無機シェルを形成するための材料は、シリカであることが好ましい。上記無機シェルは、上記コアの表面上で、金属アルコキシドをゾルゲル法によりシェル状物とした後、該シェル状物を焼結させることにより形成されていることが好ましい。上記金属アルコキシドはシランアルコキシドであることが好ましい。上記無機シェルはシランアルコキシドにより形成されていることが好ましい。

[0117] 上記コアの粒子径は、好ましくは０．５μｍ以上、より好ましくは１μｍ以上であり、好ましくは１００μｍ以下、より好ましくは５０μｍ以下、更に好ましくは４０μｍ以下、特に好ましくは３０μｍ以下、最も好ましくは１５μｍ以下である。上記コアの粒子径が上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間の電気的な接続により一層適した導電性粒子が得られ、基材粒子を導電性粒子の用途に好適に使用可能になる。例えば、上記コアの粒子径が上記下限以上及び上記上限以下であると、上記導電性粒子を用いて電極間を接続した場合に、導電性粒子と電極との接触面積が充分に大きくなり、かつ基材粒子の表面に導電部を形成する際、凝集した導電性粒子が形成され難くなる。また、導電性粒子を介して接続された電極間の間隔が大きくなりすぎず、かつ導電部が基材粒子の表面から剥離し難くなる。

[0118] 上記コアの粒子径は、上記コアが真球状である場合には直径を意味し、上記コアが真球状以外の形状である場合には、最大径を意味する。また、コアの粒子径は、コアを任意の粒子径測定装置により測定した平均粒子径を意味する。例えば、レーザー光散乱、電気抵抗値変化、撮像後の画像解析などの原理を用いた粒度分布測定機が利用できる。

[0119] 上記シェルの厚みは、好ましくは１００ｎｍ以上、より好ましくは２００ｎｍ以上であり、好ましくは５μｍ以下、より好ましくは３μｍ以下である。上記シェルの厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間の電気的な接続により一層適した導電性粒子が得られ、基材粒子を導電性粒子の用途に好適に使用可能になる。上記シェルの厚みは、基材粒子１個あたりの平均厚みである。ゾルゲル法の制御によって、上記シェルの厚みを制御可能である。

[0120] 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。

[0121] 上記基材粒子の粒子径は、好ましくは０．１μｍ以上、より好ましくは１μｍ以上、更に好ましくは１．５μｍ以上、特に好ましくは２μｍ以上であり、好ましくは１００μｍ以下、より好ましくは５０μｍ以下、より一層好ましくは４０μｍ以下、更に好ましくは２０μｍ以下、更に一層好ましくは１０μｍ以下、特に好ましくは５μｍ以下、最も好ましくは３μｍ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することができ、更に電極間の間隔をより小さくすることができる。

[0122] 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。

[0123] 上記基材粒子の粒子径は、２μｍ以上、５μｍ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２μｍ以上、５μｍ以下の範囲内であると、電極間の間隔をより小さくすることができ、かつ導電層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。

[0124] 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。

[0125] 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℃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、特に好ましくは４５０℃を超える。なお、上記基材粒子の融点は、４００℃未満であってもよい。上記基材粒子の融点は、１６０℃以下であってもよい。上記基材粒子の軟化点は２６０℃以上であることが好ましい。上記基材粒子の軟化点は２６０℃未満であってもよい。

[0126] 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。

[0127] 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。

[0128] 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。

[0129] 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。

[0130] 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。

[0131] 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。

[0132] 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、好ましくは１重量％以下である。

[0133] 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を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。

[0134] 上記はんだ部の融点と上記第２の導電部と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。

[0135] 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、錫ドープ酸化インジウム（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。

[0136] 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。

[0137] 上記はんだ部の厚みは、好ましくは０．００５μｍ以上、より好ましくは０．０１μｍ以上であり、好ましくは１０μｍ以下、より好ましくは１μｍ以下、更に好ましくは０．３μｍ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、充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を充分に変形する。

[0138] 上記導電性粒子の平均粒子径は、好ましくは０．５μｍ以上、より好ましくは１μｍ以上、更に好ましくは３μｍ以上であり、好ましくは１００μｍ以下、より好ましくは５０μｍ以下、更に好ましくは４０μｍ以下、特に好ましくは３０μｍ以下である。上記導電性粒子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。

[0139] 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。

[0140] 上記導電性粒子の粒子径の変動係数は、好ましくは５％以上、より好ましくは１０％以上であり、好ましくは４０％以下、より好ましくは３０％以下である。上記粒子径の変動係数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る。但し、上記導電性粒子の粒子径の変動係数は、５％未満であってもよい。

[0141] 上記変動係数（ＣＶ値）は下記式で表される。

[0142] ＣＶ値（％）＝（ρ／Ｄｎ）×１００

ρ：導電性粒子の粒子径の標準偏差

Ｄｎ：導電性粒子の粒子径の平均値

[0143] 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。

[0144] 上記導電性粒子の酸価は好ましくは０．１ｍｇ／ＫＯＨ以上、より好ましくは１ｍｇ／ＫＯＨ以上、好ましくは１０ｍｇ／ＫＯＨ以下、より好ましくは７ｍｇ／ＫＯＨ以下である。上記酸価が上記下限以上及び上記上限以下であると、硬化物の耐熱性がより一層高くなり、硬化物の変色がより一層抑えられる。

[0145] 上記酸価は以下のようにして測定することができる。エタノールにフェノールフタレインを入れ、０．１Ｎ－ＫＯＨにて中和した溶液５０ｍｌに対し、導電性粒子１ｇを入れ、超音波処理にて分散させた後、０．１Ｎ－ＫＯＨにて滴定する。

[0146] 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は多い方が好ましい。

[0147] （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、シリコー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。

[0148] 本発明では、上記熱硬化性化合物は、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含む。この特定の熱硬化性の使用により、硬化物の透明性が高くなり、硬化物の耐熱性が高くなる。また、上記熱硬化性化合物がトリアジン骨格を有することで、硬化物の誘電率が効果的に低くなる。

[0149] トリアジン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。上記チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物は、例えば、上記トリアジン骨格を有する熱硬化性化合物のエポキシ基をチイラン基に変換することにより得ることができる。エポキシ基をチイラン基に変換する方法は、公知である。

[0150] 上記チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物の融点は、好

ましくは１４０℃以上、より好ましくは１５０℃以上である。上記融点が上記下限以上であると、電極間に導電性粒子がより一層効率的に配置される。上記チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物の融点は、上記導電性粒子におけるはんだの融点以上であることが好ましい。

[0151] 上記熱硬化性化合物は、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物とは異なる熱硬化性化合物を含んでいてもよい。上記チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物とは異なる熱硬化性化合物は、チイラン基を有さない熱硬化性化合物であってもよく、トリアジン骨格を有さない熱硬化性化合物であってもよく、エポキシ化合物であってもよい。

[0152] 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、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℃以下であり、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。

[0153] 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

含有量は多い方が好ましい。

[0154] 上記導電材料１００重量％中、上記チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物の含有量は、好ましくは１０重量％以上、より好ましくは２０重量％以上であり、好ましくは９０重量％以下、より好ましくは８０重量％以下である。上記チイラン基及びトリアジン骨格を有する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、硬化物の透明性及び耐熱性が効果的に高くなる。

