202313890

(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本　(11)公開編號：TW 202313890 A

(43)公開日： 中華民國 112 (2023) 年 04 月 01 日

(21)申請案號：111127128　(22)申請日： 中華民國 111 (2022) 年 07 月 20 日

(51)Int. Cl.：　*C09J7/30* *(2018.01)*　*C09J7/10* *(2018.01)*

C09J123/26 *(2006.01)*　*H05K1/03* *(2006.01)*

H05K3/28 *(2006.01)*　*H05K3/38* *(2006.01)*

(30)優先權：2021/07/20　日本　2021-119880

(71)申請人：日商琳得科股份有限公司 (日本) LINTEC CORPORATION　(JP)

日本

(72)發明人：西嶋健太 NISHIJIMA, KENTA (JP) ；樫尾幹広 KASHIO, MIKIHIRO (JP)

(74)代理人：張耀暉；莊志強

申請實體審查：無　申請專利範圍項數：17 項　圖式數：2　共 60 頁

(54)名稱

硬化性接著劑組成物、以及硬化性接著片

(57)摘要

本發明提供一種硬化性接著劑組成物，係包含：黏合劑樹脂(A)，具有反應性官能基；聚苯醚樹脂(B)，具有乙烯基，數量平均分子量為 1500 以上至未達 5000；以及多官能性化合物(C)，具有兩個以上之於末端具雙鍵之不飽和烴基。

【發明摘要】

【中文發明名稱】　硬化性接著劑組成物、以及硬化性接著片

【中文】

本發明提供一種硬化性接著劑組成物，係包含：黏合劑樹脂(A)，具有反應性官能基；聚苯醚樹脂(B)，具有乙烯基，數量平均分子量為 1500 以上至未達 5000；以及多官能性化合物(C)，具有兩個以上之於末端具雙鍵之不飽和烴基。

【指定代表圖】　無

【發明說明書】

【中文發明名稱】　硬化性接著劑組成物、以及硬化性接著片

【技術領域】

【0001】本發明係關於一種硬化性接著劑組成物以及硬化性接著片。

【先前技術】

【0002】近年來，伴隨電子機器之小型化、輕量化，正使用可撓性印刷配線板(Flexible Print Circuit；FPC)作為配線構件。FPC例如可對在聚醯亞胺等之絕緣樹脂膜貼合有銅箔的覆銅積層板之銅箔實施蝕刻處理，形成電氣電路而製造。

另外，對於此種FPC，正進行下述操作：將具有絕緣性之樹脂基材及接著劑層的蓋層片(coverlay sheet)貼合於形成有電氣電路之銅箔，來保護電氣電路。

作為此種蓋層片之一例，於專利文獻1揭示有與具接著劑層之積層體有關之發明，該具接著劑層之積層體係具備基材膜，且於該基材膜之至少一表面具備接著劑層，該接著劑層係由含有含羧基之苯乙烯系彈性體及環氧樹脂之接著劑組成物所構成。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0003】

[專利文獻1]日本特開2018-150541號公報。

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0004】 專利文獻1所記載之積層體例如係設為對由聚醯亞胺樹脂等所構成之基材膜或銅箔具有高接著性，但謀求著亦包含其他特性而進一步改良。

亦即，謀求一種硬化性接著劑組成物，該硬化性接著劑組成物能夠形成可合適地應用於蓋層片用途的各種特性優異之接著劑層或其硬化物。

[用以解決課題之手段]

【0005】 本發明提供一種硬化性接著劑組成物、以及具有由該硬化性接著劑組成物所形成之接著劑層的硬化性接著片，上述硬化性接著劑組成物包含具有反應性官能基之黏合劑樹脂、具有乙烯基且具有預定範圍之數量平均分子量的聚苯醚樹脂、以及具有兩個以上之於末端具雙鍵之不飽和烴基的多官能性化合物。

具體而言，作為本發明所提供之一態樣，如以下所示。

[1]一種硬化性接著劑組成物，係包含：黏合劑樹脂(A)，具有反應性官能基；聚苯醚樹脂(B)，具有乙烯基，數量平均分子量為1500以上至未達5000；以及多官能性化合物(C)，具有兩個以上之於末端具雙鍵之不飽和烴基。

[2]如上述[1]所記載之硬化性接著劑組成物，其中進而含有陽離子聚合起始劑(D)。

[3]如上述[1]或[2]所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於成分(A)之總量100質量份，成分(B)之含量為99.0質量份以下。

[4]如上述[1]至[3]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於前述硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，成分(A)之含量超過20質量%。

[5]如上述[1]至[4]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，進而含有能夠與成分(A)所具有之前述反應性官能基反應之交聯劑(E)。

[6]如上述[1]至[5]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於前述硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，成分(A)、成分(B)及成分(C)之合計含量為50質量%以上。

[7]如上述[1]至[6]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於成分(A)之總量100質量份，成分(B)及成分(C)之合計含量未達100質量份。

[8]如上述[1]至[7]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)為具有雜環結構之多官能性化合物。

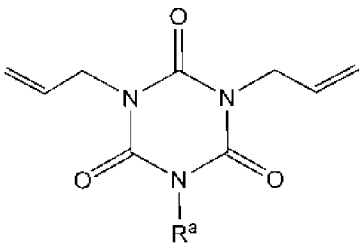
[9]如上述[1]至[8]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)為具有兩個以上之前述不飽和烴基且進而含有飽和烴基之多官能性化合物。

[10]如上述[1]至[9]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)包含具有兩個前述不飽和烴基之多官能性化合物(C1)。

[11]如上述[10]所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C1)為具有兩個前述不飽和烴基且具有一個飽和烴基之多官能性化合物。

[12]如上述[1]至[11]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)包含下述通式(c-11)所表示之化合物(C11)。

[化1]



(c-11)

(上述式中，R^a表示飽和烴基)。

[13]如上述[1]至[12]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(A)包含具有反應性官能基之烯烴系樹脂(A1)。

[14]如上述[1]至[13]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於前述硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，無機填充材之含量為0質量%至30質量%。

[15]一種硬化性接著片，係具有由如上述[1]至[14]中任一項所記載之硬化性接著劑組成物所形成之接著劑層。

[16]如上述[15]所記載之硬化性接著片，其中能夠藉由加熱使前述接著劑層硬化而成為硬化物。

[17]如上述[15]或[16]所記載之硬化性接著片，其係用作蓋層片。

[發明功效]

【0006】本發明之合適之一態樣的硬化性接著劑組成物係能夠形成可合適地應用於蓋層片的各種特性(例如接著強度、介電特性、接著劑成分之滲出抑制效果等)之平衡優異之接著劑層或其硬化物。

【圖式簡單說明】

【0007】

[圖1]係表示本發明之一態樣之硬化性接著片之構成之一例的該接著片之厚度方向之示意剖面圖。

[圖2]係表示用以說明接著劑成分之滲出之評價次序的熱壓後之試驗樣本之狀況的示意圖。

【實施方式】

【0008】本說明書所記載之數值範圍係可將上限值及下限值任意組合。例如，於作為數值範圍而記載有「較佳為20至120，更佳為40至90」之情形時，「20至90」之範圍或「40至120」之範圍亦包含於本說明書所記載之數值範圍。另外，例如於作為數值範圍而記載有「較佳為20以上，更佳為40以上，另外，較佳為120以下，更佳為90以下」之情形時，「20至90」之範圍或「40至120」之範圍亦包含於本說明書所記載之數值範圍。

此外，作為本說明書所記載之數值範圍，例如「60至100」之記載意指「60以上至100以下」之範圍。

進而，可於本說明書所記載之上限值及下限值之規定中，自各自之選項中適當選擇，任意組合而規定下限值至上限值之數值範圍。

此外，作為本說明書所記載之較佳態樣而記載的各種要件可組合多個。

【0009】本說明書中，例如所謂「(甲基)丙烯酸酯」係用作表示「丙烯酸酯」及「甲基丙烯酸酯」兩者之用語，關於其他類似用語亦同樣。

本說明書中，所謂硬化性接著劑組成物之「有效成分」，意指硬化性接著劑組成物所含之成分中除了水或有機溶媒之稀釋溶媒以外的成分。

本說明書中，數量平均分子量(Mn)為藉由凝膠滲透層析(Gel Permeation Chromatography；GPC)法所測定之標準聚苯乙烯換算之值，具體而言為基於實施例所記載之方法測定之值。

【0010】[硬化性接著劑組成物之構成]

本發明之硬化性接著劑組成物係包含：黏合劑樹脂(A)(以下亦稱為「成分(A)」)，具有反應性官能基；聚苯醚樹脂(B)(以下亦稱為「成分(B)」)，具有乙

烯基，數量平均分子量為1500以上至未達5000；以及多官能性化合物(C)(以下亦稱為「成分(C)」)，具有兩個以上之於末端具雙鍵之不飽和烴基。

【0011】具有接著劑層之硬化性接著片係將該接著劑層貼附於電路基板等被黏附體，並進行硬化製成硬化物而接著於被黏附體。此時，期望進一步提高硬化物對電路基板等被黏附體之接著強度。

另外，近年來於智慧型手機等通訊機器中，為了處理更大容量之資料，正推進電氣訊號之高頻化。高頻區域(例如1GHz以上)之電氣訊號容易變為熱，故而有因電氣訊號之高頻化導致傳輸損失增大之傾向。因此，為了將高頻區域之電氣訊號高速且抑制傳輸損失地傳輸，對於使保護電路基板的蓋層片之接著劑層硬化而成的硬化物，亦要求低介電特性(低介電常數及低介電正切)。

進而，於將硬化性接著片之接著劑層貼附於電路基板等被黏附體並加以硬化而與被黏附體接著之接著步驟中，有時也會有接著劑層之接著劑成分自片之端部滲出，接著劑成分附著於未預計與硬化性接著片接觸之部位造成污染而成問題。

此種狀況下，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物藉由含有成分(A)、成分(B)及成分(C)，而設為可形成使接著強度、低介電特性、接著劑成分之滲出抑制效果等各種特性之平衡良好的接著劑層或其硬化物之組成物，謀求解決上述問題。

【0012】另外，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物較佳為進而含有選自陽離子聚合起始劑(D)(以下亦稱為「成分(D)」)、可與成分(A)之前述反應性官

能基反應之交聯劑(E)(以下亦稱為「成分(E)」)及矽烷偶合劑(F)(以下亦稱為「成分(F)」)中之一種以上。

此外，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物亦可於不損及本發明之效果之範圍，含有這些成分(A)至成分(F)以外之其他添加劑。

【0013】 本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成使接著強度、低介電特性、接著劑成分之滲出抑制效果等各種特性平衡良好地提升的接著劑層或其硬化物之組成物之觀點而言，相對於該硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，成分(A)、成分(B)及成分(C)之合計含量較佳為50質量%以上，更佳為55質量%以上，更佳為60質量%以上，更佳為65質量%以上，進而較佳為70質量%以上，進而較佳為75質量%以上，進而較佳為80質量%以上，進而更佳為85質量%以上，尤佳為90質量%以上，另外，上述成分(A)、成分(B)及成分(C)之合計含量亦可設為100質量%以下、99.99質量%以下、99.90質量%以下、99.70質量%以下或99.50質量%以下。

【0014】 就上述觀點而言，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，相對於該硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，成分(A)、成分(B)、成分(C)、成分(D)、成分(E)及成分(F)之合計含量較佳為50質量%以上，更佳為55質量%以上，更佳為60質量%以上，更佳為65質量%以上，進而較佳為70質量%以上，進而較佳為75質量%以上，進而較佳為80質量%以上，進而更佳為85質量%以上，尤佳為90質量%以上，另外，上述成分(A)、成分(B)、成分(C)、成分(D)、成分(E)及成分(F)之合計含量只要為100質量%以下即可。

以下，對本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物所含之各成分加以詳細說明。

【0015】[成分(A)：黏合劑樹脂]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物含有具有反應性官能基之黏合劑樹脂(A)。

藉由設為含有黏合劑樹脂(A)之組成物，由該組成物所形成之接著劑層於貼附於電路基板等被黏附體並加以硬化而與被黏附體接著之接著步驟中，不易產生接著劑成分自端部滲出之現象。

亦即，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物藉由含有黏合劑樹脂(A)，而可形成接著劑成分之滲出抑制效果高之接著劑層。

黏合劑樹脂(A)可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0016】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成接著劑成分之滲出抑制效果高的接著劑層之組成物，並且設為可形成使低介電特性進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，相對於該硬化性接著劑組成物之有效成分之總量(100質量%)，成分(A)之含量較佳為超過20質量%，更佳為22質量%以上，更佳為25質量%以上，更佳為27質量%以上，進而較佳為30質量%以上，進而較佳為35質量%以上，進而較佳為40質量%以上，進而更佳為45質量%以上，尤佳為50質量%以上，進而亦可設為52質量%以上、55質量%以上、57質量%以上、60質量%以上、62質量%以上或65質量%以上，另外，就設為充分含有成分(B)及成分(C)，可形成使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，上述成分(A)之含量較佳為95質量%以下，更佳為90質量%以下，更佳為85

