

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2012-204059

(P2012-204059A)

(43) 公開日 平成24年10月22日(2012.10.22)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01B 1/20 (2006.01)	H01B 1/20	Z 4J040
H05K 3/32 (2006.01)	H05K 3/32	B 5E319
C09J 201/00 (2006.01)	C09J 201/00	5E344
C09J 175/06 (2006.01)	C09J 175/06	5F044
C09J 4/00 (2006.01)	C09J 4/00	5G301

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 19 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2011-65932 (P2011-65932)
 (22) 出願日 平成23年3月24日 (2011.3.24)

(71) 出願人 000004455
 日立化成工業株式会社
 東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(74) 代理人 100088155
 弁理士 長谷川 芳樹

(74) 代理人 100128381
 弁理士 清水 義憲

(74) 代理人 100169454
 弁理士 平野 裕之

(72) 発明者 工藤 直
 茨城県筑西市五所宮1150番地 日立化成工業株式会社内

(72) 発明者 小林 宏治
 茨城県筑西市五所宮1150番地 日立化成工業株式会社内

最終頁に続く

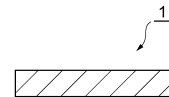
(54) 【発明の名称】 回路接続材料及びそれを用いた回路接続構造体

(57) 【要約】

【課題】本接続の低温速硬化が可能なラジカル重合型接着剤でありながら、高温高湿環境に放置した後も高い接着力を有し、かつ、回路部材と回路接続材料との界面に剥離気泡が生じることを十分に抑制することができる回路接続材料、及び、それを用いた回路接続構造体を提供すること。

【解決手段】相対向する二つの回路部材を電気的に接続するための回路接続材料であって、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂、(C)ラジカル重合性化合物及び(D)ラジカル重合開始剤を含有し、(B)ポリウレタン樹脂は、エステル結合を有するジオールを少なくとも含むジオール成分とジイソシアネート成分とを反応させて得られるものであり、(B)ポリウレタン樹脂の配合量は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として1.5~8.5質量%である、回路接続材料。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

相対向する二つの回路部材を電氣的に接続するための回路接続材料であって、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂、(C)ラジカル重合性化合物及び(D)ラジカル重合開始剤を含有し、

前記(B)ポリウレタン樹脂は、エステル結合を有するジオールを少なくとも含むジオール成分とジイソシアネート成分とを反応させて得られるものであり、

前記(B)ポリウレタン樹脂の配合量は、前記(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として1.5~8.5質量%である、回路接続材料。

【請求項 2】

前記(B)ポリウレタン樹脂の配合量は、前記(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として2.5~7.5質量%である、請求項1に記載の回路接続材料。

【請求項 3】

(E)導電性粒子を更に含有する、請求項1又は2に記載の回路接続材料。

【請求項 4】

前記二つの回路部材の少なくとも一方の基板がガラス基板又はプラスチック基板である、請求項1~3のいずれか一項に記載の回路接続材料。

【請求項 5】

前記二つの回路部材の少なくとも一方の基板がフレキシブル基板である、請求項1~4のいずれか一項に記載の回路接続材料。

【請求項 6】

対向配置された一对の回路部材と、

前記一对の回路部材の間に設けられ、前記一对の回路部材が有する回路電極同士が電氣的に接続されるように回路部材同士を接着する接続部材と、
を備え、

前記接続部材が、請求項1~5のいずれか一項に記載の回路接続材料の硬化物からなるものである、回路接続構造体。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、相対向する二つの回路部材を電氣的に接続するための回路接続材料及び回路接続構造体に関する。

【背景技術】**【0002】**

半導体素子及び液晶表示素子において、素子中の種々の部材を結合させる目的で従来から種々の回路接続材料が使用されている。回路接続材料に要求される特性は、接着性をはじめとして、耐熱性、高温高湿状態における信頼性等、多岐に渡る。

【0003】

また、接着に使用される被着体には、プリント配線板、ポリイミド、ポリエチレンテレフタレートやポリカーボネート等の有機基材をはじめ、銅、アルミニウム等の金属や、ITO、IZO、SiN、SiO₂等の多種多様な表面状態を有する基材が用いられる。そのため、回路接続材料は、各被着体にあわせた分子設計が必要である(例えば特許文献1及び2参照)。

【0004】

従来、前記半導体素子や液晶表示素子用の回路接続材料としては、高接着性でかつ高信頼性を示すエポキシ樹脂を用いた熱硬化性樹脂が用いられてきた(例えば、特許文献1参照)。樹脂の構成成分としては、エポキシ樹脂、エポキシ樹脂と反応性を有するフェノール樹脂等の硬化剤、エポキシ樹脂と硬化剤との反応を促進する熱潜在性触媒が一般に用い

10

20

30

40

50

られている。熱潜在性触媒は硬化温度及び硬化速度を決定する重要な因子となっており、室温での貯蔵安定性と加熱時の硬化速度の観点から種々の化合物が用いられてきた。実際の工程での硬化条件は、170～250 で1～3時間硬化することにより、所望の接着を得ていた。しかしながら、最近の半導体素子の高集積化及び液晶素子の高精細化に伴い、素子間及び配線間ピッチが狭小化し、硬化時の加熱によって、周辺部材に悪影響を及ぼす恐れが出てきた。更に低コスト化のためには、スループットを向上させる必要性があり、より低温かつ短時間での硬化、換言すれば低温速硬化での接着が要求されている。この低温速硬化を達成するためには、活性化エネルギーの低い熱潜在性触媒を使用する必要があり、室温付近での貯蔵安定性を兼備することが非常に難しいことが知られている。

【0005】

最近、アクリレート誘導体やメタアクリレート誘導体(以後、(メタ)アクリレート誘導体とよぶ)とラジカル重合開始剤である過酸化物を併用した、ラジカル硬化型接着剤が注目されている。ラジカル硬化は、反応活性種であるラジカルが反応性に富むため、短時間硬化が可能である(例えば、特許文献2参照)。ただし、ラジカル硬化型接着剤は接着強度が必ずしも十分ではないという問題があり、これを解決するため熱可塑性樹脂としてポリウレタン樹脂を用いる方法が提案されている(例えば、特許文献3～5参照)。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開平1-113480号公報

【特許文献2】国際公開第98/44067号

【特許文献3】国際公開第2001/015505号

【特許文献4】特開2002-203427号公報

【特許文献5】特開2006-318990号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

しかしながら、ポリウレタン樹脂を用いた場合であっても、ポリウレタン樹脂を構成するジオールの構造によっては、回路接続構造体を高温高湿環境(例えば、85、85%RH(相対湿度))に放置した後に十分な接着力が得られないことを本発明者らは見出した。更に、ポリウレタン樹脂の配合量によっては、回路接続構造体を高温高湿環境に放置した場合に回路部材と回路接続材料の界面に剥離気泡が生じてしまうことを本発明者らは見出した。

【0008】

本発明は、上記従来技術の有する課題に鑑みてなされたものであり、本接続の低温速硬化が可能でラジカル重合型接着剤でありながら、高温高湿環境に放置した後も高い接着力を有し、かつ、回路部材と回路接続材料との界面に剥離気泡が生じることを十分に抑制することができる回路接続材料、及び、それを用いた回路接続構造体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】