[0155] （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。

[0156] 導電材料を低温でより一層速やかに硬化可能とする観点からは、上記熱硬化剤は、イミダゾール硬化剤、チオール硬化剤、又はアミン硬化剤であることが好ましい。また、上記熱硬化性化合物と上記熱硬化剤とを混合したときの保存安定性を高める観点からは、上記熱硬化剤は、潜在性の硬化剤であることが好ましい。潜在性の硬化剤は、潜在性イミダゾール硬化剤、潜在性チオール硬化剤又は潜在性アミン硬化剤であることが好ましい。なお、上記熱硬化剤は、ポリウレタン樹脂又はポリエステル樹脂等の高分子物質で被覆されていてもよい。

[0157] 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。

[0158] 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。

[0159] 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、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。

[0160] 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。

[0161] 上記熱カチオン開始剤（熱カチオン硬化剤）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。

[0162] 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－ｔｅｒｔ－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。

[0163] 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。

[0164] 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。

[0165] 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。

[0166] 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の全体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、導電材料を充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。

[0167] （フラックス）

上記導電ペーストは、フラックスを含むことが好ましい。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。該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。

[0168] 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物との混合物、塩化亜鉛と無機酸との混合物、溶融塩、リン酸、リン酸の誘導体、有機ハロゲン化物、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。

[0169] 上記溶融塩としては、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、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。

[0170] 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。

[0171] 上記フラックスは、アミド基と芳香族骨格とを有するフラックスであるか、又は、アミド基を有し、かつカルボン酸又はカルボン酸無水物とｐＫａが９．５以下であるアミノ基含有化合物との反応物であるフラックスであることが好ましい。この場合には、導電材料の保存安定性が高くなり、電極間の接続時に導電性粒子を除く成分が過度に流れ難く、接着力を高めて導通信頼性を高めることができる。

[0172] 上記フラックスは、アミド基と芳香族骨格とを有するフラックスであることが好ましく、アミド基を有し、かつカルボン酸又はカルボン酸無水物とｐＫａが９．５以下であるアミノ基含有化合物との反応物であるフラックスであることも好ましい。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。

[0173] なお、上記フラックスが、カルボン酸又はカルボン酸無水物とｐＫａが９．５以下であるアミノ基含有化合物との反応物である場合に、ｐＫａが特定の範囲にあるアミノ基含有化合物を用いている反応物の範囲を構造又は特性により直接特定することは不可能である。

[0174] 導電材料の保存安定性を効果的に高くし、電極間の接続時に導電性粒子を除く成分をより一層流れ難くする観点からは、上記フラックスは、２５℃で固体であることが好ましい。

[0175] 上記フラックスは、例えば、カルボン酸又はカルボン酸無水物とアミノ基含有化合物とを反応させることにより得ることができる。

[0176] 上記カルボン酸又はカルボン酸無水物としては、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、及びリンゴ酸等が挙げられる。

[0177] 上記アミノ基含有化合物としては、ベンジルアミン、アニリン及びジフェニルアミン等が挙げられる。導電材料の保存安定性を効果的に高くし、電極間の接続時に導電性粒子を除く成分をより一層流れ難くする観点からは、上記アミノ基含有化合物は、芳香族アミン化合物であることが好ましい。

[0178] 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。

[0179] 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。

[0180] 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。

[0181] 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。

[0182] 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。

[0183] 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。

[0184] 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拡がることができる。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。

[0185] 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。上記導電材料は、フラックスを含んでいなくてもよい。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。

[0186] （絶縁性粒子）

導電材料の硬化物により接続される接続対象部材間の間隔、並びに導電性

粒子におけるはんだにより接続される接続対象部材間の間隔を高精度に制御する観点からは、上記導電材料は、絶縁性粒子を含むことが好ましい。上記導電材料において、上記絶縁性粒子は、導電性粒子の表面に付着していなくてもよい。上記導電材料中で、上記絶縁性粒子は上記導電性粒子と離れて存在することが好ましい。

[0187] 上記絶縁性粒子の平均粒子径は、好ましくは１０μｍ以上、より好ましくは２０μｍ以上、更に好ましくは２５μｍ以上であり、好ましくは１００μｍ以下、より好ましくは７５μｍ以下、更に好ましくは５０μｍ以下である。上記基材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、導電材料の硬化物により接続される接続対象部材間の間隔、並びに導電性粒子におけるはんだにより接続される接続対象部材間の間隔がより一層適度になる。

[0188] 上記絶縁性粒子の材料としては、絶縁性の樹脂、及び絶縁性の無機物等が挙げられる。上記絶縁性の樹脂としては、基材粒子として用いることが可能な樹脂粒子を形成するための樹脂として挙げた上記樹脂が挙げられる。上記絶縁性の無機物としては、基材粒子として用いることが可能な無機粒子を形成するための無機物として挙げた上記無機物が挙げられる。

[0189] 上記絶縁性粒子の材料である絶縁性樹脂の具体例としては、ポリオレフィン類、（メタ）アクリレート重合体、（メタ）アクリレート共重合体、ブロックポリマー、熱可塑性樹脂、熱可塑性樹脂の架橋物、熱硬化性樹脂及び水溶性樹脂等が挙げられる。

[0190] 上記ポリオレフィン類としては、ポリエチレン、エチレン－酢酸ビニル共重合体及びエチレン－アクリル酸エステル共重合体等が挙げられる。上記（メタ）アクリレート重合体としては、ポリメチル（メタ）アクリレート、ポリエチル（メタ）アクリレート及びポリブチル（メタ）アクリレート等が挙げられる。上記ブロックポリマーとしては、ポリスチレン、スチレン－アクリル酸エステル共重合体、ＳＢ型スチレン－ブタジエンブロック共重合体、及びＳＢＳ型スチレン－ブタジエンブロック共重合体、並びにこれらの水素

添加物等が挙げられる。上記熱可塑性樹脂としては、ビニル重合体及びビニル共重合体等が挙げられる。上記熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂及びメラミン樹脂等が挙げられる。上記水溶性樹脂としては、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸、ポリアクリルアミド、ポリビニルピロリドン、ポリエチレンオキシド及びメチルセルロース等が挙げられる。水溶性樹脂が好ましく、ポリビニルアルコールがより好ましい。

[0191] 上記絶縁性粒子の材料である絶縁性無機物の具体例としては、シリカ及び有機無機ハイブリッド粒子等が挙げられる。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。

[0192] 上記導電材料１００重量％中、上記絶縁性粒子の含有量は好ましくは０．１重量％以上、より好ましくは０．５重量％以上であり、好ましくは１０重量％以下、より好ましくは５重量％以下である。上記導電材料は、絶縁性粒子を含んでいなくてもよい。絶縁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、導電材料の硬化物により接続される接続対象部材間の間隔、並びに導電性粒子におけるはんだにより接続される接続対象部材間の間隔がより一層適度になる。

[0193] （カルボジイミド化合物）

硬化物の透明性及び耐熱性を効果的に高める観点からは、上記導電材料はカルボジイミド化合物を含むことが好ましい。

[0194] 上記カルボジイミド化合物としては、１，３－ジイソプロピルカルボジイミド、ビス（２，６－ジイソプロピルフェニル）カルボジイミド、１－エチル－３－（３－ジメチルアミノプロピル）カルボジイミド塩酸塩、１－（３－（ジメチルアミノ）プロピル）－３－エチルカルボジイミド、Ｎ，Ｎ’－

