

(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
2020年1月9日(09.01.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/009238 A1

(51) 国際特許分類:

H01B 5/00 (2006.01) *H01B 1/22* (2006.01)
C09J 9/02 (2006.01) *H01B 5/16* (2006.01)
C09J 201/00 (2006.01) *H01R 11/01* (2006.01)
H01B 1/00 (2006.01)

水化学工業株式会社内 Shiga (JP). 真原 茂雄
(MAHARA, Shigeo); 〒5288585 滋賀県甲賀市
水口町泉 1 2 5 9 積水化学工業株式会社内
Shiga (JP). 山際 仁志(YAMAGIWA, Hitoshi);
〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉 1 2 5 9 積
水化学工業株式会社内 Shiga (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/026895

(22) 国際出願日: 2019年7月5日(05.07.2019)

(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 2018-129173 2018年7月6日(06.07.2018) 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).

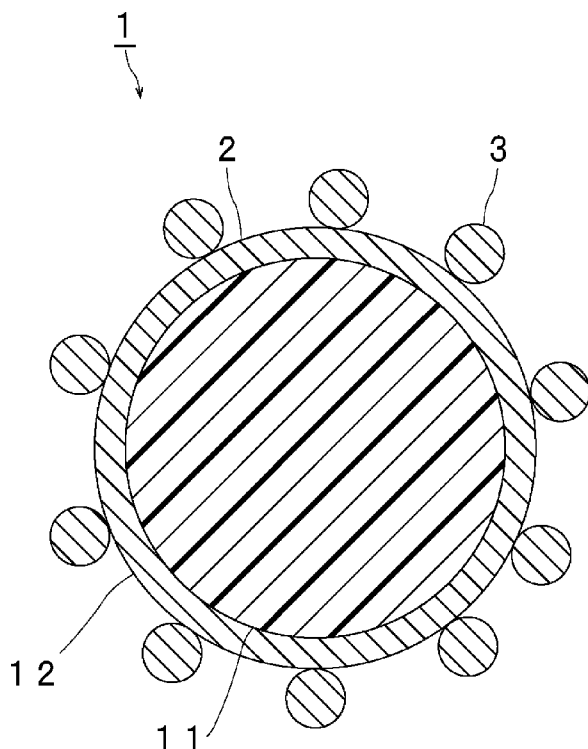
(72) 発明者: 湯川 豪 (YUKAWA, Tsuyoshi);
〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉 1 2 5 9 積

(74) 代理人: 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許
事務所 (MIYAZAKI & METSUGI); 〒5400028
大阪府大阪市中央区常盤町 1 丁目 3 番 8
号 中央大通 F N ビル Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, 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,

(54) Title: CONDUCTIVE PARTICLE WITH INSULATIVE PARTICLES, CONDUCTIVE MATERIAL, AND CON-
NECTING STRUCTURE

(54) 発明の名称: 絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体



(57) Abstract: Provided is a conductive particle with insulative particles, which, when electrodes are electrically connected to each other, can effectively enhance conduction reliability and can also effectively enhance insulation reliability. The conductive particle with insulative particles according to the present invention is provided with a conductive particle having a conduction portion at least in the surface thereof and a plurality of insulative particles disposed on the surface of the conductive particle, wherein: the particle diameter of the insulative particles is 500 nm to 1500 nm, inclusive; and the storage modulus of the insulative particles is 100 MPa to 1000 Mpa, inclusive, at 60 °C.

(57) 要約: 電極間を電氣的に接続した場合に、導通信頼性を効果的に高めることができ、さらに、絶縁信頼性を効果的に高めることができる絶縁性粒子付き導電性粒子を提供する。本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子は、導電部を少なくとも表面に有する導電性粒子と、前記導電性粒子の表面上に配置された複数の絶縁性粒子とを備え、前記絶縁性粒子の粒子径が、500nm以上1500nm以下であり、前記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が、100MPa以上1000MPa以下である。

QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体

技術分野

[0001] 本発明は、導電性粒子の表面に絶縁性粒子が配置された絶縁性粒子付き導電性粒子に関する。また、本発明は、上記絶縁性粒子付き導電性粒子を用いた導電材料及び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。該異方性導電材料では、バインダー樹脂中に導電性粒子が分散されている。また、導電性粒子として、導電層の表面に絶縁処理が施された導電性粒子が用いられることがある。

[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用いられている。上記異方性導電材料を用いる接続としては、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））等が挙げられる。

[0004] また、上記導電性粒子として、導電性粒子の表面上に絶縁性粒子が配置された絶縁性粒子付き導電性粒子が用いられることがある。さらに、導電層の表面上に絶縁層が配置された被覆導電性粒子が用いられることもある。

[0005] 上記絶縁性粒子付き導電性粒子の一例として、下記の特許文献1には、導電層を表面に有する導電性粒子と、上記導電性粒子の表面に付着している絶縁性粒子とを備える絶縁性粒子付き導電性粒子が開示されている。上記絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子が、リン原子に直接結合された水酸基又はケイ素原子に直接結合された水酸基を表面に有する。

[0006] 下記の特許文献2には、導電部を少なくとも表面に有する導電性粒子、及び上記導電性粒子の表面上に配置された複数の絶縁性粒子を有する絶縁性粒子付き導電性粒子本体と、上記絶縁性粒子付き導電性粒子本体の表面を被覆している被膜とを備える絶縁性粒子付き導電性粒子が開示されている。上記絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記被膜が、上記導電性粒子を覆っている第1の被膜部分と、上記絶縁性粒子の表面を覆っている第2の被膜部分とを有する。上記絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記第1の被膜部分における厚みが、上記絶縁性粒子の平均粒子径の $1/2$ 以下である。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：WO 2011/030715 A1
特許文献2：特開2013-175453号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 導電性粒子を含む導電材料を用いて導電接続を行う際には、上方の複数の電極と下方の複数の電極とが電氣的に接続されて、導電接続が行われる。導電性粒子は、上下の電極間に配置されることが望ましく、隣接する横方向の電極間には配置されないことが望ましい。隣接する横方向の電極間は、電氣的に接続されないことが望ましい。

[0009] 従来の絶縁性粒子付き導電性粒子では、導電性の表面が絶縁性粒子により被覆されているものの、接続されるべき上下の電極間の導電接続後に、接続されてはならない横方向に隣接する電極間の電氣的な接続を抑制することが困難なことがある。特に、粒子径が比較的大きい導電性粒子を用いた場合に、導電接続された接続構造体における隣接する横方向の電極間の絶縁信頼性を十分に高めることが困難なことがある。

[0010] また、従来の絶縁性粒子付き導電性粒子では、有機化合物や無機酸化物等の被膜を用いて、絶縁性粒子を導電性粒子の表面上に配置させることがある

。上記被膜を用いて、絶縁性粒子を導電性粒子の表面上に配置させると、導電接続時に、導電性粒子の表面から絶縁性粒子がはずれにくくなることもあり、接続されるべき上下の電極間の導通信頼性を十分に高めることが困難なことがある。従来の絶縁性粒子付き導電性粒子では、接続されるべき上下の電極間の導通信頼性及び接続されてはならない横方向に隣接する電極間の絶縁信頼性を効果的に高めることが困難なことがある。

[0011] 本発明の目的は、電極間を電氣的に接続した場合に、導通信頼性を効果的に高めることができ、さらに、絶縁信頼性を効果的に高めることができる絶縁性粒子付き導電性粒子を提供することである。また、本発明の目的は、上記絶縁性粒子付き導電性粒子を用いた導電材料及び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

[0012] 本発明の広い局面によれば、導電部を少なくとも表面に有する導電性粒子と、前記導電性粒子の表面上に配置された複数の絶縁性粒子とを備え、前記絶縁性粒子の粒子径が、500nm以上1500nm以下であり、前記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が、100MPa以上1000MPa以下である、絶縁性粒子付き導電性粒子が提供される。

[0013] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子のある特定の局面では、前記導電性粒子が、前記導電部の外表面に突起を有する。

[0014] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子のある特定の局面では、前記導電性粒子の粒子径の、前記絶縁性粒子の粒子径に対する比が、3以上100以下である。

[0015] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子のある特定の局面では、前記絶縁性粒子の膨潤倍率が、1以上2.5以下である。

[0016] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子のある特定の局面では、前記絶縁性粒子の全個数の内の10%以上が、他の前記絶縁性粒子に接触しないように、前記導電性粒子の表面上に配置されている。

[0017] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子のある特定の局面では、前記導電

性粒子の粒子径が、 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $50\ \mu\text{m}$ 以下である。

[0018] 本発明の広い局面によれば、上述した絶縁性粒子付き導電性粒子と、バインダー樹脂とを含む、導電材料が提供される。

[0019] 本発明の広い局面によれば、第1の電極を表面に有する第1の接続対象部材と、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、上述した絶縁性粒子付き導電性粒子であるか、又は前記絶縁性粒子付き導電性粒子とバインダー樹脂とを含む導電材料であり、前記第1の電極と前記第2の電極とが、前記絶縁性粒子付き導電性粒子における前記導電部により電氣的に接続されている、接続構造体が提供される。

発明の効果

[0020] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子は、導電部を少なくとも表面に有する導電性粒子と、上記導電性粒子の表面上に配置された複数の絶縁性粒子とを備える。本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子の粒子径が、 500nm 以上 1500nm 以下である。本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子の 60°C における貯蔵弾性率が、 100MPa 以上 1000MPa 以下である。本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記の構成が備えられているので、電極間を電氣的に接続した場合に、導通信頼性を効果的に高めることができ、さらに、絶縁信頼性を効果的に高めることができる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を示す断面図である。

[図2]図2は、本発明の第2の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を示す断面図である。

[図3]図3は、本発明の第3の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を示す断面図である。

[図4]図4は、本発明の第1の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を用

いた接続構造体を模式的に示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明の詳細を説明する。

[0023] (絶縁性粒子付き導電性粒子)

本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子は、導電部を少なくとも表面に有する導電性粒子と、上記導電性粒子の表面上に配置された複数の絶縁性粒子とを備える。本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子の粒子径が、500nm以上1500nm以下である。本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が、100MPa以上1000MPa以下である。

[0024] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記の構成が備えられているので、電極間を電氣的に接続した場合に、導通信頼性を効果的に高めることができ、さらに、絶縁信頼性を効果的に高めることができる。

[0025] 従来の絶縁性粒子付き導電性粒子では、導電性の表面が絶縁性粒子により被覆されているものの、接続されるべき上下の電極間の導電接続後に、接続されてはならない横方向に隣接する電極間の電氣的な接続を抑制することが困難なことがある。特に、粒子径が比較的大きい導電性粒子を用いた場合に、導電接続された接続構造体における隣接する横方向の電極間の絶縁信頼性を十分に高めることできないという課題がある。

[0026] 本発明者らは、上記の課題を解決するために鋭意検討した結果、特定の絶縁性粒子を用いることで、上記の課題を解決できることを見出した。本発明では、特定の絶縁性粒子を用いているので、導電接続された接続構造体における隣接する横方向の電極間の絶縁信頼性を効果的に高めることができる。

[0027] また、本発明では、特定の絶縁性粒子を用いることによって、絶縁性粒子を導電性粒子の表面上に効果的に配置させることができるので、有機化合物や無機酸化物等の被覆を用いる必要がない。結果として、導電接続時に、導電性粒子の表面から絶縁性粒子がはずれやすく、接続されるべき上下の電極間の導通信頼性を効果的に高めることができる。本発明では、接続されるべ