【0009】

上記目的を達成するために、本発明は、相対向する二つの回路部材を電氣的に接続するための回路接続材料であって、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂、(C)ラジカル重合性化合物及び(D)ラジカル重合開始剤を含有し、(B)ポリウレタン樹脂は、エステル結合を有するジオールを少なくとも含むジオール成分とジイソシアネート成分とを反応させて得られるものであり、(B)ポリウレタン樹脂の配合量は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として1.5～8.5質量%である回路接続材料を提供する。このような回路接続材料によれば、ラジカル重合型接着剤でありながら高温高湿環境に放置した後も高い接着力を有し、かつ、回路部材と回路接続材料の界面に剥離気泡が生じることを十分に抑制することができる

10

20

30

40

50

。

【0010】

ここで、上記(B)ポリウレタン樹脂の配合量は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として2.5~7.5質量%であることが好ましい。(B)ポリウレタン樹脂の配合量がこのような範囲内であると、上記効果が一層奏される。

【0011】

本発明の回路接続材料は、(E)導電性粒子を更に含有することが好ましい。これにより、回路接続材料に導電性又は異方導電性を付与することができるため、回路接続材料を、回路電極を有する回路部材同士の接続用途等により好適に使用することが可能となる。また、上記回路接続材料を介して電氣的に接続した回路電極間の接続抵抗をより十分に低減することができる。

【0012】

本発明の回路接続材料が接続する二つの回路部材は、少なくとも一方の基板がガラス基板又はプラスチック基板であることが好ましい。また、同様に回路部材の少なくとも一方の基板がフレキシブル基板であることが好ましい。

【0013】

また、本発明は、対向配置された一对の回路部材と、一对の回路部材の間に設けられ、一对の回路部材が有する回路電極同士が電氣的に接続されるように回路部材同士を接着する接続部材とを備え、接続部材が、上記回路接続材料の硬化物からなるものである、回路接続構造体を提供する。このような回路接続構造体は、一对の回路部材を接続する接続部材が上記回路接続材料の硬化物により構成されているため、高温高湿環境下に長期間置かれた場合であっても優れた接続信頼性が得られ、かつ接続部材と被着体との界面での剥離の発生が十分に抑制される。

【発明の効果】

【0014】

本発明によれば、本接続の低温速硬化が可能なラジカル重合型接着剤でありながら、高温高湿環境に放置した後も高い接着力を有し、かつ、回路部材と回路接続材料との界面に剥離気泡が生じることを十分に抑制することができる回路接続材料、及び、それを用いた回路接続構造体を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】本発明の回路接続材料からなるフィルム状接着剤の一実施形態を示す模式断面図である。

【図2】本発明の回路接続構造体の一実施形態を示す模式断面図である。

【図3】(a)~(c)はそれぞれ回路部材を接続する一連の工程図である。

【発明を実施するための形態】

【0016】

以下、場合により図面を参照しつつ、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。なお、図面中、同一又は相当部分には同一符号を付し、重複する説明は省略する。なお、本発明において、(メタ)アクリル酸とはアクリル酸又はそれに対応するメタクリル酸を示し、(メタ)アクリレートとはアクリレート又はそれに対応するメタクリレートを意味し、(メタ)アクリロイル基とはアクリロイル基又はメタクリロイル基を意味する。

【0017】

本発明の回路接続材料(以下、単に「接着剤」ともいう。)は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂、(C)ラジカル重合性化合物及び(D)ラジカル重合開始剤を含有する。

【0018】

(A)熱可塑性樹脂としては、特に制限なく公知の熱可塑性樹脂を使用することができる。公知の熱可塑性樹脂としては、ポリイミド樹脂、ポリアミド樹脂、フェノキシ樹脂類

10

20

30

40

50

、ポリ(メタ)アクリレート樹脂類、ポリイミド樹脂類、ポリエステル樹脂類、ポリビニルブチラル樹脂類等を用いることができる。また、後述する「(B)ポリウレタン樹脂」の条件に該当しないポリウレタン樹脂も、(A)熱可塑性樹脂の成分として用いることができる。更に、これら熱可塑性樹脂中にはシロキサン結合やフッ素置換基が含まれていてもよい。これらは一種を単独で又は二種以上を混合して使用することができる。二種以上を混合して使用する場合、混合する樹脂同士が完全に相溶するか、もしくはミクロ相分離が生じて白濁する状態であれば好適に用いることができる。

【0019】

(A)熱可塑性樹脂の分子量は特に制限を受けるものではないが、一般的な重量平均分子量としては5,000~200,000が好ましく、10,000~150,000がより好ましい。重量平均分子量が5,000未満では接着力が低下する傾向があり、また200,000を超えると他の成分との相溶性が悪くなったり、接着剤の流動性が低下したりする傾向がある。

10

【0020】

(A)熱可塑性樹脂の含有量は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として20~80質量%であることが好ましく、30~70質量%であることがより好ましい。(A)熱可塑性樹脂の配合量が20質量%未満では接着力が低下したり、フィルムとして用いた場合のフィルム形成性が悪化したりする傾向があり、80質量%より多くなると、接着剤の流動性が低下する傾向がある。

20

【0021】

また、上記(A)熱可塑性樹脂として、応力緩和及び接着性向上を目的として、公知のゴム成分を添加してもよい。ゴム成分として具体的には、アクリルゴム、ポリイソブレン、ポリブタジエン、カルボキシル基末端ポリブタジエン、水酸基末端ポリブタジエン、1,2-ポリブタジエン、カルボキシル基末端1,2-ポリブタジエン、水酸基末端1,2-ポリブタジエン、スチレン-ブタジエンゴム、水酸基末端スチレン-ブタジエンゴム、カルボキシル基、水酸基、(メタ)アクリロイル基又はモルホリン基をポリマー末端に含有するアクリロニトリル-ブタジエンゴム、カルボキシル化ニトリルゴム、水酸基末端ポリ(オキシプロピレン)、アルコキシシリル基末端ポリ(オキシプロピレン)、ポリ(オキシテトラメチレン)グリコール、ポリオレフィングリコール、ポリ-ε-カプロラク톤等が挙げられる。

30

【0022】

上記ゴム成分としては、接着性向上の観点から、高極性基であるシアノ基、カルボキシル基を側鎖あるいは末端に含むゴム成分が好ましい。これらの化合物は一種を単独で又は二種以上を混合して使用することができる。

【0023】

(B)ポリウレタン樹脂としては、エステル結合を有するジオールを少なくとも含むジオール成分とジイソシアネート成分とを反応させて得られるものを使用する。ジオール成分としてエステル結合を有しないジオールのみとジイソシアネート成分とを反応させて得られるポリウレタン樹脂を用いた場合、高温高湿環境に放置後の接着力が低下する傾向がある。

40

【0024】

エステル結合を有するジオールとしては、具体的にはポリエチレンアジペートジオール、ポリジエチレンアジペートジオール、ポリプロピレンアジペートジオール、ポリブチレンアジペートジオール、ポリヘキサメチレンアジペートジオール、ポリネオペンチルアジペートジオール等が挙げられる。これらは一種を単独で又は二種以上を併用することもでき、エステル結合を有していないジオールと併用することもできる。

