 <b>(19) 대한민국특허청(KR)</b> <b>(12) 공개특허공보(A)</b>	<b>(11) 공개번호</b> 10-2010-0100792 <b>(43) 공개일자</b> 2010년09월15일
<p>(51) Int. Cl.  <i>C09J 163/00</i> (2006.01) <i>C09J 7/02</i> (2006.01)  <i>H01B 5/16</i> (2006.01) <i>H05K 1/14</i> (2006.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2010-7010589</p> <p>(22) 출원일자(국제출원일자) 2008년10월06일          심사청구일자 없음</p> <p>(85) 번역문제출일자 2010년05월14일</p> <p>(86) 국제출원번호 PCT/US2008/078936</p> <p>(87) 국제공개번호 WO 2009/051980          국제공개일자 2009년04월23일</p> <p>(30) 우선권주장          JP-P-2007-268149 2007년10월15일 일본(JP)</p>	<p>(71) 출원인          쓰리엠 이노베이티브 프로퍼티즈 컴파니          미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오.박          스 33427 쓰리엠 센터</p> <p>(72) 발명자          가와테 고키지로          일본 158-8583 도쿄 세타가야꾸 다마가와다이 2-          쯔메 33-1          아리따 히로코          일본 158-8583 도쿄 세타가야꾸 다마가와다이 2-          쯔메 33-1          (뒷면에 계속)</p> <p>(74) 대리인          양영준, 김영</p>
전체 청구항 수 : 총 14 항	
<b>(54) 비전도성 접착제 조성물 및 필름 및 제조 방법</b>	

**(57) 요약**

연성 인쇄 회로 기판을 회로 기판에 전기 접속시키기 위해, 저장 안정성과 경화성이 우수하며 압착 접합 시에 기포 형성을 억제하는 비전도성 접착 필름을 제공하기 위한 것이다. 비전도성 접착 필름은 열경화성 에폭시 수지, 잠재성 경화제, 및 평균 입자 크기가 약 1  $\mu\text{m}$  이하인 유기 탄성 미세 입자를 사실상 포함하며, 이는 유기 탄성 미세 입자의 응집에 의해 형성된다.

(72) 발명자

**야스이 히데아끼**

일본 158-8583 도쿄 세파가야꾸 다마가와다이 2-쵸  
메 33-1

**사또 요시아끼**

일본 158-8583 도쿄 세파가야꾸 다마가와다이 2-쵸  
메 33-1

---

## 특허청구의 범위

### 청구항 1

열경화성 에폭시 수지,

잠재성 경화제, 및

평균 입자 크기가 약  $1\ \mu\text{m}$  이하인 유기 탄성 미세 입자(organic elastic fine particle)로 본질적으로 이루어지며,

상기 유기 탄성 미세 입자의 응집(aggregation)에 의해 형성되는 비전도성 접착 필름.

### 청구항 2

제1항에 있어서, 상기 유기 탄성 미세 입자는 고체 함량을 기준으로 40 내지 90 wt%로 포함되는 비전도성 접착 필름.

### 청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 유기 탄성 미세 입자의 적어도 표면을 형성하는 재료는 실온 이하의  $T_g$ 를 갖는 비전도성 접착 필름.

### 청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 유기 탄성 미세 입자의 적어도 표면을 형성하는 재료는 아크릴 수지를 포함하는 비전도성 접착 필름.

### 청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 유기 탄성 미세 입자는 코어-셸 유형의 탄성 미세 입자를 포함하는 비전도성 접착 필름.

### 청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 잠재성 경화제는 캡슐화된 경화제인 비전도성 접착 필름.

### 청구항 7

제6항에 있어서, 상기 캡슐화된 경화제는 캡슐화된 이미다졸을 포함하는 비전도성 접착 필름.

### 청구항 8

제1항에 있어서,  $100^\circ\text{C}$ 에서 측정된 탄성 계수(modulus of elasticity)의 값이 실온에서 측정된 탄성 계수의 값의  $1.5 \times 10^{-3}$  내지  $1.5 \times 10^{-2}$ 배인 비전도성 접착 필름.

### 청구항 9

제1항에 있어서,  $100^\circ\text{C}$  및 46.8 kPa의 응력에서 측정된 겔보기 점도,  $\eta - \eta = \sigma / (d\gamma / dt)$  (여기서,  $\eta$ 는 겔보기 점도이고,  $\sigma$ 는 전단 응력이고, 그리고  $d\gamma / dt$ 는 전단 변형률 속도임)에 의해 정의된  $\eta$ 의 값이  $100^\circ\text{C}$  및 78.0 kPa의 응력에서 측정된 겔보기 점도의 값의 4배 이상인 비전도성 접착 필름.

### 청구항 10

제1항에 있어서, 실온에서 2주 동안 저장 후의 유동률이 초기 유동률의 90% 내지 110%인 비전도성 접착 필름.

### 청구항 11

도체들을 구비한 회로 기판으로 각각 구성되는 제1 회로 기판 및 제2 회로 기판 - 회로 기판들 중 적어도 하나는 연성 인쇄 회로 기판임 - 을 제조하는 단계,

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항의 비전도성 접착 필름을 상기 제1 회로 기판과 상기 제2 회로 기판 사이에 두

는 단계, 및

상기 비전도성 접착 필름이 그 사이에 위치된 상기 제1 회로 기관 및 제2 회로 기관을 가열 및 압착하여, 상기 제1 회로 기관 및 제2 회로 기관의 상기 도체들 사이의 상기 비전도성 접착 필름을 제거하여 상기 제1 회로 기관의 상기 도체들과 상기 제2 회로 기관의 상기 도체들을 전기 접속시키고 상기 열경화성 에폭시 수지를 경화시키는 단계를 포함하는, 2개의 회로 기관을 전기 접속시키는 방법.

#### 청구항 12

제11항의 방법에 의해 전기 접속된 회로 기관들을 포함하는 전자 장치.

#### 청구항 13

제12항에 있어서, 평판 디스플레이인 전자 장치.

#### 청구항 14

열경화성 에폭시 수지,

잠재성 경화제,

평균 입자 크기가 약 1  $\mu\text{m}$  이하인 유기 탄성 미세 입자, 및

상기 유기 탄성 미세 입자를 분산시킬 수 있는 용매로 본질적으로 이루어지며,

용매에 용해되는 중합체 재료를 포함하지 않고서도 필름 형성성(film formability)을 갖는 비전도성 접착제 조성물.

### 명세서

#### 기술분야

[0001] 본 발명은 비전도성 접착제 조성물 및 비전도성 접착 필름과, 이들의 제조 방법 및 사용 방법에 관한 것이다. 보다 구체적으로, 본 발명은 연성 인쇄 회로 기관(FPC)과 회로 기관 사이에 위치되며 열압착 접합에 의해 도체들 사이에 전기 접속을 형성할 수 있는 비전도성 접착제 조성물 및 비전도성 접착 필름, 및 이들의 제조 방법 및 사용 방법에 관한 것이다.

#### 배경기술

[0002] 평판 디스플레이의 유리 기관과 연성 인쇄 회로 기관(FPC)의 전기 접속 및 인쇄 회로 기관과 FPC의 전기 접속을 위하여, 비등방성 전도성 필름(ACF)이 과거에 사용되었다. ACF는 일반적으로 열경화성 수지와 전도성 입자를 포함한다. 그러한 회로 기관들 또는 기관들 사이에 ACF를 샌드위치시키고 이들을 열압착 접합시킴으로써, 하나의 회로 기관 또는 기관 상의 도체와 다른 회로 기관 또는 기관 상의 도체 사이에 샌드위치된 전도성 입자는 이들 도체 사이에 전기 접속을 형성한다. 도 1은 FPC(1)와 유리 기관(4)의 단면도이며, 여기서 ACF가 FPC 상의 도체(2)와 유리 기관 상의 도체(3) 사이에 전기 접속을 형성하기 위하여 사용된다. 도 1은 도체(2)와 도체(3)가 ACF의 열경화성 수지(5)에 분산된 전도성 입자(6)를 통해 전기적으로 접속되고 전도성 입자(6)는 도체들 사이에 압착되어 변형되는 것을 보여준다.

[0003] 전자 장치의 크기가 점점 작아짐에 따라, 최근에는 상기한 회로 기관들 또는 기관들의 인터커넥트(interconnect) 패턴은 밀도가 더 높아지고 있다. 그러한 고밀도 인터커넥트 패턴을 가진 회로 기관들 또는 기관들 사이에 전기 접속을 형성하기 위하여 ACF를 이용할 경우, 도체들 사이의 피치가 매우 작아져서, 전도성 입자는 동일한 회로 기관 또는 기관 상의 인접 도체를 단락(short-circuit)시킬 수 있다. 추가적으로, 전도성 입자는 매우 비싼 금속 등을 포함하여, 전체적인 재료 비용이 증가하며 그 결과 때로는 생산 비용이 결국 상승하게 된다.

[0004] ACF와 유사한 결과를 초래하지만 어떤 전도성 입자도 포함하지 않는 재료를 이용하는 방법으로서, 비전도성 접착제(NCA)가 제안되었다 (문헌[H. Kristiansen and A. Bjorneklett, "Fine-pitch connection to rigid substrate using non-conductive epoxy adhesive", J. Electronics Manufacturing, vol. 2, pp. 7-12, 1992] 참고). 이 방법은 FPC와 회로 기관 또는 기관 사이에 열경화성 수지를 놓고 압력 하에서 열경화성 수지를 경화

시켜 FPC 상의 도체와 회로 기판 또는 기판 상의 도체가 압착 접합 상태로 유지된다. 이러한 유형의 방법은 어떤 비싼 전도성 입자도 사용하지 않으며, 따라서 미세한 인터커넥트 접속에서도 단락이 발생하지 않고 게다가 비용적 이점도 있으므로, 액정 디스플레이, 플라즈마 디스플레이 등의 생산 과정에서 큰 개선이 예상될 수 있다. 도 2는 FPC(1)와 유리 기판(4)의 단면도이며, 여기서 NCA가 FPC 상의 도체(2)와 유리 기판 상의 도체(3) 사이에 전기 접속을 형성하기 위해 사용된다. 도 2는 도체(2)와 도체(3)가 물리적으로 직접 접촉하게 되고 전기 접속되는 것을 보여주며, 열경화성 수지(7)가 도체(2)와 도체(3)를 압착 접합된 상태로 유지함을 보여준다.

[0005] 그러나, 이러한 방법은 실제 응용에서 여러가지 문제를 계속적으로 갖는다. 비전도성 접착제가 필름 형태로 형성되는 비전도성 접착 필름(NCF) 방법을 사용할 경우, NCF를 형성하는 수지를 이들 도체 사이로부터 제거하고 압착 접합된 도체의 표면을 소성 변형시키는 것이 바람직하다. 소성 변형하는 도체 표면 상의 미세한 표면 조도에 의해, 어떠한 전도성 입자 없이도 이들 도체 사이에 전기 접속이 형성될 수 있다. 따라서, NCF 방법을 사용하여 더 나은 전기 접속을 형성하도록, 상대적 고압에 의해 FPC를 압착 접합하는 것이 바람직하다. 이때 발생하는 FPC의 베이스 필름의 휨(deflection)은 ACF 방법을 사용하는 경우보다 더 커지는 경향이 있다.

[0006] 열압착 접합시 FPC에서 발생하는 휨은 잔류 응력을 가져서, 압착 접합시 하중을 제거하고 냉각시키면 FPC는 그 원래의 형상으로 되돌아가려고 하며 때로는 기포가 수지에 형성될 것이다. 도 3은 FPC에서 발생하는 휨(D)의 양 및 수지 내에 형성된 기포(8)를 보여준다. 기포는 가열시 팽창할 수 있다. 또한, 이들은 때로는 수분을 함유한다. 따라서, 그러한 기포는 회로 기판들 또는 기판들 사이의 접속의 신뢰성을 떨어뜨릴 뿐만 아니라 때로는 동일한 회로 기판들 또는 기판들 상의 인접한 도체들 사이의 절연의 신뢰성도 떨어뜨린다. 따라서, 고밀도 인터커넥트의 전기 접속을 위해 본질적으로 유리한 NCF 방법에서, 기포 문제의 해결이 매우 강하게 요구된다.