ジシクロヘキシルカルボジイミド、Ｎ，Ｎ’－ジイソプロピルカルボジイミド、Ｎ－シクロヘキシル－Ｎ’－（２－モルホリノエチル）カルボジイミドメト－ｐ－トルエンスルホン酸塩、末端イソシアネート基変性のポリカルボジイミド化合物、環状カルボジイミド化合物、カルボジイミド化触媒の存在下でジイソシアネートを重合させて得られるポリカルボジイミド化合物等が挙げられる。分子量が大きくアウトガスが発生しにくいことから、ポリカルボジイミド化合物が好ましい。

[0195] 上記ポリカルボジイミド化合物の市販品としては、例えば、カルボジライトＶ０２Ｂ、カルボジライトＶ０４Ｋ、カルボジライトＶ０５（いずれも日清紡社製）等が挙げられる。

[0196] 硬化物の透明性及び耐熱性を効果的に高める観点からは、上記導電材料１００重量％中、上記カルボジイミド化合物の含有量は、好ましくは０．０１重量％以上、より好ましくは０．１重量％以上であり、好ましくは５重量％以下、より好ましくは３重量％以下である。

[0197] （他の成分）

上記導電材料は、必要に応じて、例えば、カップリング剤、遮光剤、反応性希釈剤、消泡剤、レベリング剤、充填剤、増量剤、軟化剤、可塑剤、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。

[0198] （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る。上記接続部が、上述した導電材料の硬化物である。上記接続部が、上述した導電材料により形成されている。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気的に接続されている。

[0199] 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気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。

[0200] 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気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。

[0201] 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、上記導電材料として、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。

[0202] 電極間でのはんだ部の厚みは、好ましくは１０μｍ以上、より好ましくは２０μｍ以上であり、好ましくは１００μｍ以下、より好ましくは８０μｍ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

７０％以上であり、好ましくは１００％以下である。

[0203] 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気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。

[0204] 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て採用することには、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。

[0205] なお、ＷＯ２００８／０２３４５２Ａ１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、０ＭＰａ以上、好ましくは１ＭＰａ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０ＭＰａ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。ＷＯ２００８／０２３４５２Ａ１では、接着テープに意図的に加える圧力が０ＭＰａであってもよいことは記載されているが、０ＭＰａを超える圧力を付与した場合と０ＭＰａ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、ＷＯ２００８／０２３４５２Ａ１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。

[0206] 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。

[0207] 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。

[0208] 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。

[0209] 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、上記導電材料は、導電性粒子と、バインダーとを含む。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。本実施形態では、バインダーは、熱硬化性化合物と、熱硬化剤とを含む。上記熱硬

化性化合物と上記熱硬化剤とを、熱硬化性成分と呼ぶ。

[0210] 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。

[0211] 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により電気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により電気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。

[0212] 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。

[0213] 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てもよい。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てもよい。

[0214] 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。

[0215] 導通信頼性をより一層高める観点からは、接続構造体１，１Ｘでは、第１の電極２ａと接続部４，４Ｘと第２の電極３ａとの積層方向に第１の電極２ａと第２の電極３ａとの対向し合う部分をみたときに、第１の電極２ａと第２の電極３ａとの対向し合う部分の面積１００％中の５０％以上に、接続部４，４Ｘ中のはんだ部４Ａ，４ＸＡが配置されていることが好ましい。

[0216] 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。

[0217] 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と直交する方向に上記第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に、上記接続部中のはんだ部の６０％以上（より好ましくは７０％以上、更に好ましくは９０％以上、特に好ましくは９５％以上、最も好ましくは９９％以上）が配置されていることが好ましい。

[0218] 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。

[0219] 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。

[0220] 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。

[0221] 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。

[0222] 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。

[0223] 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（熱硬化性化合物）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１１Ａが、第１の電極２ａと第２の電極３ａとの間に効果的に集まる。また、はんだ粒子１１Ａは溶融し、互いに接合する。また、熱硬化性成分１１Ｂ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１１により形成する。導電材料１１により接続部４が形成され、複数のはんだ粒子１１Ａが接合することによってはんだ部４Ａが形成され、熱硬化性成分１１Ｂが熱硬化することによって硬化物部４Ｂが形成される。はんだ粒子１１Ａが十分に移動すれば、第１の電極２ａと第２の電極３ａとの間に位置していないはんだ粒子１１Ａの移動が開始してから、第１の電極２ａと第２の電極３ａとの間にはんだ粒子１１Ａの移動が完了するまでに、温度を一定に保持しなくてもよい。

[0224] 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１１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１１Ａが、第１の電極２ａと第２の電極３ａ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１１Ａが第１の電極２ａと第２の電極３ａ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。

[0225] 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の接続対象部材との電極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。

[0226] 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。

[0227] 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。

[0228] 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化合物の硬化温度以上に、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。

[0229] 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。

[0230] 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充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。

[0231] 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プされた酸化インジウム及び３価の金属元素がドープ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、ＡＩ及びＧａ等が挙げられる。

[0232] 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。

[0233] （１）チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物Ａの合成：

攪拌機、冷却機及び温度計を備えた容器内に、メタノール１１００ｍＬと、トリメチルチオ尿素４００ｇとを加えて容器内に第１の溶液を調製した。その後、容器内の温度を６０℃に保持した。

[0234] 次に、６０℃に保持された第１の溶液を攪拌しながら、該第１の溶液中に、ＴＥＰＩＣ－ＶＬ（日産化学工業社製）６００ｇとトルエン３６００ｍＩ

とを入れた後、３０分間さらに攪拌し、エポキシ化合物含有溶液を得た。

[0235] 次に、上記エポキシ化合物含有溶液を攪拌しながら、窒素フロー下、６０℃で５時間反応させた。その後、容器内の溶液を分液ロートに移し、２時間静置し、溶液を分離させた。分液ロート内の下方の溶液を排出し、上澄み液を取り出した。取り出された上澄み液にトルエン９５０ｍＬを加え、攪拌し、２時間静置した。

[0236] 次に、トルエンが加えられた上澄み液に純水を入れ、撹拌、下方の溶液の排出を繰り返すことで洗浄を行った。

[0237] その後、上澄み液に、硫酸マグネシウム２００ｇを加え、５分間攪拌した。攪拌後、ろ紙により硫酸マグネシウムを取り除いて、溶液を分離した。真空乾燥機を用いて、減圧乾燥することにより、残存している溶剤を除去した。このようにして、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物Ａを得た。

[0238] クロロホルムを溶媒として、得られた熱硬化性化合物Ａの^{1}Ｈ－ＮＭＲの測定を行った。この結果、エポキシ基がエピスルフィド基に変換されていることを確認した。

[0239] （２）チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物Ｂの合成：

ＴＥＰＩＣ－ＶＬ（日産化学工業社製）をＴＥＰＩＣ－ＨＰ（日産化学工業社製）に変更し、容器内温度を８０℃に変更したこと以外は、熱硬化性化合物Ａと同様にして、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物Ｂを得た。

