

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5111711号  
(P5111711)

(45) 発行日 平成25年1月9日(2013.1.9)

(24) 登録日 平成24年10月19日(2012.10.19)

(51) Int. Cl. F I  
**C09J 4/00 (2006.01)** C O 9 J 4/00  
**H01L 21/60 (2006.01)** H O 1 L 21/60 3 1 1 S

請求項の数 6 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2002-23798 (P2002-23798)	(73) 特許権者	000004455
(22) 出願日	平成14年1月31日(2002.1.31)		日立化成工業株式会社
(65) 公開番号	特開2003-221557 (P2003-221557A)		東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
(43) 公開日	平成15年8月8日(2003.8.8)	(74) 代理人	100088155
審査請求日	平成17年1月26日(2005.1.26)		弁理士 長谷川 芳樹
審判番号	不服2010-22569 (P2010-22569/J1)	(74) 代理人	100128381
審判請求日	平成22年10月6日(2010.10.6)		弁理士 清水 義憲
		(74) 代理人	100169454
			弁理士 平野 裕之
		(74) 代理人	100139000
			弁理士 城戸 博兒
		(74) 代理人	100152191
			弁理士 池田 正人

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 接着剤組成物、回路接続用接着剤組成物及び回路接続方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

(a) 分子内に(メタ)アクリロイル基を二つ以上有するラジカル重合性化合物、(b) ラジカル発生剤、(c) 連鎖移動剤を含有し、

(b) ラジカル発生剤が、80 ~ 200 の加熱でラジカルを発生する過酸化物である硬化剤であり、

(c) 連鎖移動剤が、メルカプト化合物であることを特徴とする回路接続用接着剤組成物。

【請求項2】

(b) ラジカル発生剤が、パーオキシケタール誘導体である請求項1に記載の回路接続用接着剤組成物。 10

【請求項3】

(a) 分子内に(メタ)アクリロイル基を二つ以上有するラジカル重合性化合物100重量部に対して、(b) ラジカル発生剤0.5 ~ 30重量部、(c) 連鎖移動剤0.05 ~ 20重量部を含有してなる請求項1又は2に記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項4】

回路接続用接着剤組成物100体積に対して導電粒子0.1 ~ 30体積%をさらに含有する請求項1 ~ 3のいずれか一項に記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項5】

相対向する回路電極を有する基板間に接着剤組成物を介在させ、相対向する回路電極を 20

有する基板を加圧して加圧方向の電極間を電氣的に接続する回路接続において、前記接着剤組成物として用いられる請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の回路接続用接着剤組成物。

【請求項 6】

相対向する回路電極を有する基板間に、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の回路接続用接着剤組成物を介在させ、相対向する回路電極を有する基板を加圧して加圧方向の電極間を電氣的に接続する回路接続方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、接着剤組成物、回路接続用接着剤組成物及び回路接続方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

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接着剤が使用されている。接着剤に対する要求は、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特性が要求されている。また、接着に使用される被着体は、プリント配線板やポリイミド等の有機基材をはじめ、銅、アルミニウム等の金属やITO、SiN、SiO<sub>2</sub>等の多種多様な表面状態を有する基材が用いられ、各被着体にあわせた分子設計が必要である。

従来から、前記半導体素子や液晶表示素子用の接着剤としては、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。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の反応を促進する熱潜在性触媒が一般に用いられている。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おり、一般的には、170 ~ 250 の温度で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、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。さら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、低温(100 ~ 170)、短時間(1時間以内)、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るが、室温付近での貯蔵安定性を兼備することは非常に難しいことが知られている。

最近、(メタ)アクリレート誘導体とラジカル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非常に反応性に富むため、短時間硬化が可能であり、かつラジカル開始剤の分解温度以下では、安定に存在することから、低温速硬化と室温付近での貯蔵安定性を両立した硬化系の設計が可能である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、ラジカル硬化系の接着剤は、硬化時の硬化収縮が大きいために、エポキシ樹脂を用いた場合と比較して、接着強度に劣ることが分かっており、特に無機材質や金属材質の基材に対する接着強度が低下することが分かっている。このため、半導体素子や液晶表示素子の接着剤に使用した場合、85 / 85%RH等の高温多湿条件に放置する信頼性試験で、十分な性能(接着強度等)が得られないことが分かっている。