[0007] NCF 방법에 의한 FPC의 휨을 감소시키기 위한 하나의 방법으로서, 기포를 형성하는 부분, 즉 회로 기판들 또는 기판들 상의 인접한 도체들 사이의 섹션 - 도체들이 없는 섹션 - 에서의 수지의 유출을 감소시키는 것을 들 수 있다. 예를 들어, 열압착 접합 조건 하에서 수지의 점도가 상승하면, 수지의 유출이 억제될 수 있다. 그러나, 열압착 접합 조건 하에서 수지의 점도가 너무 높으면, 수지는 전기 접속 형성에 필요한 도체들 사이의 계면에 얇게 남아 있을 수 있어서 열등한 접촉의 원인이 될 수 있다. 따라서, NCF 방법에서, 열압착 접합시, 도체들을 전기 접속시키는 부분에서의 수지의 점도는 바람직하게는 낮지만, 기포의 형성을 억제하기 위하여 다른 부분에서의 수지의 점도는 바람직하게는 높다.

[0008] 한편, 열압착 접합 단계의 생산성을 고려하면, 열압착 접합 시간은 바람직하게는 짧다. 열압착 접합 시간을 단축시키는 한 가지 효율적인 방법으로서, 열경화성 수지를 경화시킬 때 가열 온도를 상승시키는 것을 들 수 있다. 그러나, 예를 들어, 200℃ 이상으로 가열하면, FPC의 연신 및/또는 변형이 발생할 수 있다. 생산 과정의 안정화 측면에서, 그러한 연신 및/또는 변형은 바람직하지 않다. 따라서, 짧은 시간 내에 저온에서 경화시키는 고반응성 경화 시스템을 이용하는 것이 바람직하다. 한편, 그러한 고반응성 경화 시스템을 사용하면, 예를 들어, 실온에서 저장될 경우, 열경화성 수지는 시간의 경과에 따라 점차 경화될 것이며, 재료의 점도 특징이 변할 것이며, 그리고 일부 경우에는 실제 사용시 원하는 점도 특징이 얻어질 수 없을 것이다.

[0009] 빠른 경화성과 저장 안정성의 상반되는 양 요구를 이루기 위한 한 가지 효과적인 방법으로서, 캡슐화된 경화제의 사용이 알려져 있다. 이것은 가교결합된 중합체의 박막에 의해 덮여 있는, 에폭시와의 반응성이 큰 이미다졸 유도체 또는 다른 경화제로 구성되는 재료이다. 그러한 재료를 사용함으로써, 매우 우수한 저장 안정성이 얻어질 수 있다. 그러나, NCF의 제조시, 열가소성 수지 또는 다른 중합체 재료를 용해시키기 위해 통상 사용되는 메틸 에틸 케톤(MEK)과 같은 고극성 용매는 경화제를 덮고 있는 캡슐화 재료의 일부를 용해시키게 된다. 따라서, 만일 NCF의 제조시 높은 용해력을 가진 용매를 사용하면, 때로는 캡슐화된 경화제는 충분한 잠재력을 나타낼 수 없을 것이며 NCF의 저장 안정성은 결국 손상될 것이다.

[0010] 문헌[Asai et al., J. Appl. Polym. Sci., Vol. 56, 769-777 (1995)]은 에폭시 수지, 페녹시 수지, 미세캡슐화된 이미다졸, 및 전도성 입자를 톨루엔/MEK 혼합 용매에 용해시키고 필름을 형성함으로써, 신속한 경화성 및 저장 안정성 둘 모두를 어느 정도 달성할 수 있음을 개시한다. 이 문헌에서, 극성 용매 MEK가 미세캡슐화된 이미다졸의 잠재성을 손상시킨다는 사실이 또한 밝혀졌다. 문헌[J.Y. Kim et al., J. Mat. Processing Technology, Vol. 152, 357-362 (2004)]은 에폭시 수지, NBR, 미세캡슐화된 이미다졸, 및 전도성 입자를 톨루엔에 용해시켜 ACF를 제조하는 것을 개시한다. 그러나, 그러한 ACF를 이용할 경우, 1000시간 동안 85℃ 및 상대 습도(RH) 85%에서의 에이징(aging)에 의해 접촉 저항성(contact resistance)이 2Ω 이상 증가하였음을 알게 되었다. 일본 특허 공개 제10-21740호는 미세캡슐화된 이미다졸을 포함하는 ACF 조성물을 개시한다. 이 조성물은 페녹시 수지, 우레탄 수지, SBR 수지, 폴리비닐 부티랄 수지, 폴리에스테르 수지 등으로 구성된 필름 형성제

를 사용한다. 일본 특허 공개 제2006-252980호는 반응성 탄성중합체, 에폭시 수지, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 ACF 조성물을 개시한다. 일본 특허 공개 제2004-315688호는 플루오렌 골격을 가진 페녹시 수지, 에폭시 수지, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 반도체 생산 필름을 개시한다. 일본 특허 공개 제10-204153호는 나프탈렌 골격을 가진 에폭시 수지, 액체 아크릴 수지, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 접착제 조성물을 개시한다. 일본 특허 제3449904호는 트라이메틸을 프로판 트라이아크릴레이트, 비스페놀 F 타입 에폭시 수지 전구체, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 주로 구성된 수지 조성물을 개시한다. 일본 특허 제3883214호는 아크릴 수지, 에폭시 수지, 실리카 입자, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 수지 조성물을 개시한다. 일본 특허 공개 제5-32799호는 실란 커플링제가 균일하게 혼합된 반응성 탄성중합체, 에폭시 수지, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 ACF 조성물을 개시한다. 일본 특허 공개 제9-150425호는 폴리비닐 부티랄 수지, 에폭시 수지, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 ACF 조성물을 개시한다. 일본 특허 공개 제2006-73397호는 고체 에폭시 수지 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 ACF 조성물을 개시한다. 일본 특허 제3465276호는 아크릴 탄성중합체, 에폭시 수지, 및 잠재성 경화제(미세캡슐화된 이미다졸)로 구성된 접착제 조성물을 개시한다.

### 발명의 내용

- [0011] 본 발명은 열경화성 에폭시 수지, 잠재성 경화제, 및 평균 입자 크기가 약  $1\ \mu\text{m}$  이하인 유기 탄성 미세 입자(organic elastic fine particle)로 본질적으로 이루어진 비전도성 접착 필름을 제공한다. 이 필름은 유기 탄성 미세 입자의 응집에 의해 형성된다.
- [0012] 본 발명의 일 실시 형태에서, 유기 탄성 미세 입자는 고체 함량 기준으로 40 내지 90 wt%로 포함될 수 있다. 다른 실시 형태에서, 유기 탄성 미세 입자의 적어도 표면을 형성하는 재료는 실온 이하의 Tg를 가질 수 있다. 추가로, 다른 실시 형태에서, 유기 탄성 미세 입자의 적어도 표면을 형성하는 재료는 아크릴 수지를 포함할 수 있으며, 유기 탄성 미세 입자는 코어-셸 유형의 탄성 미세 입자를 포함할 수 있다.
- [0013] 추가로, 다른 실시 형태에서, 잠재성 경화제는 캡슐화된 경화제일 수 있으며, 캡슐화된 경화제는 캡슐화된 이미다졸을 포함할 수 있다.
- [0014] 추가로, 다른 실시 형태에서, 비전도성 접착 필름은  $100^\circ\text{C}$ 에서 측정된 탄성 계수(modulus of elasticity)의 값이 실온에서 측정된 탄성 계수의 값의  $1.5 \times 10^{-3}$  내지  $1.5 \times 10^{-2}$  배일 수 있다. 다른 실시 형태에서, 비전도성 접착 필름은  $100^\circ\text{C}$  및 46.8 kPa의 응력에서 측정된 겉보기 점도,  $\eta - \eta = \sigma / (d\gamma / dt)$  (여기서,  $\eta$ 는 겉보기 점도이고,  $\sigma$ 는 전단 응력이고, 그리고  $d\gamma / dt$ 는 전단 변형률 속도임)에 의해 정의된  $\eta$ 의 값이  $100^\circ\text{C}$  및 78.0 kPa의 응력에서 측정된 겉보기 점도의 값의 4배 이상일 수 있다. 추가 실시 형태에서, 실온에서 2주 동안 저장 후의 유동률은 초기 유동률의 90% 내지 110%일 수 있다.
- [0015] 더욱이, 본 발명은 두 개의 회로 기판을 전기 접속하는 방법을 제공하며, 이 방법은 도체들을 구비한 회로 기판으로 각각 구성되는 제1 회로 기판 및 제2 회로 기판 - 회로 기판들 중 적어도 하나는 연성 인쇄 회로 기판임 - 을 제조하는 단계, 상기한 비전도성 접착 필름을 제1 회로 기판과 제2 회로 기판 사이에 두는 단계, 및 비전도성 접착 필름이 그 사이에 위치된 제1 회로 기판 및 제2 회로 기판을 가열 및 압착하여, 제1 회로 기판 및 제2 회로 기판의 도체들 사이의 비전도성 접착 필름을 제거하여 제1 회로 기판의 도체들과 제2 회로 기판의 도체들을 전기 접속시키고 열경화성 에폭시 수지를 경화시키는 단계를 포함한다.
- [0016] 더욱이, 본 발명은 상기 방법에 의해 전기 접속된 회로 기판들을 포함하는 전자 장치를 제공한다. 본 발명의 일 실시 형태에서, 전자 장치는 평판 디스플레이이다.
- [0017] 추가로, 본 발명은 열경화성 에폭시 수지, 잠재성 경화제, 평균 입자 크기가 약  $1\ \mu\text{m}$  이하인 유기 탄성 미세 입자, 및 유기 탄성 미세 입자를 분산시킬 수 있는 용매로 본질적으로 이루어지는 비전도성 접착제 조성물을 제공한다. 이 조성물은 용매에 용해된 중합체 재료를 포함하지 않고서도 필름 형성성을 갖는다.

### 도면의 간단한 설명

- [0018] <도 1>
- 도 1은 비등방성 전도성 필름을 이용하여 전기 접속된 종래의 연성 인쇄 회로 기판 및 유리 기판의 측단면도.
- <도 2>



도 2는 비전도성 접착제를 이용하여 전기 접속된 종래의 연성 인쇄 회로 기판 및 유리 기판의 측단면도.

<도 3>

도 3은 비전도성 접착제를 이용하여 전기 접속된 종래의 연성 인쇄 회로 기판 및 유리 기판의 측단면도 (기포가 열 경화된 수지에 형성됨).

<도 4>

도 4는 본 발명의 일 실시 형태의 경화된 비전도성 접착 필름의 주사전자현미경 사진.

<도 5>

도 5는 경화되기 전과 경화된 후의 실시예 9의 접착 필름의 영률(Young's modulus)을 나타내는 도면.

<도 6a>

도 6a는 실시예 1의 샘플을 이용하여 열압착 접합된 연성 인쇄 회로 기판의 사진.

<도 6b>

도 6b는 비교예의 샘플을 이용하여 열압착 접합된 연성 인쇄 회로 기판의 사진.

<도 7>

도 7은 겔보기 점도와 탄성 미세 입자의 양 사이의 관계를 보여주는 그래프.

<도 8>

도 8은 겔보기 점도 및 유동률과 탄성 미세 입자의 양 사이의 관계를 보여주는 그래프.

<도 9a>

도 9a는 연성 인쇄 회로 기판과 유리 기판 사이의 접촉 저항의 측정 방법을 보여주는 개략도.