【0025】

ジイソシアネート成分としては、具体的には2,4-トリレンジイソシアネート、3,3'-ジメチル-4,4'-ピフェニレンジイソシアネート、1,6-ヘキサメチレンジイソシアネート、1,3-フェニレンジイソシアネート、1,4-フェニレンジイソシアネ

50

ート、ナフタレン - 1, 5 - ジイソシアネート、3, 3' - ジメチルジフェニルメタン - 4, 4' - ジイソシアネート、4, 4' - メチレンビス(シクロヘキシルイソシアネート)、イソホロンジイソシアネート、4, 4' - ジフェニルメタンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタン - 4, 4' - ジイソシアネート、トルエン - 2, 6 - ジイソシアネート、トルエン - 2, 4 - ジイソシアネート、トリエチルヘキサメチレンジイソシアネート、m - キシレンジイソシアネート等が挙げられる。これらの中でもポリウレタン樹脂の耐熱性が向上するため、芳香族系のジイソシアネートが好ましい。これらは一種を単独で又は二種以上を併用することができる。

【0026】

(B) ポリウレタン樹脂の重量平均分子量は、5,000 ~ 500,000 が好ましく、10,000 ~ 400,000 がより好ましい。重量平均分子量が5,000未満では、十分な接着力が得られなくなる傾向があり、500,000より大きいと、流動性が低下したり、他の樹脂との相溶性が悪くなったりする傾向がある。

10

【0027】

(B) ポリウレタン樹脂は、フローテスト法での流動点が40 ~ 140 であることが好ましく、50 ~ 100 であることがより好ましい。なお、フローテスト法での流動点とは、直径1mmのダイを用い、3MPaの圧力をかけて、昇温速度2 /分で昇温させた場合の、シリンダが動き始める温度であり、フローテストを用いて測定する。フローテスト法での流動点が40未満では接着剤の耐熱性が低下する傾向があり、140より高いと接着剤の流動性が悪化する傾向がある。

20

【0028】

(B) ポリウレタン樹脂は、ガラス転移温度が - 50 ~ 30 であることが好ましく、- 40 ~ 15 であることがより好ましい。ガラス転移温度が - 50未満では接着剤の耐熱性が低下する傾向があり、30より高いと高温高湿放置後の接着力が低下する傾向がある。

【0029】

(B) ポリウレタン樹脂の配合量は、(A) 熱可塑性樹脂、(B) ポリウレタン樹脂及び(C) ラジカル重合性化合物の総量を基準として1.5 ~ 8.5質量%であることが必要である。その上限値は、7.5質量%であることが好ましく、6.5質量%であることがより好ましい。下限値としては、2.5質量%であることが好ましく、3.5質量%であることがより好ましい。配合量が1.5質量%未満では高温高湿環境に放置後の接着力が低下する傾向があり、8.5質量%より多くなると、高温高湿環境に放置後に回路部材と回路接続材料の界面に剥離気泡が生じやすくなる傾向がある。

30

【0030】

(C) ラジカル重合性化合物は特に制限なく公知のラジカル重合性化合物を使用することができる。また、ラジカル重合性化合物は、モノマー、オリゴマーいずれの状態でも使用することができ、モノマーとオリゴマーとを混合して使用してもよい。

【0031】

(C) ラジカル重合性化合物の具体例として、エポキシ(メタ)アクリレートオリゴマー、ウレタン(メタ)アクリレートオリゴマー、ポリエーテル(メタ)アクリレートオリゴマー、ポリエステル(メタ)アクリレートオリゴマー等のオリゴマー、トリメチロールプロパントリ(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、ポリアルキレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジシクロペンテニル(メタ)アクリレート、ジシクロペンテニロキシエチル(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(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、イソシアヌル酸変性2官能(メタ)アクリレート、イソシアヌル酸変性3官能(メタ)アクリレート、ビスフェノールフルオレンジグリシジルエーテルのグリシジル基に(メタ)アクリル酸を付加させたエポキシ(メタ)アクリレート、ビスフェノールフルオレンジグリシジルエーテルのグリシジル基にエチレングリコールやプロピレングリコールを付加させた化合物に(メタ)アクリロイルオキシ基を導入した化合物等の多官能(メタ)アクリレートが

40

50

挙げられる。これらの化合物は、一種を単独で又は二種以上を混合して使用することができる。

【0032】

また、上述した(C)ラジカル重合性化合物に加え、ペンタエリスリトール(メタ)アクリレート、2-シアノエチル(メタ)アクリレート、シクロヘキシル(メタ)アクリレート、ジシクロペンテニル(メタ)アクリレート、ジシクロペンテニロキシエチル(メタ)アクリレート、2-(2-エトキシエトキシ)エチル(メタ)アクリレート、2-エトキシエチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート、n-ヘキシル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、イソボルニル(メタ)アクリレート、イソデシル(メタ)アクリレート、イソオクチル(メタ)アクリレート、n-ラウリル(メタ)アクリレート、2-メトキシエチル(メタ)アクリレート、2-フェノキシエチル(メタ)アクリレート、テトラヒドロフルフリール(メタ)アクリレート、2-(メタ)アクリロイロキシエチルホスフェート、N,N-ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレート、N,N-ジメチルアミノプロピル(メタ)アクリレート、(メタ)アクリロイルモルホリン等を併用してもよい。これらの化合物は、一種を単独で又は二種以上を混合して使用することができる。

10

【0033】

(C)ラジカル重合性化合物としては、分子内に2つ以上の(メタ)アクリロイル基を有する化合物を少なくとも一種類含むことが好ましい。

20

【0034】

更に、(C)ラジカル重合性化合物として、上記(メタ)アクリロイル基を有する化合物の他に、アリル基、マレイミド基、ビニル基等の活性ラジカルによって重合する官能基を有する化合物を適宜添加してもよい。具体的には、N-ビニルイミダゾール、N-ビニルピリジン、N-ビニルピロリドン、N-ビニルホルムアミド、N-ビニルカプロラクタム、4,4'-ビニリデンビス(N,N-ジメチルアニリン)、N-ビニルアセトアミド、N,N-ジメチルアクリルアミド、N-イソプロピルアクリルアミド、N,N-ジエチルアクリルアミド、メチロールアクリルアミド、4,4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、3,3'-ジメチル-5,5'-4,4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、1,6-ビスマレイミド-(2,2,4-トリメチル)ヘキサン等が挙げられる。

30

【0035】

これらラジカル重合性化合物の配合量は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として20~80質量%であることが好ましく、30~70質量%であることがより好ましい。配合量が20質量%未満では耐熱性が低下する傾向があり、80質量%より多いと高温高湿環境に放置後に回路部材と回路接続材料の界面に剥離気泡が生じやすくなる傾向がある。

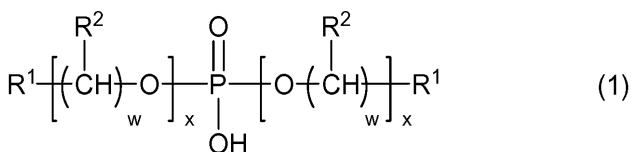
【0036】

また、上記ラジカル重合性化合物は、下記一般式(1)~(3)で表される、リン酸エステル構造を有するラジカル重合性化合物を併用することが好ましい。この場合、金属等の無機物表面に対する接着強度が向上するため、回路電極同士の接着に好適である。

