(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2023年7月20日(20.07.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/136273 A1

(51) 国際特許分類:
C09J 9/02 (2006.01) *H01B 1/20* (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01) *C09J 7/30* (2018.01)
C09J 163/00 (2006.01) *H05K 1/03* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/000533

(22) 国際出願日： 2023年1月12日(12.01.2023)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2022-002747 2022年1月12日(12.01.2022) JP

(71) 出願人: 株式会社レゾナック (**RESONAC CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 山崎 裕太 (**YAMAZAKI Yuta**); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 富坂 克彦 (**TOMISAKA Katsuhiko**); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 森谷 敏光 (**MORIYA Toshimitsu**); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 小林 亮太 (**KOBAYASHI Ryohta**); 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP).

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

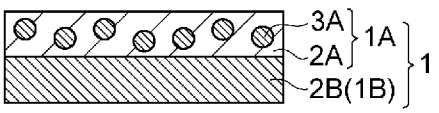
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF,

(54) **Title:** ADHESIVE COMPOSITION, ADHESIVE FILM FOR CIRCUIT CONNECTION, AND METHOD FOR PRODUCING CONNECTION STRUCTURE

(54) 発明の名称： 接着剤組成物、回路接続用接着剤フィルム、及び、接続構造体の製造方法

[図2]



(57) **Abstract:** An adhesive composition comprising (A) an epoxy resin and (B) a curing agent, said adhesive composition containing a multifunctional epoxy resin as the component (A) and a pyridinium salt as the component (B), wherein the pyridinium salt has a benzyl group at position 1 and an electron withdrawing group at position 2, and the benzyl group has an electron donating group.

(57) 要約：（Ａ）エポキシ樹脂と、（Ｂ）硬化剤と、を含有し、（Ａ）成分として、多官能エポキシ樹脂を含み、（Ｂ）成分として、ピリジニウム塩を含有し、ピリジニウム塩が、１位にベンジル基を有し、且つ、２位に電子求引基を有し、ベンジル基が電子供与基を有する、接着剤組成物。

［続葉有］

WO 2023/136273 A1

CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ：

接着剤組成物、回路接続用接着剤フィルム、及び、接続構造体の製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、接着剤組成物、回路接続用接着剤フィルム、及び、接続構造体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 対向する回路部材を加熱及び加圧し、加圧方向の電極間を電気的に接続する回路接続材料として、例えば、接着剤中に導電粒子が分散された異方導電性を有する回路接続用接着剤フィルムが知られている（例えば、下記特許文献１～４を参照）。このような接着剤フィルムは、液晶ディスプレイ（ＬＣＤ）パネルと、ＬＣＤを駆動させる半導体が搭載されたテープキャリアパッケージ（ＴＣＰ：Ｔａｐｅ　Ｃａｒｒｉｅｒ　Ｐａｃｋａｇｅ）或いはチップオンフレックス（ＣＯＦ：Ｃｈｉｐ　Ｏｎ　Ｆｌｅｘ）との接続、又は、プリント配線板と、ＴＣＰ或いはＣＯＦとの電気的接続に広く使用されている。

[0003] 最近では、半導体をフェイスダウンで直接ＬＣＤパネル又はプリント配線板に実装する場合でも、従来のワイヤーボンディング法に替えて、薄膜化及び狭ピッチ接続に有利なフリップチップ実装が採用されており、ここでも異方導電性を有する回路接続用接着剤フィルムが回路接続材料として用いられている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開昭６０－１９１２２８号公報

特許文献2：特開平１－２５１７８７号公報

特許文献3：特開平７－９０２３７号公報

特許文献4：特開２０１９－１０４８６９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] また、近年、接着剤フィルムを適用した実装体の接続信頼性への要求レベルが高まってきている。接続信頼性の向上には、実装体が、ＨＡＳＴ（Ｈｉｇｈｌｙ　Ａｃｃｅｌｅｒａｔｅｄ　Ｓｔｒｅｓｓ　Ｔｅｓｔ）のような過酷な試験後においても接着剤フィルムの剥離が生じにくい耐ＨＡＳＴ性を有していることが求められている。

[0006] そこで、本開示は、低温（例えば、１２０℃）から高温（例えば、１５０℃）にかけて実装可能であり、且つ、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観を実現することができる接着剤組成物を提供することを目的する。また、本開示は、当該接着剤組成物を用いた回路接続用接着剤フィルム、接続構造体及び接続構造体の製造方法を提供することを目的する。

課題を解決するための手段

[0007] 本開示の一側面は、以下の［１］～［７］を含む。

［１］（Ａ）エポキシ樹脂と、（Ｂ）硬化剤と、を含有し、

前記（Ａ）成分として、多官能エポキシ樹脂を含み、

前記（Ｂ）成分として、ピリジニウム塩を含有し、

前記ピリジニウム塩が、１位にベンジル基を有し、且つ、２位に電子求引基を有し、

前記ベンジル基が電子供与基を有する、接着剤組成物。

［２］前記エポキシ樹脂が芳香族系エポキシ樹脂である、［１］に記載の接着剤組成物。

［３］導電粒子を更に含有する、［１］又は［２］に記載の接着剤組成物。

［４］［１］～［３］のいずれか一つに記載の接着剤組成物により形成された領域を有する、回路接続用接着剤フィルム。

［５］第１の接着剤成分を含む第１の領域と、該第１の領域に隣接して設けられた、第２の接着剤成分を含む第２の領域と、を備え、

前記第１の領域及び前記第２の領域のうちの一方又は両方が、［１］～［３］のいずれか一つに記載の接着剤組成物により形成されている、回路接続用接着剤フィルム。

［６］第一の電極を有する第一の回路部材と、

第二の電極を有する第二の回路部材と、

前記第一の回路部材及び前記第二の回路部材の間に配置され、前記第一の電極及び前記第二の電極を互いに電気的に接続する接続部と、

を備え、

前記接続部が、［４］又は［５］に記載の回路接続用接着剤フィルムの硬化物を含む、接続構造体。

［７］第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材との間に、［４］又は［５］に記載の回路接続用接着剤フィルムを介在させ、前記第一の回路部材及び前記第二の回路部材を熱圧着して、前記第一の電極及び前記第二の電極を互いに電気的に接続する工程を備える、接続構造体の製造方法。

発明の効果

[0008] 本開示によれば、低温（例えば、１２０℃）から高温（例えば、１５０℃）にかけて実装可能であり、且つ、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観を実現することができる接着剤組成物を提供することができる。また、本開示によれば、当該接着剤組成物を用いた回路接続用接着剤フィルム、接続構造体及び接続構造体の製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]回路接続用接着剤フィルムの一実施形態を示す模式断面図である。

[図2]回路接続用接着剤フィルムの一実施形態を示す模式断面図である。

[図3]接続構造体の一実施形態を示す模式断面図である。

[図4]図３の接続構造体の製造方法を示す模式断面図である。

発明を実施するための形態

[0010] 以下、本開示の実施形態について詳細に説明する。なお、本開示は、以下の実施形態に限定されない。

[0011] 本明細書中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。また、数値範囲の下限値及び上限値は、それぞれ他の数値範囲の下限値又は上限値と任意に組み合わせられる。数値範囲「Ａ～Ｂ」という表記においては、両端の数値Ａ及びＢがそれぞれ下限値及び上限値として数値範囲に含まれる。本明細書において、例えば、「１０以上」という記載は、１０及び１０を超える数値を意味し、数値が異なる場合もこれに準ずる。また、例えば、「１０以下」という記載は、１０及び１０未満の数値を意味し、数値が異なる場合もこれに準ずる。また、本明細書に例示する各成分及び材料は、特に断らない限り、一種を単独で使用してもよいし、二種以上を併用してもよい。本明細書において、組成物中の各成分の含有量は、組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数の物質の合計量を意味する。また、本明細書中、「（メタ）アクリレート」とは、アクリレート、及び、それに対応するメタクリレートの少なくとも一方を意味する。また、本明細書中、「エポキシ基」は、グリシジル基、グリシジルオキシ基等の構造中にエポキシ基を含む置換基を含むものとする。

