

(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  
2023年8月3日(03.08.2023)



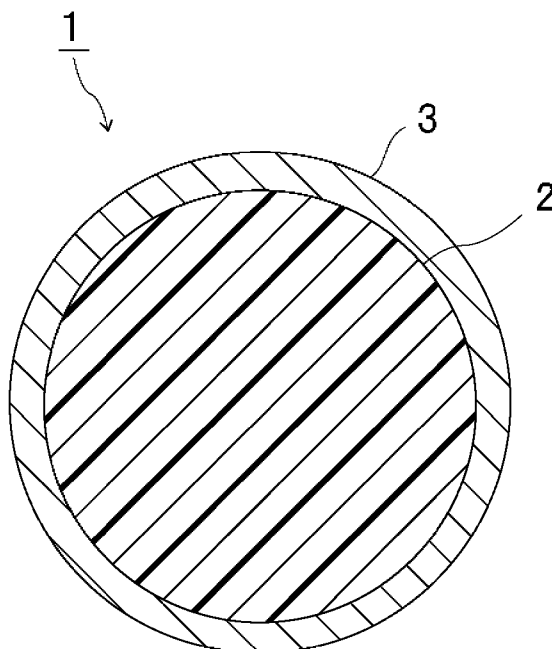
(10) 国際公開番号

**WO 2023/145664 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*H01B 5/00* (2006.01)      *H01B 1/22* (2006.01)  
*H01B 1/00* (2006.01)      *H01R 11/01* (2006.01)
- (21) 国際出願番号:                      PCT/JP2023/001815
- (22) 国際出願日:                      2023年1月23日(23.01.2023)
- (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 2022-011158    2022年1月27日(27.01.2022) 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: 白石 翔大 (SHIRAISHI, Shota); 〒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). 安倍大貴 (ABE, Hirotaka); 〒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). 栗浦 良 (KURIURA, Ryou); 〒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: 弁理士法人大阪フロント特許事務所 (OSAKA FRONT); 〒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).

(54) Title: CONDUCTIVE PARTICLES, CONDUCTIVE MATERIAL, AND CONNECTION STRUCTURE

(54) 発明の名称: 導電性粒子、導電材料及び接続構造体



(57) Abstract: Provided are conductive particles that can decrease connection resistance and increase conduction reliability when the conductive particles are used for electrical connection between electrodes. A conductive particle according to the present invention comprises a base material particle and a conductive part disposed on the surface of the base material particle. The compressive elasticity modulus value of the conductive particle at 10% compression is greater than or equal to the compressive elasticity modulus value of the conductive particle at 20% compression. The compressive elasticity



WO 2023/145664 A1

(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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, 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, ME, 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))

modulus value of the conductive particle at 20% compression is greater than or equal to the compressive elasticity modulus value of the conductive particle at 30% compression. The ratio of the absolute value of the difference between the compressive elasticity modulus value of the conductive particle at 10% compression and the compressive elasticity modulus value of the conductive particle at 20% compression to the compressive elasticity modulus value of the conductive particle at 20% compression is less than or equal to 0.20.

(57) 要約 : 導電性粒子を電極間の電気的な接続に用いたときに、接続抵抗を低くし、導通信頼性を高めることができる導電性粒子を提供する。本発明に係る導電性粒子は、基材粒子と、前記基材粒子の表面上に配置された導電部とを備え、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、0.20以下である。

## 明 細 書

**発明の名称**：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、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備える導電性粒子に関する。また、本発明は、上記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。上記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。

[0003] 上記異方性導電材料は、フレキシブルプリント基板（FPC）、ガラス基板及び半導体チップなどの様々な接続対象部材の電極間を電氣的に接続し、接続構造体を得るために用いられている。また、上記導電性粒子として、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する導電性粒子が用いられることがある。

[0004] 導電性粒子に用いられる基材粒子の一例として、下記の特許文献1には、破壊点荷重が9.8 mN（1.0 gf）以下である重合体微粒子が開示されている。特許文献1には、該重合体微粒子は、10%K値>30%K値>20%K値の関係を満足することが好ましい旨が記載されている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0005] 特許文献1：WO2012/020799A1

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0006] 電極間を導電性粒子により電氣的に接続する際には、電極間に導電性粒子を含む異方性導電材料を配置し、加熱及び加圧する。その際、導電性粒子は圧縮される。

[0007] 一般に、導電性粒子により接続される電極の表面や、導電性粒子の導電部の表面には、酸化被膜が形成されていることが多い。酸化被膜が形成されていると、電極と導電性粒子（導電部）とが十分に接触することができず、電極間の接続抵抗が高くなる原因となるため、酸化被膜は除去されることが望ましい。

[0008] しかしながら、特許文献1に記載のような従来の基材粒子を用いて導電性粒子を作製した場合、圧縮初期（例えば、導電性粒子を10%～20%圧縮したとき）の圧縮弾性率が比較的低いために、電極又は導電性粒子（導電部）の表面の酸化被膜を十分に排除することができないことがある。結果として、従来の基材粒子を用いた導電性粒子では、電極間の接続抵抗が高くなり、導通信頼性を高めることができないことがある。

[0009] すなわち、従来の導電性粒子では、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方を両立することが困難であるという問題がある。

[0010] 本発明の目的は、電極間の電氣的な接続に用いたときに、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方を両立することができる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

[0011] 本発明の広い局面によれば、基材粒子と、前記基材粒子の表面上に配置された導電部とを備え、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、0.20以下である、導電性粒子が提供される。

[0012] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、0.15以下である。

- [0013] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が $13000\text{ N/mm}^2$ 以上であり、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が $13000\text{ N/mm}^2$ 以上であり、30%圧縮したときの圧縮弾性率の値が $13000\text{ N/mm}^2$ 以上である。
- [0014] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が $15000\text{ N/mm}^2$ 以上であり、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が $15000\text{ N/mm}^2$ 以上である。
- [0015] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値よりも大きく、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値よりも大きい。
- [0016] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、前記基材粒子が、樹脂粒子又は有機無機ハイブリッド粒子である。
- [0017] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、前記基材粒子が、有機無機ハイブリッド粒子である。
- [0018] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、前記基材粒子の粒子径が、 $1.0\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。
- [0019] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、導電性粒子が、前記導電部の外表面上に配置された絶縁性物質を備える。
- [0020] 本発明に係る導電性粒子のある特定の局面では、導電性粒子が、前記導電部の外表面に突起を有する。
- [0021] 本発明の広い局面によれば、上述した導電性粒子と、バインダー樹脂とを含む、導電材料が提供される。
- [0022] 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、上述した導電性粒子を含み、前記第1の電極と前記第2の電極とが前記導電性粒子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

[0023] 本発明に係る導電性粒子は、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備える。本発明に係る導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上である。本発明に係る導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、0.20以下である。本発明に係る導電性粒子では、上記の構成が備えられているので、導電性粒子を電極間の電氣的な接続に用いたときに、接続抵抗を低くし、導通信頼性を高めることができる。

## 図面の簡単な説明

[0024] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係る導電性粒子を模式的に示す断面図である。

[図2]図2は、本発明の第2の実施形態に係る導電性粒子を模式的に示す断面図である。

[図3]図3は、本発明の第3の実施形態に係る導電性粒子を模式的に示す断面図である。

[図4]図4は、図1に示す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

[0025] 以下、本発明の詳細を説明する。

[0026] (導電性粒子)

本発明に係る導電性粒子は、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備える。本発明に係る導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率

の値以上である。本発明に係る導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、0.20以下である。

[0027] 10%圧縮したときの圧縮弾性率、20%圧縮したときの圧縮弾性率、30%圧縮したときの圧縮弾性率をそれぞれ、10%K値、20%K値及び30%K値とする。本発明に係る導電性粒子は、以下の関係を満足する。なお、「10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値」は、比(10%K値と20%K値との差の絶対値/20%K値)である。また、10%K値 $\geq$ 20%K値のとき、「10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値」は、「10%圧縮したときの圧縮弾性率の値から20%圧縮したときの圧縮弾性率の値を差し引いた値」である。

[0028] 10%K値 $\geq$ 20%K値  
20%K値 $\geq$ 30%K値  
(10%K値-20%K値)/20%K値 $\leq$ 0.20

[0029] また、別の表現をすると、本発明に係る導電性粒子は、以下の関係を満足する。

[0030] 10%K値 $\geq$ 20%K値 $\geq$ 30%K値  
(10%K値-20%K値)/20%K値 $\leq$ 0.20

[0031] 従来の導電性粒子では、電極又は導電性粒子(導電部)の表面の酸化被膜を十分に排除することができず、結果として電極間の接続抵抗が高くなり、導通信頼性を高めることができないという課題がある。

[0032] 本発明に係る導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、従来の導電性粒子に比べて小さい。すなわち、本発明に係る導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値が比較的小さいので、圧縮初期に電極又は導電性粒子(導電部)の表面の酸化被膜を十分に排除す

ることができる。結果として、導電性粒子を電極間の電氣的な接続に用いたときに、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方を両立することができる。