質量%以下，進而較佳為80質量%以下，進而較佳為75質量%以下，進而更佳為72質量%以下，尤佳為70質量%以下。

【0017】 就設為使造膜性提高而可使接著劑層之形狀穩定性良好之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之黏合劑樹脂(A)之數量平均分子量(Mn)較佳為10,000以上，更佳為12,000以上，更佳為15,000以上，進而較佳為20,000以上，進而較佳為25,000以上，進而更佳為30,000以上，進而更佳為32,000以上，尤佳為35,000以上，進而亦可設為37,000以上、39,000以上、40,000以上、42,000以上或45,000以上，另外，於將組成物設為溶液之形態之情形時，就設為使成分(A)與稀釋溶媒之溶解性良好而塗佈性優異之組成物之觀點而言，上述數量平均分子量(Mn)較佳為200,000以下，更佳為150,000以下，更佳為100,000以下，進而較佳為80,000以下，進而較佳為70,000以下，進而更佳為60,000以下，尤佳為55,000以下。

【0018】 本發明之一態樣所用之黏合劑樹脂(A)只要是對於成為主鏈之樹脂而具有反應性官能基作為側鏈的黏合劑樹脂即可。

作為黏合劑樹脂(A)所具有之反應性官能基，例如可列舉：羧基、羧酸酐結構、羧酸酯、羥基、環氧基、醯胺基、銨基、腈基、胺基、醯亞胺基、異氰酸酯基、乙醯基、硫醇基、磺醯基、膦醯基、硝基、鹵素原子、烷氧基矽基等。

黏合劑樹脂(A)所具有之反應性官能基可僅由單獨一種構成，亦可由兩種以上之組合構成。

這些之中，黏合劑樹脂(A)所具有之反應性官能基較佳為選自羧基、具有羧酸酐結構之基、環氧基、醯胺基、銨基、腈基、胺基、醯亞胺基、異氰酸酯基、

乙醯基、硫醇基、醚基、硫醚基、磺醯基、膦醯基、硝基、胺基甲酸酯基、鹵素原子及烷氧基矽基中的基，就設為可形成接著強度更優異的硬化物之組成物之觀點而言，更佳為選自羧基及具有羧酸酐結構之基中的基，就設為可形成接著強度更優異並且進而低介電特性亦更優異的硬化物之組成物之觀點而言，進而較佳為具有羧酸酐結構之基。

【0019】 作為成為黏合劑樹脂(A)之主鏈之樹脂，例如可列舉：聚烯烴系樹脂、苯氧基系樹脂、聚醯亞胺系樹脂、聚醯胺醯亞胺系樹脂、聚乙烯縮丁醛系樹脂、聚碳酸酯系樹脂、苯乙烯系樹脂等。

這些之中，就設為使造膜性提高而可使接著劑層之形狀穩定性良好之組成物，並且設為可形成使低介電特性進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之黏合劑樹脂(A)較佳為包含選自具有反應性官能基之聚烯烴系樹脂及具有反應性官能基之苯乙烯系樹脂中的一種以上，更佳為至少包含具有反應性官能基之聚烯烴系樹脂(A1)。

【0020】 本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成低介電特性更優異之硬化物的組成物之觀點而言，相對於該硬化性接著劑組成物所含之成分(A)之總量(100質量%)，聚烯烴系樹脂(A1)之含有比率較佳為50質量%至100質量%，更佳為60質量%至100質量%，更佳為70質量%至100質量%，進而較佳為80質量%至100質量%，進而較佳為85質量%至100質量%，進而更佳為90質量%至100質量%，尤佳為95質量%至100質量%。

【0021】 本發明之一態樣所用之聚烯烴系樹脂(A1)只要為具有源自烯烴系單體之構成單元之聚合物即可，可為僅由源自烯烴系單體之構成單元所構成之

聚合物，亦可為具有源自烯烴系單體之構成單元、及源自可與烯烴系單體共聚之單體之構成單元的共聚物。

【0022】構成聚烯烴系樹脂(A1)之烯烴系單體可列舉碳數2以上之α-烯烴，較佳為碳數2至8之α-烯烴，更佳為選自乙烯、丙烯、1-丁烯、異丁烯及1-己烯中的至少一種，進而較佳為選自乙烯及丙烯中的至少一種。

這些烯烴系單體可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0023】另外，作為構成聚烯烴系樹脂(A1)之可與烯烴系單體共聚之單體，例如可列舉：乙酸乙烯酯、(甲基)丙烯酸酯、苯乙烯等。這些單體可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0024】本發明之一態樣所用之聚烯烴系樹脂(A1)具體可列舉：超低密度聚乙烯(VLDPE)、低密度聚乙烯(LDPE)、中密度聚乙烯(MDPE)、高密度聚乙烯(HDPE)、直鏈狀低密度聚乙烯、聚丙烯(PP)、乙烯-丙烯共聚物、烯烴系彈性體(TPO)、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物(EVA)、乙烯-(甲基)丙烯酸共聚物、乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物等。

【0025】本發明之一態樣所用之黏合劑樹脂(A)亦可為使用改質劑對成為主鏈之樹脂實施改質處理而導入有上述反應性官能基之改質樹脂。

作為具體之改質樹脂，例如可列舉導入有酸基之酸改質樹脂、導入有羥基之樹脂，就設為可形成接著強度更優異的硬化物之組成物之觀點而言，較佳為導入有酸基之酸改質樹脂，就設為可形成接著強度更優異並且進而低介電特性亦更優異的硬化物之組成物之觀點而言，更佳為導入有酸酐結構之酸酐改質樹脂。

【0026】 酸改質樹脂或酸酐改質樹脂(以下亦稱為「不飽和羧酸等」)例如可藉由使不飽和羧酸等與成為主鏈之樹脂反應，導入羧基或羧酸酐結構進行接枝改質而獲得。

對樹脂導入不飽和羧酸等之方法並無特別限制，例如可列舉：於有機過氧化物類或偶氮腈類等自由基產生劑之存在下，將樹脂與不飽和羧酸等在樹脂之熔點以上加熱熔融而反應之方法；或者使樹脂與不飽和羧酸等溶解於有機溶劑後，於自由基產生劑之存在下，進行加熱及攪拌而反應之方法等。

【0027】 作為不飽和羧酸，例如可列舉：馬來酸、富馬酸、伊康酸、檸康酸、戊烯二酸、四氫鄰苯二甲酸、烏頭酸等。

作為不飽和羧酸酐，例如可列舉：馬來酸酐、伊康酸酐、戊烯二酸酐、檸康酸酐、烏頭酸酐、降冰片烯二羧酸酐、四氫鄰苯二甲酸酐等。

這些不飽和羧酸及不飽和羧酸酐可單獨使用，亦可併用兩種以上。

這些之中，就設為可形成接著強度及低介電特性更優異的硬化物之組成物之觀點而言，較佳為馬來酸酐。

【0028】 就設為可形成接著強度及低介電特性更優異的硬化物之組成物之觀點而言，相對於樹脂100質量份，與樹脂反應之不飽和羧酸等之添加量較佳為0.1質量份至5質量份，更佳為0.2質量份至3質量份，進而較佳為0.2質量份至1質量份。

【0029】 [成分(B)：聚苯醚樹脂]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物含有具有乙烯基且數量平均分子量為1500以上至未達5000之聚苯醚樹脂(B)。

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物藉由與後述之多官能性化合物(C)一併含有上述聚苯醚樹脂(B)，而可形成使耐熱性及低介電特性良好且使接著強度提高的硬化物。

再者，聚苯醚樹脂(B)可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0030】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，相對於成分(A)之總量100質量份，成分(B)之含量較佳為1質量份以上，更佳為3質量份以上，更佳為5質量份以上，更佳為7質量份以上，進而較佳為10質量份以上，進而較佳為12質量份以上，進而較佳為15質量份以上，進而更佳為17質量份以上，尤佳為20質量份以上，另外，就設為可形成接著劑成分之滲出抑制效果高的接著劑層之組成物，並且設為可形成使低介電特性良好的硬化物之組成物之觀點而言，上述成分(B)之含量較佳為未達99質量份，更佳為95質量份以下，更佳為90質量份以下，更佳為80質量份以下，進而較佳為70質量份以下，進而較佳為60質量份以下，進而較佳為50質量份以下，進而更佳為40質量份以下，尤佳為35質量份以下。

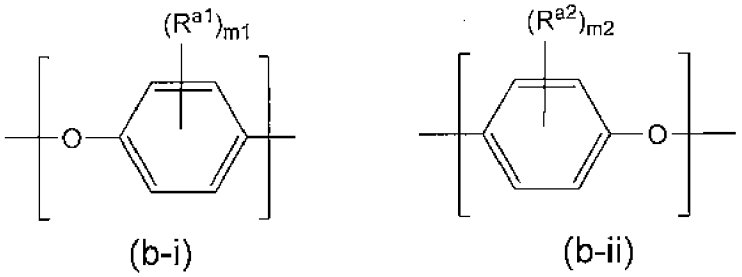
【0031】於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，相對於該硬化性接著劑組成物之總量(100質量%)，成分(B)之含量較佳為0.1質量%以上，更佳為0.5質量%以上，更佳為1.0質量%以上，更佳為3.0質量%以上，進而較佳為5.0質量%以上，進而較佳為7.0質量%以上，進而較佳為10.0質量%以上，進而更佳為12.0質量%以上，尤佳為15.0質量%以上，另外，就設為可形成接著劑成分之滲出抑制效果高的接著劑層之組成物，並且設為可形成使低介電特性良好的硬化物之組成物

之觀點而言，上述成分(B)之含量較佳為未達50質量%，更佳為45質量%以下，更佳為40質量%以下，更佳為35質量%以下，進而較佳為30質量%以下，進而較佳為27質量%以下，進而較佳為25質量%以下，進而更佳為22質量%以下，尤佳為20質量%以下。

【0032】就設為可形成使低介電特性良好且使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)之數量平均分子量(Mn)為1500以上，較佳為1600以上，更佳為1700以上，更佳為1800以上，進而較佳為1900以上，進而更佳為2000以上，尤佳為2100以上，另外，於將組成物設為溶液之形態之情形時，就設為使成分(B)與稀釋溶媒之溶解性良好而塗佈性優異之組成物之觀點而言，上述數量平均分子量(Mn)為未達5000，較佳為4900以下，更佳為4800以下，更佳為4700以下，進而較佳為4600以下，進而較佳為4500以下，進而更佳為4400以下，尤佳為4300以下，進而亦可設為4200以下、4000以下、3700以下、3500以下、3300以下或3000以下。

【0033】本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)只要為於主鏈具有下述通式(b-i)及式(b-ii)的至少一者所表示之構成單元之樹脂即可。

[化2]



(b-i)　　(b-ii)

【0034】上述通式(b-i)或式(b-ii)中，R^{a1}及R^{a2}分別獨立為鹵素原子(氟原子、氯原子、溴原子或碘原子)、碳數1至6之烷基、或苯基，較佳為碳數1至6之

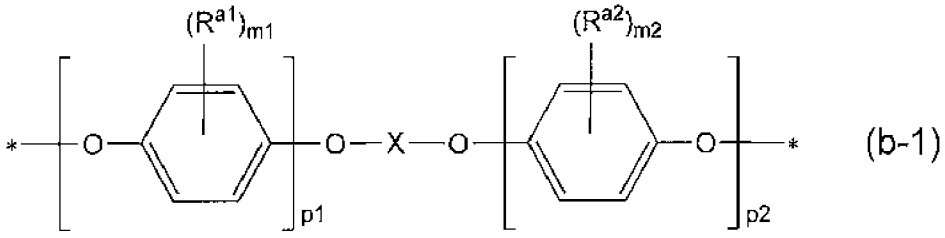
烷基，更佳為碳數1至4之烷基，進而較佳為碳數1至3之烷基，進而更佳為甲基或乙基，尤佳為甲基。

再者，作為可選擇來作為R^{a1}及R^{a2}之碳數1至6之烷基，例如可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、三級丁基、二級丁基、異丁基、正戊基、正己基等。

m1及m2分別獨立為0至4之整數，較佳為0至3之整數，更佳為0至2之整數，進而較佳為2。

【0035】 就設為可形成使低介電特性良好並且使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)較佳為具有下述式(b-1)所表示之骨架作為主鏈之樹脂。