[0012] ＜接着剤組成物＞

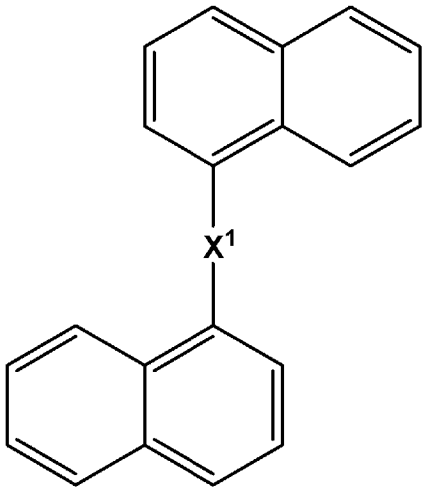
本実施形態の接着剤組成物は、（Ａ）エポキシ樹脂（以下、（Ａ）成分ともいう）と、（Ｂ）硬化剤（以下、（Ｂ）成分ともいう）とを少なくとも含有する。

[0013] （エポキシ樹脂）

本実施形態の接着剤組成物は、（Ａ）成分として、多官能エポキシ樹脂を含む。多官能エポキシ樹脂は、例えば、芳香族系エポキシ樹脂（多官能芳香族系エポキシ樹脂）であってもよく、芳香族系エポキシ樹脂を、（Ａ）成分全量基準で９０質量％超含んでもよく、芳香族系エポキシ樹脂として、例えば、（Ａ１）下記一般式（１）で表される骨格を有する多官能エポキシ樹脂

（以下、（Ａ１）成分ともいう）を含んでもよい。芳香族系エポキシ樹脂とは、分子内に芳香環を有するエポキシ樹脂である。多官能エポキシ樹脂が、芳香族系エポキシ樹脂（多官能芳香族系エポキシ樹脂）であることにより、多官能エポキシ樹脂は剛直な骨格を有するため、ＨＡＳＴ試験後であっても外観がより優れる接着剤組成物を得ることができる。

[0014] [化1]



(1)

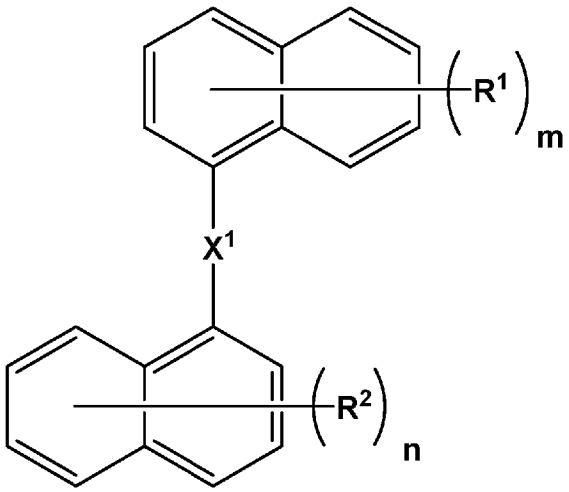
式（１）中、X^1は、酸素原子、硫黄原子、又は、炭素数１～１０のアルキレン基を示す。耐剥離性の観点から、X^1は、－CH_2－であってもよい。

[0015] （エポキシ樹脂）

まず、（Ａ１）成分について説明する。

[0016] （Ａ１）成分としては、下記一般式（２）で表される多官能エポキシ樹脂を用いることができる。

[化2]

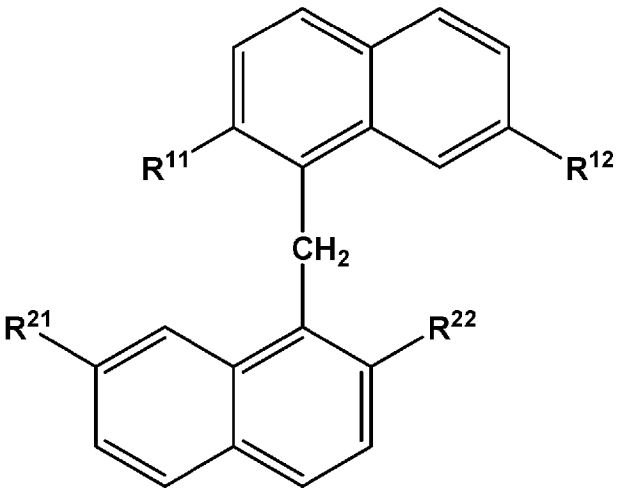


(2)

[式（２）中、Ｘ[1]は、酸素原子、硫黄原子、又は、炭素数１～１０のアルキレン基を示し、Ｒ[1]及びＲ[2]は、置換基であり、それぞれ独立にグリシジル基又はグリシジルオキシ基を示し、ｍ及びｎはそれぞれ、１～７の整数を示し、ｍ＋ｎが２以上である。]

[0017] 耐剥離性の観点から、（Ａ１）成分としては、下記一般式（３）で表される多官能エポキシ樹脂を用いることができる。

[化3]



(3)

[式（３）中、Ｒ[11]、Ｒ[12]、Ｒ[21]及びＲ[22]はそれぞれ独立に、水素原子、グリシジル基又はグリシジルオキシ基を示し、Ｒ[11]、Ｒ[12]、Ｒ[21]及びＲ[22]のうちの２以上がグリシジル基又はグリシジルオキシ基である。]

[0018] 式（３）中、Ｒ[11]及びＲ[22]がグリシジル基又はグリシジルオキシ基であり

、R^{12}及びR^{21}が水素原子であってもよく、R^{11}、R^{12}、R^{21}及びR^{22}のすべてがグリシジル基又はグリシジルオキシ基であってもよい。

[0019] （Ａ１）成分は、「ＨＰ４７００」及び「ＨＰ４７７０」（以上、ＤＩＣ株式会社製、商品名）などの市販品を用いることができる。

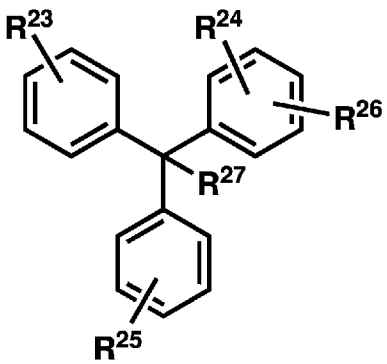
[0020] （Ａ１）成分は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

[0021] 接着剤組成物における（Ａ１）成分の含有量は、接着剤組成物全量（但し、導電粒子を除く）を基準として、１０～７０質量％であってもよく、２０～６０質量％であってもよい。