[0033] また、近年では、視認性が良好で薄型化することができ、直流低電圧下での駆動が可能な有機エレクトロルミネッセンス（有機EL）表示素子の需要が高まっている。有機EL表示素子では、チタン電極が用いられることが多い。従来の導電性粒子では、チタン電極の表面の酸化被膜を十分に排除することが困難であるところ、本発明に係る導電性粒子では、上記の構成が備えられているので、チタン電極を用いた場合にも、電極の表面の酸化被膜を十分に排除することができ、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方を両立することができる。

[0034] また、本発明に係る導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であるので、圧縮中期及び圧縮後期に電極と変形した導電性粒子との接触面積を大きくすることができる。結果として、導電性粒子を電極間の電氣的な接続に用いたときに、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方を両立することができる。

[0035] 上記導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値とが同一であってもよい。上記導電性粒子では、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値と、30%圧縮したときの圧縮弾性率の値とが同一であってもよい。上記導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値と、30%圧縮したときの圧縮弾性率の値とが同一であってもよい。本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値よりも大きいことが好ましい。本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したとき

の圧縮弾性率の値よりも大きいことが好ましい。本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値よりも大きく、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値よりも大きいことが好ましい。

[0036] 本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比は、好ましくは0.20未満、より好ましくは0.15以下、さらに好ましくは0.13以下である。本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、上記比（10%K値と20%K値との差の絶対値／20%K値）は、好ましくは0を超え、より好ましくは0.05以上、さらに好ましくは0.10以上である。

[0037] 上記導電性粒子を10%圧縮したときの圧縮弾性率の値（10%K値）は、好ましくは10000N/mm<sup>2</sup>以上、より好ましくは12000N/mm<sup>2</sup>以上、さらに好ましくは13000N/mm<sup>2</sup>以上、特に好ましくは15000N/mm<sup>2</sup>以上である。上記導電性粒子の10%K値が上記下限以上であると、圧縮初期に電極又は導電性粒子（導電部）の表面の酸化被膜をより一層効果的に排除し、接続抵抗をより一層低くすることができる。上記導電性粒子の10%K値は好ましくは50000N/mm<sup>2</sup>以下、より好ましくは40000N/mm<sup>2</sup>以下、さらに好ましくは30000N/mm<sup>2</sup>以下、特に好ましくは25000N/mm<sup>2</sup>以下である。上記導電性粒子の10%K値が上記上限以下であると、電極と変形した導電性粒子との接触面積を大きくして、接続抵抗をより一層低くすることができる。

[0038] 上記導電性粒子を20%圧縮したときの圧縮弾性率の値（20%K値）は、好ましくは10000N/mm<sup>2</sup>以上、より好ましくは12000N/mm<sup>2</sup>以上、さらに好ましくは13000N/mm<sup>2</sup>以上、特に好ましくは15000N/mm<sup>2</sup>以上である。上記導電性粒子の20%K値が上記下限以上であ

ると、圧縮初期に電極又は導電性粒子（導電部）の表面の酸化被膜をより一層効果的に排除し、接続抵抗をより一層低くすることができる。上記導電性粒子の20%K値は好ましくは40000N/mm<sup>2</sup>以下、より好ましくは30000N/mm<sup>2</sup>以下、さらに好ましくは25000N/mm<sup>2</sup>以下、特に好ましくは20000N/mm<sup>2</sup>以下である。上記導電性粒子の20%K値が上記上限以下であると、電極と変形した導電性粒子との接触面積を大きくして、接続抵抗をより一層低くすることができる。

[0039] 上記導電性粒子を30%圧縮したときの圧縮弾性率の値（30%K値）は、好ましくは8000N/mm<sup>2</sup>以上、より好ましくは10000N/mm<sup>2</sup>以上、さらに好ましくは12000N/mm<sup>2</sup>以上、特に好ましくは13000N/mm<sup>2</sup>以上である。上記導電性粒子の30%K値が上記下限以上であると、圧縮中期及び圧縮後期に電極に導電性粒子が押し込まれた凹部（圧痕）が形成され、電極間の導通信頼性をより一層高めることができる。上記導電性粒子の30%K値は好ましくは40000N/mm<sup>2</sup>以下、より好ましくは30000N/mm<sup>2</sup>以下、さらに好ましくは25000N/mm<sup>2</sup>以下、特に好ましくは20000N/mm<sup>2</sup>以下である。上記導電性粒子の30%K値が上記上限以下であると、圧縮中期及び圧縮後期に電極と変形した導電性粒子との接触面積を大きくし、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方をより一層効果的に両立することができる。

[0040] 本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値（10%K値）の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値（20%K値）に対する比は、好ましくは1.00以上、より好ましくは1.05以上、さらに好ましくは1.10以上である。本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記比（10%K値/20%K値）は、好ましくは1.20以下、より好ましくは1.20未満、さらに好ましくは1.15以下、特に好ましくは1.13以下である。

[0041] 本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値（10%K値）の、30%圧縮し

たときの圧縮弾性率の値（30％K値）に対する比は、好ましくは1.00以上、より好ましくは1.20以上、さらに好ましくは1.30以上である。本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記比（10％K値／30％K値）は、好ましくは1.80以下、より好ましくは1.70以下、さらに好ましくは1.60以下、特に好ましくは1.50以下である。

[0042] 本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記導電性粒子では、20％圧縮したときの圧縮弾性率の値（20％K値）の、30％圧縮したときの圧縮弾性率の値（30％K値）に対する比は、好ましくは1.00以上、より好ましくは1.05以上、さらに好ましくは1.10以上である。本発明の効果をより一層効果的に発揮する観点からは、上記比（20％K値／30％K値）は、好ましくは1.60以下、より好ましくは1.50以下、さらに好ましくは1.40以下、特に好ましくは1.30以下である。

[0043] 上記導電性粒子の10％K値、20％K値、及び30％K値は、以下のようにして測定できる。

[0044] 微小圧縮試験機を用いて、円柱（直径50μm、ダイヤモンド製）の平滑圧子端面で、25℃、最大試験荷重90mNを30秒かけて負荷する条件下で導電性粒子を圧縮する。このときの荷重値（N）及び圧縮変位（mm）を測定する。得られた測定値から、上記圧縮弾性率を下記式により求めることができる。上記微小圧縮試験機として、例えば、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」等が用いられる。

[0045] 
$$K \text{ 値 (N/mm}^2) = (3/2^{1/2}) \cdot F \cdot S^{-3/2} \cdot R^{-1/2}$$

F：導電性粒子が10％、20％、又は30％圧縮変形したときの荷重値（N）

S：導電性粒子が10％、20％、又は30％圧縮変形したときの圧縮変位（mm）

R：導電性粒子の半径（mm）

[0046] 上記10％K値、上記20％K値、上記30％K値、及び上記比（10％K値と20％K値との差の絶対値／20％K値）を好ましい範囲に制御する

方法としては、以下の方法等が挙げられる。基材粒子のモノマー種、モノマー分子量、モノマー配合量、架橋材、重合温度、重合時間、焼成酸素濃度、及び焼成温度等を調整して物性を調整する方法。導電部の金属種、合金種、及び導電部の厚み等を調整して硬さを調整する方法。

[0047] 本発明の効果をより一層良好にする観点からは、上記導電性粒子の圧縮回復率は、好ましくは50%以上、より好ましくは60%以上、さらに好ましくは65%以上であり、好ましくは95%以下、より好ましくは90%以下、さらに好ましくは85%以下である。

[0048] 上記圧縮回復率は、以下のようにして測定できる。

[0049] 試料台上に導電性粒子を散布する。散布された導電性粒子1個について、微小圧縮試験機を用いて、円柱（直径100 $\mu$ m、ダイヤモンド製）の平滑圧子端面で、25 $^{\circ}$ Cで、導電性粒子の中心方向に、導電性粒子が30%圧縮変形するまで負荷（反転荷重値）を与える。その後、原点用荷重値（0.40mN）まで除荷を行う。この間の荷重－圧縮変位を測定し、下記式から圧縮回復率を求めることができる。なお、負荷速度は0.33mN/秒とする。上記微小圧縮試験機として、例えば、フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」等が用いられる。

[0050] 圧縮回復率 (%) =  $[L2 / L1] \times 100$

L1：負荷を与えるときの原点用荷重値から反転荷重値に至るまでの圧縮変位

L2：負荷を解放するときの反転荷重値から原点用荷重値に至るまでの除荷変位

[0051] 上記導電性粒子の粒子径は、好ましくは0.5 $\mu$ m以上、より好ましくは1.0 $\mu$ m以上であり、好ましくは500 $\mu$ m以下、より好ましくは300 $\mu$ m以下、さらに好ましくは100 $\mu$ m以下、特に好ましくは30 $\mu$ m以下である。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、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

されにくくなる。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。また、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、導電性粒子を導電材料の用途に好適に使用可能である。

[0052] 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。電子顕微鏡又は光学顕微鏡での観察では、1個当たりの導電性粒子の粒子径は、円相当径での粒子径として求められる。電子顕微鏡又は光学顕微鏡での観察において、任意の50個の導電性粒子の円相当径での平均粒子径は、球相当径での平均粒子径とほぼ等しくなる。レーザー回折式粒度分布測定では、1個当たりの導電性粒子の粒子径は、球相当径での粒子径として求められる。上記導電性粒子の粒子径は、レーザー回折式粒度分布測定により算出することが好ましい。

