

(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2日(02.01.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/004510 A1

(51) 国際特許分類:

<i>B23K 35/40</i> (2006.01)	<i>H01B 1/00</i> (2006.01)
<i>B22F 1/00</i> (2006.01)	<i>H01B 1/02</i> (2006.01)
<i>B22F 1/02</i> (2006.01)	<i>H01B 1/22</i> (2006.01)
<i>B23K 35/26</i> (2006.01)	<i>H01B 5/00</i> (2006.01)
<i>C22C 12/00</i> (2006.01)	<i>H01B 5/16</i> (2006.01)
<i>C22C 13/00</i> (2006.01)	<i>H01R 11/01</i> (2006.01)
<i>C22C 28/00</i> (2006.01)	<i>H05K 3/32</i> (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2019/025496

(22) 国際出願日: 2019年6月26日(26.06.2019)

(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 2018-121088	2018年6月26日(26.06.2018)	JP
特願 2019-014850	2019年1月30日(30.01.2019)	JP

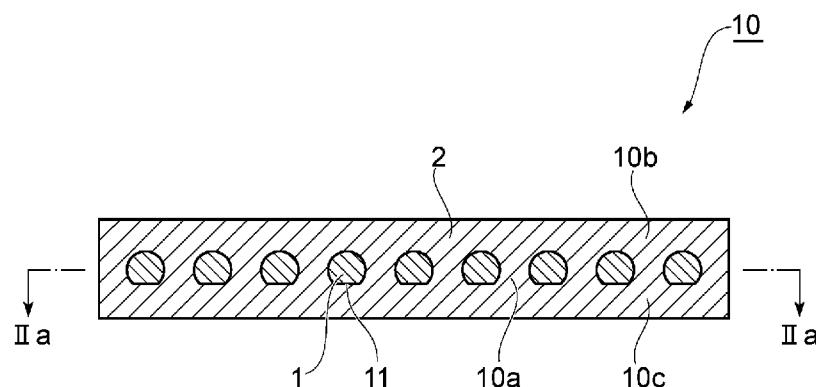
(71) 出願人: 日立化成株式会社(HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 赤井 邦彦(AKAI Kunihiko); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 江尻 芳則(EJIRI Yoshinori); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 岡田 悠平(OKADA Yuuhei); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 森谷 敏光(MORIYA Toshimitsu); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 須方 振一郎(SUKATA Shinichirou); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 宮地 勝将(MIYAJI Masayuki); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).

(54) Title: ANISOTROPIC CONDUCTIVE FILM, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND METHOD FOR PRODUCING CONNECTION STRUCTURE

(54) 発明の名称: 異方性導電フィルム及びその製造方法並びに接続構造体の製造方法



(57) Abstract: A method for producing an anisotropic conductive film, which comprises: a preparation step wherein a base material that has a plurality of recesses and solder fine particles are prepared; a containing step wherein at least some of the solder fine particles are contained in the recesses; a fusing step wherein the solder fine particles contained in the recesses are fused, thereby forming solder particles within the recesses; a transfer step wherein an insulating resin material is brought into contact with the recess opening side of the base material that comprises the solder particles in the recesses, thereby obtaining a first resin layer on which the solder particles have been transferred; and a layering step wherein a second resin layer that is configured from an insulating resin material is formed on the surface of the first resin layer, on which the solder particles have been transferred, thereby obtaining an anisotropic conductive film.

(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, 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))

(57) 要約: 複数の凹部を有する基体とはんだ微粒子とを準備する準備工程と、前記はんだ微粒子の少なくとも一部を、前記凹部に收容する收容工程と、前記凹部に收容された前記はんだ微粒子を融合させて、前記凹部の内部にはんだ粒子を形成する融合工程と、前記はんだ粒子が前記凹部に收容されている前記基体の、前記凹部の開口側に絶縁性樹脂材料を接触させて、前記はんだ粒子が転写された第一の樹脂層を得る転写工程と、前記はんだ粒子が転写された側の前記第一の樹脂層の表面上に、絶縁性樹脂材料から構成される第二の樹脂層を形成することにより、異方性導電フィルムを得る積層工程と、を含む、異方性導電フィルムの製造方法。

明 細 書

発明の名称：

異方性導電フィルム及びその製造方法並びに接続構造体の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、異方性導電フィルム及びその製造方法、並びに接続構造体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 液晶表示用ガラスパネルに液晶駆動用 IC を実装する方式は、COG (Chip-on-Glass) 実装と、COF (Chip-on-Flex) 実装との二種に大別することができる。COG 実装では、導電粒子を含む異方導電性接着剤を用いて液晶駆動用 IC を直接ガラスパネル上に接合する。一方、COF 実装では、金属配線を有するフレキシブルテープに液晶駆動用 IC を接合し、導電粒子を含む異方導電性接着剤を用いてそれらをガラスパネルに接合する。ここでいう「異方性」とは、加圧方向には導通し、非加圧方向では絶縁性を保つという意味である。

[0003] ところで、近年の液晶表示の高精細化に伴い、液晶駆動用 IC の回路電極である金属バンプは狭ピッチ化及び狭面積化しており、そのため、異方性導電接着剤の導電粒子が隣接する回路電極間に流出してショートを発生させるおそれがある。特に COG 実装ではその傾向が顕著である。隣接する回路電極間に導電粒子が流出すると、金属バンプとガラスパネルとの間に捕捉される導電粒子数が減少し、対面する回路電極間の接続抵抗が上昇する接続不良を起こすおそれがある。このような傾向は、単位面積あたり 2 万個/mm² 未満の導電粒子を投入すると、より顕著である。

[0004] これらの問題を解決する方法として、導電粒子（母粒子）の表面に複数の絶縁粒子（子粒子）を付着させ、複合粒子を形成させる方法が提案されている。例えば、特許文献 1、2 では導電粒子の表面に球状の樹脂粒子を付着させる方法が提案されている。更に単位面積あたり 7 万個/mm² 以上の導電粒

子を投入した場合であっても、絶縁信頼性に優れた絶縁被覆導電粒子が提案されており、特許文献3では、第1の絶縁粒子と、第1の絶縁粒子よりもガラス転移温度が低い第2の絶縁粒子が導電粒子の表面に付着された絶縁被覆導電粒子が提案されている。また、特許文献4では、電極間の接続をより強固にする観点から、はんだ粒子を含んだ導電ペーストが提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特許第4 7 7 3 6 8 5号公報

特許文献2：特許第3 8 6 9 7 8 5号公報

特許文献3：特開2 0 1 4－1 7 2 1 3号公報

特許文献4：特開2 0 1 6－7 6 4 9 4号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] ところで、電氣的に互いに接続すべき回路部材の接続箇所が微小（例えばバンプ面積 $2000\mu\text{m}^2$ 未満）である場合、安定した導通信頼性を得るために導電粒子を増やすことが好ましい。このような理由から、単位面積あたり10万個/ mm^2 以上の導電粒子を投入する場合もでてきている。しかしながら、このように接続箇所が微小である場合、特許文献1～3に記載の絶縁被覆導電粒子を用いたとしても、導通信頼性と絶縁信頼性のバランスを取るとは難しく、未だ改善の余地があった。他方、特許文献4に記載のはんだ粒子を含む導電ペーストを用いた場合、導通信頼性は確保し得るものの、絶縁信頼性が不十分であるという課題があった。

[0007] 本発明は、上記課題に鑑みてなされたものであり、電氣的に互いに接続すべき回路部材の接続箇所が微小であっても、絶縁信頼性及び導通信頼性の両方が優れる接続構造体を製造するのに有用な異方性導電フィルム及びその製造方法を提供することを目的とする。また、本発明は、この異方性導電フィルムを用いた接続構造体の製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

- [0008] 上記課題を解決するため、本発明者らは従来の手法では絶縁抵抗値が低下する理由について検討した。その結果、特許文献1、2に記載の発明では、導電粒子の表面に被覆されている絶縁粒子の被覆性が低く、単位面積あたり2万個/mm²程度又はこれ未満の導電粒子の投入量であっても、絶縁抵抗値が低下しやすいことが分かった。
- [0009] 特許文献3に記載の発明においては、特許文献1、2に記載の発明の欠点を補うため、第1の絶縁粒子と、第1の絶縁粒子よりもガラス転移温度が低い第2の絶縁粒子を導電粒子の表面に付着させている。これにより、導電粒子の投入量が単位面積あたり7万個/mm²程度であれば絶縁抵抗値が十分に高い状態を維持できる。しかし、導電粒子の投入量が単位面積あたり10万個/mm²以上ともなると絶縁抵抗値が不十分となる可能性があることが分かった。
- [0010] 特許文献4に記載の発明においては、はんだ粒子を含んだ導電ペーストを用いていることで、特許文献1～3に記載の発明と比較して優れた導通信頼性に達成し得ると認められるものの、電気的に互いに接続すべき回路部材の接続箇所が微小（例えばバンプ面積2000μm²未満）である場合、バンプとバンプの間の接続部以外にはんだ粒子が残りやすいため、絶縁信頼性が不十分となる可能性があることが分かった。
- [0011] 本発明は、本発明者らの上記知見に基づいてなされたものである。本発明の一側面は、複数の凹部を有する基体とはんだ微粒子とを準備する準備工程と、上記はんだ微粒子の少なくとも一部を、上記凹部に収容する収容工程と、上記凹部に収容された上記はんだ微粒子を融合させて、上記凹部の内部にはんだ粒子を形成する融合工程と、上記はんだ粒子が上記凹部に収容されている上記基体の、上記凹部の開口側に絶縁性樹脂材料を接触させて、上記はんだ粒子が転写された第一の樹脂層を得る転写工程と、上記はんだ粒子が転写された側の上記第一の樹脂層の表面上に、絶縁性樹脂材料から構成される第二の樹脂層を形成することにより、異方性導電フィルムを得る積層工程と

、を含む、異方性導電フィルムの製造方法に関する。

- [0012] 上記異方性導電フィルムの製造方法によれば、準備工程、収容工程及び融合工程によって、粒度分布が狭く、安定した形状を有する均一なはんだ粒子が得られる。また、転写工程を経ることで、異方性導電フィルムの厚さ方向における所定の領域に、はんだ粒子が離隔した状態で並ぶように配置された異方性導電フィルムを製造することができる。例えば、接続すべき電極のパターンに応じた凹部パターンを有する基体を用いて異方性導電フィルムを製造することで、異方性導電フィルムにおけるはんだ粒子の位置及び個数を十分に制御することができる。このような異方性導電フィルムを用いて接続構造体を製造することにより、電氣的に互いに接続すべき一对の電極間に存在するはんだ粒子の数を十分に確保する一方、絶縁性を保つべき隣接する電極間に存在するはんだ粒子の数を十分に少なくすることができる。これにより、回路部材の接続箇所が微小であっても、絶縁信頼性及び導通信頼性の両方が優れる接続構造体を十分に効率的且つ安定的に製造することができる。
- [0013] 一態様において、上記融合工程で形成される上記はんだ粒子の平均粒子径は $1\ \mu\text{m} \sim 30\ \mu\text{m}$ 、C. V. 値は 20% 以下であってよい。
- [0014] 一態様において、上記準備工程で準備される上記はんだ微粒子の C. V 値は、20% を超えていてよい。このようなはんだ微粒子を用いることで、凹部へのはんだ微粒子の充填性が増し、より均質なはんだ粒子が得られやすくなる。
- [0015] 一態様において、上記融合工程の前に、上記凹部に収容された上記はんだ微粒子を還元雰囲気下に晒してもよい。
- [0016] 一態様において、上記融合工程は、上記凹部に収容された上記はんだ微粒子を還元雰囲気下で融合させる工程であってよい。
- [0017] 一態様において、上記融合工程は、上記凹部に収容された上記はんだ微粒子を、はんだ微粒子の融点以上の雰囲気下で融合させる工程であってよい。
- [0018] 一態様において、上記準備工程で準備される上記はんだ微粒子は、スズ、スズ合金、インジウム及びインジウム合金からなる群より選択される少なく

とも一種を含むものであってよい。

[0019] 一態様において、上記準備工程で準備される上記はんだ微粒子は、In-Bi合金、In-Sn合金、In-Sn-Ag合金、Sn-Au合金、Sn-Bi合金、Sn-Bi-Ag合金、Sn-Ag-Cu合金及びSn-Cu合金からなる群より選択される少なくとも一種を含むものであってよい。

[0020] 一態様において、上記転写工程で得られる上記第一の樹脂層は、その表面に、上記はんだ粒子が露出しているもよいし、その表面側に上記はんだ粒子が埋設されているもよい。上記第一の樹脂層の表面側にはんだ粒子を埋設するには、上記転写工程において、上記凹部の内部にまで上記絶縁性樹脂材料を侵入させればよい。

[0021] 一態様において、上記転写工程は、上記はんだ粒子の転写後に前記絶縁性樹脂材料を硬化させるステップを有しているもよい。これにより転写されたはんだ粒子を固定化できる。

[0022] 一態様に係る異方性導電フィルムの製造方法は、上記融合工程で形成された上記はんだ粒子の表面をフラックス成分で被覆する被覆工程を更に含んでいるもよい。

[0023] 本発明の他の一側面は、絶縁性樹脂材料から構成される絶縁性フィルムと、上記絶縁性フィルム中に配置されている複数のはんだ粒子と、を含む、異方性導電フィルムに関する。この異方性導電フィルムにおいて、上記はんだ粒子の平均粒子径は $1\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ 、C.V.値は20%以下である。また、上記異方性導電フィルムの縦断面において、上記はんだ粒子は、隣接するはんだ粒子と離隔した状態で横方向に並ぶように配置されている。なお、ここでいう「縦断面」とは異方性導電フィルムの主面に対して直交する断面を意味し、「横方向」とは異方性導電フィルムの主面と平行な方向を意味する。

[0024] 一態様において、上記はんだ粒子は、表面の一部に平面部を有しているもよい。

[0025] 一態様において、上記はんだ粒子の直径Bに対する上記平面部の直径Aの

比 (A/B) は下記式を満たしてよい。

$$0.01 < A/B < 1.0$$

- [0026] 一態様において、上記はんだ粒子の投影像に外接する四角形を二対の平行線により作成した場合において、対向する辺間の距離を X 及び Y (但し $Y < X$) としたときに、 X 及び Y は下記式を満たしてよい。

$$0.8 < Y/X < 1.0$$

- [0027] 一態様において、上記はんだ粒子は、スズ、スズ合金、インジウム及びインジウム合金からなる群より選択される少なくとも一種を含むものであってよい。

- [0028] 一態様において、上記はんだ粒子は、 $In-Bi$ 合金、 $In-Sn$ 合金、 $In-Sn-Ag$ 合金、 $Sn-Au$ 合金、 $Sn-Bi$ 合金、 $Sn-Bi-Ag$ 合金、 $Sn-Ag-Cu$ 合金及び $Sn-Cu$ 合金からなる群より選択される少なくとも一種を含むものであってよい。

- [0029] 本発明の更に他の一側面は、上記異方性導電フィルムを用いて接続構造体を製造する方法に関する。この製造方法は、第一の基板と当該第一の基板に設けられた第一の電極とを有する第一の回路部材を準備すること；上記第一の電極と電氣的に接続される第二の電極を有する第二の回路部材を準備すること；上記第一の回路部材の前記第一の電極を有する面と、上記第二の回路部材の上記第二の電極を有する面との間に、上記異方性導電フィルムを配置すること；上記第一の回路部材と上記異方性導電フィルムと上記第二の回路部材とを含む積層体を上記積層体の厚さ方向に押圧した状態で加熱することにより、上記第一の電極と上記第二の電極とをはんだを介して電氣的に接続し且つ上記第一の回路部材と上記第二の回路部材とを接着すること；を含む。

- [0030] 上記接続構造体の製造方法によれば、第一の電極と第二の電極の接続箇所が微小であっても、絶縁信頼性及び導通信頼性の両方が優れる接続構造体を十分に効率的且つ安定的に製造することができる。すなわち、上記積層体の厚さ方向に押圧した状態で、上記積層体を加熱することにより、第一の電極

と第二の電極の間に、はんだ粒子が溶融しながら寄り集まり、第一の電極と第二の電極とがはんだを介して接合される。これにより、第一の電極と第二の電極との良好な導通信頼性を得ることが可能である。これに加え、第一の電極と第二の電極の間に、はんだ粒子が溶融しながら寄り集まることで、絶縁性を保つべき隣接する電極間に、はんだ粒子が残りづらくなるため、当該電極間のショート発生が抑制され、高い絶縁信頼性を得ることが可能になる。

発明の効果

[0031] 本発明によれば、電氣的に互いに接続すべき回路部材の接続箇所が微小であっても、絶縁信頼性及び導通信頼性の両方が優れる接続構造体を製造するのに有用な異方性導電フィルム及びその製造方法が提供される。また、本発明によれば、この異方性導電フィルムを用いた接続構造体の製造方法が提供される。

図面の簡単な説明

[0032] [図1]図1は本発明に係る異方性導電フィルムの第一実施形態を模式的に示す断面図である。

[図2]図2（a）は図1に示すⅠ－Ⅰ線における模式的な横断面図であり、図2（b）は第一実施形態の変形例を模式的に示す横断面図である。

[図3]図3（a）は基体の一例を模式的に示す平面図であり、図3（b）は図3（a）のⅡ－Ⅱ線における断面図である。

[図4]図4（a）～（h）は基体の凹部の断面形状の例を模式的に示す断面図である。

[図5]図5は基体の凹部にはんだ微粒子が収容された状態を模式的に示す断面図である。

[図6]図6は基体の凹部にはんだ粒子が形成された状態を模式的に示す断面図である。

[図7]図7（a）は図6における凹部の開口部と反対側からはんだ粒子を見た図であり、図7（b）ははんだ粒子の投影像に外接する四角形を二対の平行

線により作成した場合における、対向する辺間の距離 X 及び Y （但し $Y \leq X$ ）を示す図である。

[図8]図8（a）～（c）は第一実施形態に係る異方性導電フィルムの製造過程の一例を模式的に示す断面図である。

[図9]図9（a）～（c）は第二実施形態に係る異方性導電フィルムの製造過程の一例を模式的に示す断面図である。

[図10]図10（a）及び図10（b）は異方性導電フィルムの製造過程の他の一例を模式的に示す断面図である。

[図11]図11は本発明に係る接続構造体の一部を拡大して示す図であって、はんだによって第一の電極と第二の電極が電氣的に接続された状態の第一の例を模式的に示す断面図である。

[図12]図12は本発明に係る接続構造体の一部を拡大して示す図であって、はんだによって第一の電極と第二の電極が電氣的に接続された状態の第二の例を模式的に示す断面図である。

[図13]図13は本発明に係る接続構造体の一部を拡大して示す図であって、はんだによって第一の電極と第二の電極が電氣的に接続された状態の第三の例を模式的に示す断面図である。

[図14]図14は本発明に係る接続構造体の一部を拡大して示す図であって、はんだによって第一の電極と第二の電極が電氣的に接続された状態の第四の例を模式的に示す断面図である。

[図15]図15は本発明に係る接続構造体の一部を拡大して示す図であって、はんだによって第一の電極と第二の電極が電氣的に接続された状態の第五の例を模式的に示す断面図である。

[図16]図16は本発明に係る接続構造体の一部を拡大して示す図であって、はんだによって第一の電極と第二の電極が電氣的に接続された状態の第六の例を模式的に示す断面図である。

[図17]図17（a）及び図17（b）は、本発明に係る接続構造体の製造過程の第一の例を模式的に示す断面図である。

[図18]図18(a)及び図18(b)は、本発明に係る接続構造体の製造過程の第二の例を模式的に示す断面図である。

[図19]図19(a)及び図19(b)は、本発明に係る接続構造体の製造過程の第三の例を模式的に示す断面図である。

[図20]図20は、押圧及び加熱がなされる前の異方性導電フィルムのはんだ粒子の位置と、バンプ（電極）の位置との関係の第一の例を模式的に示す平面図である。

[図21]図21は、押圧及び加熱がなされる前の異方性導電フィルムのはんだ粒子の位置と、バンプ（電極）の位置との関係の第二の例を模式的に示す平面図である。

[図22]図22は、押圧及び加熱がなされる前の異方性導電フィルムのはんだ粒子の位置と、バンプ（電極）の位置との関係の第三の例を模式的に示す平面図である。

[図23]図23は、押圧及び加熱がなされる前の異方性導電フィルムのはんだ粒子の位置と、バンプ（電極）との関係の第四の例を模式的に示す平面図である。

[図24]図24(a)及び図24(b)は、作製例17で形成されたはんだ粒子のSEM画像を示す図である。

[図25]図25(a)及び図25(b)は、比較例1で使用したはんだ粒子のSEM画像を示す図である。

[図26]図26(a)及び図26(b)は、平面部11が同一面側を向くように一様に並んだはんだ粒子1のSEM画像を示す図である。

[図27]図27は基体の凹部の断面形状の他の例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

[0033] 以下、本発明の実施形態について説明する。本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。なお、以下で例示する材料は、特に断らない限り、一種単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。組成物中

の各成分の含有量は、組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数の物質の合計量を意味する。「～」を用いて示された数値範囲は、「～」の前後に記載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を示す。本明細書中に段階的に記載されている数値範囲において、ある段階の数値範囲の上限値又は下限値は、他の段階の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。本明細書中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

[0034] <異方性導電フィルム>

図1に示す第一実施形態に係る異方性導電フィルム10は、絶縁性樹脂材料からなる絶縁性フィルム2と、絶縁性フィルム2中に配置されている複数のはんだ粒子1とによって構成されている。異方性導電フィルム10の所定の縦断面において、一個のはんだ粒子1は隣接する一個のはんだ粒子1と隔離した状態で横方向（図1における左右方向）に並ぶように配置されている。換言すると、異方性導電フィルム10は、その縦断面において、複数のはんだ粒子1が横方向に列をなしている中央領域10aと、はんだ粒子1が実質的に存在しない表面側領域10b、10cとによって構成されている。

[0035] 図2(a)は図1に示す11a-11a線における模式的な横断面図である。図2に示されるとおり、異方性導電フィルム10の横断面において、はんだ粒子1が規則的に配置されている。図2(a)に示されたとおり、はんだ粒子1は異方性導電フィルム10の全体の領域に対して規則的且つほぼ均等の間隔で配置されていてもよく、図2(b)に示された変形例のように、異方性導電フィルム10の横断面において、複数のはんだ粒子1が規則的に配置されている領域10dと、はんだ粒子1が実質的に存在しない領域10eとが規則的に形成されるように、はんだ粒子1を配置してもよい。例えば、接続すべき電極の形状、サイズ及びパターン等に応じ、はんだ粒子1の位置及び個数等を設定すればよい。

[0036] (はんだ粒子)

はんだ粒子1の平均粒子径は、例えば $30\mu\text{m}$ 以下であり、好ましくは $25\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $20\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $15\mu\text{m}$ 以下である。また、はんだ粒子1の平均粒子径は、例えば $1\mu\text{m}$ 以上であり、好ましくは $2\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $3\mu\text{m}$ 以上、さらに好ましくは $5\mu\text{m}$ 以上である。

[0037] はんだ粒子1の平均粒子径は、サイズに合わせた各種方法を用いて測定することができる。例えば、動的光散乱法、レーザ回折法、遠心沈降法、電気的検知帯法、共振式質量測定法等の方法を利用できる。さらに、光学顕微鏡、電子顕微鏡等によって得られる画像から、粒子サイズを測定する方法を利用できる。具体的な装置としては、フロー式粒子像分析装置、マイクロトラック、コールターカウンター等が挙げられる

[0038] はんだ粒子1のC.V.値は、より優れた導電信頼性及び絶縁信頼性を実現できる観点から、好ましくは 20% 以下、より好ましくは 10% 以下、更に好ましくは 7% 以下である。また、はんだ粒子1のC.V.値の下限は特に限定されない。例えば、はんだ粒子1のC.V.値は 1% 以上であってよく、 2% 以上であってもよい。

[0039] はんだ粒子1のC.V.値は、前述の方法によって測定された粒子径の標準偏差を平均粒子径で割った値に 100 を掛けることで算出される。

[0040] 図7(a)に示すように、はんだ粒子1は、表面の一部に平面部11が形成されていてよく、このとき当該平面部11以外の表面は、球冠状であることが好ましい。すなわち、はんだ粒子1は、平面部11と、球冠状の曲面部と、を有するものであってよい。はんだ粒子1の直径Bに対する平面部11の直径Aの比(A/B)は、例えば例えば 0.01 超 1.0 未満($0.01 < A/B < 1.0$)であってよく、 $0.1 \sim 0.9$ であってもよい。はんだ粒子1が平面部11を有することで、接続時の加圧による位置ずれが生じ難くなり、より優れた導電信頼性及び絶縁信頼性を実現できる。

[0041] はんだ粒子1の投影像に外接する四角形を二対の平行線により作成した場合において、対向する辺間の距離をX及びY(但し $Y < X$)としたときに、

Xに対するYの比 (Y/X) は、0.8超1.0未満 ($0.8 < Y/X < 1.0$) であってよく、0.9以上1.0未満であってもよい。このようなはんだ粒子1はより真球に近い粒子とすることができる。後述の製造方法によれば、このようなはんだ粒子1を容易に得ることができる。はんだ粒子1が真球に近いことで、例えば、対向する複数の電極間をはんだ粒子1を介して電氣的に接続させるときに、はんだ粒子1と電極間接触にムラが生じ難く、安定した接続が得られる傾向がある。また、はんだ粒子1を樹脂材料中に分散した導電性フィルムや樹脂を作製したとき、高い分散性が得られ、製造時の分散安定性が得られる傾向がある。さらに、はんだ粒子1を樹脂材料に分散したフィルムやペーストを、電極間の接続に用いる場合、樹脂中ではんだ粒子1が回転しても、はんだ粒子1が球体形状であれば、投影像で見たとき、はんだ粒子1同士の投影面積が近い。そのため、電極同士を接続する際にばらつきの少ない、安定した電気接続を得易い傾向がある。