き上下の電極間の導通信頼性及び接続されてはならない横方向に隣接する電極間の絶縁信頼性を効果的に高めることができる。

[0028] 本発明では、上記のような効果を得るために、特定の絶縁性粒子を用いることは大きく寄与する。

[0029] 電極間の導通信頼性及び絶縁信頼性をより一層効果的に高める観点からは、上記絶縁性粒子付き導電性粒子の粒子径の変動係数（C V 値）は、好ましくは 10 % 以下、より好ましくは 5 % 以下である。

[0030] 上記変動係数（C V 値）は、以下のようにして測定できる。

[0031]
$$C V \text{ 値 } (\%) = (\rho / D n) \times 100$$

ρ : 絶縁性粒子付き導電性粒子の粒子径の標準偏差

$D n$: 絶縁性粒子付き導電性粒子の粒子径の平均値

[0032] 上記絶縁性粒子付き導電性粒子の形状は特に限定されない。上記絶縁性粒子付き導電性粒子の形状は、球状であってもよく、球状以外の形状であってもよく、扁平状等の形状であってもよい。

[0033] 上記絶縁性粒子付き導電性粒子は、バインダー樹脂中に分散され、導電材料を得るために好適に用いられる。

[0034] 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。

[0035] 図 1 は、本発明の第 1 の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を示す断面図である。

[0036] 図 1 に示す絶縁性粒子付き導電性粒子 1 は、導電性粒子 2 と、導電性粒子 2 の表面上に配置された複数の絶縁性粒子 3 とを備える。絶縁性粒子 3 は、絶縁性を有する材料により形成されている。

[0037] 導電性粒子 2 は、基材粒子 11 と、基材粒子 11 の表面上に配置された導電部 12 とを有する。絶縁性粒子付き導電性粒子 1 においては、導電部 12 は導電層である。導電部 12 は、基材粒子 11 の表面を覆っている。導電性粒子 2 は、基材粒子 11 の表面が導電部 12 により被覆された被覆粒子である。導電性粒子 2 は表面に導電部 12 を有する。上記導電性粒子では、上記導電部が上記基材粒子の表面の全体を覆っていてもよく、上記導電部が上記

基材粒子の表面の一部を覆っていてもよい。上記絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子は、上記導電部の表面上に配置されていることが好ましい。

[0038] 図2は、本発明の第2の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を示す断面図である。

[0039] 図2に示す絶縁性粒子付き導電性粒子21は、導電性粒子22と、導電性粒子22の表面上に配置された複数の絶縁性粒子3とを備える。

[0040] 導電性粒子22は、基材粒子11と、基材粒子11の表面上に配置された導電部31とを有する。絶縁性粒子付き導電性粒子21においては、導電部31は導電層である。導電性粒子22は、基材粒子11の表面上に複数の芯物質32を有する。導電部31は、基材粒子11と芯物質32とを被覆している。芯物質32を導電部31が被覆していることにより、導電性粒子22は、表面に複数の突起33を有する。導電性粒子22では、芯物質32により導電部31の表面が隆起されており、複数の突起33が形成されている。上記導電性粒子では、上記導電部が上記基材粒子の表面の全体を覆っていてもよく、上記導電部が上記基材粒子の表面の一部を覆っていてもよい。上記絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子は、上記導電部の表面上に配置されていることが好ましい。

[0041] 図3は、本発明の第3の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を示す断面図である。

[0042] 図3に示す絶縁性粒子付き導電性粒子41は、導電性粒子42と、導電性粒子42の表面上に配置された複数の絶縁性粒子3とを備える。

[0043] 導電性粒子42は、基材粒子11と、基材粒子11の表面上に配置された導電部51とを有する。絶縁性粒子付き導電性粒子41においては、導電部51は導電層である。導電性粒子42は、導電性粒子22のように芯物質を有しない。導電部51は、第1の部分と、該第1の部分よりも厚みが厚い第2の部分とを有する。導電性粒子42は、表面に複数の突起52を有する。複数の突起52を除く部分が、導電部51の上記第1の部分である。複数の

突起52は、導電部51の厚みが厚い上記第2の部分である。上記導電性粒子では、上記導電部が上記基材粒子の表面の全体を覆っていてもよく、上記導電部が上記基材粒子の表面の一部を覆っていてもよい。上記絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子は、上記導電部の表面上に配置されていることが好ましい。

[0044] 以下、絶縁性粒子付き導電性粒子の他の詳細を説明する。

[0045] 導電性粒子：

上記導電性粒子は、基材粒子と、上記基材粒子の表面上に配置された導電部とを有していることが好ましい。上記導電部は、単層構造であってもよく、2層以上の複層構造であってもよい。

[0046] 上記導電性粒子の粒子径は、好ましくは1 μm 以上、より好ましくは10 μm 以上であり、好ましくは50 μm 以下、より好ましくは40 μm 以下である。上記導電性粒子の粒子径が、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十分に大きくなり、かつ導電部を形成する際に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。

[0047] 上記導電性粒子の粒子径は、平均粒子径であることが好ましく、数平均粒子径であることがより好ましい。導電性粒子の粒子径は、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、各導電性粒子の粒子径の平均値を算出することや、レーザー回折式粒度分布測定を行うことにより求められる。導電性粒子において、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する方法により、上記導電性粒子の粒子径を測定する場合には、例えば、以下のようにして測定できる。

[0048] 導電性粒子の含有量が30重量%となるように、Kulzer社製「テクノビット4000」に添加し、分散させて、導電性粒子検査用埋め込み樹脂を作製する。検査用埋め込み樹脂中に分散した導電性粒子の中心付近を通るようにイオンミリング装置（日立ハイテクノロジーズ社製「IM4000」

）を用いて、導電性粒子の断面を切り出す。そして、電界放射型走査型電子顕微鏡（F E - S E M）を用いて、画像倍率を25000倍に設定し、50個の導電性粒子を無作為に選択し、各導電性粒子を観察する。各導電性粒子の円相当径を粒子径として計測し、それらを算術平均して導電性粒子の粒子径とする。導電性粒子検査用埋め込み樹脂の代わりに、絶縁性粒子付き導電性粒子検査用埋め込み樹脂を作製してもよい。

[0049] 上記導電性粒子の粒子径の変動係数（C V 値）は、好ましくは10%以下、より好ましくは5%以下である。上記導電性粒子の粒子径の変動係数が、上記上限以下であると、電極間の導通信頼性及び絶縁信頼性をより一層効果的に高めることができる。

[0050] 上記変動係数（C V 値）は、以下のようにして測定できる。

[0051] $C V \text{ 値 } (\%) = (\rho / D n) \times 100$

ρ : 導電性粒子の粒子径の標準偏差

$D n$: 導電性粒子の粒子径の平均値

[0052] 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、球状以外の形状であってもよく、扁平状等の形状であってもよい。

[0053] 基材粒子：

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、金属粒子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より好ましい。上記基材粒子は、無機粒子を除く基材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備える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。

[0054] 上記樹脂粒子の材料として、種々の有機物が好適に用いられる。上記樹脂粒子の材料としては、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、及び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、上記樹脂粒子の材料は、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。

[0055] 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。

[0056] 上記非架橋性の単量体としては、例えば、スチレン、及び 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、及び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、及びイソボルニル（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、及びグリシジル（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、及び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、及び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、及び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、及び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。

[0057] 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、及び1，4-ブタンジオールジ（メタ）アクリレート等の多官能（メタ）アクリレート化合物；トリアリル（イソ）シアヌレート、トリアリルトリメリテート、ジビニルベンゼン、ジアリルフタレート、ジアリルアクリルアミド、ジアリルエーテル、並びに、 γ -（メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、トリメトキシシリルスチレン、及び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。

[0058] 「（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。

[0059] 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。

[0060] 上記基材粒子が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。

[0061] 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。

[0062] 上記有機コアの材料としては、上述した樹脂粒子の材料等が挙げられる。

[0063] 上記無機シェルの材料としては、上述した基材粒子の材料として挙げた無機物が挙げられる。上記無機シェルの材料は、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、該シェル状物を焼成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。

[0064] 上記基材粒子が金属粒子である場合に、該金属粒子の材料である金属とし

ては、銀、銅、ニッケル、ケイ素、金及びチタン等が挙げられる。

[0065] 上記基材粒子の粒子径は、好ましくは $0.6\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.8\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $49.8\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $49.6\mu\text{m}$ 以下である。上記基材粒子の粒子径が、上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間の間隔が小さくなり、かつ導電部（導電層等）の厚みを厚くしても、小さい導電性粒子が得られる。さらに基材粒子の表面に導電部を形成する際に凝集し難くなり、凝集した導電性粒子が形成され難くなる。

[0066] 上記基材粒子の粒子径は、 $0.9\mu\text{m}$ 以上 $49.9\mu\text{m}$ 以下であることが特に好ましい。上記基材粒子の粒子径が、 $0.9\mu\text{m}$ 以上 $49.9\mu\text{m}$ 以下の範囲内であると、基材粒子の表面に導電部を形成する際に凝集し難くなり、凝集した導電性粒子が形成され難くなる。

[0067] 上記基材粒子の粒子径は、数平均粒子径を示す。上記基材粒子の粒子径は粒度分布測定装置等を用いて求められる。基材粒子の粒子径は、任意の基材粒子50個を電子顕微鏡又は光学顕微鏡にて観察し、各基材粒子の粒子径の平均値を算出することや、レーザー回折式粒度分布測定を行うことにより求めることが好ましい。導電性粒子において、任意の基材粒子50個を電子顕微鏡又は光学顕微鏡にて観察する方法により、上記基材粒子の粒子径を測定する場合には、例えば、以下のようにして測定できる。

[0068] 導電性粒子の含有量が30重量%となるように、Kulzer社製「テクノビット4000」に添加し、分散させて、導電性粒子検査用埋め込み樹脂を作製する。検査用埋め込み樹脂中に分散した導電性粒子の中心付近を通るようにイオンミリング装置（日立ハイテクノロジーズ社製「IM4000」）を用いて、導電性粒子の断面を切り出す。そして、電界放射型走査型電子顕微鏡（FE-SEM）を用いて、画像倍率を25000倍に設定し、50個の導電性粒子を無作為に選択し、各導電性粒子の基材粒子を観察する。各導電性粒子における基材粒子の円相当径を粒子径として計測し、それらを算術平均して基材粒子の粒子径とする。導電性粒子検査用埋め込み樹脂の代わりに、絶縁性粒子付き導電性粒子検査用埋め込み樹脂を作製してもよい。

[0069] 導電部：

本発明では、上記導電性粒子は、導電部を少なくとも表面に有する。上記導電部は、金属を含むことが好ましい。上記導電部を構成する金属は、特に限定されない。上記金属としては、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。電極間の接続抵抗をより一層低くする観点からは、錫を含む合金、ニッケル、パラジウム、銅又は金が好ましく、ニッケル又はパラジウムがより好ましい。

[0070] また、導通信頼性を効果的に高める観点からは、上記導電部及び上記導電部の外表面部分はニッケルを含むことが好ましい。ニッケルを含む導電部100重量%中のニッケルの含有量は、好ましくは10重量%以上、より好ましくは50重量%以上、より一層好ましくは60重量%以上、さらに好ましくは70重量%以上、特に好ましくは90重量%以上である。上記ニッケルを含む導電部100重量%中のニッケルの含有量は、97重量%以上であってもよく、97.5重量%以上であってもよく、98重量%以上であってもよい。