[0053] 以下、図面を参照しつつ、本発明を具体的に説明する。

[0054] 図1は、本発明の第1の実施形態に係る導電性粒子を示す断面図である。

[0055] 図1に示す導電性粒子1は、基材粒子2と、導電部3とを有する。導電部3は、基材粒子2の表面上に配置されている。第1の実施形態では、導電部3は、基材粒子2の表面に接している。導電性粒子1は、基材粒子2の表面が導電部3により被覆された被覆粒子である。導電性粒子1では、導電部3は、単層の導電部（導電層）である。

[0056] 導電性粒子1は、後述する導電性粒子11, 21とは異なり、芯物質を有さない。導電性粒子1は、表面に突起を有さず、導電部3の外表面に突起を有さない。導電性粒子1は球状である。

[0057] このように、本発明に係る導電性粒子は、表面に突起を有していなくてもよく、導電部の外表面に突起を有していなくてもよく、球状であってもよい。また、導電性粒子1は、後述する導電性粒子11, 21とは異なり、絶縁

性物質を有さない。但し、導電性粒子 1 は、導電部 3 の外表面上に配置された絶縁性物質を有していてもよい。

[0058] 図 2 は、本発明の第 2 の実施形態に係る導電性粒子を示す断面図である。

[0059] 図 2 に示す導電性粒子 1 1 は、基材粒子 2 と、導電部 1 2 と、複数の芯物質 1 3 と、複数の絶縁性物質 1 4 とを有する。導電部 1 2 は、基材粒子 2 の表面上に基材粒子 2 に接するように配置されている。導電性粒子 1 1 では、導電部 1 2 は、単層の導電部（導電層）である。

[0060] 導電性粒子 1 1 は、表面に、複数の突起 1 1 a を有する。導電部 1 2 は外表面上に、複数の突起 1 2 a を有する。複数の芯物質 1 3 が、基材粒子 2 の表面上に配置されている。複数の芯物質 1 3 は導電部 1 2 内に埋め込まれている。芯物質 1 3 は、突起 1 1 a, 1 2 a の内側に配置されている。導電部 1 2 は、複数の芯物質 1 3 を被覆している。複数の芯物質 1 3 により導電部 1 2 の外表面が隆起されており、突起 1 1 a, 1 2 a が形成されている。

[0061] 導電性粒子 1 1 は、導電部 1 2 の外表面上に配置された絶縁性物質 1 4 を有する。導電部 1 2 の外表面の少なくとも一部の領域が、絶縁性物質 1 4 により被覆されている。絶縁性物質 1 4 は絶縁性を有する材料により形成されている、絶縁性粒子である。このように、本発明に係る導電性粒子は、導電部の外表面上に配置された絶縁性物質を有していてもよい。但し、本発明に係る導電性粒子は、絶縁性物質を必ずしも有していなくてもよい。

[0062] 図 3 は、本発明の第 3 の実施形態に係る導電性粒子を示す断面図である。

[0063] 図 3 に示す導電性粒子 2 1 は、基材粒子 2 と、導電部 2 2 と、複数の芯物質 1 3 と、複数の絶縁性物質 1 4 とを有する。導電部 2 2 は全体で、基材粒子 2 側に第 1 の導電部 2 2 A と、基材粒子 2 側とは反対側に第 2 の導電部 2 2 B とを有する。

[0064] 導電性粒子 1 1 と導電性粒子 2 1 とでは、導電部の構成のみが異なっている。すなわち、導電性粒子 1 1 では、1 層構造の導電部 1 2 が形成されているのに対し、導電性粒子 2 1 では、2 層構造の第 1 の導電部 2 2 A 及び第 2 の導電部 2 2 B が形成されている。第 1 の導電部 2 2 A と第 2 の導電部 2 2

Bとは別の導電部として形成されている。

[0065] 第1の導電部22Aは、基材粒子2の表面上に配置されている。基材粒子2と第2の導電部22Bとの間に、第1の導電部22Aが配置されている。第1の導電部22Aは、基材粒子2に接している。従って、基材粒子2の表面上に第1の導電部22Aが配置されており、第1の導電部22Aの表面上に第2の導電部22Bが配置されている。導電性粒子21は、表面に、複数の突起21aを有する。導電部22は外表面に、複数の突起22aを有する。第1の導電部22Aは外表面に、突起22Aaを有する。第2の導電部22Bは外表面に、複数の突起22Baを有する。導電性粒子21では、導電部22は、2層の導電部（導電層）である。

[0066] 以下、導電性粒子の他の詳細について説明する。なお、以下の説明において、「(メタ)アクリル」は「アクリル」と「メタクリル」との一方又は双方を意味し、「(メタ)アクリレート」は「アクリレート」と「メタクリレート」との一方又は双方を意味する。

[0067] [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、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い。上記シェルが無機シェルであってもよい。本発明の効果により一層優れることから、上記基材粒子は、樹脂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く、有機無機ハイブリッド粒子であることがより好ましい。

[0068] 上記基材粒子は、樹脂により形成された樹脂粒子であることが好ましい。上記導電性粒子を用いて電極間を接続する際には、上記導電性粒子を電極間に配置した後、圧着することにより上記導電性粒子を圧縮させる。上記基材粒子が樹脂粒子であると、上記圧着の際に上記導電性粒子が変形しやすく、導電性粒子と電極との接触面積が大きくなる。このため、電極間の導通信頼性がより一層高くなる。

[0069] 上記樹脂粒子の材料である樹脂として、種々の有機物が好適に用いられる。上記樹脂粒子の材料である樹脂としては、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；ポリアルキレンテレフタレート、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、及び、エチレン性不飽和基を有する種々の重合性単量体を1種もしくは2種以上重合させて得られる重合体等が挙げられる。基材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複数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。

[0070] 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、上記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。

[0071] 上記非架橋性の単量体としては、例えば、スチレン、 $\alpha$ -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；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。

[0072] 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、 $\gamma$ - (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。

[0073] 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。

[0074] 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、基材粒子の材料である無機物としては、シリカ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。

[0075] 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。但し、上記基材粒子は金属粒子ではないことが好ましく、銅粒子ではないことが好ましい。

[0076] 上記基材粒子を10%圧縮したときの圧縮弾性率の値(10%K値)は、好ましくは9500N/mm<sup>2</sup>以上、より好ましくは10500N/mm<sup>2</sup>以上、さらに好ましくは13500N/mm<sup>2</sup>以上、特に好ましくは16500N/mm<sup>2</sup>以上である。上記基材粒子の10%K値が上記下限以上であると、圧縮初期に電極又は導電性粒子(導電部)の表面の酸化被膜をより一層効果的に排除し、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10%K値は好ましくは31500N/mm<sup>2</sup>以下、より好ましくは30500N/mm<sup>2</sup>以下、さらに好ましくは27500N/mm<sup>2</sup>以下、特に好ましくは24500N/mm<sup>2</sup>以下である。上記基材粒子の10%K値が上記上限以下であると、電極と変形した導電性粒子との接触面積を大きくして、接続抵抗をより一層低くすることができる。

[0077] 上記基材粒子を20%圧縮したときの圧縮弾性率の値(20%K値)は、好ましくは9000N/mm<sup>2</sup>以上、より好ましくは10000N/mm<sup>2</sup>以上、さらに好ましくは13000N/mm<sup>2</sup>以上、特に好ましくは16000N/mm<sup>2</sup>以上である。上記基材粒子の20%K値が上記下限以上であると、圧縮初期に電極又は導電性粒子(導電部)の表面の酸化被膜をより一層効果的に排除し、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20%K値は好ましくは31000N/mm<sup>2</sup>以下、より好ましくは30000N/mm<sup>2</sup>以下、さらに好ましくは27000N/mm<sup>2</sup>以下、特に好ましく

は  $24000\text{ N/mm}^2$  以下である。上記基材粒子の  $20\%$ K 値が上記上限以下であると、電極と変形した導電性粒子との接触面積を大きくして、接続抵抗をより一層低くすることができる。

[0078] 上記基材粒子を  $30\%$  圧縮したときの圧縮弾性率の値 ( $30\%$ K 値) は、好ましくは  $8000\text{ N/mm}^2$  以上、より好ましくは  $9000\text{ N/mm}^2$  以上、さらに好ましくは  $12000\text{ N/mm}^2$  以上、特に好ましくは  $15000\text{ N/mm}^2$  以上である。上記基材粒子の  $30\%$ K 値が上記下限以上であると、圧縮中期及び圧縮後期に電極に導電性粒子が押し込まれた凹部 (圧痕) が形成され、電極間の導通信頼性をより一層高めることができる。上記基材粒子の  $30\%$ K 値は好ましくは  $30000\text{ N/mm}^2$  以下、より好ましくは  $29000\text{ N/mm}^2$  以下、さらに好ましくは  $27000\text{ N/mm}^2$  以下、特に好ましくは  $24000\text{ N/mm}^2$  以下である。上記基材粒子の  $30\%$ K 値が上記上限以下であると、圧縮中期及び圧縮後期に電極と変形した導電性粒子との接触面積を大きくし、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方をより一層効果的に両立することができる。