<도 9b>

도 9b는 접촉 저항을 계산할 때 사용되는 회로도.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0019] 본 발명의 비전도성 접착제 조성물은, 유기 탄성 미세 입자가 포함되어 용매에 중합체 재료를 용해시키지 않고 조성물에 중합체 재료를 포함시키지 않더라도 필름 형성성을 가진다는 점을 그 특징으로 한다. 이 필름 형성성은 유기 탄성 미세 입자의 응집에 의해 주로 제공된다. 본 발명의 조성물에서, 유기 탄성 미세 입자를 분산시킬 수 있는 용매가 사용되지만, 이 용매는 잠재성 경화제에 거의 또는 전혀 어떠한 해를 야기하지 않도록 선택된다. 본 발명에서, 필름 형성을 위하여 과거에 사용되었던 중합체는 필요하지 않으며, 따라서 그러한 중합체 재료를 용해시키기 위해 사용되었지만 잠재성 경화제, 예를 들어, MEK에 결국 해를 야기하는 용매는 필요하지 않다. 이러한 이유로, 본 발명의 비전도성 접착제 조성물 및 이 조성물을 사용하여 제조된 비전도성 접착 필름은 잠재성 경화제가 본질적으로 보유한 성능, 즉 상온에서의 잠재성 및 가열시의 열경화성을 충분히 나타낼 수 있으며, 저장 안정성이 매우 우수하다.

[0020] 추가로, 본 발명의 비전도성 접착 필름을 형성하는 열경화성 에폭시 수지와 유기 탄성 미세 입자의 혼합물은 열경화 전에 용융 상태에서 의가소성(pseudoplastic) 유체로서의 거동을 가능하게 한다는 점을 그 특징으로 한다. "의가소성 유체"란, 유체에 작용하는 응력이 더 커지면 겔보기 점도가 더 작아지는 거동을 나타내는 유체를 의미한다. 예를 들어, 본 발명의 일 실시 형태에서, 100℃에서 점도를 측정할 경우, 46.8 kPa의 응력에서 측정된 겔보기 점도는 78.0 kPa의 응력에서 측정된 겔보기 점도의 4배 이상이였다. 그러한 혼합물을 포함하는 필름을 사용함으로써, 열압축 접합시, 도체를 전기 접속하는 접착 필름의 부분, 즉 응력이 크게 가해지는 부분의 점도는 작아지며, 접착 필름은 도체들 사이로부터 쉽게 배제되며, 접촉 저항이 적은 전기 접속이 형성될 수 있다. 한편, 기포가 형성될 수 있는 부분, 즉 회로 기판 또는 기판 상의 인접한 도체들 사이의 섹션 - 도체가 없음 - 에서는, 가해지는 응력이 작아져서, 접착 필름의 점도가 더 높게 유지되며, 그 섹션으로부터 접착 필름의 유출이 작아지며, 그 결과, 기포의 형성이 억제될 수 있다.

[0021] 상기한 설명은 본 발명의 모든 실시 형태 및 본 발명에 관련된 모든 이점 또는 효과를 개시하는 것으로 이해되

어서는 안된다. 본 발명은 본 발명의 전형적인 실시 형태를 설명하기 위해 하기의 도면과 상세한 설명에 의해서 상세히 설명될 것이다.

- [0022] 본 발명은 열경화성 에폭시 수지, 잠재성 경화제, 평균 입자 크기가 약 1  $\mu\text{m}$  이하인 유기 탄성 미세 입자, 및 유기 탄성 미세 입자를 분산시킬 수 있는 용매로 본질적으로 이루어지는 비전도성 접착제 조성물을 제공한다. 이 비전도성 접착제 조성물은 용매에 용해된 중합체 재료를 포함하지 않더라도 필름 형성성을 갖는다.
- [0023] 본 발명에 사용된 열경화성 에폭시 수지는 열압착 접합시에 경화되어 FPC와 회로 기판을 접합시킨다. 추가로, 열경화성 에폭시 수지는 또한 본 발명의 접착제 조성물 또는 접착 필름에서 유기 탄성 미세 입자의 결합체로서 작용한다.
- [0024] 본 발명에 사용되는 열경화성 에폭시 수지는 본 기술 분야에 알려진 임의의 에폭시 수지를 포함할 수 있으나, 상기에 설명한 바와 같이 유기 탄성 미세 입자의 결합체로서 작용하도록 상온에서 액체인 것이 바람직하다. 그러한 열경화성 에폭시 수지는 바람직하게는 경화 전의 25°C에서의 점도가 약 0.1 Pa·s 이상, 더욱 바람직하게는 약 0.5 Pa·s 이상, 더욱 더 바람직하게는 약 1 Pa·s 이상이다. 추가로, 경화 전의 25°C에서의 점도는 바람직하게는 약 200 Pa·s 이하, 더욱 바람직하게는 약 150 Pa·s 이하, 더욱 더 바람직하게는 약 100 Pa·s 이하이다. 열경화성 에폭시 수지의 점도는, 예를 들어 브룩필드(Brookfield) 회전 점도계를 이용하여 측정할 수 있다.
- [0025] 그러한 상온에서 액체인 에폭시 수지로서, 에피클로로히드린과 비스페놀 A, 비스페놀 F, 비스페놀 AD 등으로부터 유도되고 평균 분자량이 약 200 내지 약 500인 비스페놀형 에폭시 수지; 에피클로로히드린과 페놀 노볼락 또는 크레졸 노볼락으로부터 유도된 에폭시 노볼락 수지; 나프탈렌 고리를 포함하는 골격을 가진 나프탈렌형 에폭시 수지; 둘 이상의 글리시딜 아민, 글리시딜 에테르 및 다른 글리시딜 기를 바이페닐, 다이클로로펜타디엔 또는 다른 분자 내에 가진 다양한 에폭시 화합물; 분자 내에 둘 이상의 지환족 에폭시기기를 가진 지환족형 에폭시 화합물; 및 이들 중 둘 이상의 유형의 혼합물이 사용될 수 있다. 구체적으로, 예를 들어, 에피코트(Epicoat) EP828 (비스페놀 A 유형, 에폭시 당량: 190 g/eq, 저팬 에폭시 레진(Japan Epoxy Resin)), YD128 (비스페놀 A 유형, 에폭시 당량: 184 내지 194 g/eq, 토오토 카세이(Tohto Kasei)), 에피코트 EP807 (비스페놀 F 유형, 저팬 에폭시 레진), EXA7015 (수화된 비스페놀 A 유형, DIC), EP4088 (다이사이클로펜타디엔 유형, 아사히 덴카(Asahi Denka)), HP4032 (나프탈렌 유형, DIC), 플라셀(PLACCEL) G402 (락톤-개질 에폭시, 에폭시 당량: 1050 내지 1450 g/eq, 다이셀 케미칼 인더스트리(Daicel Chemical Industry)), 셀록시드(Celloxide) (지환족 유형, 다이셀 케미칼 인더스트리) 등을 들 수 있다. 본 발명의 접착제 조성물은 함께 혼합된 상기 열경화성 에폭시 수지의 한 가지 이상의 유형을 포함할 수 있다.
- [0026] 열경화성 에폭시 수지의 함량은, 예를 들어 수지의 유형, 구조, 및 분자량, 요망되는 접합 특징 및 경화 특징, 유기 탄성 미세 입자의 유형 및 함량, 및 또한 조성물이 필름 형성에 사용되는 시기, 형성되는 필름의 특징(예를 들어, 가요성 등)을 고려하여 당업자가 적절히 선택할 수 있다. 한 가지 예를 든다면, 열경화성 에폭시 수지의 함량은 접착제 조성물의 고체 함량에 대하여 약 2 wt% 이상, 바람직하게는 약 5 wt% 이상, 더욱 더 바람직하게는 약 15 wt% 이상일 수 있다. 추가로, 열경화성 에폭시 수지의 함량은 접착제 조성물의 고체 함량에 대하여 약 60 wt% 이하, 바람직하게는 약 50 wt% 이하, 더욱 더 바람직하게는 약 30 wt% 이하일 수 있다.
- [0027] 본 발명에 사용되는 잠재성 경화제는 경화성을 나타내지 않으며 상온에서 접착제 조성물 또는 접착 필름에 포함된 열경화성 에폭시 수지의 경화를 진행시키지 않지만, 가열될 경우 경화성을 나타내며 열경화성 에폭시 수지를 원하는 정도로 경화시킬 수 있다.
- [0028] 본 발명에 사용될 수 있는 잠재성 경화제로서, 이미다졸, 하이드라지드, 트라이플루오로보란-아민 복합체, 아민 이미드, 폴리아민, 3차 아민, 알킬우레아, 또는 다른 아민 화합물, 다이시안다디아미드, 및 그들의 변형된 생성물 및 이들 중 둘 이상의 혼합물을 들 수 있다.
- [0029] 상기 언급한 잠재성 경화제 중에서, 이미다졸 잠재성 경화제가 바람직하다. 이미다졸 잠재성 경화제는 본 기술 분야에 알려진 이미다졸 잠재성 경화제, 예를 들어 이미다졸 화합물과 에폭시 수지의 부가물을 포함한다. 그러한 이미다졸 화합물로서, 이미다졸, 2-메틸 이미다졸, 2-에틸이미다졸, 2-프로필 이미다졸, 2-도데실 이미다졸, 2-페닐 이미다졸, 2-페닐-4-메틸 이미다졸, 및 4-메틸 이미다졸을 들 수 있다.
- [0030] 더욱이, 저장 안정성과 신속한 경화성의 상반되는 양 특징을 모두 향상시키기 위하여, 본 발명의 잠재성 경화제로서 폴리우레탄계, 폴리에스테르계, 또는 다른 중합체 물질 또는 Ni, Cu 또는 다른 금속 박막 등에 의해 덮인 코어로서 상기 언급된 잠재성 경화제로 구성된 캡슐화된 경화제를 사용하는 것이 가능하다. 그러한 캡슐화된 경



화제 중에는, 캡슐화된 이미다졸이 바람직하게는 사용된다.

[0031] 이 캡슐화된 이미다졸로서, 우레아 또는 아이소시아네이트 화합물에 의해 부가되고 그 표면을 아이소시아네이트 화합물에 의해 차단시켜 추가로 캡슐화된 이미다졸 화합물로 구성된 이미다졸계 잠재성 경화제 또는 에폭시 화합물에 의해 부가되고 아이소시아네이트 화합물에 의해 그 표면을 차단시켜 추가로 캡슐화된 이미다졸 화합물로 구성된 이미다졸계 잠재성 경화제를 들 수 있다. 구체적으로, 예를 들어, 노바큐어(Novacure) HX3941HP, 노바큐어 HXA3042HP, 노바큐어 HXA3922HP, 노바큐어 HXA3792, 노바큐어 HX3748, 노바큐어 HX3721, 노바큐어 HX3722, 노바큐어 HX3088, 노바큐어 HX3741, 노바큐어 HX3742, 노바큐어 HX3613 (모두 아사히 카세이 케미칼스(Asahi Kasei Chemicals)에 의해 제조됨) 등을 들 수 있다. 노바큐어는 소정의 비율로 함께 혼합된 캡슐화된 이미다졸과 열경화성 에폭시 수지로 구성된 제품임을 주목한다.

[0032] 추가로, 본 발명에 사용될 수 있는 아민계 잠재성 경화제로서, 본 기술 분야에 알려진 아민계 잠재성 경화제가 포함될 수 있다. 폴리아민(예를 들어, H-4070S, H-3731S 등, ACR), 3차 아민 (H3849S, ACR), 알킬우레아(예를 들어, H-3366S, ACR) 등을 들 수 있다.