[0240] クロロホルムを溶媒として、得られた熱硬化性化合物Ｂの^{1}Ｈ－ＮＭＲの測定を行った。この結果、エポキシ基がエピスルフィド基に変換されていることを確認した。得られた熱硬化性化合物Ｂの融点は１５０℃であった。

[0241] 熱硬化性化合物１：エポキシ化合物、ＡＤＥＫＡ社製「ＥＰ－３３００」、エポキシ当量１６０ｇ／ｅｑ

熱硬化性化合物２：エポキシ化合物、日産化学工業社製「ＴＥＰＩＣ－ＳＳ」、エポキシ当量１００ｇ／ｅｑ

熱硬化性化合物３：エポキシ化合物、日産化学工業社製「ＴＥＰＩＣ－ＶＬ」、エポキシ当量１３５ｇ／ｅｑ

[0242] 熱硬化剤１：トリメチロールプロパントリス（３－メルカプトプロピネート）、ＳＣ有機化学社製「ＴＭＭＰ」

[0243] 潜在性エポキシ熱硬化剤１：Ｔ＆Ｋ　ＴＯＫＡ社製「フジキュア７０００」

潜在性エポキシ熱硬化剤２：旭化成イーマテリアルズ社製「ＨＸＡ－３９２２ＨＰ」

[0244] フラックス１の合成：

グルタル酸２５重量部、グルタル酸モノメチル２５重量部を３つ口フラスコに入れ、窒素フロー下にて、８０℃で溶解させた。その後、ベンジルアミン５７重量部を添加し、１５０℃で減圧下２時間反応させることにより、２５℃で固体である、アミド基を有するフラックス１を得た。

フラックス２：グルタル酸モノメチル、和光純薬工業社製

[0245] 絶縁性粒子：平均粒子径３０μｍ、ＣＶ値５％、軟化点３３０℃、積水化学工業社製、ジビニルベンゼン架橋粒子

[0246] カルボジイミド化合物１：カルボジライトＶ０２Ｂ（日清紡社製）

[0247] はんだ粒子１の作製方法：

ＳｎＢｉはんだ粒子（三井金属社製「ＤＳ－１０」、平均粒子径（メディアン径１２μｍ））２００ｇ、イソシアネート基を有するシランカップリング剤（信越シリコーン社製「ＫＢＥ－９００７」）２０ｇ、及びアセトン７０ｇを３つ口フラスコに秤量した。室温で撹拌しながら、はんだ粒子の表面の水酸基とイソシアネート基との反応触媒であるジブチルスズラウレート０．２５ｇを添加し、撹拌下、窒素雰囲気下にて１００℃で２時間加熱した。その後、メタノール１２０ｇ、及び酢酸０．０５ｇ添加し、撹拌下、窒素雰囲気下にて、６０℃で１時間加熱した。

[0248] その後、室温まで冷却し、ろ紙ではんだ粒子をろ過し、真空乾燥にて、室温で１時間脱溶剤を行い、はんだ粒子を得た。

[0249] 上記はんだ粒子を、３つ口フラスコに入れ、アセトン４５ｇ、アジピン酸モノエチル４０ｇ、及びジメシチルアンモニウムペンタフルオロベンゼンスルホナート０．２ｇを添加し、撹拌下、窒素雰囲気下で６５℃で１時間反応させた後、真空乾燥することで脱溶剤を行った。

[0250] その後、上記はんだ粒子を、３つ口フラスコに入れ、アセトン８５ｇ、アジピン酸４０ｇ、及びランタンイソプロポキシド０．５ｇを添加し、６５℃で１時間反応させた後、室温まで冷却し、ろ紙ではんだ粒子をろ過し、ろ紙上ではんだ粒子をアセトンにて２回、ヘキサンにて１回洗浄したのち、真空乾燥にて、室温で１時間脱溶剤を行った。

[0251] 得られたはんだ粒子をボールミルで解砕した後、所定のＣＶ値となるように篩を選択した。

[0252] これにより、はんだ粒子１を得た。得られたはんだ粒子１では、ＣＶ値２０％、酸価：０．５ｍｇ／ＫＯＨであった。

[0253] はんだ粒子２の作製方法：

ろ紙上ではんだ粒子をヘキサンにて１回洗浄したこと以外は、はんだ粒子１と同様にして、はんだ粒子２を作製した。得られたはんだ粒子２では、ＣＶ値２０％、酸価：１３ｍｇ／ＫＯＨであった。

[0254] はんだ粒子Ａ（ＳｎＢｉはんだ粒子、融点１３９℃、三井金属社製「ＤＳ－１０」、平均粒子径（メディアン径１２μｍ））、酸価：０．２ｍｇ／ＫＯＨ

[0255] （はんだ粒子のＣＶ値）

ＣＶ値を、レーザー回折式粒度分布測定装置（堀場製作所社製「ＬＡ－９２０」）にて、測定した。

[0256] （はんだ粒子の酸価）

エタノールにフェノールフタレインを入れ、０．１Ｎ－ＫＯＨにて中和した溶液５０ｍｌに対し、導電性粒子（はんだ粒子）１ｇを入れ、超音波処理にて分散させた後、０．１Ｎ－ＫＯＨにて滴定することで、酸価を求めた。

[0257] （実施例１～５及び比較例１～３）

（１）異方性導電ペーストの作製

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

[0258] 接続構造体を下記のようにして作製した。

[0259] （２）接続構造体（Ｌ／Ｓ＝７５μｍ／７５μｍ）の作製

Ｌ／Ｓが７５μｍ／７５μｍ、電極長さ３ｍｍの銅電極パターン（銅電極の厚み１２μｍ）を上面に有するガラスエポキシ基板（ＦＲ－４基板、厚み０．６ｍｍ）（第１の接続対象部材）を用意した。また、Ｌ／Ｓが７５μｍ／７５μｍ、電極長さ３ｍｍの銅電極パターン（銅電極の厚み１２μｍ）を下面に有するフレキシブルプリント基板（ポリイミドにより形成されている、第２の接続対象部材、厚み０．１ｍｍ）を用意した。

[0260] ガラスエポキシ基板とフレキシブルプリント基板との重ね合わせ面積は、１．５ｃｍ×３ｍｍとし、接続した電極数は７５対とした。

[0261] 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、ガラスエポキシ基板の電極上で厚さ１００μｍ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上記フレキシブルプリント基板を、電極同士が対向するように積層し、フレキシブルプリント基板の上面に加熱ヘッドを載せ、室温から１８０℃まで昇温する間に、横方向の電極間のはんだ粒子を凝集させ、さらに上下の電極間にはんだ粒子を凝集、溶融させた後、さらに１８０℃で１０秒加熱して、異方性導電ペースト層を硬化させて、接続構造体を得た。このとき、異方性導電ペースト層には、上記フレキシブルプリント基板の重量と、フレキシブルプリント基板が反らない程度の圧力が加わる。