[化3]



(b-1)

【0036】 上述通式(b-1)中，R^{a1}及R^{a2}以及m1及m2與上述通式(b-i)或式(b-ii)中之定義相同，關於合適之基之種類及數值範圍亦相同。

X為二價之有機基，該有機基之至少一個氫原子亦可經取代基取代。

p1及p2分別獨立為0以上之整數，且p1＋p2為1以上之整數。

*表示與末端基之鍵結位置。

【0037】 作為可選擇來作為X之二價之烴基，例如可列舉：碳數1至20之伸烷基、碳數1至20之氧伸烷基、碳數1至20之伸烯基、成環碳數3至10之伸環烷基、

成環碳數3至10之伸環烯基、伸苯基、聯伸苯基、聯三伸苯基、伸萘基及將這些基之兩種以上組合而成之基等。

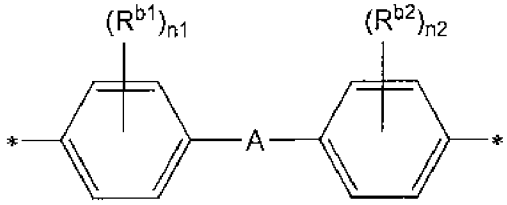
再者，上述伸烷基、氧伸烷基及伸烯基可為直鏈，亦可為支鏈。

另外，上述伸烷基、氧伸烷基及伸烯基亦可具有選自鹵素原子、苯基、聯苯基、聯三苯基、萘基及碳數3至10之環烷基中的取代基。

此外，上述伸環烷基、伸環烯基、伸苯基、聯伸苯基、聯三伸苯基及伸萘基亦可具有選自鹵素原子、碳數1至6之烷基、碳數1至6之氧烷基及碳數1至6之烯基中的取代基。

【0038】 這些之中，就設為可形成使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，X較佳為下述式(b-2)所表示之基。

[化4]



(b-2)

【0039】 上述通式(b-2)中，R^{b1}及R^{b2}分別獨立為鹵素原子(氟原子、氯原子、溴原子或碘原子)、碳數1至6之烷基、碳數1至6之氧烷基或碳數1至6之烯基，較佳為碳數1至6之烷基，更佳為碳數1至4之烷基，進而較佳為碳數1至3之烷基，進而更佳為甲基或乙基，尤佳為甲基。

再者，作為可選擇來作為R^{b1}及R^{b2}之碳數1至6之烷基，例如可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、三級丁基、二級丁基、異丁基、正戊基、正己基等。

n1及n2分別獨立為0至4之整數，較佳為0至3之整數，更佳為1至3之整數，進而較佳為3。

【0040】 上述通式(b-2)中，A為單鍵或二價之烴基。

作為可選擇來作為A之二價之烴基，例如可列舉：碳數1至20之伸烷基、碳數1至20之氧伸烷基、碳數1至20之伸烯基、成環碳數3至10之伸環烷基或成環碳數3至10之伸環烯基。

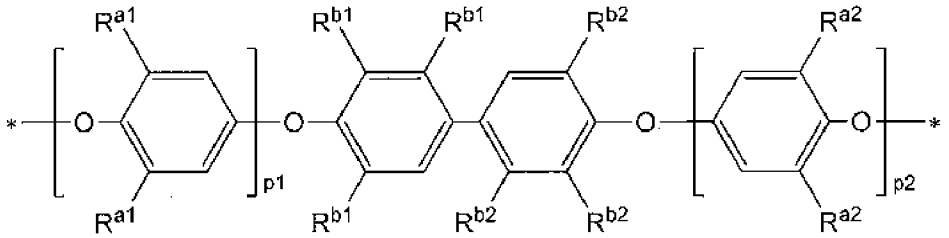
再者，伸烷基、氧伸烷基及伸烯基可為直鏈，亦可為支鏈。

另外，可選擇來作為A之烴基中，亦可具有上述取代基。

這些之中，就設為可形成使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，A較佳為單鍵或碳數1至20之伸烷基，更佳為單鍵。

【0041】 就設為可形成使接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)更佳為具有下述式(b-3)所表示之骨架作為主鏈之樹脂。

[化5]



(b-3)

【0042】 上述通式(b-3)中，R^{a1}及R^{a2}與上述通式(b-i)或式(b-ii)中之定義相同，關於合適之基之種類及數值範圍亦相同。

另外，R^{b1}及R^{b2}與上述通式(b-2)中之定義相同，關於合適之基之種類及數值範圍亦相同。

p1及p2分別獨立為0以上之整數，且p1＋p2為1以上之整數。

*表示與末端基之鍵結位置。

再者，上述通式(b-3)中之R^{a1}、R^{a2}、R^{b1}及R^{b2}分別獨立，較佳為碳數1至6之烷基，更佳為碳數1至4之烷基，進而較佳為碳數1至3之烷基，進而更佳為甲基或乙基，尤佳為甲基。

【0043】本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)具有乙烯基，故而由硬化性接著劑組成物所形成之硬化物係低介電特性、交聯性及耐熱性優異。

作為聚苯醚樹脂(B)所具有之乙烯基，亦可如乙烯基苄基、乙烯基萘基等般構成烴系取代基之一部分。亦即，聚苯醚樹脂(B)係乙烯基或含乙烯基之烴基鍵結於聚苯醚骨架而成。

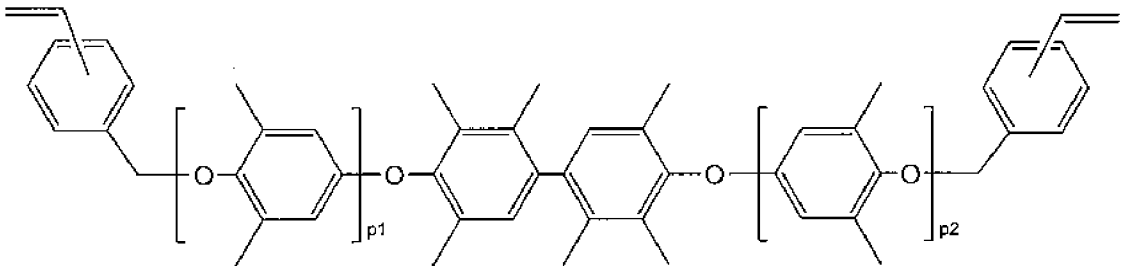
【0044】就設為可形成低介電特性、交聯性及耐熱性優異的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)較佳為於主鏈之兩末端具有乙烯基或含乙烯基之烴基的樹脂。

於主鏈之兩末端具有乙烯基或含乙烯基之烴基的聚苯醚樹脂(B)可藉由在形成成為主鏈之聚苯醚骨架後，於兩末端導入乙烯基或含乙烯基之烴基而獲得。

具體而言，藉由使二官能酚化合物與單官能酚化合物反應而獲得於兩末端具有酚性羥基之聚合物後，使用4-(氯甲基)苯乙烯將末端酚性羥基加以乙烯基苄基醚化，而可獲得於聚苯醚骨架之兩末端具有乙烯基苄基的聚苯醚樹脂(B)。

【0045】本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)較佳為下述通式(b-4)所表示之化合物。

[化6]



(b-4)

p1及p2分別獨立為0以上之整數，且p1＋p2為1以上之整數。

【0046】作為本發明之一態樣所用之聚苯醚樹脂(B)，亦可使用市售品。作為市售品，例如可列舉：三菱瓦斯化學股份有限公司製造之OPE-2St(上述通式(b-4)所表示之化合物)等。

【0047】[成分(C)：多官能性化合物]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物含有多官能性化合物(C)，該多官能性化合物(C)具有兩個以上之於末端具雙鍵之不飽和烴基。再者，本發明中之多官能性化合物(C)係將相當於成分(A)及成分(B)之化合物除外。

藉由製成與上述聚苯醚樹脂(B)一併含有多官能性化合物(C)之組成物，而可形成使低介電特性及接著強度平衡良好地提高的硬化物。尤其多官能性化合物(C)具有兩個以上之前述不飽和烴基，故而藉由在所得之硬化物中形成交聯結構，而可形成使接著強度進一步提高的硬化物。

再者，多官能性化合物(C)可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0048】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成使低介電特性及接著強度平衡良好地提高的硬化物之組成物之觀點而言，相對於成分(A)之總量100質量份，成分(C)之含量較佳為1質量份以上，更佳為3質量份以上，更佳為5質量份以上，更佳為7質量份以上，進而較佳為10質量份以上，進而較

佳為12質量份以上，進而較佳為15質量份以上，進而更佳為17質量份以上，尤佳為20質量份以上，另外，就設為可形成接著性優異的接著劑層之組成物之觀點而言，上述成分(C)之含量較佳為未達99質量份，更佳為95質量份以下，更佳為90質量份以下，更佳為80質量份以下，進而較佳為70質量份以下，進而較佳為60質量份以下，進而較佳為50質量份以下，進而更佳為40質量份以下，尤佳為35質量份以下。

【0049】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成使低介電特性及接著強度平衡良好地提高的硬化物之組成物之觀點而言，相對於該硬化性接著劑組成物之有效成分之總量(100質量%)，成分(C)之含量較佳為0.1質量%以上，更佳為0.5質量%以上，更佳為1.0質量%以上，更佳為3.0質量%以上，進而較佳為5.0質量%以上，進而較佳為7.0質量%以上，進而較佳為10.0質量%以上，進而更佳為12.0質量%以上，尤佳為15.0質量%以上，另外，就設為可形成接著性優異的接著劑層之組成物之觀點而言，上述成分(C)之含量較佳為未達50質量%，更佳為45質量%以下，更佳為40質量%以下，更佳為35質量%以下，進而較佳為30質量%以下，進而較佳為27質量%以下，進而較佳為25質量%以下，進而更佳為22質量%以下，尤佳為20質量%以下。

【0050】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成使低介電特性、接著強度及耐熱性平衡良好地提高的硬化物之組成物之觀點而言，成分(B)與成分(C)之含量比[(B)／(C)]以質量比計而較佳為5／95以上，更佳為10／90以上，更佳為15／85以上，更佳為20／80以上，進而較佳為25／75以上，進而較佳為30／70以上，進而較佳為35／65以上，進而更佳為40／60以上，尤佳

為45／55以上，另外，較佳為95／5以下，更佳為90／10以下，更佳為85／15以下，更佳為80／20以下，進而較佳為75／25以下，進而較佳為70／30以下，進而較佳為65／35以下，進而更佳為60／40以下，尤佳為55／45以下。

【0051】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成接著劑成分之滲出抑制效果高的接著劑層之組成物之觀點而言，相對於成分(A)之總量100質量份，成分(B)及成分(C)之合計含量較佳為未達100質量份，更佳為95質量份以下，更佳為90質量份以下，更佳為85質量份以下，進而較佳為80質量份以下，進而較佳為75質量份以下，進而較佳為70質量份以下，進而更佳為65質量份以下，尤佳為60質量份以下，另外，就設為可形成使接著強度提高的硬化物之組成物之觀點而言，上述成分(B)及成分(C)之合計含量較佳為2質量份以上，更佳為5質量份以上，更佳為10質量份以上，更佳為15質量份以上，進而較佳為20質量份以上，進而較佳為25質量份以上，進而較佳為30質量份以上，進而更佳為35質量份以上，尤佳為40質量份以上。

【0052】本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)所具有的每一個前述不飽和烴基之碳數較佳為2至10，更佳為2至7，進而較佳為2至5，進而更佳為2至4，尤佳為2至3。

另外，作為前述不飽和烴基，例如可列舉：乙烯基、烯丙基、3-丁烯基、4-戊烯基、5-己烯基、異丙烯基、1-甲基-2-丙烯基、乙烯基苄基、乙烯基萘基等。

這些之中，多官能性化合物(C)所具有之前述不飽和烴基較佳為烯丙基。

【0053】本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)所具有的前述不飽和烴基之個數為2以上，但就設為可形成使交聯結構適度稀疏而龜裂之產生得到抑

制的硬化物之組成物之觀點、以及設為於由接著劑層形成硬化物之接著步驟中抑制硬化收縮而可減少作為被黏附體之電路基板等板狀構件之翹曲的組成物之觀點而言，較佳為2至4，更佳為2至3，進而較佳為2。

【0054】就設為可形成使低介電特性及接著強度進一步平衡良好地提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)較佳為具有兩個以上之前述不飽和烴基並且進而具有飽和烴基之多官能性化合物。

就上述觀點而言，本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)所具有的飽和烴基之個數較佳為1以上，更佳為1至4，進而較佳為1至3，進而更佳為1至2，尤佳為1。