[0071] なお、導電部の表面には、酸化により水酸基が存在することが多い。一般的に、ニッケルにより形成された導電部の表面には、酸化により水酸基が存在する。このような水酸基を有する導電部の表面（導電性粒子の表面）に、化学結合を介して、絶縁性粒子を配置できる。

[0072] 上記導電部は、1つの層により形成されていてもよい。上記導電部は、複数の層により形成されていてもよい。すなわち、上記導電部は、2層以上の積層構造を有していてもよい。上記導電部が複数の層により形成されている場合には、最外層を構成する金属は、金、ニッケル、パラジウム、銅又は錫と銀とを含む合金であることが好ましく、金であることがより好ましい。最

外層を構成する金属がこれらの好ましい金属である場合には、電極間の接続抵抗がより一層低くなる。また、最外層を構成する金属が金である場合には、耐腐食性がより一層高くなる。

[0073] 上記基材粒子の表面上に導電部を形成する方法は特に限定されない。上記導電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。上記導電部を形成する方法は、無電解めっき、電気めっき又は物理的な衝突による方法であることが好ましい。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。

[0074] 上記導電部の厚みは、好ましくは $0.005\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.01\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $10\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $1\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $0.3\mu\text{m}$ 以下である。上記導電部の厚みが、上記下限以上及び上記上限以下であると、十分な導電性が得られ、かつ導電性粒子が硬くなりすぎずに、電極間の接続の際に導電性粒子を十分に変形させることができる。

[0075] 上記導電部が複数の層により形成されている場合に、最外層の導電部の厚みは、好ましくは $0.001\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.01\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $0.5\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.1\mu\text{m}$ 以下である。上記最外層の導電部の厚みが、上記下限以上及び上記上限以下であると、最外層の導電部が均一になり、耐腐食性が十分に高くなり、かつ電極間の接続抵抗を十分に低くすることができる。

[0076] 上記導電部の厚みは、例えば、透過型電子顕微鏡（TEM）を用いて、導電性粒子の断面を観察することにより測定できる。

[0077] 芯物質：

上記導電性粒子は、上記導電部の外表面に複数の突起を有することが好ましい。絶縁性粒子付き導電性粒子により接続される電極の表面には、酸化被膜が形成されていることが多い。導電部の表面に突起を有する絶縁性粒子付き導電性粒子を用いた場合には、電極間に絶縁性粒子付き導電性粒子を配置して圧着させることにより、突起により上記酸化被膜を効果的に排除できる。このため、電極と導電部とがより一層確実に接触し、電極間の接続抵抗がより一層低くなる。さらに、電極間の接続時に、導電性粒子の突起によって、導電性粒子と電極との間の絶縁性粒子を効果的に排除できる。このため、電極間の導通信頼性がより一層高くなる。

[0078] 上記突起を形成する方法としては、基材粒子の表面に芯物質を付着させた後、無電解めっきにより導電部を形成する方法、並びに基材粒子の表面に無電解めっきにより導電部を形成した後、芯物質を付着させ、さらに無電解めっきにより導電部を形成する方法等が挙げられる。上記突起を形成する他の方法としては、基材粒子の表面上に、第1の導電部を形成した後、該第1の導電部上に芯物質を配置し、次に第2の導電部を形成する方法、並びに基材粒子の表面上に導電部（第1の導電部又は第2の導電部等）を形成する途中段階で、芯物質を添加する方法等が挙げられる。また、突起を形成するために、上記芯物質を用いずに、基材粒子に無電解めっきにより導電部を形成した後、導電部の表面上に突起状にめっきを析出させ、さらに無電解めっきにより導電部を形成する方法等を用いてもよい。

[0079] 基材粒子の表面に芯物質を付着させる方法としては、例えば、基材粒子の分散液中に、芯物質を添加し、基材粒子の表面に芯物質を、ファンデルワールス力により集積させ、付着させる方法、並びに基材粒子を入れた容器に、芯物質を添加し、容器の回転等による機械的な作用により基材粒子の表面に芯物質を付着させる方法等が挙げられる。付着させる芯物質の量を制御する観点からは、基材粒子の表面に芯物質を付着させる方法は、分散液中の基材粒子の表面に芯物質を集積させ、付着させる方法であることが好ましい。

[0080] 上記芯物質を構成する物質としては、導電性物質及び非導電性物質が挙げ

られる。上記導電性物質としては、例えば、金属、金属の酸化物、黒鉛等の導電性非金属及び導電性ポリマー等が挙げられる。上記導電性ポリマーとしては、ポリアセチレン等が挙げられる。上記非導電性物質としては、シリカ、アルミナ及びジルコニア等が挙げられる。電極間の導通信頼性をより一層高める観点からは、上記芯物質が金属であることが好ましい。

[0081] 上記金属は特に限定されない。上記金属としては、例えば、金、銀、銅、白金、亜鉛、鉄、鉛、錫、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等の金属、並びに錫－鉛合金、錫－銅合金、錫－銀合金、錫－鉛－銀合金及び炭化タングステン等の2種類以上の金属で構成される合金等が挙げられる。電極間の導通信頼性をより一層高める観点からは、上記金属は、ニッケル、銅、銀又は金が好ましい。上記金属は、上記導電部（導電層）を構成する金属と同じであってもよく、異なってもよい。

[0082] 上記芯物質の形状は特に限定されない。芯物質の形状は塊状であることが好ましい。芯物質としては、例えば、粒子状の塊、複数の微小粒子が凝集した凝集塊、及び不定形の塊等が挙げられる。

[0083] 上記芯物質の粒子径（平均粒子径）は、好ましくは $0.001\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.05\mu\text{m}$ 以上、好ましくは $0.9\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.2\mu\text{m}$ 以下である。上記芯物質の粒子径が、上記下限以上及び上限以下であると、電極間の接続抵抗を効果的に低くすることができる。

[0084] 上記芯物質の粒子径は、平均粒子径であることが好ましく、数平均粒子径であることがより好ましい。芯物質の粒子径は、例えば、任意の芯物質50個を電子顕微鏡又は光学顕微鏡にて観察し、各芯物質の粒子径の平均値を算出することや、レーザー回折式粒度分布測定を行うことにより求められる。導電性粒子において、任意の芯物質50個を電子顕微鏡又は光学顕微鏡にて観察する方法により、上記芯物質の粒子径を測定する場合には、例えば、以下のようにして測定できる。

[0085] 導電性粒子を含有量が30重量%となるように、Kulzer社製「テク

ノビット4000」に添加し、分散させて、導電性粒子検査用埋め込み樹脂を作製する。その検査用埋め込み樹脂中に分散した導電性粒子の中心付近を通るようにイオンミリング装置（日立ハイテクノロジーズ社製「IM4000」）を用いて、導電性粒子の断面を切り出す。そして、電界放射型走査型電子顕微鏡（FE-SEM）を用いて、画像倍率20万倍に設定し、50個の導電性粒子を無作為に選択し、導電性粒子の芯物質を観察する。各導電性粒子における芯物質の円相当径を粒子径として計測し、それらを算術平均して芯物質の粒子径とする。導電性粒子検査用埋め込み樹脂の代わりに、絶縁性粒子付き導電性粒子検査用埋め込み樹脂を作製してもよい。

[0086] 絶縁性粒子：

本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子は、上記導電性粒子の表面上に配置された複数の絶縁性粒子を備える。この場合には、上記絶縁性粒子付き導電性粒子を電極間の接続に用いると、隣接する電極間の短絡を防止できる。具体的には、複数の絶縁性粒子付き導電性粒子が接触したときに、複数の電極間に絶縁性粒子が存在するので、上下の電極間ではなく横方向に隣り合う電極間の短絡を防止できる。なお、電極間の接続の際に、2つの電極で絶縁性粒子付き導電性粒子を加圧することにより、導電性粒子の導電部と電極との間の絶縁性粒子を容易に排除できる。さらに、導電部の外表面に複数の突起を有する導電性粒子である場合には、導電性粒子の導電部と電極との間の絶縁性粒子をより一層容易に排除できる。

[0087] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子の粒子径は、500nm以上1500nm以下である。本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子は比較的大きい。このため、比較的粒子径の大きな導電性粒子を用いた場合であっても、導電接続された接続構造体における隣接する横方向の電極間の絶縁信頼性をより一層効果的に高めることができる。

[0088] 上記絶縁性粒子の粒子径は、上記絶縁性粒子付き導電性粒子の粒子径及び上記絶縁性粒子付き導電性粒子の用途等によって適宜選択できる。上記絶縁

性粒子の粒子径は、好ましくは540nmを超え、より好ましくは550nm以上、更に好ましくは700nm以上、特に好ましくは800nm以上であり、好ましくは1500nm以下、より好ましくは1200nm以下、より一層好ましくは1000nm未満、更に好ましくは900nm以下、更に一層好ましくは850nm以下である。上記絶縁性粒子の粒子径が、上記下限を満足すると、上記絶縁性粒子付き導電性粒子がバインダー樹脂中に分散されたときに、複数の上記絶縁性粒子付き導電性粒子における導電部同士が接触し難くなる。上記絶縁性粒子の粒子径が、上記上限を満足すると、電極間の接続の際に、電極と導電性粒子との間の絶縁性粒子を排除するために、圧力を高くしすぎる必要がなくなり、高温に加熱する必要もなくなる。上記絶縁性粒子の粒子径が、上記下限及び上記上限を満足すると、電極間を電氣的に接続した場合に、絶縁信頼性をより一層効果的に高めることができる。

[0089] 上記絶縁性粒子の粒子径は、平均粒子径であることが好ましく、数平均粒子径であることが好ましい。上記絶縁性粒子の粒子径は粒度分布測定装置等を用いて求められる。上記絶縁性粒子の粒子径は、任意の絶縁性粒子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や、レーザー回折式粒度分布測定を行うことにより求めることが好ましい。上記絶縁性粒子付き導電性粒子において、任意の絶縁性粒子50個を電子顕微鏡又は光学顕微鏡にて観察する方法により、上記絶縁性粒子の粒子径を測定する場合には、例えば、以下のようにして測定できる。

[0090] 絶縁性粒子付き導電性粒子を含有量が30重量%となるように、Kulze社製「テクノビット4000」に添加し、分散させて、導電性粒子検査用埋め込み樹脂を作製する。その検査用埋め込み樹脂中の分散した絶縁性粒子付き導電性粒子の中心付近を通るようにイオンミリング装置（日立ハイテクノロジーズ社製「IM4000」）を用いて、絶縁性粒子付き導電性粒子の断面を切り出す。そして、電界放射型走査型電子顕微鏡（FE-SEM）を用いて、画像倍率5万倍に設定し、50個の絶縁性粒子付き導電性粒子を無作為に選択し、各絶縁性粒子付き導電性粒子の絶縁性粒子を観察する。各