[0262] （評価）

（１）粘度

作製直後の異方性導電ペーストの２５℃での粘度（η２５）を、Ｅ型粘度計（東機産業社製「ＴＶＥ２２Ｌ」）を用いて、２５℃及び５ｒｐｍの条件で測定した。

[0263] （２）保存安定性

異方性導電ペーストを２３℃で２４間保管した。保管後に、異方性導電ペーストの２５℃での粘度（η２５）を、Ｅ型粘度計（東機産業社製「ＴＶＥ２２Ｌ」）を用いて、２５℃及び５ｒｐｍの条件で測定した。保存安定性を下記の基準で判定した。

[0264] ［保存安定性の判定基準］

〇〇：保管後の粘度／保管前の粘度が１．２倍未満

〇：保管後の粘度／保管前の粘度が１．２倍以上、１．５倍未満

△：保管後の粘度／保管前の粘度が１．５倍以上、２倍未満

×：保管後の粘度／保管前の粘度が２倍以上

[0265] （３）導電性粒子を除く成分の流出防止性

得られた接続構造体において、電極からはみ出した部分の長さを顕微鏡にて観察、測定することにより、導電性粒子を除く成分の流出防止性を評価した。導電性粒子を除く成分の流出防止性を下記の基準で判定した。

[0266] ［導電性粒子を除く成分の流出防止性の判定基準］

〇〇：電極からはみ出した部分の長さが１５０μｍ未満

〇：電極からはみだした部分の長さが１５０μｍ以上、２００μｍ未満

△：電極からはみだした部分の長さが２００μｍ以上、３００μｍ未満

×：電極からはみだした部分の長さが３００μｍ以上

[0267] （４）はんだ部の厚み

得られた接続構造体を断面観察することにより、上下の電極間に位置しているはんだ部の厚みを評価した。

[0268] （５）電極上のはんだの配置精度１

得られた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１を下記の基準で判定した。

[0269] ［電極上のはんだの配置精度１の判定基準］

〇〇：割合Ｘが７０％以上

〇：割合Ｘが６０％以上、７０％未満

△：割合Ｘが５０％以上、６０％未満

×：割合Ｘが５０％未満

[0270] （６）電極上のはんだの配置精度２

得られた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と直交する方向に第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、接続部中のはんだ部１００％中、第１の電極と第２の電極との対向し合う部分に配置されている接続部中のはんだ部の割合Ｙを評価した。電極上のはんだの配置精度２を下記の基準で判定した。

[0271] ［電極上のはんだの配置精度２の判定基準］

〇〇：割合Ｙが９９％以上

〇：割合Ｙが９０％以上、９９％未満

△：割合Ｙが７０％以上、９０％未満

×：割合Ｙが７０％未満

[0272] （７）上下の電極間の導通信頼性

得られた接続構造体（ｎ＝１５個）において、上下の電極間の１接続箇所当たり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。

[0273] ［導通信頼性の判定基準］

〇〇：接続抵抗の平均値が５０ｍΩ以下

〇：接続抵抗の平均値が５０ｍΩを超え、７０ｍΩ以下

△：接続抵抗の平均値が７０ｍΩを超え、１００ｍΩ以下

×：接続抵抗の平均値が１００ｍΩを超える、又は接続不良が生じている

[0274] （８）横方向に隣接する電極間の絶縁信頼性

得られた接続構造体（ｎ＝１５個）において、８５℃、湿度８５％の雰囲気中に１００時間放置後、横方向に隣接する電極間に、１５Ｖを印加し、抵抗値を２５箇所で測定した。絶縁信頼性を下記の基準で判定した。

[0275] ［絶縁信頼性の判定基準］

○○○：接続抵抗の平均値が10^{14}Ω以上

○○：接続抵抗の平均値が10^{8}Ω以上、10^{14}Ω未満

○：接続抵抗の平均値が10^{6}Ω以上、10^{8}Ω未満

△：接続抵抗の平均値が10^{5}Ω以上、10^{6}Ω未満

×：接続抵抗の平均値が10^{5}Ω未満

[0276] （９）上下の電極間の位置ずれ

得られた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の電極の中心線と第２の電極の中心線とが揃っているか否か、並びに位置ずれの距離を評価した。上下の電極間の位置ずれを下記の基準で判定した。

[0277] ［上下の電極間の位置ずれの判定基準］

○○：位置ずれが１５μｍ未満

○：位置ずれが１５μｍ以上、２５μｍ未満

△：位置ずれが２５μｍ以上、４０μｍ未満

×：位置ずれが４０μｍ以上

[0278] （１０）耐熱性（耐熱黄変性）

下記の表１に示す配合成分において、導電ペースト中のはんだ粒子を除く成分を配合した配合物を用意し、厚み０．６ｍｍの硬化物のシートを作成した。１５０℃、２０００時間保管した後、測定波長４００ｎｍでの透過率を測定することで、耐熱性（耐熱黄変性）を評価した。耐熱性を下記の基準で判定した。

[0279] ［耐熱性の判定基準］

○○：高温保管後の透過率が、９３％以上

○：高温保管後の透過率が、９０％以上、９３％未満

△：高温保管後の透過率が、８７％以上、９０％未満

×：○○、○及び△の基準に相当しない

[0280] 結果を下記の表１に示す。

[0281] [表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	比較例3
配合成分（重量部）	熱硬化性化合物A	15	15	15	10	10			
	熱硬化性化合物B	2	2	1	2	2			
	熱硬化性化合物1					4		16	
	熱硬化性化合物2						2	1	2
	熱硬化性化合物3				5		15		15
	熱硬化剤1	12	12	12	12	12	12	12	12
	潜在性エポキシ熱硬化剤1	1	1	1	1	1	1	1	1
	潜在性エポキシ熱硬化剤2								
	フラックス1	2	2						
	フラックス2			2	2	2	2	2	2
	カルボジイミド化合物1			1		1			
	絶縁性粒子	1	1	1	1	1	1	1	1
	はんだ粒子1	67		67	67	67	67	67	
	はんだ粒子2		67						
	はんだ粒子A								67
導電材料の種類		ペースト	ペースト	ペースト	ペースト	ペースト	ペースト	ペースト	ペースト
評価	(1)粘度:25℃での粘度(η25)(Pa・s)	280	280	190	150	180	150	190	160
	(2)保存安定性	○○	○○	○○	○○	○○	○	○	△
	(3)導電性粒子を除く成分の流出防止性	○○	○○	○	△	○	△	○	△
	(4)はんだ部の厚み(μm)	30	30	30	30	28	30	30	30
	(5)配置精度1	○○	○○	○○	○○	○○	○○	○○	×
	(6)配置精度2	○○	○○	○○	○○	○○	○○	○○	△
	(7)導通信頼性	○○	○○	○○	○○	○○	○○	○○	△
	(8)絶縁信頼性	○○	○○	○○	○○	○○	○○○	○○○	×
	(9)位置ずれ	○○	○○	○○	○○	○○	○○	○○	×
	(10)耐熱性(耐熱黄変性)	○	○	○○	△	△	×	×	×

[0282] フレキシブルプリント基板にかえて、樹脂フィルム、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を用いた場合でも、同様の傾向が見られた。