【0055】作為前述飽和烴基，例如可列舉烷基、經烷氧基取代之烷基等。

作為前述烷基，例如可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、三級丁基、二級丁基、異丁基、正戊基、正己基、正庚基、正辛基、正壬基、正癸基、正十一烷基、正十二烷基、正十三烷基、正十四烷基、正十五烷基等。

該烷基之碳數較佳為1至20，更佳為4至18，進而較佳為6至16，進而更佳為8至15。

【0056】作為前述經烷氧基取代之烷基，例如可列舉：甲氧基甲基、乙氧基甲基、2-甲氧基乙氧基甲基、苄氧基甲基等。

該經烷氧基取代之烷基之碳數較佳為2至15，更佳為2至12，進而較佳為3至10。

【0057】本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)較佳為包含具有兩個前述不飽和烴基之多官能性化合物(C1)。

包含此種具有兩個前述不飽和烴基之多官能性化合物(C1)的組成物係如上文所述，可成為可形成龜裂產生得到抑制而作為被黏附體之電路基板等板狀構件之翹曲得以減少的硬化物之組成物，並且可成為可形成使低介電特性及接著強度進一步提高的硬化物之組成物。

就上述觀點而言，多官能性化合物(C1)更佳為具有兩個前述不飽和烴基且具有至少一個飽和烴基之多官能性化合物。

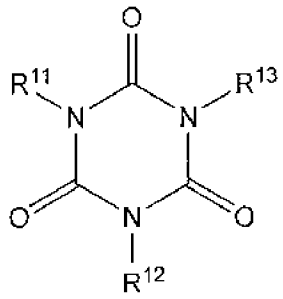
【0058】 就上述觀點而言，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，相對於該硬化性接著劑組成物所含之成分(C)之總量(100質量%)，多官能性化合物(C1)之含有比率較佳為30質量%至100質量%，更佳為40質量%至100質量%，更佳為50質量%至100質量%，更佳為60質量%至100質量%，進而較佳為70質量%至100質量%，進而較佳為80質量%至100質量%，進而較佳為85質量%至100質量%，進而更佳為90質量%至100質量%，尤佳為95質量%至100質量%。

【0059】 本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)較佳為具有雜環骨架之多官能性化合物。藉由包含具有雜環骨架之多官能性化合物，而可設為可形成使低介電特性及接著強度進一步提高的硬化物之組成物。

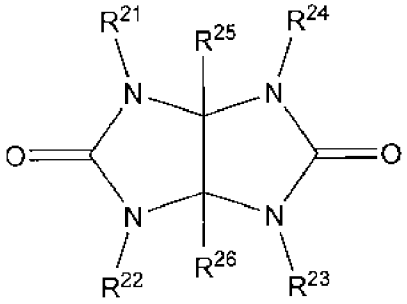
作為具體之雜環骨架，可列舉：異氰脲酸酯骨架或甘脲骨架。

【0060】 作為本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)，可列舉：下述通式(c-1)所表示之具有異氰脲酸酯骨架之化合物、下述通式(c-2)所表示之具有甘脲骨架之化合物。

[化7]



(c-1)



(c-2)

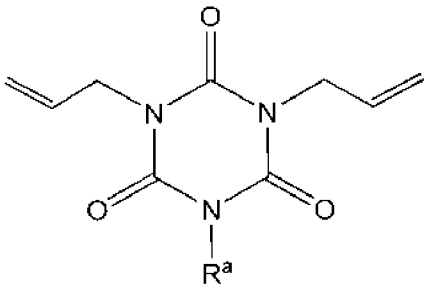
【0061】前述通式(c-1)中，R^{11}至R^{13}分別獨立為於末端具雙鍵之不飽和烴基或飽和烴基，R^{11}至R^{13}的至少兩個為前述不飽和烴基。

另外，前述通式(c-2)中，R^{21}至R^{26}分別獨立為氫原子、於末端具雙鍵之不飽和烴基或飽和烴基，R^{21}至R^{26}的至少兩個為前述不飽和烴基。

可選擇來作為R^{11}至R^{13}及R^{21}至R^{26}之不飽和烴基及飽和烴基之具體例示如上文所述，合適之碳數之範圍亦如上文所述。

【0062】就可成為可形成龜裂產生得到抑制而作為被黏附體之電路基板等板狀構件之翹曲得以減少的硬化物之組成物，並且設為可形成使低介電特性及接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)較佳為包含前述通式(c-1)所表示之具有異氰脲酸酯骨架之化合物，更佳為包含下述通式(c-11)所表示之具有異氰脲酸酯骨架之化合物(C11)。

[化8]



(c-11)

【0063】 上述通式(c-11)中，R^a為飽和烴基，具體之例示如上文所述。

這些之中，R^a較佳為烷基。該烷基之碳數較佳為1至20，更佳為4至18，進而較佳為6至16，進而更佳為8至15。

【0064】 就上述觀點而言，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，相對於該硬化性接著劑組成物所含之成分(C)之總量(100質量%)，化合物(C11)之含有比率較佳為30質量%至100質量%，更佳為40質量%至100質量%，更佳為50質量%至100質量%，更佳為60質量%至100質量%，進而較佳為70質量%至100質量%，進而較佳為80質量%至100質量%，進而較佳為85質量%至100質量%，進而更佳為90質量%至100質量%，尤佳為95質量%至100質量%。

【0065】 再者，本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)亦可使用市售品。

作為具體之市售品，例如可列舉：L-DAIC(製品名，四國化成工業股份有限公司製造，前述通式(c-11)所表示之化合物)、TAIC(註冊商標)(製品名，三菱化學股份有限公司製造，前述通式(c-1)中之R^{11}至R^{13}為烯丙基之化合物)、TAG(製品名，四國化成工業股份有限公司製造，前述通式(c-2)所表示之化合物)等。

【0066】 就設為容易形成具有所需物性的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)之分子量較佳為100以上，更佳為150以

上，進而較佳為200以上，進而更佳為230以上，尤佳為270以上，另外，就設為容易形成於常溫易貼附的接著劑層之組成物之觀點而言，上述多官能性化合物(C)之分子量較佳為1000以下，更佳為800以下，進而較佳為700以下，進而更佳為600以下，尤佳為500以下。

【0067】本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)之沸點較佳為175℃至350℃，更佳為200℃至300℃。

另外，本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)之5%重量減少溫度較佳為175℃至350℃，更佳為200℃至300℃。

【0068】另外，就設為可形成低介電特性優異的硬化物之組成物，並且設為容易形成於常溫易貼附的接著劑層之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之多官能性化合物(C)較佳為於25℃為液體之化合物。

再者，於本說明書中，所謂「於25℃為液體之化合物」，係指於25℃具有流動性之化合物，具體而言係指使用E型黏度計於25℃、1.0rpm測定之黏度為2mPa·s至10000mPa·s之化合物。

【0069】[成分(D)：陽離子聚合起始劑]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物較佳為進而含有陽離子聚合起始劑(D)。

藉由製成含有陽離子聚合起始劑(D)之硬化性接著劑組成物，而能夠充分進行成分(B)及成分(C)成分之聚合反應，提高所形成之接著劑層之保存穩定性。

再者，陽離子聚合起始劑(D)可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0070】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為使成分(B)及成分(C)成分之聚合反應充分進行，可形成使保存穩定性提高的接著劑層之組成物之觀點而言，相對於成分(B)及成分(C)之合計量100質量份，成分(D)之含量較佳為0.01質量份以上，更佳為0.05質量份以上，更佳為0.10質量份以上，進而較佳為0.15質量份以上，進而較佳為0.20質量份以上，進而更佳為0.25質量份以上，尤佳為0.30質量份以上，另外，較佳為6.0質量份以下，更佳為5.0質量份以下，更佳為3.0質量份以下，進而較佳為2.0質量份以下，進而較佳為1.5質量份以下，進而更佳為1.0質量份以下，尤佳為0.70質量份以下。

【0071】本發明之一態樣所用之陽離子聚合起始劑(D)可為熱陽離子聚合起始劑，亦可為光陽離子聚合起始劑，就能夠以簡便之步驟進行聚合之觀點而言，較佳為熱陽離子聚合起始劑。

【0072】本發明之一態樣所用之熱陽離子聚合起始劑為可藉由加熱而產生引發聚合之陽離子物種的化合物，例如可列舉：銃鹽、四級銨鹽、鏻鹽、重氮鹽、鎓鹽等。

這些熱陽離子聚合起始劑可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0073】作為銃鹽，例如可列舉：三苯基銃四氟硼酸鹽、三苯基銃六氟銻酸鹽、三苯基銃六氟砷酸鹽、三(4-甲氧基苯基)銃六氟砷酸鹽、二苯基(4-苯硫基苯基)銃六氟砷酸鹽等。

另外，銃鹽亦可使用市售品，例如可列舉：Adeka Opton SP-150、Adeka Opton SP-170、Adeka Opton CP-66、Adeka Opton CP-77(以上為艾迪科(ADEKA)股份有限公司製造)；Sun Aid SI-60L、Sun Aid SI-80L、Sun Aid SI-100L、Sun Aid SI-B2A、

Sun Aid SI-B3(以上為三新化學工業股份有限公司製造)；CYRACURE UVI-6974、CYRACURE UVI-6990(以上為聯合碳化物(Union Carbide)公司製造)；UVI-508、UVI-509(以上為奇異(General Electric)公司製造)；FC-508、FC-509(以上為明尼蘇達礦業製造(Minnesota Mining and Manufacturing)公司製造)；CD-1010、CD-1011(以上為沙多瑪(Sartomer)公司製造)；CI系列之製品(日本曹達股份有限公司製造)等。

【0074】作為四級銨鹽，例如可列舉：四丁基銨四氟硼酸鹽、四丁基銨六氟磷酸鹽、四丁基銨氫硫酸鹽、四乙基銨四氟硼酸鹽、四乙基銨對甲苯磺酸鹽、N,N-二甲基-N-苄基苯銨六氟銻酸鹽、N,N-二甲基-N-苄基苯銨四氟硼酸鹽、N,N-二甲基-N-苄基吡啶鎓六氟銻酸鹽、N,N-二乙基-N-苄基三氟甲磺酸鹽、N,N-二甲基-N-(4-甲氧基苄基)吡啶鎓六氟銻酸鹽、N,N-二乙基-N-(4-甲氧基苄基)甲苯銨六氟銻酸鹽等。

【0075】作為鏻鹽，例如可列舉乙基三苯基鏻六氟銻酸鹽、四丁基鏻六氟銻酸鹽等。

【0076】作為重氮鹽，例如可列舉AMERICURE(美國製罐(American Can)公司製造)、ULTRASET(艾迪科公司製造)等。

【0077】作為鎓鹽，例如可列舉：二苯基鎓鎓六氟砷酸鹽、雙(4-氯苯基)鎓鎓六氟砷酸鹽、雙(4-溴苯基)鎓鎓六氟砷酸鹽、苯基(4-甲氧基苯基)鎓鎓六氟砷酸鹽等。

另外，鎓鹽亦可使用市售品，例如可列舉：UV-9310C(東芝聚矽氧股份有限公司製造)、Photoinitiator 2074(羅納-普朗克(Rhone-Poulenc)公司製造)、UVE 系列之製品(奇異公司製造)、FC 系列之製品(明尼蘇達礦業製造公司製造)等。

【0078】 於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物含有陽離子聚合起始劑(D)之情形時，陽離子聚合起始劑(D)之至少一部分亦可為以下述條件進行差示掃描熱量測定所得之放熱波峰之峰頂溫度超過120℃的高溫反應性熱陽離子聚合起始劑。

[差示掃描熱量測定條件]

將調配成為測定對象之陽離子聚合起始劑0.1質量份、雙酚A二縮水甘油醚100質量份、γ-丁內酯0.1質量份而成之混合物作為測定試樣，自30℃至300℃以10℃/分鐘之升溫速度進行差示掃描熱量測定，測定放熱波峰之峰頂溫度。

【0079】 作為高溫反應性熱陽離子聚合起始劑之市售品，例如可列舉：Sun Aid SI-B3、Sun Aid SI-B4、Sun Aid SI-B5、Sun Aid SI-150(均為三新化學工業股份有限公司製造)等。

【0080】 [陽離子聚合起始劑(D)以外之其他反應性硬化劑]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物亦可於不損及本發明之效果之範圍含有陽離子聚合起始劑(D)以外之其他反應性硬化劑，來代替陽離子聚合起始劑(D)或與陽離子聚合起始劑(D)一併含有。

於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物含有陽離子聚合起始劑(D)之情形時，相對於成分(D)之總量100質量份，其他反應性硬化劑之含量亦可設為0質量份至90質量份、0質量份至50質量份、0質量份至40質量份、0質量份至30質量份、

0質量份至20質量份、0質量份至10質量份、0質量份至5.0質量份、0質量份至2.0質量份、0質量份至1.0質量份、0質量份至0.10質量份、0質量份至0.010質量份或0質量份至0.0010質量份。