[0022] 本実施形態の接着剤組成物は、（Ａ１）成分以外の芳香族系エポキシ樹脂を含んでもよい。例えば、トリスフェノールメタン構造を有するエポキシ樹脂（以下、（Ａ２）成分ともいう）、ビスフェノール構造を有し、且つ、グリシジル基とグリシジルオキシ基と、を有するエポキシ樹脂（以下、（Ａ３）成分ともいう）、アラルキル骨格を有するノボラック型エポキシ樹脂（以下、（Ａ４）成分ともいう）、及び、４価の有機基と、有機基に結合した芳香族環と、を有し、芳香族環がエポキシ基を含む置換基を有するエポキシ樹脂（以下、（Ａ５）成分ともいう）が挙げられる。

[0023] （Ａ２）成分は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、以下の一般式（２Ａ）で表される化合物であってもよい。

[0024] [化4]



(2A)

［式（２Ａ）中、R^{23}、R^{24}、及びR^{25}は、各々独立に、水素原子、又は、

有機基を表し、R^{23}、R^{24}、及びR^{25}のうちの少なくとも１つは、エポキシ基を有する有機基を表し、R^{26}は、水素原子、又は、アルキル基を表し、R^{27}は、水素原子、又は、有機基を表す。]

[0025] R^{23}、R^{24}、及びR^{25}が表す有機基としては、例えば、アルキル基、アルキルエーテル基、及びアルケニル基が挙げられる。これらの有機基は、置換基を有していてもよい。有機基の炭素数は、例えば、２以上、又は３以上であってもよく、８以下、６以下、又は４以下であってもよい。R^{23}、R^{24}、及びR^{25}のうちの少なくとも１つは、グリシジル基を有する有機基であってもよく、グリシジルオキシ基を有する有機基であってもよい。R^{23}、R^{24}、及びR^{25}は、それぞれ同一であってもよく、異なっていてもよい。R^{23}、R^{24}、及びR^{25}は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、いずれもグリシジル基を有する有機基であってもよく、グリシジルオキシ基を有する有機基であってもよい。

[0026] R^{26}がアルキル基である場合、アルキル基は、例えば、メチル基、エチル基、又はプロピル基であってもよい。アルキル基は、置換基を有していてもよい。R^{26}は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、水素原子であってもよい。

[0027] R^{27}が表す有機基としては、例えば、アルキル基、アルキルエーテル基、アルケニル基であってもよい。有機基は、置換基を有していてもよい。R^{27}は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、アルキル基であってもよく、置換基を有するアルキル基であってもよく、フェニル基を有するアルキルであってもよい。フェニル基は、置換基を有していてもよく、例えば、エポキシ基、グリシジル基、又はグリシジルオキシ基を有していてもよい。R^{27}は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実

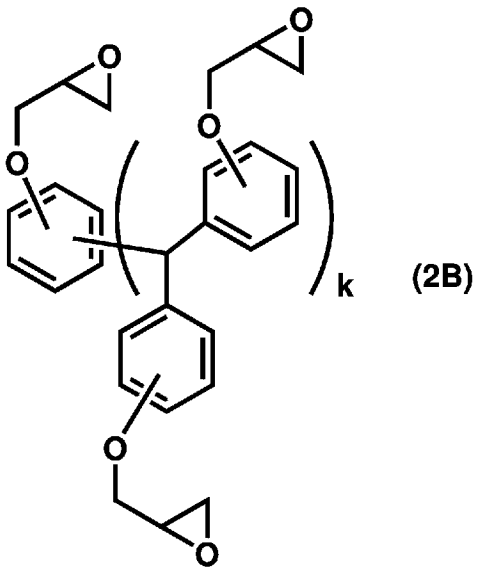
現しやすい観点から、グリシジルオキシ基を有するフェニル基を有するアルキル基であってもよい。

[0028] （Ａ２）成分が有するエポキシ基の数は、２以上、３以上、又は４以上であってもよく、１５以下、１２以下、又は１０以下であってもよい。

[0029] （Ａ２）成分のエポキシ当量は、例えば、１００～３００ｇ／ｅｑ、又は１５０～２５０ｇ／ｅｑであってもよい。エポキシ当量は、ＪＩＳ　Ｋ７２３６に準拠して測定される値を意味する。

[0030] （Ａ２）成分は、具体的には、下記式（２Ｂ）で表される化合物であってもよい。

[化5]

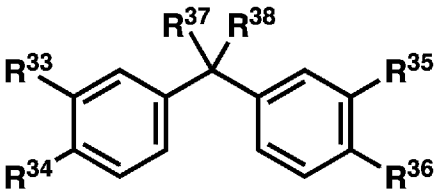


(2B)

［式（２Ｂ）中、ｋは、１～３の整数を表す。］

[0031] （Ａ３）成分は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観をより実現しやすい観点、及び貼り付け性がより優れる観点から、以下の一般式（３Ａ）で表される化合物であってもよい。

[0032] [化6]



(3A)

［式（３Ａ）中、R^{33}、R^{34}、R^{35}、及びR^{36}は、各々独立に、水素原子、有機基、グリシジル基を有する有機基、又は、グリシジルオキシ基を有する有機基を表し、R^{33}、R^{34}、R^{35}、及びR^{36}のうちの少なくとも１つは、グリシジル基を有する有機基を表し、R^{33}、R^{34}、R^{35}、及びR^{36}のうちの少なくとも１つは、グリシジルオキシ基を有する有機基を表し、R^{37}、及びR^{38}は、各々独立に、水素原子、又は、有機基を表す。］

[0033] R^{33}、R^{34}、R^{35}、及びR^{36}が表す有機基としては、例えば、アルキル基、アルキルエーテル基、及びアルケニル基が挙げられる。これらの有機基は、置換基を有していてもよい。有機基の炭素数は、例えば、２以上、又は３以上であってもよく、８以下、６以下、又は４以下であってもよい。

[0034] R^{33}、R^{34}、R^{35}、及びR^{36}は、それぞれ同一であってもよく、異なっていてもよい。低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観をより実現しやすい観点、及び貼り付け性がより優れる観点から、R^{33}、及びR^{34}は、それぞれ異なっていてもよく、R^{33}、及びR^{34}のうちの一方が、グリシジル基を有する有機基であってもよく、他方がグリシジルオキシ基を有する有機基であってもよい。低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観をより実現しやすい観点、及び貼り付け性がより優れる観点から、R^{35}、及びR^{36}は、それぞれ異なっていてもよく、R^{35}、及びR^{36}のうちの一方が、グリシジル基を有する有機基であってもよく、他方がグリシジルオキシ基を有する有機基であってもよい。

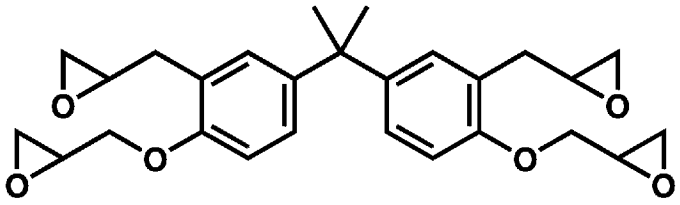
[0035] R^{37}、及び／又はR^{38}が有機基である場合、有機基としては、例えば、アルキル基、アリール基、アルキルエーテル基、及びアルケニル基が挙げられる。これらの有機基は、置換基を有していてもよい。アルキル基は、例えば、メチル基、エチル基、又はプロピル基であってもよい。アルキル基は、置換基を有していてもよい。R^{37}、及びR^{38}は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観をより実現しやすい観点、及び貼り付け性がより優れる観点から、水素原子又はアルキ