絶縁性粒子付き導電性粒子における絶縁性粒子の円相当径を粒子径として計測し、それらを算術平均して絶縁性粒子の粒子径とする。

[0091] 上記導電性粒子の粒子径の、上記絶縁性粒子の粒子径に対する比（導電性粒子の粒子径／絶縁性粒子の粒子径）は、好ましくは3以上、より好ましくは6以上、さらに好ましくは16以上であり、好ましくは100以下、より好ましくは55以下、さらに好ましくは30以下である。上記比（導電性粒子の粒子径／絶縁性粒子の粒子径）が、上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間を電氣的に接続した場合に、絶縁信頼性及び導通信頼性をより一層効果的に高めることができる。

[0092] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が、100MPa以上1000MPa以下である。上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率は、好ましくは300MPa以上、より好ましくは500MPa以上であり、好ましくは950MPa以下、より好ましくは900MPa以下である。上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が、上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間を電氣的に接続した場合に、絶縁信頼性及び導通信頼性をより一層効果的に高めることができる。

[0093] 上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率は、動的粘弾性測定装置（TA Instruments社製「RSA3」）により測定できる。上記動的粘弾性測定装置による測定は、長さ10mm、幅1mm～10mm、厚み1.5mm～5.0mmの測定サンプルを用いて、周波数10Hz、ひずみ1%、温度-10℃～210℃、及び昇温速度5℃/minの条件で行う。測定結果から、60℃における貯蔵弾性率を算出する。なお、上記測定サンプルは、上記絶縁性粒子と同じ原料（絶縁性粒子を構成する材料）を用いて作製する。

[0094] 上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が上100MPa以上1000MPa以下であると、上記絶縁性粒子は、60℃で柔軟な性質を発現する。上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が上記の好ましい範囲である。

と、上記絶縁性粒子は、60℃で非常に柔軟な性質を発現する。また、上記導電性粒子の表面上に上記絶縁性粒子を配置する際の温度は約60℃であるため、上記導電性粒子の表面上に上記絶縁性粒子を配置する際には、上記絶縁性粒子は非常に柔軟となり、上記導電性粒子の表面上に容易に配置することができる。また、上記導電性粒子の表面上に上記絶縁性粒子を容易に配置することができるため、有機化合物や無機酸化物等の被覆を用いる必要がない。このため、導電接続時に、導電性粒子の表面から絶縁性粒子がはずれやすく、接続されるべき上下の電極間の導通信頼性を効果的に高めることができる。

[0095] 上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率を100MPa以上1000MPa以下に調整する方法としては、以下の方法が挙げられる。モノマーのガラス転移温度を調整して絶縁性粒子を作製する方法。主モノマーと、該主モノマーのガラス転移温度と異なるガラス転移温度を有するモノマーとを混合して、絶縁性粒子を作製する方法。主モノマーに対する架橋剤の添加率を低くする方法。絶縁性粒子の作製の際に、官能数が小さい架橋剤を用いる方法。ポーラス構造を有する絶縁性粒子を用いる方法。中空構造を有する絶縁性粒子を用いる方法。セラミックス及びシリカの双方と異なる有機化合物により形成された絶縁性粒子を用いる方法。これら以外の方法を用いてもよい。

[0096] また、上記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率を上記の好ましい範囲にする観点からは、上記絶縁性粒子は重合性化合物を重合することにより得ることが好ましい。上記重合性化合物としては、上述した樹脂粒子の材料等が挙げられる。上記重合性化合物の側鎖は長いことが好ましい。上記重合性化合物の側鎖が長いことで、より一層柔軟な性質を発現する絶縁性粒子を得ることができる。また、上述したように、上記絶縁性粒子は比較的大きい。粒子径の大きい絶縁性粒子を得るためには、上記重合性化合物の側鎖が短いことが好ましい。側鎖の短い重合性化合物を重合させることで、粒子径の大きい絶縁性粒子を容易に得ることはできるものの、側鎖の短い重合性化合物

により得られた絶縁性粒子では、柔軟な性質を発現させることは困難である。そこで、側鎖の短い重合性化合物により得られた絶縁性粒子に柔軟な性質を付与する方法として、側鎖の短い重合性化合物に、該重合性化合物の重合には関与せず、エポキシ基等との反応性を有する反応性官能基を導入する方法等が挙げられる。上記反応性官能基を側鎖の短い重合性化合物に導入することで、側鎖の短い重合性化合物を重合させて絶縁性粒子を得た後に、上記反応性官能基と鎖長の長い化合物とを反応させることで、絶縁性粒子に柔軟な性質を付与することができる。結果として、上記導電性粒子の表面上に絶縁性粒子を容易に配置することができる。

[0097] 上記絶縁性粒子の膨潤倍率は、好ましくは1以上、より好ましくは1.2以上であり、好ましくは2.5以下、より好ましくは2以下である。上記膨潤倍率が、上記下限以上であると、上記導電性粒子の表面上に上記絶縁性粒子をより一層容易に配置することができる。上記膨潤倍率が、上記上限以下であると、電極間を電氣的に接続した場合に、絶縁信頼性及び導通信頼性をより一層効果的に高めることができる。

[0098] 上記膨潤倍率は、絶縁性粒子の柔軟性の指標である。上記膨潤倍率が高いほど、絶縁性粒子が柔軟であることを示している。

[0099] 上記膨潤倍率は、以下のようにして測定することができる。

[0100] 上記絶縁性粒子と同じ原料（絶縁性粒子を構成する材料）を用いて、縦10mm×横5mm、厚み0.5mmの測定サンプルを作製する。得られた測定サンプルの重量を測定し、トルエン100g中に25℃で20時間浸漬する。その後、測定サンプルを取り出し、160℃で30分間乾燥し、乾燥後の測定サンプルの重量を測定する。トルエン浸漬前後の測定サンプルの重量変化から下記式（1）により、膨潤倍率を算出することができる。

[0101] 膨潤倍率＝〔トルエン浸漬後の測定サンプルの重量（g）／トルエン浸漬前の測定サンプルの重量（g）〕・・・式（1）

[0102] 電極間を電氣的に接続した場合に、絶縁信頼性及び導通信頼性をより一層効果的に高める観点からは、上記絶縁性粒子の全個数の内の10%以上が、

他の上記絶縁性粒子に接触しないように、上記導電性粒子の表面上に配置されていることが好ましい。電極間を電氣的に接続した場合に、絶縁信頼性及び導通信頼性をより一層効果的に高める観点からは、上記絶縁性粒子の全個数の内の30%以上が、他の上記絶縁性粒子に接触しないように、上記導電性粒子の表面上に配置されていることがより好ましい。

[0103] 他の絶縁性粒子に接触していない絶縁性粒子の個数の割合は、走査型電子顕微鏡（SEM）により20個の絶縁性粒子付き導電性粒子を観察することで算出することが好ましい。具体的には、絶縁性粒子付き導電性粒子を一方向から走査型電子顕微鏡（SEM）で観察し、各絶縁性粒子付き導電性粒子における絶縁性粒子の個数、及び他の絶縁性粒子に接触していない絶縁性粒子の個数を算出し、平均値を算出することにより求めることが好ましい。

[0104] 上記絶縁性粒子を構成する材料としては、絶縁性の樹脂等が挙げられる。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の材料等が挙げられる。

[0105] 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、ポリオレフィン化合物、（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。

[0106] 上記ポリオレフィン化合物としては、ポリエチレン、エチレンー酢酸ビニル共重合体及びエチレンー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、スチレンーアクリル酸エステル共重合体、SB型スチレンーブタジエンブロック共重合体、及びSBS型スチレンー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。

[0107] 絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率を架橋剤によって調整する場合、上記絶縁性粒子を構成する材料が、架橋剤を含むことが好ましい。60℃における貯蔵弾性率を100MPa以上1000MPa以下に調整する観点からは、上記架橋剤は、2官能～6官能の架橋剤であることが好ましい。上記2官能～6官能の架橋剤としては、2官能～6官能の(メタ)アクリレートモノマーであることが好ましく、2官能～4官能の(メタ)アクリレートモノマーであることがより好ましく、2官能の(メタ)アクリレートモノマーであることが更に好ましい。上記2官能～6官能の(メタ)アクリレートモノマーとしては、トリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート又はジメタクリル酸エチレングリコールが好ましく、ジメタクリル酸エチレングリコールがより好ましい。

[0108] 絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率を100MPa以上1000MPa以下に容易に調整する観点からは、絶縁性粒子を構成する材料のうち最も含有量が多い材料100重量部に対して、架橋剤の含有量は好ましくは0.001重量部以上、より好ましくは0.01重量部以上、更に好ましくは0.1重量部以上である。絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率を100MPa以上1000MPa以下に容易に調整する観点からは、絶縁性粒子を構成する材料のうち最も含有量が多い材料100重量部に対して、架橋剤の含有量は、好ましくは20重量部以下、より好ましくは10重量部以下、更に好ましくは6重量部以下である。

[0109] 上記導電部の表面上に上記絶縁性粒子を配置する方法としては、化学的方法、及び物理的もしくは機械的方法等が挙げられる。上記化学的方法としては、例えば、界面重合法、粒子存在下での懸濁重合法及び乳化重合法等が挙げられる。上記物理的もしくは機械的方法としては、スプレードライ、ハイ

ブリダイゼーション、静電付着法、噴霧法、ディッピング及び真空蒸着による方法等が挙げられる。電極間を電氣的に接続した場合に、絶縁信頼性及び導通信頼性をより一層効果的に高める観点からは、上記導電部の表面上に上記絶縁性粒子を配置する方法は、物理的方法であることが好ましい。

[0110] 上記導電部の外表面、及び上記絶縁性粒子の外表面はそれぞれ、反応性官能基を有する化合物によって被覆されていてもよい。上記導電部の外表面と上記絶縁性粒子の外表面とは、直接化学結合していなくてもよく、反応性官能基を有する化合物によって間接的に化学結合していてもよい。上記導電部の外表面にカルボキシル基を導入した後、該カルボキシル基がポリエチレンジイミン等の高分子電解質を介して絶縁性粒子の外表面の官能基と化学結合していても構わない。

[0111] 本発明に係る絶縁性粒子付き導電性粒子では、粒子径の異なる2種以上の絶縁性粒子を併用してもよい。粒子径の異なる2種以上の絶縁性粒子を併用することにより、粒子径の大きい絶縁性粒子により被覆された隙間に、粒子径の小さい絶縁性粒子が入り込み、上記被覆率をより一層効果的に高めることができる。

[0112] 上記絶縁性粒子の粒子径の変動係数（CV値）は、20%以下であることが好ましい。上記絶縁性粒子の粒子径の変動係数が、上記上限以下であると、得られる絶縁性粒子付き導電性粒子の絶縁性粒子により覆われた部分の厚みがより一層均一となり、導電接続の際に均一に圧力をより一層容易に付与することができ、電極間の接続抵抗をより一層低くすることができる。

[0113] 上記変動係数（CV値）は、以下のようにして測定できる。

[0114] $CV \text{ 値} (\%) = (\rho / D_n) \times 100$

ρ : 絶縁性粒子の粒子径の標準偏差

D_n : 絶縁性粒子の粒子径の平均値

[0115] 上記絶縁性粒子の形状は特に限定されない。上記絶縁性粒子の形状は、球状であってもよく、球状以外の形状であってもよく、扁平状等の形状であってもよい。

[0116] (導電材料)