[0033] 잠재성 경화제의 함량은 열경화성 에폭시 수지의 중량에 대하여 약 1 wt% 이상일 수 있으며, 바람직하게는 약 10 wt% 이상, 더욱 바람직하게는 약 15 wt% 이상이다. 추가로, 잠재성 경화제의 함량은 열경화성 에폭시 수지의 중량에 대하여 약 50 wt% 이하, 바람직하게는 약 25 wt% 이하, 더욱 더 바람직하게는 약 21 wt% 이하일 수 있다. 여기서, 열경화성 에폭시 수지와 잠재성 경화제의 구매가능한 혼합물을 사용할 경우, "잠재성 경화제의 함량"은 열경화성 에폭시 수지 성분과 다른 열경화성 에폭시 수지 성분의 혼합물에서의 총 중량을 기준으로 혼합물에 포함된 잠재성 경화제 성분의 비를 나타냄을 주목한다. 추가로, 잠재성 경화제의 반응 시작 온도("활성화 온도"로도 불림)가 높을수록 접착제 조성물의 저장 안정성이 높은 반면, 반응 시작 온도가 낮을수록 경화가 신속하다. 가능한 한 높은 수준에서 신속한 경화성과 저장 안정성을 이루기 위해서, 잠재성 경화제의 반응 시작 온도는 전형적으로 바람직하게는 약 50℃ 이상, 더욱 바람직하게는 약 100℃ 이상이다. 추가로, 잠재성 경화제의 반응 시작 온도는 바람직하게는 약 200℃ 이하, 더욱 바람직하게는 약 180℃ 이하이다. 여기서, 잠재성 경화제의 반응 시작 온도 (활성화 온도)는 열 발생량이 피크의 1/2이 되는 저온 측 온도에서의 접선이 시험 샘플로서 열경화성 에폭시 수지와 잠재성 경화제의 혼합물을 이용하여 10℃/min으로 실온에서부터 온도를 증가시키면서 DSC(시차 주사 열량계)를 이용할 때 얻은 DSC 곡선에서의 기준선과 교차하는 지점의 온도로 정의된다.

[0034] 유기 탄성 미세 입자는 상온에서 탄성을 갖는 미세 입자이다. 예를 들어, 미세 입자를 형성하는 유기 중합체는 약 -140℃ 내지 실온 범위의 유리 전이 온도를 갖는다. 본 발명에서 사용되는 유기 탄성 미세 입자는 작은 입자 크기를 가져서, 접착제 조성물에 포함된 용매를 제거할 경우 미세 입자는 응집되어 필름을 형성하는 경향이 있게 된다. 미세 입자의 입자 크기가 크면, 필름 평탄성은 낮아지며 도체들 사이의 전도를 억제할 가능성이 더 높아진다. 두 도체를 전기 접속시킬 경우, 도체들 사이에 존재하는 유기 탄성 미세 입자는 도체들 사이로부터 배제되거나 아니면 도체의 전기 접속에 영향을 주지 않는 위치에 위치되어야 한다. 도체 표면은 전형적으로 약 1 내지 약 2  $\mu\text{m}$  정도의 표면 조도를 갖는다. 만일 유기 탄성 미세 입자의 평균 입자 크기가 약 1  $\mu\text{m}$  이하라면, 입자는 도체 표면 내의 리세스(recess) 내로 방출되어 전기 접속 부분을 형성하지 못할 수 있으며 도체들 사이의 전기 접속에 영향을 미칠 기회가 낮아진다. 따라서, 본 발명에서 사용되는 유기 탄성 미세 입자의 평균 입자 크기는 전형적으로 약 1  $\mu\text{m}$  이하, 바람직하게는 약 0.8  $\mu\text{m}$  이하, 더욱 바람직하게는 약 0.6  $\mu\text{m}$  이하이다. 추가로, 유기 탄성 미세 입자의 평균 입자 크기는 전형적으로 약 0.01  $\mu\text{m}$  이상, 바람직하게는 약 0.1  $\mu\text{m}$  이상, 더욱 바람직하게는 약 0.3  $\mu\text{m}$  이상이다.

[0035] 상기에 설명한 바와 같이, 필름을 형성할 때, 유기 탄성 미세 입자의 탄성은 필름이 필요로 하는 강도와 가요성을 제공하는 것으로 생각되며, 따라서 유기 탄성 미세 입자의 적어도 표면을 형성하는 재료의 Tg는 바람직하게는 실온 이하이며, 더욱 바람직하게는 유기 탄성 미세 입자를 형성하는 모든 재료의 Tg는 실온 이하이다 (유기 탄성 미세 입자가 복수의 재료로 구성될 때).

[0036] 그러한 유기 탄성 미세 입자를 형성하는 재료는 예를 들어 충격 개질제의 기술 분야에서 잘 알려져 있다. 예를 들어, 아크릴, 메틸메타크릴레이트-부타디엔-스티렌 공중합체, 아크릴레이트-스티렌-아크릴로니트릴 공중합체, 및 다른 아크릴 수지, 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체, 아크릴로니트릴-에틸렌프로필렌-스티렌 공중합체, 내충격 폴리스티렌(HIPS), 및 이들 혼합물 또는 중합체 합금을 들 수 있다. 본 발명의 접착제 조성물용으로 사용될 경우, 유기 탄성 미세 입자의 표면을 형성하는 재료는 바람직하게는 아크릴 수지를 포함하며, 더욱 바람직하게는 유기 탄성 미세 입자를 형성하는 모든 재료는 아크릴 수지를 포함한다 (유기 탄성 미세 입자가 복수의 재료로 구성될 경우). 이는 아크릴 수지를 포함하는 유기 탄성 미세 입자가 다른 재료에 비해 용매에 대

하여 분산성이 우수하기 때문이다.

[0037] 그러한 아크릴 수지로서, 예를 들어 (메트)아크릴레이트 단량체를 비롯한 라디칼 중합성 단량체 또는 다작용성 단량체를 포함하는 아크릴계 공중합체를 들 수 있다. 라디칼 중합성 단량체는, 필요하다면 (메트)아크릴레이트 단량체와 공중합할 수 있는 다른 라디칼 중합성 단량체를 포함할 수 있다. 사용되는 (메트)아크릴레이트 단량체로서, 예를 들어, 에틸 아크릴레이트, n-프로필 아크릴레이트, n-부틸 아크릴레이트, 아이소부틸 아크릴레이트, sec-부틸 아크릴레이트, n-헥실 아크릴레이트, 2-에틸헥실 아크릴레이트, n-옥틸 아크릴레이트, 아이소옥틸 아크릴레이트, 아이소노닐 아크릴레이트, n-데실 아크릴레이트, n-옥틸 메타크릴레이트, n-노닐 메타크릴레이트, n-데실 메타크릴레이트, 라우릴 메타크릴레이트 등을 들 수 있다. (메트)아크릴레이트 단량체와 공중합가능한 라디칼 단량체는 (메트)아크릴레이트 단량체와 중합할 수 있는, 본 기술 분야에 알려진 라디칼 단량체일 수 있다. 예를 들어, 아이소프렌, 비닐 아세테이트, 분지형 카르복실산의 비닐 에스테르, 스티렌, 아이소부틸렌 등을 들 수 있다. 다작용성 단량체는 얻어진 아크릴계 공중합체의 가교결합 지점이 되며, 제조 중에 그리고 제조 후에 아크릴계 공중합체 입자의 바람직하지 못한 응집을 조절하기 위해 사용된다. 그러한 다작용성 단량체로서, 예를 들어, 에틸렌글리콜 다이(메트)아크릴레이트, 다이에틸렌글리콜 다이(메트)아크릴레이트, 트라이에틸렌글리콜 다이(메트)아크릴레이트, 1,6-헥산다이올 다이(메트)아크릴레이트, 트라이메틸올 프로판 다이(메트)아크릴레이트, 및 다른 다이(메트)아크릴레이트; 트라이메틸올 프로판 트라이(메트)아크릴레이트, 에틸렌 옥사이드 개질된 트라이메틸올 프로판 트라이(메트)아크릴레이트, 펜타에리트리톨 트라이(메트)아크릴레이트, 및 다른 트라이(메트)아크릴레이트를 들 수 있다. 추가로, 다른 다작용성 단량체로서, 펜타에리트리톨 테트라(메트)아크릴레이트, 다이펜타에리트리톨 헥사(메트)아크릴레이트, 알릴 (메트)아크릴레이트, 다이알릴 프탈레이트, 다이알릴 말레이트, 다이알릴 푸마레이트, 다이알릴 석시네이트, 트라이알릴 아이소시아누레이트, 및 다른 다이알릴 또는 트라이알릴 화합물, 다이비닐 벤젠, 다이비닐 아디페이트, 부타디엔, 및 다른 다이비닐 화합물 등을 들 수 있다. 이들 다작용성 단량체는 두 가지 이상의 유형으로 조합되어 사용될 수 있다. 상기 화합물의 현탁 중합 또는 유화 중합에 의해 미세 입자를 얻을 수 있다.

[0038] 유기 탄성 미세 입자는 또한 셸 부분과 코어 부분을 가진 소위 "코어-셸 유형" 탄성 미세 입자일 수 있다. 일반적으로, 셸 부분은 코어 부분의 Tg보다 높은 Tg를 갖도록 고안된다. 이러한 종류의 코어-셸 유형 탄성 미세 입자를 사용함으로써, 낮은 Tg의 코어 부분은 응력의 집중 지점으로 작용하여 형성된 필름에 가요성이 주어지는 반면, 셸 부분은 미세 입자의 바람직하지 못한 응집을 조절하여 용매와 열경화성 에폭시 수지에 대한 미세 입자의 분산성이 상승할 것으로 예측될 수 있다.

[0039] 그러한 코어-셸 유형 탄성 미세 입자의 한 예로서, (메트)아크릴레이트와 다작용성 단량체를 포함하는 공중합체의 코어 부분과 코어 부분의 외부상에 그래프트 공중합된 (메트)아크릴레이트와 다작용성 단량체를 포함하는 혼합 단량체로 구성된 셸 부분을 가진 아크릴계 코어-셸 유형 탄성 미세 입자를 들 수 있다. 본 발명의 일 예에서, 예를 들어, (메트)아크릴레이트와 다작용성 단량체의 유형과 양은 코어 부분을 형성하는 공중합체가 약 -140℃ 내지 약 -30℃의 Tg를 가지며 셸 부분은 약 -30℃ 내지 약 150℃의 Tg를 갖도록 선택된다. 이를 선택함으로써, 탄성 미세 입자의 분산성이 개선될 수 있다. (메트)아크릴레이트 단량체와 다작용성 단량체는 아크릴 수지에 대해 상기에 설명한 것들일 수 있다. 유사하게는, 상기 (메트)아크릴레이트 단량체와 공중합할 수 있는 다른 라디칼 중합성 단량체가 코어 부분 및/또는 셸 부분에 포함될 수 있다. 추가로, 상이한 조성을 가진 복수의 코어 부분이 코어-셸 유형 탄성 미세 입자에 포함될 수 있다. 코어 부분이 셸 부분에 의해 덮이고 그 셸 부분은 다른 셸 부분에 의해 덮인 다층 셸 구조 또한 코어-셸 유형 탄성 미세 입자에 주어질 수 있다.

[0040] 그러한 코어-셸 유형 탄성 미세 입자는, 예를 들어, 통상 알려진 유화 중합법, 현탁 중합법 등을 이용하여 제조할 수 있다. 복수 유형의 단량체가 포함될 경우, 랜덤 공중합, 블록 공중합, 그래프트 공중합, 및 임의의 다른 적합한 공중합이 이용될 수 있다. 코어-셸 구조를 형성하기 위한 방법으로서, 본 기술 분야에 알려진 방법을 이용할 수 있다. 예를 들어, 상기 설명된 중합법을 이용하여 코어 부분의 입자를 형성할 수 있으며, 상기 설명한 단량체는 그래프트 중합되어 이들 입자의 셸 부분을 형성할 수 있다. 셸 부분의 그래프트 중합은 또한 코어 부분의 중합에서와 동일한 중합 과정에 의해 연속적으로 실시될 수 있다.

[0041] 유기 탄성 미세 입자의 함량이 클수록, 접착 필름의 가소성 유동성, 필름 형성성, 및 가능한 필름으로서의 강도가 더 높다. 한편, 유기 탄성 미세 입자의 함량이 감소되면, 접착 필름은 내열성 및 내크리프성이 개선될 수 있다. 예를 들어, 유기 탄성 미세 입자의 함량은 접착제 조성물의 고체 함량에 대하여 약 30 wt% 이상, 바람직하게는 약 40 wt% 이상, 더욱 바람직하게는 약 55 wt% 이상일 수 있다. 추가로, 유기 탄성 미세 입자의 함량은 접착제 조성물의 고체 함량에 대하여 약 95 w% 이하, 바람직하게는 약 80 wt% 이하, 더욱 바람직하게는

약 70 wt% 이하일 수 있다. 여기서, "고체 함량"은 열경화성 에폭시 수지, 유기 탄성 미세 입자, 및 잠재성 경화제의 총 중량을 나타내며, 다시 말하면 접착제 조성물로부터 용매를 제거한 후 성분들의 중량이다.