ル基であってもよく、メチル基であってもよい。

[0036] （Ａ３）成分が有するエポキシ基の数は、２以上、３以上、又は４以上であってもよく、１０以下、８以下、６以下、又は４以下であってもよい。

[0037] （Ａ３）成分としては、具体的には、下記式（３Ｂ）で表される化合物であってもよい。

[化7]

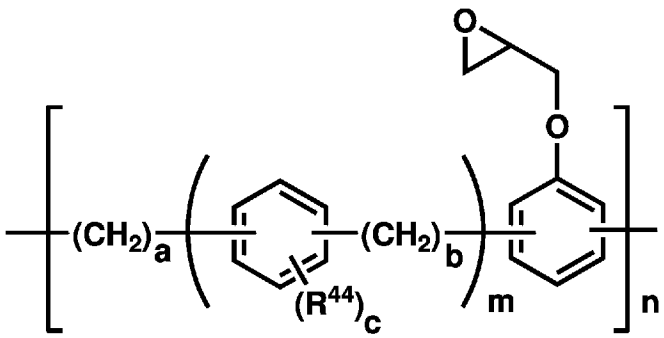


(3B)

[0038] （Ａ４）成分のアラルキル骨格とは、芳香族炭化水素の水素原子がアルキル基に置換された構造を意味する。つまり、（Ａ４）成分（アラルキル骨格を有するノボラック型エポキシ樹脂）とは、芳香族炭化水素の水素原子がアルキル基に置換された構造を有するノボラック化合物のヒドロキシル基をグリシジル化した化合物を意味する。

[0039] （Ａ４）成分は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、以下の一般式（４Ａ）で表される構造を有する化合物であってもよい。

[0040] [化8]



(4A)

［式（４Ａ）中、R^{44}は、アルキル基を表し、ａ及びｂは、各々独立に、１～３の整数を示し、ｃは、１～３の整数を示し、ｎは、１～１０の整数を示し、ｍは、１～３の整数を示す。］

[0041] R^{44}としては、例えば、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、及びイソプロピル基等が挙げられる。これらのアルキル基は、置換基を有していてもよい。R^{44}は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすいの観点から、エチル基であってもよい。

[0042] ａ及びｂは、各々独立に、１～２の整数であってもよく、１であってもよい。

[0043] ｃは、１～２の整数であってもよく、１であってもよい。

[0044] ｎは、１～１０の整数であってもよく、２～５の整数であってもよい。

[0045] ｍは、１～３の整数であってもよく、１～２であってもよい。

[0046] （Ａ４）成分が有するエポキシ基の数は、２以上、３以上、４以上、又は５以上であってもよく、１０以下、８以下、６以下、又は４以下であってもよい。

[0047] （Ａ４）成分のエポキシ当量は、例えば、１５０～３５０ｇ／ｅｑ、又は２００～３００ｇ／ｅｑであってもよい。エポキシ当量は、ＪＩＳ Ｋ７２３６に準拠して測定される値を意味する。

[0048] （Ａ４）成分の数平均分子量は、２００以上、４００以上、又は６００以上であってもよく、２０００以下、１５００以下、又は１０００以下であってもよい。本明細書における数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いて以下の条件で測定され、ポリスチレンを標準物質として決定される値を意味する。

・測定機器：ＨＬＣ－８３２０ＧＰＣ（製品名、東ソー（株）製）

・分析カラム：ＴＳＫｇｅｌ ＳｕｐｅｒＭｕｌｔｉｐｏｒｅ ＨＺ－Ｈ（３本連結）（製品名、東ソー（株）製）

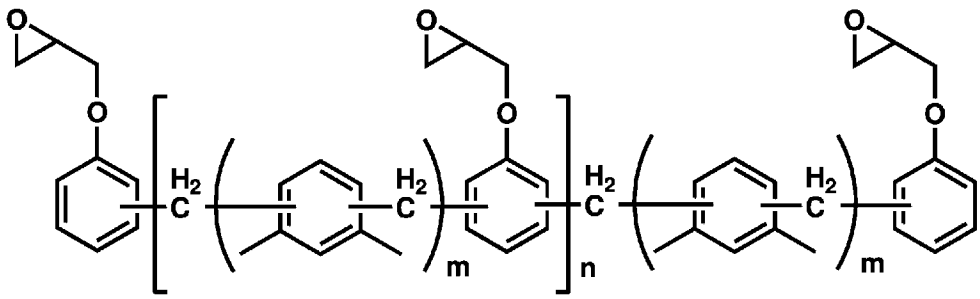
・ガードカラム：ＴＳＫｇｕａｒｄｃｏｌｕｍｎ ＳｕｐｅｒＭＰ（ＨＺ）－Ｈ（製品名、東ソー（株）製）

・溶離液：ＴＨＦ

・測定温度：２５℃

[0049] （Ａ４）成分としては、具体的には、下記式（４Ｂ）で表される化合物であってもよい。

[化9]

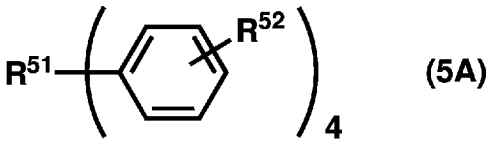


(4B)

［式（４Ｂ）中、ｎは、１～５の整数を示し、ｍは、１～２の整数を示す。］

[0050] （Ａ５）成分は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、４価の有機基に４つの芳香族環が結合していてもよく、４つの芳香族環のそれぞれがエポキシ基を有していてもよい。このとき、４つの芳香族環は、それぞれ異なっていてもよく、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、同一であってもよい。（Ａ４）成分は、例えば、以下の一般式（５Ａ）で表される化合物であってもよい。

[0051] [化10]



(5A)

［式（５Ａ）中、R^{51}は、４価の有機基を表し、R^{52}は、エポキシ基を有する有機基を表す。］

[0052] R^{51}が表す有機基としては、例えば、アルキル基、アルキルエーテル基、及びアルケニル基が挙げられる。これらの有機基は、置換基を有していてもよい。有機基の炭素数は、例えば、２以上、又は３以上であってもよく、８以下、６以下、４以下、又は３以下であってもよい。R^{51}は、低温実装時及

び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、アルキル基であってもよく、エチル基であってもよい。

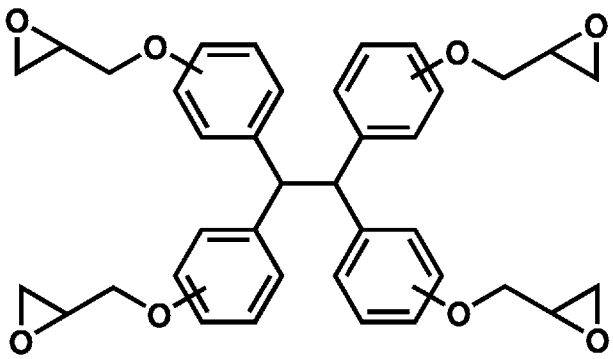
[0053] Ｒ^{52}は、グリシジル基を有する有機基であってもよく、グリシジルオキシ基を有する有機基であってもよい。Ｒ^{52}は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、グリシジルオキシ基を有する有機基であってもよい。