[0042] 図7(b)は、はんだ粒子の投影像に外接する四角形を二対の平行線により作成した場合における、対向する辺間の距離X及びY (但し $Y < X$) を示す図である。例えば、任意の粒子を走査型電子顕微鏡により観察して投影像を得る。得られた投影像に対し二対の平行線を描画し、一对の平行線は平行線の距離が最小となる位置に、もう一对の平行線は平行線の距離が最大となる位置に配し、その粒子の Y/X を求める。この作業を300個のはんだ粒子に対して行って平均値を算出し、はんだ粒子の Y/X とする。

[0043] はんだ粒子1は、スズ又はスズ合金を含むものであってよい。スズ合金としては、例えば、In-Sn合金、In-Sn-Ag合金、Sn-Au合金、Sn-Bi合金、Sn-Bi-Ag合金、Sn-Ag-Cu合金、Sn-Cu合金等を用いることができる。これらのスズ合金の具体例としては、下記の例が挙げられる。

- ・ In-Sn (In 52質量%、Bi 48質量% 融点118℃)

- ・ In-Sn-Ag (In 20質量%、Sn 77.2質量%、Ag 2.8質量% 融点175℃)

- ・ Sn-Bi (Sn 43 質量%、Bi 57 質量% 融点 138℃)
- ・ Sn-Bi-Ag (Sn 42 質量%、Bi 57 質量%、Ag 1 質量% 融点 139℃)
- ・ Sn-Ag-Cu (Sn 96.5 質量%、Ag 3 質量%、Cu 0.5 質量% 融点 217℃)
- ・ Sn-Cu (Sn 99.3 質量%、Cu 0.7 質量% 融点 227℃)
- ・ Sn-Au (Sn 21.0 質量%、Au 79.0 質量% 融点 278℃)

[0044] はんだ粒子は、インジウム又はインジウム合金を含むものであってよい。インジウム合金としては、例えば、In-Bi 合金、In-Ag 合金等を用いることができる。これらのインジウム合金の具体例としては、下記の例が挙げられる。

- ・ In-Bi (In 66.3 質量%、Bi 33.7 質量% 融点 72℃)
- ・ In-Bi (In 33.0 質量%、Bi 67.0 質量% 融点 109℃)
- ・ In-Ag (In 97.0 質量%、Ag 3.0 質量% 融点 145℃)

[0045] はんだ粒子1の用途（接続時の温度）等に応じて、上記スズ合金又はインジウム合金を選択することができる。例えば、低温での融着にはんだ粒子1を用いる場合、In-Sn 合金、Sn-Bi 合金を採用すればよく、この場合、150℃以下で融着させることができる。Sn-Ag-Cu 合金、Sn-Cu 合金等の融点の高い材料を採用した場合、高温放置後においても高い信頼性を維持することができる。

[0046] はんだ粒子1は、Ag、Cu、Ni、Bi、Zn、Pd、Pb、Au、P 及びBから選ばれる一種以上を含んでもよい。これらの元素のうち、以下の観点からAg又はCuを含んでもよい。すなわち、はんだ粒子1がAg又はCuを含むことで、はんだ粒子1の融点を220℃程度まで低下させることができ、且つ、電極との接合強度がより向上するため、より良好な導通信頼性が得られやすくなる。

[0047] はんだ粒子1のCu含有率は例えば0.05～10質量%であり、0.1～5質量%又は0.2～3質量%であってもよい。Cu含有率が0.05質

量%以上であると、より良好なはんだ接続信頼性を達成しやすくなる。また、Cu含有率が10質量%以下であると、融点が低く、濡れ性に優れたはんだ粒子となりやすく、結果としてはんだ粒子1による接合部の接続信頼性が良好となりやすい。

[0048] はんだ粒子1のAg含有率は例えば0.05～10質量%であり、0.1～5質量%又は0.2～3質量%であってもよい。Ag含有率が0.05質量%以上であると、より良好なはんだ接続信頼性を達成しやすくなる。また、Ag含有率が10質量%以下であると、融点が低く、濡れ性に優れたはんだ粒子となりやすく、結果としてはんだ粒子による接合部の接続信頼性が良好となりやすい。

[0049] (絶縁性フィルム)

絶縁性フィルム2を構成する絶縁性樹脂材料として、熱硬化性化合物が挙げられる。熱硬化性化合物としては、オキセタン化合物、エポキシ化合物、エピスルフィド化合物、(メタ)アクリル化合物、フェノール化合物、アミノ化合物、不飽和ポリエステル化合物、ポリウレタン化合物、シリコン化合物及びポリイミド化合物等が挙げられる。なかでも、絶縁樹脂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、エポキシ化合物が好ましい。

[0050] 絶縁性樹脂材料は熱硬化剤をさらに含んでもよい。熱硬化剤としては、イミダゾール硬化剤、アミン硬化剤、フェノール硬化剤、ポリチオール硬化剤、酸無水物、熱カチオン開始剤及び熱ラジカル発生剤等が挙げられる。これらは一種を単独で用いてもよく、二種以上を併用してもよい。これらのうち、低温で速やかに硬化可能である点で、イミダゾール硬化剤、ポリチオール硬化剤又はアミン硬化剤が好ましい。また、熱硬化性化合物と熱硬化剤とを混合したときに保存安定性が高くなるので、潜在性の硬化剤が好ましい。潜在性の硬化剤は、潜在性イミダゾール硬化剤、潜在性ポリ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。

。

[0051] 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。

[0052] 上記ポリ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。ポリ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、F e d o r s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。

[0053] 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。

[0054] 上記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、オキシ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。上記オキシニウム系カチオン硬化剤としては、トリメチルオキシ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、トリー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。

[0055] 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。

[0056] （フラックス）

異方性導電フィルム10は、フラックスを含むことが好ましい。具体的には、異方性導電フィルム10を構成する絶縁性樹脂材料がフラックスを含有するとともに、はんだ粒子1の表面をフラックスが覆っていることが好ましい。フラックスは、はんだ表面の酸化物を溶融して、はんだ粒子同士の融着性及び電極へのはんだの濡れ性を向上させる。

[0057] フラックスとしては、はんだ接合等に一般的に用いられているものを使用できる。具体例としては、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。これらは一種を単独で用いてもよく、二種以上を併用してもよい。

[0058] 溶融塩としては、塩化アンモニウム等が挙げられる。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。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。松脂はアビエチン酸を主成分とするロジン類である。フラックスとして、カルボキシル基を二個以上有する有機酸又は松脂を使用することにより、電極間の導通信頼性がより一層高くなるという効果が奏される。

[0059] フラックスの融点は、好ましくは50℃以上であり、より好ましくは70℃以上であり、さらに好ましくは80℃以上である。フラックスの融点は、好ましくは200℃以下であり、より好ましくは160℃以下であり、さらに好ましくは150℃以下であり、特に好ましくは140℃以下である。上

記フラックスの融点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、はんだ粒子が電極上により一層効率的に配置される。フラックスの融点の範囲は、 $80\sim 190^{\circ}\text{C}$ であることが好ましく、 $80\sim 140^{\circ}\text{C}$ 以下であることがより好ましい。

[0060] 融点が $80\sim 190^{\circ}\text{C}$ の範囲にあるフラックスとしては、コハク酸（融点 186°C ）、グルタル酸（融点 96°C ）、アジピン酸（融点 152°C ）、ピメリン酸（融点 104°C ）、スベリン酸（融点 142°C ）等のジカルボン酸、安息香酸（融点 122°C ）、リンゴ酸（融点 130°C ）等が挙げられる。

[0061] <異方性導電フィルムの製造方法>

異方性導電フィルム10の製造方法は、複数の凹部を有する基体とはんだ微粒子とを準備する準備工程と、はんだ微粒子の少なくとも一部を凹部に収容する収容工程と、凹部に収容されたはんだ微粒子を融合させて、凹部の内部にはんだ粒子を形成する融合工程と、はんだ粒子が凹部に収容されている基体の、凹部の開口側に絶縁性樹脂材料を接触させて、はんだ粒子が転写された第一の樹脂層を得る転写工程と、はんだ粒子が転写された側の第一の樹脂層の表面上に、絶縁性樹脂材料から構成される第二の樹脂層を形成することにより、異方性導電フィルムを得る積層工程と、を含む。

[0062] 図3～8を参照しながら、第一実施形態に係る異方性導電フィルム10の製造方法について説明する。

[0063] まず、はんだ微粒子と、はんだ微粒子を収容するための基体60を準備する。図3（a）は基体60の一例を模式的に示す平面図であり、図3（b）は図3（a）に示す**1b-1b**線における断面図である。図3（a）に示す基体60は、複数の凹部62を有している。複数の凹部62は所定のパターンで規則的に配置されていてよい。この場合、後述の転写工程に基体60をそのまま用いることができる。

[0064] 基体60の凹部62は、凹部62の底部62a側から基体60の表面60a側に向けて開口面積が拡大するテーパ状に形成されていることが好ましい。すなわち、図3（a）及び図3（b）に示すように、凹部62の底部62

aの幅（図3（a）及び図3（b）における幅a）は、凹部62の表面60aにおける開口の幅（図3（a）及び図3（b）における幅b）よりも狭いことが好ましい。そして、凹部62のサイズ（幅a、幅b、容積、テーパ角度及び深さ等）は、目的とするはんだ粒子のサイズに応じて設定すればよい。

[0065] なお、凹部62の形状は図3（a）及び図3（b）に示す形状以外の形状であってもよい。例えば、凹部62の表面60aにおける開口の形状は、図3（a）に示すような円形以外に、楕円形、三角形、四角形、多角形等であってよい。

[0066] また、表面60aに対して垂直な断面における凹部62の形状は、例えば、図4に示すような形状であってよい。図4（a）～（h）は、基体が有する凹部の断面形状の例を模式的に示す断面図である。図4（a）～（h）に示すいずれの断面形状も、凹部62の表面60aにおける開口の幅（幅b）が、断面形状における最大幅となっている。これにより、凹部62内に形成されたはんだ粒子が取り出しやすくなり、作業性が向上する。また、表面60aに対して垂直な断面における凹部62の形状は、例えば、図9に示すように、図4（a）～（h）に示す断面形状における壁面を傾斜させた形状であってもよい。図9は、図4（b）に示す断面形状の壁面を傾斜させた形状とすることができる。

[0067] 基体60を構成する材料としては、例えば、シリコン、各種セラミックス、ガラス、ステンレススチール等の金属等の無機材料、並びに、各種樹脂等の有機材料を使用することができる。これらのうち、基体60は、はんだ微粒子の溶融温度で変質しない耐熱性を有する材質からなることが好ましい。また、基体60の凹部62は、フォトリソグラフ法等の公知の方法によって形成することができる。

[0068] 準備工程で準備されるはんだ微粒子は、凹部62の表面60aにおける開口の幅（幅b）より小さい粒子径の微粒子を含むものであればよく、幅bより小さい粒子径の微粒子をより多く含むことが好ましい。例えば、はんだ微

粒子は、粒度分布のD10粒子径が幅bより小さいことが好ましく、粒度分布のD30粒子径が幅bより小さいことがより好ましく、粒度分布のD50粒子径が幅bより小さいことが更に好ましい。

[0069] はんだ微粒子の粒度分布は、サイズに合わせた各種方法を用いて測定することができる。例えば、動的光散乱法、レーザ回折法、遠心沈降法、電気的検知帯法、共振式質量測定法等の方法を利用できる。さらに、光学顕微鏡、電子顕微鏡等によって得られる画像から、粒子サイズを測定する方法を利用できる。具体的な装置としては、フロー式粒子像分析装置、マイクロトラック、コールターカウンター等が挙げられる

[0070] 準備工程で準備されるはんだ微粒子のC.V.値は特に限定されないが、大小の微粒子の組み合わせによる凹部62への充填性が向上する観点から、C.V.値は高いことが好ましい。例えば、はんだ微粒子のC.V.値は、20%を超えていてよく、好ましくは25%以上、より好ましくは30%以上である。

[0071] はんだ微粒子のC.V.値は、前述の方法によって測定された粒子径の標準偏差を平均粒子径(D50粒子径)で割った値に100を掛けることで算出される。

[0072] はんだ微粒子は、スズ又はスズ合金を含むものであってよい。スズ合金としては、例えば、In-Sn合金、In-Sn-Ag合金、Sn-Au合金、Sn-Bi合金、Sn-Bi-Ag合金、Sn-Ag-Cu合金、Sn-Cu合金等を用いることができる。これらのスズ合金の具体例としては、下記の例が挙げられる。

- ・ In-Sn (In 52質量%、Bi 48質量% 融点118℃)

- ・ In-Sn-Ag (In 20質量%、Sn 77.2質量%、Ag 2.8質量% 融点175℃)

- ・ Sn-Bi (Sn 43質量%、Bi 57質量% 融点138℃)

- ・ Sn-Bi-Ag (Sn 42質量%、Bi 57質量%、Ag 1質量% 融点139℃)

・ $\text{Sn}-\text{Ag}-\text{Cu}$ (Sn 96.5 質量%、 Ag 3 質量%、 Cu 0.5 質量% 融点 217℃)

・ $\text{Sn}-\text{Cu}$ (Sn 99.3 質量%、 Cu 0.7 質量% 融点 227℃)

・ $\text{Sn}-\text{Au}$ (Sn 21.0 質量%、 Au 79.0 質量% 融点 278℃)

[0073] はんだ粒子は、インジウム又はインジウム合金を含むものであってよい。インジウム合金としては、例えば、 $\text{In}-\text{Bi}$ 合金、 $\text{In}-\text{Ag}$ 合金等を用いることができる。これらのインジウム合金の具体例としては、下記の例が挙げられる。

・ $\text{In}-\text{Bi}$ (In 66.3 質量%、 Bi 33.7 質量% 融点 72℃)

・ $\text{In}-\text{Bi}$ (In 33.0 質量%、 Bi 67.0 質量% 融点 109℃)

・ $\text{In}-\text{Ag}$ (In 97.0 質量%、 Ag 3.0 質量% 融点 145℃)

[0074] はんだ粒子の用途（使用時の温度）等に応じて、上記スズ合金又はインジウム合金を選択することができる。例えば、低温での融着に用いるはんだ粒子を得たい場合、 $\text{In}-\text{Sn}$ 合金、 $\text{Sn}-\text{Bi}$ 合金を採用すればよく、この場合、150℃以下で融着可能なはんだ粒子が得られる。 $\text{Sn}-\text{Ag}-\text{Cu}$ 合金、 $\text{Sn}-\text{Cu}$ 合金等の融点の高い材料を採用した場合、高温放置後においても高い信頼性を維持可能なはんだ粒子を得ることができる。

[0075] はんだ微粒子は、 Ag 、 Cu 、 Ni 、 Bi 、 Zn 、 Pd 、 Pb 、 Au 、 P 及び B から選ばれる一種以上を含んでもよい。これらの元素のうち、以下の観点から Ag 又は Cu を含んでもよい。すなわち、はんだ微粒子が Ag 又は Cu を含むことで、得られるはんだ粒子の融点を 220℃程度まで低下させることができる、電極との接合強度に優れたはんだ粒子が得られることによってより良好な導通信頼性を得られる、という効果が奏される。

[0076] はんだ微粒子の Cu 含有率は例えば 0.05～10 質量%であり、0.1～5 質量%又は 0.2～3 質量%であってもよい。 Cu 含有率が 0.05 質量%以上であると、良好なはんだ接続信頼性を達成可能なはんだ粒子が得られやすくなる。また、 Cu 含有率が 10 質量%以下であると、融点が低く、濡れ性に優れたはんだ粒子が得られやすくなり、結果としてはんだ粒子によ

る接合部の接続信頼性がより良好となりやすい。

[0077] はんだ微粒子の A g 含有率は例えば 0.05 ~ 10 質量%であり、0.1 ~ 5 質量%又は 0.2 ~ 3 質量%であってもよい。A g 含有率が 0.05 質量%以上であれば、良好なはんだ接続信頼性を達成可能なはんだ粒子が得られやすくなる。また、A g 含油率が 10 質量%以下であると、融点が低く、濡れ性に優れたはんだ粒子が得られやすくなり、結果としてはんだ粒子による接合部の接続信頼性がより良好となりやすい。

[0078] 収容工程では、基体 60 の凹部 62 のそれぞれに、準備工程で準備したはんだ微粒子を収容する。収容工程では、準備工程で準備したはんだ微粒子の全部を凹部 62 に収容する工程であってよく、準備工程で準備したはんだ微粒子の一部（例えば、はんだ微粒子のうち、凹部 62 の開口の幅 b より小さいもの）を凹部 62 に収容する工程であってよい。

[0079] 図 5 は、基体 60 の凹部 62 にはんだ微粒子 111 が収容された状態を模式的に示す断面図である。図 5 に示すように、複数の凹部 62 のそれぞれに、複数のはんだ微粒子 111 が収容される。

[0080] 凹部 62 に収容されたはんだ微粒子 111 の量は、例えば、凹部 62 の容積に対して 20 %以上であることが好ましく、30 %以上であることがより好ましく、50 %以上であることが更に好ましく、60 %以上であることがもっとも好ましい。これにより、収容量のばらつきが抑えられ、粒度分布のより小さいはんだ粒子が得られやすくなる。

[0081] はんだ微粒子を凹部 62 に収容する方法は特に限定されない。収容方法は、乾式、湿式のいずれであってもよい。例えば、準備工程で準備したはんだ微粒子を基体 60 上に配置し、スキージを用いて基体 60 の表面 60 a を擦ることで、余分なはんだ微粒子を除去しつつ、凹部 62 内に十分なはんだ微粒子を収容することができる。凹部 62 の開口の幅 b が凹部 62 の深さより大きい場合、凹部 62 の開口からはんだ微粒子が飛び出す場合がある。スキージを用いると、凹部 62 の開口から飛び出ているはんだ微粒子は除去される。余分なはんだ微粒子を除去する方法として、圧縮空気を吹き付ける、不

織布又は繊維の束で基体 60 の表面 60 a を擦る、等の方法も挙げられる。これらの方法は、スキージと比べて物理的な力が弱いため、変形しやすいはんだ微粒子を扱う上で好ましい。また、これらの方法では、凹部 62 の開口から飛び出ているはんだ微粒子を凹部内に残すこともできる。

[0082] 融合工程は、凹部 62 に收容されたはんだ微粒子 111 を融合させて、凹部 62 の内部にはんだ粒子 1 を形成する工程である。図 6 は、基体 60 の凹部 62 にはんだ粒子 1 が形成された状態を模式的に示す断面図である。凹部 62 に收容されたはんだ微粒子 111 は、溶融することで合一化し、表面張力によって球状化する。このとき、凹部 62 の底部 62 a との接触部では、溶融したはんだが底部 62 a に追従して平面部 11 を形成する。これにより、形成されるはんだ粒子 1 は、表面の一部に平面部 11 を有する形状となる。

[0083] 図 7 (a) は、図 6 における凹部 62 の開口部と反対側からはんだ粒子 1 を見た図である。はんだ粒子 1 は、直径 B を有する球の表面の一部に直径 A の平面部 11 が形成された形状を有している。なお、図 6 及び図 7 (a) に示すはんだ粒子 1 は、凹部 62 の底部 62 a が平面であるため平面部 11 を有するが、凹部 62 の底部 62 a が平面以外の形状である場合は、底部 62 a の形状に対応した異なる形状の面を有するものとなる。

[0084] 凹部 62 に收容されたはんだ微粒子 111 を溶融させる方法としては、はんだ微粒子 111 をはんだの融点以上に加熱する方法が挙げられる。はんだ微粒子 111 は、酸化被膜の影響で融点以上の温度で加熱しても溶融しない場合や、濡れ拡がらない場合や、合一化しない場合がある。このため、はんだ微粒子 111 を還元雰囲気下に晒し、はんだ微粒子 111 の表面酸化皮膜を除去した後に、はんだ微粒子 111 の融点以上の温度に加熱することで、はんだ微粒子 111 を溶融させ、濡れ拡がり、合一化させることができる。また、はんだ微粒子 111 の溶融は、還元雰囲気下で行うことが好ましい。はんだ微粒子 111 をはんだ微粒子 111 の融点以上に加熱し、かつ還元雰囲気とすることで、はんだ微粒子 111 の表面の酸化被膜が還元され、はん

だ微粒子 1 1 1 の溶融、濡れ拡がり、合一化が効率的に進行しやすくなる。

[0085] 還元雰囲気にする方法は、上述の効果が得られる方法であれば特に限定されず、例えば水素ガス、水素ラジカル、ギ酸ガス等を用いる方法がある。例えば、水素還元炉、水素ラジカル還元炉、ギ酸還元炉、又はこれらのコンベアー炉若しくは連続炉を用いることで、還元雰囲気下にはんだ微粒子 1 1 1 を溶融させることができる。これらの装置は、炉内に、加熱装置、不活性ガス（窒素、アルゴン等）を充填するチャンバー、チャンバー内を真空にする機構等を備えていてよく、これにより還元ガスの制御がより容易となる。また、チャンバー内を真空にできると、はんだ微粒子 1 1 1 の溶融及び合一化の後に、減圧によってボイドの除去を行うことができ、接続安定性に一層優れるはんだ粒子 1 を得ることができる。

[0086] はんだ微粒子 1 1 1 の還元、溶解条件、温度、炉内雰囲気調整などのプロファイルは、はんだ微粒子 1 1 1 の融点、粒度、凹部サイズ、基体 6 0 の材質などを勘案して適宜設定されてよい。例えば、はんだ微粒子 1 1 1 が凹部に充填された基体 6 0 を、炉内に挿入し、真空引きを行った後に、還元ガスを導入して、炉内を還元ガスで満たし、はんだ微粒子 1 1 1 の表面酸化被膜を除去した後、真空引きにて還元ガスを除去し、その後、はんだ微粒子 1 1 1 の融点以上に加熱して、はんだ微粒子を溶解及び合一化させて、凹部 6 2 内にはんだ粒子を形成した後、窒素ガスを充填してから炉内温度を室温に戻し、はんだ粒子 1 を得ることができる。また、例えば、はんだ微粒子 1 1 1 が凹部に充填された基体 6 0 を、炉内に挿入し、真空引きを行った後に、還元ガスを導入して、炉内を還元ガスで満たし、炉内加熱ヒーターによりはんだ微粒子 1 1 1 を加熱して、はんだ微粒子 1 1 1 の表面酸化被膜を除去した後、真空引きにて還元ガスを除去し、その後、はんだ微粒子 1 1 1 の融点以上に加熱して、はんだ微粒子を溶解及び合一化させて、凹部 6 2 内にはんだ粒子を形成した後、窒素ガスを充填してから炉内温度を室温に戻し、はんだ粒子 1 を得ることができる。還元雰囲気下で、はんだ微粒子を加熱することで、還元力が増し、はんだ微粒子の表面酸化皮膜の除去が容易になる利点がある。

ある。

[0087] さらに、例えば、はんだ微粒子 1 1 1 が凹部に充填された基体 6 0 を、炉内に挿入し、真空引きを行った後に、還元ガスを導入して、炉内を還元ガスで満たし、炉内加熱ヒーターにより基体 6 0 をはんだ微粒子 1 1 1 の融点以上に加熱して、はんだ微粒子 1 1 1 の表面酸化被膜を還元により除去すると同時にはんだ微粒子を溶解及び合一化させて、凹部 6 2 内にはんだ粒子を形成し、真空引きにて還元ガスを除去し、さらにはんだ粒子内のボイドを減らした後、窒素ガスを充填してから炉内温度を室温に戻し、はんだ粒子 1 を得ることができる。この場合は、炉内温度の上昇、下降の調節がそれぞれ一回で良いため、短時間で処理出来る利点がある。

[0088] 上述の凹部 6 2 内にはんだ粒子を形成した後に、もう一度炉内を還元雰囲気にして、除去し切れなかった表面酸化皮膜を除去する工程を加えてもよい。これにより、融合されずに残っていたはんだ微粒子や、融合されずに残っていた酸化皮膜の一部などの残渣を減らすことができる。

[0089] 大気圧のコンベアー炉を用いる場合は、はんだ微粒子 1 1 1 が凹部に充填された基体 6 0 を搬送用コンベアーに載せ、複数のゾーンを連続して通過させてはんだ粒子 1 を得ることができる。例えば、はんだ微粒子 1 1 1 が凹部に充填された基体 6 0 を、一定の速度に設定したコンベアーに載せ、はんだ微粒子 1 1 1 の融点より低い温度の窒素やアルゴンなどの不活性ガスが充填したゾーンを通過させ、続いてはんだ微粒子 1 1 1 の融点より低い温度の還元ガスなどの還元ガスが存在するゾーンを通過させて、はんだ微粒子 1 1 1 の表面酸化皮膜を除去し、続いてはんだ微粒子 1 1 1 の融点以上の温度の窒素やアルゴンなどの不活性ガスが充填したゾーンを通過させてはんだ微粒子 1 1 1 を溶融、合一化させ、続いて窒素やアルゴンなどの不活性ガスが充填した冷却ゾーンを通過させて、はんだ粒子 1 を得ることができる。例えば、はんだ微粒子 1 1 1 が凹部に充填された基体 6 0 を、一定の速度に設定したコンベアーに載せ、はんだ微粒子 1 1 1 の融点以上の温度の窒素やアルゴンなどの不活性ガスが充填したゾーンを通過させ、続いてはんだ微粒子 1 1 1