本発明に係る導電材料は、上述した絶縁性粒子付き導電性粒子と、バインダー樹脂とを含む。上記絶縁性粒子付き導電性粒子は、バインダー樹脂中に分散されて用いられることが好ましく、バインダー樹脂中に分散されて導電材料として用いられることが好ましい。上記導電材料は、異方性導電材料であることが好ましい。上記導電材料は、電極間の電気的な接続に用いられることが好ましい。上記導電材料は回路接続用導電材料であることが好ましい。上記導電材料では、上述した絶縁性粒子付き導電性粒子が用いられているので、電極間の絶縁信頼性及び導通信頼性をより一層高めることができる。

[0117] 上記バインダー樹脂は特に限定されない。上記バインダー樹脂として、公知の絶縁性の樹脂が用いられる。上記バインダー樹脂は、熱可塑性成分（熱可塑性化合物）又は硬化性成分を含むことが好ましく、硬化性成分を含むことがより好ましい。上記硬化性成分としては、光硬化性成分及び熱硬化性成分が挙げられる。上記光硬化性成分は、光硬化性化合物及び光重合開始剤を含むことが好ましい。上記熱硬化性成分は、熱硬化性化合物及び熱硬化剤を含むことが好ましい。

[0118] 上記バインダー樹脂としては、例えば、ビニル樹脂、熱可塑性樹脂、硬化性樹脂、熱可塑性ブロック共重合体及びエラストマー等が挙げられる。上記バインダー樹脂は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。

[0119] 上記ビニル樹脂としては、例えば、酢酸ビニル樹脂、アクリル樹脂及びスチレン樹脂等が挙げられる。上記熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリオレフィン樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体及びポリアミド樹脂等が挙げられる。上記硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂、ポリイミド樹脂及び不飽和ポリエステル樹脂等が挙げられる。なお、上記硬化性樹脂は、常温硬化型樹脂、熱硬化型樹脂、光硬化型樹脂又は湿気硬化型樹脂であってもよい。上記硬化性樹脂は、硬化剤と併用されてもよい。上記熱可塑性ブロック共重合体としては、例えば、スチレン-ブタジエーン-スチレ

ンブロック共重合体、スチレンーイソプレンスチレンブロック共重合体、スチレンーブタジエンスチレンブロック共重合体の水素添加物、及びスチレンーイソプレンスチレンブロック共重合体の水素添加物等が挙げられる。上記エラストマーとしては、例えば、スチレンーブタジエン共重合ゴム、及びアクリロニトリルスチレンブロック共重合ゴム等が挙げられる。

[0120] 上記導電材料は、上記絶縁性粒子付き導電性粒子及び上記バインダー樹脂の他に、例えば、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。

[0121] 上記バインダー樹脂中に上記絶縁性粒子付き導電性粒子を分散させる方法は、従来公知の分散方法を用いることができ、特に限定されない。上記バインダー樹脂中に上記絶縁性粒子付き導電性粒子を分散させる方法としては、例えば、以下の方法等が挙げられる。上記バインダー樹脂中に上記絶縁性粒子付き導電性粒子を添加した後、プラネタリーミキサー等で混練して分散させる方法。上記絶縁性粒子付き導電性粒子を水又は有機溶剤中にホモジナイザー等を用いて均一に分散させた後、上記バインダー樹脂中に添加し、プラネタリーミキサー等で混練して分散させる方法。上記バインダー樹脂を水又は有機溶剤等で希釈した後、上記絶縁性粒子付き導電性粒子を添加し、プラネタリーミキサー等で混練して分散させる方法。

[0122] 上記導電材料の25℃での粘度 (η_{25}) は、好ましくは30 Pa・s以上、より好ましくは50 Pa・s以上であり、好ましくは400 Pa・s以下、より好ましくは300 Pa・s以下である。上記導電材料の25℃での粘度が、上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間の絶縁信頼性をより一層効果的に高めることができ、電極間の導通信頼性をより一層効果的に高めることができる。上記粘度 (η_{25}) は、配合成分の種類及び配合量により適宜調整することができる。

[0123] 上記粘度 (η_{25}) は、例えば、E型粘度計（東機産業社製「TVE22L」）等を用いて、25℃及び5 rpmの条件で測定することができる。

[0124] 本発明に係る導電材料は、導電ペースト及び導電フィルム等として使用され得る。本発明に係る導電材料が、導電フィルムである場合には、導電性粒子を含む導電フィルムに、導電性粒子を含まないフィルムが積層されていてもよい。上記導電ペーストは、異方性導電ペーストであることが好ましい。上記導電フィルムは、異方性導電フィルムであることが好ましい。

[0125] 上記導電材料１００重量％中、上記バインダー樹脂の含有量は、好ましくは１０重量％以上、より好ましくは３０重量％以上、さらに好ましくは５０重量％以上、特に好ましくは７０重量％以上であり、好ましくは９９．９９重量％以下、より好ましくは９９．９重量％以下である。上記バインダー樹脂の含有量が、上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間に導電性粒子が効率的に配置され、導電材料により接続された接続対象部材の接続信頼性をより一層高めることができる。

[0126] 上記導電材料１００重量％中、上記絶縁性粒子付き導電性粒子の含有量は、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８０重量％以下、より好ましくは６０重量％以下、さらに好ましくは４０重量％以下、特に好ましくは２０重量％以下、最も好ましくは１０重量％以下である。上記絶縁性粒子付き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、電極間の導通信頼性及び絶縁信頼性をより一層高めることができる。

[0127] (接続構造体)

本発明に係る接続構造体は、第１の電極を表面に有する第１の接続対象部材と、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、上述した絶縁性粒子付き導電性粒子であるか、又は上記絶縁性粒子付き導電性粒子とバインダー樹脂とを含む導電材料である。本発明に係る接続構造体では、上記第１の電極と上記第２の電極とが、上記絶縁性粒子付き導電性粒子における上記導電部により電氣的に接続されている。

- [0128] 上記接続構造体は、上記第1の接続対象部材と上記第2の接続対象部材との間に、上記絶縁性粒子付き導電性粒子又は上記導電材料を配置する工程と、熱圧着することにより、導電接続する工程とを経て、得ることができる。上記熱圧着時に、上記絶縁性粒子が上記絶縁性粒子付き導電性粒子から脱離することが好ましい。
- [0129] 図4は、本発明の第1の実施形態に係る絶縁性粒子付き導電性粒子を用いた接続構造体を模式的に示す断面図である。
- [0130] 図4に示す接続構造体81は、第1の接続対象部材82と、第2の接続対象部材83と、第1の接続対象部材82及び第2の接続対象部材83を接続している接続部84とを備える。接続部84は、絶縁性粒子付き導電性粒子1を含む導電材料により形成されている。接続部84は、絶縁性粒子付き導電性粒子1を複数含む導電材料を硬化させることにより形成されていることが好ましい。なお、図4では、絶縁性粒子付き導電性粒子1は、図示の便宜上、略図的に示されている。絶縁性粒子付き導電性粒子1にかえて、絶縁性粒子付き導電性粒子21又は41を用いてもよい。
- [0131] 第1の接続対象部材82は表面（上面）に、複数の第1の電極82aを有する。第2の接続対象部材83は表面（下面）に、複数の第2の電極83aを有する。第1の電極82aと第2の電極83aとが、1つ又は複数の絶縁性粒子付き導電性粒子1における導電性粒子2により電氣的に接続されている。従って、第1接続対象部材82及び第2の接続対象部材83が絶縁性粒子付き導電性粒子1における導電部により電氣的に接続されている。
- [0132] 上記接続構造体の製造方法は特に限定されない。接続構造体の製造方法の一例としては、第1の接続対象部材と第2の接続対象部材との間に上記導電材料を配置し、積層体を得た後、該積層体を加熱及び加圧する方法等が挙げられる。上記熱圧着の圧力は好ましくは40MPa以上、より好ましくは60MPa以上であり、好ましくは90MPa以下、より好ましくは70MPa以下である。上記熱圧着の加熱の温度は、好ましくは80℃以上、より好ましくは100℃以上であり、好ましくは140℃以下、より好ましくは1

20℃以下である。上記熱圧着の圧力及び温度が、上記下限以上及び上記上限以下であると、導電接続時に絶縁性粒子付き導電性粒子の表面から絶縁性粒子が容易に脱離でき、電極間の導通信頼性をより一層高めることができる。

[0133] 上記積層体を加熱及び加圧する際に、上記導電性粒子と、上記第1の電極及び上記第2の電極との間に存在している上記絶縁性粒子を排除することができる。例えば、上記加熱及び加圧の際には、上記導電性粒子と、上記第1の電極及び上記第2の電極との間に存在している上記絶縁性粒子が、上記絶縁性粒子付き導電性粒子の表面から容易に脱離する。なお、上記加熱及び加圧の際には、上記絶縁性粒子付き導電性粒子の表面から一部の上記絶縁性粒子が脱離して、上記導電部の表面が部分的に露出することがある。上記導電部の表面が露出した部分が、上記第1の電極及び上記第2の電極に接触することにより、上記導電性粒子を介して第1の電極と第2の電極とを電氣的に接続することができる。

[0134] 上記第1の接続対象部材及び第2の接続対象部材は、特に限定されない。上記第1の接続対象部材及び第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等の電子部品等が挙げられる。上記第1の接続対象部材及び第2の接続対象部材は、電子部品であることが好ましい。

[0135] 上記接続対象部材に設けられている電極としては、金電極、ニッケル電極、錫電極、アルミニウム電極、銅電極、モリブデン電極、銀電極、SUS電極、及びタングステン電極等の金属電極が挙げられる。上記接続対象部材がフレキシブルプリント基板である場合には、上記電極は金電極、ニッケル電極、錫電極、銀電極又は銅電極であることが好ましい。上記接続対象部材がガラス基板である場合には、上記電極はアルミニウム電極、銅電極、モリブ

デン電極、銀電極又はタングステン電極であることが好ましい。なお、上記電極がアルミニウム電極である場合には、アルミニウムのみで形成された電極であってもよく、金属酸化物層の表面にアルミニウム層が積層された電極であってもよい。上記金属酸化物層の材料としては、3価の金属元素がドーピングされた酸化インジウム及び3価の金属元素がドーピングされた酸化亜鉛等が挙げられる。上記3価の金属元素としては、S n、A l 及びG a等が挙げられる。

[0136] 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。

[0137] (実施例1)

(1) 導電性粒子の作製

テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径20 μ m）を用意した。パラジウム触媒液を5重量%含むアルカリ溶液100重量部に、基材粒子10重量部を、超音波分散器を用いて分散させた後、溶液をろ過することにより、基材粒子を取り出した。次いで、基材粒子をジメチルアミンボラン1重量%溶液100重量部に添加し、基材粒子の表面を活性化させた。表面が活性化された基材粒子を十分に水洗した後、蒸留水500重量部に加え、分散させることにより、分散液を得た。次に、ニッケル粒子スラリー（平均粒子径100nm）1gを3分間かけて上記分散液に添加し、芯物質が付着された基材粒子を含む懸濁液を得た。

[0138] また、硫酸ニッケル0.35mol/L、ジメチルアミンボラン1.38mol/L及びクエン酸ナトリウム0.5mol/Lを含むニッケルめっき液（pH8.5）を用意した。

[0139] 得られた懸濁液を70℃にて攪拌しながら、上記ニッケルめっき液を懸濁液に徐々に滴下し、無電解ニッケルめっきを行った。その後、懸濁液をろ過することにより、粒子を取り出し、水洗し、乾燥することにより、基材粒子の表面に第1の導電部（ニッケルーボロン層、厚み200nm）が形成され