【0004】

本発明は、ラジカル硬化系でありながら、金属及び無機材質で構成される基材への高い接着強度を示し、室温(20 ~ 30)での貯蔵安定性に優れ、かつ信頼性試験後も十分な性能を有する接着剤組成物、回路接続用接着剤組成物及び回路接続方法を提供するものである。

【0005】

10

20

30

40

50

【課題を解決するための手段】

本発明の接着剤組成物は、[ 1 ] ( a ) 分子内に ( メタ ) アクリロイル基を二つ以上有するラジカル重合性化合物、( b ) ラジカル発生剤、( c ) 連鎖移動剤を含有し、( b ) ラジカル発生剤が、80 ~ 200 の加熱でラジカルを発生する過酸化物である硬化剤であり、( c ) 連鎖移動剤が、メルカプト化合物であることを特徴とする回路接続用接着剤組成物である。

また、本発明は、[ 2 ] ( b ) ラジカル発生剤が、パーオキシケタール誘導体である上記 [ 1 ] に記載の回路接続用接着剤組成物である。

また、本発明は、[ 3 ] ( a ) 分子内に ( メタ ) アクリロイル基を二つ以上有するラジカル重合性化合物 100 重量部に対して、( b ) ラジカル発生剤 0.5 ~ 30 重量部、( c ) 連鎖移動剤 0.05 ~ 20 重量部を含有してなる上記 [ 1 ] 又は上記 [ 2 ] に記載の回路接続用接着剤組成物である。

また、本発明は、[ 4 ] 回路接続用接着剤組成物 100 体積に対して導電粒子 0.1 ~ 30 体積% をさらに含有する上記 [ 1 ] ~ [ 3 ] のいずれかに記載の回路接続用接着剤組成物である。

さらに、本発明は、[ 5 ] 相対向する回路電極を有する基板間に接着剤組成物を介在させ、相対向する回路電極を有する基板を加圧して加圧方向の電極間を電氣的に接続する回路接続において、前記接着剤組成物として用いられる、上記 [ 1 ] ~ [ 4 ] のいずれかに記載の回路接続用接着剤組成物である。

また、本発明は、[ 8 ] 相対向する回路電極を有する基板間に、上記 [ 1 ] ~ [ 5 ] のいずれかに記載の回路接続用接着剤組成物を介在させ、相対向する回路電極を有する基板を加圧して加圧方向の電極間を電氣的に接続する回路接続方法である。

【 0 0 0 6 】

【発明の実施の形態】

本発明における ( a ) ラジカル重合性化合物としては、活性ラジカルによって重合する官能基を有する化合物であれば、特に制限なく公知のものを使用することができる。このような官能基としては例えば、分子内にアクリロイル基、メタクリロイル基、アリル基、マレイミド基、ビニル基等が挙げられるが、選択の容易さからアクリロイル基およびメタクリロイル基(以下、両者を総称して(メタ)アクリロイルと呼ぶ)を分子内に一つ以上有する樹脂が好ましく、さらに、分子内に(メタ)アクリロイル基を二つ以上有する樹脂が、硬化によって高硬化密度が得られるため、より好ましい。

【 0 0 0 7 】

具体的には、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、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、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、2-(メタ)アクリロイロキシエチルホスフェート、2, 2'-ジ(メタ)アクリロイロキシジエチルホスフェート等の単官能および多官能(メタ)アクリレート化合物が挙げられる。これらの化合物は、必要に応じて

単独あるいは混合して用いてもよい。

【0008】

本発明において用いる (b) 150 ~ 750 nm の光照射または 80 ~ 200 の加熱または光照射と加熱を併用することでラジカルを発生するラジカル発生剤 (硬化剤) としては、 - アセトアミノフェノン誘導体や過酸化物、アゾ化合物等、特に制限なく公知のものを使用することができる。これらの化合物としては、特に硬化温度の設計の容易さ等の点から、過酸化物がより好ましい。使用可能な過酸化物としては、過酸化物の分解の尺度を示す 1 分間半減期温度の参照が簡便であり、1 分間半減期温度が、40 以上かつ 200 以下が好ましく、その中でも 1 分間の半減期温度が 60 以上かつ 170 以下がより好ましい。具体的には、ジアシルパーオキサイド誘導体、パーオキシジカーボネート誘導体、パーオキシエステル誘導体、パーオキシケタール誘導体、ジアルキルパーオキサイド誘導体、ヒドロパーオキサイド誘導体が挙げられる。