[0054] （Ａ５）成分が有するエポキシ基の数は、２以上、３以上、又は４以上であってもよく、１０以下、８以下、６以下、又は４以下であってもよい。

[0055] （Ａ５）成分のエポキシ当量は、例えば、１００～３００ｇ／ｅｑ、又は１５０～２５０ｇ／ｅｑであってもよい。エポキシ当量は、ＪＩＳ Ｋ７２３６に準拠して測定される値を意味する。

[0056] （Ａ５）成分としては、具体的には、下記式（５Ｂ）で表される化合物であってもよい。

[化11]



(5B)

[0057] 本実施形態の接着剤組成物は、多官能エポキシ樹脂として脂肪族系エポキシ樹脂（多官能脂肪族系エポキシ樹脂）を含んでもよい。脂肪族系エポキシ樹脂としては、脂肪族多価アルコールをグリシジル化したエポキシ樹脂（以下、（Ａ６）成分ともいう）であってもよい。

[0058] （Ａ６）成分は脂肪族多価アルコールをグリシジル化したエポキシ化合物であるが、脂肪族多価アルコールとしては、トリメチロールプロパン、グリ

セリン、エリスリトール、ペンタエリスリトール、ソルビトール、１，２，３－トリヒドロキシシクロヘキサン、１，３，５－トリヒドロキシシクロヘキサン、キシリトール、及びイノシトール、１，４－シクロヘキサンジメタノール、１，２，４－シクロヘキサントリメタノール、１，２，４，５－シクロヘキサンテトラメタノール、１，１，４，４－シクロヘキサンテトラメタノール、１，３，５－シクロヘキサントリオール、１，４－シクロヘキサンジオールが挙げられる。脂肪族多価アルコールのヒドロキシ基の数は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、２以上、３以上、又は４以上であってもよく、６以下、５以下、又は４以下であってもよい。

[0059] （Ａ６）成分は、環状構造を有してもよく、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、環状構造を有さなくてもよい。すなわち、（Ａ６）成分は、脂肪族鎖式多価アルコールをグリシジル化したエポキシ樹脂であってもよい。

[0060] （Ａ６）成分の炭素数は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、１２以上、１４以上、又は１６以上であってもよく、３０以下、２５以下、２０以下、又は１８以下であってもよい。

[0061] （Ａ６）成分のエポキシ当量は、５０～３００ｇ／ｅｑ、又は８０～２００ｇ／ｅｑであってもよい。エポキシ当量は、ＪＩＳ　Ｋ７２３６に準拠して測定される値を意味する。

[0062] （Ａ６）成分が有するエポキシ基の数は、２以上、３以上、又は４以上であってもよく、１０以下、８以下、６以下、又は４以下であってもよい。

[0063] （Ａ６）成分は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた接続抵抗及び優れた外観をより実現しやすい観点から、ペンタエリスリトールをグリシジル化した化合物であってもよ

い。

[0064] 多官能エポキシ樹脂は、３官能以上のエポキシ樹脂であってもよい。３官能以上のエポキシ樹脂とは、エポキシ基の数が３以上のエポキシ樹脂を意味する。（Ａ）成分が３官能以上のエポキシ樹脂を含むことにより、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であってもより優れた外観を実現することができる。多官能エポキシ樹脂の官能基数は、４以上であってもよく、１０以下、８以下、６以下、５以下、又は４以下であってもよい。

[0065] 多官能エポキシ樹脂の分子量は、１００以上、１５０以上、２００以上、２５０以上、又は３００以上であってもよく、５０００以下、４０００以下、３５００以下、３０００以下、２５００以下、２０００以下、１５００以下、１０００以下、９００以下、８００以下、７００以下、又は６５０以下であってもよい。

[0066] 多官能エポキシ樹脂のエポキシ当量は、５０ｇ／ｅｑ以上、８０ｇ／ｅｑ以上、１００ｇ／ｅｑ以上、１２０ｇ／ｅｑ以上、１４０ｇ／ｅｑ以上、１６０ｇ／ｅｑ以上、又は１８０ｇ／ｅｑ以上であってもよく、５０００ｇ／ｅｑ以下、４０００ｇ／ｅｑ以下、３５００ｇ／ｅｑ以下、３０００ｇ／ｅｑ以下、２５００ｇ／ｅｑ以下、２０００ｇ／ｅｑ以下、１５００ｇ／ｅｑ以下、１０００ｇ／ｅｑ以下、８００ｇ／ｅｑ以下、６００ｇ／ｅｑ以下、４００ｇ／ｅｑ以下、３００ｇ／ｅｑ以下、２５０ｇ／ｅｑ以下、又は２００ｇ／ｅｑ以下であってもよい。

[0067] 多官能エポキシ樹脂は、室温（２５℃）で固体であってもよい。多官能エポキシ樹脂が室温で固体であることにより、室温で液体であるエポキシ化合物と比べて、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観をより実現しやすい。

[0068] 多官能エポキシ樹脂は、一般式（１）で表される骨格を有する多官能エポキシ樹脂、トリスフェノールメタン構造を有するエポキシ樹脂、ビスフェノール構造を有し、且つ、グリシジル基とグリシジルオキシ基と、を有するエポキシ化合物、アラルキル骨格を有するノボラック型エポキシ樹脂、４価の

有機基と、有機基に結合した芳香族環と、を有し、芳香族環がエポキシ基を含む置換基を有するエポキシ樹脂、及び脂肪族多価アルコールをグリシジル化したエポキシ樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでもよい。多官能エポキシ樹脂は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であってもより優れた外観を実現する観点から、一般式（１）で表される骨格を有する多官能エポキシ樹脂、トリスフェノールメタン構造を有するエポキシ樹脂、ビスフェノール構造を有し、且つ、グリシジル基とグリシジルオキシ基と、を有するエポキシ化合物、４価の有機基と、有機基に結合した芳香族環と、を有し、芳香族環がエポキシ基を含む置換基を有するエポキシ樹脂、及び脂肪族多価アルコールをグリシジル化したエポキシ樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでもよい。

[0069] 多官能エポキシ樹脂は、（Ａ１）～（Ａ６）成分のいずれかのエポキシ樹脂と共に、２官能以下のエポキシ樹脂を含むものであってもよい。（Ａ１）～（Ａ６）成分のいずれかのエポキシ樹脂と共に２官能以下のエポキシ樹脂を含むことにより、架橋密度を調整することができる。

[0070] 本実施形態の接着剤組成物は、（Ａ１）～（Ａ６）成分のいずれかを単独で含むものであってもよく、（Ａ１）～（Ａ６）成分のうちから２種以上を含むものであってもよく、（Ａ１）～（Ａ６）成分と共に（Ａ１）～（Ａ６）成分以外のエポキシ樹脂を含むものであってもよい。

[0071] 本実施形態の接着剤組成物は、（Ａ１）～（Ａ６）成分以外の第２の芳香族エポキシ樹脂を含有することができる。

[0072] 第２の芳香族エポキシ樹脂としては、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦノボラック型エポキシ樹脂、テトラメチルビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、３’，４’－エポキシシクロヘキシルメチル－３，４－エポキシシクロヘキサンカルボキシレート（ビ－７－オキサビシクロ［４，１，０］ヘプタン）、キシレン－ノボラック型グリシジルエーテ

ル等が挙げられる。

[0073] 本実施形態の接着剤組成物は、（Ａ）成分として、芳香族系エポキシ樹脂以外のその他のエポキシ樹脂を含んでいてもよい。その他のエポキシ樹脂としては、脂肪族エポキシ樹脂、及び脂環式エポキシ樹脂が挙げられる。