40

【0037】

【化1】

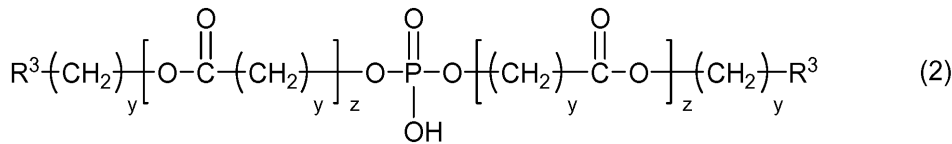


式(1)中、R¹は(メタ)アクリロイルオキシ基を示し、R²は水素原子又はメチル基を示し、w及びxは各々独立に1~8の整数を示す。なお、式中、R¹同士、R²同士、w同士及びx同士はそれぞれ同一でも異なっていてもよい。

50

【 0 0 3 8 】

【 化 2 】

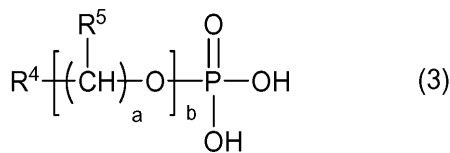


式(2)中、 R^3 は(メタ)アクリロイルオキシ基を示し、 y 及び z は各々独立に1~8の整数を示す。なお、式中、 R^3 同士、 y 同士及び z 同士はそれぞれ同一でも異なってもよい。

10

【 0 0 3 9 】

【 化 3 】



式(3)中、 R^4 は(メタ)アクリロイルオキシ基を示し、 R^5 は水素原子又はメチル基を示し、 a 及び b は各々独立に1~8の整数を示す。

20

【 0 0 4 0 】

上記一般式(1)~(3)で表されるものの他、リン酸エステル構造を有するラジカル重合性化合物としては、具体的にはアシッドホスホオキシエチルメタクリレート、アシッドホスホオキシエチルアクリレート、アシッドホスホオキシプロピルメタクリレート、アシッドホスホオキシポリオキシエチレングリコールモノメタクリレート、アシッドホスホオキシポリオキシプロピレングリコールモノメタクリレート、2,2'-ジ(メタ)アクリロイロキシジエチルホスフェート、EO変性リン酸ジメタクリレート、リン酸変性エポキシアクリレート、リン酸ビニル等が挙げられる。

【 0 0 4 1 】

リン酸エステル構造を有するラジカル重合性化合物は、例えば無水リン酸と2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレートとを反応させることによって得ることができる。具体的には、モノ(2-メタクリロイルオキシエチル)アシッドフォスフェート、ジ(2-メタクリロイルオキシエチル)アシッドフォスフェート等がある。これらは一種を単独で又は二種以上を混合して使用することができる。

30

【 0 0 4 2 】

リン酸エステル構造を有するラジカル重合性化合物の含有量は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として、0.01~50質量%であることが好ましく、0.5~5質量%であることがより好ましい。

【 0 0 4 3 】

(D)ラジカル重合開始剤は、加熱により分解して遊離ラジカルを発生する硬化剤であり、本発明の回路接続材料の原料としては、従来から知られている過酸化物やアゾ化合物等公知の化合物を用いることができる。ただし、安定性、反応性、相溶性の観点から、1分間半減期温度が90~175で、かつ分子量が180~1,000の過酸化物が好ましい。ここで、「1分間半減期温度」とは、半減期が1分となる温度をいい、「半減期」とは、化合物の濃度が初期値の半分に減少するまでの時間をいう。

40

【 0 0 4 4 】

ラジカル重合開始剤として具体的には、1,1,3,3-テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、ジ(4-t-ブチルシクロヘキシル)パーオキシジカーボネート、ジ(2-エチルヘキシル)パーオキシジカーボネート、クミルパーオキシネオデカノエート、1,1,3,3-テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、ジラウロイルパーオキサイド、1-シクロヘキシル-1-メチルエチルパーオキシネオデカノエート、t

50

- ヘキシルパーオキシネオデカノエート、*t*-ブチルパーオキシネオデカノエート、*t*-ブチルパーオキシピバレート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(2-エチルヘキサノイルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシネオヘプタノエート、*t*-アミルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、ジ-*t*-ブチルパーオキシヘキサヒドロテレフタレート、*t*-アミルパーオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、3-ヒドロキシ-1, 1-ジメチルブチルパーオキシネオデカノエート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-アミルパーオキシネオデカノエート、*t*-アミルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、3-メチルベンゾイルパーオキサイド、4-メチルベンゾイルパーオキサイド、ジ(3-メチルベンゾイル)パーオキサイド、ジベンゾイルパーオキサイド、ジ(4-メチルベンゾイル)パーオキサイド、2, 2'-アゾビス-2, 4-ジメチルバレロニトリル、1, 1'-アゾビス(1-アセトキシ-1-フェニルエタン)、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、ジメチル-2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、4, 4'-アゾビス(4-シアノバレリン酸)、1, 1'-アゾビス(1-シクロヘキサンカルボニトリル)、*t*-ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、*t*-ブチルパーオキシマレイン酸、*t*-ブチルパーオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシラウレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(3-メチルベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキシルモノカーボネート、*t*-ヘキシルパーオキシベンゾエート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルパーオキシベンゾエート、ジブチルパーオキシトリメチルアジペート、*t*-アミルパーオキシノルマルオクトエート、*t*-アミルパーオキシイソノナノエート、*t*-アミルパーオキシベンゾエート等が挙げられる。これらの化合物は、一種を単独で又は二種以上を混合して用いてもよい。

10

20

30

40

50

【0045】

また、ラジカル重合開始剤として、波長150~750nmの光照射によってラジカルを発生する化合物を用いることができる。このような化合物としては、例えば、Photoinitiation, Photopolymerization, and Photocuring, J. - P. Fouassier, Hanser Publishers (1995年)、17~35頁に記載されている -アセトアミノフェノン誘導体やホスフィンオキサイド誘導体が光照射に対する感度が高いためより好ましい。これらの化合物は、一種を単独で用いる他に、上記過酸化物やアゾ化合物と混合して用いてもよい。

【0046】

また、回路部材の接続端子の腐食を抑えるために、ラジカル重合開始剤中に含有される塩素イオンや有機酸の量は5,000ppm以下であることが好ましく、更に、加熱分解後に発生する有機酸が少ないものがより好ましい。また、作製した回路接続材料の安定性が向上することから、室温、常圧下で24時間の開放放置後に20質量%以上の質量保持率を有するラジカル重合開始剤を用いることが好ましい。

【0047】

本発明で用いるラジカル重合開始剤の含有量は(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として0.1~30質量%の範囲であることが好ましく、1~20質量%の範囲であることがより好ましい。ラジカル重合開始剤の含有量が0.1質量%未満では、十分な反応率が得られず接着力が低下する傾向があり、30質量%よりも多いと、ポットライフが短くなる傾向がある。