[0042] 상기 언급된 유기 탄성 미세 입자를 분산시킬 수 있는 용매는 유기 탄성 미세 입자의 표면 작용기의 극성, 유기 탄성 미세 입자를 형성하는 중합체의 유형, 및 유기 탄성 미세 입자의 평균 입자 크기에 따라 원하는 분산 수준을 제공하도록 적절히 선택될 수 있으나, 이러한 용매는 바람직하게는 잠재성 경화제를 용해시키지 않는다.

[0043] 그러한 용매의 선택에 있어서, 유기 탄성 미세 입자의 분산성은 측정 원리로서 레이저 회절 산란법을 이용하는 입자 크기 분포 측정 장치(예를 들어, LS-230, 벡크만 코울터(Beckman Coulter)), 측정 원리로서 동적 광산란법을 이용하는 입자 크기 분포 측정 장치(예를 들어, "나노트랙(Nanotrack) UPA", 니키소(Nikkiso)) 등을 이용하여 시간에 따른 분산된 입자의 2차 입자 크기의 변화를 측정함으로써 평가할 수 있다. 용매가 잠재성 경화제를 용해시키는 능력은 적절한 열경화성 에폭시 수지의 평가를 위하여 잠재성 경화제와 용매를 혼합하고, 필요하다면 혼합물을 소정의 시간 동안 정치시킨 후, DSC(시차 주사 열량계)를 이용하여 혼합물의 발열 피크를 결정함으로써 평가할 수 있다. 상기 평가법을 이용함으로써, 당업자는 목표로 하는 용도에 따라 접착제 조성물용으로 사용될 수 있는 용매를 적절히 선택할 수 있다. 용매로서, 예를 들어, 자일렌, 톨루엔, 헥산, 헵탄, 옥탄, 사이클로헥산, 또는 다른 탄화수소, 다이옥산 및 다른 에테르, 에틸 아세테이트, 아이소프로필 아세테이트, 부틸 아세테이트, 아이소아밀 아세테이트, 아이소부틸 아세테이트, 및 다른 에스테르 및 다른 유기 용매를 들 수 있다.

[0044] 예를 들어, 유기 탄성 미세 입자가 아크릴 코어-셸 유형 미세 입자이고 잠재성 경화제가 우레탄계 재료에 의해서 캡슐화된 이미다졸일 경우, 상기 언급된 용매로서 에틸 아세테이트, 아이소프로필 아세테이트, 부틸 아세테이트, 아이소아밀 아세테이트, 아이소부틸 아세테이트, 및 다른 에스테르계 용매가 바람직하게 사용되는데, 이는 캡슐화된 이미다졸에 역효과가 거의 없기 때문이다. 에틸 아세테이트는 상대적으로 저 비등점 용매이며 필름 형성시 용이한 건조를 가능하게 하여, 따라서 바람직하게 사용된다.

[0045] 접착제 조성물의 원하는 점도를 고려하면, 용매의 함량은 유기 탄성 미세 입자를 분산시키는 데 필요한 양이어야 한다. 접착제 조성물의 고체 함량 100 중량부에 대하여 약 100 중량부 이상이 바람직한 한편, 약 200 중량부 이상이 더욱 바람직하다. 추가로, 용매의 함량은 바람직하게는 접착제 조성물의 고체 함량 100 중량부에 대하여 약 1000 중량부 이하이며, 더욱 바람직하게는 약 500 중량부 이하이다.

[0046] 적합한 용매에 용해된 중합체 재료는, 예를 들어, 필름 형성성을 보조하기 위하여, 선택적 성분으로서, 비전도성 접착제 조성물에 첨가될 수 있다. "중합체 재료"는 본 기술 분야에 알려진 열가소성 수지 또는 열경화성 수지로 구성되며 접착제 조성물에 필름 형성성을 제공할 수 있다. 그러한 재료는 전형적으로 실온에서 고체이거나 평균 분자량이 1000 이상이다. 그러한 열가소성 수지로서, 예를 들어, 페녹시, 폴리에스테르, 폴리우레탄, 폴리이미드, 폴리부타디엔, 폴리프로필렌, 폴리에틸렌, 스티렌-부타디엔-스티렌 공중합체, 폴리아세탈, 폴리비닐 부티랄, 부틸 고무, 클로로프렌 고무, 폴리아미드, 아크릴로니트릴-부타디엔 공중합체, 아크릴로니트릴-부타디엔-메타크릴산 공중합체, 아크릴로니트릴-부타디엔-스티렌 공중합체, 폴리비닐 아세테이트, 나일론, 스티렌-아이소프렌 공중합체, 스티렌-부틸렌-스티렌 블록 공중합체, 및 이들 혼합물 또는 중합체 합금을 들 수 있다. 추가로, 열경화성 수지로서, 예를 들어, 1000 이상의 평균 분자량을 가지며 상온에서 고체인 상기 언급된 유형의 에폭시 수지를 들 수 있다. 그러나, 중합체 재료 및 중합체 재료를 용해시키기 위한 용매의 유형과 양은 용매가 잠재성 경화제의 잠재성을 바람직하지 못한 수준으로 감소시키지 않도록 선택된다. 접착제 조성물에 포함되는 중합체 재료의 양은 바람직하게는 접착제 조성물의 총 고체 함량에 대하여 약 0.1 wt% 내지 약 5 wt%이다. 어떤 중합체 재료도 포함하지 않은 접착제 조성물이 가장 바람직하다. 이런 방식에서, 본 발명의 접착제 조성물은 필름 형성을 위한 중합체 재료 및 그러한 재료를 용해시키는 용매를 사실상 필요로 하지 않으며, 따라서 잠재성 경화제의 잠재성은 그러한 용매에 의해 손상되지 않으며 저장 안정성이 우수하다. 또한, 본 발명의 접착제 조성물은 추가로 필요에 따라 조성물에 첨가된 다른 첨가제 등을 가질 수 있다.

[0047] 본 발명의 접착제 조성물은 유기 탄성 미세 입자, 열경화성 에폭시 수지, 잠재성 경화제, 및 용매를 예를 들어 고속 믹서 등을 이용하여 혼합함으로써 제조될 수 있다. 상이한 성분들이 혼합되는 순서는 특별히 제한되지 않으나, 잠재성 경화제가 기계적 혼합에 의해 손상되는 것을 막기 위하여 잠재성 경화제는 바람직하게는 공정의 마지막에 첨가된다. 예를 들어, 유기 탄성 미세 입자는 용매에 분산될 수 있으며, 이어서 열경화성 에폭시 수지와 열경화성 에폭시 수지의 분산액에 혼합된 잠재성 경화제가 용매에 사전 혼합될 수 있으며, 이어서 혼합물에 분산된 유기 탄성 미세 입자와 잠재성 경화제가 첨가된다. 유기 탄성 미세 입자가 이차적으로 응집될 경우, 필요하다면 비드 밀(bead mill) 등을 이용하여 미세 입자들을 혼합 전에 분쇄할 수 있다.



- [0048] 본 발명의 비전도성 접착 필름은 상기 방식으로 얻어진 비전도성 접착제 조성물을 기재에 코팅한 후 필름을 형성시키기 위해 접착제 조성물에 포함된 용매를 제거함으로써 형성될 수 있다. 기재로서, 실리콘-처리된 폴리에스테르 필름, 이형 특성이 제공된 폴리테트라플루오로에틸렌 또는 다른 수지 필름, 이들 수지 필름에 의해 덮인 스테인레스강 시트 등이 이용될 수 있다. 비전도성 접착제 조성물은 나이프 코터, 바 코터, 스크린 인쇄 등을 이용하여 기재에 코팅될 수 있다. 고체 함량 및 코팅량은 다양한 필름 두께를 형성하기 위하여 조절될 수 있다. 용매는 오븐, 핫 플레이트 등을 이용하여 잠재성 경화제가 활성화되지 않을 온도, 예를 들어, 약 100℃ 이하로 가열함으로써 제거할 수 있다.
- [0049] 본 발명의 비전도성 접착 필름은 열경화성 에폭시 수지, 잠재성 경화제, 및 평균 입자 크기가 약 1  $\mu\text{m}$  이하인 유기 탄성 미세 입자로 사실상 이루어진다. 접착제 조성물로부터 용매를 제거할 경우, 유기 탄성 미세 입자는 응집되어 필름이 형성된다. 열경화성 에폭시 수지는 응집된 유기 탄성 미세 입자들 사이의 공간에 존재하며 유기 탄성 미세 입자용 결합체로 작용한다. 추가로, 전술한 바와 같이 잠재성 경화제는 잠재성에 손상을 주지 않고 고서도 필름에 존재한다. 도 4는 압력을 가하지 않은 상태에서 열경화되고 주사전자현미경에 의해 측단면으로 관찰된 본 발명의 일 예의 비전도성 접착 필름의 사진이다. 도 4에서 백색으로 나타나는 부분은 유기 탄성 미세 입자가 접착 필름의 절단면에 탈착된 부분이다. 회색 부분(도면에서, 중앙의 약간 왼쪽이며 우측 단부의 중앙으로부터 좌측으로 약간 기울어져 상승함)은 절삭 유기 탄성 미세 입자의 단면이며, 반면에 흑색으로 나타나는 부분은 경화된 에폭시 수지 상이다. 이 도면으로부터, 유기 탄성 미세 입자가 응집되어 연속상을 형성한다는 것을 알게 된다.
- [0050] 비전도성 접착 필름은 전기 접속될 도체의 두께에 따라 두께, 크기 및 형상이 적절히 선택될 수 있다. 일 예로서, 일반적인 평판 디스플레이의 제조에서, FPC와 회로 기판을 전기 접속시키기 위하여, 비전도성 접착 필름은 두께가 바람직하게는, 예를 들어 약 5  $\mu\text{m}$  내지 약 1 mm, 바람직하게는 약 10  $\mu\text{m}$  내지 약 200  $\mu\text{m}$ , 더욱 바람직하게는 약 20  $\mu\text{m}$  내지 약 50  $\mu\text{m}$ 의 두께를 갖는다.
- [0051] 본 발명의 비전도성 접착 필름은 100℃에서 측정된 탄성 계수의 값이 바람직하게는 실온 (25℃)에서 측정된 값의 약  $1 \times 10^{-3}$ 배 이상, 더욱 바람직하게는 약  $1.5 \times 10^{-3}$ 배 이상이다. 추가로, 비전도성 접착 필름은 100℃에서 측정된 탄성 계수의 값이 바람직하게는 실온(25℃)에서 측정된 값의 약  $5 \times 10^{-2}$ 배 이하, 더욱 바람직하게는 약  $1.5 \times 10^{-2}$ 배 이하이다. 전술한 탄성 계수는 접착 필름이 경화되기 시작하지 않을 온도에서 동적 점탄성 측정법을 이용하여 비전도성 접착 필름의 영률을 측정함으로써 결정할 수 있다. 본 발명의 비전도성 접착 필름에 비해 필름 형성용으로 중합체 재료를 이용하는 종래의 비전도성 접착 필름은 실온에서 탄성 계수가 더 높고, 가열시, 예를 들어, 100℃에서 탄성 계수가 더 낮다. 상기 범위 내의 탄성 계수를 가진 본 발명의 접착 필름은 필름 형성 요소로서 유기 탄성 미세 입자를 이용하는 본 발명의 비전도성 접착 필름과 구별되는 것으로 생각된다.
- [0052] 여기서, 어떤 이론에도 구애되고자 함이 없이, 25℃에서의 탄성 계수는 비전도성 접착 필름의 저장 및 취급시의 강도 및 가요성을 나타낸다. 100℃에서의 탄성 계수는 열압착 접합시 열경화 전에 필름의 유동성을 나타내는 것으로 생각된다. 일 예로서, 본 발명의 일 실시 형태의 비전도성 접착 필름의 탄성 계수는 실온에서  $1 \times 10^8$  내지  $4 \times 10^8$  MPa이고 100℃에서  $6 \times 10^5$  내지  $1.5 \times 10^6$  MPa 범위이다. 열경화성 에폭시 수지만의 경우에는, 이러한 탄성 계수가 실온에서 얻어질 수 없으며, 따라서 필름은 접착 필름에서 유기 탄성 미세 입자의 응집에 의해 강도와 가요성이 주어지는 것으로 생각된다. 추가로, 이러한 범위에 있는 100℃에서의 탄성 계수는 접착 필름이 목표 용도에 필요한 유동성뿐만 아니라 겔보기 점도에 대한 섹션에서 후술되는 의가소성을 구비한다는 것을 시사한다.
- [0053] 추가로, 본 발명의 비전도성 접착 필름은 유기 탄성 미세 입자를 포함하므로, 전단 응력의 증가가 겔보기 점도, 즉 의가소성의 강하로 이어지는 거동을 가질 수 있다. 본 발명의 비전도성 접착 필름은 100℃ 및 46.8 kPa의 응력에서 측정된 겔보기 점도,  $\eta - \eta = \sigma / (d\gamma / dt)$  (여기서,  $\eta$ 는 겔보기 점도이고,  $\sigma$ 는 전단 응력이고, 그리고  $d\gamma / dt$ 는 전단 변형률 속도임)에 의해 정의됨 - 의 값이 바람직하게는 100℃ 및 78.0 kPa의 응력에서 측정된 겔보기 점도의 값의 3배 이상이며, 더욱 바람직하게는 4배 이상이다. 이러한 의가소성으로 인하여, 열압착 접합시에 본 발명의 비전도성 접착 필름을 사용하면, 에폭시 수지와 유기 탄성 미세 입자는 도체들 사이로부터 쉽게 방출되고 작은 접촉 저항 전기 접속이 형성될 수 있는 반면, 회로 기판 또는 기판 상의 인접한 도체들 사이의 섹션 - 도체가 없음 - 에서 기포 형성이 억제될 수 있다.