另一方面，於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物不含有陽離子聚合起始劑(D)之情形時，相對於成分(B)及成分(C)之合計量100質量份，其他反應性硬化劑之含量亦可設為0.01質量份以上、0.05質量份以上、0.10質量份以上、0.15質量份以上、0.20質量份以上、0.25質量份以上或0.30質量份以上，另外，亦可設為6.0質量份以下、5.0質量份以下、3.0質量份以下、2.0質量份以下、1.5質量份以下、1.0質量份以下或0.70質量份以下。

【0081】 作為陽離子聚合起始劑(D)以外之反應性硬化劑，例如可列舉：苄基甲基胺、2,4,6-三-二甲基胺基甲基苯酚等胺化合物；2-甲基咪唑、2-乙基-4-甲基咪唑、2-十七烷基咪唑等咪唑化合物；三氟化硼-單乙基胺錯合物、三氟化硼-哌嗪錯合物等路易斯酸；二(過氧化三級丁基)二異丙基苯等過氧化物等。

【0082】 [成分(E)：交聯劑]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物較佳為進而含有可與成分(A)之前述反應性官能基反應的交聯劑(E)。

藉由設為與成分(A)一併進而含有交聯劑(E)之組成物，而可形成接著劑成分之滲出抑制效果高之接著劑層。亦即，於由硬化性接著劑組成物所形成之塗膜來形成接著劑層之過程中，藉由交聯劑(E)與黏合劑樹脂(A)所具有之前述反應性官能基反應，而能夠於塗膜內形成交聯結構，形成即便受到加熱亦不易流動之

接著劑層。結果，所形成之接著劑層於貼附於電路基板等被黏附體並硬化而與被黏附體接著之接著步驟中，變得更不易產生接著劑成分自端部滲出之現象。

再者，交聯劑(E)可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0083】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成接著劑成分之滲出抑制效果更高的接著劑層之組成物之觀點而言，相對於成分(A)之總量100質量份，成分(E)之含量較佳為0.01質量份以上，更佳為0.03質量份以上，更佳為0.05質量份以上，更佳為0.07質量份以上，進而較佳為0.10質量份以上，進而較佳為0.15質量份以上，進而較佳為0.20質量份以上，進而更佳為0.25質量份以上，尤佳為0.30質量份以上，另外，就設為可形成接著性優異的接著劑層之組成物之觀點而言，上述成分(E)之含量較佳為10.0質量份以下，更佳為8.0質量份以下，更佳為6.0質量份以下，更佳為5.0質量份以下，進而較佳為4.0質量份以下，進而較佳為3.0質量份以下，進而較佳為2.5質量份以下，進而更佳為2.0質量份以下，尤佳為1.5質量份以下。

【0084】就設為提高與成分(A)之反應概率，容易形成交聯結構，可形成接著劑成分之滲出抑制效果更高的接著劑層之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之交聯劑(E)之分子量較佳為1000以下，更佳為800以下，進而較佳為700以下，進而更佳為600以下，尤佳為500以下，另外，就設為藉由形成接著劑層之乾燥步驟之加熱而以交聯劑(E)可滯留於該接著劑層內之方式調整，可表現出由添加交聯劑(E)所得之效果之組成物之觀點而言，上述分子量較佳為100以上，更佳為150以上，進而較佳為200以上，進而更佳為250以上，尤佳為300以上。

【0085】本發明之一態樣所用之交聯劑(E)係根據成分(A)所具有之反應性官能基之種類而適當選擇，例如可列舉：異氰酸酯系交聯劑、環氧系交聯劑、金屬螯合物系交聯劑、氮丙啶系交聯劑等。

這些之中，就儲藏穩定性之觀點而言，本發明之一態樣所用之交聯劑(E)較佳為選自異氰酸酯系交聯劑、環氧系交聯劑及金屬螯合物系交聯劑中之至少一種。

另外，就設為可形成使低介電特性進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之交聯劑(E)較佳為具有異氰脲酸酯骨架之交聯劑。

【0086】異氰酸酯系交聯劑較佳為於分子內具有兩個以上之異氰酸酯基之化合物，例如可列舉：2,4-甲苯二異氰酸酯、2,6-甲苯二異氰酸酯、氫化甲苯二異氰酸酯、氫化二甲苯二異氰酸酯、1,5-五亞甲基二異氰酸酯、1,6-六亞甲基二異氰酸酯、二苯基甲烷-4,4-二異氰酸酯、異佛爾酮二異氰酸酯、1,3-雙(異氰酸基甲基)環己烷、四甲基二甲苯二異氰酸酯、1,5-萘二異氰酸酯、三苯基甲烷三異氰酸酯、及這些聚異氰酸酯化合物與三羥甲基丙烷等多元醇化合物之加合物、這些聚異氰酸酯化合物之縮二脲體或異氰脲酸酯體等。

【0087】環氧系交聯劑較佳為於分子內具有兩個以上之環氧基之化合物，例如可列舉：1,3-雙(N,N-二縮水甘油基胺基甲基)環己烷、N,N,N',N'-四縮水甘油基間二甲苯二胺、乙二醇二縮水甘油醚、1,6-己二醇二縮水甘油醚、三羥甲基丙烷二縮水甘油醚、二縮水甘油基苯胺、二縮水甘油胺等。

【0088】 金屬螯合物系交聯劑可列舉：具有作為交聯點發揮功能之金屬離子的螯合化合物。作為該金屬離子，例如可列舉：鋁離子、鋯離子、鈦離子、鋅離子、鐵離子、錫離子等。

這些之中，金屬螯合物系交聯劑較佳為鋁螯合化合物，例如可列舉：三(乙醯丙酮)鋁、乙醯丙酮雙(乙醯乙酸乙酯)鋁、二異丙氧基單乙醯乙酸油酯鋁、單異丙氧基雙乙醯乙酸油酯鋁等。

【0089】 這些之中，就設為可形成接著劑成分之滲出抑制效果更高的接著劑層之組成物，並且設為可形成使低介電特性進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣所用之交聯劑(E)較佳為異氰酸酯系交聯劑，更佳為聚異氰酸酯化合物之異氰脲酸酯體，進而較佳為選自1,5-五亞甲基二異氰酸酯之異氰脲酸酯體[1,3,5-三(5-異氰酸酯戊基)-1,3,5-三嗪-2,4,6-三酮]、及1,6-六亞甲基二異氰酸酯之異氰脲酸酯體[1,3,5-三(6-異氰酸酯己基)-1,3,5-三嗪-2,4,6-三酮]中的一種以上。

【0090】 [成分(F)：矽烷偶合劑]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物較佳為進而含有矽烷偶合劑(F)。

藉由設為含有矽烷偶合劑之組成物，而可形成使接著強度進一步提高的硬化物。

再者，矽烷偶合劑(F)可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0091】 本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為即使於高溫高濕之環境下仍可形成接著強度優異的硬化物之組成物之觀點而言，相對於成分(A)之總量100質量份，成分(F)之含量較佳為0.001質量份以上，更佳為0.005質量

份以上，更佳為0.01質量份以上，更佳為0.03質量份以上，進而較佳為0.05質量份以上，進而較佳為0.07質量份以上，進而較佳為0.10質量份以上，進而更佳為0.12質量份以上，尤佳為0.15質量份以上，另外，就設為抑制於高溫高濕之環境下可能產生的逸氣之產生量，可形成得以維持良好之接著強度的硬化物之組成物之觀點而言，上述成分(F)之含量較佳為6.0質量份以下，更佳為5.0質量份以下，更佳為4.0質量份以下，更佳為3.0質量份以下，進而較佳為2.0質量份以下，進而較佳為1.5質量份以下，進而較佳為1.0質量份以下，進而更佳為0.80質量份以下，尤佳為0.60質量份以下。

【0092】本發明之一態樣所用之矽烷偶合劑(F)較佳為於分子內具有至少一個烷氧基矽基之有機矽化合物。

作為具體之矽烷偶合劑，例如可列舉：3-甲基丙烯醯氧基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基甲基二乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷、3-丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷等具有(甲基)丙烯醯基之矽烷偶合劑；乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、二甲氧基甲基乙烯基矽烷、二乙氧基甲基乙烯基矽烷、三氯乙烯基矽烷、乙烯基三(2-甲氧基乙氧基)矽烷等具有乙烯基之矽烷偶合劑；2-(3,4-環氧環己基)乙基三甲氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基甲基二乙氧基矽烷、3-縮水甘油氧基丙基三乙氧基矽烷、8-縮水甘油氧基辛基三甲氧基矽烷等具有環氧基之矽烷偶合劑；對苯乙烯基三甲氧基矽烷、對苯乙烯基三乙氧基矽烷等具有苯乙烯基之矽烷偶合劑；N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基甲基二甲氧基矽烷、N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷、N-(2-胺基乙基)-3-胺基

丙基三乙氧基矽烷、3-胺基丙基三甲氧基矽烷、3-胺基丙基三乙氧基矽烷、3-三乙氧基矽基-N-(1,3-二甲基-亞丁基)丙基胺、N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷、N-(乙烯基苄基)-2-胺基乙基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷之鹽酸鹽等具有胺基之矽烷偶合劑；3-脲基丙基三甲氧基矽烷、3-脲基丙基三乙氧基矽烷等具有脲基之矽烷偶合劑；3-氯丙基三甲氧基矽烷、3-氯丙基三乙氧基矽烷等具有鹵素原子之矽烷偶合劑；3-巰基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-巰基丙基三甲氧基矽烷等具有巰基之矽烷偶合劑；雙(三甲氧基矽基丙基)四硫醚、雙(三乙氧基矽基丙基)四硫醚等具有硫醚基之矽烷偶合劑；3-異氰酸酯丙基三甲氧基矽烷、3-異氰酸酯丙基三乙氧基矽烷等具有異氰酸酯基之矽烷偶合劑；烯丙基三氯矽烷、烯丙基三乙氧基矽烷、烯丙基三甲氧基矽烷等具有烯丙基之矽烷偶合劑；3-羥基丙基三甲氧基矽烷、3-羥基丙基三乙氧基矽烷等具有羥基之矽烷偶合劑等。

【0093】 [環狀醚化合物]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物可為進而含有環狀醚化合物之組成物，亦可為不含環狀醚化合物之組成物。

作為環狀醚化合物，只要為具有環狀醚基之化合物則符合。

作為環狀醚基，例如可列舉：環氧乙烷基(環氧基)、環氧丙烷基(氧雜環丁烷基)、四氫呋喃基、四氫吡喃基等。

再者，於本說明書中，環氧乙烷基中，包含縮水甘油基、縮水甘油醚基、環氧環己基等具有環氧乙烷結構之基。

再者，環狀醚化合物可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0094】含有環狀醚化合物之組成物具有能夠形成接著強度優異的硬化物之特性，但另一方面，該硬化物有相對介電常數或介電正切之值變大而低介電特性差之傾向。

然而，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物由於含有上述成分(A)至成分(C)，故而具有下述特性：可形成使接著強度及低介電特性平衡良好地提高的硬化物。因此，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物無需含有導致低介電特性降低之環狀醚化合物。

【0095】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，相對於該硬化性接著劑組成物之有效成分之總量(100質量%)，環狀醚化合物之含量亦可設為未達5.0質量%、未達3.0質量%、未達1.0質量%、未達0.50質量%、未達0.10質量%、未達0.010質量%、未達0.0010質量%、未達0.00010質量%或未達0.000010質量%。

另外，於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，相對於該硬化性接著劑組成物所含之成分(A)至成分(C)之合計量100質量份，環狀醚化合物之含量亦可設為未達5.0質量份、未達3.0質量份、未達1.0質量份、未達0.50質量份、未達0.10質量份、未達0.010質量份、未達0.0010質量份、未達0.00010質量份或未達0.000010質量份。

【0096】[無機填充材]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物可為進而含有無機填充材之組成物，亦可為不含無機填充材之組成物。

作為無機填充材，例如可列舉：二氧化矽、氧化鋁、滑石、氫氧化鋁、氫氧化鎂、氧化鈦、雲母、硼酸鋁、硫酸鋇、氮化硼、矽酸鎂石、氧化鋅、氧化鎂、碳酸鈣等。

這些無機填充材可單獨使用，亦可併用兩種以上。

【0097】 然而，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，無機填充材之含量越少越佳。

於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，相對於該硬化性接著劑組成物之有效成分之總量(100質量%)，無機填充材之含量亦可設為0質量%至30質量%、0質量%至20質量%、0質量%至10質量%、0質量%至5.0質量%、0質量%至2.0質量%、0質量%至1.0質量%、0質量%至0.1質量%、0質量%至0.01質量%或0質量%至0.001質量%。