【0048】

本発明の回路接続材料は、(E)導電性粒子を更に含有することが好ましい。導電性粒子としては、例えば、Au、Ag、Pd、Ni、Cu、はんだ等の金属粒子やカーボン粒子が挙げられる。また、導電性粒子は、非導電性のガラス、セラミック、プラスチック等を核体とし、この核体に上記金属、金属粒子、カーボン等を被覆したものであってもよい

。導電性粒子が、プラスチックを核体とし、この核体に上記金属、金属粒子、カーボン等を被覆したものの、又は、熱熔融金属粒子である場合、加熱加圧により変形性を有するので回路部材同士を接続する際に、導電性粒子と電極との接触面積が増加して回路の接続信頼性が向上するので好ましい。

【0049】

このような導電性粒子を含有する場合、回路接続材料は、異方導電性回路接続材料として好適に用いることができる。

【0050】

導電性粒子の含有量は、回路接続材料の固形分の全体積を基準として0.1～30体積%とすることが好ましく、0.1～10体積%とすることがより好ましい。この含有量が0.1体積%未満であると導電性が劣る傾向があり、30体積%を超えると回路電極間の短絡が生じやすくなる傾向がある。なお、導電性粒子の含有量は、23での硬化前の回路接続材料の各成分の体積をもとに決定される。なお、各成分の体積は、比重を利用して質量を体積に換算することで求めることができる。また、体積を測定しようとする成分を溶解したり膨潤させたりせず、その成分をよくぬらすことができる適当な溶媒（水、アルコール等）をメスシリンダー等に入れ、そこへ測定対象の成分を投入して増加した体積をその成分の体積として求めることもできる。

10

【0051】

また、本発明の回路接続材料には、硬化速度の制御や貯蔵安定性を付与するために、安定化剤を添加することもできる。このような安定化剤としては、ベンゾキノンやヒドロキノン等のキノン誘導体、4-メトキシフェノールや4-t-ブチルカテコール等のフェノール誘導体、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-1-オキシルや4-ヒドロキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-1-オキシル等のアミノキシル誘導体、テトラメチルピペリジルメタクリレート等のヒンダードアミン誘導体が好ましい。

20

【0052】

安定化剤の添加量は、(A)熱可塑性樹脂、(B)ポリウレタン樹脂及び(C)ラジカル重合性化合物の総量を基準として、0.01～15質量%であることが好ましく、0.05～10質量%であることがより好ましい。この添加量が0.01質量%未満の場合には、添加効果が十分に得られない傾向があり、15質量%を超える場合には、重合反応が阻害される傾向がある。

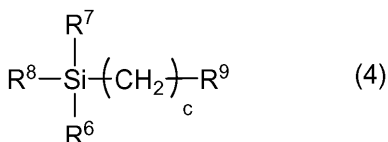
30

【0053】

本発明の回路接続材料には、アルコキシシラン誘導体やシラザン誘導体に代表されるカップリング剤や密着向上剤、レベリング剤等の接着助剤を適宜添加してもよい。かかる接着助剤として具体的には、下記一般式(4)で表される化合物が好ましい。これらの接着助剤は、一種を単独で又は二種以上を混合して使用することができる。

【0054】

【化4】



40

式(4)中、R⁶、R⁷及びR⁸は各々独立に、水素原子、炭素数1～5のアルキル基、炭素数1～5のアルコキシ基、炭素数1～5のアルコキシカルボニル基、又は、アリール基を示し、R⁹は(メタ)アクリロイル基、ビニル基、イソシアナート基、イミダゾール基、メルカプト基、アミノ基、メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ベンジルアミノ基、フェニルアミノ基、シクロヘキシルアミノ基、モルホリノ基、ピペラジノ基、ウレイド基又はグリシジル基を示し、cは1～10の整数を示す。

【0055】

本発明の回路接続材料には更に、応力緩和や耐熱性向上を目的として、公知の有機、無

50

機微粒子を添加してもよい。なお、本明細書においては、有機、無機微粒子は上記(A)熱可塑性樹脂成分からは除外するものとする。

【0056】

有機微粒子としては、具体的にはシリコン微粒子、メタクリレート-ブタジエン-スチレン微粒子、ブタジエン微粒子、ブタジエン-スチレン微粒子、アクリル-シリコン微粒子、ポリアミド微粒子、ポリイミド微粒子等が挙げられる。これらは均一な構造でもコア-シェル型構造となってもよい。

【0057】

無機微粒子としては、具体的には、シリカ微粒子、アルミナ微粒子、シリカ-アルミナ微粒子、チタニア微粒子、ジルコニア微粒子、酸化亜鉛微粒子等に代表される金属酸化物微粒子等が挙げられる。

10

【0058】

本発明の回路接続材料は、熱可塑性樹脂やポリウレタン樹脂、ラジカル重合性化合物、ラジカル重合開始剤と安定化剤等の添加成分を溶解・分散できる溶剤と共に又は溶剤を用いずに混合して製造できる。導電性粒子は、上記溶解・分散過程の中で適宜添加すればよい。

【0059】

本発明の回路接続材料はフィルム状にして用いることもできる。回路接続材料に必要により溶剤等を加える等した溶液を、フッ素樹脂フィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、離型紙等の剥離性基材上に塗布し、あるいは不織布等の基材に前記溶液を含浸させて剥離性基材上に載置し、溶剤等を除去してフィルムとして使用することができる。フィルムの形状で使用すると取扱性等の点から一層便利である。

20

【0060】

図1は、本発明の回路接続材料からなるフィルム状接着剤の一実施形態を示す模式断面図である。図1に示すフィルム状接着剤1は、上述した回路接続材料をフィルム状に形成してなるものである。このフィルム状接着剤によれば、取り扱いが容易であり、被着体へ容易に設置することができ、接続作業を容易に行うことができる。また、フィルム状接着剤1は、二種以上の層からなる多層構成(図示せず)を有していてもよい。また、フィルム状接着剤1が上記導電性粒子(図示せず)を含有する場合には、異方導電性フィルムとして好適に用いることができる。

30

【0061】

本発明の回路接続材料及びフィルム状接着剤は、通常、加熱及び加圧を併用して被着体同士を接着させることができる。加熱温度は、100~250の温度であることが好ましい。圧力は、被着体に損傷を与えない範囲であれば特に制限されないが、一般的には0.1~10MPaであることが好ましい。これらの加熱及び加圧は、0.5~120秒間の範囲で行うことが好ましい。本発明の回路接続材料及びフィルム状接着剤によれば、例えば、150~200、3MPaの条件にて、15秒間の短時間の加熱及び加圧でも被着体同士を十分に接着させることが可能である。

【0062】

また、本発明の回路接続材料及びフィルム状接着剤は、熱膨張係数の異なる異種の被着体の接着剤として使用することができる。具体的には、異方導電接着剤、銀ペースト、銀フィルム等に代表される回路接続材料、CSP用エラストマー、CSP用アンダーフィルム、LOCテープ等に代表される半導体素子接着材料として使用することができる。