の融点以上の温度の蟻酸ガスなどの還元ガスが存在するゾーンを通過させて、はんだ微粒子 1 1 1 の表面酸化皮膜を除去し、溶融、合一化させ、続いて窒素やアルゴンなどの不活性ガスが充満した冷却ゾーンを通過させて、はんだ粒子 1 を得ることができる。前記のコンベアー炉は、大気圧での処理が可能であることから、フィルム状の材料をロールトゥロールで連続的に処理することもできる。例えば、はんだ微粒子 1 1 1 が凹部に充填された基体 6 0 の連続ロール品を作製し、コンベアー炉の入り口側にロール巻きだし機、コンベアー炉の出口側にロール巻き取り機を設置して、一定の速度で基体 6 0 を搬送し、コンベアー炉内の各ゾーンを通過させることで、凹部に充填されたはんだ微粒子 1 1 1 を融合させることができる。

[0090] 準備工程～融合工程によれば、はんだ微粒子 1 1 1 の材質及び形状によらず、均一なサイズのはんだ粒子 1 を形成することができる。例えば、インジウム系はんだは、めっきによる析出が可能であるが、粒子状に析出させることは難しく、柔らかくて扱いが難しい。しかし、上記方法では、インジウム系はんだ微粒子を原料として用いることで、均一な粒子径を有するインジウム系はんだ粒子を容易に製造することができる。また、形成されたはんだ粒子 1 は、基体 6 0 の凹部 6 2 に收容された状態を取り扱うことができるため、はんだ粒子 1 を変形させることなく運搬・保管等することができる。さらに、形成されたはんだ粒子 1 は、単に基体 6 0 の凹部 6 2 に收容された状態であるため、取り出しが容易であり、はんだ粒子を変形させることなく回収・表面処理等を行うことができる。

[0091] また、はんだ微粒子 1 1 1 は、粒度分布にばらつきが大きいとしても、形状がいびつであってもよく、凹部 6 2 内に收容することができれば原料として好適に用いることができる。

[0092] また、上記方法において、基体 6 0 は、リソグラフィー、機械加工等によって凹部 6 2 の形状を自在に設計できる。はんだ粒子 1 のサイズは凹部 6 2 に收容されるはんだ微粒子 1 1 1 の量に依存するため、凹部 6 2 の設計によりはんだ粒子 1 のサイズを自在に設計できる。

[0093] 融合工程で形成されたはんだ粒子 1 は、そのまま転写工程に使用してよく、基体 6 0 の凹部 6 2 に收容された状態で表面をフラックス成分で被覆してから転写工程に使用してもよく、凹部 6 2 から取り出し、表面をフラックス成分で被覆し、凹部 6 2 に再度收容してから転写工程に使用してもよい。なお、ここでは、はんだ粒子 1 の形成に用いた基体 6 0 をそのまま転写工程に利用しているが、凹部 6 2 からはんだ粒子 1 と取り出すステップを含む場合は、取り出したはんだ粒子 1 を、基体 6 0 とは異なる基体に收容して、転写工程に用いてもよい。

[0094] 転写工程は、はんだ粒子 1 が凹部 6 2 に收容されている状態の基体 6 0 に対して、凹部 6 2 の開口側から絶縁性樹脂材料 2 a を接触させることにより、はんだ粒子 1 が転写された第一の樹脂層 2 b を得る工程である。

[0095] 図 8 (a) に示す基体 6 0 は、凹部 6 2 のそれぞれに一個のはんだ粒子 1 が收容された状態である。この基体 6 0 の凹部 6 2 の開口側の面に、層状の絶縁性樹脂材料 2 a を対向させて、基体 6 0 と絶縁性樹脂材料とを近づける (図 8 (a) における矢印 A, B)。なお、層状の絶縁性樹脂材料 2 a は、支持体 6 5 の表面上に形成されている。支持体 6 5 は、プラスチックフィルムであってもよいし、金属箔であってもよい。

[0096] 図 8 (b) は、転写工程後の状態であって、基体 6 0 の凹部 6 2 の開口側の面を絶縁性樹脂材料 2 a に接触させたことにより、基体 6 0 の凹部 6 2 に收容されていたはんだ粒子 1 が絶縁性樹脂材料 2 a に転写された状態を示している。転写工程を経ることで、層状の絶縁性樹脂材料 2 a と、絶縁性樹脂材料 2 a の所定の位置に配置された複数のはんだ粒子 1 とによって構成される第一の樹脂層 2 b が得られる。第一の樹脂層 2 b は、その表面に複数のはんだ粒子 1 が露出している。なお、上記製造方法において、複数のはんだ粒子 1 は、いずれも平面部 1 1 が第二の樹脂層 2 d 側を向いた状態で、異方性導電フィルム 1 0 中に配置されている。

[0097] 積層工程は、第一の樹脂層 2 b の、はんだ粒子 1 が転写された側の表面 2 c 上に、絶縁性樹脂材料で構成される第二の樹脂層 2 d を形成することによ

り、異方性導電フィルム 10 を得る工程である。

[0098] 図 8 (c) は、積層工程後の状態であって、第一の樹脂層 2 b の表面 2 c 上に、はんだ粒子 1 を覆うように第二の樹脂層 2 d を形成した後、支持体 6 5 を取り除いた状態を示している。第二の樹脂層 2 d は、絶縁性樹脂材料からなる絶縁性フィルムを第一の樹脂層 2 b にラミネートすることによって形成してもよく、絶縁性樹脂材料を含むワニスで第一の樹脂層 2 b を被覆した後、硬化処理を施すことによって形成してもよい。

[0099] 次に、図 9 を参照しながら、第二実施形態に係る異方性導電フィルム 10 の製造方法について説明する。

[0100] 第二実施形態では、準備工程、收容工程及び融合工程を第一実施形態と同様にして実施した後、転写工程において、凹部 6 2 の内部にまで絶縁性樹脂材料を侵入させることにより、はんだ粒子 1 を第一の樹脂層 2 b に埋設する。

[0101] 図 9 (a) に示す基体 6 0 は、凹部 6 2 のそれぞれに一個のはんだ粒子 1 が收容された状態である。この基体 6 0 の凹部 6 2 の開口側の面に、層状の絶縁性樹脂材料 2 a を対向させて、基体 6 0 と絶縁性樹脂材料 2 a とを近づける (図 9 (a) における矢印 A, B)。

[0102] 図 9 (b) は、転写工程後の状態であって、基体 6 0 の凹部 6 2 の開口側の面を絶縁性樹脂材料 2 a に接触させたことにより、基体 6 0 の凹部 6 2 に收容されていたはんだ粒子 1 が絶縁性樹脂材料 2 a に転写された状態を示している。転写工程を経ることで、所定の位置に複数のはんだ粒子 1 が配置された第一の樹脂層 2 b が得られる。第一の樹脂層 2 b の表面 2 c 側には、凹部 6 2 に応じた複数の凸部 2 e が形成されており、これら凸部 2 e にはんだ粒子 1 が埋設されている。このような第一の樹脂層 2 b を得るため、転写工程では、凹部 6 2 の内部にまで絶縁性樹脂材料 2 a を侵入させる。具体的には、基体 6 0 と絶縁性樹脂材料 2 a とを、積層方向 (図 9 (a) における矢印 A, B の方向) に加圧することで、絶縁性樹脂材料 2 a を凹部 6 2 の内部に侵入させてよい。また、転写工程を減圧雰囲気下で行うと、絶縁性樹脂材

料 2 a が凹部 6 2 の内部に入りやすくなる。また、図 9 では層状の絶縁性樹脂材料 2 a によって転写工程を実施しているが、絶縁性樹脂材料を含むワニスに凹部 6 2 の内部及び基体 6 0 の表面に塗布し、硬化処理を施すことによって、第一の樹脂層 2 b を得ることもできる。

[0103] 図 9 (c) は、積層工程後の状態であって、第一の樹脂層 2 b の表面 2 c 上に、第二の樹脂層 2 d を形成した後、支持体 6 5 を取り除いた状態を示している。第二の樹脂層 2 d は、絶縁性樹脂材料からなる絶縁性フィルムを第一の樹脂層 2 b にラミネートすることによって形成してもよく、絶縁性樹脂材料を含むワニスで第一の樹脂層 2 b を被覆した後、硬化処理を施すことによって形成してもよい。

[0104] なお、上記製造方法において、複数のはんだ粒子 1 は、いずれも平面部 1 1 が第二の樹脂層 2 d 側を向いた状態で、異方性導電フィルム 1 0 中に配置されている。融合工程で形成されたはんだ粒子 1 を一度取り出し、フラックス成分での被覆等の処理を施した後、再度、凹部 6 2 に再配置する方法を採用した場合、複数のはんだ粒子 1 は、平面部 1 1 の向きが互いに異なってもよい。図 1 0 (a) は、一度取り出したはんだ粒子 1 を凹部 6 2 に再配置した状態を示している。このような状態で転写工程及び積層工程を行うことで、複数のはんだ粒子 1 は、平面部 1 1 の向きが一致しない状態で異方性導電性フィルム 1 0 中に配置される。図 1 0 (b) は、複数のはんだ粒子 1 が、平面部 1 1 の向きが一致しない状態で異方性導電性フィルム 1 0 に配置された状態を示す図である。

[0105] <接続構造体>

図 1 1 は、本実施形態に係る接続構造体 5 0 A の一部を拡大して模式的に示す断面図である。すなわち、図 1 1 は、第一の回路部材 3 0 の電極 3 2 と第二の回路部材 4 0 の電極 4 2 が、融着して形成されたはんだ層 7 0 を介して電氣的に接続された状態を模式的に示したものである。本明細書において「融着」とは上記のとおり、電極の少なくとも一部が熱によって融解されたはんだ粒子 1 によって接合され、その後、これが固化する工程を経ることに

よって電極の表面にはんだが接合された状態を意味する。第一の回路部材 30 は、第一の回路基板 31 と、その表面 31a 上に配置された第一の電極 32 とを備える。第二の回路部材 40 は、第二の回路基板 41 と、その表面 41a 上に配置された第二の電極 42 とを備える。回路部材 30、40 の間に充填された絶縁樹脂層 55 は、第一の回路部材 30 と第二の回路部材 40 が接着された状態を維持するとともに、第一の電極 32 と第二の電極 42 が電気的に接続された状態を維持する。

[0106] 回路部材 30、40 のうちの一方の具体例として、IC チップ（半導体チップ）、抵抗体チップ、コンデンサチップ、ドライバー IC 等のチップ部品；リジット型のパッケージ基板が挙げられる。これらの回路部材は、回路電極を備えており、多数の回路電極を備えているものが一般的である。回路部材 30、40 のうちの他方の具体例としては、金属配線を有するフレキシブルテープ基板、フレキシブルプリント配線板、インジウム錫酸化物（ITO）が蒸着されたガラス基板等の配線基板が挙げられる。

[0107] 第一の電極 32 または第二の電極 42 の具体例としては、銅、銅／ニッケル、銅／ニッケル／金、銅／ニッケル／パラジウム、銅／ニッケル／パラジウム／金、銅／ニッケル／金、銅／パラジウム、銅／パラジウム／金、銅／スズ、銅／銀、インジウム錫酸化物等の電極が挙げられる。第一の電極 32 または第二の電極 42 は、無電解めっき又は電解めっき又はスパッタで形成することができる。

[0108] 図 12 は、図 11 に示す接続構造体 50A の変形例である接続構造体 50B を模式的に示す断面図である。接続構造体 50B においては、はんだ層 70 は第一の回路部材 30 の電極 32 と第二の回路部材 40 の電極 42 に部分的に融着している。

[0109] 図 13 は、図 11 に示す接続構造体 50A の変形例である接続構造体 50C を模式的に示す断面図である。同図は、第一の電極 32 及び第二の電極 42 が銅からなる場合であって、特に高温放置を行った後の電極部の断面を表している。高温放置により金属間化合物からなる層 71 が形成されている。

[0110] 図14は、図11に示す接続構造体50Aの変形例である接続構造体50Dを模式的に示す断面図である。同図は、第一の電極32及び第二の電極42が銅からなる場合であって、特に高温放置を行った後の電極部の断面を表している。高温放置により金属間化合物からなる層71が形成されている。図14は、図13と比較して、高温放置により金属間化合物からなる層71が厚く形成されたことを表しており、落下衝撃などの衝撃を加えると、信頼性が低下する。

[0111] 図15は、図11に示す接続構造体50Aの変形例である接続構造体50Eを模式的に示す断面図である。同図は、第一の電極32及び第二の電極42が銅からなる場合であって、特に高温放置を行った後の電極部の断面を表している。高温放置により金属間化合物からなる層71が形成されている。図15は、図13と比較して、第一の電極32と第二の電極42の間に形成されたはんだ層70の厚さが薄い場合を示している。

[0112] 図16は、図11に示す接続構造体50Aの変形例である接続構造体50Fを模式的に示す断面図である。同図は、第一の電極32及び第二の電極42が銅からなる場合であり、図15をさらに高温放置を行った後の電極部の断面を表している。高温放置により金属間化合物からなる層71が形成されている。この場合、はんだ層は全て、金属間化合物に変化し、厚さが薄い金属間化合物の層71が形成されていることを表している。図16は、図13と比較して、第一の電極32または第二の電極42の間に形成された、もとのはんだ層の厚さが薄く、はんだ層が全て金属間化合物に変化しても、金属間化合物の層71が薄いことを表している。一般的に、金属間化合物の層が厚いと、落下衝撃等の衝撃を加えた際に、信頼性が低下する傾向にあるが、はんだ層の全て金属間化合物に変化し、薄く存在することで、落下衝撃を加えても、信頼性を高く維持することができる。かかる金属間化合物の層71の厚さは0.1～10.0 μm が好ましく、0.3～8.0 μm がより好ましく、0.5～6.0 μm がさらに好ましい。

[0113] <接続構造体の製造方法>

図 1 7 (a) 及び図 1 7 (b) を参照しながら、接続構造体の製造方法について説明する。これらの図は、図 1 1 に示す接続構造体 5 0 A を形成する過程の一例を模式的に示す断面図である。まず、図 1 に示す異方性導電フィルム 1 0 を予め準備し、これを第一の回路部材 3 0 と第二の回路部材 4 0 とが対面するように配置する (図 1 7 (a)) 。このとき、第一の回路部材 3 0 の第一の電極 3 2 と第二の回路部材 4 0 の第二の電極 4 2 とが対向するように設置する。その後、これらの部材の積層体の厚さ方向 (図 1 7 (a) に示す矢印 A 及び矢印 B の方向) に加圧する。矢印 A 及び矢印 B の方向に加圧する際に全体をはんだ粒子 1 の融点よりも高い温度 (例えば 1 3 0 ~ 2 6 0 ° C) に少なくとも加熱することによって、はんだ粒子 1 が溶融し、第一の電極 3 2 と第二の電極 4 2 の間に寄り集まって、はんだ層 7 0 が形成され、その後、冷却することで第一の電極 3 2 と第二の電極 4 2 の間にはんだ層 7 0 が固着され、第一の電極 3 2 と第二の電極 4 2 が電氣的に接続される。

[0114] 絶縁性フィルム 2 が例えば熱硬化性樹脂からなる場合、矢印 A 及び矢印 B の方向に加圧する際に全体を加熱することによって熱硬化性樹脂を硬化させることができる。これにより、熱硬化性樹脂の硬化物からなる絶縁樹脂層 5 5 が回路部材 3 0 , 4 0 の間に形成される。

[0115] 図 1 8 は、図 1 7 に示す接続構造体 5 0 A の製造方法の変形例を模式的に示す断面図である。この変形例に係る製造方法においては、はんだ粒子 1 の一部が電極 3 2 , 4 2 の融着に寄与せずに絶縁樹脂層 5 5 内に残存しているものの、異方性導電フィルム 1 0 において特定の位置にはんだ粒子 1 が配置されているに過ぎず、つまり、はんだ粒子 1 の密度が十分に低いため、絶縁信頼性を高く維持することができる。

[0116] 図 1 9 は、図 1 7 に示す接続構造体 5 0 A の製造方法の変形例を模式的に示す断面図である。この変形例に係る製造方法においては、実質的に全てのはんだ粒子 1 がはんだ層 7 0 となり、第一の回路部材 3 0 の第一の電極 3 2 と第二の回路部材 4 0 の第二の電極 4 2 を融着している。異方性導電フィルム 1 0 におけるはんだ粒子 1 の配置をあらかじめ設計することで、融着に寄

与せずに残存するはんだ粒子 1 を極力低減することが可能である。これにより、接続構造体の絶縁信頼性をより一層向上することができる。

[0117] 図 20、図 21、図 22 及び図 23 は、押圧及び加熱がなされる前の異方性導電フィルム 10 のはんだ粒子 1 の位置と第一の電極 32 の位置との関係を模式的に示す図である。

[0118] 上述の実施形態及びそれらの変形例に係る接続構造体の適用対象としては、液晶ディスプレイ、パーソナルコンピュータ、携帯電話、スマートフォン、タブレット等のデバイスが挙げられる。

[0119] 以上、本発明の好適な実施形態について説明したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではない。

実施例

[0120] 以下、実施例によって本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0121] <作製例 1>

(工程 a 1) はんだ微粒子の分級

S n - B i はんだ微粒子 (5 N P l u s 社製、融点 139℃、T y p e 8) 100 g を、蒸留水に浸漬し、超音波分散させた後、静置し、上澄みに浮遊するはんだ微粒子を回収した。この操作を繰り返して、10 g のはんだ微粒子を回収した。得られたはんだ微粒子の平均粒子径は 1.0 μm、C. V. 値は 42% であった。

(工程 b 1) 基体への配置

開口径 1.2 μm φ、底部径 1.0 μm φ、深さ 1.0 μm (底部径 1.0 μm φ は、開口部を上面からみると、開口径 1.2 μm φ の中央に位置する) の凹部を複数有する基体 (ポリイミドフィルム、厚さ 100 μm) を準備した。複数の凹部は、1.0 μm の間隔で規則的に配列させた。工程 a で得られたはんだ微粒子 (平均粒子径 1.0 μm、C. V. 値 42%) を基体の凹部に配置した。なお、基体の凹部が形成された面側を微粘着ローラーでこすることで余分なはんだ微粒子を取り除き、凹部内のみにはんだ微粒子が

配置された基体を得た。

(工程 c 1) はんだ粒子の形成

工程 b 1 で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素還元炉（新港精機株式会社製真空半田付装置）に入れ、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して炉内を水素で満たした。その後、炉内を 280℃で 20 分保った後、再び真空に引き、窒素を導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

(工程 d 1) はんだ粒子の回収

工程 c 1 を経た基体を凹部裏側よりタップすることで、凹部よりはんだ粒子を回収した。得られたはんだ粒子を、下記の方法で評価した。

[0122] (はんだ粒子の評価)

SEM 観察用台座表面に固定した導電テープ上に、得られたはんだ粒子を載せ、厚さ 5 mm のステンレス板に SEM 観察用台座をタップしてはんだ粒子を導電テープ上に万遍なく広げた。その後、導電テープ表面に圧縮窒素ガスを吹きかけ、はんだ粒子を導電テープ上に単層に固定した。SEM にてはんだ粒子の直径を 300 個測定し、平均粒子径及び C. V. 値を算出した。結果を表 2 に示す。

[0123] <作製例 2 ~ 1 2 >

凹部サイズを表 1 に記載のとおり変更したこと以外は、作製例 1 と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表 2 に示す。

[0124] <作製例 1 3 >

工程 c 1 に代えて、以下の工程 c 2 を行ったこと以外は、作製例 1 と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表 2 に示す。

(工程 c 2) はんだ粒子の形成

工程 b 1 で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉（新港精機株式会社製プラズマリフロー装置）に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を 120℃に調整し、5 分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の

水素ガスを除去し、170℃まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0125] <作製例 14～24>

凹部サイズを表1に記載のとおり変更したこと以外は、作製例13と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表2に示す。

[0126] <作製例 25>

工程c1に代えて、以下の工程c3を行ったこと以外は、作製例1と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表2に示す。

(工程c2) はんだ粒子の形成

工程b1で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、ギ酸還元炉に投入し、真空引き後、ギ酸ガスを炉内に導入して、炉内をギ酸ガスで満たした。その後、炉内を130℃に調整し、5分間温度を保持した。その後、真空引きにて炉内のギ酸ガスを除去し、180℃まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0127] <作製例 26～36>

凹部サイズを表1に記載のとおり変更したこと以外は、作製例25と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表2に示す。

[0128] <作製例 37>

工程c1に代えて、以下の工程c4を行ったこと以外は、実施例1と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表2に示す。

(工程c4) はんだ粒子の形成

工程b1で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、ギ酸コンベアリフロー炉 (Heller Industries, Inc. 製 1913MK) に投入し、コンベアにて搬送しながら、窒素ゾーン、窒素および蟻酸ガス混合ゾーン、窒素ゾーンを連続して通過させた。窒素および蟻酸ガス混合ゾーンを5分間で通過させ、はんだ粒子を形成した。

[0129] <作製例 3 8 ~ 4 8 >

凹部サイズを表 1 に記載のとおり変更したこと以外は、作製例 3 7 と同様に
してはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表 2 に示す。

[0130]

[表1]

開口径	作製例1	作製例2	作製例3	作製例4	作製例5	作製例6	作製例7	作製例8	作製例9	作製例10	作製例11	作製例12
μm	1.2	1.7	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	11	15	26	33	40
底部径	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	26	33	40
深さ	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	15	15	15
間隔	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
開口径	作製例13	作製例14	作製例15	作製例16	作製例17	作製例18	作製例19	作製例20	作製例21	作製例22	作製例23	作製例24
μm	1.2	1.7	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	11	15	26	33	40
底部径	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	26	33	40
深さ	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	15	15	15
間隔	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
開口径	作製例25	作製例26	作製例27	作製例28	作製例29	作製例30	作製例31	作製例32	作製例33	作製例34	作製例35	作製例36
μm	1.2	1.7	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	11	15	26	33	40
底部径	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	26	33	40
深さ	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	15	15	15
間隔	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
開口径	実施例37	実施例38	実施例39	実施例40	実施例41	実施例42	実施例43	実施例44	実施例45	実施例46	実施例47	実施例48
μm	1.2	1.7	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	11	15	26	33	40
底部径	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	26	33	40
深さ	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	15	15	15
間隔	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30

[0131] [表2]

平均粒子径	μm	实施例1	实施例2	实施例3	实施例4	实施例5	实施例6	实施例7	实施例8	实施例9	实施例10	实施例11	实施例12
C. V. 値	%	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
		19	16	14	10	7.9	7.8	6.6	5.2	4.4	4.2	3.9	3.3
平均粒子径	μm	实施例13	实施例14	实施例15	实施例16	实施例17	实施例18	实施例19	实施例20	实施例21	实施例22	实施例23	实施例24
C. V. 値	%	0.9	1.3	1.8	2.7	3.8	4.8	6	9	14	19	24	29
		10	10	9.6	9.3	7.9	7.8	6.6	5.2	4.4	4.2	3.9	3.3
平均粒子径	μm	实施例25	实施例26	实施例27	实施例28	实施例29	实施例30	实施例31	实施例32	实施例33	实施例34	实施例35	实施例36
C. V. 値	%	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
		16	15	12	9.5	7.9	7.4	6.6	5.2	4.4	4.2	3.9	3.3
平均粒子径	μm	实施例37	实施例38	实施例39	实施例40	实施例41	实施例42	实施例43	实施例44	实施例45	实施例46	实施例47	实施例48
C. V. 値	%	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
		11	10	9.9	9.5	7.8	7.4	6.4	5.3	4.5	4.4	4.0	3.9

[0132] <実施例 1>

(A) 異方性導電フィルムの作製

(工程 e 1) フラックスコートはんだ粒子の製造

作製例 13 と同じ方法ではんだ粒子を作製した。得られたはんだ粒子 200 g と、アジピン酸 40 g と、アセトン 70 g とを 3 つ口フラスコに秤量し、次にはんだ粒子表面の水酸基とアジピン酸のカルボキシル基との脱水縮合反応を触媒するジブチル錫オキシド 0.3 g を添加し、60℃で 4 時間反応させた。その後、はんだ粒子を濾過して回収した。回収したはんだ粒子と、アジピン酸 50 g と、トルエン 200 g と、パラトルエンスルホン酸 0.3 g とを 3 つ口フラスコに秤量し、真空引き、及び還流を行いながら、120℃で、3 時間反応させた。この際、ディーンスターク抽出装置を用いて、脱水縮合により生成した水を除去しながら反応させた。その後、濾過によりはんだ粒子を回収し、ヘキサンにて洗浄し、乾燥した。乾燥後のはんだ粒子を気流式解砕機で解砕し、音波篩によりメッシュを通すことで、フラックスコートはんだ粒子を得た。

(工程 f 1) フラックスコートはんだ粒子の配置

開口径 1.2 μm ϕ 、底部径 1.0 μm ϕ 、深さ 1.0 μm (底部径 1.0 μm ϕ は、開口部を上面からみると、開口径 1.2 μm ϕ の中央に位置する) の凹部を複数有する転写型 (ポリイミドフィルム、厚さ 100 μm) を準備した。なお、複数の凹部は、1.0 μm の間隔で規則的に配列させた。この転写型の凹部に、それぞれ工程 e 1 で得たフラックスコートはんだ粒子を配置した。

(工程 g 1) 接着フィルムの作製

フェノキシ樹脂 (ユニオンカーバイド社製、商品名「PKHC」) 100 g と、アクリルゴム (ブチルアクリレート 40 質量部、エチルアクリレート 30 質量部、アクリロニトリル 30 質量部、グリシジルメタクリレート 3 質量部の共重合体、分子量：85 万) 75 g とを、酢酸エチル 400 g に溶解し、溶液を得た。この溶液に、マイクロカプセル型潜在性硬化剤を含有する

液状エポキシ樹脂（エポキシ当量 185、旭化成エポキシ株式会社製、商品名「ノバキュア HX-3941」）300g を加え、攪拌して接着剤溶液を得た。得られた接着剤溶液を、セパレータ（シリコン処理したポリエチレンテレフタレートフィルム、厚さ $40\text{ }\mu\text{m}$ ）にロールコータを用いて塗布し、 90°C で 10 分間の加熱することにより乾燥して、厚さ 4、6、8、12 及び $20\text{ }\mu\text{m}$ の接着フィルム（絶縁樹脂フィルム）をセパレータ上に作製した。