另外，於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，相對於該硬化性接著劑組成物所含之成分(A)至成分(C)之合計量100質量份，無機填充材之含量亦可設為未達50質量份、未達30質量份、未達10質量份、未達5.0質量份、未達1.0質量份、未達0.1質量份、未達0.01質量份、未達0.001質量份或未達0.0001質量份。

【0098】 [其他添加劑]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物亦可於不妨礙本發明之效果之範圍，含有上述成分以外之其他添加劑。

作為其他添加劑，例如可列舉：紫外線吸收劑、抗靜電劑、光穩定劑、抗氧化劑、樹脂穩定劑、顏料、增量劑、軟化劑等。

這些添加劑分別可單獨使用，亦可併用兩種以上。

再者，這些添加劑之含量可根據添加劑之種類而適當設定。

例如，相對於硬化性接著劑組成物所含之成分(A)之總量100質量份，各添加劑之含量亦可設為0.001質量份至30質量份、0.005質量份至20質量份、0.01質量份至10質量份或0.03質量份至5質量份。

【0099】[液體之有效成分]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物較佳為含有於25℃為液體之有效成分。藉由設為含有液體之有效成分的組成物，而能夠提高所形成之接著劑層之貼附性。

【0100】本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，就設為可形成貼附性優異的接著劑層之組成物之觀點而言，相對於該硬化性接著劑組成物之有效成分之總量(100質量%)，於25℃為液體之有效成分之含量較佳為5.0質量%以上，更佳為7.0質量%以上，進而較佳為10質量%以上，進而更佳為12質量%以上，尤佳為14質量%以上，另外，較佳為50質量%以下，更佳為40質量%以下，進而較佳為35質量%以下，進而更佳為30質量%以下，尤佳為25質量%以下。

【0101】再者，就設為可形成貼附性優異的接著劑層之組成物，進而設為可形成使低介電特性及接著強度進一步提高的硬化物之組成物之觀點而言，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物所含的於25℃為液體之有效成分之至少一種較佳為多官能性化合物(C)。

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物中，多官能性化合物(C)之含有比率相對於在25℃為液體之有效成分之總量(100質量%)較佳為70質量%以上，更佳為80質量%以上，進而較佳為85質量%以上，進而更佳為90質量%以上，尤佳為95

質量%以上，另外，亦可設為100質量%以下、99.9質量%以下、99.5質量%以下、99.0質量%以下、98.5質量%以下或98.0質量%以下。

【0102】[稀釋溶媒]

本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物亦可進而添加稀釋溶媒而設為溶液之形態。

作為本發明之一態樣所用之稀釋溶媒，例如可列舉：苯、甲苯等芳香族烴系溶媒；乙酸乙酯、乙酸丁酯等酯系溶媒；丙酮、甲基乙基酮、甲基異丁基酮等酮系溶媒；正戊烷、正己烷、正庚烷等脂肪族烴系溶媒；環戊烷、環己烷、甲基環己烷等脂環式烴系溶媒等。

這些稀釋溶媒可單獨使用，亦可併用兩種以上。

再者，這些稀釋溶媒可直接使用成分(A)或成分(B)等之合成時所使用之溶媒，亦可添加成分(A)或成分(B)之合成時所使用之溶媒以外的一種以上之溶媒。

【0103】於本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物為溶液之形態之情形時，該硬化性接著劑組成物之有效成分濃度係考慮塗佈性等而以成為所需黏度之方式適當設定，相對於該硬化性接著劑組成物之總量(100質量%)，亦可設為0.01質量%以上、0.05質量%以上、0.10質量%以上、0.50質量%以上、1.0質量%以上、3.0質量%以上、5.0質量%以上或10質量%以上，另外，亦可設為80質量%以下、70質量%以下、60質量%以下、50質量%以下、40質量%以下或30質量%以下。

【0104】[硬化性接著片]

本發明之一態樣之硬化性接著片具有由上述本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物所形成的接著劑層。再者，該接著劑層可藉由經過硬化步驟而成為硬化物。

本發明之一態樣之硬化性接著片只要為具有前述接著劑層之構成，則並無特別限定，例如可為於基材之至少單面具有接著劑層之硬化性接著片，亦可為具有接著劑層由兩片剝離片夾持之構成之硬化性接著片。

【0105】圖1係表示本發明之一態樣之硬化性接著片之構成之一例的該接著片之厚度方向之示意剖面圖。

作為本發明之一態樣之硬化性接著片之具體構成，例如可列舉：如圖1(a)所示之於基材20之一表面側具有接著劑層10的具基材之硬化性接著片1。另外，亦可為如圖1(b)所示之於基材20之兩表面側分別具有第一接著劑層11及第二接著劑層12的如具基材之硬化性接著片2般之構成。

再者，本發明之一態樣之硬化性接著片中，可為如圖1(a)所示之硬化性接著片1般基材20與接著劑層10直接積層之構成，亦可為於基材20與接著劑層10之間具有其他層之構成。這一情況對於圖1(b)所示之硬化性接著片2中之基材20與第一接著劑層11、及基材20與第二接著劑層12而言亦相同。

【0106】另外，本發明之一態樣之硬化性接著片亦可為如圖1(c)所示，針對硬化性接著片1之構成於接著劑層10之接著表面上進而積層有剝離片30的如具基材之硬化性接著片3般之構成。

同樣地，針對圖1(b)所示之硬化性接著片2之構成，亦可設為於第一接著劑層11及第二接著劑層12之接著表面上亦分別積層有剝離片的硬化性接著片之構成。再者，該構成中，兩個剝離片較佳為經以剝離力不同之方式調整之材料。

【0107】作為其他態樣，本發明之一態樣之硬化性接著片亦可為如圖1(d)所示之不使用基材而具有由第一剝離片31及第二剝離片32夾持接著劑層10之構成的如無基材之硬化性接著片4般之構成。

該硬化性接著片4所具有之第一剝離片31及第二剝離片32之材料可相同，亦可不同，較佳為經以剝離片31與剝離片32之剝離力不同之方式調整之材料。

除此以外，亦可列舉具有下述構成之硬化性接著片：於表面經剝離處理之剝離片之單面設有接著劑層，並將所得之片材捲繞成輥狀。

【0108】以下，針對構成本發明之一態樣之硬化性接著片的接著劑層、基材及剝離片之詳細加以說明。

再者，本說明書中，接著劑層、基材及剝離片之厚度為依據JIS(Japanese Industrial Standards；日本工業標準)K7130(1999)所測定之值，且可使用公知之厚度計測定。

【0109】[接著劑層]

本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層為由上述本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物所形成的層。

本發明之一態樣之硬化性接著片中，就形成具有可保護電路基板之程度之厚度的硬化物之觀點而言，接著劑層之厚度較佳為1.0μm以上，更佳為3.0μm以上，更佳為5.0μm以上，更佳為7.0μm以上，進而較佳為10μm以上，進而較佳為

12μm以上，進而較佳為15μm以上，進而更佳為17μm以上，尤佳為20μm以上，另外，較佳為60μm以下，更佳為55μm以下，更佳為50μm以下，進而較佳為45μm以下，進而更佳為40μm以下，尤佳為35μm以下。

【0110】本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層具有硬化性，故而可成為硬化物。

接著劑層之硬化方法可根據成分(D)等反應性硬化劑之種類等而調整，可為熱硬化法，亦可為光硬化法，可根據用途而適當選擇。

例如，若為將本發明之一態樣之硬化性接著片作為蓋層片用途而形成用以保護電路基板的硬化物之情形，則較佳為熱硬化法。

【0111】[基材]

本發明之一態樣之硬化性接著片亦可具有基材。

作為本發明之一態樣之硬化性接著片所具有之基材，並無特別限制，可根據用途而適當選擇，較佳為樹脂膜。

作為構成樹脂膜之樹脂成分，例如可列舉：聚醯亞胺、聚醯胺、聚醯胺醯亞胺、聚苯醚、聚醚酮、聚醚醚酮、聚烯烴、聚酯、聚碳酸酯、聚碸、聚醚碸、聚苯硫醚、聚芳酯、丙烯酸系樹脂、環烯烴系聚合物、芳香族系聚合物、聚胺基甲酸酯系聚合物、液晶聚合物膜等。

【0112】基材之厚度並無特別限制，可根據用途而適當選擇，較佳為5μm以上，更佳為10μm以上，進而較佳為12μm以上，進而更佳為15μm以上，尤佳為17μm以上，另外，較佳為500μm以下，更佳為400μm以下，進而較佳為300μm以下，進而更佳為200μm以下，尤佳為150μm以下。

【0113】[剝離片]

本發明之一態樣之硬化性接著片亦可具有剝離片。

剝離片於直至使用硬化性接著片為止之期間，作為接著劑層之保護膜發揮功能。另外，於硬化性接著片為不具有基材之片之情形時，剝離片於硬化性接著片之製造步驟中作為支撐體發揮功能。

再者，於使用本發明之一態樣之硬化性接著片時，通常剝離片係剝離而去除。

【0114】本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的剝離片可列舉：於剝離膜用基材之表面上具有塗佈剝離劑而形成之剝離層的剝離片。

作為剝離膜用基材，例如可列舉：玻璃紙、塗層紙、道林紙等紙基材；於這些紙基材層壓有聚乙烯等熱塑性樹脂而得之層壓紙；聚對苯二甲酸乙二酯樹脂、聚對苯二甲酸丁二酯樹脂、聚萘二甲酸乙二酯樹脂、聚丙烯樹脂、聚乙烯樹脂等塑膠膜等。

作為剝離劑，可列舉：聚矽氧系樹脂、烯烴系樹脂、異戊二烯系樹脂、丁二烯系樹脂等橡膠系彈性體、長鏈烷基系樹脂、醇酸系樹脂、氟系樹脂等。

剝離片之厚度並無特別限制，通常為20μm至250μm。

【0115】[硬化性接著片之製造方法]

作為本發明之一態樣之硬化性接著片之製造方法，並無特別限制，可藉由公知之塗佈方法將本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物塗佈於上述基材或剝離片上而製造。

再者，就使對基材或剝離片之塗佈性良好之觀點而言，本發明之一態樣之硬化性接著劑組成物較佳為以稀釋溶媒稀釋而設為溶液之形態。

【0116】作為將硬化性接著劑組成物塗佈於基材或剝離片上之方法，例如可列舉：旋轉塗佈法、噴霧塗佈法、棒塗法、刀片塗佈法、輥塗法、刮刀塗佈法、模塗法、凹版塗佈法等。

【0117】較佳為於基材或剝離片上塗佈硬化性接著劑組成物而形成塗膜後，進行乾燥處理。

作為乾燥處理方法，例如可列舉：熱風乾燥、熱輥乾燥、紅外線照射等。

所形成之塗膜之乾燥條件較佳為於80℃至150℃之溫度加熱30秒鐘至5分鐘(較佳為40秒鐘至3分鐘，更佳為45秒鐘至2分鐘)進行乾燥。可經過該乾燥步驟而於基材或剝離片上形成接著劑層。

【0118】再者，於用於形成接著劑層之硬化性接著劑組成物含有交聯劑(E)之情形時，為了完成交聯反應，較佳為經過保持一定期間(例如1天至14天左右)之風乾步驟。

【0119】再者，作為本發明之一態樣之硬化性接著片的各構成之具體製造方法，可列舉以下之方法。

作為如圖1(a)之硬化性接著片1之製造方法，可列舉具有下述步驟之方法：於基材20之一表面上直接塗佈上述硬化性接著劑組成物，形成接著劑層10。

另外，亦可為具有下述步驟之方法：於剝離片之剝離處理面上直接塗佈上述硬化性接著劑組成物，形成接著劑層10之步驟；於接著劑層10之露出之表面上與基材20進行貼合之步驟；以及去除剝離片之步驟。

【0120】作為如圖1(b)之硬化性接著片2之製造方法，可列舉具有下述步驟之方法：於基材20之兩面直接塗佈上述硬化性接著劑組成物，形成第一接著劑層11及第二接著劑層12。

另外，亦可為具有下述步驟之方法：將於剝離片之剝離處理面上直接塗佈上述硬化性接著劑組成物而形成有接著劑層的片材準備兩片之步驟；將各接著劑層貼合於基材20之兩面之步驟；以及去除剝離片之步驟。

【0121】作為如圖1(c)之硬化性接著片3之製造方法，可列舉具有下述步驟之方法：於如上述般製造之硬化性接著片3之接著劑層10之表面上，層壓剝離片30。

另外，亦可為具有下述步驟之方法：於剝離片30之剝離處理面上直接塗佈上述硬化性接著劑組成物，形成接著劑層10之步驟；以及將該接著劑層10與基材20貼合之步驟。

【0122】作為如圖1(d)之硬化性接著片4之製造方法，可列舉具有下述步驟之方法：於剝離片31之剝離處理面上直接塗佈上述硬化性接著劑組成物而形成接著劑層10之步驟；以及於該接著劑層10之露出之表面上，層壓另一剝離片32之步驟。