40

【0063】

以下、本発明の回路接続材料及びフィルム状接着剤を、それぞれ異方導電性回路接続材料及び異方導電性フィルムとして使用し、回路基板の主面上に回路電極が形成された回路部材同士を接続する場合の一例について説明する。すなわち、異方導電性回路接続材料又は異方導電性フィルムを、回路基板上の相對時する回路電極間に配置し、加熱加圧することにより、對向する回路電極間の電氣的接続と回路基板間の接着とを行い、回路部材同士を接続することができる。ここで、回路電極を形成する回路基板としては、少なくとも一

50

方はガラスもしくはポリエチレンテレフタレートやポリカーボネートからなる基板、更に少なくとも一方はポリイミド、ポリエチレンテレフタレートやポリカーボネート等の有機物からなるフレキシブル基板である場合に特に本発明の効果が大きい。更に本発明の回路接続材料は、ガラス/エポキシ等の無機物と有機物とを組み合わせた基板等を用いることもできる。また、こうした回路接続材料としての用途に本発明の回路接続材料及びフィルム状接着剤を使用する場合、これらには導電性粒子を含有させることが好ましい。

【0064】

図2は、本発明の回路接続構造体（回路部材の接続構造）の一実施形態を示す概略断面図である。図2に示すように、本実施形態の回路部材の接続構造は、相互に対向する第一の回路部材20及び第二の回路部材30を備えており、第一の回路部材20と第二の回路部材30との間には、これらを接続する回路接続部材10が設けられている。

10

【0065】

第一の回路部材20は、回路基板（第一の回路基板）21と、回路基板21の主面21a上に形成される回路電極（第一の回路電極）22とを備えている。なお、回路基板21の主面21a上には、場合により絶縁層（図示せず）が形成されていてもよい。

【0066】

一方、第二の回路部材30は、回路基板（第二の回路基板）31と、回路基板31の主面31a上に形成される回路電極（第二の回路電極）32とを備えている。また、回路基板31の主面31a上にも、場合により絶縁層（図示せず）が形成されていてもよい。

20

【0067】

第一及び第二の回路部材20, 30としては、電氣的接続を必要とする電極が形成されているものであれば特に制限はない。具体的には、液晶ディスプレイに用いられているITOやIZO等で電極が形成されているガラス又はプラスチック基板、プリント配線板、セラミック配線板、フレキシブル配線板、半導体シリコンチップ等が挙げられ、これらは必要に応じて組み合わせて使用される。このように、本実施形態では、プリント配線板やポリイミド等の有機物からなる材質をはじめ、銅、アルミニウム等の金属やITO (indium tin oxide)、窒化ケイ素 (SiN_x)、二酸化ケイ素 (SiO_2) 等の無機材質のように多種多様な表面状態を有する回路部材を用いることができる。

【0068】

回路接続部材10は、本発明の回路接続材料又はフィルム状接着剤の硬化物からなるものである。この回路接続部材10は、絶縁性物質11単独で構成されていてもよく、又は図2に示したとおり導電性粒子7を含有していてもよい。導電性粒子7は、対向する回路電極22と回路電極32との間のみならず、主面21a, 31a同士間にも配置されている。回路部材の接続構造においては、回路電極22, 32が、導電性粒子7を介して電氣的に接続されている。すなわち、導電性粒子7が回路電極22, 32の双方に直接接触している。

30

【0069】

ここで、導電性粒子7は、先に説明した導電性粒子であり、絶縁性物質11は、本発明の回路接続材料又はフィルム状接着剤を構成する絶縁性の各成分の硬化物である。

【0070】

この回路部材の接続構造においては、上述したように、対向する回路電極22と回路電極32とが導電性粒子7を介して電氣的に接続されている。このため、回路電極22, 32間の接続抵抗が十分に低減される。従って、回路電極22, 32間の電流の流れを円滑にすることができ、回路の持つ機能を十分に発揮することができる。なお、回路接続部材10が導電性粒子7を含有していない場合には、回路電極22と回路電極32とが直接接触することで、電氣的に接続される。

40

【0071】

回路接続部材10は、本発明の回路接続材料又はフィルム状接着剤の硬化物により構成されていることから、回路部材20又は30に対する回路接続部材10の接着強度が十分に高くなり、信頼性試験（高温高湿試験）後においても安定した性能（良好な接着強度や

50

接続抵抗)を維持することができる。

【0072】

次に、図3を参照しながら、上述した回路部材の接続構造の製造方法の一例について説明する。まず、上述した第一の回路部材20と、フィルム状回路接続材料40とを用意する(図3(a)参照)。フィルム状回路接続材料40は、回路接続材料(回路接続材料)をフィルム状に成形してなるものであり、導電性粒子7と接着剤成分5とを含有する。なお、回路接続材料が導電性粒子7を含有しない場合でも、その回路接続材料は絶縁性接着剤として異方導電性接着に使用でき、特にNCP(Non-Conductive Paste)と呼ばれることもある。また、回路接続材料が導電性粒子7を含有する場合には、その回路接続材料はACP(Anisotropic Conductive Paste)と呼ばれることもある。

10

【0073】

フィルム状回路接続材料40の厚さは、6~50 μ mであることが好ましい。フィルム状回路接続材料40の厚さが6 μ m未満では、回路電極22,32間に回路接続材料が充填不足となる傾向がある。他方、50 μ mを超えると、回路電極22,32間の回路接続材料を十分に排除しきれなくなり、回路電極22,32間の導通の確保が困難となる傾向がある。

【0074】

次に、フィルム状回路接続材料40を第一の回路部材20の回路電極22が形成されている面上に載せる。なお、フィルム状回路接続材料40が支持体(図示せず)上に付着している場合には、フィルム状回路接続材料40側を第一の回路部材20に向けるようにして、第一の回路部材20上に載せる。このとき、フィルム状回路接続材料40はフィルム状であり、取り扱いが容易である。このため、第一の回路部材20と第二の回路部材30との間にフィルム状回路接続材料40を容易に介在させることができ、第一の回路部材20と第二の回路部材30との接続作業を容易に行うことができる。

20

【0075】

そして、フィルム状回路接続材料40を、図3(a)の矢印A及びB方向に加圧し、フィルム状回路接続材料40を第一の回路部材20に仮接続する(図3(b)参照)。このとき、加熱しながら加圧してもよい。但し、加熱温度はフィルム状回路接続材料40中の回路接続材料が硬化しない温度よりも低い温度とする。

30

【0076】

続いて、図3(c)に示すように、第二の回路部材30を、第二の回路電極を第一の回路部材20に向けるようにしてフィルム状回路接続材料40上に載せる。なお、フィルム状回路接続材料40が支持体(図示せず)上に付着している場合には、支持体を剥離してから第二の回路部材30をフィルム状回路接続材料40上に載せる。このとき第一及び第二の回路電極が相対向するよう位置合わせをしてから、第二の回路部材の上から加熱、加圧することで第二の回路部材を仮固定することができる。こうすることで続く本接続時の電極の位置ずれを抑制することができる。仮固定時の加熱温度はフィルム状回路接続材料40中の回路接続材料が硬化しない温度よりも低い温度とし、スループット短縮のため位置合わせから仮固定完了までの時間は5秒以下であることが好ましい。

40

【0077】

そして、フィルム状回路接続材料40を加熱しながら、図3(c)の矢印A及びB方向に第一及び第二の回路部材20,30を介して加圧する。このときの加熱温度は、重合反応が開始可能な温度とする。こうして、フィルム状回路接続材料40が硬化処理されて本接続が行われ、図2に示すような回路部材の接続構造が得られる。