10

【0009】

ジアシルパーオキサイド誘導体としては、2,4 - ジクロロベンゾイルパーオキサイド、3,5 - トリメチルヘキサノイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、ステアロイルパーオキサイド、スクシニックパーオキサイド、ベンゾイルパーオキシトルエン、ベンゾイルパーオキサイド等が挙げられる。

【0010】

パーオキシジカーボネート誘導体としては、ジ - n - プロピルパーオキシジカーボネート、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ビス (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 - エトキシメトキシ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、ジメトキシブチルパーオキシジカーボネート、ジ (3 - メチル - 3 - メトキシブチルパーオキシ) ジカーボネート等が挙げられる。

20

【0011】

パーオキシエステル誘導体としては、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、1 - シクロヘキシル - 1 - メチルエチルパーオキシノエデカノエート、t - 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 - ビス (2 - エチルヘキサノイルパーオキシ) ヘキサノエート、2,5 - ジメチル - 2,5 - ビス (2 - ベンゾイルパーオキシ) ヘキサノエート、1 - シクロヘキシル - 1 - メチルエチルパーオキシ - 2 - エチルヘキサノエート、t - ヘキシルパーオキシ - 2 - エチルヘキサノエート、t - ブチルパーオキシイソブチレート、1,1 - ビス (t - ブチルパーオキシ) シクロヘキサン、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 - 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 (m - トルオイルパーオキシ) ヘキサノエート、t - ブチ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 - 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、t - ブチルパーオキシアセテート等が挙げられる。

30

【0012】

パーオキシケタール誘導体としては、1,1 - ビス (t - ヘキシルパーオキシ) - 3,3,5 - トリメチルシクロヘキサン、1,1 - ビス (t - ヘキシルパーオキシ) - 3,3,5 - トリメチルシクロヘキサン、1,1 - (t - ブチルパーオキシ) シクロドデカン、2,2 - ビス (4,4 - ジ - t - ブチルパーオキシシクロヘキシル) プロパン、2,2 - ビス (t - ブチルパーオキシ) デカン等が挙げられる。

40

【0013】

ジアルキルパーオキサイド誘導体としては、 , ' ビス (t - ブチルパーオキシ) ジイソプロピルベンゼン、ジクミルパーオキサイド、2,5 - ジメチル - 2,5 - ジ (t - ブチルオキシ) ヘキサノエート、t - ブチルクミルパーオキサイド等が挙げられる。

【0014】

ヒドロパーオキサイド誘導体としては、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキサイド、クメンヒドロパーオキサイド等が挙げられる。

50

これらの化合物は、単独で用いる他に、2種以上の化合物を混合して用いても良い。

【0015】

(b)ラジカル発生剤の配合量は、(a)ラジカル重合性化合物100部に対して、0.5~30重量部であり、好ましくは1~20重量部である。添加量が0.5重量部未満の場合、硬化不足が懸念され、また、30重量部以上の場合には、放置安定性(保存安定性)が低下する恐れがある。

【0016】

本発明における(c)連鎖移動剤としては、特に制限なく公知の化合物を使用でき、99においてのステレンモノマーに対する連鎖移動定数0.001~30である化合物が特に好ましい。このような化合物としては、例えばメルカプト化合物、アルコール等が挙げられ、その中でもメルカプト化合物がより好ましい。