た粒子を得た。

[0140] 第1の導電部が形成された粒子10重量部を、蒸留水100重量部に添加し、分散させることにより、懸濁液を得た。また、シアン化金0.03mol/Lと、還元剤としてヒドロキノン0.1mol/Lとを含む還元金めっき液を用意した。得られた懸濁液を70℃にて攪拌しながら、上記還元金めっき液を懸濁液に徐々に滴下し、還元金めっきを行った。その後、懸濁液をろ過することにより、粒子を取り出し、水洗し、乾燥することにより、導電性粒子を得た。得られた導電性粒子では、上記第1の導電部の外表面上に第2の導電部（金層、厚み35nm）が形成されていた。

[0141] （2）絶縁性粒子の作製

4つ口セパラブルカバー、攪拌翼、三方コック、冷却管及び温度プローブを取り付けた2000mLセパラブルフラスコに、下記の組成物を入れた後、上記組成物を固形分が10重量%となるように蒸留水を添加して、120rpmで攪拌し、窒素雰囲気下50℃で5時間重合を行った。上記組成物は、メタクリル酸メチル1080mmol、ジメタクリル酸エチレングリコール（架橋剤）10mmol、4-（メタクリロイルオキシ）フェニルジメチルスルホニウムメチルスルフェート0.5mmol、及び2,2'-アゾビス{2-〔N-（2-カルボキシエチル）アミジノ〕プロパン}0.5mmolを含む。反応終了後、凍結乾燥して、4-（メタクリロイルオキシ）フェニルジメチルスルホニウムメチルスルフェートに由来するスルホン基を表面に有する絶縁性粒子（粒子径540nm）を得た。

[0142] （3）絶縁性粒子付き導電性粒子の作製

上記で得られた絶縁性粒子を超音波照射下で蒸留水に分散させ、絶縁性粒子の10重量%水分散液を得た。得られた導電性粒子10gを蒸留水500mLに分散させ、絶縁性粒子の10重量%水分散液1gを添加し、室温で8時間攪拌した。3μmのメッシュフィルターで濾過した後、さらにメタノールで洗浄、乾燥し、絶縁性粒子付き導電性粒子を得た。

[0143] （4）導電材料（異方性導電ペースト）の作製

得られた導電性粒子 7 重量部と、ビスフェノール A 型フェノキシ樹脂 2 5 重量部と、フルオレン型エポキシ樹脂 4 重量部と、フェノールノボラック型エポキシ樹脂 3 0 重量部と、S I - 6 0 L（三新化学工業社製）とを配合して、3 分間脱泡及び攪拌することで、導電材料（異方性導電ペースト）を得た。

[0144] （5）接続構造体の作製

L / S が $10\ \mu\text{m} / 10\ \mu\text{m}$ である I Z O 電極パターン（第 1 の電極、電極表面の金属のビッカース硬度 $100\ \text{Hv}$ ）が上面に形成された透明ガラス基板を用意した。また、L / S が $10\ \mu\text{m} / 10\ \mu\text{m}$ である A u 電極パターン（第 2 の電極、電極表面の金属のビッカース硬度 $50\ \text{Hv}$ ）が下面に形成された半導体チップを用意した。

[0145] 上記透明ガラス基板上に、得られた異方性導電ペーストを厚さ $30\ \mu\text{m}$ 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上に上記半導体チップを、電極同士が対向するように積層した。その後、異方性導電ペースト層の温度が 100°C となるようにヘッドの温度を調整しながら、半導体チップの上面に加圧加熱ヘッドを載せ、 $60\ \text{MPa}$ の圧力をかけて異方性導電ペースト層を 100°C で硬化させ、接続構造体を得た。

[0146] （実施例 2）

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のメタクリル酸メチルの配合量を $1080\ \text{mmol}$ から $540\ \text{mmol}$ に変更し、上記組成物中にメタクリル酸グリシジル $540\ \text{mmol}$ を添加した。また、絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を $750\ \text{nm}$ に変更した。上記の変更以外は、実施例 1 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0147] （実施例 3）

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のメタクリル酸メチルの配合量を $1080\ \text{mmol}$ から $540\ \text{mmol}$ に変更し、上記組成物中にメタクリル

酸グリシジル 540 mmol を添加した。また、絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を 800 nm に変更した。上記の変更以外は、実施例 1 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0148] (実施例 4)

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のメタクリル酸メチルの配合量を 1080 mmol から 540 mmol に変更し、上記組成物中にメタクリル酸グリシジル 540 mmol を添加した。また、絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を 1400 nm に変更した。上記の変更以外は、実施例 1 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0149] (実施例 5)

導電性粒子の作製の際に、第 1 の導電部（ニッケル—ボロン層）の厚みを 250 nm に変更し、第 2 の導電部（金層、厚み 35 nm）を形成しなかったこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0150] (実施例 6)

導電性粒子の作製の際に、ニッケル粒子スラリー（平均粒子径 100 nm）を用いなかったこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0151] (実施例 7)

導電性粒子の作製の際に、ニッケル粒子スラリー（平均粒子径 100 nm）の代わりにニッケル粒子スラリー（平均粒子径 250 nm）を用いたこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0152] (実施例 8)

導電性粒子の作製の際に、ニッケル粒子スラリー（平均粒子径 100 nm）の代わりにニッケル粒子スラリー（平均粒子径 450 nm）を用いたこと

以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0153] (実施例 9)

導電性粒子の作製の際に、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $20\ \mu\text{m}$ ）の代わりに、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $3\ \mu\text{m}$ ）を用いた。上記の変更以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0154] (実施例 10)

導電性粒子の作製の際に、第 1 の導電部（ニッケルーボロン層）の厚みを $250\ \text{nm}$ に変更し、第 2 の導電部（金層、厚み $35\ \text{nm}$ ）を形成しなかった。また、導電性粒子の作製の際に、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $20\ \mu\text{m}$ ）の代わりに、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $3\ \mu\text{m}$ ）を用いた。上記の変更以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0155] (実施例 11)

導電性粒子の作製の際に、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $20\ \mu\text{m}$ ）の代わりに、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $10\ \mu\text{m}$ ）を用いた。上記の変更以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0156] (実施例 12)

導電性粒子の作製の際に、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $20\ \mu\text{m}$ ）

m) の代わりに、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $35\ \mu\text{m}$ ）を用いた。上記の変更以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0157] （実施例 13）

導電性粒子の作製の際に、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $20\ \mu\text{m}$ ）の代わりに、テトラメチロールメタンテトラアクリレートとジビニルベンゼンとの共重合樹脂により形成された樹脂粒子（粒子径 $50\ \mu\text{m}$ ）を用いた。上記の変更以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0158] （実施例 14）

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のメタクリル酸メチルの配合量を 1080 mmol から 80 mmol に変更したこと、及び上記組成物中にメタクリル酸グリシジル 1000 mmol を添加したこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0159] （実施例 15）

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のメタクリル酸メチルの配合量を 1080 mmol から 680 mmol に変更したこと、及び上記組成物中にメタクリル酸グリシジル 400 mmol を添加したこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0160] （実施例 16）

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のジメタクリル酸エチレングリコールの配合量を 10 mmol から 15 mmol に変更したこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0161] (実施例 17)

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のジメタクリル酸エチレングリコールの配合量を 10 mmol から 20 mmol に変更したこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0162] (比較例 1)

絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を 450 nm に変更したこと以外は、実施例 1 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0163] (比較例 2)

絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を 450 nm に変更したこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0164] (比較例 3)

絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を 360 nm に変更したこと以外は、実施例 3 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0165] (比較例 4)

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中のメタクリル酸メチルの配合量を 1080 mmol から 540 mmol に変更し、上記組成物中にメタクリル酸グリシジル 540 mmol を添加した。また、絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を 2500 nm に変更した。上記の変更以外は、実施例 1 と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接続構造体を得た。

[0166] (比較例 5)

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中にジペンタエリスリトールヘキサアクリレート 100 mmol を添加した。また、絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を 800 nm に変更した。上記の変更以外は、実施例 1

と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接統構造体を得た。

[0167] (比較例6)

絶縁性粒子の作製の際に、上記組成物中にメタクリル酸メチル1080mmolの代わりに、メタクリル酸2-エチルヘキシル1080mmolを添加した。また、絶縁性粒子の作製の際に、絶縁性粒子の粒子径を800nmに変更した。上記の変更以外は、実施例1と同様に、導電性粒子、絶縁性粒子付き導電性粒子、導電材料及び接統構造体を得た。

[0168] (評価)

(1) 絶縁性粒子の粒子径

得られた絶縁性粒子の粒子径を、任意の絶縁性粒子50個を電子顕微鏡にて観察し、平均値を算出することにより求めた。

[0169] (2) 絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率

得られた絶縁性粒子と同じ原料（絶縁性粒子を構成する材料）を用いて、長さ10mm、幅1mm～10mm、厚み15mm～50mmの測定サンプルを作製した。上記測定サンプルの60℃における貯蔵弾性率を、動的粘弾性測定装置（TA Instruments社製「RSA3」）を用いて、周波数10Hz、ひずみ1%、温度-10℃～210℃、及び昇温速度5℃/minの条件で測定した。測定結果から、60℃における貯蔵弾性率を算出した。

[0170] なお、測定サンプルは以下のように作製した。測定サンプルのサイズの形状（長さ10mm、幅1mm～10mm、厚み15mm～50mm）に中央をくりぬいた30mm×40mmのシリコーンゴムを用意した。該シリコーンゴムを、30mm×40mmのガラス切片上に乗せた。ガラス切片上のシリコーンゴムのくりぬいた部分に、絶縁性粒子と同じ原料（絶縁性粒子を構成する材料）を流し込んだ。絶縁性粒子と同じ原料が流し込まれたシリコーンゴム上を、30mm×40mmのガラス切片でふたをし、クリップを用いて固定し、積層体を得た。得られた積層体をオープンに入れ、窒素雰囲気下

で50℃で5時間反応させた。反応後クリップを外し、測定サンプルを取り出した。

[0171] (3) 絶縁性粒子の膨潤倍率

得られた絶縁性粒子と同じ原料を用いて、縦10mm×横5mm、厚み0.5mmの測定サンプルを作製した。得られた測定サンプルの重量を測定し、トルエン100g中に25℃で20時間浸漬した。その後、測定サンプルを取り出し、160℃で30分間乾燥し、乾燥後の測定サンプルの重量を測定した。トルエン浸漬前後の測定サンプルの重量変化から下記式(1)により、膨潤倍率を算出した。

[0172] 膨潤倍率 = [トルエン浸漬後の測定サンプルの重量(g) / トルエン浸漬前の測定サンプルの重量(g)] ……式(1)

[0173] (4) 絶縁性粒子の全個数の内、他の絶縁性粒子に接触しないように、導電性粒子の表面上に配置されている絶縁性粒子の個数の割合X

得られた絶縁性粒子付き導電性粒子について、走査型電子顕微鏡(SEM)により観察し、20個の絶縁性粒子付き導電性粒子における絶縁性粒子の個数、及び他の絶縁性粒子に接触していない絶縁性粒子の個数をそれぞれ算出した。得られた結果から、絶縁性粒子の全個数の内、他の絶縁性粒子に接触しないように、導電性粒子の表面上に配置されている絶縁性粒子の個数の割合Xを、20個の絶縁性粒子付き導電性粒子の平均値として算出した。上記個数の割合Xを下記の基準で判定した。