（工程 h 1）フラックスコートはんだ粒子の転写

セパレータ上に形成された接着フィルムと、工程 f 1 でフラックスコートはんだ粒子が配置された転写型とを向かい合わせて配置し、接着フィルムにフラックスコートはんだ粒子を転写させた。

（工程 i 1）異方性導電フィルムの作製

工程 h 1 で得た接着フィルムの転写面に、工程 g 1 と同様の方法で作製された接着フィルムを接触させ、 50°C 、 0.1 MPa ($1\text{ kgf}/\text{cm}^2$) で加熱・加圧させることで、フィルムの断面視において、フラックスコートはんだ粒子が層状に配列された異方性導電フィルムを得た。なお、厚さ $4\text{ }\mu\text{m}$ のフィルムに対しては $4\text{ }\mu\text{m}$ を重ね合わせ、同様に、 $6\text{ }\mu\text{m}$ には $6\text{ }\mu\text{m}$ 、 $8\text{ }\mu\text{m}$ には $8\text{ }\mu\text{m}$ 、 $12\text{ }\mu\text{m}$ には $12\text{ }\mu\text{m}$ 、 $20\text{ }\mu\text{m}$ には $20\text{ }\mu\text{m}$ を重ね合わせることで、 $8\text{ }\mu\text{m}$ 、 $12\text{ }\mu\text{m}$ 、 $16\text{ }\mu\text{m}$ 、 $24\text{ }\mu\text{m}$ 及び $40\text{ }\mu\text{m}$ の厚みの異方性導電フィルムを作製した。

[0133] （B）接続構造体の作製

（工程 j 1）銅バンプ付きチップの準備

下記に示す、5 種類の銅バンプ付きチップ（ $1.7\times 1.7\text{ mm}$ 、厚さ： 0.5 mm ）を準備した。

・チップ C 1…面積 $30\text{ }\mu\text{m}\times 30\text{ }\mu\text{m}$ 、スペース $30\text{ }\mu\text{m}$ 、高さ： $10\text{ }\mu\text{m}$ 、バンプ数 362

・チップ C 2…面積 $15\text{ }\mu\text{m}\times 15\text{ }\mu\text{m}$ 、スペース $10\text{ }\mu\text{m}$ 、高さ： $10\text{ }\mu\text{m}$ 、バンプ数 362

- ・チップC3…面積 $10\mu\text{m}\times 10\mu\text{m}$ 、スペース $10\mu\text{m}$ 、高さ： $7\mu\text{m}$ 、バンプ数362

- ・チップC4…面積 $5\mu\text{m}\times 5\mu\text{m}$ 、スペース $6\mu\text{m}$ 、高さ： $5\mu\text{m}$ 、バンプ数362

- ・チップC5…面積 $3\mu\text{m}\times 3\mu\text{m}$ 、スペース $3\mu\text{m}$ 、高さ： $5\mu\text{m}$ 、バンプ数362

(工程k1) 銅バンプ付き基板の準備

下記に示す、5種類の銅バンプ付き基板（厚さ： 0.7mm ）を準備した。

- ・基板D1…面積 $30\mu\text{m}\times 30\mu\text{m}$ 、スペース $30\mu\text{m}$ 、高さ： $10\mu\text{m}$ 、バンプ数362

- ・基板D2…面積 $15\mu\text{m}\times 15\mu\text{m}$ 、スペース $10\mu\text{m}$ 、高さ： $10\mu\text{m}$ 、バンプ数362

- ・基板D3…面積 $10\mu\text{m}\times 10\mu\text{m}$ 、スペース $10\mu\text{m}$ 、高さ： $7\mu\text{m}$ 、バンプ数362

- ・基板D4…面積 $5\mu\text{m}\times 5\mu\text{m}$ 、スペース $6\mu\text{m}$ 、高さ $5\mu\text{m}$ 、バンプ数362

- ・基板D5…面積 $3\mu\text{m}\times 3\mu\text{m}$ 、スペース $3\mu\text{m}$ 、高さ： $5\mu\text{m}$ 、バンプ数362

(工程l1)

次に、工程i1作製した異方性導電フィルムを用いて、銅バンプ付きチップ（ $1.7\times 1.7\text{mm}$ 、厚さ： 0.5mm ）と、銅バンプ付き基板（厚さ： 0.7mm ）との接続を、以下に示すi)～iii)の手順に従って行うことによって接続構造体を得た。

i) 異方性導電フィルム（ $2\times 19\text{mm}$ ）の片面のセパレータ（シリコーン処理したポリエチレンテレフタレートフィルム、厚さ $40\mu\text{m}$ ）を剥がし、異方性導電フィルムと銅バンプ付き基板を接触させ、 80°C 、 0.98MPa （ $10\text{kgf}/\text{cm}^2$ ）で貼り付けた。

i i) セパレータを剥離し、銅バンプ付きチップのバンプと銅バンプ付き基板のバンプの位置合わせを行った。

i i i) 180℃、40gf／バンプ、30秒の条件でチップ上方から加熱及び加圧を行い、本接続を行った。以下の(1)～(7)の「チップ／異方性導電フィルム／基板」の組み合わせで、(1)～(7)に係る計7種類の接続構造体をそれぞれ作製した。

- (1) チップC1／40μmの厚みの導電フィルム／基板D1
- (2) チップC1／24μmの厚みの導電フィルム／基板D1
- (3) チップC1／16μmの厚みの導電フィルム／基板D1
- (4) チップC2／16μmの厚みの導電フィルム／基板D2
- (5) チップC3／12μmの厚みの導電フィルム／基板D3
- (6) チップC4／8μmの厚みの導電フィルム／基板D4
- (7) チップC5／8μmの厚みの導電フィルム／基板D5

[0134] <実施例2～12>

作製例14～24と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例14～24のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。

[0135] <比較例1>

はんだ粒子として、Sn-Biはんだ粒子（三井金属社製「Type-4」、平均粒子径26μm、C.V.値25%）を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。

[0136] <比較例2>

下記の成分を下記の質量部で含んだ、はんだ粒子含有異方性導電ペーストを作製した。

- (ポリマー)：12質量部
- (熱硬化性化合物)：29質量部
- (高誘電率硬化剤)：20質量部

(熱硬化剤) : 11.5 質量部

(フラックス) : 2 質量部

(はんだ粒子) 34 質量部

(ポリマー) :

ビスフェノールF (4, 4'-メチレンビスフェノールと2, 4'-メチレンビスフェノールと2, 2'-メチレンビスフェノールとを質量比で2 : 3 : 1で含む) 72 質量部、1, 6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル70 質量部、ビスフェノールF型エポキシ樹脂(DIC社製「EPICLON EXA-830CRP」) 30 質量部を、3つ口フラスコに入れ、窒素フロー下にて、150℃で溶解させた。その後、水酸基とエポキシ基との付加反応触媒であるテトラ-n-ブチルスルホニウムブロミド0.1 質量部を添加し、窒素フロー下にて、150℃で6時間、付加重合反応させることにより反応物(ポリマー)を得た。

(熱硬化性化合物) : レゾルシノール型エポキシ化合物、ナガセケムテックス社製「EX-201」

(高誘電率硬化剤) : ペンタエリスリトールテトラキス(3-メルカプトブチレート)

(熱硬化剤) : 昭和電気社製「カレンズMT PE1」

(フラックス) : アジピン酸、和光純薬工業社製

(はんだ粒子) :

SnBi はんだ粒子200g (三井金属社製「ST-3」) と、アジピン酸40g と、アセトン70g とを3つ口フラスコに秤量し、次にはんだ粒子本体の表面の水酸基とアジピン酸のカルボキシル基との脱水縮合触媒であるジブチル錫オキサイド0.3g を添加し、60℃で4時間反応させた。その後、はんだ粒子を濾過することで回収した。回収したはんだ粒子と、アジピン酸50g と、トルエン200g と、パラトルエンスルホン酸0.3g とを3つ口フラスコに秤量し、真空引き、及び還流を行いながら、120℃で、3時間反応させた。この際、ディーンスターク抽出装置を用いて、脱水縮合

により生成した水を除去しながら反応させた。その後、濾過によりはんだ粒子を回収し、ヘキサンにて洗浄し、乾燥した。その後、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。得られたSnBiはんだ粒子の平均粒子径は $4\mu\text{m}$ 、CV値32%であった。

[0137] 実施例1と同様の銅バンプ付きチップと銅バンプ付き基板を準備した。銅バンプ付き基板の上部に、はんだ粒子含有異方性導電ペーストを配置し、さらにその上に銅バンプ付きチップを配置した。銅バンプ付きチップのバンプと銅バンプ付き基板のバンプの位置合わせを行い、 180°C 、 4gf /バンプ、30秒の条件でチップ上方から加熱及び加圧を行って本接続を行った。以下の(1)～(7)の組み合わせで、(1)～(7)に係る計7種類の接続構造体をそれぞれ作製した。

(1) チップC1/ $40\mu\text{m}$ の厚み(銅バンプ上)のはんだ粒子含有異方性導電ペースト/基板D1

(2) チップC1/ $24\mu\text{m}$ の厚み(銅バンプ上)のはんだ粒子含有異方性導電ペースト/基板D1

(3) チップC1/ $16\mu\text{m}$ の厚み(銅バンプ上)のはんだ粒子含有異方性導電ペースト/基板D1、

(4) チップC2/ $16\mu\text{m}$ の厚み(銅バンプ上)のはんだ粒子含有異方性導電ペースト/基板D2、

(5) チップC3/ $12\mu\text{m}$ の厚み(銅バンプ上)のはんだ粒子含有異方性導電ペースト/基板D3、

(6) チップC4/ $8\mu\text{m}$ の厚み(銅バンプ上)のはんだ粒子含有異方性導電ペースト/基板D4、

(7) チップC5/ $8\mu\text{m}$ の厚み(銅バンプ上)のはんだ粒子含有異方性導電ペースト/基板D5、

を組み合わせで接続し、上記(1)～(7)の接続構造体を得た。

[0138] [接続構造体の評価]

得られた接続構造体の一部について、導通抵抗試験及び絶縁抵抗試験を以

下のように行った。

[0139] (導通抵抗試験－吸湿耐熱試験)

銅バンプ付きチップ（バンプ）／銅バンプ付き基板（バンプ）間の導通抵抗に関して、導通抵抗の初期値と吸湿耐熱試験（温度 85℃、湿度 85% の条件で 100、500、1000 時間放置）後の値を、20 サンプルについて測定し、それらの平均値を算出した。得られた平均値から下記基準に従って導通抵抗を評価した。結果を表 3 に示す。なお、吸湿耐熱試験 1000 時間後に、下記 A 又は B の基準を満たす場合は導通抵抗が良好といえる。

A：導通抵抗の平均値が 2 Ω 未満

B：導通抵抗の平均値が 2 Ω 以上 5 Ω 未満

C：導通抵抗の平均値が 5 Ω 以上 10 Ω 未満

D：導通抵抗の平均値が 10 Ω 以上 20 Ω 未満

E：導通抵抗の平均値が 20 Ω 以上

[0140] (導通抵抗試験－高温放置試験)

銅バンプ付きチップ（バンプ）／銅バンプ付き基板（バンプ）間の導通抵抗に関して、高温放置前と、高温放置試験後（温度 100℃ の条件で 100、500、1000 時間放置）のサンプルについて測定した。なお、高温放置後は、落下衝撃を加え、落下衝撃後のサンプルの導通抵抗を測定した。落下衝撃は、前記の接続構造体を、金属板にネジ止め固定し、高さ 50 cm から落下させた。落下後、最も衝撃の大きいチップコーナーのはんだ接合部（4 箇所）において直流抵抗値を測定し、測定値が初期抵抗から 5 倍以上増加したときに破断が生じたとみなして、評価を行った。なお、20 サンプル、4 箇所合計 80 箇所の測定を行った。結果を表 4 に示す。落下回数 20 回後に下記 A 又は B の基準を満たす場合ははんだ接続信頼性が良好であると評価した。

A：落下回数 20 回後において、初期抵抗から 5 倍以上増加したはんだ接続部が、80 箇所全てにおいて認められなかった。

B：落下回数 20 回後において、初期抵抗から 5 倍以上増加したはんだ接続

部が、1 箇所以上 5 箇所以内で認められた。

C：落下回数 20 回後において、初期抵抗から 5 倍以上増加したはんだ接続部が、6 箇所以上 20 箇所以内で認められた。

D：落下回数 20 回後において、初期抵抗から 5 倍以上増加したはんだ接続部が、21 箇所以上で認められた。

[0141] (絶縁抵抗試験)

チップ電極間の絶縁抵抗に関しては、絶縁抵抗の初期値とマイグレーション試験（温度 60℃、湿度 90%、20V 印加の条件で 100、500、1000 時間放置）後の値を、20 サンプルについて測定し、全 20 サンプル中、絶縁抵抗値が $10^9 \Omega$ 以上となるサンプルの割合を算出した。得られた割合から下記基準に従って絶縁抵抗を評価した。結果を表 5 に示す。なお、吸湿耐熱試験 1000 時間後に、下記 A 又は B の基準を満たした場合は絶縁抵抗が良好といえる。

A：絶縁抵抗値 $10^9 \Omega$ 以上の割合が 100%

B：絶縁抵抗値 $10^9 \Omega$ 以上の割合が 90%以上 100%未満

C：絶縁抵抗値 $10^9 \Omega$ 以上の割合が 80%以上 90%未満

D：絶縁抵抗値 $10^9 \Omega$ 以上の割合が 50%以上 80%未満

E：絶縁抵抗値 $10^9 \Omega$ 以上の割合が 50%未満

[0142]

[表3]

	実施例1 作製例13	実施例2 作製例14	実施例3 作製例15	実施例4 作製例16	実施例5 作製例17	実施例6 作製例18	実施例7 作製例19	実施例8 作製例20	実施例9 作製例21	実施例10 作製例22	実施例11 作製例23	実施例12 作製例24	比較例1	比較例2
接続構造体	はんだ粒子													
(1)	初期									A	A	A	A	
	100時間後									A	A	A	A	
	500時間後									A	A	A	A	
(2)	1000時間後									A	A	A	A	
	初期							A	A	A	A	A	A	
	100時間後							B	A	A	A	A	A	
(3)	500時間後							B	A	A	A	A	A	
	1000時間後							B	A	A	A	A	A	
	初期		A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
(4)	100時間後		B	B	A	A	A	A	A					A
	500時間後		B	B	A	A	A	A	A					B
	1000時間後		B	B	A	A	A	A	A					B
(5)	初期		A	A	A	A	A	A	A					A
	100時間後	A	A	A	A	A	A	A	A					A
	500時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					B
(6)	1000時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					B
	初期	B	A	A	A	A	A	A	A					C
	100時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					A
(7)	500時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					B
	1000時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					C
	初期	B	A	A	A	A	A	A	A					C
	100時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					C
	500時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					D
	1000時間後	B	A	A	A	A	A	A	A					E

吸湿
耐熱
試験

透過
抵抗

[0143] [表4]

	接続構造体	実施例1 作製例13	実施例2 作製例14	実施例3 作製例15	実施例4 作製例16	実施例5 作製例17	実施例6 作製例18	実施例7 作製例19	実施例8 作製例20	実施例9 作製例21	実施例10 作製例22	実施例11 作製例23	実施例12 作製例24	比較例1	比較例2
(1)	はんた粒子 初期										A	A	A	A	
	100時間後														
	500時間後														
(3)	1000時間後														
	初期			A	A	A	A	A	A	A					A
	100時間後			B	A	A	A	A	A	A					B
(6)	500時間後			B	A	A	A	A	A	A					B
	1000時間後			B	A	A	A	A	A	A					B
	初期	A	A	A	A	A	A	A	A	A					B
	100時間後	B	A	A	A	A	A	A	A						C
	500時間後	B	A	A	A	A	A	A							D
	1000時間後	B	A	A	A	A	A	A							D

[0144] [表5]

接続構造体	はんだ粒子	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	比較例1	比較例2
		作製例13	作製例14	作製例15	作製例16	作製例17	作製例18	作製例19	作製例20	作製例21	作製例22	作製例23	作製例24		
(1)	初期										A	A	A	C	
	100時間後										A	B	B	C	
	500時間後										A	B	B	D	
(2)	1000時間後										A	B	B	D	
	初期								A	A	A	A		D	
	100時間後								A	A	A	B		D	
(3)	500時間後								A	A	A	B		D	
	1000時間後								A	A	A	B		D	
	初期			A	A	A	A	A	A	A	A			E	
(4)	100時間後			A	A	A	A	A	A	A					C
	500時間後			A	A	A	A	A	A	A					C
	1000時間後			A	A	A	A	A	A	A					C
(5)	初期			A	A	A	A	A	A	A					D
	100時間後			A	A	A	A	A	A	B					D
	500時間後			A	A	A	A	A	A	B					D
(6)	1000時間後			A	A	A	A	A	A	B					E
	初期	A	A	A	A	A	A	A	A						E
	100時間後	A	A	A	A	A	A	A	A						D
(7)	500時間後	A	A	A	A	A	A	A	B						D
	1000時間後	A	A	A	A	A	A	A	B						D
	初期	A	A	A	A	A	A	A	B						E
(8)	100時間後	A	A	A	A	A	A	A							E
	500時間後	A	A	A	A	A	A	A							E
	1000時間後	A	A	A	A	A	A	A							E

絶縁
抵抗吸湿
耐熱
試験

[0145] <はんだ粒子の評価>

作製例 1 で得られたはんだ粒子を用いたこと以外は、実施例 1 と同様にして（工程 e 1）～（工程 h 1）を行い、はんだ粒子が転写された接着フィルムを得た。この接着フィルムを、10 cm×10 cm 切り出し、はんだ粒子が配置されている面に Pt スパッタを施した後、SEM 観察を行った。300 個のはんだ粒子を観察し、はんだ粒子の平均直径 B（平均粒子径）、平面部の平均直径 A、真円度、 A/B 及び Y/X を算出した。また、作製例 2～12 のはんだ粒子を用いて同様の測定を行った。結果を表 6 に示す。

真円度：はんだ粒子の 2 つの同心円（最小外接円の半径 r 、最大内接円の半径 R ）の半径の比 r/R 。

A/B ：はんだ粒子の直径 B に対する平面部の直径 A の比。

Y/X ：はんだ粒子の投影像に外接する四角形を二対の平行線により作成した場合において、対向する辺間の距離を X 及び Y （但し $Y < X$ ）としたときの、 X に対する Y の比。

[0146]

[表6]

	作製例1	作製例2	作製例3	作製例4	作製例5	作製例6	作製例7	作製例8	作製例9	作製例10	作製例11	作製例12
平均直径B	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
平面部直径A	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	1.4	2.0	3.6	4.5	5.1
真円度	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93	0.93
A/B	0.2	0.2	0.2	0.17	0.15	0.14	0.13	0.14	0.13	0.18	0.18	0.17
Y/X	0.94	0.92	0.92	0.93	0.93	0.91	0.91	0.92	0.9	0.87	0.84	0.82

[0147] なお、図24(a)及び図24(b)は、作製例17で形成されたはんだ粒子のSEM画像を示す図であり、図25は、比較例1で使用したはんだ粒子のSEM画像を示す図である。

[0148] また、図26(a)及び図26(b)は、平面部11が同一面側を向くように一様に並んだはんだ粒子1のSEM画像を示す図である。すなわち、図8(b)を第一の樹脂層の表面2c側から見たはんだ粒子1を示す図である。より具体的には、作製例17の工程c1を実施した後に、はんだ粒子1が収納された凹部62の開口側面に、絶縁性樹脂材料2aを接触させ、はんだ粒子1を第一の樹脂層の表面2cに転写し、第一の接着層の表面2c側からはんだ粒子1を観察した図である。この図から、平面部11の方向が揃った状態で、はんだ粒子1を樹脂層表面に配置できることが確認できる。

[0149] <作製例49>

工程b1において、図27に示す断面形状(図4(b)と近似凹部形状)、すなわち底部径aが $0.6\mu\text{m}$ 、開口径b1が $1.0\mu\text{m}$ 、開口径b2が $1.2\mu\text{m}$ (底部径a: $1.0\mu\text{m}\phi$ は、開口部を上面からみると、開口径b2: $1.2\mu\text{m}\phi$ の中央に位置する)の凹部を複数有する基体を用いたことと、工程c1に代えて、以下の工程c2を行ったこと以外は、作製例1と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表8に示す。

(工程c2) はんだ粒子の形成

工程b1で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉(新港精機株式会社製プラズマリフロー装置)に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を 120°C に調整し、5分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の水素ガスを除去し、 170°C まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0150] <作製例50～60>

凹部サイズを表7に記載のとおり変更したこと以外は、作製例49と同様

にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表8に示す。

[0151] <作製例61>

工程b1において、図4(e)に示す断面形状、すなわち開口部が $1.2\mu\text{m}$ で、開口部から底部に行くほど直径が細くなる、逆円錐状の形状の凹部を複数有する基体を用いたことと、工程c1に代えて、以下の工程c2を行ったこと以外は、作製例1と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表8に示す。

(工程c2) はんだ粒子の形成

工程b1で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉(新港精機株式会社製プラズマリフロー装置)に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を 120°C に調整し、5分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の水素ガスを除去し、 170°C まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0152] <作製例62～72>

凹部サイズを表7に記載のとおり変更したこと以外は、作製例61と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表8に示す。

[0153] <作製例73>

工程b1において、図4(h)に示す断面形状、すなわち開口部が $1.2\mu\text{m}$ で、底部が連続曲面を有し、この連続曲面が開口部から深さ方向に向かって凸型になっている凹部を複数有する基体を用いたことと、工程c1に代えて、以下の工程c2を行ったこと以外は、作製例1と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表8に示す。なおこの場合の深さは、開口部が位置する基体表面と平行な線から引いた垂直線が、底部連続曲面の最も深い位置と交差する点までの距離とする。

(工程c2) はんだ粒子の形成

工程b1で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉

(新港精機株式会社製プラズマリフロー装置)に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を120℃に調整し、5分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の水素ガスを除去し、170℃まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0154] <作製例74～84>

凹部サイズを表7に記載のとおり変更したこと以外は、作製例61と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表8に示す。

[0155] <実施例13～24>

作製例49～60と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例49～60のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。結果を表9～11に示す。

<実施例25～36>

作製例61～72と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例61～72のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。結果を表12～14に示す。

[0156] <実施例37～48>

作製例73～84と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例73～84のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。結果を表15～17に示す。

[0157] 作製例49から作製例60で得られたはんだ粒子は、作製例13から作製例24で得られたはんだ粒子と同等の性能を発揮できることが確認された。また、作製例49から作製例60で得られたはんだ粒子は、作製例13から作製例24と同様に一部に平面部を有した形状を有していた。

作製例 6 1 から作製例 7 2 で得られたはんだ粒子は、作製例 1 3 から作製例 2 4 で得られたはんだ粒子と同等の性能を発揮できることが確認された。

また、作製例 6 1 から作製例 7 2 で得られたはんだ粒子は、その断面直径が連続的に変化した、疑似円錐形のような形状をしていることが確認された。

作製例 7 3 から作製例 8 4 で得られたはんだ粒子は、作製例 1 3 から作製例 2 4 で得られたはんだ粒子と同等の性能を発揮できることが確認された。

また、作製例 7 3 から作製例 8 4 で得られたはんだ粒子は、疑似球形となることが確認された。なお、この形状は、樹脂接着フィルムを用いて電極同士を接続する場合、圧力を加えた時に、樹脂を排除しやすく、電極とはんだ粒子の接触がしやすく安定した接続を得られる利点がある。

[0158]

[表7]

開口径b2	μm	作製例49	1.2	1.7	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	12	18	30	38	48
開口径b1	μm		1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	25	30	40
底部径a	μm		0.6	0.8	1.2	1.6	2	2	4	6	7	14	17	25
深さ	μm		1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	15	15	15
間隔	μm		1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
開口径b	μm	作製例61	1.2	1.7	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	12	18	30	38	48
深さ	μm		1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	15	15	15
間隔	μm		1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
開口径b	μm	作製例73	1.2	1.7	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	12	18	30	38	48
深さ	μm		1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	15	15	15
間隔	μm		1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30

[0159] [表8]

	作製例49	作製例50	作製例51	作製例52	作製例53	作製例54	作製例55	作製例56	作製例57	作製例58	作製例59	作製例60
平均粒子径	1.1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
C. V. 値	15	15	14	10	7.9	7.8	6.6	5.2	4.4	4.2	3.9	3.3
	作製例61	作製例62	作製例63	作製例64	作製例65	作製例66	作製例67	作製例68	作製例69	作製例70	作製例71	作製例72
平均粒子径	0.9	1.3	1.8	2.7	3.8	4.8	6	9	14	19	24	29
C. V. 値	19	17	16	13	12	11	9.3	8.8	7.8	6.9	6.1	5.5
	作製例73	作製例74	作製例75	作製例76	作製例77	作製例78	作製例79	作製例80	作製例81	作製例82	作製例83	作製例84
平均粒子径	1	1.5	2	3	4	5	6	10	15	20	25	30
C. V. 値	13	13	10	9.1	7.5	7.1	6.3	5	4.2	4.1	3.7	3.2

[0160] [表9]

[illegible]

[0161] [表10]