- [0054] 추가로, 본 발명의 비전도성 접착 필름은 잠재성 경화제를 용해시켜 그 잠재성에 손상을 가할 수도 있는 용매를 사용하지 않고도 제조될 수 있으며, 따라서 종래의 비전도성 접착 필름에 비해 우수한 저장 안정성을 갖는다. 바람직하게는, 본 발명의 비전도성 접착 필름은 2주 동안 실온에서 저장한 후의 유동률이 바람직하게는 초기 유동률의 약 80% 내지 약 120%, 더욱 바람직하게는 약 90% 내지 약 110%이다. 이러한 유동률은 하기 실시 형태에서 상세히 설명될 것이다.
- [0055] 본 발명의 비전도성 접착 필름은 예컨대 사용 중에 도체들을 구비한 연성 인쇄 회로 기판(FPC)과 도체들을 구비한 회로 기판 사이에 위치되고, 이어서 연성 인쇄 회로 기판 및 회로 기판과 함께 가열 및 압착된다. 이때, 연성 인쇄 회로 기판의 도체들과 회로 기판의 도체들 사이의 비전도성 접착 필름이 제거되고, 연성 인쇄 회로 기판의 도체들과 회로 기판의 도체들 사이에 전기 접속이 형성된다. 동시에, 열경화성 에폭시 수지가 경화되고 연성 인쇄 회로 기판과 회로 기판이 접합된다.
- [0056] 본 발명의 비전도성 접착 필름을 사용하는 방법의 일 실시 형태가 하기에 설명될 것이다. 본 발명의 비전도성 접착 필름은 롤러 라미네이터(roller laminator) 등을 이용하여 예컨대 80 내지 120℃에서 FPC와 고온 라미네이팅시켜, 도체들이 배열된 FPC의 표면과 접촉시킨다. 이어서, 예를 들어, 회로 기판은 도체들을 갖는 표면이 위를 향하도록 하여 펄스 열 접합기 또는 세라믹 열 접합기의 스테이지 상에 놓이며, FPC는 비전도성 접착 필름이 그 위에 적층된 표면이 아래를 향하도록 하여 기판 위로 움직이며, FPC와 회로 기판의 상응하는 도체를 위치 결정하도록 현미경을 이용한다. 이후, 열압착 접합을 150 내지 200℃의 온도 및 1 내지 10 MPa의 압력에서 1 내지 30초 동안 가한다. 이때, 압착 접합된 부분에 초음파를 가하여 도체들 사이의 전기 접속을 촉진하는 것이 또한 가능하다. 초음파는 도체 금속들이 서로 융합 접합되는 것을 보조하며 압착 접합된 부분 근처에 존재하는 접착 필름에 대한 진동으로 인한 전단 응력을 추가로 제공하며, 따라서 그 부분들의 점도는 내려가며 도체들 사이로부터 접착 필름의 제거가 용이하게 되는 것으로 생각된다. 추가로, 필요에 따라, 사후 경화를 또한 실시할 수 있다. 추가로, 비전도성 접착 필름은 회로 기판과 고온 라미네이팅된 후 사용되거나, 또는 FPC 및 회로 기판에 고온 라미네이팅되지 않고서도 전기 접속시에 회로 기판들 또는 기판들 사이에 배열될 수 있다. 대안적으로, 본 발명의 비전도성 접착제 조성물은 액체 상태에서 FPC 또는 회로 기판 상에 직접 코팅되고 이어서 건조되어 회로 기판 또는 기판 상에 필름을 직접 형성할 수 있다.
- [0057] 본 발명의 비전도성 접착 필름 또는 비전도성 접착제 조성물은 FPC와 회로 기판들을 전기 접속시켜 다양한 전자 장치, 예를 들어, 플라스마 디스플레이, 액정 디스플레이, 및 다른 평판 디스플레이, 유기 EL 디스플레이, 노트북 컴퓨터, 휴대폰, 디지털 카메라, 디지털 비디오 카메라, 및 기타 전자 장치를 제조하기 위해 사용될 수 있다. 구체적으로, 본 발명의 비전도성 접착 필름 또는 비전도성 접착제 조성물은 플라스마 디스플레이, 액정 디스플레이, 및 기타 평판 디스플레이를 위한 용도로 적합하다.
- [0058] [실시예]
- [0059] 하기에, 대표적인 실시예가 상세히 설명될 것이지만, 하기의 실시예가 본 출원의 특허청구범위의 범주 내에서 수정되고 변경될 수 있음은 당업자에게 명백하다.
- [0060] 본 실시예에 사용되는 재료는 하기와 같았다:
- [0061] HX3941HP (에폭시 수지 65 wt%, 경화제 35 wt%), HXA3042HP (에폭시 수지 66 wt%, 경화제 34 wt%), HXA3922HP (에폭시 수지 67 wt%, 경화제 33 wt%), HXA3792 (에폭시 수지 65 wt%, 경화제 35 wt%) 및 HX3748 (에폭시 수지 65 wt%, 경화제 35 wt%)는 아사히 카세이 케미칼스에 의해 제조된 미세캡슐화된 잠재성 경화제 및 열경화성 에폭시 수지의 혼합물이다.
- [0062] EXL2314는, 코어로서 아크릴 고무층을 그리고 셸로서 아크릴 수지를 가지며 일차 입자 크기가 100 내지 600 nm이며 상표명 파라로이드(Paraloid)(등록상표)로 롬 앤드 하스 컴퍼니(Rohm and Haas Company)에 의해 판매되는 코어-셸 유형 탄성 미세 입자이다.
- [0063] G402는 다이셀 케미칼 인더스트리즈(Daicel Chemical Industries)에 의해 제조된 플라셀 G (락톤-개질된 에폭시 수지)이다.
- [0064] YD128은 토오토 카세이에 의해 제조된 비스페놀 A 유형 에폭시 수지 (에폭시 당량 184 내지 194)이다.
- [0065] 1010은 저펜 에폭시 레진에 의해 제조된 비스페놀 A 유형 에폭시 수지 (에폭시 당량 3000 내지 5000)이다.
- [0066] YD170은 토오토 카세이에 의해 제조된 비스페놀 F 유형 에폭시 수지 (에폭시 당량 160 내지 180)이다.

- [0067] YP50S는 토오토 카세이에 의해 제조된 페녹시 수지 (상표명 페노 토오토(Pheno Tohto))이다.
- [0068] 추가로, 본 실시예에 사용된 FPC, 경성 인쇄 회로 기판, 및 유리 기판은 하기와 같다:
- [0069] (1) FPC 1
- [0070] 크기: 18 mm × 20 mm
- [0071] 재료: 폴리이미드 (에스파넥스(Espanex) M), 두께 25  $\mu\text{m}$
- [0072] 인터커넥트 폭 75  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 피치 125  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 높이 18  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 수 50
- [0073] 인터커넥트는 FPC의 짧은 변으로부터 길이 방향으로 3 mm 노출되었다. 이를 다른 기판 등과의 접속 부분으로 사용하였다.
- [0074] (2) FPC 2
- [0075] 크기: 18 mm × 25 mm
- [0076] 재료: 폴리이미드 (에스파넥스 M), 두께 25  $\mu\text{m}$
- [0077] 인터커넥트 폭 100  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 피치 100  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 높이 18  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 수 50
- [0078] 인터커넥트는 FPC의 짧은 변으로부터 길이 방향으로 3 mm 노출되었다. 이를 다른 기판 등과의 접속 부분으로 사용하였다.
- [0079] (3) 경성 인쇄 회로 기판
- [0080] 크기: 18 mm × 28 mm × 0.5 mm
- [0081] 재료: 유리 에폭시 FR4
- [0082] 인터커넥트 폭 100  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 피치 100  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 높이 18  $\mu\text{m}$ , 인터커넥트 수 50
- [0083] 인터커넥트는 FPC의 짧은 변으로부터 길이 방향으로 3 mm 노출되었다. 이를 다른 기판 등과의 접속 부분으로 사용하였다.
- [0084] (4) 유리 기판
- [0085] 크기: 14 mm × 14 mm × 1.1 mm
- [0086] 기판의 하나의 전체 표면을 0.15  $\mu\text{m}$ 로 침착된 ITO 증착 필름으로 덮었다.
- [0087] 실시예 1 내지 실시예 14: 비전도성 접착 필름의 조성은 표 1 및 표 2에 나타난다. 고체 함량 100 중량부에 대하여 250 내지 450 중량부의 에틸 아세테이트를 제조하였다. 이어서, 코어-셸 유형 탄성 미세 입자를 에틸 아세테이트에 두고, 고속 믹서를 이용하여 혼합물을 실온에서 충분히 교반하여 코어-셸 유형 입자를 에틸 아세테이트에 완전히 분산되게 하였다. 이후, 열경화성 에폭시 수지와 잠재성 경화제를 이들 혼합물에 용해시켜 비전도성 접착제 조성물을 제조하였다. 이들 비전도성 접착제 조성물을 나이프 코터를 이용하여 실리콘-처리된 폴리 에스테르 필름에 적용하고 100℃로 설정된 오븐 내에서 5분 동안 건조시켜 두께가 15  $\mu\text{m}$  및 30  $\mu\text{m}$ 인 시험 용도의 비전도성 접착 필름을 제조하였다.