[0174] [絶縁性粒子の全個数の内、他の絶縁性粒子に接触しないように、導電性粒子の表面上に配置されている絶縁性粒子の個数の割合Xの判定基準]

AA : 個数の割合Xが50%以上

A : 個数の割合Xが30%以上50%未満

B : 個数の割合Xが10%以上30%未満

C : 個数の割合Xが10%未満

[0175] (5) 導電性粒子の粒子径

得られた導電性粒子の粒子径を、堀場製作所社製「レーザー回折式粒度分

布測定装置」を用いて測定した。また、導電性粒子の粒子径は、20回の測定結果を平均することにより算出した。

[0176] また、絶縁性粒子の粒子径及び導電性粒子の粒子径の測定結果から、導電性粒子の粒子径の、絶縁性粒子の粒子径に対する比を算出した。

[0177] (6) 導通信頼性（上下の電極間）

得られた20個の接続構造体の上下の電極間の接続抵抗をそれぞれ、4端子法により測定した。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。

[0178] [導通信頼性の判定基準]

○○○：接続抵抗が、2.0Ω以下

○○：接続抵抗が、2.0Ωを超え5.0Ω以下

○：接続抵抗が、5.0Ωを超え10Ω以下

×：接続抵抗が、10Ωを超える

[0179] (7) 絶縁信頼性（横方向に隣り合う電極間）

上記（6）導通信頼性の評価で得られた20個の接続構造体において、隣接する電極間のリークの有無を、テスターで抵抗値を測定することにより評価した。絶縁信頼性を下記の基準で評価した。

[0180] [絶縁信頼性の判定基準]

○○○：抵抗値が $10^8\Omega$ 以上の接続構造体の個数が、18個以上

○○：抵抗値が $10^8\Omega$ 以上の接続構造体の個数が、15個以上18個未満

○：抵抗値が $10^8\Omega$ 以上の接続構造体の個数が、10個以上15個未満

×：抵抗値が $10^8\Omega$ 以上の接続構造体の個数が、10個未満

[0181] 結果を下記の表1～3に示す。

[0182]

[表1]

	絶縁性粒子の評価				導電性粒子の評価			導電性粒子の粒子径の、絶縁性粒子の粒子径に対する比		接続構造体の評価	
	粒子径 (nm)	60°Cにおける貯蔵弾性率 (MPa)	膨潤倍率	個数の割合 X	めっき	突起 (nm)	粒子径 (μm)			導通信頼性	絶縁信頼性
実施例1	540	950	1.4	AA	Au/Ni	100	20	37		〇〇	〇〇〇
実施例2	750	700	1.5	A	Au/Ni	100	20	27		〇〇〇	〇〇〇
実施例3	800	700	1.5	A	Au/Ni	100	20	25		〇〇〇	〇〇〇
実施例4	1400	700	1.5	A	Au/Ni	100	20	14		〇〇〇	〇〇
実施例5	800	700	1.5	A	Ni	100	20	25		〇〇	〇〇
実施例6	800	700	1.5	A	Au/Ni	-	20	25		〇〇〇	〇〇
実施例7	800	700	1.5	A	Au/Ni	250	20	25		〇〇	〇〇
実施例8	800	700	1.5	A	Au/Ni	450	20	25		〇	〇〇〇
実施例9	800	700	1.5	A	Au/Ni	100	3	4		〇〇〇	〇

[0183]

[表2]

	絶縁性粒子の評価				導電性粒子の評価			導電性粒子の粒子径の、絶縁性粒子の粒子径に対する比		接続構造体の評価	
	粒子径 (nm)	60℃における貯蔵弾性率(MPa)	膨潤倍率	個数の割合 X	めっき	突起 (nm)	粒子径 (μm)			導通信頼性	絶縁信頼性
実施例10	800	700	1.5	A	Ni	100	3	4		○○○	○
実施例11	800	700	1.5	A	Au/Ni	100	10	13		○○	○○
実施例12	800	700	1.5	A	Au/Ni	100	35	44		○○	○○
実施例13	800	700	1.5	A	Au/Ni	100	50	63		○	○○
実施例14	800	180	2.1	C	Au/Ni	100	20	25		○○	○○
実施例15	800	950	1.35	A	Au/Ni	100	20	25		○○	○○○
実施例16	800	700	1.2	A	Au/Ni	100	20	25		○○	○○○
実施例17	800	700	1.9	A	Au/Ni	100	20	25		○○	○○

[0184]

[表3]

	絶縁性粒子の評価				導電性粒子の評価			導電性粒子の粒子径の、絶縁性粒子の粒子径に対する比	接続構造体の評価	
	粒子径 (nm)	60℃における貯蔵弾性率 (MPa)	膨潤倍率	個数の割合 X	めっき	突起 (nm)	粒子径 (μm)		導通信頼性	絶縁信頼性
比較例1	450	950	1.4	AA	Au/Ni	100	20	44	x	○○○
比較例2	450	700	1.5	A	Au/Ni	100	20	44	x	○○
比較例3	360	700	1.5	A	Au/Ni	100	20	56	x	○○
比較例4	2500	700	1.4	A	Au/Ni	100	20	8	○○	x
比較例5	800	2000	1.1	A	Au/Ni	100	20	25	○○○	x
比較例6	800	50	1.9	A	Au/Ni	100	20	25	x	○○○

符号の説明

- [0185] 1 …絶縁性粒子付き導電性粒子
- 2 …導電性粒子
- 3 …絶縁性粒子

- 1 1 …基材粒子
- 1 2 …導電部
- 2 1 …絶縁性粒子付き導電性粒子
- 2 2 …導電性粒子
- 3 1 …導電部
- 3 2 …芯物質
- 3 3 …突起
- 4 1 …絶縁性粒子付き導電性粒子
- 4 2 …導電性粒子
- 5 1 …導電部
- 5 2 …突起
- 8 1 …接続構造体
- 8 2 …第 1 の接続対象部材
- 8 2 a …第 1 の電極
- 8 3 …第 2 の接続対象部材
- 8 3 a …第 2 の電極
- 8 4 …接続部

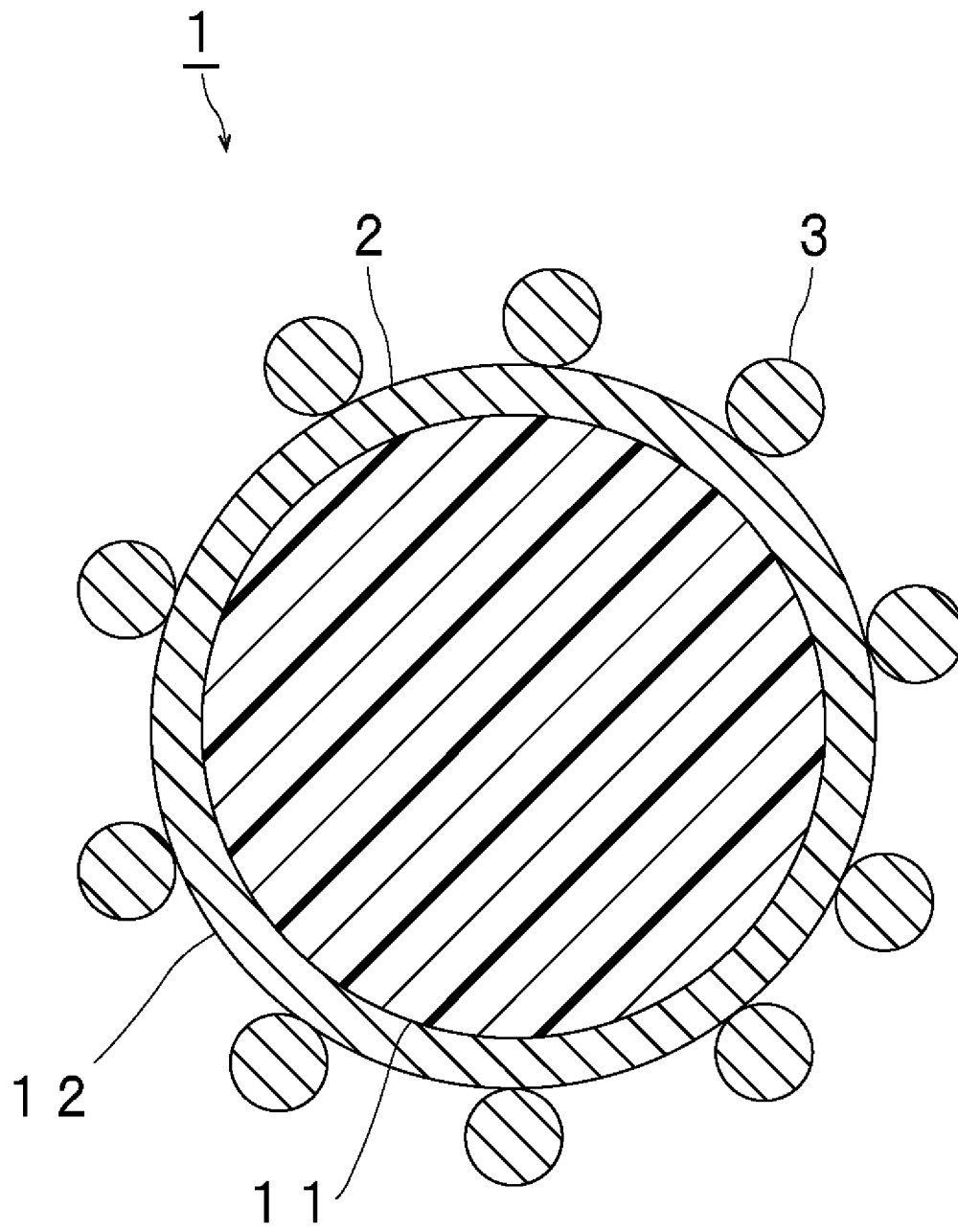
請求の範囲

- [請求項1] 導電部を少なくとも表面に有する導電性粒子と、
前記導電性粒子の表面上に配置された複数の絶縁性粒子とを備え、
前記絶縁性粒子の粒子径が、500nm以上1500nm以下であり、
前記絶縁性粒子の60℃における貯蔵弾性率が、100MPa以上1000MPa以下である、絶縁性粒子付き導電性粒子。
- [請求項2] 前記導電性粒子が、前記導電部の外表面に突起を有する、請求項1に記載の絶縁性粒子付き導電性粒子。
- [請求項3] 前記導電性粒子の粒子径の、前記絶縁性粒子の粒子径に対する比が、3以上100以下である、請求項1又は2に記載の絶縁性粒子付き導電性粒子。
- [請求項4] 前記絶縁性粒子の膨潤倍率が、1以上2.5以下である、請求項1～3のいずれか1項に記載の絶縁性粒子付き導電性粒子。
- [請求項5] 前記絶縁性粒子の全個数の内の10%以上が、他の前記絶縁性粒子に接触しないように、前記導電性粒子の表面上に配置されている、請求項1～4のいずれか1項に記載の絶縁性粒子付き導電性粒子。
- [請求項6] 前記導電性粒子の粒子径が、1μm以上50μm以下である、請求項1～5のいずれか1項に記載の絶縁性粒子付き導電性粒子。
- [請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の絶縁性粒子付き導電性粒子と、
バインダー樹脂とを含む、導電材料。
- [請求項8] 第1の電極を表面に有する第1の接続対象部材と、
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1～6のいずれか1項に記載の絶縁性粒子付き導電性粒子であるか、又は前記絶縁性粒子付き導電性粒子とバインダー樹脂とを含む導電材料であり、