符号の説明

[0283] １，１Ｘ…接続構造体

２…第１の接続対象部材

２ａ…第１の電極

３…第２の接続対象部材

３ａ…第２の電極

４，４Ｘ…接続部

４Ａ，４ＸＡ…はんだ部

４Ｂ，４ＸＢ…硬化物部

１１…導電材料

１１Ａ…はんだ粒子（導電性粒子）

１１Ｂ…熱硬化性成分

２１…導電性粒子（はんだ粒子）

３１…導電性粒子

３２…基材粒子

３３…導電部（はんだを有する導電部）

３３Ａ…第２の導電部

３３Ｂ…はんだ部

４１…導電性粒子

４２…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、

熱硬化性化合物と、

熱硬化剤とを含み、

前記熱硬化性化合物が、チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物を含む、導電材料。

[請求項2] 前記チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物の融点が１４０℃以上である、請求項１に記載の導電材料。

[請求項3] チイラン基及びトリアジン骨格を有する熱硬化性化合物とは異なる熱硬化性化合物を含む、請求項１又は２に記載の導電材料。

[請求項4] 前記導電性粒子の酸価が０．１ｍｇ／ＫＯＨ以上、１０ｍｇ／ＫＯＨ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] フラックスを含む、請求項１～４のいずれか１項に記載の導電材料。

[請求項6] 前記フラックスが、アミド基と芳香族骨格とを有するフラックスであるか、又は、アミド基を有し、かつカルボン酸又はカルボン酸無水物とｐＫａが９．５以下であるアミノ基含有化合物との反応物であるフラックスである、請求項５に記載の導電材料。

[請求項7] 前記フラックスが、２５℃で固体である、請求項５又は６に記載の導電材料。

[請求項8] カルボジイミド化合物を含む、請求項１～７のいずれか１項に記載の導電材料。

[請求項9] 前記導電性粒子は、はんだ粒子である、請求項１～８のいずれか１項に記載の導電材料。

[請求項10] 前記導電性粒子の表面に付着していない絶縁性粒子を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の導電材料。

[請求項11] 前記導電性粒子の平均粒子径が１μｍ以上、４０μｍ以下である、請求項１～１０のいずれか１項に記載の導電材料。

[請求項12] 導電材料１００重量％中、前記導電性粒子の含有量が１０重量％以上、８０重量％以下である、請求項１～１１のいずれか１項に記載の導電材料。

[請求項13] ２５℃で液状であり、導電ペーストである、請求項１～１２のいずれか１項に記載の導電材料。

[請求項14] 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、

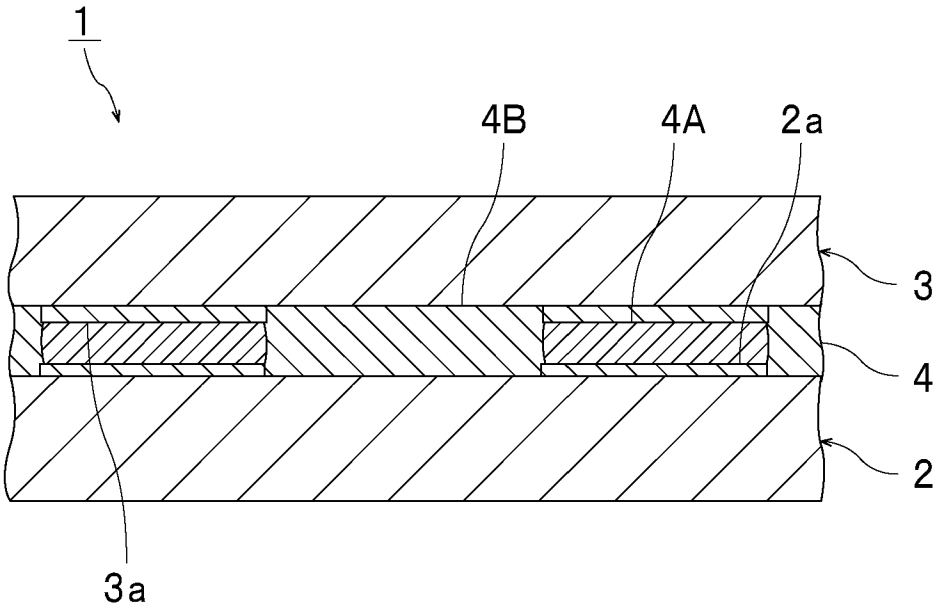
前記第１の接続対象部材と前記第２の接続対象部材とを接続している接続部とを備え、

前記接続部の材料が、請求項１～１３のいずれか１項に記載の導電材料であり、

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。

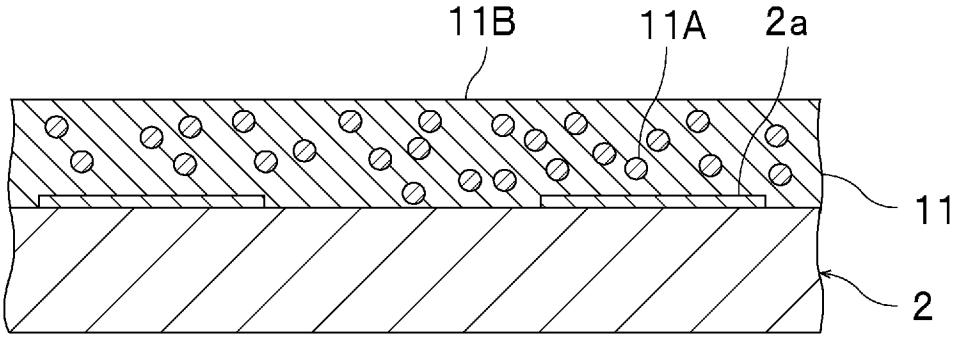
[請求項15] 前記第１の電極と前記接続部と前記第２の電極との積層方向に前記第１の電極と前記第２の電極との対向し合う部分をみたときに、前記第１の電極と前記第２の電極との対向し合う部分の面積１００％中の５０％以上に、前記接続部中のはんだ部が配置されている、請求項１４に記載の接続構造体。

[図1]

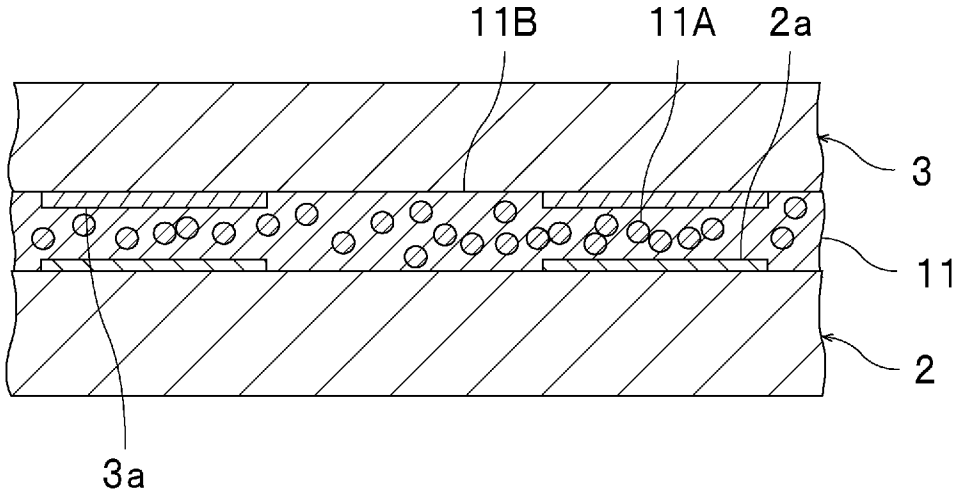


[図2]