メルカプト化合物としては、ジチオニ酢酸、ジチオニ酢酸メチルエステル、メルカプト酢酸、メルカプト酢酸メチルエステル、チオ酢酸、 $\alpha$ -ジチオビス-p-メチルアニゾール、アリルベンゼンチオールスルホネート、ベンゼンチオール、o-(又はp-)エトキシベンゼンチオール、2-ベンズイミダゾールチオール、2,2'-ジチオニ安息香酸ジメチルエステル、o-メルカプト安息香酸、o-メルカプト安息香酸メチルエステル、チオ安息香酸、2,2'-ジチオビスベンゾチアゾール、2,2'-チオビスベンゾチアゾール、2-ベンゾチアゾールチオール、ベンゾイルジスルフィド、ベンジルジスルフィド、ブタンチオール、ビス(ジメチルチオカルボニル)ジスルフィド、ドデカンチオール、o,o'-ジチオビスチオギ酸ジイソプロピルエステル、ヘブタンチオール、ヘキサンチオール、ナフタレンメタンチオール、メルカプトベンゾオキサゾール、ナフタレンチオール、オクタデカンチオール、オクタンチオール、2,2'-ジチオジフェネトール、4,4'-ジチオジフェネトール、2-メチル-2-プロパンチオール、トルエンチオール、チオビスベンゼンチオール、p-メトキシ-トルエンチオール等が挙げられる。

【0017】

アルコール類としては、アリルアルコール、1,4-ブタンジオール、ブチルアルコール、エチルアルコール、エチレングリコール、イソブチルアルコール、イソプロピルアルコール、メタノール、1,2-プロパンジオール、プロピルアルコール、2-プロピン-1-オール等があげられる。これらの化合物は単独で用いる他に、2種以上の化合物を混合して用いても良い。

【0018】

本発明における(c)連鎖移動剤の添加量は、(a)ラジカル重合性化合物100重量部に対して、0.05~20重量部することが好ましく、0.1~10重量部とすることが特に好ましい。添加量が0.05重量部未満の場合、高接着強度が得られにくく、また、20重量部以上の場合には、過度に連鎖移動がおり、低架橋密度となる恐れがある。

【0019】

本発明に用いる導電粒子としては、Au、Ag、Ni、Cu、はんだ等の金属粒子やカーボン等が挙げられる。また、非導電性のガラス、セラミック、プラスチック等を核とし、この核に前記金属、金属粒子やカーボンを被覆したものでよい。導電粒子が、プラスチックを核とし、この核に前記金属、金属粒子やカーボンを被覆したもので熱溶解金属粒子の場合、加熱加圧により変形性を有するので接続時に回路電極の高さバラツキを吸収したり、電極との接触面積が増加し信頼性が向上するので好ましい。またこれらの導電粒子の表面を、さらに高分子樹脂などで被覆した微粒子は、導電粒子の配合量を増加した場合の粒子同士の接触による短絡を抑制し、電極回路間の絶縁性が向上できることから、適宜これを単独あるいは導電性粒子と混合して用いてもよい。

【0020】

この導電粒子の平均粒径は、分散性、導電性の点から1~18 $\mu$ mであることが好ましい。導電粒子の使用量は、特に制限は受けないが、接着剤組成物トータル100体積に対して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。この値が、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

10

20

30

40

50

ると回路の短絡が起こる傾向がある。なお、体積%は23の硬化前の各成分の体積をもとに決定されるが、各成分の体積は、比重を利用して重量から体積に換算することができる。また、メスシリンダー等にその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適当な溶媒(水、アルコール等)を入れたものに、その成分を投入し増加した体積をその体積として求めることもできる。

#### 【0021】

本発明の接着剤組成物には、カップリング剤等の密着向上剤、レベリング剤、着色剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、滑剤、充填材などの添加剤を適宜添加してもよい。

#### 【0022】

本発明の接着剤組成物は、増粘化やフィルム化を目的として、種々のポリマを適宜添加してもよい。使用するポリマは特に制限を受けないが、(a)ラジカル重合性化合物、(b)ラジカル発生剤、(c)連鎖移動剤及び導電粒子に悪影響を及ぼさないことが必須である。このようなポリマとしては、ポリイミド、ポリアミド、フェノキシ樹脂類、ポリメタクリレート類、ポリアクリレート類、ポリイミド類、ポリウレタン類、ポリエステル類、ポリビニルブチラル類、SBS及びそのエポキシ変性体、SEBS及びその変性体などを用いることができる。これらは単独あるいは2種類以上を混合して用いることができる。さらに、これらポリマ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良い。これらは、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接着剤組成物としては好適に用いることができる。上記ポリマの分子量は大きいほどフィルム形成性が容易に得られ、また接着剤としての流動性に影響する溶融粘度を広範囲に設定できる。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5,000~150,000が好ましく、10,000~80,000が特に好ましい。この値が、5,000未満ではフィルム形成性が劣る傾向があり、また150,000を超えると他の成分との相溶性が悪くなる傾向がある。使用量としてはラジカル重合性化合物100重量部に対して20~320重量部とすることが好ましい。この使用量が、20重量部未満又は320重量部を超える場合は、流動性や接着性が低下する傾向がある。