[0074] 本実施形態の接着剤組成物は、エポキシ樹脂以外の樹脂を含有してもよく、例えば、エポキシ樹脂に加えてカチオン重合性化合物を含有してもよい。カチオン重合性化合物としては、オキセタン化合物が挙げられる。

[0075] オキセタン化合物としては、分子内に１個以上のオキセタン環構造を有する化合物であれば、特に制限なく用いることができる。低温硬化性の更なる向上の観点から、接着剤組成物は、オキセタン化合物を含んでいてもよい。また、低温硬化性と良好な保存安定性とを容易に両立できる観点から、接着剤組成物は、オキセタン化合物を含まなくてもよい。接着剤組成物は、エポキシ樹脂とオキセタン化合物とを含んでいてもよい。

[0076] オキセタン化合物としては、例えば、キシリレンビスオキセタン、２－エチルヘキシルオキセタン、３－ヒドロキシメチル－３－メチルオキセタン、３－ヒドロキシメチル－３－エチルオキセタン、３－ヒドロキシメチル－３－プロピルオキセタン、３－ヒドロキシメチル－３－ノルマルブチルオキセタン、３－ヒドロキシメチル－３－フェニルオキセタン、３－ヒドロキシメチル－３－ベンジルオキセタン、３－ヒドロキシエチル－３－メチルオキセタン、３－ヒドロキシエチル－３－エチルオキセタン、３－ヒドロキシエチル－３－プロピルオキセタン、３－ヒドロキシエチル－３－フェニルオキセタン、３－ヒドロキシプロピル－３－メチルオキセタン、３－ヒドロキシプロピル－３－エチルオキセタン、３－ヒドロキシプロピル－３－プロピルオキセタン、３－ヒドロキシプロピル－３－フェニルオキセタン、３－ヒドロキシブチル－３－メチルオキセタン、４，４’－ビス［（３－エチル－３－オキセタニル）メトキシメチル］ビフェニル、及び３－エチル－３｛［（３－エチルオキセタン－３－イル）メトキシ］メチル｝オキセタン等が挙げられる。

[0077] （Ａ）成分の含有量は、接着剤組成物の硬化性を担保する観点から、接着剤組成物の全質量を基準として、１０質量％以上、２０質量％以上、３０質量％以上、又は３５質量％以上であってもよい。（Ａ）成分の含有量は、接着剤組成物の形成性を担保する観点から、接着剤組成物の全質量を基準として、７０質量％以下、６０質量％以下、５０質量％以下、又は４５質量％以下であってもよい。

[0078] （Ａ）成分の含有量は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観をより実現しやすい観点、及び貼り付け性がより優れる観点から、カチオン重合性化合物の全質量を基準として、５０質量％以上、７０質量％以上、８０質量％以上、９０質量％以上、又は９５質量％以上であってもよい。カチオン重合性化合物における（Ａ）成分の含有量は、実質的に１００質量％（カチオン重合性化合物が（Ａ）成分からなる態様）であってもよい。

[0079] （Ａ）成分における（Ａ１）～（Ａ６）成分の合計の含有量は、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観をより実現しやすい観点、及び貼り付け性がより優れる観点から、（Ａ）成分の全質量を基準として、１０質量％以上、２０質量％以上、３０質量％以上、又は４０質量％以上であってもよい。（Ａ）成分における（Ａ１）～（Ａ６）成分の合計の含有量は、（Ａ）成分の全質量を基準として、１００質量％以下、９０質量％以下、８０質量％以下、７０質量％以下、又は６０質量％以下であってもよい。

[0080] （硬化剤）

本実施形態の接着剤組成物は、（Ｂ）成分として、（Ｂ１）オニウム系化合物（以下、（Ｂ１）成分ともいう）を含む。

[0081] （Ｂ１）成分としては、スルホニウム塩、ピリジニウム塩、ホスホニウム塩、アンモニウム塩、ジアゾニウム塩、ヨードニウム塩、アニリニウム塩等のオニウム塩を用いることができる。オニウム塩のアニオンは、BF_4^-、BR_4^-（Ｒは、２以上のフッ素原子又は２以上のトリフルオロメチル基で置換

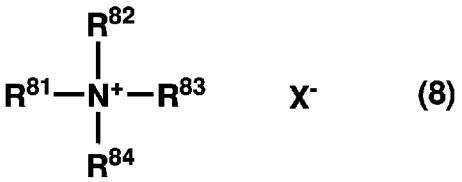
されたフェニル基を示す。）、PF_6^-、SbF_6^-、AsF_6^-等が挙げられる。

[0082] （Ｂ１）成分は、１種を単独で、又は２種以上を組み合わせて用いることができる。

[0083] 低温硬化性の観点から、（Ｂ１）成分は、ピリジニウム塩又はスルホニウム塩であってもよい。

[0084] （Ｂ１）成分は、例えば、下記一般式（８）で表される化合物であってもよい。

[0085] [化12]



[式（８）中、R^{81}、R^{82}、R^{83}及びR^{84}は、各々独立に、水素原子、置換若しくは未置換のアルキル基、置換若しくは未置換のアリール基、置換若しくは未置換のアルケニル基、置換若しくは未置換の複素環基、置換若しくは未置換のアルコキシル基、置換若しくは未置換のアリールオキシ基、又は、置換若しくは未置換の複素環オキシ基を表し、R^{81}、R^{82}、R^{83}及びR^{84}は、互いに結合して環構造を形成していてもよく、X^-は、アニオンを表す。]

[0086] 上記のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｎ－ペンチル基、ｎ－ヘキシル基、ｎ－ヘプチル基、アラルキル基等が挙げられる。アラルキル基としては、ベンジル基、ナフチルメチル基、及びシンナミル基等が挙げられる。これらのアルキル基は、置換基を有していてもよい。

[0087] 上記のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、及びビフェニル基等が挙げられる。これらのアリール基は、置換基を有していてもよい。

[0088] 上記のアルケニル基としては、プロペニル基、２－ブテニル基、２－ペンタニル基、及び２－ヘキサニル基等が挙げられる。上記の複素環基としては、ピリジニル基等が挙げられる。上記のアルコキシル基としては、メトキシ

基、エトキシ基、プロポキシ基、及びブトキシ基等が挙げられる。上記のアリールオキシ基としては、４－フェニルメトキシ基、４－フェニルエトキシ基、及び４－フェニルオキシカルボニルメチル基等が挙げられる。上記の複素環オキシ基としては、４－シクロヘキサンオキシド基等が挙げられる。これらの基は、置換基を有していてもよい。

[0089] 上記のアルキル基、アリール基等の各基における置換基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、ｔ－ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基；フェニル基、ナフチル基等のアリール基；メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等のアルコキシ基；アセトキシ基、プロピオニルオキシ基、デシルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基等のアルコキシカルボニル基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、ベンゾイルオキシ基等のエステル基；フェニルチオ基；フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子；シアノ基；ニトロ基；ヒドロキシ基などが挙げられる。これらの置換基の置換位置は、特に限定されるものではなく、いずれの位置であってもよい。