[0079] 上記基材粒子の粒子径は、好ましくは  $0.1\ \mu\text{m}$  以上、より好ましくは  $1.0\ \mu\text{m}$  以上、さらに好ましくは  $1.5\ \mu\text{m}$  以上、特に好ましくは  $2.0\ \mu\text{m}$  以上である。上記基材粒子の粒子径は、好ましくは  $500\ \mu\text{m}$  以下、より好ましくは  $300\ \mu\text{m}$  以下、さらに好ましくは  $50\ \mu\text{m}$  以下、さらに一層好ましくは  $30\ \mu\text{m}$  以下、特に好ましくは  $10\ \mu\text{m}$  以下、最も好ましくは  $5.0\ \mu\text{m}$  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がより一層高くなり、導電性粒子を介して接続された電極間の接続抵抗がより一層低くなる。さらに基材粒子の表面に導電部を無電解めっきにより形成する際に、凝集した導電性粒子が形成されにくくなる。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、電極間の接続抵抗がより一層低くなり、さらに電極間の間隔が小さくなる。

[0080] 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、平均値を算出することにより求めることが好ましい。電子顕微鏡又は光学顕微鏡での観察では、1個当たりの基材粒子の粒子径は、円相当径での粒子径として求められる。電子顕微鏡又は光学顕微鏡での観察において、任意の50個の基材粒子の円相当径での平均粒子径は、球相当径での平均粒子径とほぼ等しくなる。粒度分布測定装置では、1個当たりの基材粒子の粒子径は、球相当径での粒子径として求められる。上記基材粒子の粒子径は、粒度分布測定装置により算出することが好ましい。導電性粒子において、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。

[0081] 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体を作製する。上記埋め込み樹脂体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粒子径を計測し、それらを算術平均して基材粒子の粒子径とする。

[0082] [導電部]

上記導電部を形成するための金属は、特に限定されない。上記金属としては、例えば、金、銀、パラジウム、銅、白金、亜鉛、鉄、錫、鉛、ルテニウム、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、タリウム、ゲルマニウム、カドミウム、ケイ素及びこれらの合金等が挙げられる。また、上記金属としては、錫ドープ酸化インジウム（ITO）及びはんだ等が挙げられる。電極間の接続抵抗をより一層低くすることができるので、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好ましい。

[0083] 導電性粒子 1, 11 のように、上記導電部は、1つの層により形成されていてもよい。導電性粒子 21 のように、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、最外層は、金層、ニッケル層、パラジウム層、ルテニウム層、銅層又は錫と銀とを含む合金層であることが好ましく、金層、パラジウム層又はルテニウム層であることがより好ましい。最外層がこれらの好ましい導電層である場合には、電極間の接続抵抗がより一層低くなる。また、最外層が貴金属層である場合には、耐腐食性がより一層高くなる。

[0084] 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。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、物理的蒸着による方法、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。導電部の形成が簡便であるので、無電解めっきによる方法が好ましい。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。

[0085] 上記導電部の厚み（導電部全体の厚み）は、好ましくは10nm以上、より好ましくは100nm以上、さらに好ましくは120nm以上であり、好ましくは1000nm以下、より好ましくは500nm以下、さらに好ましくは300nm以下、特に好ましくは250nm以下、最も好ましくは200nm以下である。上記導電部の厚みは、導電部が多層である場合には導電層全体の厚みである。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が十分に変形する。

[0086] 上記導電部が複数の層により形成されている場合に、最外層の導電層の厚みは、好ましくは1nm以上、より好ましくは10nm以上であり、好ましくは500nm以下、より好ましくは200nm以下である。上記最外層の導電層の厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、最外層の導電層に

よる被覆が均一になり、耐腐食性が十分に高くなり、かつ電極間の接続抵抗がより一層低くなる。また、上記最外層が金層である場合に、金層の厚みが薄いほど、コストが低くなる。

[0087] 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。

[0088] 導電性を効果的に高める観点からは、上記導電性粒子は、ニッケルを含む導電部を有することが好ましい。ニッケルを含む導電部100重量%中、ニッケルの含有量は好ましくは50重量%以上、より好ましくは65重量%以上、より一層好ましくは70重量%以上、さらに好ましくは75重量%以上、さらに一層好ましくは80重量%以上、特に好ましくは85重量%以上、最も好ましくは90重量%以上である。上記ニッケルを含む導電部100重量%中、ニッケルの含有量は好ましくは100重量%（全量）以下であり、99重量%以下であってもよく、95重量%以下であってもよい。ニッケルの含有量が上記下限以上であると、電極間の接続抵抗がより一層低くなる。また、電極や導電部の表面における酸化被膜が少ない場合には、ニッケルの含有量が多いほど電極間の接続抵抗が低くなる傾向がある。

[0089] 上記導電部に含まれる金属の含有量の測定方法は、既知の種々の分析法を用いることができ、特に限定されない。この測定方法として、吸光分析法又はスペクトル分析法等が挙げられる。上記吸光分析法では、フレイム吸光光度計及び電気加熱炉吸光光度計等を用いることができる。上記スペクトル分析法としては、プラズマ発光分析法及びプラズマイオン源質量分析法等が挙げられる。

[0090] 上記導電部に含まれる金属の平均含有量を測定する際には、ICP発光分析装置を用いることが好ましい。ICP発光分析装置の市販品としては、HORIBA社製のICP発光分析装置等が挙げられる。

[0091] 上記導電部は、ニッケルに加えて、リン又はボロンを含んでいてもよい。また、上記導電部は、ニッケル以外の金属を含んでいてもよい。上記導電部において、複数の金属が含まれる場合に、複数の金属は合金化していてもよ

い。

[0092] ニッケルとリン又はボロンとを含む導電部100重量%中、リン又はボロン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。リン又はボロンの含有量が上記下限及び上記上限以下であると、導電部の接続抵抗がより一層低くなり、上記導電部が接続抵抗の低減に寄与する。

[0093] [芯物質]

接続抵抗をより一層低くし、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。さらに、上記導電性粒子は、上記導電部内において、複数の上記突起を形成するように、上記導電部の外表面を隆起させている複数の芯物質を備えることが好ましい。

[0094] 上記芯物質が上記導電部中に埋め込まれていることによって、上記導電部が外表面に複数の突起を有するようにすることが容易である。但し、導電性粒子の表面及び導電部の表面に突起を形成するために、芯物質を必ずしも用いなくてもよい。

[0095] 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、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、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する途中段階で芯物質を添加する方法等が挙げられる。

[0096] 上記芯物質の材料としては、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、炭化タングステン、酸化チタン、チタン酸バリウム及びジルコニア等が挙げられる。上記芯物質の材料である金属としては、上記導電材料の材料として挙げた金属を適宜使用可能である。

- [0097] 上記芯物質の材料の具体例としては、チタン酸バリウム（モース硬度4.5）、ニッケル（モース硬度5）、シリカ（二酸化珪素、モース硬度6～7）、酸化チタン（モース硬度7）、ジルコニア（モース硬度8～9）、アルミナ（モース硬度9）、炭化タングステン（モース硬度9）及びダイヤモンド（モース硬度10）等が挙げられる。上記無機粒子は、ニッケル、シリカ、酸化チタン、ジルコニア、アルミナ、炭化タングステン又はダイヤモンドであることが好ましく、シリカ、酸化チタン、ジルコニア、アルミナ、炭化タングステン又はダイヤモンドであることがより好ましい。また、上記無機粒子は、酸化チタン、ジルコニア、アルミナ、炭化タングステン又はダイヤモンドであることがさらに好ましく、ジルコニア、アルミナ、炭化タングステン又はダイヤモンドであることが特に好ましい。上記芯物質の材料のモース硬度は、好ましくは4以上、より好ましくは6以上、さらに好ましくは7以上、特に好ましくは7.5以上である。上記芯物質の材料のモース硬度が上記下限以上であると、上記10%K値、上記20%K値、上記30%K値、及び上記比（10%K値と20%K値との差の絶対値／20%K値）を好適な範囲に容易に制御することができる。
- [0098] 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。
- [0099] 上記芯物質の平均粒子径は、好ましくは0.001 $\mu$ m以上、より好ましくは0.05 $\mu$ m以上であり、好ましくは0.9 $\mu$ m以下、より好ましくは0.2 $\mu$ m以下である。上記芯物質の平均粒子径が上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間の接続抵抗が効果的に低くなる。
- [0100] 上記芯物質の平均粒子径は、数平均粒子径であることが好ましい。上記芯物質の平均粒子径は、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、平均値を算出することにより求められる。
- [0101] 上記導電性粒子1個当たりの上記の突起の数は、好ましくは3個以上、より好ましくは5個以上である。上記突起の数の上限は特に限定されない。上

記突起の数の上限は導電性粒子の粒子径等を考慮して適宜選択できる。

[0102] 接続抵抗をより一層低くし、導通信頼性をより一層高める観点からは、上記導電性粒子の全表面積100%中、上記突起がある部分の表面積は好ましくは10%以上、より好ましくは30%以上であり、好ましくは95%以下、より好ましくは90%以下である。