## 표 1

HX3941HP를 포함하는 접착 필름의 조성 (단위: 중량부)

	HX3941HP	EXL2314	G402	YD128	용매
실시예 1	18	64	18	0	400
실시예 2	15	70	15	0	450
실시예 3	20	60	20	0	350
실시예 4	25	50	25	0	300
실시예 5	30	40	30	0	250
실시예 6	14	64	22	0	400
실시예 7	10	64	26	0	400
실시예 8	9	64	18	0	400
실시예 9	20	70	10	0	450
실시예 10	18	64	0	18	400

[0088]



## 표 2

HX3941HP 외의 캡슐화된 이미다졸을 포함하는 접착 필름의 조성 (단위: 중량부)

	캡슐화된 이미다졸*	EXL2314	G402	용매
실시예 11	HXA3042HP	64	18	400
실시예 12	HXA3922HP	64	18	400
실시예 13	HXA3792	64	18	400
실시예 14	HX3748	64	18	400

\* 모두 18 중량부

[0089]

[0090]

비교예: 문헌[Asai et al., J. Appl. Polym. Sci., Vol. 56, 769-777 (1995)]에 개시된 것과 유사한 조성물로서, 표 3에 나타난 조성물을 사용하여 비전도성 접착 필름을 제작하였다. 이 조성물을 나이프 코터를 이용하여 실리콘-처리된 폴리에스테르 필름에 적용하고 100℃에 설정된 오븐에서 5분 동안 건조시켜 두께가 30  $\mu\text{m}$ 인 비교예의 비전도성 접착 필름을 제조하였다.

## 표 3

참고예의 접착 필름의 조성

	HX3941HP	1010	YD170	YP50S	톨루엔	MEK
참고예	22	22	28	22	90	50

[0091]

[0092]

접착 필름의 영률의 측정: 실시예 9의 접착 필름을 경화되지 않았을 때와, 압력을 가하지 않고서 190℃에서 10초 동안 경화되었을 때의 영률을 측정하였다. 영률은 하기와 같이 측정하였다: 레오텍스(Rheotrix)에 의해 제조된 동적 점탄성 장치 RSA를 이용하여  $\omega=6.28 \text{ rad/sec}$ 에서 저장 영률  $E'$  (정현파 변형에서의 변형률과 동일한 상의 응력에 대한 영률) 및 손실 영률  $E''$  (정현파 변형에서의 변형률의 상으로부터 90도 벗어난 응력에 대한 영률)을 측정하였다. 측정은 60  $\mu\text{m}$  두께의 필름에 대해 인장 모드에서 실시하였다. 측정 샘플을 위하여, 두께가 30  $\mu\text{m}$ 인 것 2개를 라미네이팅하여 60  $\mu\text{m}$ 로서의 측정에 사용하였음을 주목한다. 얻어진 결과는 표 4 및 도 5에 나타낸다. 실시예 9의 접착 필름은 경화되지 않았을 때의 20℃에서 영률이  $2.33 \times 10^8 \text{ Pa}$ 이거나 또는 경화 후의 영률과 크게 상이하지 않았다. 이것은 실시예 9의 접착 필름이 미경화 상태에서도 충분한 강도와 가요성을 가짐을 보여준다. 추가로, 경화 시에, 100℃에서의 영률은  $9.64 \times 10^5 \text{ Pa}$ 였다. 실시예 9의 접착 필름은 가열 시에 조절된 유동성을 가진다는 것, 즉 의가소성을 가진다는 것을 시사하였다.

## 표 4

실시예 9의 접착 필름의 영률

온도 (℃)	경화되지 않음 (Pa)	190℃/10 sec에서의 경화 후
20	2.33E+08	3.98E+08
30	8.18E+07	3.57E+06
40	1.21E+07	2.86E+06
50	2.25E+06	1.60E+06
60	1.27E+06	5.22E+06
70	1.02E+06	9.18E+06
80	9.07E+05	3.38E+06
90	8.52E+05	2.36E+06
100	9.64E+05	2.08E+06
110		2.05E+06
120		2.08E+06
130		2.09E+06
140		2.09E+06
150		2.13E+06

[0093]

[0094]

외관의 관찰: ITO 증착 필름을 가진  $14 \times 14 \text{ mm}^2$ 의 유리 기판 상에, 두께가 15  $\mu\text{m}$ 이고 치수가  $2 \times 14 \text{ mm}^2$ 인 접착 필름을 두었다. FPC 1을 이것의 상부에 둔 후, 얻어진 라미네이트를 열압착 접합시켰다. 열압착 접합은 아비오닉스(Avionics)에 의해 제조된 NA-75를 이용하여 실시하였는데, 라미네이트와 NA-75 접합기 헤드 사이에 25  $\mu\text{m}$  두께의 PTFE 필름을 두고 열압착 접합 부분에 열을 간접적으로 제공하였다. 접합기 헤드의 열을 조절하여 접합 부분이 15초 동안 180℃의 온도로 가열되게 하였다. 열압착 접합시의 압력은 5 MPa이었다. 도 6a 및 도 6b는 유리 기판 측에서 관찰할 때의 압착 접합된 샘플을 보여주는 사진이다. 도 6a는 실시예 1의 샘플의 사진이며, 도 6b는 비교예의 샘플의 사진이다. 도 6b에 도시된 바와 같이, 비교예에서 FPC의 배킹(폴리이미드)을 도체가

존재하지 않는 인접 도체들 사이의 섹션에서 밀었다. 그 결과, 다수의 기포가 이들 섹션에 형성되었다. 폴리이미드의 휨(D)의 양은 리오카 시스템즈(Ryoka Systems)에 의해 제조된 3D 비접촉 표면 형상 측정 시스템(MM520N-M100 모델)을 이용하여 측정하였다. 그 결과를 표 5에 나타낸다. 실시예 1에서, 도체들 사이의 섹션에서 폴리이미드의 휨(D)의 양은 명백히 작으며, 그 결과 기포가 작아지는 것으로 생각된다.

## 표 5

실시예 1의 접착 필름의 휨(D)의 양 (μm)

	1번	2번	3번	4번	5번	평균
실시예 1	1.18	1.32	0.91	1.76	1.25	1.28
참고예	2.49	1.88	2.48	1.93	2.12	2.18

열압착 접합 시의 유동성 평가: 열압착 접합 시에 접착 필름의 유동성을 정량적으로 평가하기 위하여, 하기 절차에 따라 유동율(flow rate)(유동비(flow ratio)) 및 전단 크리프(creep)를 측정하였다.

유동률: 두께가 30 μm인 필름을 6.1 mmφ의 디스크 형상으로 잘라냈다. 30 × 30 mm<sup>2</sup> (두께 1 mm)의 2개의 유리 기판들 사이에, 한 방울의 실리콘 오일을 적용한 후 이 디스크 형상 필름을 샌드위치시켰다. 이 라미네이트를 180℃에서 10초 동안 압착 접합하기 위해 라미네이트에 1370 N의 힘을 가하였다. 이 실시 형태에서, 10초 후, 필름 온도는 193℃의 실제 측정값에 도달하였다. 압착 접합된 필름은 사실상 그 원형 형상을 유지하였으며 단지 직경만이 더 커졌고, 따라서 압착 접합 후 측정된 직경을 초기 직경으로 나눈 값을 "유동률"로 정의한다. 이 유동률은 열압착 접합 시의 필름의 유동성을 표현하는 것으로 생각된다.

전단 크리프: 10 × 30 mm<sup>2</sup>의 2개의 폴리이미드 필름(두께 75 μm)을 그들의 짧은 변에서 겹치게 하였다. 겹쳐진 부분의 길이가 3 mm, 5 mm 및 7 mm가 되게 하였다. 전체적으로 겹치는 부분에서, 접착 필름 (두께 30 μm)을 샌드위치시켰다. 이들을 1초 동안 100℃에서 열압착 접합시켜 중첩 전단 시험편(lap shear test piece)을 제조하였다. 234 g의 하중(load)을 이들 시험편의 두 변에 가하고 접합 부분의 전단 변형을 측정하였다. 측정 동안, 수지 경화 효과 및 점도 증가를 가능한 많이 제거하기 위하여, 측정을 100℃에서 실시하였다. 겉보기 점도 =  $\sigma / (dy/dt)$ 을 전단 변형률 속도  $dy/dt = (\text{전단율})/(\text{접착 두께})$ , 응력  $\sigma = (\text{하중})/(\text{중첩된 부분의 면적})$ 로부터 계산하였다.

전술한 방법을 이용하여 얻은 겉보기 점도를 표 6에 나타낸다. 여기서, 접착 두께는 열압착 접합 전의 접착 필름의 두께이다. 도 7은 탄성 미세 입자(아크릴 입자)의 양에 대한 계산에 의해 얻은 겉보기 점도를 도시한다. 40 wt% 이상의 양으로 아크릴 입자를 포함하는 시스템의 경우, 응력이 46.8 kPa일 때 측정된 겉보기 점도는 78.0 kPa의 경우에 측정된 겉보기 점도보다 4 내지 10배 더 크다. 이것은 아크릴 입자와 열경화성 에폭시 수지의 혼합물이 열 경화 전에 완전히 의가소성 액체처럼 거동한다는 것을 보여준다.

## 표 6

실시예 1 내지 실시예 5 및 참고예의 접착 필름의 겉보기 점도 (단위: Pa-s)

	코어-셸 탄성 미세 입자 (wt%)	점도			$\dot{\gamma}$ (46.8 kPa)/ $\sigma$ (78.0 kPa)
		$\dot{\gamma}$ (33.4 kPa)	$\dot{\gamma}$ (46.8 kPa)	$\sigma$ (78.0 kPa)	
실시예 1	64	1.28E+05	1.04E+05	1.01E+05	10.3
실시예 2	70	3.53E+05	5.71E+05	1.81E+05	31.6
실시예 3	60	7.11E+04	7.89E+04	7.96E+05	9.9
실시예 4	50	1.05E+04	1.55E+04	3.40E+05	4.6
실시예 5	40	3.80E+03	4.25E+03	1.00E+05	4.2
참고예	0	1.01E+03	1.15E+03	9.39E+05	1.2

도 8은 100℃ 및 46.8 kPa에서 실시예 1 내지 실시예 5의 샘플에 대해 측정된 겉보기 점도, 및 아크릴 입자의 중량 백분율에 대하여 전술한 방법에 의해 측정된 유동률을 도시한다.

저장 안정성: 표 7은 전술한 방법에 의해 측정된 샘플의 초기 유동률, 및 30℃ 및 RH70%의 환경에서 1주 및 2주 동안 샘플을 에이징시킨 후 측정된 유동률을 보여준다.

표 7

초기 유동률 및 1주 및 2주 에이징 후의 유동률 (%)			
	초기	1주 후	2주 후
실시예 1	213	206	208
실시예 2	200	195	195
실시예 3	215	211	210
실시예 4	230		
실시예 5	237		
실시예 6	191	179	185
실시예 7	224	225	223
실시예 8	238		
실시예 10	191		
실시예 11	213		
실시예 12	217		
실시예 13	224	220	217
실시예 14	213		

[0103]

[0104]

FPC와 유리 기판의 전기 접속: 도 6a에 나타난 시험 용도의 인터커넥트 패턴을 가진 FPC 1과 ITO 증착 필름을 가진 유리 기판을 실시예 1 내지 실시예 7, 실시예 13 및 참고예의 각각의 접착 필름을 이용하여 접속시켰다. 도 9a에 도시된 바와 같이, 전류를 인가하고 접촉 부분의 전압 변화  $\Delta V$ 를 측정하였다. FPC와 유리 기판의 접속 부분을 약 2 mm만큼 겹쳤다. 겹쳐진 부분 사이에,  $2 \times 14$  mm로 절단된 두께가 15  $\mu$ m인 접착 필름을 샌드위치시켰다. 3.5 MPa의 압력을 가하고 조립체를 184°C에서 20초 동안 열압착 접합시켰다. 도 9a에서 도면 부호 1, 2, 4 및 7은 도 1 내지 도 3에 도시된 것과 동일하며, "9"는 ITO를 나타낸다. 도 9b에 도시된 회로도에서, 접촉 저항은 근사식에 의해 계산하였다:  $V = \Delta V = (R(\text{접촉}) + R(\text{도체})) \times I \approx R(\text{접촉}) \times I$ . 표 8은 고온 및 고습도 (60°C, RH90%)에서 샘플을 에이징시킬 경우 접촉 저항의 변화를 나타낸다. 추가로, 실시예 1의 접착 필름을 다양한 압착 형성 조건 하에서 제조된 샘플의 접촉 저항의 시간에 따른 변화에 대해 측정하였다. 그 결과가 표 9에 나타나 있다.