		実施例13 作製例49	実施例14 作製例50	実施例15 作製例51	実施例16 作製例52	実施例17 作製例53	実施例18 作製例54	実施例19 作製例55	実施例20 作製例56	実施例21 作製例57	実施例22 作製例58	実施例23 作製例59	実施例24 作製例60
導通抵抗	高温放置試験	(1)	はんだ粒子 初期 100時間後 500時間後 1000時間後								A	A	A
											A	A	A
											A	A	A
		(3)	初期 100時間後 500時間後 1000時間後								A		
				A	A	A	A	A	A	A			
				B	A	A	A	A	A	A			
		(6)	初期 100時間後 500時間後 1000時間後										
				B	A	A	A	A	A				
				B	A	A	A	A					
			初期 100時間後 500時間後 1000時間後										
				A	A	A	A	A					
				B	A	A	A	A					

[0162] [表11]

絶縁抵抗	接続構造体	はんだ粒子	吸湿耐熱試験																			
			実施例13 作製例49	実施例14 作製例50	実施例15 作製例51	実施例16 作製例52	実施例17 作製例53	実施例18 作製例54	実施例19 作製例55	実施例20 作製例56	実施例21 作製例57	実施例22 作製例58	実施例23 作製例59	実施例24 作製例60								
(1)		初期										A	A									
		100時間後											B									
		500時間後											B									
		1000時間後											B									
(2)		初期										A	A									
		100時間後											B									
		500時間後											B									
		1000時間後											B									
(3)		初期			A	A																
		100時間後		A	A																	
		500時間後		A	A																	
		1000時間後		A	A																	
(4)		初期			A	A																
		100時間後		A	A																	
		500時間後		A	A																	
		1000時間後		A	A																	
(5)		初期	A	A	A	A																
		100時間後	A	A	A	A																
		500時間後	A	A	A	A																
		1000時間後	A	A	A	A																
(6)		初期	A	A	A	A																
		100時間後	A	A	A	A																
		500時間後	A	A	A	A																
		1000時間後	A	A	A	A																
(7)		初期	A	A	A	A																
		100時間後	A	A	A	A																
		500時間後	A	A	A	A																
		1000時間後	A	A	A	A																

[0163] [表12]

	接続構造体	はんだ粒子 初期	実施例25 作製例61	実施例26 作製例62	実施例27 作製例63	実施例28 作製例64	実施例29 作製例65	実施例30 作製例66	実施例31 作製例67	実施例32 作製例68	実施例33 作製例69	実施例34 作製例70	実施例35 作製例71	実施例36 作製例72
(1)		100時間後										A	A	A
		500時間後										A	A	A
		1000時間後										A	A	A
		初期								A	A	A	A	
(2)		100時間後								B	A	A	A	
		500時間後								B	A	A	A	
		1000時間後								B	A	A	A	
		初期			A	A	A	A	A	A	A	A		
(3)		100時間後		B	B	B	A	A	A	A	A			
		500時間後		B	B	B	A	A	A	A	A			
		1000時間後		B	B	B	A	A	A	A	A			
		初期		A	A	A	A	A	A	A	A			
(4)		100時間後		B	B	A	A	A	A	A	A			
		500時間後		B	B	A	A	A	A	A	A			
		1000時間後		B	B	A	A	A	A	A	A			
		初期		A	A	A	A	A	A	A	A			
(5)		100時間後	A	B	A	A	A	A	A	A				
		500時間後	B	B	A	A	A	A	A	A				
		1000時間後	B	B	A	A	A	A	A	A				
		初期	B	B	A	A	A	A	A	A				
(6)		100時間後	B	B	A	A	A	A	A					
		500時間後	B	B	A	A	A	A	A					
		1000時間後	B	B	A	A	A	A	A					
		初期	B	B	A	A	A	A	A	A				
(7)		100時間後	B	A	A	A	A	A	A					
		500時間後	B	A	A	A	A	A	A					
		1000時間後	B	A	A	A	A	A	A					
		初期	B	A	A	A	A	A	A	A				

[0164] [表13]

		実施例25 作製例61	実施例26 作製例62	実施例27 作製例63	実施例28 作製例64	実施例29 作製例65	実施例30 作製例66	実施例31 作製例67	実施例32 作製例68	実施例33 作製例69	実施例34 作製例70	実施例35 作製例71	実施例36 作製例72
導通抵抗	高温放置試験	(1)	接続構造体はんだ粒子初期								A	A	A
			100時間後								A	A	A
			500時間後								A	A	A
			1000時間後								A	A	A
		(3)	初期		A	A	A	A	A	A			
			100時間後		A	A	A	A	A	A			
			500時間後		A	A	A	A	A	A			
			1000時間後		B	A	A	A	A	A			
		(6)	初期		A	A	A	A					
			100時間後	B	A	A	A	A					
			500時間後	B	A	A	A	A					
			1000時間後	B	B	A	A	A					

[0166] [表15]

	接続構造体	はんだ粒子 初期	実施例37	実施例38	実施例39	実施例40	実施例41	実施例42	実施例43	実施例44	実施例45	実施例46	実施例47	実施例48
			作製例73	作製例74	作製例75	作製例76	作製例77	作製例78	作製例79	作製例80	作製例81	作製例82	作製例83	作製例84
導通抵抗	(1)	100時間後										A	A	A
		500時間後										A	A	A
		1000時間後										A	A	A
	(2)	初期								A	A	A	A	A
		100時間後								B	A	A	A	
		500時間後								B	A	A	A	
		1000時間後								B	A	A	A	
	(3)	初期			A	A	A	A	A	A	A			
		100時間後			A	A	A	A	A	A	A			
		500時間後			B	A	A	A	A	A	A			
	(4)	1000時間後			B	A	A	A	A	A	A			
		初期			A	A	A	A	A	A	A			
		100時間後			A	A	A	A	A	A	A			
	(5)	500時間後			A	A	A	A	A	A	A			
		1000時間後			B	A	A	A	A	A	A			
		初期	A	A	A	A	A	A	A	A	A			
	(6)	100時間後	A	A	A	A	A	A	A	A	A			
		500時間後	B	B	A	A	A	A	A	A	A			
		1000時間後	B	B	A	A	A	A	A	A	A			
	(7)	初期	A	A	A	A	A	A	A	A	A			
		100時間後	B	A	A	A	A	A	A	A	A			
		500時間後	B	A	A	A	A	A	A	A	A			
		1000時間後	B	A	A	A	A	A	A	A	A			

吸湿
耐熱
試験

[0168] [表17]

[illegible]

[0169] <作製例 85～87>

工程 a 1 において、S n - B i はんだ微粒子（5 N P l u s 社製、融点 139℃、T y p e 9、平均粒子径：3.0 μm、C. V. 値：32%）10g を用いたことと、工程 b 1 において表 18 に示す凹部を用いたことと、工程 c 1 に代えて以下の工程 c 2 を行ったこと以外は、作製例 1 と同様にし てはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表 19 に示す。

（工程 c 2）はんだ粒子の形成

工程 b 1 で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉（新港精機株式会社製プラズマリフロー装置）に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を 120℃ に調整し、5 分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の水素ガスを除去し、170℃ まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0170] <作製例 88～90>

工程 a 1 において、S n - B i はんだ微粒子（5 N P l u s 社製、融点 139℃、T y p e 10、平均粒子径：2.8 μm、C. V. 値：28%）10g を用いたことと、工程 b 1 において表 18 に示す凹部を用いたことと、工程 c 1 に代えて以下の工程 c 2 を行ったこと以外は、作製例 1 と同様にし てはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表 19 に示す。

（工程 c 2）はんだ粒子の形成

工程 b 1 で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉（新港精機株式会社製プラズマリフロー装置）に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を 120℃ に調整し、5 分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の水素ガスを除去し、170℃ まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0171] <作製例 9 1 ~ 9 3>

l n - S n はんだ微粒子 (5 N P l u s 社製、融点 1 2 0 ° C、T y p e 8) 1 0 0 g を、蒸留水に浸漬し、超音波分散させた後、静置し、上澄みに浮遊するはんだ微粒子を回収して、平均粒子径 1 . 0 μ m、C . V . 値 4 0 % のはんだ微粒子を得た。工程 a 1 において、このはんだ微粒子 (平均粒子径 1 . 0 μ m、C . V . 値 4 0 %) を用いたことと、工程 b 1 において表 1 8 に示す凹部を用いたことと、工程 c 1 に代えて以下の工程 c 2 を行ったこと以外は、作製例 1 と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表 1 9 に示す。

(工程 c 2) はんだ粒子の形成

工程 b 1 で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉 (新港精機株式会社製プラズマリフロー装置) に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を 1 1 0 ° C に調整し、5 分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の水素ガスを除去し、1 6 0 ° C まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0172] <作製例 9 4 ~ 9 6>

S n - A g - C u はんだ微粒子 (5 N P l u s 社製、融点 2 1 9 ° C、T y p e 8) 1 0 0 g を、蒸留水に浸漬し、超音波分散させた後、静置し、上澄みに浮遊するはんだ微粒子を回収して、平均粒子径 1 . 0 μ m、C . V . 値 4 1 % のはんだ微粒子を得た。工程 a 1 において、このはんだ微粒子 (平均粒子径 1 . 0 μ m、C . V . 値 4 1 %) を用いたことと、工程 b 1 において表 1 8 に示す凹部を用いたことと、工程 c 1 に代えて以下の工程 c 2 を行ったこと以外は、作製例 1 と同様にしてはんだ粒子を作製し、回収及び評価した。結果を表 1 9 に示す。

(工程 c 2) はんだ粒子の形成

工程 b 1 で凹部にはんだ微粒子が配置された基体を、水素ラジカル還元炉

(新港精機株式会社製プラズマリフロー装置)に投入し、真空引き後、水素ガスを炉内に導入して、炉内を水素ガスで満たした。その後、炉内を150℃に調整し、3分間水素ラジカルを照射した。その後、真空引きにて炉内の水素ガスを除去し、240℃まで加熱した後、窒素を炉内に導入して大気圧に戻してから炉内の温度を室温まで下げることにより、はんだ粒子を形成した。

[0173] <実施例49～51>

作製例85～87と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例85～87のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。結果を表20～22に示す。

[0174] <実施例52～54>

作製例88～90と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例88～90のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。結果を表20～22に示す。

[0175] <実施例55～57>

作製例91～93と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例91～93のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。結果を表20～22に示す。

[0176] <実施例58～60>

作製例94～96と同じ方法で作製したはんだ粒子を用いたこと、及び、転写型として作製例94～96のはんだ粒子作製に用いた基体と同じ形状の転写型を用いたことと、工程11において、本圧着温度を230℃にしたこと以外は、実施例1と同じ方法で異方導電性フィルム及び接続構造体の作製を行った。結果を表20～22に示す。

[0177]

[表18]

	作製例85	作製例86	作製例87	作製例88	作製例89	作製例90	作製例91	作製例92	作製例93	作製例94	作製例95	作製例96	
開口径	μm	4.3	11	40	4.3	11	40	4.3	11	40	4.3	11	40
底部径	μm	4	10	40	4	10	40	4	10	40	4	10	40
深さ	μm	4	10	15	4	10	15	4	10	15	4	10	15
間隔	μm	4	10	30	4	10	30	4	10	30	4	10	30

[0178] [表19]

	作製例85	作製例86	作製例87	作製例88	作製例89	作製例90	作製例91	作製例92	作製例93	作製例94	作製例95	作製例96
平均粒子径	4	10	30	4	10	30	4	10	30	4	10	30
C. V. 値	7.4	5	3.1	6.7	4.9	3	8.3	5.2	3.2	7.5	5.2	5.2

[0181] [表22]

[illegible]

- [0182] 凹部のサイズが小さい（例えば、底部2～3 μm ）において、はんだ微粒子の中心粒子径が小さいほど得られるはんだ粒子のC、V値は低くなる傾向がある。これは、はんだ微粒子の中心粒子径が小さいほど、凹部への充填率が向上し、複数の凹部間での充填ばらつきが低減するためと考えられる。
- [0183] 以上の実施例から、本発明の方法であれば、はんだ微粒子の組成を変更するだけで、粒子径がそろった融点の異なるはんだ粒子を容易に得られることが確認された。
- [0184] また、凹部の断面形状は各種用いることが出来る。すなわち、はんだ粒子の最終利用方法や形態に合わせて凹部の断面形状は適宜選択出来る。例えば、樹脂中にはんだ粒子を分散し、インクのように流動性を確保する場合は、はんだ粒子の表面は連続曲面を有している方が好ましいと考えられる。一方、フィルム中にはんだ粒子を分散し、圧着工程により電極にはんだ粒子を接触させる場合、はんだ粒子に平面部があると、接触時の電極への衝撃を緩和し、電極の破損を防ぐことが出来る場合がある。また、圧着工程で加熱により粘度が低下した樹脂が流動し、電極上から動いてしまうことがあるが、平面部を有する場合、電極との接触面積が高くなりやすく、フラックスによる酸化被膜除去時に素早く電極への濡れが広がるため、樹脂流動による移動が抑制出来る利点もある。樹脂ペーストにおいても同様の現象がみられる。
- [0185] また、一部に平坦部を有するはんだ粒子を、接着樹脂フィルムに転写もしくは、基体に接着樹脂を流し込んでフィルム化したのち、基体を除去すると、フィルム内において、はんだ粒子の平坦部の向きが略同一方向にそろえることが出来る。このようなはんだ粒子入りフィルムを用いて、電極同士を圧着実装した場合、非常に薄い又は弱い材質で出来た電極に対して、平坦部の面により接触するため、電極破損を抑制することが出来る。また、濡れ広がりが多い電極に対しても、圧着時に平坦部が面で接触することで、球面の点接触よりもはんだ粒子の酸化被膜の除去による濡れ広がりが起こりやすい利点がある。実利用上、接続したい電極同士は、その構成も材質も異なる場合が一般的で、本願のように、はんだ粒子の平坦部などの向きを概ね揃えら

れると、電極材質に合わせて、接着樹脂フィルムの配置位置を選択してより確実な接続を実現できるという利点もある。

- [0186] 更に、凹部の断面形状が、図4（e）のような底部に向かって円錐状になっている場合、得られるはんだ粒子は、はんだの表面張力により鋭角部は無いものの、連続的に断面直径が変化した疑似円錐状のようになる。このような粒子は、例えば接着フィルム中に厚み方向に向きを揃えて配置出来るため、圧着実装するときに、はんだ粒子の断面が細い部分により樹脂排除性が高まり、電極にはんだ粒子が容易に接触し、安定した接続が得られる利点がある。

符号の説明

- [0187] 1…はんだ粒子、2…絶縁性フィルム、2 a…絶縁性樹脂材料、2 b…第一の樹脂層、2 c…第一の樹脂層の表面、2 d…第二の樹脂層、1 0…異方性導電フィルム、3 0…第一の回路部材、3 1…第一の回路基板、3 2…第一の電極、4 0…第二の回路部材、4 1…第二の回路基板、4 2…第二の電極、5 0 A～5 0 F…接続構造体、5 5…絶縁樹脂層、6 0…基体、6 2…凹部、7 0…はんだ層、7 1…金属間化合物の層、1 1 1…はんだ微粒子。

請求の範囲

- [請求項1] 複数の凹部を有する基体とはんだ微粒子とを準備する準備工程と、
前記はんだ微粒子の少なくとも一部を、前記凹部に収容する収容工程と、
前記凹部に収容された前記はんだ微粒子を融合させて、前記凹部の内部にはんだ粒子を形成する融合工程と、
前記はんだ粒子が前記凹部に収容されている前記基体の、前記凹部の開口側に絶縁性樹脂材料を接触させて、前記はんだ粒子が転写された第一の樹脂層を得る転写工程と、
前記はんだ粒子が転写された側の前記第一の樹脂層の表面上に、絶縁性樹脂材料から構成される第二の樹脂層を形成することにより、異方性導電フィルムを得る積層工程と、
を含む、
異方性導電フィルムの製造方法。
- [請求項2] 前記融合工程で形成される前記はんだ粒子の平均粒子径が $1\ \mu\text{m} \sim 30\ \mu\text{m}$ 、C. V. 値が20%以下である、請求項1に記載の製造方法。
- [請求項3] 前記準備工程で準備される前記はんだ微粒子のC. V. 値が、20%を超える、請求項1又は2に記載の製造方法。
- [請求項4] 前記融合工程の前に、前記凹部に収容された前記はんだ微粒子を還元雰囲気下に晒す、請求項1～3のいずれか一項に記載の製造方法。
- [請求項5] 前記融合工程において、前記凹部に収容された前記はんだ微粒子を還元雰囲気下で融合させる、請求項1～4のいずれか一項に記載の製造方法。
- [請求項6] 前記準備工程で準備される前記はんだ微粒子が、スズ、スズ合金、インジウム及びインジウム合金からなる群より選択される少なくとも一種を含む、請求項1～5のいずれか一項に記載の製造方法。
- [請求項7] 前記準備工程で準備される前記はんだ微粒子が、In-Bi合金、

l n - S n 合金、l n - S n - A g 合金、S n - A u 合金、S n - B i 合金、S n - B i - A g 合金、S n - A g - C u 合金及びS n - C u 合金からなる群より選択される少なくとも一種を含む、請求項6に記載の製造方法。

[請求項8] 前記転写工程で得られる前記第一の樹脂層の前記表面に、前記はんだ粒子が露出している、請求項1～7のいずれか一項に記載の製造方法。

[請求項9] 前記転写工程において、前記凹部の内部にまで前記絶縁性樹脂材料を侵入させることにより、前記第一の樹脂層の前記表面側に前記はんだ粒子が埋設されている、請求項1～6のいずれか一項に記載の製造方法。

[請求項10] 前記転写工程が、前記はんだ粒子の転写後に前記絶縁性樹脂材料を硬化させるステップを有する、請求項1～9のいずれか一項に記載の製造方法。

[請求項11] 前記融合工程で形成された前記はんだ粒子の表面をフラックス成分で被覆する被覆工程を更に含む、請求項1～10のいずれか一項に記載の製造方法。

[請求項12] 異方性導電フィルムであって、
絶縁性樹脂材料から構成される絶縁性フィルムと、
前記絶縁性フィルム中に配置されている複数のはんだ粒子と、
を含み、
前記はんだ粒子の平均粒子径が $1\ \mu\text{m} \sim 30\ \mu\text{m}$ 、C. V. 値が20%以下であり、
前記異方性導電フィルムの縦断面において、前記はんだ粒子が隣接する前記はんだ粒子と離隔した状態で横方向に並ぶように配置されている、異方性導電フィルム。

[請求項13] 前記はんだ粒子が、表面の一部に平面部を有する、請求項12に記載の異方性導電フィルム。

[請求項14] 前記はんだ粒子の直径Bに対する前記平面部の直径Aの比（ A/B ）が下記式を満たす、請求項13に記載の異方性導電フィルム。

$$0.01 < A/B < 1.0$$

[請求項15] 前記はんだ粒子の投影像に外接する四角形を二対の平行線により作成した場合において、対向する辺間の距離をX及びY（但し $Y < X$ ）としたときに、X及びYが下記式を満たす、請求項12～14のいずれか一項に記載の異方性導電フィルム。

$$0.8 < Y/X < 1.0$$

[請求項16] 前記はんだ粒子が、スズ、スズ合金、インジウム及びインジウム合金からなる群より選択される少なくとも一種を含む、請求項12～14のいずれか一項に記載の異方性導電フィルム。

[請求項17] 前記はんだ粒子が、In-Bi合金、In-Sn合金、In-Sn-Ag合金、Sn-Au合金、Sn-Bi合金、Sn-Bi-Ag合金、Sn-Ag-Cu合金及びSn-Cu合金からなる群より選択される少なくとも一種を含む、請求項16に記載の異方性導電フィルム。

[請求項18] 第一の基板と当該第一の基板に設けられた第一の電極とを有する第一の回路部材を準備すること；

前記第一の電極と電氣的に接続される第二の電極を有する第二の回路部材を準備すること；

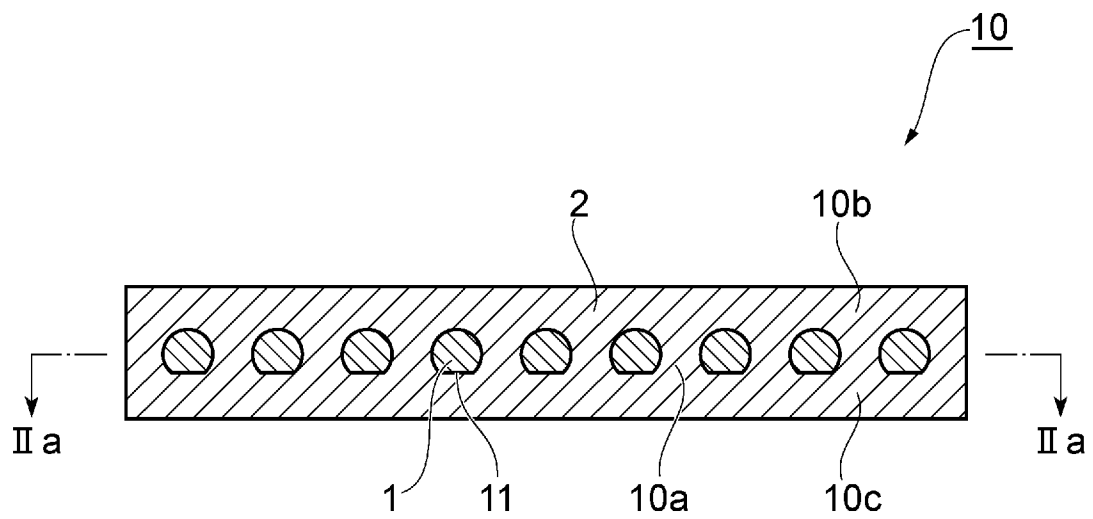
前記第一の回路部材の前記第一の電極を有する面と、前記第二の回路部材の前記第二の電極を有する面との間に、異方性導電フィルムを配置すること；

前記第一の回路部材と前記異方性導電フィルムと前記第二の回路部材とを含む積層体を前記積層体の厚さ方向に押圧した状態で加熱することにより、前記第一の電極と前記第二の電極とをはんだを介して電氣的に接続し且つ前記第一の回路部材と前記第二の回路部材とを接着すること；

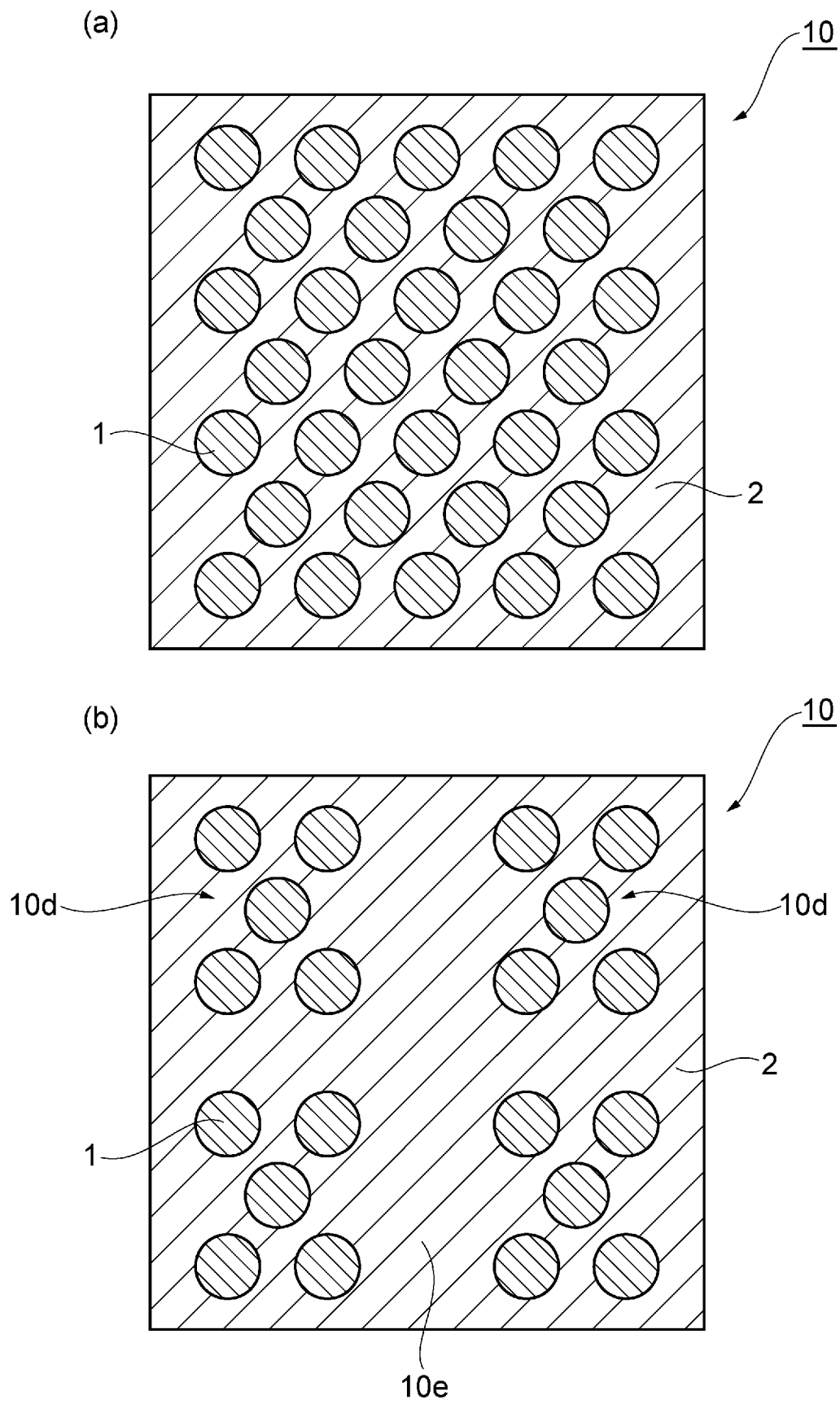
を含み、

前記異方性導電フィルムが、請求項 1 ～ 1 1 のいずれか一項に記載の製造方法で製造された異方性導電フィルム又は請求項 1 2 ～ 1 7 のいずれか一項に記載の異方性導電フィルムである、接続構造体の製造方法。