【0078】

ここで、接続条件は先に述べた通り、加熱温度100~250、圧力0.1~10MPa、接続時間0.5~120秒間であることが好ましい。これらの条件は、使用する用途、回路接続材料、回路部材によって適宜選択され、必要に応じて、後硬化を行ってもよい。

50

【0079】

上記のようにして回路部材の接続構造を製造することにより、得られる回路部材の接続構造において、導電性粒子7を対向する回路電極22, 32の双方に接触させることが可能となり、回路電極22, 32間の接続抵抗を十分に低減することができる。

【0080】

また、フィルム状回路接続材料40の加熱により、回路電極22と回路電極32との間の距離を十分に小さくした状態で接着剤成分5が硬化して絶縁性物質11となり、第一の回路部材20と第二の回路部材30とが回路接続部材10を介して強固に接続される。すなわち、得られる回路部材の接続構造においては、回路接続部材10が本発明の回路接続材料からなる回路接続材料の硬化物により構成されていることから、回路部材20又は30に対する回路接続部材10の接着強度が十分になるとともに、電氣的に接続した回路電極間の接続抵抗を十分に低減することができる。また、高温高湿環境下に長期間放置した後も高い接着力を有し、かつ、回路部材と回路接続材料との界面に剥離気泡が生じることを十分に抑制することができる。

10

【実施例】

【0081】

以下、実施例及び比較例を挙げて本発明の内容をより具体的に説明する。なお、本発明は下記実施例に限定されるものではない。

【0082】

(ポリウレタン樹脂1の合成)

還流冷却器、温度計及び攪拌器を備えたセパラブルフラスコに、エステル結合を有するジオールとしてポリブチレンアジペートジオール($M_n = 2000$)1000重量部及び溶媒としてメチルエチルケトン4000重量部を加え、40で30分間攪拌した。70まで昇温した後、触媒としてジメチル錫ラウレート12.7mgを加え、次いで、この溶液に対して、ジイソシアネート化合物として4,4-ジフェニルメタン-ジイソシアネート125重量部をメチルエチルケトン125重量部に溶解させた溶液を、1時間かけて滴下した。その後、赤外分光光度計でNCOの吸収ピークが見られなくなるまでこの温度で攪拌を続け、ポリウレタン樹脂1のメチルエチルケトン溶液を得た。なお、この溶液の固形分濃度を30質量%となるように調整した。得られたポリウレタン樹脂1の重量平均分子量は、GPCによる測定の結果、320,000であり、フローテスト法での流動点は70であった。

20

30

【0083】

(ポリウレタン樹脂2の合成)

ポリウレタン樹脂1の合成におけるポリブチレンアジペートジオール1000質量部に代えてポリプロピレンアジペートジオール($M_n = 1500$)750重量部を用いたこと以外はポリウレタン樹脂1の合成と同様の方法にて、重量平均分子量310,000、フローテストの流動点が75のポリウレタン樹脂2のメチルエチルケトン溶液(固形分濃度30質量%)を得た。

【0084】

(ポリウレタン樹脂3の合成)

ポリウレタン樹脂1の合成におけるポリブチレンアジペートジオール1000重量部に代えてポリブチレンアジペートジオール($M_n = 2000$)450重量部、ポリオキシテトラメチレングリコール($M_n = 2000$)450重量部、1,4-ブチレングリコール100重量部を用いたこと以外はポリウレタン樹脂1の合成と同様の方法にて、重量平均分子量は350000、フローテスト法での流動点が80のポリウレタン樹脂3のメチルエチルケトン溶液(固形分濃度30質量%)を得た。

40

【0085】

(ポリウレタン樹脂4の合成)

ポリウレタン樹脂1の合成におけるポリブチレンアジペートジオール1000質量部に代えてポリプロピレングリコール($M_n = 2000$)1000重量部を用いたこと以外は

50

ポリウレタン樹脂 1 の合成と同様の方法にて、重量平均分子量 290,000、フローテスタの流動点が 65 のポリウレタン樹脂 4 のメチルエチルケトン溶液（固形分濃度 30 質量%）を得た。

【0086】

（ポリイミド樹脂の合成）

酸二無水物である 2,2-ビス(4-(3,4-ジカルボキシフェノキシ)フェニル)プロパン二無水物(26.1g)をシクロヘキサノン120gに溶解し、酸二無水物溶液を得た。また、ジアミンである 2,2-ビス(4-(4-アミノフェノキシ)フェニル)プロパン(14.4g)、1,3-ビス(3-アミノプロピル)-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン(3.8g)をシクロヘキサノン120gに溶解し、ジアミン溶液を得た。このジアミン溶液を、反応系の温度が 50 を超えないように調節しながら、酸二無水物の溶液のフラスコ内に滴下し、滴下終了後更に 10 時間攪拌した。次に水分留管を取り付け、トルエン 50g を加え 120 に昇温して 8 時間保持して、イミド化を行った。得られた溶液を室温まで冷却した後、メタノール中で再沈させ得られた沈降物を乾燥して重量平均分子量 32,000 のポリイミド樹脂を得た。これをテトラヒドロフランに溶解して固形分濃度が 20 質量%のポリイミド溶液とした。

10

【0087】

（ウレタンアクリレートの合成）

重量平均分子量 800 のポリカプロラクトンジオール 400 部、2-ヒドロキシプロピルアクリレート 131 部、触媒としてジブチル錫ジラウレート 0.5 部、及び、重合禁止剤としてハイドロキノンモノメチルエーテル 1.0 部を、攪拌しながら 50 に加熱して混合した。次いで、イソホロンジイソシアネート 222 部を滴下し、更に攪拌しながら 80 に昇温してウレタン化反応を行った。その後、赤外分光光度計で NCO の吸収ピークが見られなくなるまでこの温度で攪拌を続け、その後、反応温度を下げてウレタンアクリレートを得た。

20

【0088】

（導電性粒子の作製）

ポリスチレン粒子の表面上に、厚さ 0.2 μm になるようにニッケルからなる層を設け、更にこのニッケルからなる層の表面上に、厚さ 0.04 μm になるように金からなる層を設けた。こうして平均粒径 5 μm の導電性粒子を作製した。

30

【0089】

（実施例 1～5、比較例 1～4）

上記材料のほかシクロヘキシルアクリレート（東亜合成社製、商品名「CHA」）、リン酸エステル（共栄社化学社製、商品名「P-2M」）、及び、ラジカル重合開始剤として t-ヘキシルパーオキシ 2-エチルヘキサノネート（日油社製、商品名「パーキュアHO」）を、固形分質量で、表 1 に示す割合で配合した。これに導電性粒子を回路接続材料の固形分の全体積を基準として 3 体積%分散させて回路接続材料含有液を調製した。そして、この回路接続材料含有液を、片面を表面処理（離型処理）した厚み 50 μm のポリエチレンテレフタレート（PET）フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70 で 3 分間の熱風乾燥により、PET フィルム上に厚み 16 μm のフィルム状回路接続材料を得た。