[0105]

FPC와 경성 인쇄 회로 기판의 전기 접속: FPC와 경성 인쇄 회로 기판(FR4)의 접속을 하기 방법을 이용하여 시험하였다. FPC 2와 경성 인쇄 회로 기판(FR4)을 제조하였다. FR4와 FPC를 접속하기 위한 부분의 도체는 금으로 도금된 Ni의 베이스로 제조하였다. FR4와 FPC 도체를 접속시킴으로써, 50개 위치에서 접속된 체인 회로(chain circuit)가 형성되었다. 체인 회로는 인터커넥트 자체의 벌크 저항과 조합된 약 3  $\Omega$ 의 저항값을 가졌다. 30  $\mu$ m의 두께, 2 mm의 폭 및 12 mm의 길이를 가진 접착 필름을 경성 인쇄 회로 기판의 도체 상에 미리 겹쳐놓았다. FPC의 접속 부분을 경성 인쇄 회로 기판의 접속 부분과 2 mm 만큼 겹쳐놓고 도체들을 서로에 대해 위치시키고, 이어서 납땀 인두(soldering iron)를 이용하여 경성 인쇄 회로 기판 상에 FPC를 임시로 고정시켰다. 열 접합기를 FPC 측으로부터 경성 인쇄 회로 기판에 대하여 압착하여 열과 압력을 제공하여, FPC의 도체와 경성 인쇄 회로 기판의 도체 사이로부터 필름을 배출시키고 도체를 전기 접속시키며 수지를 경화시키고 FPC와 경성 인쇄 회로 기판을 접합시켰다. 열압착 접합 시에, 이러한 접속 부분에 주어진 압력은 4 MPa이었다. 가열은 180°C에서 10초 동안 실시하였다. 이 방법에 의해 제조된 샘플을 고온과 고습도(85°C, RH85%)에서 에이징시켰다. 그때의 접촉 저항의 변화는 각 접속으로 변환된 표 8에 나타난다.

표 8

FPC와 유리 기판 및 인쇄 회로 기판의 접촉 저항의 시간에 따른 변화 (1000시간 에이징 후)		
	$\Delta R$ ( $\Omega$ ) FPC/유리 기판	$\Delta R$ ( $\Omega$ ) FPC/인쇄 회로 기판
실시예 1	0.122	0.023
실시예 2	0.346	0.042
실시예 3	0.204	0.022
실시예 4	0.237	0.067
실시예 5	0.486	0.026
실시예 6	0.140	0.009
실시예 7	1.427	
실시예 13		0.464
참고예	2.1 (500시간)	

[0106]

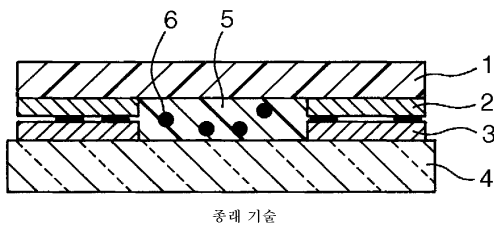
표 9

다양한 압착 접합 조건 하에서 FPC와 유리 기판의 접착 저항의 시간에 따른 변화

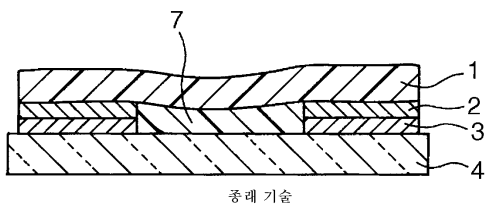
온도 (°C)	압력 (MPa)	시간 (초)	300 시간	500 시간	850 시간	1150 시간
190	5	5	0.200	0.317	0.499	0.580
190	3	5	0.158	0.208	0.282	0.364
200	3	5	0.132	0.241	0.342	0.705
180	3	5	0.330	0.332	0.470	0.745
180	5	5	0.107	0.229	0.380	0.472
200	5	10	0.158	0.248	0.318	0.560
190	5	5	0.188	0.362	0.517	0.571
190	3	5	0.079	0.115	0.099	0.169
190	3	10	0.112	0.209	0.287	0.734

도면

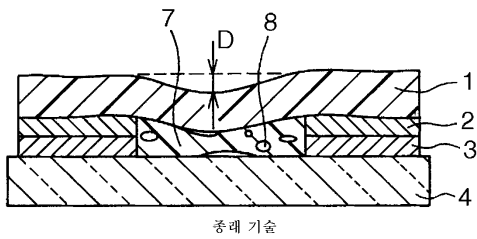
도면1



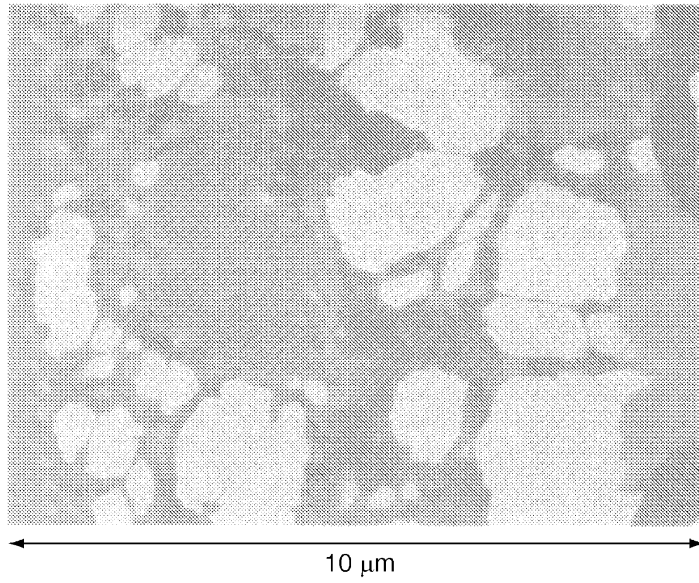
도면2



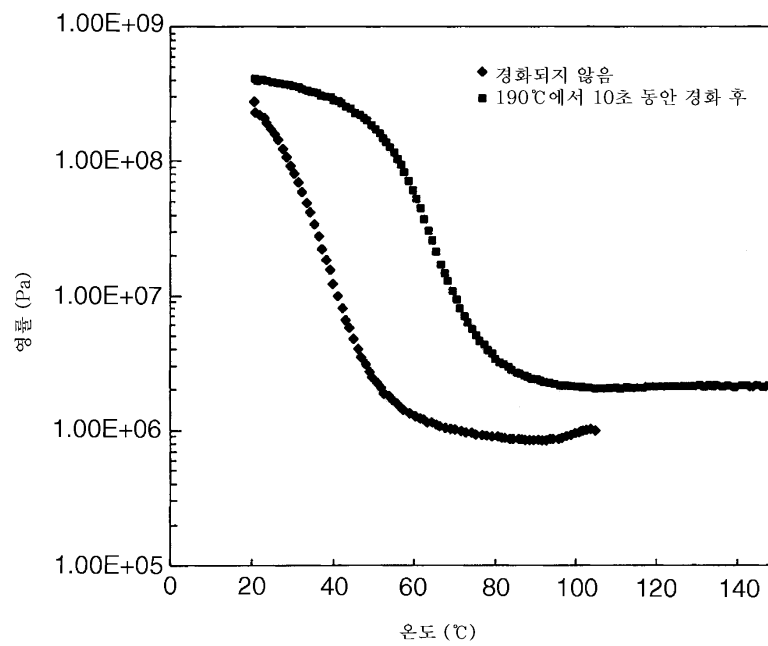
도면3



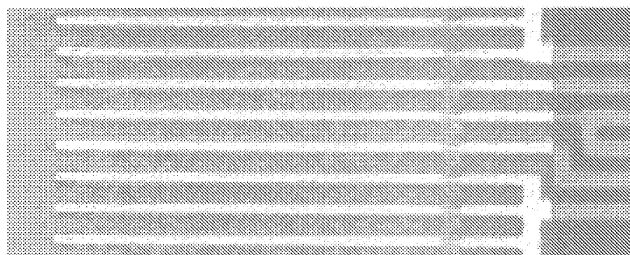
도면4



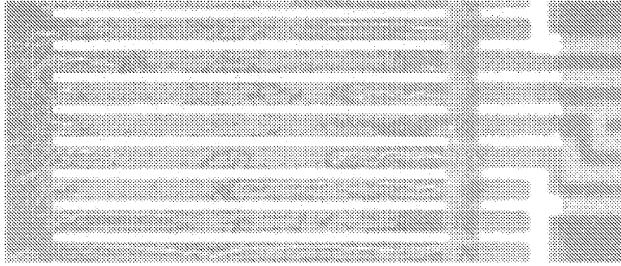
도면5



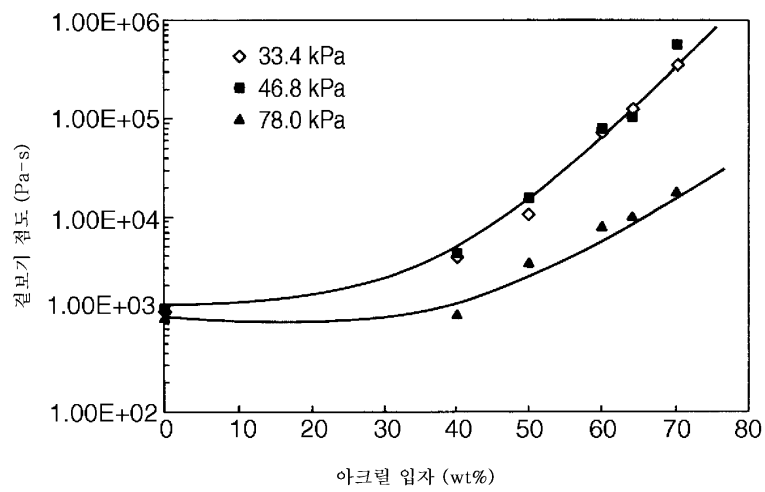
도면6a



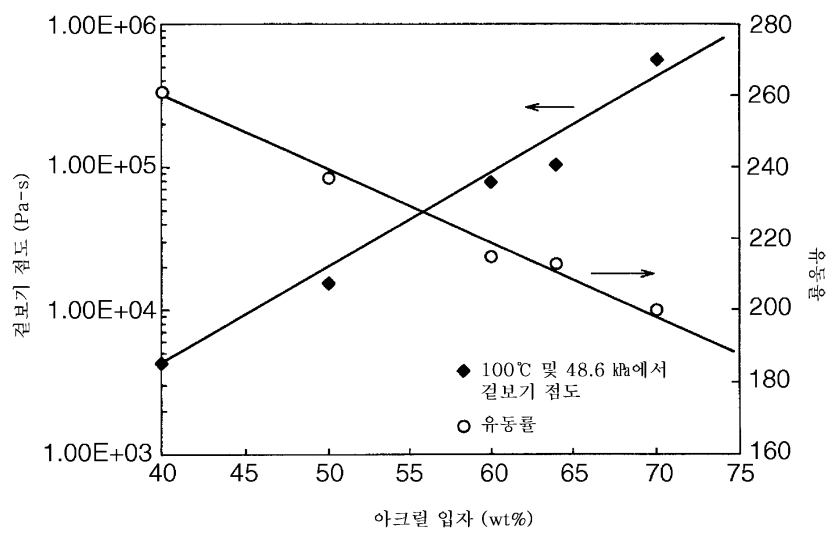
도면6b



도면7

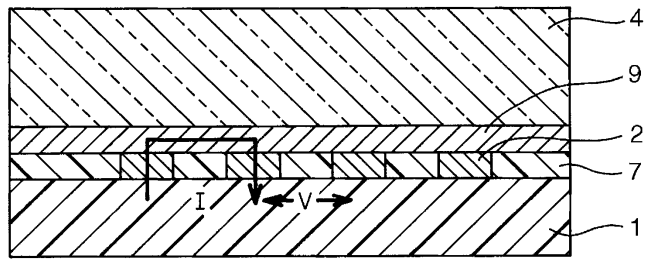


도면8





도면9a



도면9b