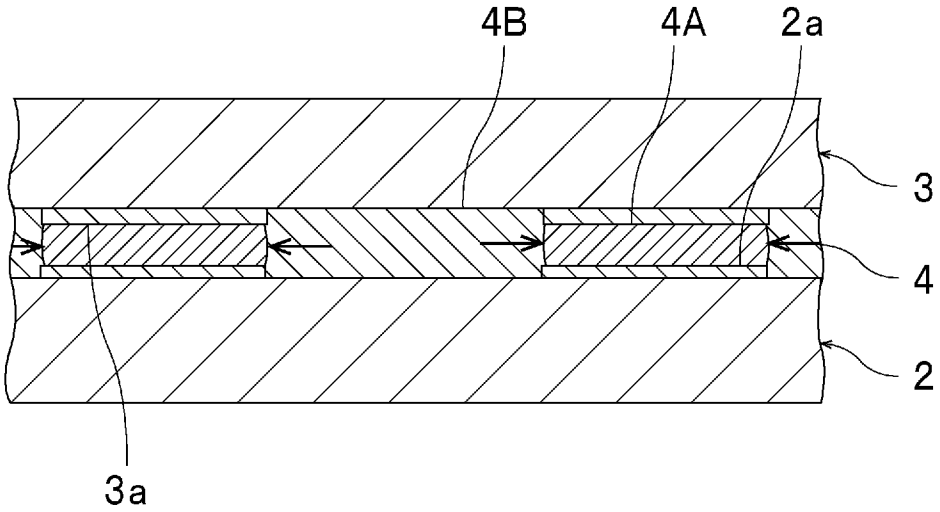
(a)



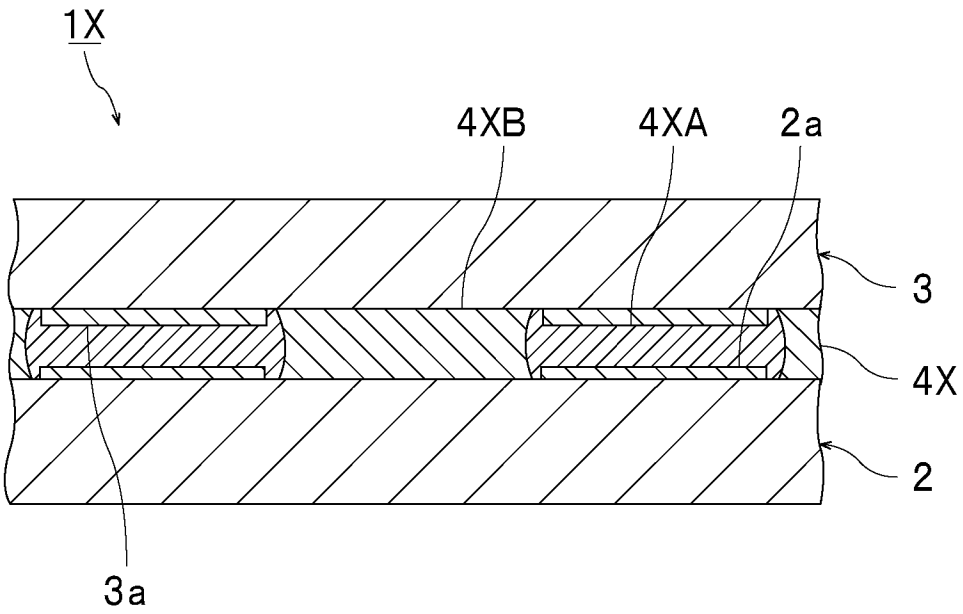
(b)



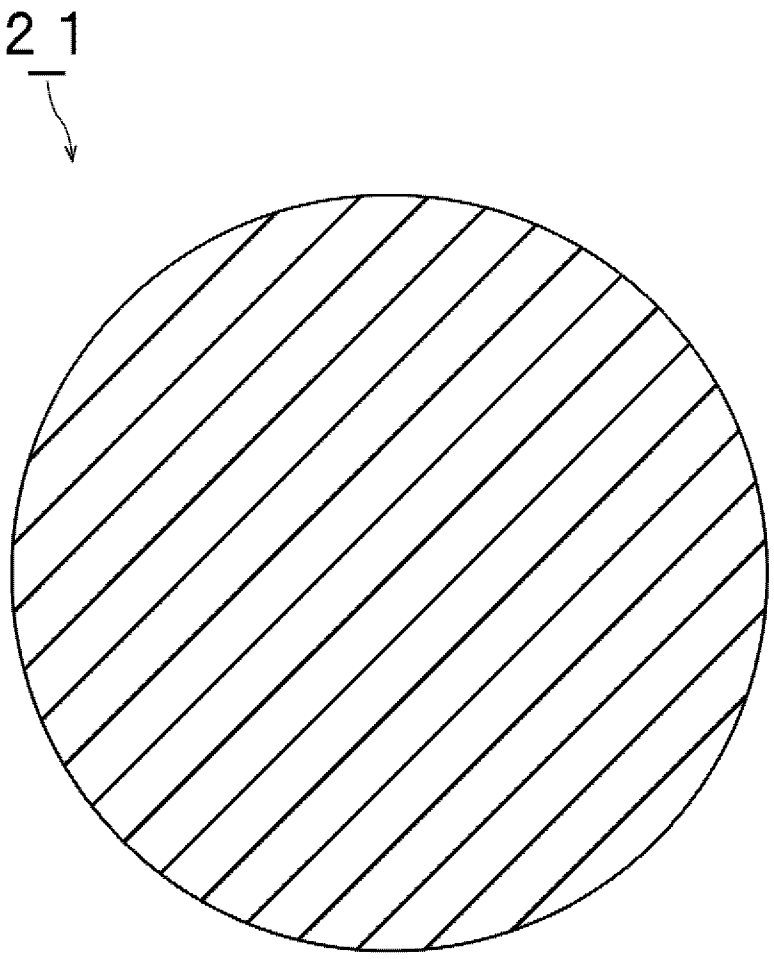
(c)