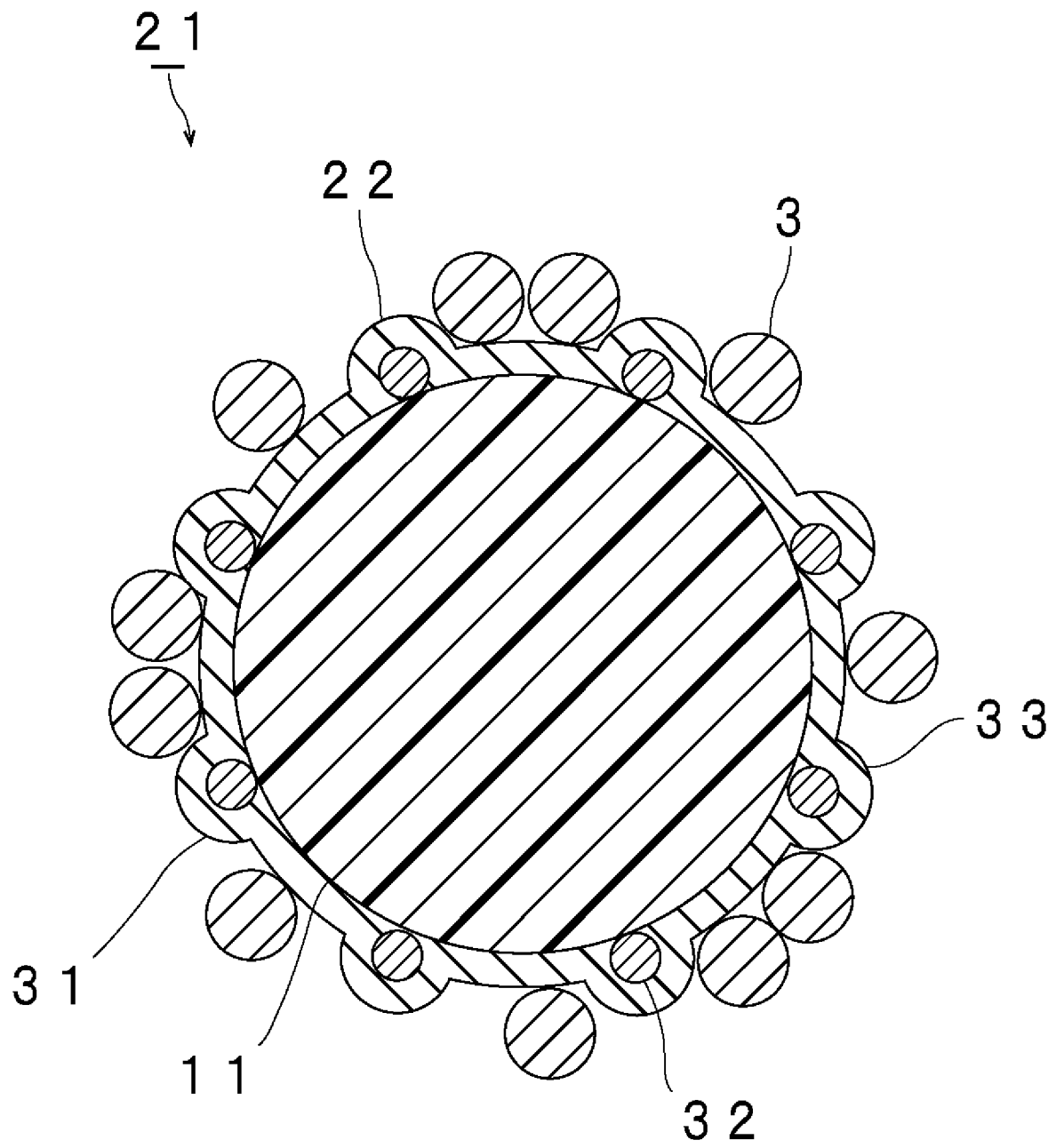
前記第 1 の電極と前記第 2 の電極とが、前記絶縁性粒子付き導電性粒子における前記導電部により電氣的に接続されている、接続構造体

。

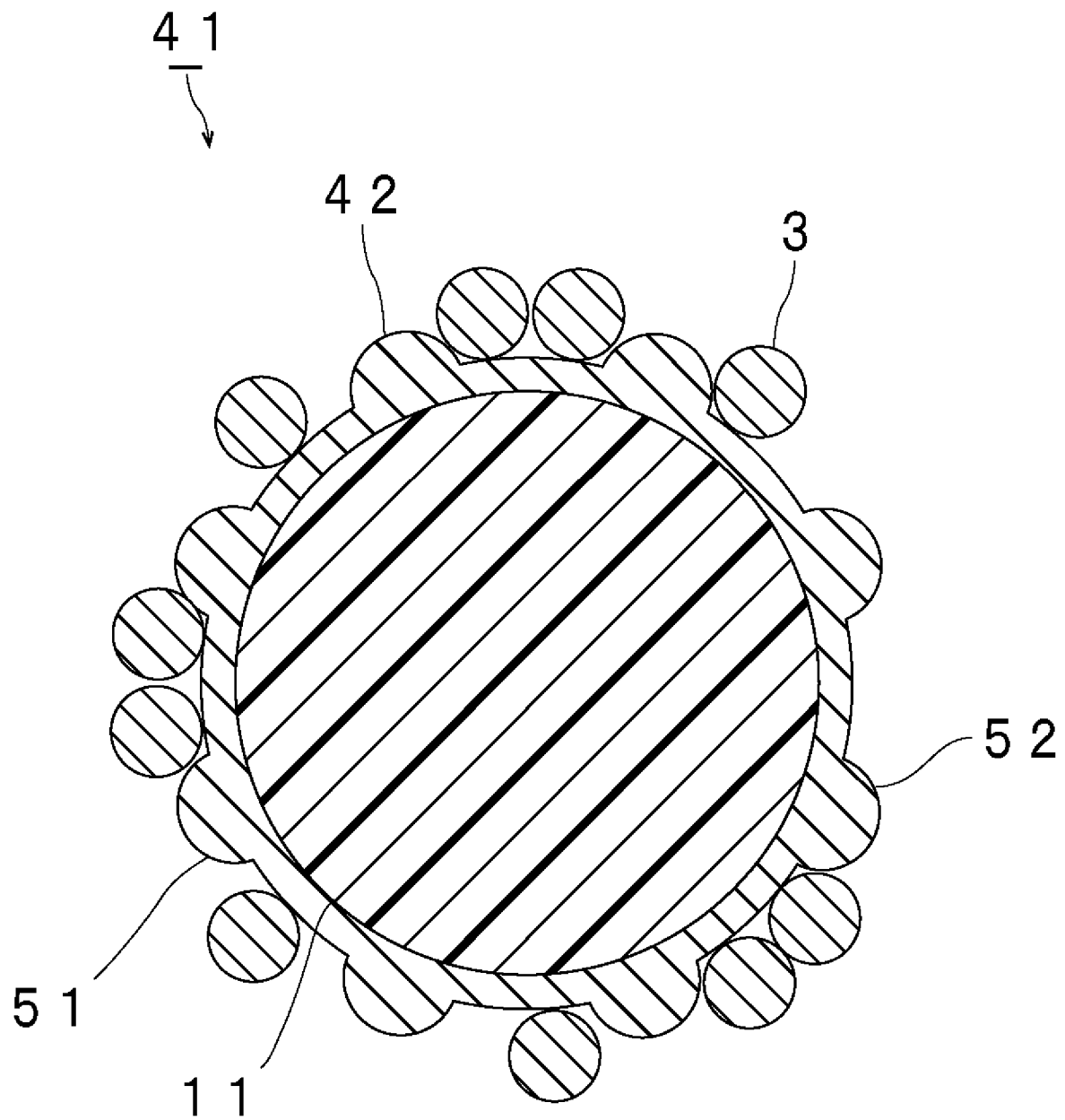
[図1]



[図2]

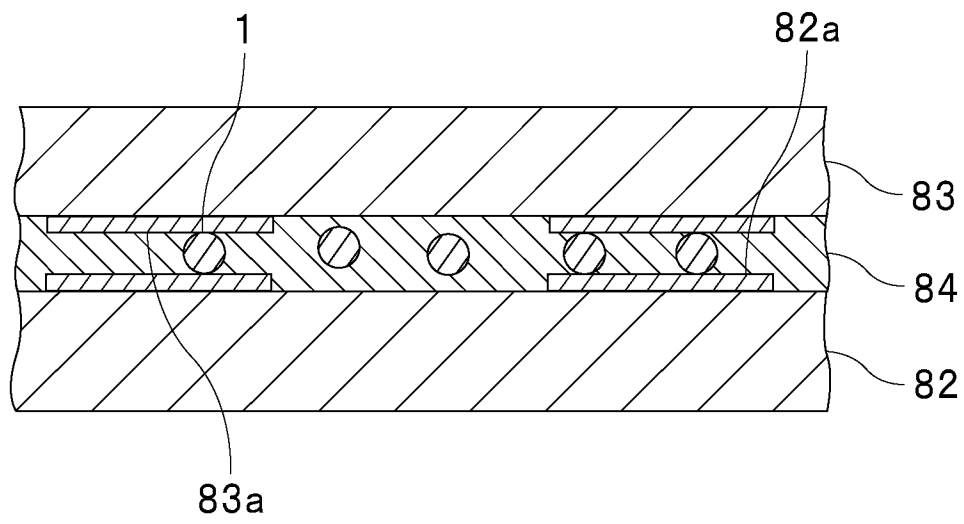


[図3]



[図4]

81



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/026895

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. H01B5/00 (2006.01) i, C09J9/02 (2006.01) i, C09J201/00 (2006.01) i,
H01B1/00 (2006.01) i, H01B1/22 (2006.01) i, H01B5/16 (2006.01) i,
H01R11/01 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. H01B5/00, C09J9/02, C09J201/00, H01B1/00, H01B1/22, H01B5/16,
H01R11/01

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2014-67702 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 17 April 2014, entire text, all drawings (Family: none)	1-8
A	JP 2013-30479 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 07 February 2013, entire text, all drawings (Family: none)	1-8

☐

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
04 September 2019 (04.09.2019)

Date of mailing of the international search report
17 September 2019 (17.09.2019)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01B5/00(2006.01)i, C09J9/02(2006.01)i, C09J201/00(2006.01)i, H01B1/00(2006.01)i, H01B1/22(2006.01)i, H01B5/16(2006.01)i, H01R11/01(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01B5/00, C09J9/02, C09J201/00, H01B1/00, H01B1/22, H01B5/16, H01R11/01

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	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2014-67702 A（積水化学工業株式会社）2014. 04. 17, 全文、全図（ファミリーなし）	1-8
A	JP 2013-30479 A（積水化学工業株式会社）2013. 02. 07, 全文、全図（ファミリーなし）	1-8

❏ 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

04. 09. 2019

国際調査報告の発送日

17. 09. 2019

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

北嶋 賢二

電話番号 03-3581-1101 内線 3526

5G

3792