[0103] 複数の上記突起の平均高さは、好ましくは0.001 $\mu$ m以上、より好ましくは0.05 $\mu$ m以上であり、好ましくは0.9 $\mu$ m以下、より好ましくは0.5 $\mu$ m以下である。上記突起の平均高さが上記下限以上及び上記上限以下であると、電極間の接続抵抗が効果的に低くなる。

[0104] [絶縁性物質]

上記導電性粒子は、上記導電部の表面上に配置された絶縁性物質を備えることが好ましい。この場合には、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より一層防止できる。具体的には、複数の導電性粒子が接触したときに、複数の電極間に絶縁性物質が存在するので、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物質を容易に排除できる。上記導電性粒子が導電部の外表面に複数の突起を有する場合には、導電性粒子の導電部と電極との間の絶縁性物質をより一層容易に排除できる。

[0105] 電極間の圧着時に上記絶縁性物質をより一層容易に排除できることから、上記絶縁性物質は、絶縁性粒子であることが好ましい。

[0106] 上記絶縁性物質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。

[0107] 上記絶縁性物質の粒子径は、導電性粒子の粒子径及び導電性粒子の用途等によって適宜選択できる。また絶縁性能を向上させる観点から、粒子径が異なる絶縁性物質を混合して使用してもよい。上記絶縁性物質の粒子径は好ま

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1  $\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは0.5  $\mu\text{m}$ 以下である。上記絶縁性物質の粒子径が上記下限以上であると、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以下であると、電極間の接続の際に、電極と導電性粒子との間の絶縁性物質を排除するために、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。

[0108] (導電材料)

本発明に係る導電材料は、上述した導電性粒子と、バインダー樹脂とを含む。上記導電性粒子は、バインダー樹脂中に分散され、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。上記導電性粒子及び上記導電材料はそれぞれ、電極間の電氣的な接続に用いられることが好ましい。上記導電性粒子及び上記導電材料はそれぞれ、有機EL表示素子の電極間の電氣的な接続に好適に用いられる。上記導電材料は、回路接続材料であることが好ましい。

[0109] 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。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。

[0110] 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-ブタジエン-スチレンブロック共重合体、スチレン-イソプレネ-スチレンブロック共重合体、スチレン-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-イソプレネ-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-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。

[0111] 上記導電材料及び上記バインダー樹脂は、熱可塑性成分又は熱硬化性成分を含むことが好ましい。上記導電材料及び上記バインダー樹脂は、熱可塑性成分を含んでいてもよく、熱硬化性成分を含んでいてもよい。上記導電材料及び上記バインダー樹脂は、熱硬化性成分を含むことが好ましい。上記熱硬化性成分は、加熱により硬化可能な硬化性化合物と熱硬化剤とを含むことが好ましい。上記熱硬化剤は、熱カチオン硬化開始剤であることが好ましい。上記加熱により硬化可能な硬化性化合物と上記熱硬化剤とは、上記バインダー樹脂が硬化するように適宜の配合比で用いられる。上記バインダー樹脂が熱カチオン硬化開始剤を含むと、硬化物中に酸が含まれやすい。しかし、本発明に係る導電性粒子の使用により、電極間の接続抵抗を低く維持することができる。

[0112] 上記導電材料は、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。

[0113] 上記導電材料は、導電ペースト及び導電フィルム等として使用され得る。上記導電材料が、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。

[0114] 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導通信頼性がより一層高くなる。

[0115] 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がより一層高くなる。

[0116] (接続構造体)

上記導電性粒子を用いて、又は上記導電性粒子とバインダー樹脂とを含む導電材料を用いて、接続対象部材を接続することにより、接続構造体を得ることができる。

[0117] 上記接続構造体は、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、第1、第2の接続対象部材を接続している接続部とを備え、上記接続部の材料が、上述した導電性粒子を含む。上記接続構造体では、上記第1の電極と上記第2の電極とが上記導電性粒子により接続される。

[0118] 図4は、本発明の第1の実施形態に係る導電性粒子を用いた接続構造体を模式的に示す正面断面図である。

[0119] 図4に示す接続構造体51は、第1の接続対象部材52と、第2の接続対象部材53と、第1、第2の接続対象部材52、53を接続している接続部54とを備える。接続部54は、導電性粒子1を含む導電材料を硬化させることにより形成されている。なお、図4では、導電性粒子1は、図示の便宜

上、略図的に示されている。導電性粒子1にかえて、導電性粒子11, 21等を用いてもよい。

[0120] 第1の接続対象部材52は表面(上面)に、複数の第1の電極52aを有する。第2の接続対象部材53は表面(下面)に、複数の第2の電極53aを有する。第1の電極52aと第2の電極53aとが、1つ又は複数の導電性粒子1により電氣的に接続されている。従って、第1, 第2の接続対象部材52, 53が導電性粒子1により電氣的に接続されている。

[0121] 上記接続構造体の製造方法は特に限定されない。上記接続構造体の製造方法の一例としては、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。上記加圧の圧力は、電極の接続部分の総面積当たり $1.0 \times 10^6 \text{ Pa} \sim 4.9 \times 10^8 \text{ Pa}$ 程度である。上記加熱の温度は、 $120^\circ\text{C} \sim 220^\circ\text{C}$ 程度である。

[0122] なお、電極の接続部分の総面積とは、導電性粒子に接する部分の面積に限られず、平面視において(第1の接続対象部材と接続部と第2の接続対象部材との積層方向にみたときに)、2つの電極の対向し合う部分の総面積を意味する。

[0123] 上記接続対象部材としては、具体的には、半導体チップ、コンデンサ及びダイオード等の電子部品、並びにプリント基板、フレキシブルプリント基板、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。上記接続対象部材は電子部品であることが好ましい。上記導電性粒子は、電子部品における電極の電氣的な接続に用いられることが好ましい。

[0124] 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は、フレキシブルプリント基板であることが好ましい。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は、半導体チップであることが好ましい。上記第1の接続対象部材及び上記第2の接続対象部材は、フレキシブルプリント基板及び半導体チップであることが好ましい。フレキシブルプリント基板の材料は、ポリイミド又はポリエステルであるこ

とが好ましく、ポリエステルの場合はポリエチレンテレフタレート（PET）であることが好ましい。上記導電性粒子及び上記導電材料は、フレキシブルプリント基板の導通に好適に用いられる。

[0125] 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、銀電極、チタン電極、モリブデン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、チタン電極、錫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、チタン電極、銅電極、モリブデン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パされた酸化インジウム及び3価の金属元素がドーパされた酸化亜鉛等が挙げられる。上記3価の金属元素としては、Sn、Al及びGa等が挙げられる。特に、本発明に係る導電性粒子では、チタン電極を用いた場合にも、電極の表面の酸化被膜を十分に排除することができ、低い接続抵抗と、高い導通信頼性との双方を両立することができる。本発明に係る導電性粒子は、チタン電極の導電接続用導電性粒子であることが好ましい。本発明に係る導電性粒子は、チタン電極とチタン電極との導電接続に用いられてもよく、チタン電極とチタン電極以外の電極との導電接続に用いられてもよい。チタン電極は、チタンを含む電極である。

[0126] 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。

[0127] 以下の材料を用意した。

[0128] （基材粒子）

基材粒子A：樹脂粒子（ジビニルベンゼン共重合体樹脂粒子、積水化学工業社製「ミクロパールSP-203」、平均粒子径 $3.0\mu\text{m}$ ）

基材粒子B：有機無機ハイブリッド粒子（下記の合成例1に従って作製、平均粒子径3.0  $\mu\text{m}$ ）

基材粒子C：有機無機ハイブリッド粒子（基材粒子Bと粒子径のみ異なる、平均粒子径2.5  $\mu\text{m}$ ）

基材粒子D：有機無機ハイブリッド粒子（基材粒子Bと粒子径のみ異なる、平均粒子径10  $\mu\text{m}$ ）

[0129] （合成例1）

1000 mLビーカーにアンモニア水溶液（0.13重量%）を600 g入れた。次に、ビニルトリメトキシシラン38.4 g、メチルトリメトキシシラン8.2 g、シリコーンアルコキシオリゴマー（信越化学工業社製「X-41-1053」）1.4 gを静かに添加して、攪拌した。反応溶液が白濁化した後、25重量%アンモニア水溶液4.8 mLを添加した後、ろ過して粉体を分離した。回収した粉体を酸素濃度0 ppm以上500 ppm以下、600°Cの条件で焼成して、基材粒子Bを得た。

[0130] （実施例1）

基材粒子Bを蒸留水500重量部に加え、分散させることにより、分散液を得た。また、硫酸ニッケル0.35 mol/L、ジメチルアミンボラン1.38 mol/L及びクエン酸ナトリウム0.5 mol/Lを含むニッケルめっき液（pH8.5）を用意した。得られた懸濁液を60°C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Bの表面にニッケル-ボロン導電層（厚み142 nm）を配置して、表面が導電層である導電性粒子を得た。

[0131] （実施例2）

ニッケルめっき液を、硫酸ニッケル200 g/L、次亜リン酸ナトリウム85 g/L、クエン酸ナトリウム30 g/L、硝酸タリウム50 ppm、及び硝酸ビスマス20 ppmを含む混合液を、pH6.5に調整したニッケル-リン合金めっき液に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外

は、実施例 1 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0132] (実施例 3)