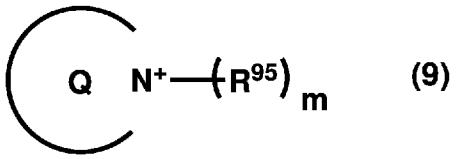
[0090] 式（８）のX^-は、窒素オニウムカチオンの対アニオンを表す。X^-としては、例えば、SbF_6^-、PF_6^-、$B(C_6F_5)_4^-$、$Ga(C_6F_5)_4^-$、$Ga(C_6F_5)_2F_2^-$、$Ga(C_6F_5)F_3^-$、及び$C(CF_3SO_2)_3^-$が挙げられる。アニオンの求核性が低い場合に更に良好な硬化性が得られる観点から、SbF_6^-、$(C_6F_5)_4B^-$、$(CF_3SO_2)_3C^-$であってもよい。

[0091] R^{81}、R^{82}、R^{83}及びR^{84}のいずれか一つ（R^{81}、R^{82}、R^{83}及びR^{84}のうちの一つのみ）は、開始剤の分解温度を低くし、硬化性を更に向上させる観点から、置換若しくは未置換のベンジル基、置換若しくは未置換のナフチルメチル基、又は、置換若しくは未置換のシンナミル基であってもよい。

[0092] R^{81}、R^{82}、R^{83}及びR^{84}は、互いに結合して環構造を形成していてもよく、例えば、R^{81}、R^{82}、R^{83}及びR^{84}のうち隣接する基同士が互いに結合して環構造を形成していてもよい。環構造を有する窒素オニウムカチオンと

しては、例えば、下記一般式（９）で表されるカチオンが挙げられる。環構造Ｑとしては、複素環、芳香環、複素芳香環（ピリジニウム環等）、脂環等が挙げられる。環構造Ｑは、例えば、四員環、五員環、六員環、七員環等の多員環であってもよい。環構造Ｑは、無置換であってもよく、置換基を有していてもよい。置換基としては、例えば、アルキル基、アリール基等の各基について上述した置換基が挙げられる。ｍは１又は２を表す。Ｒ^{95}は、Ｒ^{81}、Ｒ^{82}、Ｒ^{83}及びＲ^{84}と同等の基であってもよい。

[0093] [化13]



(9)

[0094] （Ｂ１）成分は、保存安定性に更に優れる観点から、８０～２５０℃の温度で活性を示す化合物であってもよく、具体的には、アニリニウム塩（アニリニウム塩化合物）及びピリジニウム塩（ピリジニウム塩化合物）からなる群より選択される少なくとも一種であってもよい。

[0095] アニリニウム塩としては、分解温度を低くし、硬化性を更に向上させる観点から、Ｎ－アルキルアニリニウム塩、Ｎ，Ｎ－ジアルキルアニリニウム塩、Ｎ，Ｎ，Ｎ－トリアルキルアニリニウム塩であってもよい。アニリニウム塩の具体例としては、Ｎ－ベンジル－Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウム塩、Ｎ－（４－ニトロベンジル）－Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウム塩、Ｎ－（４－メトキシベンジル）－Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウム塩、Ｎ－（α－フェニルベンジル）－Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウム塩、Ｎ－（α－メチルベンジル）－Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウム塩、Ｎ－（１－ナフチルメチル）－Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウム塩、Ｎ－シンナミル－Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウム塩、置換ベンジルアニリニウムカチオンを有するオニウム塩（例えば、Ｋ－ＰＵＲＥ　ＣＸＣ－１６１２（ＫＩＮＧ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製、対アニオン：SbF_6）、Ｋ－ＰＵＲＥ　ＣＸＣ－１７３８（ＫＩＮＧ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製、対アニオン：PF_6）、Ｋ－ＰＵＲＥ　ＣＸＣ－１

７４０（ＫＩＮＧ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製、対アニオン：SbF_6）、Ｋ－ＰＵＲＥ　ＣＸＣ－１７４１（ＫＩＮＧ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製、対アニオン：SbF_6）、Ｋ－ＰＵＲＥ　ＣＸＣ－１８２１（ＫＩＮＧ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製、対アニオン：$B(C_6F_5)_4$））等が挙げられる。これらの化合物において窒素原子に結合する芳香環は、無置換であってもよく、置換基を有していてもよい。芳香環が置換基を有するアニリニウム塩としては、Ｎ－（１－ナフチルメチル）－Ｎ，Ｎ－ジメチル（４－ブロモフェニル）アニリニウム塩等が挙げられる。

[0096] アニリニウム塩は、分解温度を低くし、硬化性を更に向上させる観点から、Ｎ－ベンジル－Ｎ，Ｎ－ジアルキルアニリニウム塩、及びＮ－ナフチルメチル－Ｎ，Ｎ－ジアルキルアニリニウム塩からなる群より選ばれる少なくとも一種であってもよい。

[0097] ピリジニウム塩としては、１位にベンジル基を有し、且つ、２位に電子求引基を有し、ベンジル基が電子供与基を有するピリジニウム塩（以下、「ピリジニウム塩Ａ」ともいう）を用いることができる。換言すると、ピリジニウム塩Ａは、ピリジン環及びベンゼン環を有し、ピリジン環の窒素原子に対してオルト位に配置された電子求引基を有し、ベンゼン環が電子供与基を有する。

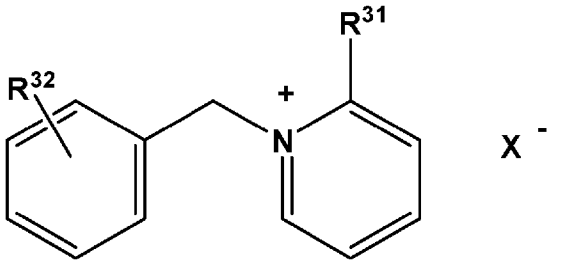
[0098] 本実施形態の接着剤組成物は、（Ｂ）成分としてピリジニウム塩Ａを含有する。接着剤組成物が多官能エポキシ樹脂と共にピリジニウム塩Ａを含有することにより、低温（例えば、１２０℃）から高温（例えば、１５０℃）にかけて実装可能であり、且つ、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観を実現することができる。

[0099] ピリジニウム塩Ａは、ピリジニウムカチオンとアニオンとから構成される化合物であってよい。なお、本明細書において、ピリジニウム塩又はピリジニウムカチオンの１位とは、ピリジニウム塩又はピリジニウムカチオンのピリジン環における窒素原子の位置を意味する。

[0100] ピリジニウム塩Ａは、例えば、下記一般式（４）で表される化合物であっ

てよい。

[化14]



(4)

［式（４）中、R^{31}は、電子求引基を表し、R^{32}は、電子供与基を表し、X^-は、アニオンを表す。］

[0101] ピリジニウム塩Ａが２位に有する電子求引基としては、シアノ基、ハロゲノ基、ニトロ基、カルボニル基、カルボキシ基、スルホ基等が挙げられる。ハロゲノ基としては、フルオロ基、クロロ基、ブロモ基、ヨード基等が挙げられる。電子求引基は、硬化剤の活性を高めて、接着剤組成物をより短時間での硬化させることができる観点から、シアノ基又はハロゲノ基であってよく、シアノ基又はクロロ基であってよい。ピリジニウム塩Ａは、２位に配置された電位求引基以外の電子求引基を含んでよい。ピリジニウム塩Ａが有する電子求引基の数は、３以下、２以下、又は１であってよい。