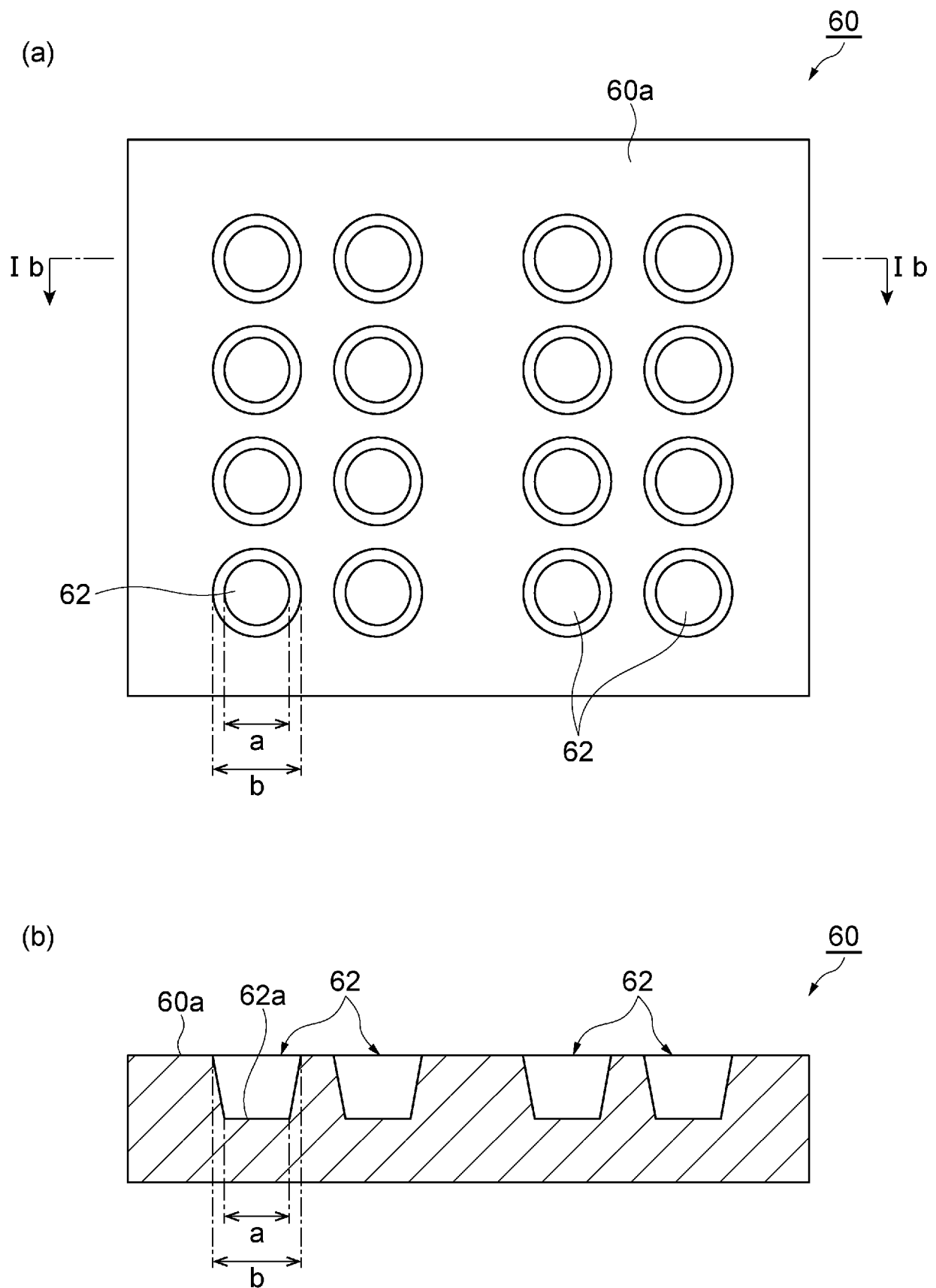
[図1]



[図2]

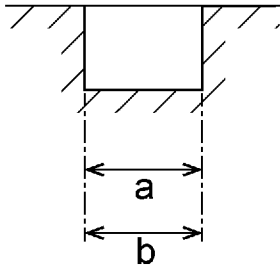


[図3]

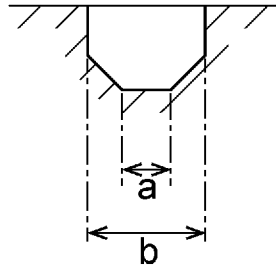


[図4]

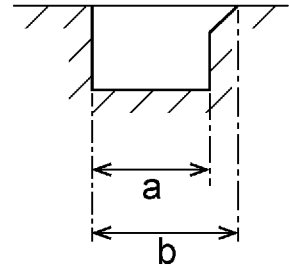
(a)



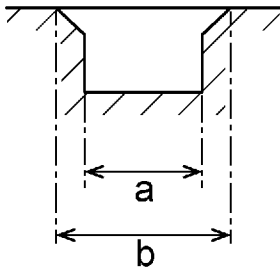
(b)



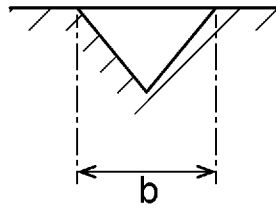
(c)



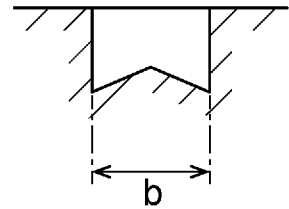
(d)



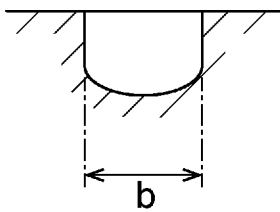
(e)



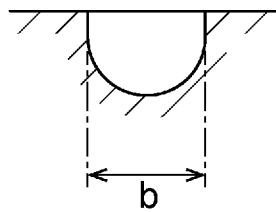
(f)



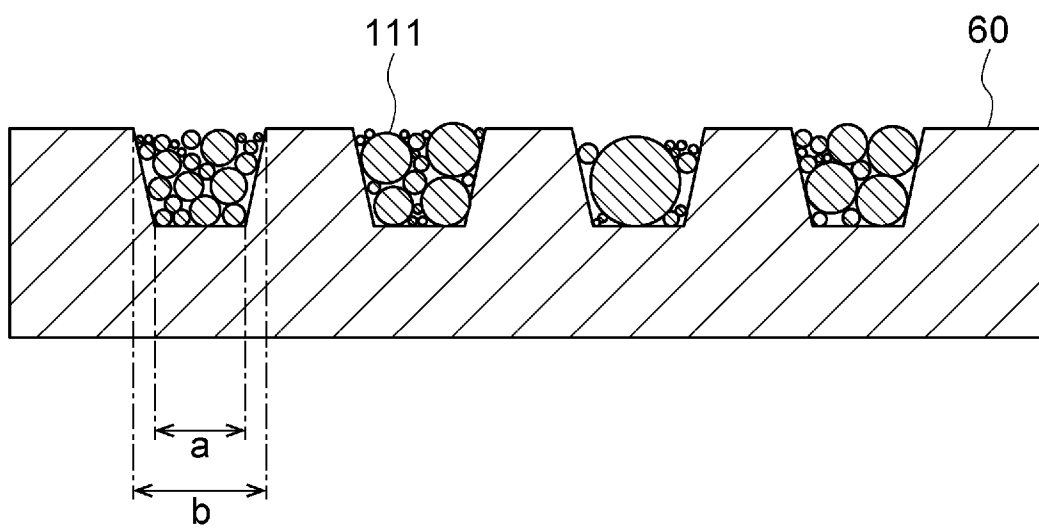
(g)



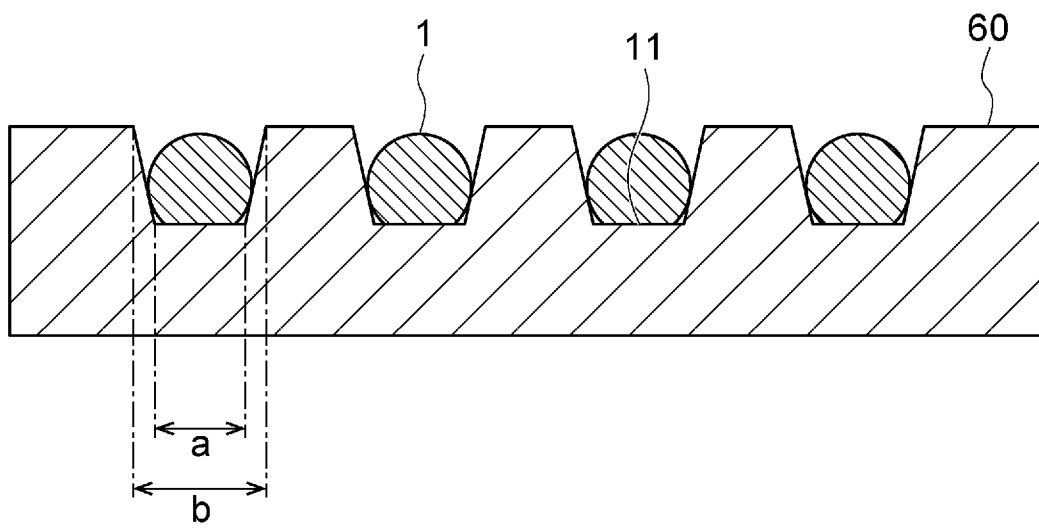
(h)



[図5]

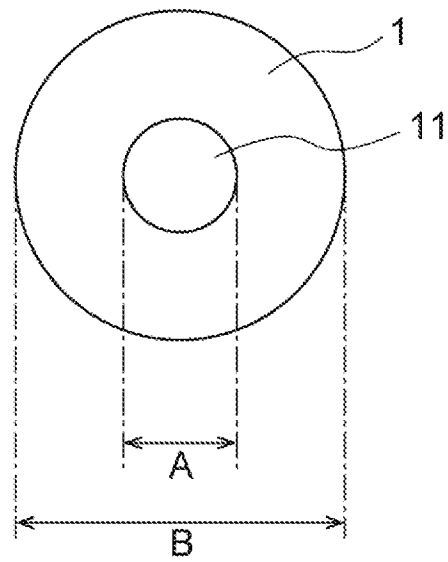


[図6]

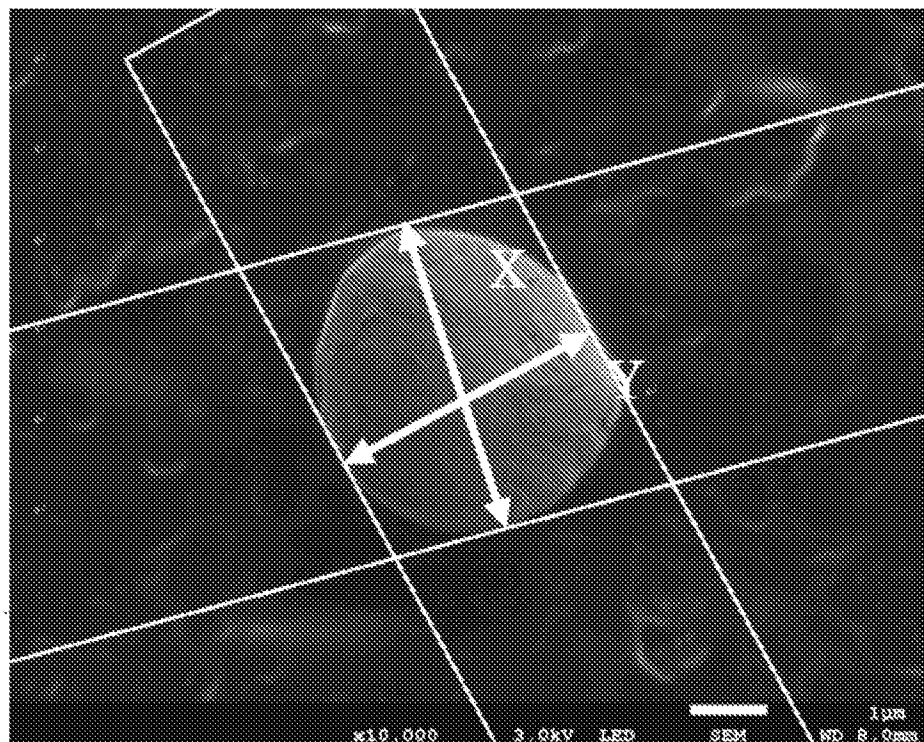


[図7]

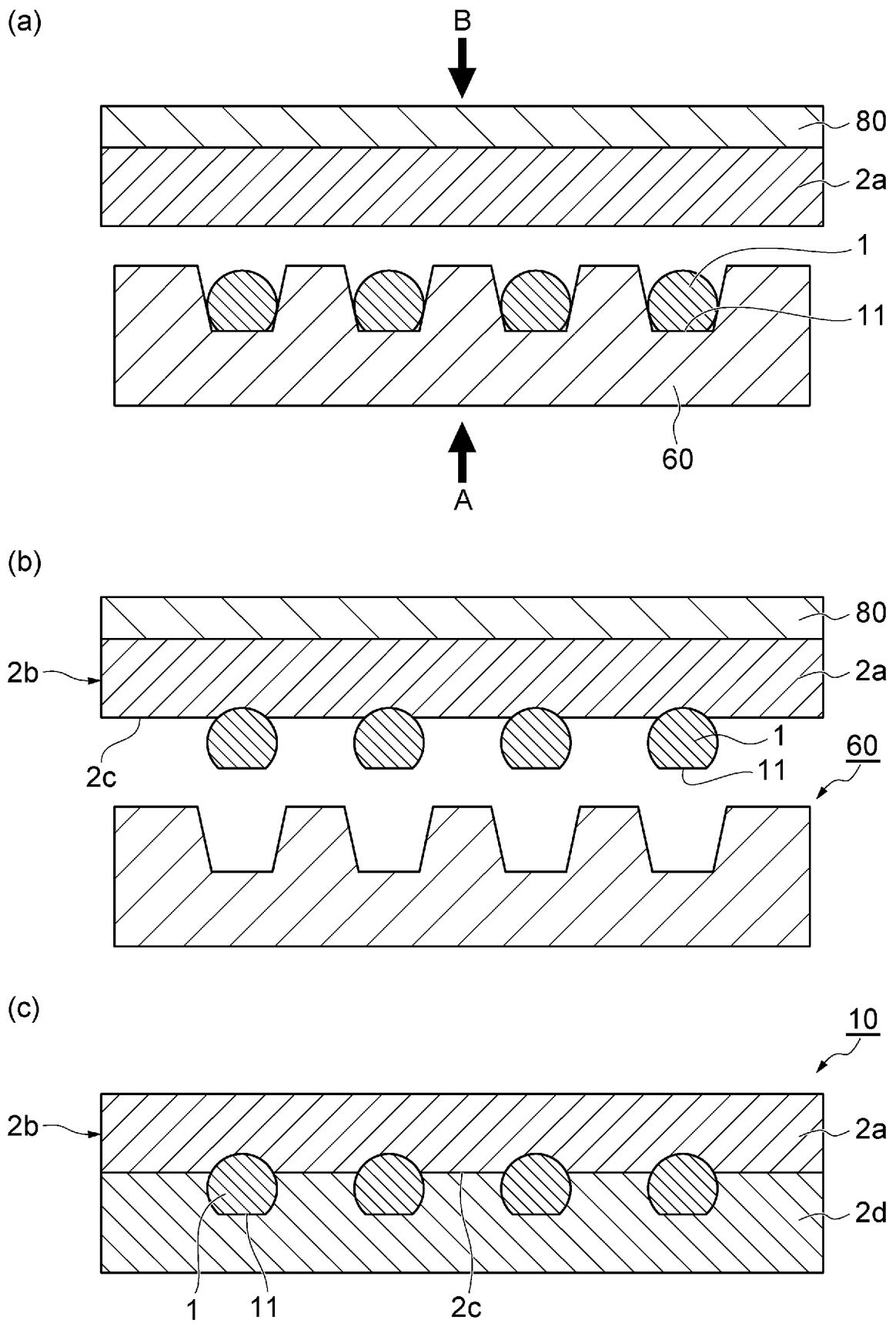
(a)



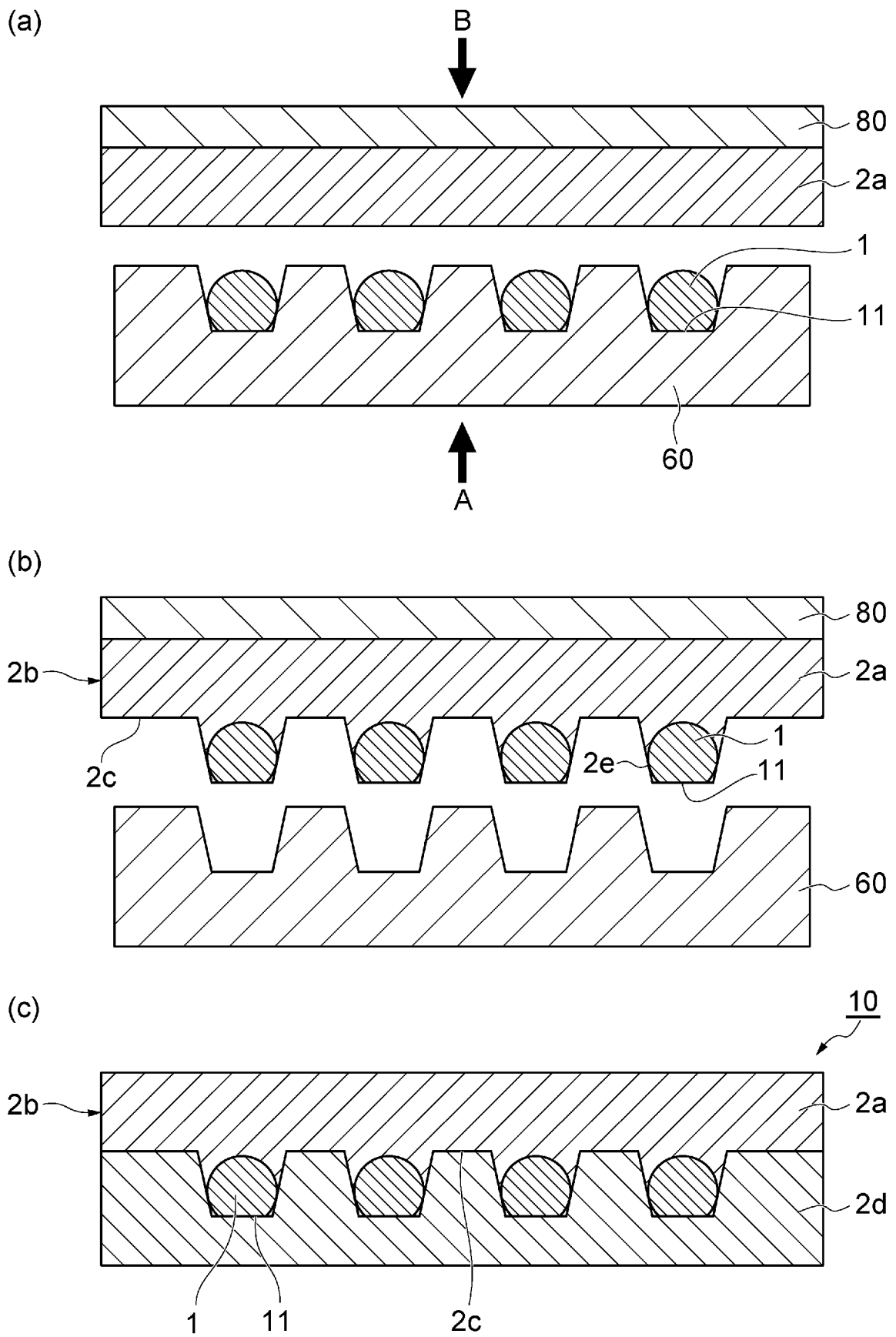
(b)



[図8]

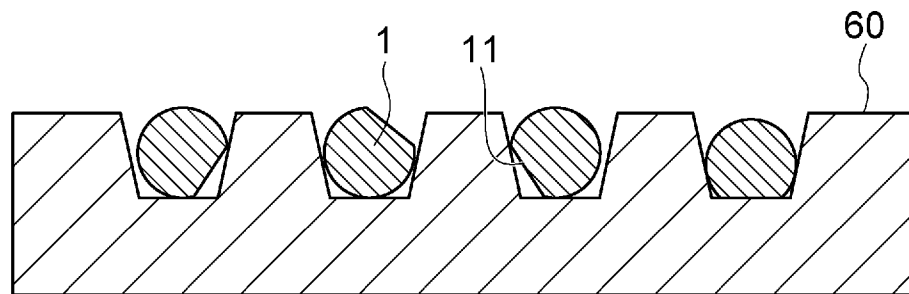


[図9]

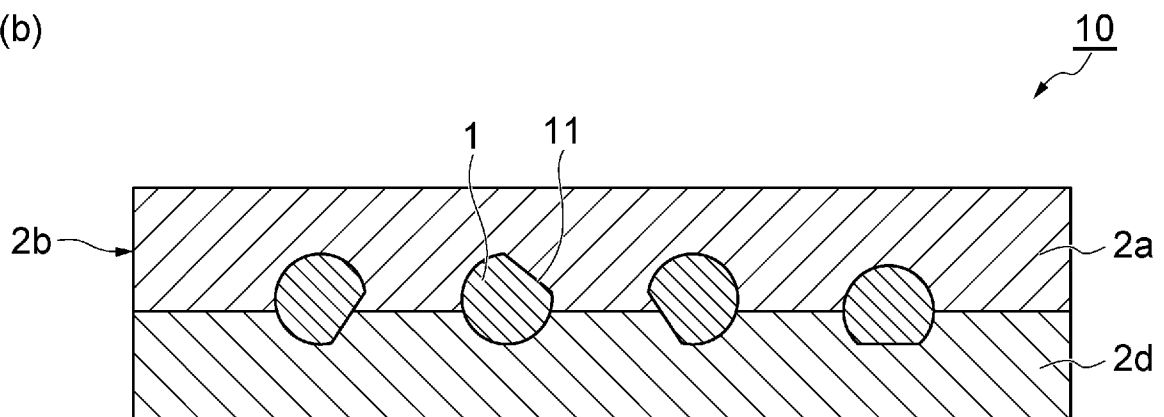


[図10]

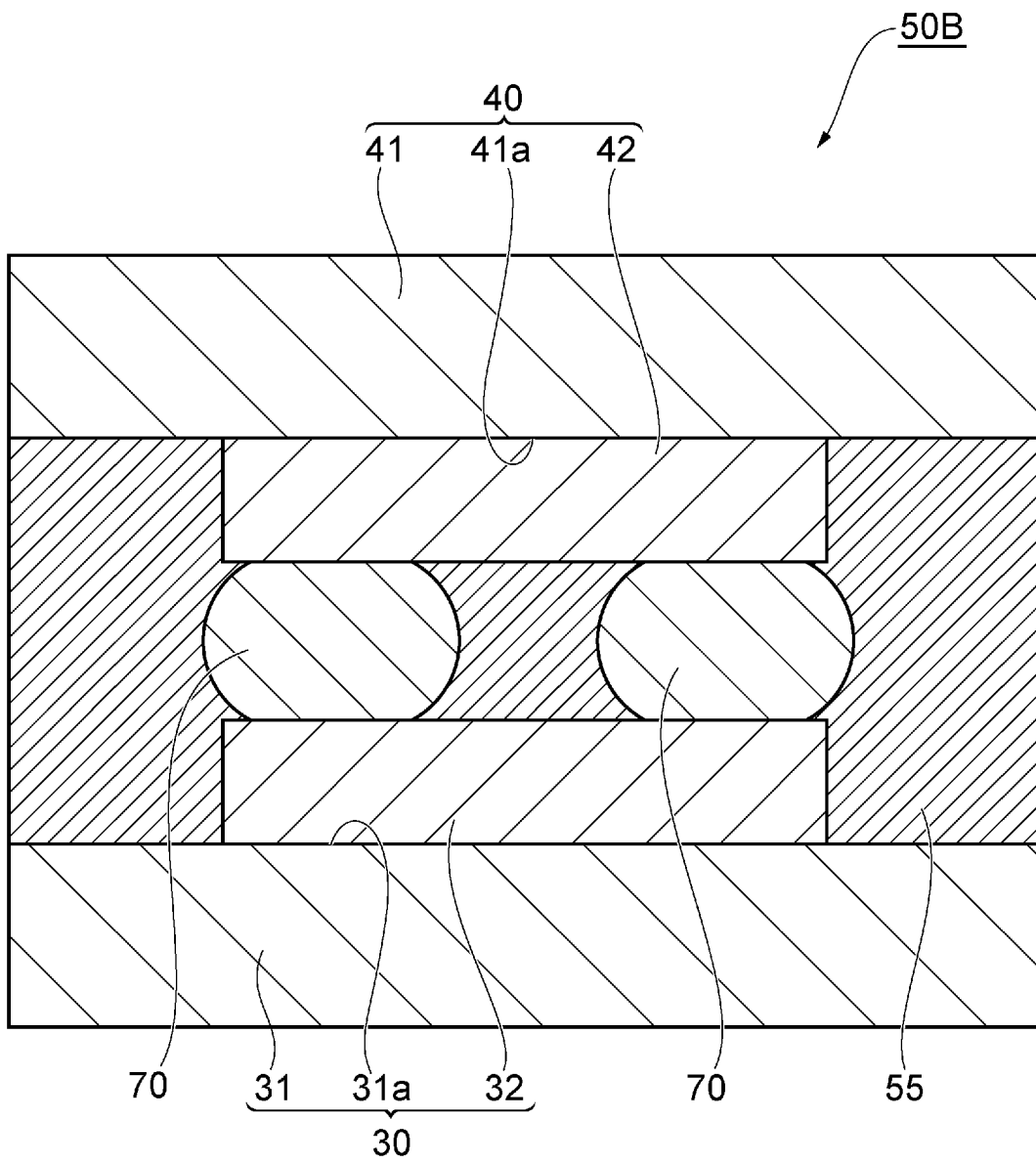
(a)