ニッケルめっき液を、硫酸ニッケル 200 g/L、ヒドラジン水和物 50 g/L、クエン酸ナトリウム 30 g/L、硝酸タリウム 50 ppm、及び硝酸ビスマス 20 ppm を含む混合液を、pH 6.5 に調整した純ニッケルめっき液に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0133] (実施例 4)

基材粒子 B 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 B の表面を活性化させた。表面が活性化された基材粒子 B 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 150 nm）1 g 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 B を含む懸濁液を得た。また、硫酸ニッケル 0.35 mol/L、ジメチルアミンボラン 1.38 mol/L 及びクエン酸ナトリウム 0.5 mol/L を含むニッケルめっき液（pH 8.5）を用意した。得られた懸濁液を 60℃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 B の表面にニッケル-ボロン導電層（厚み 158 nm）を配置して、表面が導電層である導電性粒子を得た。導電部の外表面の全表面積 100%中、突起がある部分の表面積は 70%であった。

[0134] (実施例 5)

ニッケル粒子スラリーをアルミナ粒子スラリー（平均粒子径 150 nm）に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0135] (実施例 6)

ニッケル粒子スラリーを酸化チタン粒子スラリー（平均粒子径 150 nm）に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同

様にして、導電性粒子を得た。

[0136] (実施例 7)

突起形成に粒子スラリーを用いずに、導電部の形成時に部分的に析出量が変わるように調整して突起を形成したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0137] (実施例 8)

導電性粒子を作製する際に、ニッケル-ボロン導電層の外表面上にパラジウムめっき層 (厚み 20 nm) を形成したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0138] (実施例 9)

導電性粒子を作製する際に、ニッケル-ボロン導電層の外表面上に金めっき層 (厚み 20 nm) を形成したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0139] (実施例 10)

基材粒子 B を基材粒子 A に変更したこと、及び、導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0140] (実施例 11)

基材粒子 B を基材粒子 A に変更したこと、及び、導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 2 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0141] (実施例 12)

基材粒子 B を基材粒子 C に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0142] (実施例 13)

基材粒子 B を基材粒子 D に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0143] (実施例 14)

メタクリル酸メチル 100 mmol と、N, N, N-トリメチル-N-2-メタクリロイルオキシエチルアンモニウムクロライド 1 mmol と、2,

2'-アゾビス(2-アミノプロパン)二塩酸塩 1 mmol を含むモノマー組成物を用意した。4ツ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が取り付けられた 1000 mL のセパラブルフラスコに、上記モノマー組成物を、固形分率が 5 重量%となるようにイオン交換水に秤取した。次いで、200 rpm で攪拌し、窒素雰囲気下 70°C で 24 時間重合を行った。反応終了後、凍結乾燥して、表面にアンモニウム基を有し、平均粒子径 220 nm 及び CV 値 10% の絶縁性粒子を得た。

[0144] 絶縁性粒子を超音波照射下でイオン交換水に分散させ、絶縁性粒子の 10 重量%水分散液を得た。

[0145] 実施例 4 で得られた導電性粒子 10 g をイオン交換水 500 mL に分散させ、絶縁性粒子の水分散液 4 g を添加し、室温で 6 時間攪拌した。3  $\mu$ m のメッシュフィルターでろ過した後、さらにメタノールで洗浄し、乾燥し、絶縁性粒子が付着した導電性粒子を得た。

[0146] 走査型電子顕微鏡 (SEM) により観察したところ、導電性粒子の表面に絶縁性粒子による被覆層が 1 層のみ形成されていた。画像解析により導電性粒子の中心より 1.66  $\mu$ m の距離における表面積に対する絶縁性粒子の被覆面積 (即ち絶縁性粒子の粒子径の投影面積) を算出したところ、被覆率は 30% であった。

[0147] (実施例 15)

導電性粒子を作製する際に、ニッケル-ボロン導電層の外表面上にルテニウムめっき層 (厚み 20 nm) を形成したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0148] (比較例 1)

基材粒子 B を基材粒子 A に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして、導電性粒子を得た。

[0149] (比較例 2)

基材粒子 B を基材粒子 A に変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例 4 と同様にして、導電性粒子を得た。

## [0150] (比較例3)

基材粒子Bを基材粒子Aに変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例14と同様にして、導電性粒子を得た。

## [0151] (比較例4)

基材粒子Bを基材粒子Aに変更したこと、及び導電部の厚みを変更したこと以外は、実施例14と同様にして、導電性粒子を得た。

## [0152] (評価)

(1) 導電性粒子の圧縮弾性率(10%K値、20%K値、及び30%K値)及び比(10%K値と20%K値との差の絶対値/20%K値)

得られた導電性粒子の上記圧縮弾性率(10%K値、20%K値、及び30%K値)を、上述した方法により、微小圧縮試験機(フィッシャー社製「フィッシャースコープH-100」)を用いて測定した。また、10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比(10%K値と20%K値との差の絶対値/20%K値)を計算した。

## [0153] (2) 接続抵抗

得られた導電性粒子を含有量が10重量%となるように、三井化学社製「ストラクトボンドXN-5A」に添加し、分散させて、異方性導電ペーストを作製した。L/Sが20 $\mu$ m/20 $\mu$ mであるTi-A-Tiの複層電極パターンを上面に有するポリイミド基板(フレキシブルプリント基板)を用意した。また、L/Sが20 $\mu$ m/20 $\mu$ mである金電極パターンを下面に有する半導体チップを用意した。上記ポリイミド基板上に、作製直後の異方性導電ペーストを厚さ30 $\mu$ 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150 $^{\circ}$ 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、バンプ総面積当たり40MPaの圧力をかけて異方性導電ペースト層を150 $^{\circ}$ Cで硬化させて、接続構造体を得た。得られた接続

構造体の対向する電極間の接続抵抗  $A$  を 4 端子法により測定した。接続抵抗を、下記の基準で判定した。

[0154] [接続抵抗の評価基準]

- ：接続抵抗  $A$  が 2.0  $\Omega$  以下
- ：接続抵抗  $A$  が 2.0  $\Omega$  を超え、3.0  $\Omega$  以下
- ：接続抵抗  $A$  が 3.0  $\Omega$  を超え、5.0  $\Omega$  以下
- ×：接続抵抗  $A$  が 5.0  $\Omega$  を超える

[0155] (3) 導通信頼性

上記の(2) 接続抵抗の評価後の接続構造体を、85℃及び湿度85%の条件下で500時間放置した。500時間放置後の接続構造体において、上下の電極間の接続抵抗  $B$  をそれぞれ、4端子法により測定した。接続抵抗  $A$  ,  $B$  から高温高湿放置後の導通信頼性を下記の基準で判定した。

[0156] [導通信頼性の評価基準]

- ：接続抵抗  $B$  が接続抵抗  $A$  の 1.25 倍未満
- ：接続抵抗  $B$  が接続抵抗  $A$  の 1.25 倍以上、1.5 倍未満
- ：接続抵抗  $B$  が接続抵抗  $A$  の 1.5 倍以上、2.0 倍未満
- ×：接続抵抗  $B$  が接続抵抗  $A$  の 2.0 倍以上

[0157] 詳細及び結果を下記の表 1, 2 に示す。

[0158]

[表1]

	基材粒子の種類	導電性粒子			
		突起の種類	絶縁性粒子の有無	導電部	導電部の厚み (nm)
実施例1	B	突起無し	無	Ni-B	142
実施例2	B	突起無し	無	Ni-P	122
実施例3	B	突起無し	無	Ni	153
実施例4	B	複合Ni突起	無	Ni-B	158
実施例5	B	複合Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 突起	無	Ni-B	161
実施例6	B	複合TiO <sub>2</sub> 突起	無	Ni-B	154
実施例7	B	析出突起	無	Ni-B	170
実施例8	B	複合Ni突起	無	Pd/Ni-B	162
実施例9	B	複合Ni突起	無	Au/Ni-B	146
実施例10	A	突起無し	無	Ni-B	221
実施例11	A	突起無し	無	Ni-P	103
実施例12	C	複合Ni突起	無	Ni-B	145
実施例13	D	複合Ni突起	無	Ni-B	143
実施例14	B	複合Ni突起	有	Ni-B	158
実施例15	B	複合Ni突起	無	Ru/Ni-B	152
比較例1	A	突起無し	無	Ni-B	123
比較例2	A	複合Ni突起	無	Ni-B	141
比較例3	A	複合Ni突起	有	Ni-B	145
比較例4	A	複合Ni突起	有	Ni-B	278

[0159]

[表2]