再者，如上文所述，剝離片31與剝離片32較佳為以剝離力不同之方式調整。

【0123】[硬化性接著片之特性]

本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層可藉由硬化而成為硬化物。所形成之硬化物係接著強度及低介電特性優異。

【0124】將本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層貼合於銅箔後，使該接著劑層硬化而成的硬化物對前述銅箔之接著強度(以下亦簡稱為「硬化物之接著強度」)較佳為0.75kgf/cm以上，更佳為0.78kgf/cm以上，更佳為0.80kgf/cm以上，進而較佳為0.85kgf/cm以上，進而較佳為0.88kgf/cm以上，進而更佳為0.90kgf/cm以上，尤佳為0.92kgf/cm以上，進而亦可設為0.95kgf/cm以上或0.97kgf/cm以上。

再者，本說明書中，前述硬化物之接著強度意指基於後述之實施例所記載之方法測定之值。

【0125】使本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層硬化而成之硬化物於23℃、1GHz之相對介電常數較佳為未達2.36，更佳為2.35以下，進而較佳為2.34以下，進而更佳為2.33以下，尤佳為2.32以下。

再者，前述硬化物於23℃、1GHz之相對介電常數係下限並無特別限制，例如亦可設為1.50以上、1.60以上、1.70以上、1.80以上、1.90以上或2.00以上。

【0126】使本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層硬化而成的硬化物於23℃、1GHz之介電正切較佳為未達0.005，更佳為0.004以下，更佳為0.003以下，進而較佳為未達0.001，進而更佳為0.0009以下，尤佳為0.0008以下。

再者，前述硬化物於23℃、1GHz之介電正切係下限並無特別限制，例如亦可設為0.00001以上、0.00003以上、0.00005以上、0.00007以上或0.0001以上。

【0127】再者，本說明書中，前述硬化物之相對介電常數及介電正切係指基於後述實施例所記載之方法測定之值。

【0128】另外，本發明之一態樣之硬化性接著片於將接著劑層貼合於電路基板等被黏附體後，使接著劑層硬化而與被黏附體接著之接著過程中，能夠抑制接著劑層之接著劑成分自片之端部滲出，能夠防止被黏附體之污染。

相對於本發明之一態樣之硬化性接著片，基於後述實施例所記載之方法測定的接著劑成分之滲出距離較佳為200μm以下，更佳為150μm以下，更佳為100μm以下，進而較佳為50μm以下，進而較佳為30μm以下，進而更佳為25μm以下，尤佳為20μm以下。

【0129】[硬化性接著片之使用方法、具硬化物之電路基板之製造方法]

使本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層硬化而成之硬化物係接著強度高，另外，高頻區域中之低介電特性亦優異。另外，於自該接著劑層至成為硬化物為止之接著過程中，能夠有效地抑制接著劑成分之滲出，防止被黏附體之污染。

因此，本發明之一態樣之硬化性接著片可合適地使用於形成要求低介電特性之器件中之構件時，尤其較佳為用作用以保護電路基板之蓋層片。

作為電路基板，例如可列舉可撓性印刷配線板(FPC)等。

【0130】另外，本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層具有上述特性，故而本發明亦可提供下述[1]及[2]。

[1]一種硬化性接著片之使用方法，係具有：接著步驟，將上述本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層貼合於電路基板，使接著劑層硬化而製成硬化物，使該硬化物與前述電路基板接著。

[2]一種具硬化物之電路基板之製造方法，係具有：接著步驟，將上述本發明之一態樣之硬化性接著片所具有的接著劑層貼合於電路基板，使接著劑層硬化而製成硬化物，使該硬化物與前述電路基板接著。

【0131】 上述[1]及[2]中之硬化方法可為熱硬化法，亦可為光硬化法，係根據作為接著劑層之形成材料的硬化性接著劑組成物所含之成分之種類來選擇。其中，較佳為熱硬化法。

進行熱硬化時之加熱溫度較佳為80℃至200℃，更佳為90℃至190℃，進而較佳為100℃至180℃，加熱時間較佳為10分鐘至12小時，更佳為30分鐘至6小時，進而較佳為40分鐘至3小時。

另外，於進行熱硬化時，較佳為進行熱壓。作為進行熱壓時之壓力，較佳為0.1MPa至10MPa，更佳為0.5MPa至8.0MPa，進而較佳為1.0MPa至5.0MPa。

【0132】 另外，於藉由光硬化法使接著劑層硬化之情形，可藉由向該接著劑層照射紫外線等能量線而製成硬化物。

[實施例]

【0133】 以下，列舉實施例對本發明加以更詳細說明。然而，本發明絲毫不限定於以下之實施例。

另外，關於各物性值，為藉由以下所示之方法測定之值。

【0134】 [數量平均分子量(Mn)]

使用凝膠滲透層析裝置(東曹股份有限公司製造，製品名「HLC-8320 GPC」)，於下述條件下進行測定，使用藉由標準聚苯乙烯換算所測定之值。

[測定條件]

·管柱：將「TSK gel guard column super H-H」、「TSK gel super HM-H」、「TSK gel super HM-H」及「TSK gel super H2000」依序連結而成(均為東曹股份有限公司製造)

·管柱溫度：40℃

·展開溶媒：四氫呋喃

·流速：1.0mL/min

【0135】 實施例1至實施例3、比較例1

(1)硬化性接著劑組成物之製備

以表1所示之調配量(有效成分比)調配表1所示之成分，溶解於甲苯，以成為預定之有效成分濃度之方式製備硬化性接著劑組成物。

用於製備硬化性接著劑組成物之各成分之詳細如下。

[成分(A)：黏合劑樹脂]

·「改質聚烯烴」：含有Mn＝47,000之馬來酸酐改質α-烯烴聚合物(相當於上述成分(A1)，於25℃為固體)之溶液(三井化學股份有限公司製造，製品名「Unistole H-200」)。

[成分(B)：聚苯醚樹脂]

·「聚苯醚樹脂(1)」：含有Mn＝2,200之乙烯基苄基改質聚苯醚(前述通式(b-4)所表示之化合物，於25℃為固體)之溶液(三菱瓦斯化學股份有限公司製造，製品名「OPE-2St 2200」)。

·「聚苯醚樹脂(2)」：含有Mn＝4,000之乙烯基苄基改質聚苯醚(前述通式(b-4)所表示之化合物，於25℃為固體)之溶液。

[成分(B')：聚苯醚樹脂]

·「聚苯醚樹脂(3)」：含有Mn＝1,200之乙烯基苄基改質聚苯醚(前述通式(b-4)所表示之化合物，於25℃為固體)之溶液(三菱瓦斯化學股份有限公司製造，製品名「OPE-2St 1200」)。

[成分(C)：多官能性化合物]

·「多官能性化合物(1)」：前述通式(c-11)中之R^a為碳數8至15之烷基的具有異氰脲酸酯骨架之化合物。四國化成工業股份有限公司製造，製品名「L-DAIC」，分子量＝377.27，於25℃為液體。

·「多官能性化合物(2)」：前述通式(c-1)中R^{11}至R^{13}為烯丙基的具有異氰脲酸酯結構之化合物。三菱化學股份有限公司製造，製品名「TAIC(註冊商標)」，分子量＝249.27，於25℃為液體。

[成分(D)：陽離子聚合起始劑]

·「熱陽離子聚合起始劑」：熱陽離子聚合起始劑(三新化學工業股份有限公司製造，製品名「Sun Aid SI-B3」)，於25℃為固體。

[成分(E)：交聯劑]

·「異氰酸酯系交聯劑」：1,3,5-三(5-異氰酸酯戊基)-1,3,5-三嗪-2,4,6-三酮(三井化學股份有限公司製造，製品名「Stabio D-370N」)，分子量＝462，於25℃為液體。

[成分(F)：矽烷偶合劑]

·「矽烷偶合劑」：8-縮水甘油氧基辛基三甲氧基矽烷(信越化學工業股份有限公司，製品名「KBM4803」)，於25℃為液體。

【0136】(2)硬化性接著片之製作

將上述(1)所製備之硬化性接著劑組成物塗佈於第一剝離片(琳得科(Lintec)股份有限公司製造，製品名「SP-PET752150」)之剝離處理面上來形成塗膜，將該塗膜於100℃乾燥2分鐘，形成厚度25μm之接著劑層。

進而，將所形成之接著劑層之露出之表面、與第二剝離片(琳得科股份有限公司製造，製品名「SP-PET381130」)之剝離處理面貼合，獲得與圖1(d)所示之硬化性接著片4相同構成之硬化性接著片 。

【0137】[表1]

	接著劑組成物中之各成分之調配量(有效成分比)									各成分相對於接著劑組成物中之有效成分之總量(100質量%)的含量					
	成分(A)	成分(B)		成分(B')	成分(C)		成分(D)	成分(E)	成分(F)						
	改質聚烯烴	聚苯醚樹脂(1)	聚苯醚樹脂(2)	聚苯醚樹脂(3)	多官能化合物(1)	多官能化合物(2)	熱陽離子聚合起始劑	異氰酸酯系交聯劑	矽烷偶合劑	成分(A)	成分(B)或成分(B')	成分(C)	成分(D)	成分(E)	成分(F)
	質量份	**質量份**	**質量份**	**質量份**	**質量份**	**質量份**	**質量份**	**質量份**	**質量份**	**質量%**	**質量%**	**質量%**	**質量%**	**質量%**	**質量%**
實施例1	100	25	-	-	25	-	0.24	0.5	0.2	66.3	16.6	16.6	0.159	0.331	0.133
實施例2	100	-	25	-	25	-	0.24	0.5	0.2	66.3	16.6	16.6	0.159	0.331	0.133
實施例3	100	25	-	-	-	25	0.24	0.5	0.2	66.3	16.6	16.6	0.159	0.331	0.133
比較例1	100	-	-	25	25	-	0.24	0.5	0.2	66.3	16.6	16.6	0.159	0.331	0.133

【0138】使用上述(2)所製作之硬化性接著片，進行以下物性值之測定。將這些測定之結果顯示於表2。

【0139】(1)硬化物之接著強度之測定

自按實施例及比較例之次序製作之硬化性接著片剝離一個剝離片，將露出之接著劑層之表面與銅箔(三井金屬礦業股份有限公司製造，製品名「電解銅箔」，厚度：35μm)之光澤面重合，使用熱層壓機於100℃之溫度貼合，切斷為縱10mm×橫100mm之大小，於接著劑層上積層銅箔，獲得具銅箔之硬化性接著

片。繼而，也自該具銅箔之硬化性接著片剝離另一剝離片，使用熱層壓機將露出之接著劑層之表面與厚度25μm之改質聚醯亞胺膜(PI Advanced Materials公司製造，FG級)於100℃之溫度貼合，獲得將銅箔／接著劑層／改質聚醯亞胺膜依序積層而成之積層體。

繼而，針對該積層體以160℃、5MPa之條件進行1小時之熱壓，獲得使接著劑層熱硬化而製成硬化物的測定用樣本。

針對該測定用樣本，使用精密萬能試驗機(島津製作所股份有限公司製造，製品名「Autograph AG-IS」)，將測定用樣本所具有的銅箔及硬化物之積層體自改質聚醯亞胺膜於剝離角度90°、剝離速度50mm/分鐘之條件下剝離，將此時測定之值作為「硬化物之接著強度」。

【0140】(2)硬化物之相對介電常數及介電正切之測定

準備多個按實施例或比較例之次序製作之硬化性接著片，適當去除剝離片而將多個接著劑層重疊，形成厚度約1mm之接著劑層，獲得依序具有第一剝離片／厚度約1mm之接著劑層／第二剝離片之積層體。

繼而，將該積層體於160℃加熱1小時，使厚度約1mm之接著劑層硬化，進而去除兩片剝離片，將所得之硬化物作為測定用樣本。

繼而，針對所得之上述測定樣本，使用RF(Radio Frequency；射頻)阻抗材料分析儀(是德科技(Keysight Technology)公司製造，製品名「E4991A」)，分別測定於23℃、1GHz之硬化物之相對介電常數及介電正切。再者，於本說明書中，採用1GHz作為高頻區域之一例。