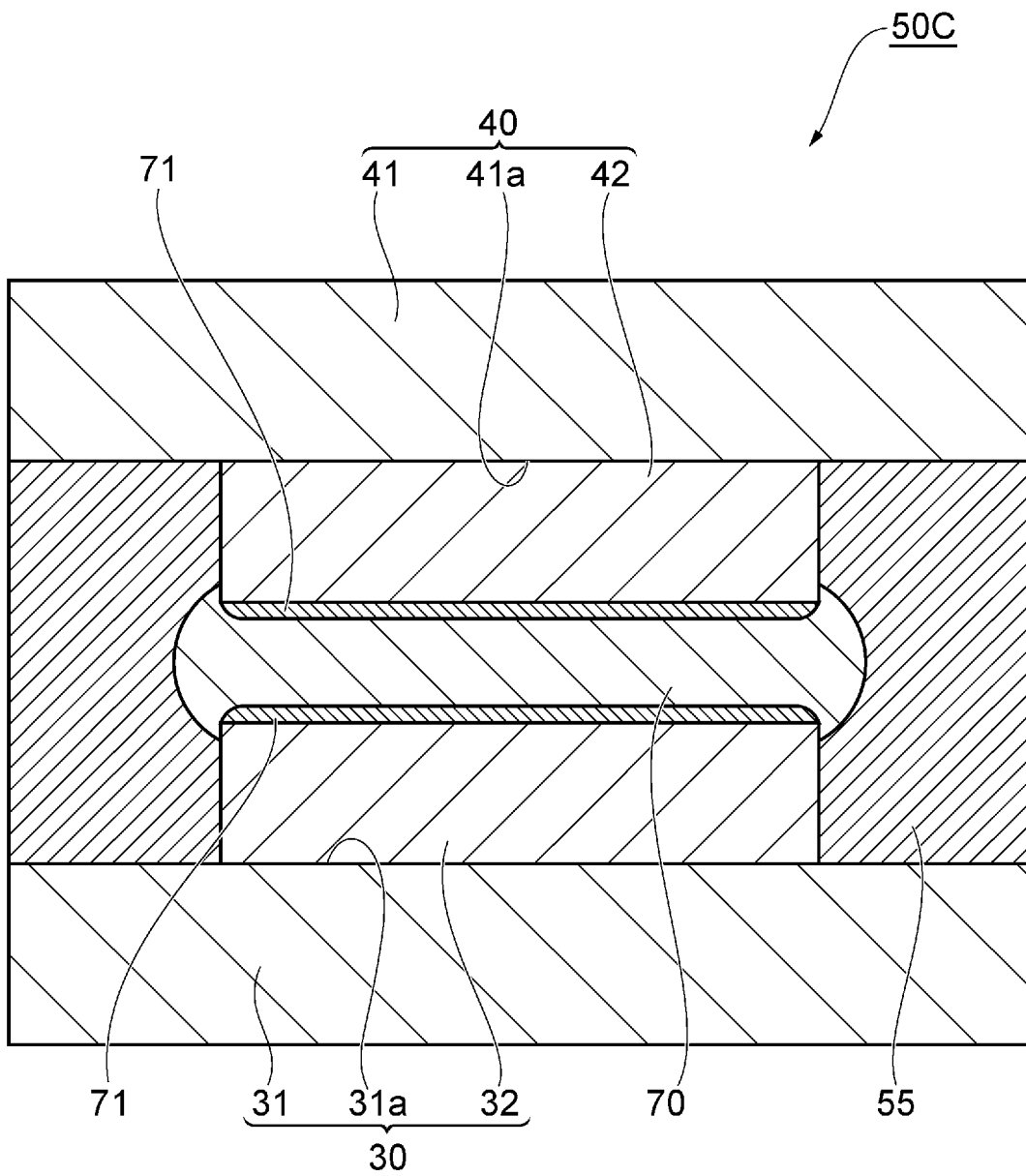
(b)



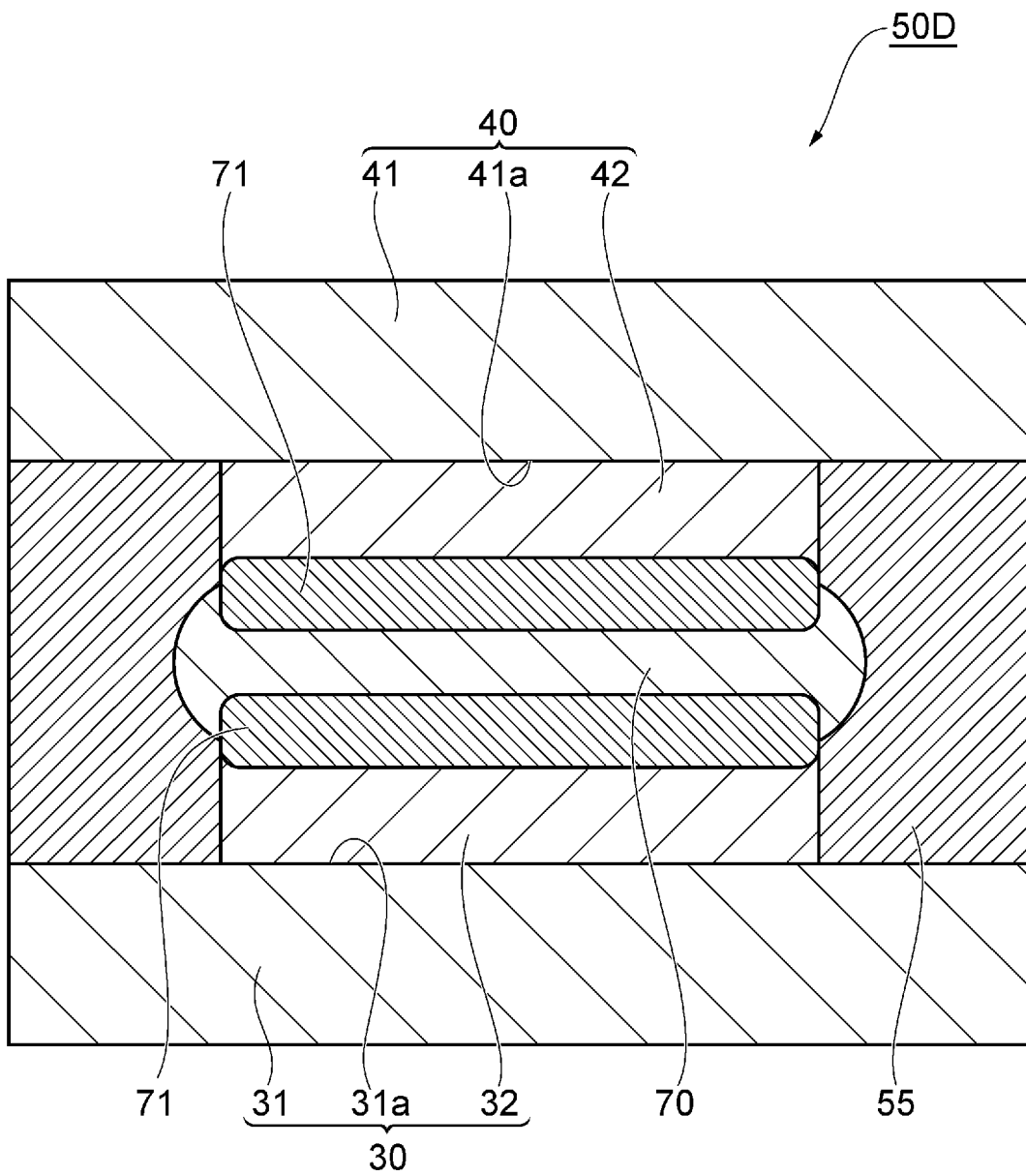
[図12]



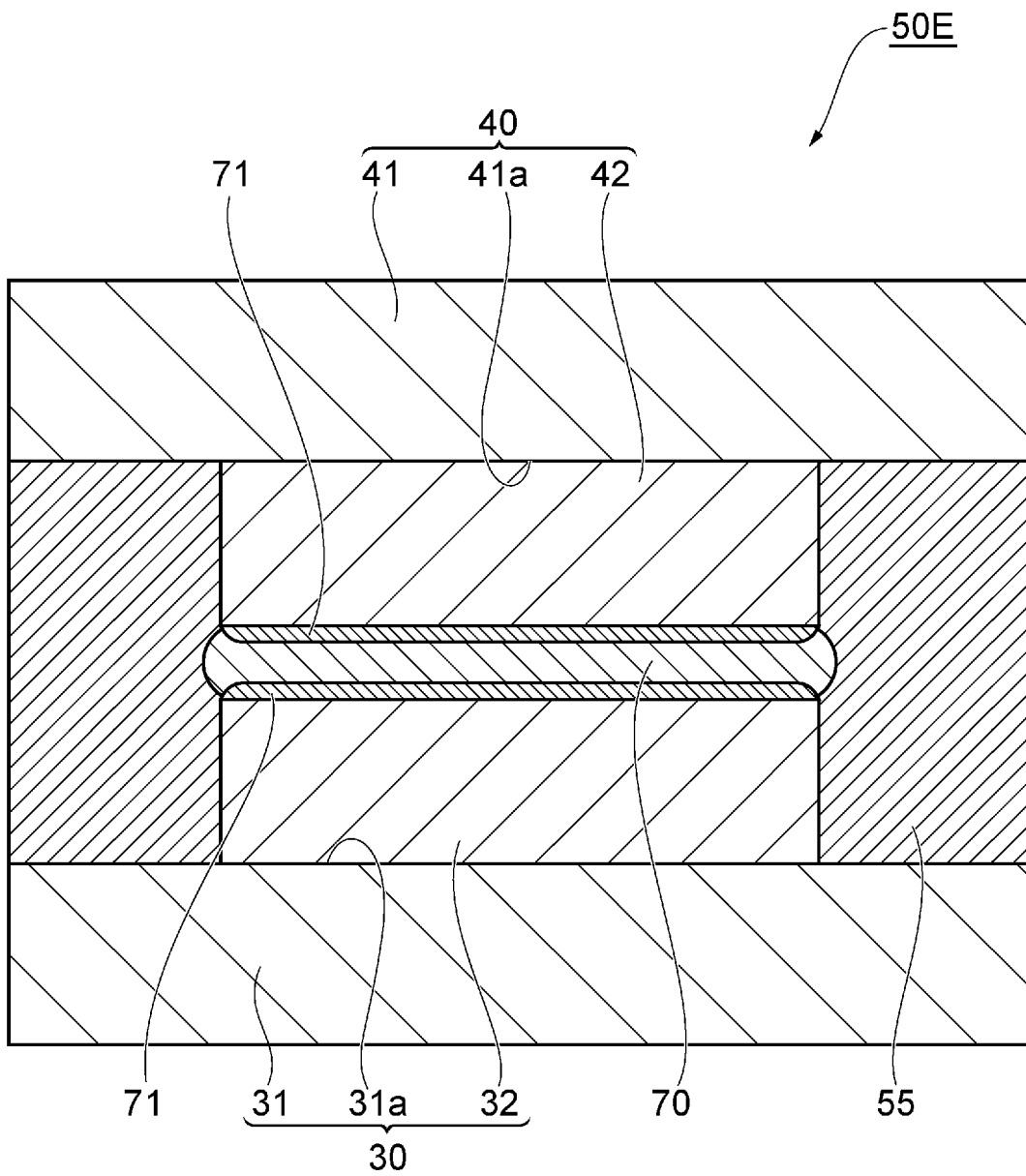
[図13]



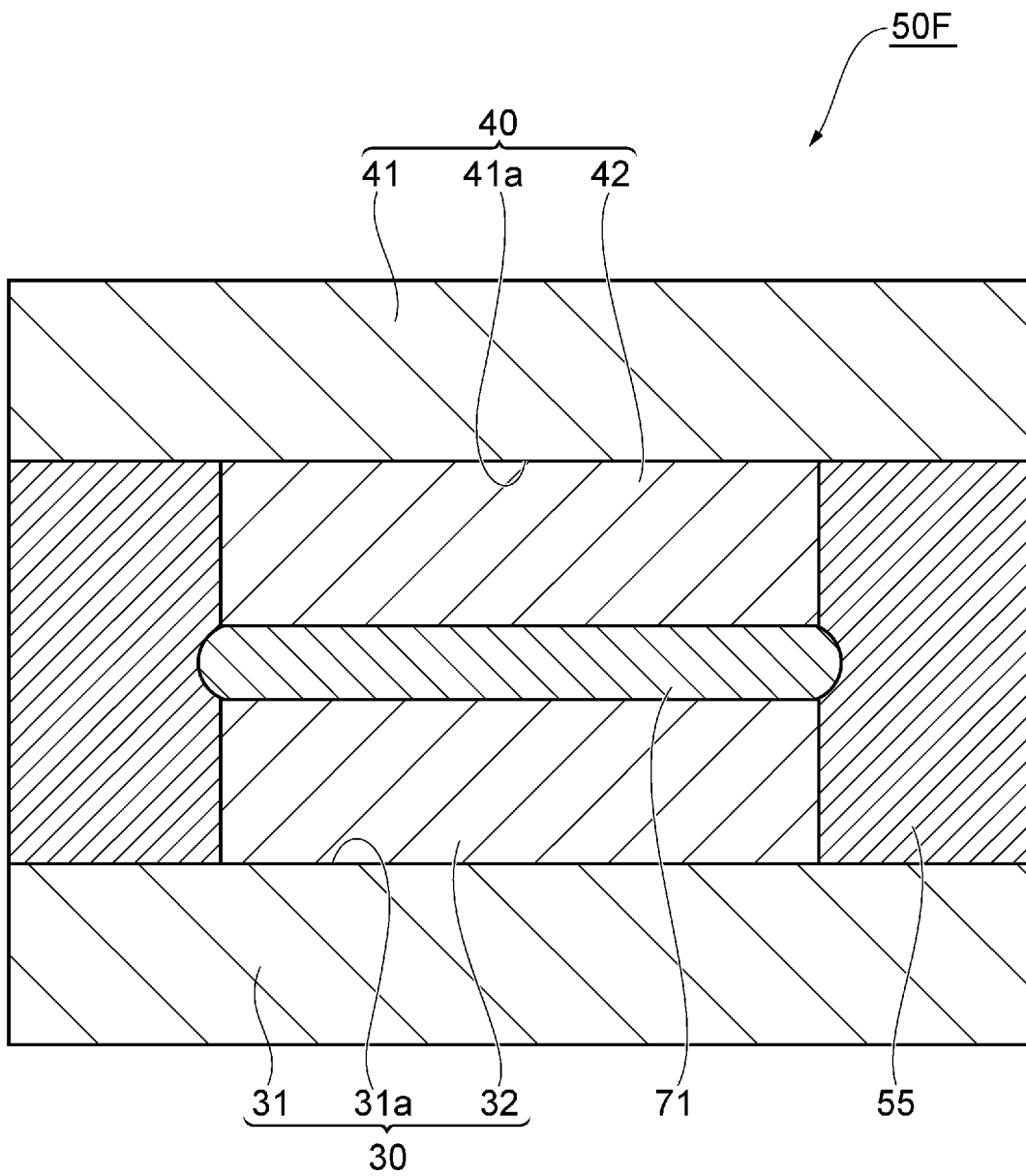
[図14]



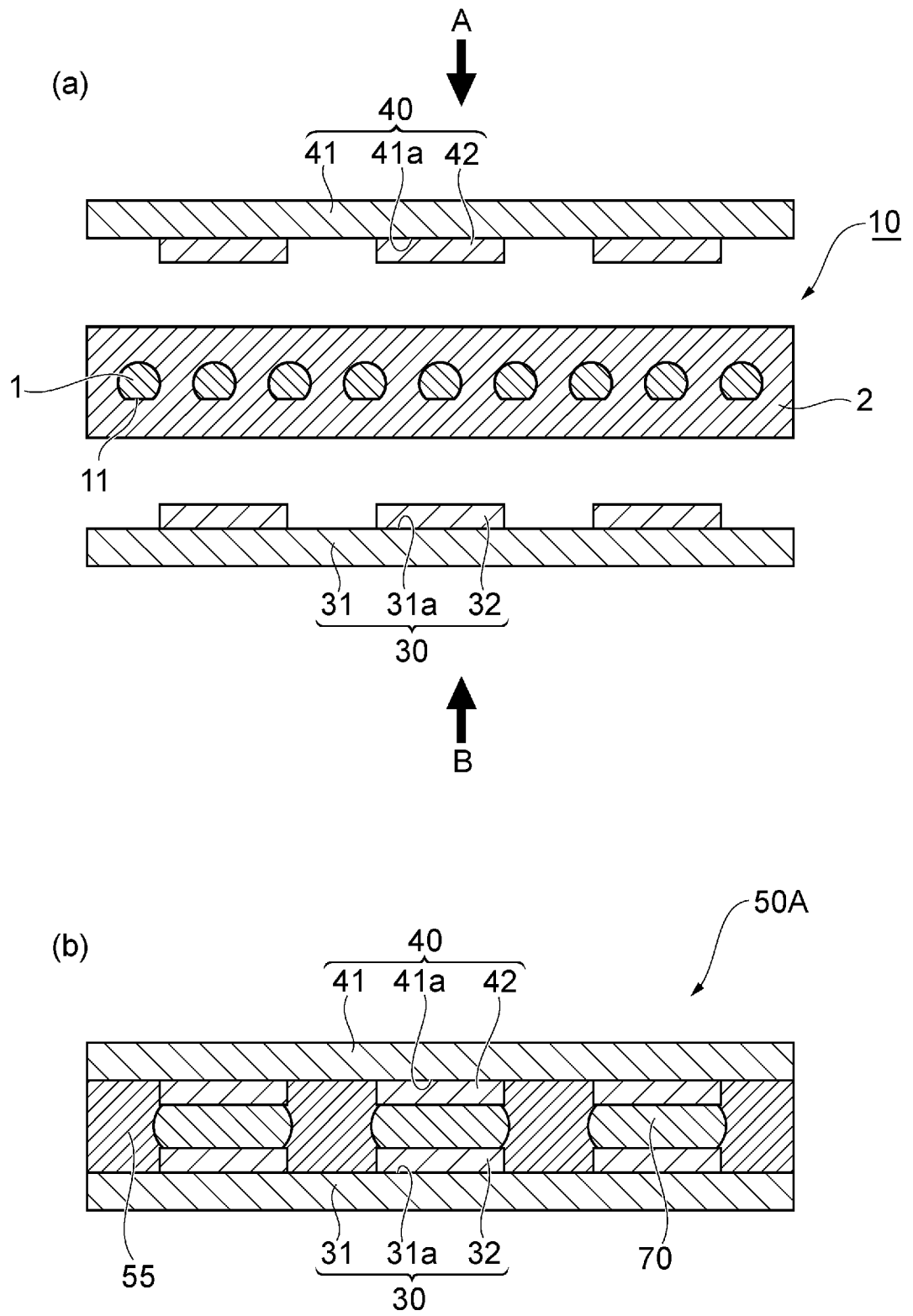
[図15]



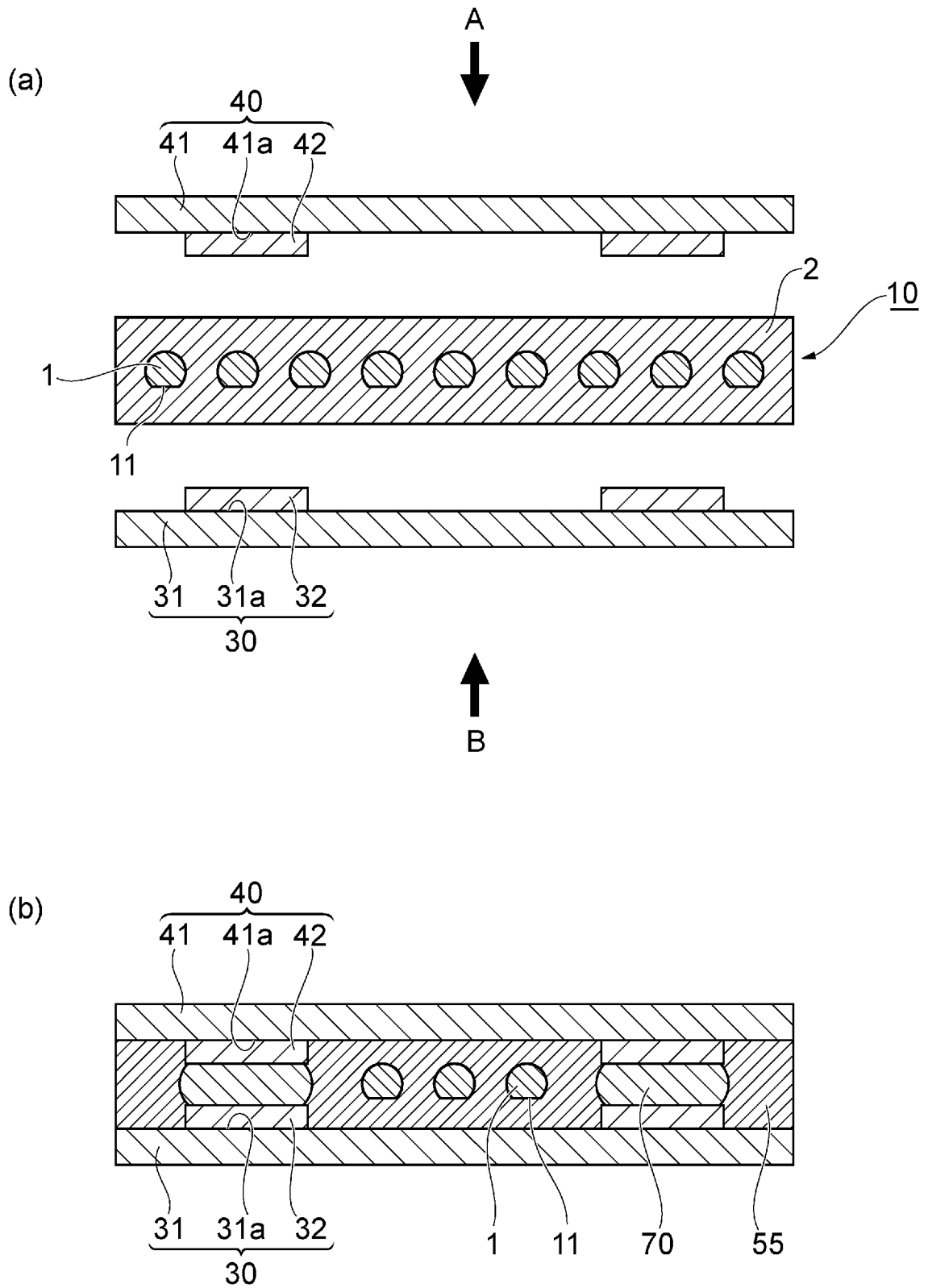
[図16]



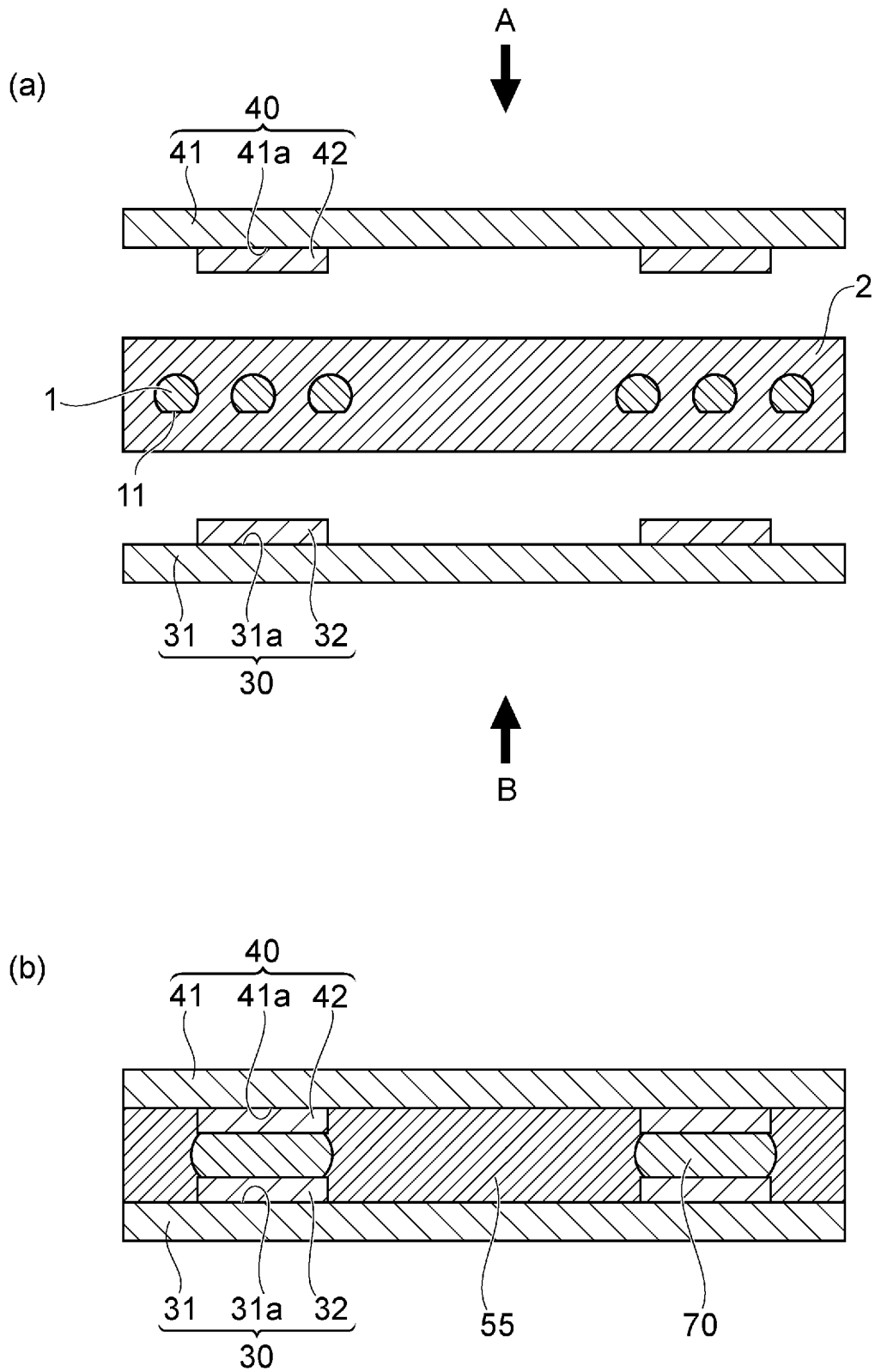
[図17]