	導電性粒子				評価	
	10%K値 (N/mm <sup>2</sup> )	20%K値 (N/mm <sup>2</sup> )	30%K値 (N/mm <sup>2</sup> )	比(10%K値と 20%K値との差の 絶対値/20%K値)	接続抵抗	導通信頼性
実施例1	16900	15530	12300	0.09	〇〇	〇〇
実施例2	15300	13340	11230	0.15	〇〇	〇
実施例3	16270	15210	15020	0.07	〇〇〇	〇〇〇
実施例4	20910	19090	16340	0.10	〇〇〇	〇〇〇
実施例5	21310	18970	16280	0.12	〇〇〇	〇〇〇
実施例6	19190	18020	14350	0.06	〇〇〇	〇〇〇
実施例7	23630	19780	17020	0.19	〇〇	〇〇
実施例8	20390	17860	12690	0.14	〇〇〇	〇〇〇
実施例9	19270	17580	13740	0.10	〇〇〇	〇〇〇
実施例10	11160	9720	7270	0.15	〇	〇
実施例11	4340	3820	1650	0.14	〇	〇
実施例12	20580	18800	15890	0.09	〇〇〇	〇〇〇
実施例13	19980	17880	14530	0.12	〇〇〇	〇〇〇
実施例14	21970	20310	12820	0.08	〇〇〇	〇〇〇
実施例15	19880	17680	13440	0.12	〇〇〇	〇〇〇
比較例1	6350	4860	5230	0.31	×	×
比較例2	7250	5640	6000	0.29	×	×
比較例3	8320	6060	6380	0.37	×	×
比較例4	14220	11200	7500	0.27	×	×

## 符号の説明

- [0160] 1…導電性粒子  
 2…基材粒子  
 3…導電部  
 1 1…導電性粒子  
 1 1 a…突起  
 1 2…導電部  
 1 2 a…突起  
 1 3…芯物質  
 1 4…絶縁性物質  
 2 1…導電性粒子  
 2 1 a…突起  
 2 2…導電部

- 2 2 a …突起
- 2 2 A …第 1 の導電部
- 2 2 A a …突起
- 2 2 B …第 2 の導電部
- 2 2 B a …突起
- 5 1 …接続構造体
- 5 2 …第 1 の接続対象部材
- 5 2 a …第 1 の電極
- 5 3 …第 2 の接続対象部材
- 5 3 a …第 2 の電極
- 5 4 …接続部

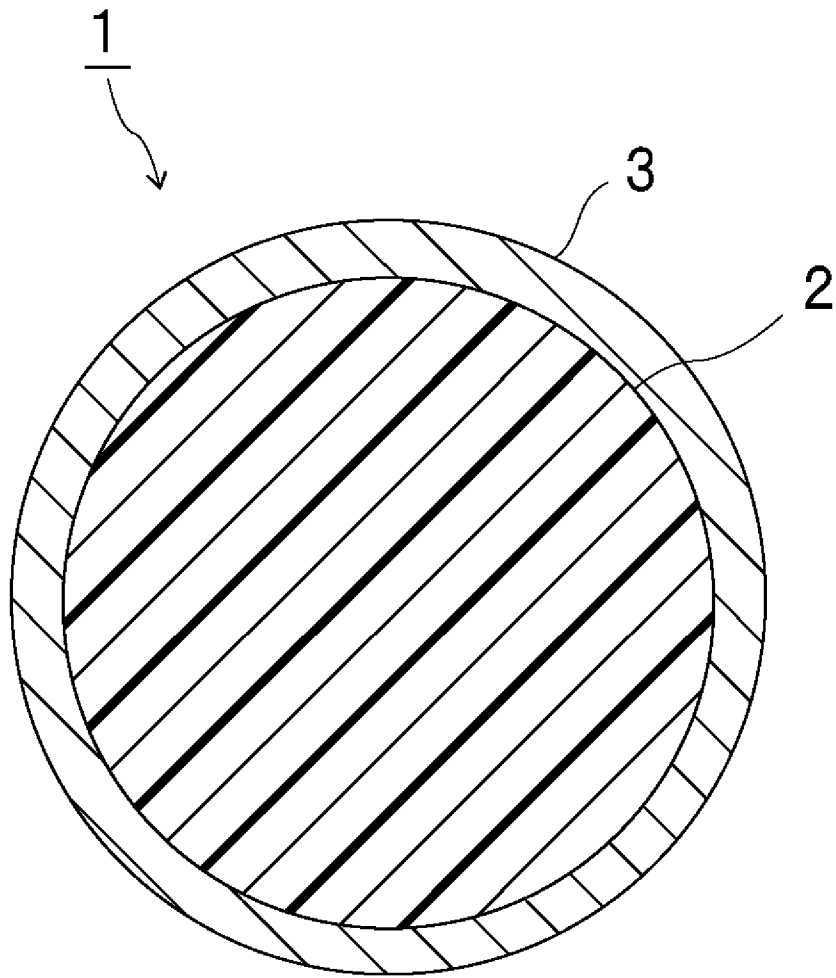
## 請求の範囲

- [請求項1] 基材粒子と、前記基材粒子の表面上に配置された導電部とを備え、  
10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値以上であり、  
10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、0.20以下である、導電性粒子。
- [請求項2] 10%圧縮したときの圧縮弾性率の値と20%圧縮したときの圧縮弾性率の値との差の絶対値の、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値に対する比が、0.15以下である、請求項1に記載の導電性粒子。
- [請求項3] 10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が13000N/mm<sup>2</sup>以上であり、  
20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が13000N/mm<sup>2</sup>以上であり、  
30%圧縮したときの圧縮弾性率の値が13000N/mm<sup>2</sup>以上である、請求項1又は2に記載の導電性粒子。
- [請求項4] 10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が15000N/mm<sup>2</sup>以上であり、  
20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が15000N/mm<sup>2</sup>以上である、請求項1～3のいずれか1項に記載の導電性粒子。
- [請求項5] 10%圧縮したときの圧縮弾性率の値が20%圧縮したときの圧縮弾性率の値よりも大きく、かつ、20%圧縮したときの圧縮弾性率の値が30%圧縮したときの圧縮弾性率の値よりも大きい、請求項1～4のいずれか1項に記載の導電性粒子。
- [請求項6] 前記基材粒子が、樹脂粒子又は有機無機ハイブリッド粒子である、請求項1～5のいずれか1項に記載の導電性粒子。
- [請求項7] 前記基材粒子が、有機無機ハイブリッド粒子である、請求項6に記載の導電性粒子。

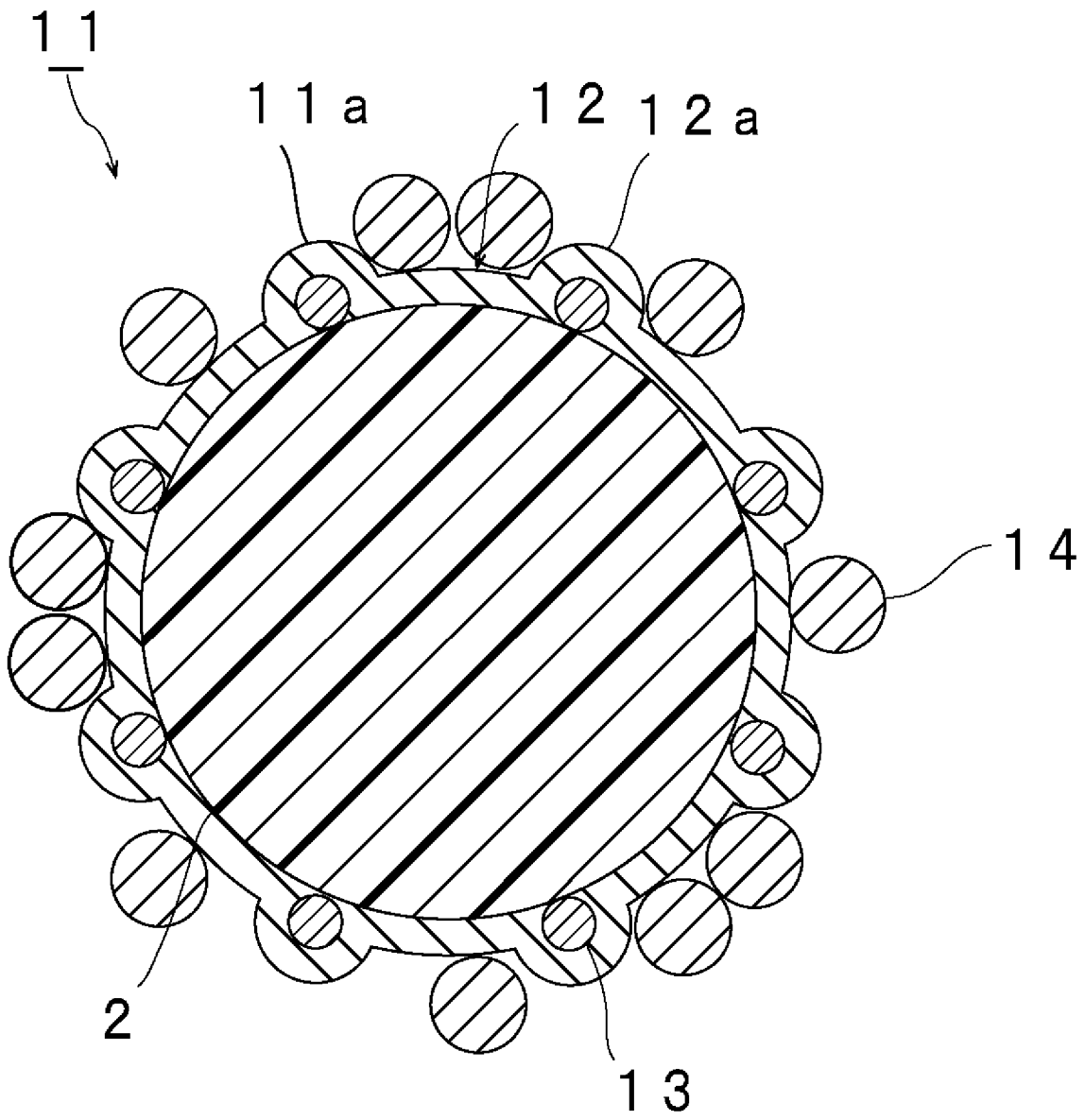
載の導電性粒子。

- [請求項8] 前記基材粒子の粒子径が、 $1.0\ \mu\text{m}$ 以上 $10\ \mu\text{m}$ 以下である、請求項1～7のいずれか1項に記載の導電性粒子。
- [請求項9] 前記導電部の外表面上に配置された絶縁性物質を備える、請求項1～8のいずれか1項に記載の導電性粒子。
- [請求項10] 前記導電部の外表面に突起を有する、請求項1～9のいずれか1項に記載の導電性粒子。
- [請求項11] 請求項1～10のいずれか1項に記載の導電性粒子と、バインダー樹脂とを含む、導電材料。
- [請求項12] 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1～10のいずれか1項に記載の導電性粒子を含み、  
前記第1の電極と前記第2の電極とが前記導電性粒子により電氣的に接続されている、接続構造体。