#### 【0023】

本発明の接着剤組成物は、常温で液状である場合にはペースト状で使用することができる。室温で固体の場合には、加熱して使用する他、溶剤を使用してペースト化してもよい。使用できる溶剤としては、接着剤組成物及び添加剤と反応性がなく、かつ十分な溶解性を示すものであれば、特に制限は受けないが、常圧での沸点が50~150であるものが好ましい。沸点が50以下の場合、室温で放置すると揮発する恐れがあり、開放系での使用が制限される。また、沸点が150以上だと、溶剤を揮発させることが難しく、接着後の信頼性に悪影響を及ぼす恐れがある。

#### 【0024】

本発明の接着剤組成物はフィルム状にして用いることもできる。接着剤組成物に必要により溶剤等を加えるなどした溶液を、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、離形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。

#### 【0025】

本発明の接着剤組成物は光照射、加熱、または光照射と同時に加熱及び加圧を併用して接着させることができる。これらを併用することにより、より低温短時間での接着が可能となる。光照射は、150~750nmの波長域の照射光が好ましく、低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、キセノンランプ、メタルハライドランプを使用して0.1~10J/cm<sup>2</sup>の照射量で硬化することができる。加熱温度は、特に制限は受けないが、80~200の温度が好ましい。圧力は、被着体に損傷を与えない範囲であれば、特に制限は受けないが、一般的には0.1~10MPaが好ましい。これらの加熱及び加圧は、0.5秒~3時間の範囲で行うことが好ましい。

10

20

30

40

50

## 【0026】

本発明の接着剤組成物は、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用アンダーフィル材、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。

## 【0027】

以下に、本発明の接着剤組成物及び導電粒子を使用して作製した異方導電フィルムと電極の接続の一例について説明する。異方導電フィルムを、基板上の相対峙する電極間に存在させ、加熱加圧することにより両電極の接触と基板間の接着を得、電極との接続を行える。電極を形成する基板としては、半導体、ガラス、セラミック等の無機質、ポリイミド、ポリカーボネート等の有機物、ガラス/エポキシ等のこれら複合の各組み合わせが適用できる。

10

## 【0028】

## 【実施例】

以下に、本発明を実施例に基づいて具体的に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

## 【0029】

(実施例1～3、比較例1)

フェノキシ樹脂(ユニオンカーバイド株式会社製、商品名PKHC、平均分子量45,000)50gを、重量比でトルエン(沸点110.6℃)/酢酸エチル(沸点77.1℃) = 50/50の混合溶剤に溶解して、固形分40%の溶液とした。

20

ラジカル重合性化合物として、ヒドロキシエチルグリコールジメタクリレート(共栄社化学株式会社製、商品名80MFA)および、リン酸エステルジメタクリレート(共栄社化学株式会社製、商品名ライトエステルP-2M)を用いた。

連鎖移動剤として、メルカプトベンゾチアゾール(東京化成工業株式会社製)、メルカプトベンゾオキサゾール(東京化成工業株式会社製)及びチオビスベンゼンチオール(東京化成工業株式会社製)を用いた。

ラジカル発生剤として、1,1-ビス(t-ヘキシルパーオキシ)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン(日本油脂株式会社製、商品名パーヘキサTMH)を用いた。

ポリスチレンを核とする粒子の表面に、厚み0.2μmのニッケル層を設け、このニッケル層の外側に、厚み0.04μmの金層を設け、平均粒径5μmの導電粒子を作製した。固形重量比で表1に示すように配合し、さらに導電粒子を1.5体積%配合分散させ、厚み80μmのフッ素樹脂フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70℃、10分の熱風乾燥により、接着剤層の厚みが20μmのフィルム状接着剤を得た。得られたフィルム状接着剤は、室温(25℃)での十分な柔軟性を示し、また40℃で10時間放置してもフィルムの性質にはほとんど変化がなく、良好な保存性を示した。