40

【0090】

【表 1】

	実施例					比較例			
	1	2	3	4	5	1	2	3	4
ポリウレタン樹脂 1	5	—	—	2	8.5	—	—	—	1
ポリウレタン樹脂 2	—	5	—	—	—	—	10	—	—
ポリウレタン樹脂 3	—	—	5	—	—	—	—	20	—
ポリウレタン樹脂 4	—	—	—	—	—	5	—	—	—
ポリアミド樹脂	45	45	45	48	42	45	40	30	49
ウレタンアクリレート	40	40	40	40	40	40	40	40	40
シクロヘキシルアクリレート	10	10	10	10	10	10	10	10	10
リン酸エステル	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1	1.5	1.5
ラジカル重合開始剤	3	3	3	3	3	3	3	3	3

10

【0091】

(回路接続構造体の作製)

上記フィルム状回路接続材料を70の温度にて1MPa、2秒間で厚さ0.2μmの酸化インジウム(ITO)の薄層を形成したガラス(厚さ1.1mm、表面抵抗20/)に転写した。次に、このITO基板と、ライン幅25μm、ピッチ50μm及び厚さ18μmの銅回路を500本有するフレキシブル回路板(FPC)とを、熱圧着装置(加熱方式:コンスタントヒート型、東レエンジニアリング社製)を用いて190の温度にて3MPaで15秒間の加熱加圧を行った。これにより、幅2mmにわたりFPC基板とITO基板とをフィルム状回路接続材料の硬化物により接続した接続体(回路接続構造体)を作製した。

20

【0092】

(接続抵抗及び接着力の測定)

得られた接続体の隣接回路間の抵抗値(接続抵抗)を、マルチメータで測定した。抵抗値は隣接回路間の抵抗37点の平均で示した。次に接続体の接着力をJIS-Z0237に準じて90度剥離法で測定し、評価した。ここで、接着力の測定装置は東洋ポールドウイン社製テンシロンUTM-4(剥離速度50mm/min、25)を使用した。測定結果を表2に示す。

30

【0093】

(接続外観の観察)

顕微鏡(商品名「ECLIPSE L200」、ニコン社製)を用いて、フィルム状回路接続材料の硬化物とFPC及びガラスとの界面の剥離の有無を調べた。FPC及びガラスの両方に界面剥離が無い場合を「A」、FPC及びガラスの少なくとも一方に界面剥離がわずかにある場合を「B」、FPC及びガラスの少なくとも一方に界面剥離がある場合を「C」として評価した。評価結果を表2に示す。

40

【0094】

【表 2】

	実施例					比較例			
	1	2	3	4	5	1	2	3	4
初期接続抵抗(Ω)	1.7	1.7	1.7	1.6	1.9	1.7	1.8	1.6	2.0
85°C、85%RHで250時間保持した後の接続抵抗(Ω)	3.3	3.2	3.1	3.1	3.7	3.2	4.1	4.8	3.5
初期接着力(N/m)	870	880	890	910	880	870	900	920	810
85°C、85%RHで250時間保持した後の接着力(N/m)	840	840	850	800	870	420	860	650	510
85°C、85%RHで250時間保持した後の剥離の有無	A	A	A	A	A	A	B	C	A

10

【0095】

表 2 に示した結果から明らかなように、実施例 1 ~ 5 で得られたフィルム状回路接続材料は、初期接続時、及び、85°C、85%RHで250時間保持した後も良好な接続抵抗と接着力が得られた。一方、エステル基を含有しないポリウレタン樹脂 4 を用いた比較例 1 では、85°C、85%RHで250時間保持した後の接着力が大きく低下した。また、ポリウレタン樹脂の含有量の多い比較例 2 では、85°C、85%RHで250時間保持した後の接続抵抗が上昇する傾向が見られ、また、FPC 界面には剥離が観察されなかったが、ガラス界面に剥離が観察された。また、ポリウレタン樹脂 3 を公知例（特開 2002-203427 号公報）の実施例にある質量比で配合した比較例 3 では、ポリウレタン樹脂の配合量が多すぎるため、FPC 界面及びガラス界面の両方に剥離が発生した。また、ポリウレタン樹脂の含有量の少ない比較例 4 でも 85°C、85%RHで250時間保持した後の接着力が大きく低下した。

20

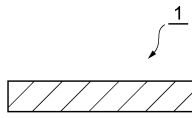
【符号の説明】

【0096】

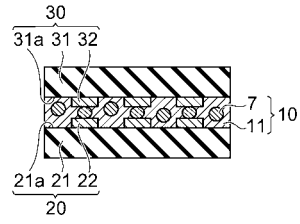
1 ... フィルム状接着剤、2 ... 半導体装置、5 ... 接着剤成分、7 ... 導電性粒子、10 ... 回路接続部材、11 ... 絶縁性物質、20 ... 第一の回路部材、21 ... 回路基板（第一の回路基板）、21a ... 主面、22 ... 回路電極（第一の回路電極）、30 ... 第二の回路部材、31 ... 回路基板（第二の回路基板）、31a ... 主面、32 ... 回路電極（第二の回路電極）、40 ... フィルム状回路接続材料。

30

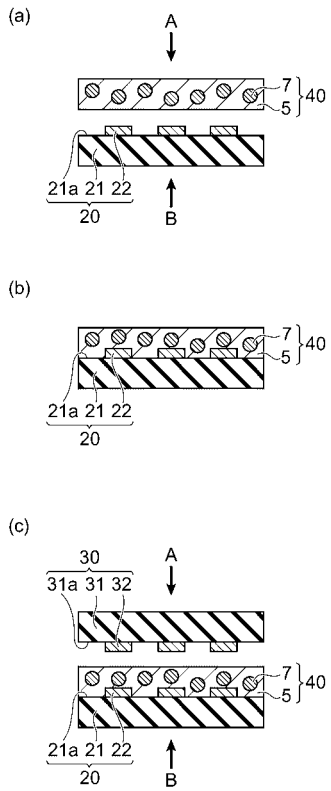
【 図 1 】



【 図 2 】



【 図 3 】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード(参考)	
<i>C 0 9 J</i>	<i>11/06</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 9 J</i>	<i>11/06</i>	<i>5 G 3 0 7</i>
<i>C 0 9 J</i>	<i>11/04</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 0 9 J</i>	<i>11/04</i>	
<i>H 0 5 K</i>	<i>1/14</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>H 0 5 K</i>	<i>1/14</i>	<i>J</i>
<i>H 0 1 B</i>	<i>5/16</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>H 0 1 B</i>	<i>5/16</i>	
<i>H 0 1 L</i>	<i>21/60</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>H 0 1 L</i>	<i>21/60</i>	<i>3 1 1 S</i>

(72)発明者 有福 征宏

茨城県筑西市五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社内

Fターム(参考) 4J040 EF111 EF281 EH031 FA131 FA221 HA066 JB10 KA11 KA32 MA05
 MA10 MB05 NA20
 5E319 AC02 AC03 BB16 CC03 CC70 GG01
 5E344 AA02 AA22 BB02 BB10 CC25 CD02 CD04 DD10 EE11
 5F044 KK01 KK03 KK04 KK05 LL09 LL11 NN05 NN19 RR17
 5G301 DA59 DD03 DD08
 5G307 HA02