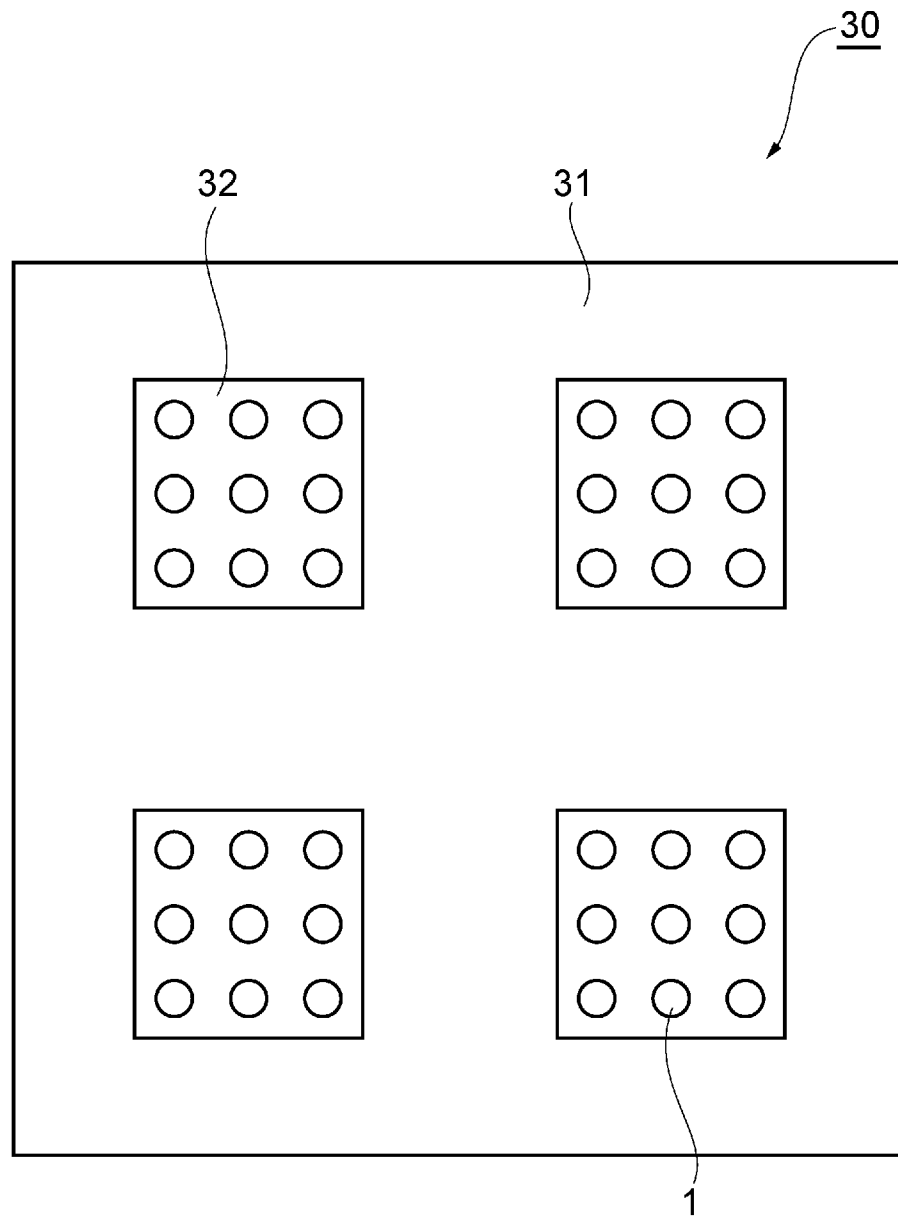
[図18]



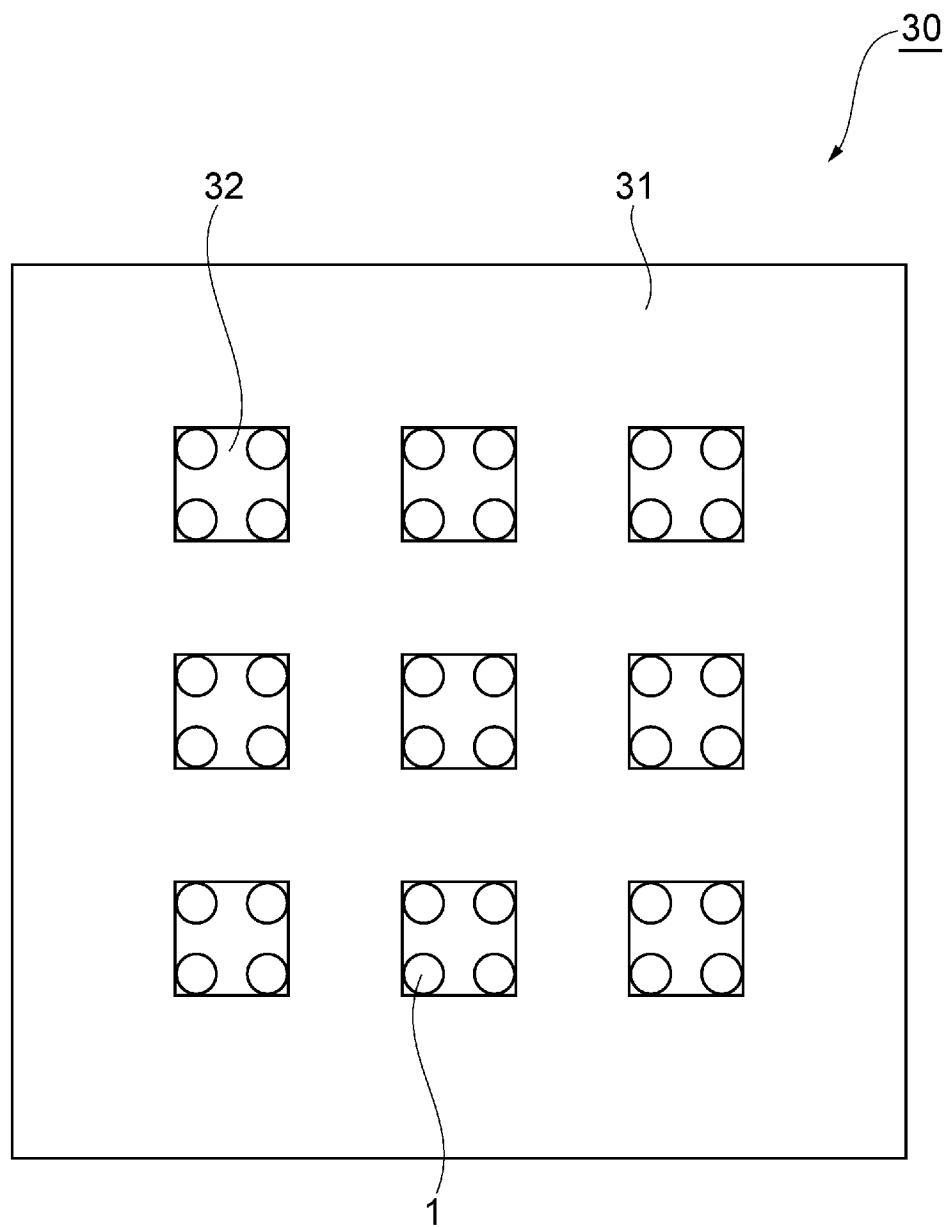
[図19]



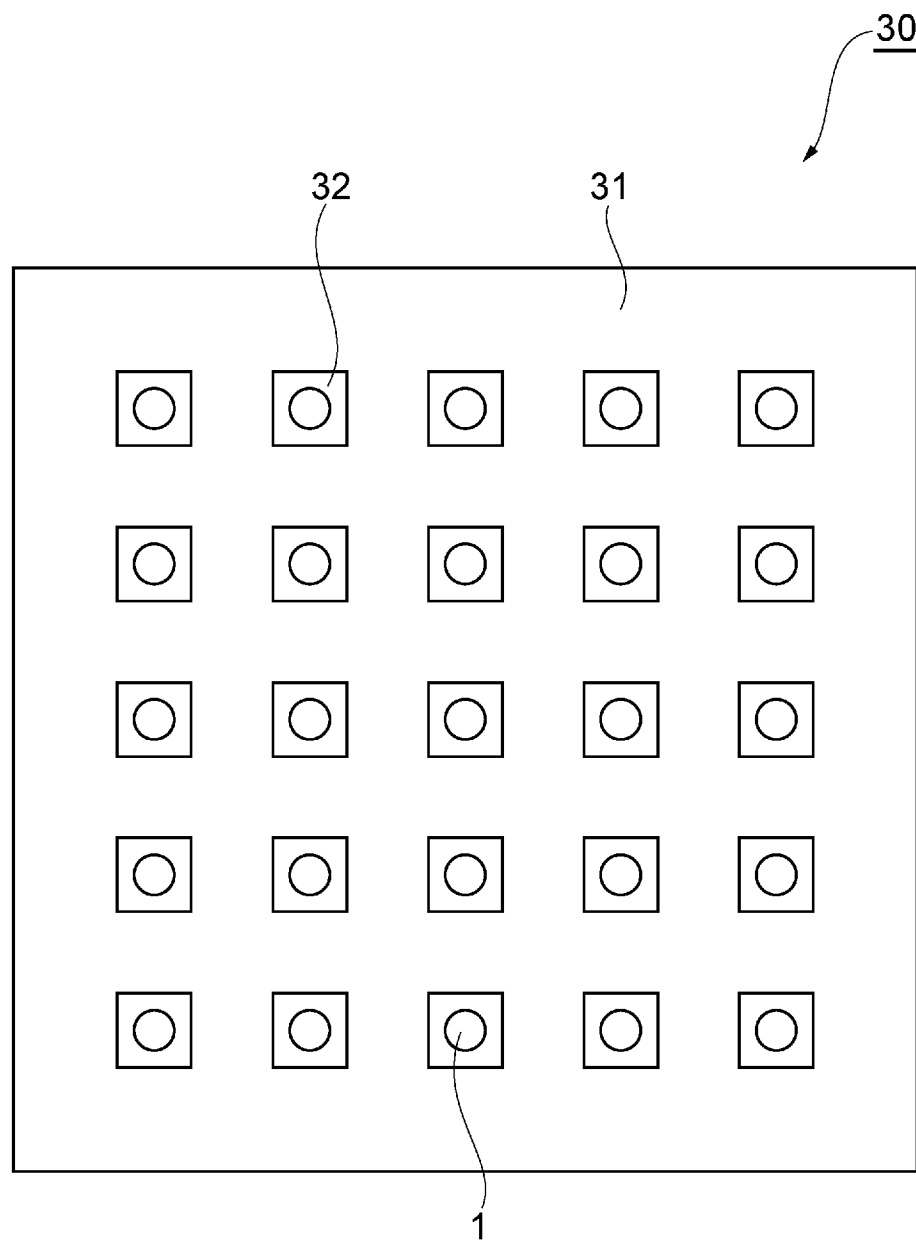
[図20]



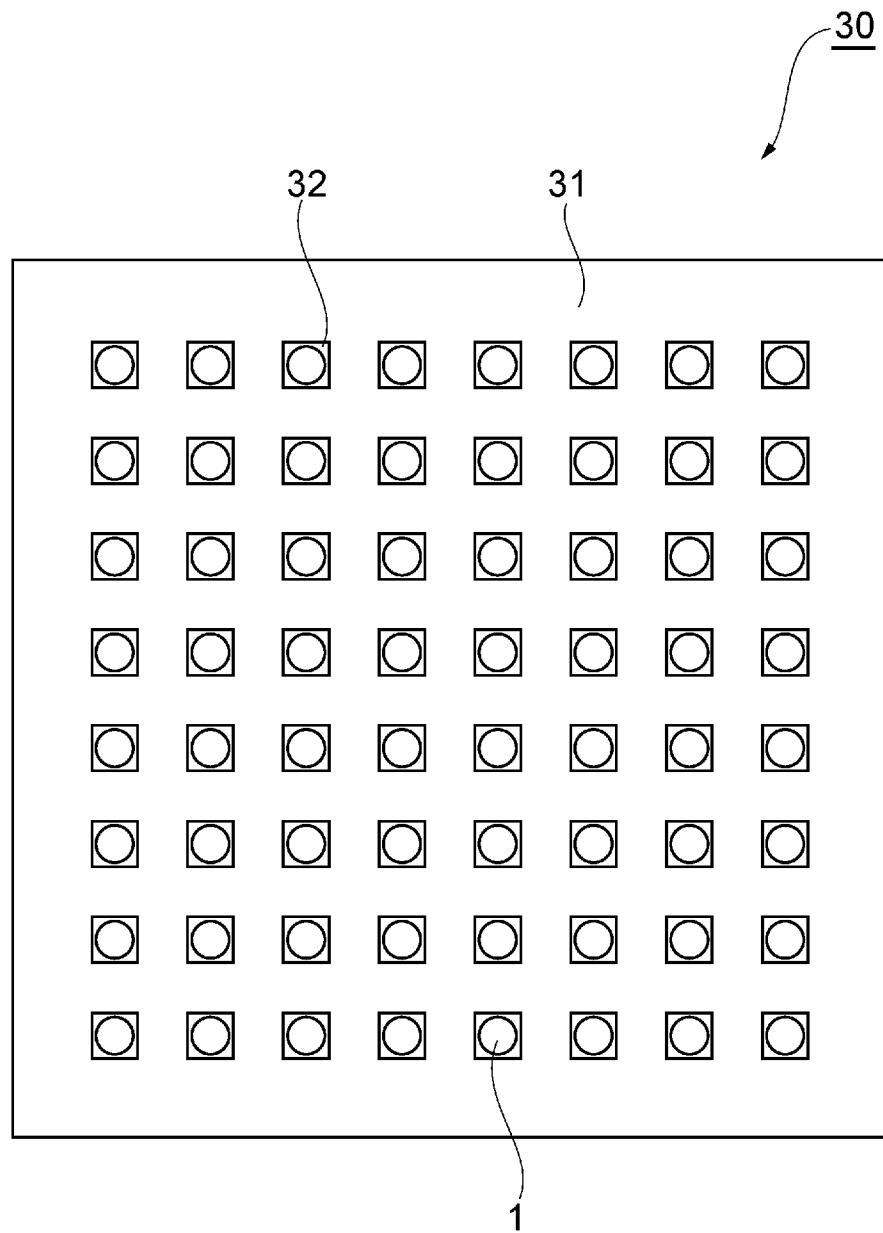
[図21]



[図22]

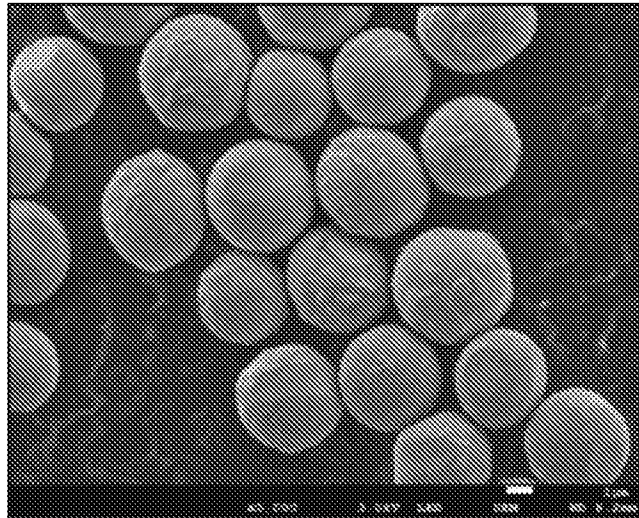


[図23]

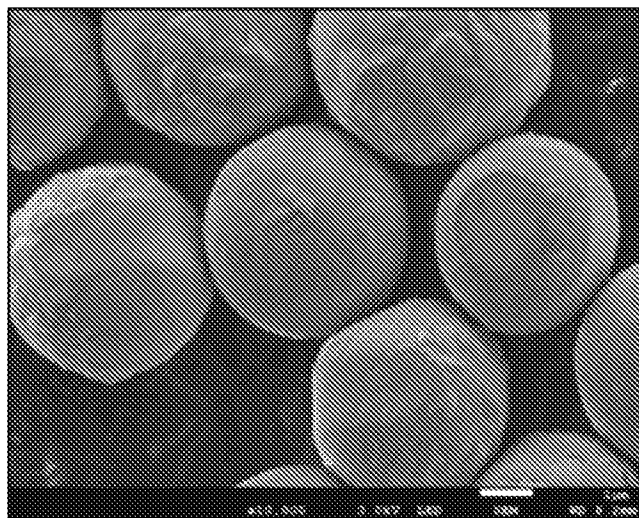


[図24]

(a)

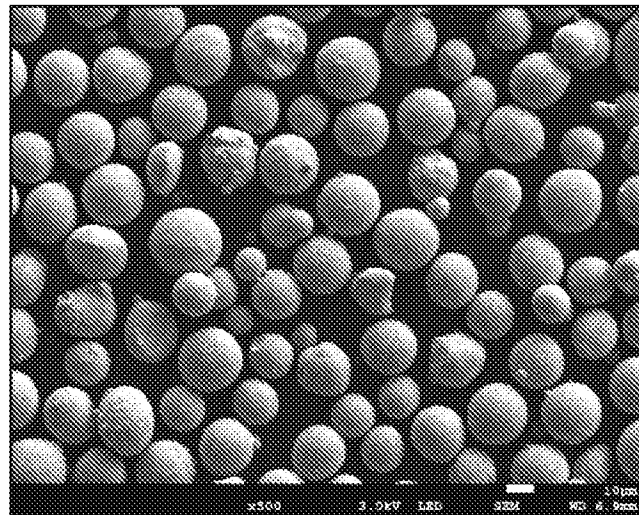


(b)

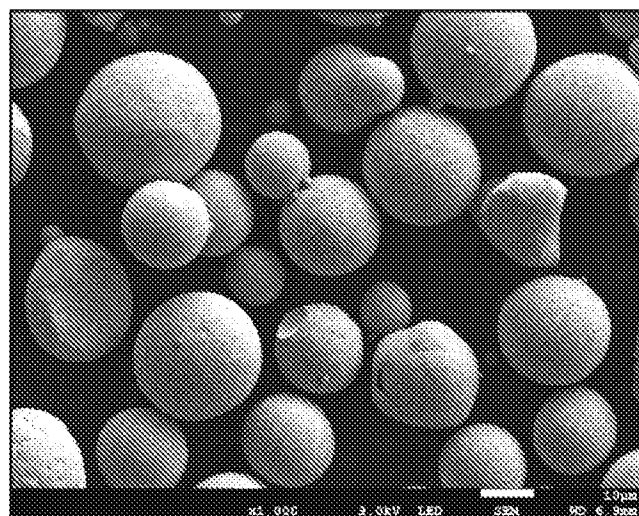


[図25]

(a)

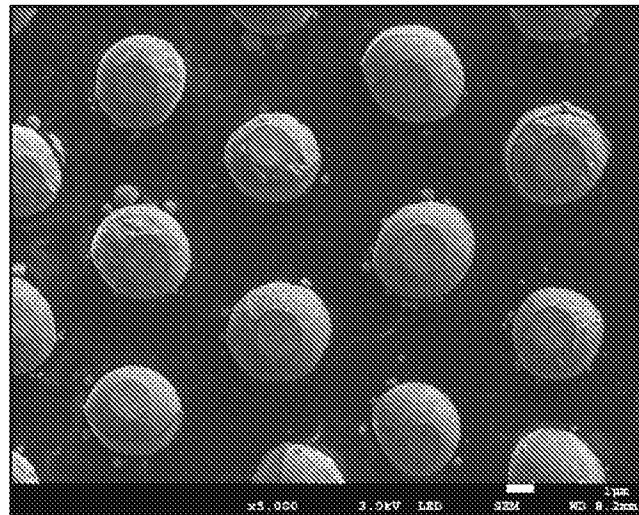


(b)

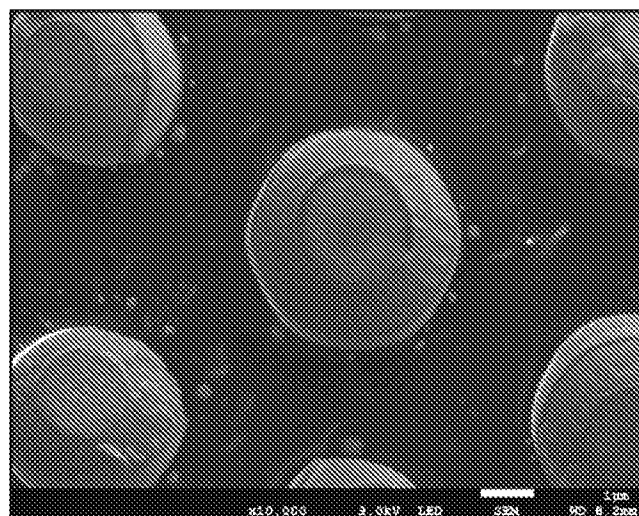


[図26]

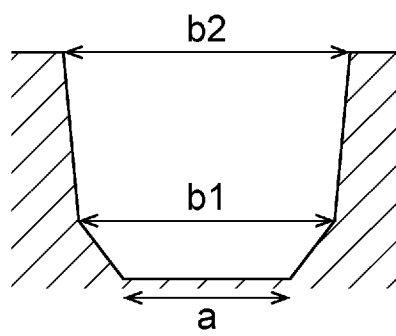
(a)



(b)



[図27]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/025496

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. See extra sheet

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. B23K35/40, B22F1/00, B22F1/02, B23K35/26, C22C12/00, C22C13/00, C22C28/00, H01B1/00, H01B1/02, H01B1/22, H01B5/00, H01B5/16, H01R11/01, H05K3/32

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.
Y	JP 9-150296 A (NEC CORP.) 10 June 1997, paragraphs [0013]-[0015], [0019], [0021] (Family: none)	1-11
Y	JP 5-23887 A (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) 02 February 1993, paragraphs [0007], [0012]-[0014] (Family: none)	1-11
X	JP 6187665 B1 (DEXERIALS CORPORATION) 30 August 2017, paragraphs [0024]-[0077], [0097]-[0106] & WO 2018/074318 A1 & TW 201829560 A & KR 10-2019-0038603 A & CN 109804002 A	12, 15-18
Y		1-11



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
18 September 2019 (18.09.2019)

Date of mailing of the international search report
01 October 2019 (01.10.2019)

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

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/025496

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 5-82934 A (ALPS ELECTRIC CO., LTD.) 02 April 1993 (Family: none)	1-18
P, A	JP 2019-29135 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 21 February 2019 (Family: none)	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/025496

CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B23K35/40 (2006.01) i,	B22F1/00 (2006.01) i,	B22F1/02 (2006.01) i,
B23K35/26 (2006.01) i,	C22C12/00 (2006.01) i,	C22C13/00 (2006.01) i,
C22C28/00 (2006.01) i,	H01B1/00 (2006.01) i,	H01B1/02 (2006.01) i,
H01B1/22 (2006.01) i,	H01B5/00 (2006.01) i,	H01B5/16 (2006.01) i,
H01R11/01 (2006.01) i,	H05K3/32 (2006.01) i	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. 特別ページ参照

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. B23K35/40, B22F1/00, B22F1/02, B23K35/26, C22C12/00, C22C13/00, C22C28/00, H01B1/00, H01B1/02, H01B1/22, H01B5/00, H01B5/16, H01R11/01, H05K3/32

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
Y	JP 9-150296 A（日本電気株式会社）1997.06.10, 段落 0013-0015, 0019, 0021（ファミリーなし）	1-11
Y	JP 5-23887 A（松下電器産業株式会社）1993.02.02, 段落 0007, 0012-0014（ファミリーなし）	1-11
X Y	JP 6187665 B1（デクセリアルズ株式会社）2017.08.30, 段落 0024-0077, 0097-0106 & WO 2018/074318 A1 & TW 201829560 A & KR 10-2019-0038603 A & CN 109804002 A	12, 15-18 1-11

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

18.09.2019

国際調査報告の発送日

01.10.2019

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）

川口 由紀子

4 K

5798

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 5-82934 A (アルプス電気株式会社) 1993. 04. 02 (ファミリーなし)	1-18
P, A	JP 2019-29135 A (日立化成株式会社) 2019. 02. 21 (ファミリーなし)	1-18

発明の属する分野の分類

B23K35/40(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F1/02(2006.01)i, B23K35/26(2006.01)i,
C22C12/00(2006.01)i, C22C13/00(2006.01)i, C22C28/00(2006.01)i, H01B1/00(2006.01)i,
H01B1/02(2006.01)i, H01B1/22(2006.01)i, H01B5/00(2006.01)i, H01B5/16(2006.01)i,
H01R11/01(2006.01)i, H05K3/32(2006.01)i