30

## 【0030】

## 【表1】

配合剤		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1
熱可塑性樹脂	PKHC	50	50	50	50
ラジカル重合性化合物	80MFA	50	50	50	50
	ライトエステルP-2M	10	10	10	10
硬化剤	パーヘキサTMH	5	5	5	5
連鎖移動剤	メルカプトベンゾチアゾール	3	—	—	—
	メルカプトベンゾオキサゾール	—	3	—	—
	チオビスベンゼンチオール	—	—	3	—

10

20

## 【0031】

〔接着強度、接続抵抗の測定〕

上記製法によって得たフィルム状接着剤を用いて、ライン幅50 $\mu$ m、ピッチ100 $\mu$ m、厚み18 $\mu$ mの銅回路を500本有するフレキシブル回路板(FPC)と、0.2 $\mu$ mの酸化インジウム(ITO)の薄層を形成したガラス(厚み1.1mm、表面抵抗20/)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株式会社製)を用いて160、3MPaで15秒間の加熱加圧を行って幅2mmにわたり接続し、接続体を作製した。この接続体の隣接回路間の抵抗値をマルチメータで測定し、抵抗値は隣接回路間の抵抗150点の平均で示した。

30

## 【0032】

また、この接続体の接着強度をJIS-Z0237に準じて90度剥離法で測定し、評価した。ここで、接着強度の測定装置は東洋ポールドウイン株式会社製テンシロンUTM-4(剥離速度50mm/min、25)を使用した。

## 【0033】

〔硬化率の測定〕

上述の回路接続材料を、150、10秒間加熱し硬化させた後、DSC(示差走査熱量測定)を用いて発熱量を測定し、これを用いて硬化率の算出を行った。硬化率の算出法を以下に示す。

40

$$\text{硬化率}(\%) = (Q_0 - Q) / Q_0$$

ここで、 $Q_0$  = 硬化前の発熱量、 $Q$  = 硬化後の発熱量、である。以上のようにして行った接続体の接着強度、接続抵抗、硬化率の測定の結果を表2に示した。

## 【0034】

【表2】

項目	抵抗値 (Ω)	接着力(N/m )	反応率 (%)
実施例 1	2.5	1000	>95
実施例 2	2.6	950	>95
実施例 3	2.2	800	>95
比較例 1	2.5	200	65

10

## 【0035】

実施例 1 で得られた接着剤組成物（回路接続用接着剤組成物）は、160、15秒間の低温短時間の接続でも、接着直後、良好な接続抵抗及び接着力（接着強度）を示した。これらに対して、本発明における連鎖移動剤を使用しない比較例 1 では、接続抵抗は良好な値を示したが接着力は低い値を示し、接続信頼性に劣り満足な接続体は得られなかった。また、反応率も低く実施例のように硬化させるには、さらに長時間加熱するか、より高い温度で接続する必要がある。

## 【0036】

20

(実施例 4)

実施例 1 で得られたフィルム状接着剤を、40 で5日間放置した後、FPCとITOとの加熱圧着を上記の方法と同様に行ったところ、接着直後の接続抵抗2.3、接着強度1050N/mであり、放置前と同様の良好な値を示し、放置安定性に優れていた。

## 【0037】

## 【発明の効果】

本発明によれば、低温短時間硬化が可能で、かつ保存安定性に優れる接着剤組成物、回路接続用接着剤組成物を提供することができる。

## フロントページの続き

- (72)発明者 須藤 朋子  
茨城県つくば市和台4-8 日立化成工業株式会社 総合研究所内
- (72)発明者 柳川 俊之  
茨城県つくば市和台4-8 日立化成工業株式会社 総合研究所内
- (72)発明者 加藤木 茂樹  
茨城県つくば市和台4-8 日立化成工業株式会社 総合研究所内
- (72)発明者 湯佐 正己  
茨城県つくば市和台4-8 日立化成工業株式会社 総合研究所内

## 合議体

審判長 吉水 純子  
審判官 野田 定文  
審判官 小川 進

- (56)参考文献 特開昭60-32870(JP,A)  
特開2001-323224(JP,A)  
特開2001-156430(JP,A)  
特開2001-262094(JP,A)  
特開昭58-109531(JP,A)  
特開昭62-106974(JP,A)  
特表2000-509425(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C09J 1/00-201/10