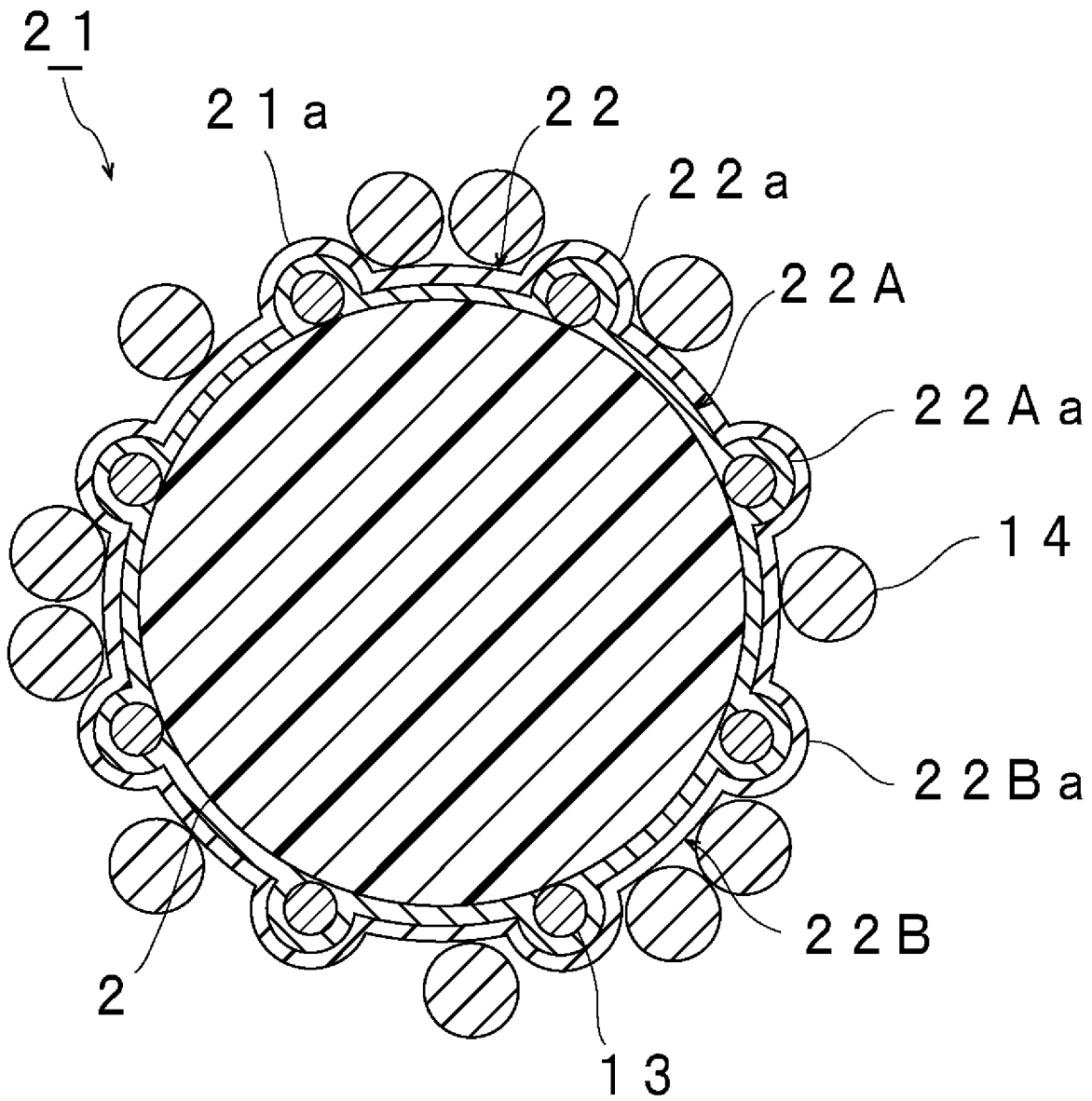
[図1]



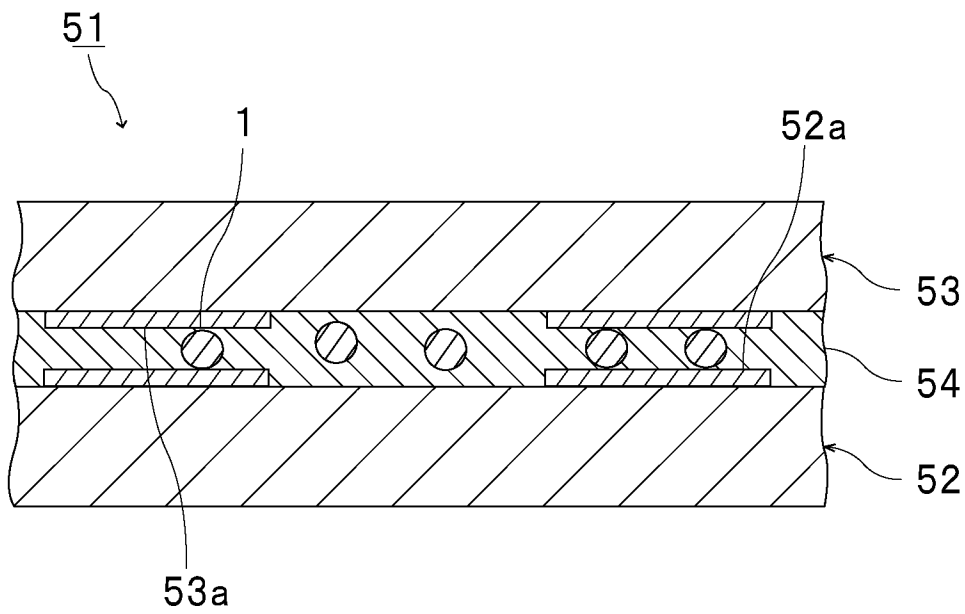
[図2]



[図3]



[図4]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

**PCT/JP2023/001815**

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<b>H01B 5/00</b> (2006.01)i; <b>H01B 1/00</b> (2006.01)i; <b>H01B 1/22</b> (2006.01)i; <b>H01R 11/01</b> (2006.01)i FI: H01B5/00 C; H01B5/00 G; H01B5/00 M; H01B1/22 A; H01B1/00 C; H01B1/00 G; H01B1/00 M; H01R11/01 501C		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01B5/00; H01B1/00; H01B1/22; 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 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2018/181694 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 04 October 2018 (2018-10-04) paragraphs [0126], [0157]-[0180], [0220]	1-12
A	WO 2012/020799 A1 (NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.) 16 February 2012 (2012-02-16) paragraphs [0013]-[0029]	1-12
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 <b>03 March 2023</b>		Date of mailing of the international search report <b>14 March 2023</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2023/001815**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
WO	2018/181694	A1	04 October 2018	CN	109983543	A	
WO	2012/020799	A1	16 February 2012	CN	103097421	A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01B 5/00(2006.01)i; H01B 1/00(2006.01)i; H01B 1/22(2006.01)i; H01R 11/01(2006.01)i FI: H01B5/00 C; H01B5/00 G; H01B5/00 M; H01B1/22 A; H01B1/00 C; H01B1/00 G; H01B1/00 M; H01R11/01 501C		
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）） H01B5/00; H01B1/00; H01B1/22; 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 - 2023年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2023年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2023年 国際調査でを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
X	WO 2018/181694 A1 (積水化学工業株式会社) 04.10.2018 (2018 - 10 - 04) [0126], [0157]-[0180], [0220]	1-12
A	WO 2012/020799 A1 (株式会社日本触媒) 16.02.2012 (2012 - 02 - 16) [0013]-[0029]	1-12
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	03.03.2023	国際調査報告の発送日 14.03.2023
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官）  中嶋 久雄 5G 1790  電話番号 03-3581-1101 内線 3526	

国際調査報告  
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/001815

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2018/181694	A1	04.10.2018	CN	109983543	A	
WO	2012/020799	A1	16.02.2012	CN	103097421	A	