【0141】(3)接著劑層之滲出距離之測定

自按實施例或比較例之次序所製作之硬化性接著片剝離一個剝離片，使用熱層壓機將所露出之接著劑層之表面與改質聚醯亞胺膜(PI Advanced Materials公司製造，FG級，厚度25μm)於100℃貼合後，切斷為縱100mm×橫100mm之大小，獲得具有與圖1(c)所示之硬化性接著片3相同構成的將剝離片／接著劑層／改質聚醯亞胺膜依序積層而成之硬化性接著片。

繼而，也自該積層體剝離另一剝離片，將露出之接著劑層之表面重疊於較該表面更廣的銅箔(三井金屬礦業股份有限公司製造，製品名「電解銅箔」，厚度：35μm)之光澤面，使用熱層壓機於100℃之溫度貼合，獲得將銅箔／接著劑層／改質聚醯亞胺膜依序積層而成之試驗樣本。

針對該試驗樣本，以171℃、1.38MPa之條件進行20分鐘之熱壓處理後，將試驗樣本冷卻至室溫為止，如以下般測定接著劑成分之滲出距離。

[接著劑成分之滲出距離之測定]

圖2係表示用以說明接著劑成分之滲出之評價次序的熱壓後之試驗樣本之狀況的示意圖，(a)係試驗樣本之俯視時之平面示意圖，(b)係以(a)之直線A-A'將試驗樣本於鉛垂方向切斷時之剖面示意圖。

所製作之試驗樣本係銅箔100之面積較接著劑層10及作為聚醯亞胺膜之基材20之面積更廣，故而於接著劑成分滲出之情形時，如圖2(a)般，會較作為聚醯亞胺膜之基材20之外緣部更為擴展，附著於未與接著劑層10貼合之銅箔100上。此處，使用數位顯微鏡俯視熱壓後之試驗樣本，觀察自作為聚醯亞胺膜之基材20之外緣部滲出的接著劑成分，測定自外緣部至接著劑成分滲出最遠之部位為

止的距離(圖2(a)中之X所示之長度)作為「接著劑成分之滲出距離」。該「接著劑成分之滲出距離」越短，可謂接著劑成分之滲出之抑制效果越高。

【0142】[表2]

	各種評價			
	硬化物之接著強度	硬化物之相對介電常數(1GHz、23℃)	硬化物之介電正切(1GHz、23℃)	接著劑成分之滲出距離
	kgf/cm	-	-	μm
實施例1	0.98	2.32	0.0008	20
實施例2	0.90	2.32	0.0008	19
實施例3	0.88	2.34	0.0030	20
比較例1	0.74	2.36	0.0010	28

【0143】根據表2，由實施例1至實施例3中製備之硬化性接著劑組成物所形成之硬化物成為下述結果：接著強度高，另外，相對介電常數及介電正切之值低，低介電特性優異。另外亦確認到，由實施例1至實施例3中製備之硬化性接著劑組成物所形成之接著劑層係接著劑成分之滲出之抑制效果高。

另一方面，由比較例1中製備之硬化性接著劑組成物所形成之硬化物與實施例1至實施例3相比，成為接著強度差之結果。

【符號說明】

【0144】

1,2,3,4:硬化性接著片

10,11,12:接著劑層

20:基材

30,31,32:剝離片

100:銅箔

【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種硬化性接著劑組成物，係包含：

黏合劑樹脂(A)，具有反應性官能基；

聚苯醚樹脂(B)，具有乙烯基，數量平均分子量為1500以上至未達5000；以及

多官能性化合物(C)，具有兩個以上之於末端具雙鍵之不飽和烴基。

【請求項2】如請求項1所記載之硬化性接著劑組成物，其中進而含有陽離子聚合起始劑(D)。

【請求項3】如請求項1或2所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於成分(A)之總量100質量份，成分(B)之含量為99.0質量份以下。

【請求項4】如請求項1至3中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於前述硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，成分(A)之含量超過20質量%。

【請求項5】如請求項1至4中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，進而含有能夠與成分(A)所具有之前述反應性官能基反應之交聯劑(E)。

【請求項6】如請求項1至5中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於前述硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，成分(A)、成分(B)及成分(C)之合計含量為50質量%以上。

【請求項7】如請求項1至6中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於成分(A)之總量100質量份，成分(B)及成分(C)之合計含量未達100質量份。

【請求項8】如請求項1至7中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)為具有雜環結構之多官能性化合物。

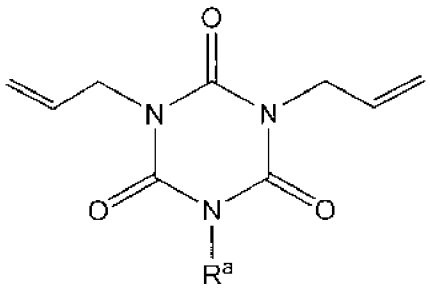
【請求項9】 如請求項1至8中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)為具有兩個以上之前述不飽和烴基且進而含有飽和烴基之多官能性化合物。

【請求項10】 如請求項1至9中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)包含具有兩個前述不飽和烴基之多官能性化合物(C1)。

【請求項11】 如請求項10所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C1)為具有兩個前述不飽和烴基且具有一個飽和烴基之多官能性化合物。

【請求項12】 如請求項1至11中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(C)包含下述通式(c-11)所表示之化合物(C11)：

[化1]



(c-11)

上述式中，R^a表示飽和烴基。

【請求項13】 如請求項1至12中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中成分(A)包含具有反應性官能基之烯烴系樹脂(A1)。

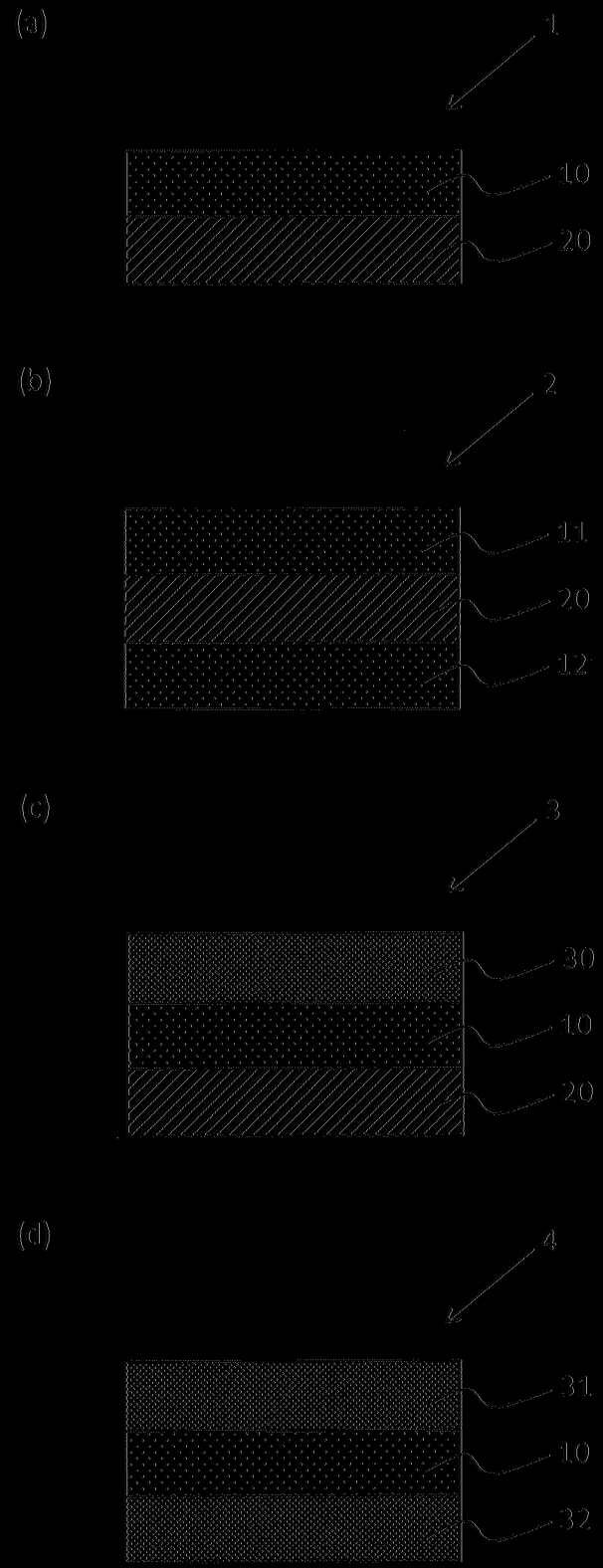
【請求項14】 如請求項1至13中任一項所記載之硬化性接著劑組成物，其中相對於前述硬化性接著劑組成物之有效成分之總量，無機填充材之含量為0質量%至30質量%。

【請求項15】 一種硬化性接著片，係具有由如請求項1至14中任一項所記載之硬化性接著劑組成物所形成之接著劑層。

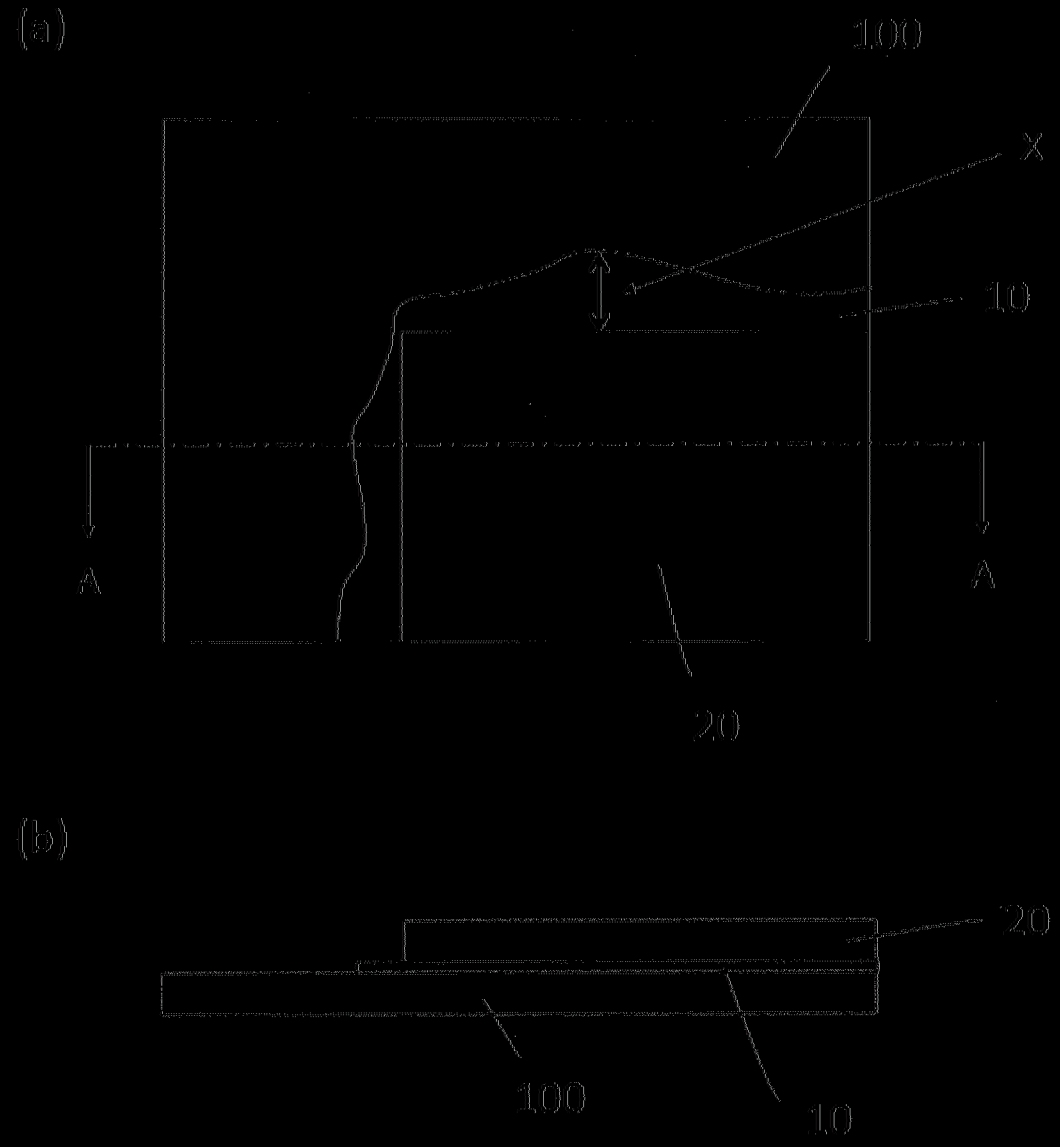
【請求項16】 如請求項15所記載之硬化性接著片，其中能夠藉由加熱使前述接著劑層硬化而成為硬化物。

【請求項17】 如請求項15或16所記載之硬化性接著片 ，其係用作蓋層片 。

【發明圖式】



【圖1】



(圖2)