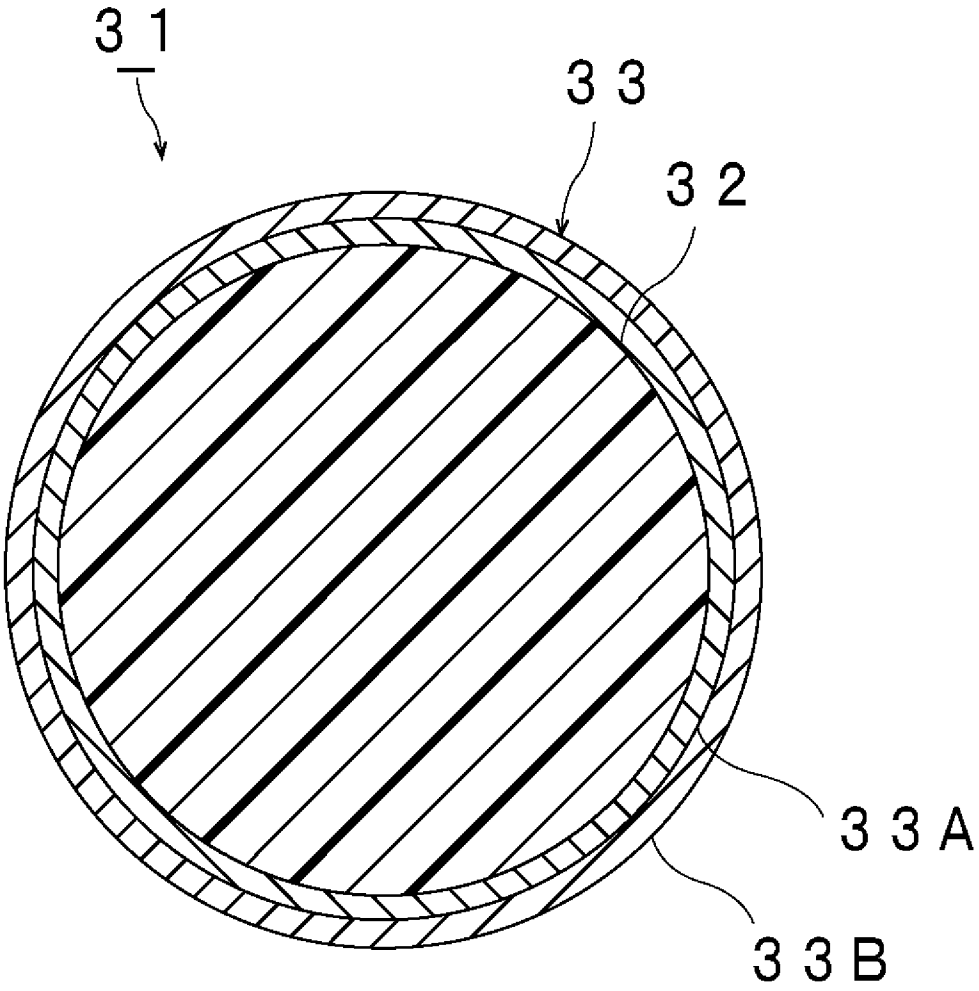
[図3]



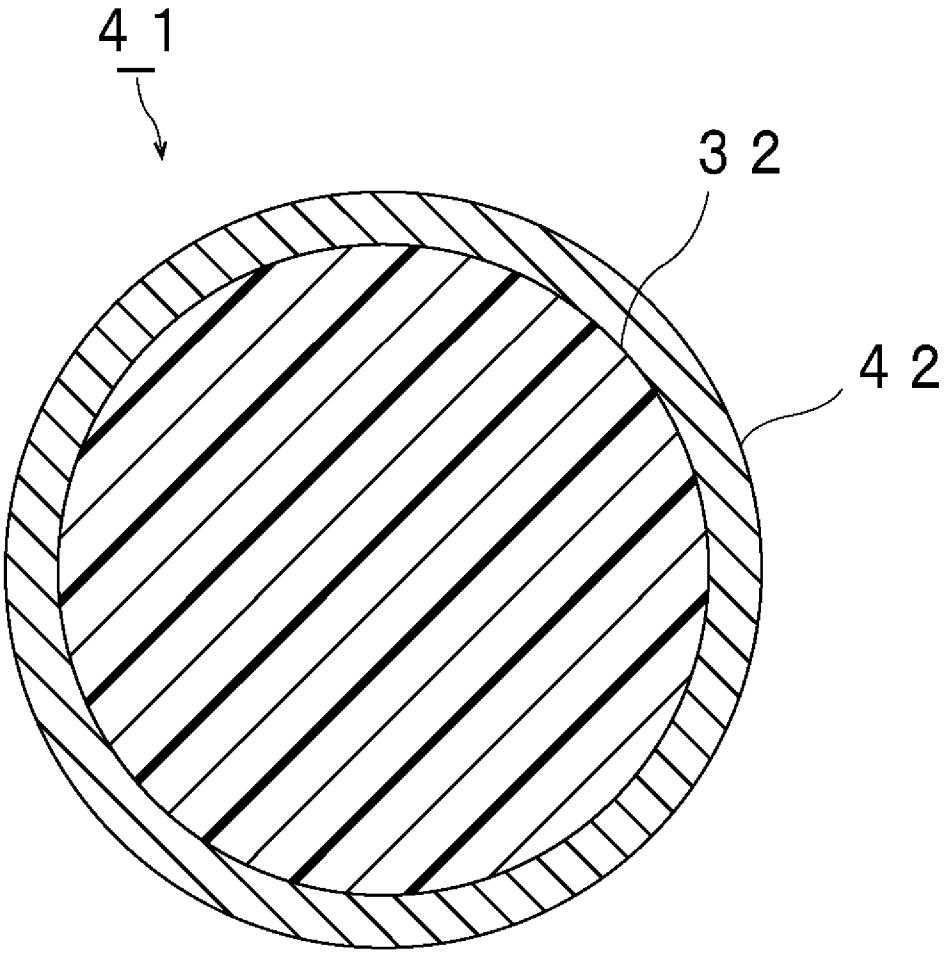
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/072776

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01B1/22(2006.01)i, *C08G75/08*(2006.01)i, *H01B1/00*(2006.01)i, *H01L21/60*(2006.01)i, *H01R11/01*(2006.01)i, *H05K3/32*(2006.01)i, *H01B5/00*(2006.01)n

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)
H01B1/22, C08G75/08, H01B1/00, H01L21/60, H01R11/01, H05K3/32, H01B5/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2016 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAplus/REGISTRY(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2014/109042 A1 (Hitachi, Ltd.), 17 July 2014 (17.07.2014), claims; examples; tables (Family: none)	1-15
A	JP 2011-054769 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 17 March 2011 (17.03.2011), claims; examples; paragraph [0014] (Family: none)	1-15
A	WO 2014/112541 A1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 24 July 2014 (24.07.2014), claims; examples & CN 104540869 A & KR 10-2015-0109322 A & TW 201446827 A	1-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
19 October 2016 (19.10.16)	01 November 2016 (01.11.16)
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/JP2016/072776

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2015/083587 A1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 11 June 2015 (11.06.2015), claims; examples; paragraph [0013] & TW 201527471 A	1-15

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０７２７７６

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, C08G75/08(2006.01)i, H01B1/00(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i, H01R11/01(2006.01)i, H05K3/32(2006.01)i, H01B5/00(2006.01)n

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, C08G75/08, H01B1/00, H01L21/60, H01R11/01, H05K3/32, H01B5/00

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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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	WO 2014/109042 A1（株式会社　日立製作所）2014.07.17, 特許請求の範囲、実施例、表等（ファミリーなし）	1-15
A	JP 2011-054769 A（積水化学工業株式会社）2011.03.17, 特許請求の範囲、実施例、段落００１４等（ファミリーなし）	1-15
A	WO 2014/112541 A1（積水化学工業株式会社）2014.07.24, 特許請求の範囲、実施例等 & CN 104540869 A & KR 10-2015-0109322 A & TW 201446827 A	1-15

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
１９．１０．２０１６	０１．１１．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｘ　３３４５
神野　将志
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４７７

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	WO 2015/083587 A1（積水化学工業株式会社）2015.06.11, 特許請求の範囲、実施例、段落００１３等 & TW 201527471 A	1-15