[0102] ピリジニウム塩Ａの１位に配置されたベンジル基が有する電子供与基としては、アルキル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、アミノ基、アルキルアミノ基等が挙げられる。アルキル基としては、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基等が挙げられる。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。電子求引基は、硬化剤の活性を高めて、接着剤組成物をより短時間で硬化させることができる観点から、アルキル基又はアルコキシ基であってよく、メチル基又はメトキシ基であってよい。ベンゼン環は、複数の電子供与基を含んでよく、ピリジニウム塩Ａの１位に配置されたベンジル基が有する電子供与基の数は、１以上、２以上、又は３以上であってよい。ピリジニウム塩Ａの１位に配置されたベンジル基は、４位（ベンジル基のピリジン環との結合位置を１位としたときの４位。ベン

ジル基のピリジン環との結合位置に対してパラ位）に少なくとも１つの電子供与基を有していてよい。

[0103] ピリジニウム塩Ａの１位に配置されたベンジル基が有する電子供与基の数が３であるとき、３つの電子供与基はいずれもアルキル基であってもよく、いずれもメチル基であってもよい。ピリジニウム塩Ａは、ベンジル基のピリジン環との結合位置を１位としたときに、ベンジル基の２位、４位、及び６位それぞれに電子供与基としてアルキル基を有していてもよい。硬化剤が、ピリジニウム塩Ａの１位に配置されたベンジル基が有する電子供与基の数が３であり、電子供与基がいずれもアルキル基（又はメチル基）であるピリジニウム塩を含むことにより、このような硬化剤を用いた接着剤フィルムは、優れた物性（例えば、弾性率）を有する。そのため、このような硬化剤を用いた接着剤フィルムは、例えば、回路部材に対する優れた密着性と、接着剤フィルムからの基材の優れた剥離性とを両立できる。また、このような硬化剤を用いた接着剤フィルムは、例えば、保存安定性に優れ、一定期間（例えば、４０℃で１５時間）接着剤フィルムを保存した場合であっても、回路部材に対する優れた密着性と、接着剤フィルムからの基材の優れた剥離性とを維持しやすい。その理由としては、ピリジニウム塩Ａの１位に配置されたベンジル基が有する電子供与基の数が３であることにより、低温硬化性を維持しつつ、一定期間（例えば、４０℃で１５時間）保管中の劣化を防ぐ（保存安定性に優れる）バランスのよい構造をとるためであると考えられる。

[0104] ピリジニウム塩Ａのピリジニウムカチオンとしては、２－シアノ－１－（４－メトキシベンジル）ピリジニウムカチオン、２－クロロ－１－（４－メトキシベンジル）ピリジニウムカチオン、２－ブロモ－１－（４－メトキシベンジル）ピリジニウムカチオン、２－シアノ－１－（４－メチルベンジル）ピリジニウムカチオン、２－クロロ－１－（４－メチルベンジル）ピリジニウムカチオン、２－ブロモ－１－（４－メチルベンジル）ピリジニウムカチオン、２－シアノ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウムカチオン、２－クロロ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジ

ニウムカチオン、２－ブロモ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウムカチオン等が挙げられる。ピリジニウム塩Ａのピリジニウムカチオンは、接着剤組成物をより短時間で硬化させることができる観点から、２－シアノ－１－（４－メトキシベンジル）ピリジニウムカチオン、２－クロロ－１－（４－メトキシベンジル）ピリジニウムカチオン、２－シアノ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウムカチオン、及び２－クロロ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウムカチオンからなる群より選ばれる少なくとも一種であってよい。

[0105] ピリジニウム塩Ａのアニオンは、SbF_6^-、PF_6^-、$PF_X(CF_3)_{6-X}^-$（但し、Ｘは１～５の整数）、BF_4^-、$B(C_6F_5)_4^-$、RSO_3^-（但し、Ｒは炭素数１～３のアルキル基、置換又は無置換のアリール基）、$C(SO_2CF_3)_3^-$、$B(C_6H_3(CF_3)_2)_4^-$（但し、CF_3基はフェニル基の３，５位に置換）等が挙げられる。ピリジニウム塩Ａのアニオンは、$B(C_6F_5)_4^-$であってよい。ピリジニウム塩Ａのアニオンは、高温高湿試験（例えば、８５℃、８５％ＲＨ、２５０時間）後であっても、接続抵抗が優れる観点から、$B(C_6F_5)_4^-$であってよい。

[0106] ピリジニウム塩Ａは、上記のピリジニウムカチオンと、上記のアニオンと、を組み合わせた化合物であってよい。すなわち、ピリジニウム塩Ａは、上記のいずれかのピリジニウムカチオンと、上記のいずれかのアニオンと、を少なくとも含んでもよい。ピリジニウム塩Ａは、接着剤組成物をより短時間で硬化させることができる観点から、２－シアノ－１－（４－メトキシベンジル）ピリジニウム・テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、２－クロロ－１－（４－メトキシベンジル）ピリジニウム・テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、２－シアノ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウム・テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、及び２－クロロ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウム・テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートからなる群より選ばれる少なくとも一種であってよい。

[0107] 硬化剤におけるピリジニウム塩Ａの含有量は、硬化剤の全質量を基準として、８０質量％以上、９０質量％以上、又は９５質量％以上であってよく、１００質量％（実質的に硬化剤がピリジニウム塩Ａからなる態様）であってよい。

[0108] 硬化剤は、ピリジニウム塩Ａ以外のピリジニウム塩を含有してもよい。硬化剤におけるピリジニウム塩Ａ以外のピリジニウム塩の含有量は、硬化剤の全質量を基準として、２０質量％以下、１０質量％以下、又は５質量％以下であってよく、０質量％（実質的に硬化剤がピリジニウム塩Ａからなる態様）であってよい。

[0109] ピリジニウム塩Ａを含有する硬化剤は、例えば、２位に電子求引基を有するピリジン化合物、電子供与基を有する塩化ベンジル化合物又は電子供与基を有する臭化ベンジル化合物のうち少なくとも一方、及びアルカリ金属のヨウ化物塩（例えば、ヨウ化ナトリウム）を溶媒（例えば、アセトニトリル）中で反応させて、ピリジン環及びベンゼン環を有するヨウ化ピリジニウムを得る工程と、得られたヨウ化ピリジニウム及びアニオン塩を溶媒（例えば、ジクロロメタン）中で反応させて、ピリジニウム塩Ａを得る工程と、を備える製造方法により得ることができる。

[0110] ２位に電子求引基を有するピリジン化合物は、上記の電子求引基を２位に有するピリジン化合物であってよく、例えば、２－シアノピリジン、２－クロロピリジンが挙げられる。

[0111] 電子供与基を有する塩化ベンジル化合物は、上記の電子供与基を有する塩化ベンジル化合物であってよく、例えば、４－メトキシベンジルクロリド、２，４，６－トリメチルベンジルクロリドが挙げられる。電子供与基を有する臭化ベンジル化合物は、上記の電子供与基を有する臭化ベンジル化合物であってよく、例えば、４－メトキシベンジルブロミド、２，４，６－トリメチルベンジルブロミドが挙げられる。

[0112] アニオン塩は、ピリジニウム塩Ａが有するアニオンを導入することができる化合物であればよく、例えば、上記のピリジニウム塩Ａのアニオンのリチ

ウム塩、ナトリウム塩、カリウム塩、セシウム塩であってよい。

[0113] ヨウ化ピリジニウムを得る工程において、反応は、例えば、室温下（２０～３０℃）で行われてよい。反応時間は、例えば、１０～５０時間又は２０～３０時間であってよい。反応終了後、得られたヨウ化ピリジニウムに対してアセトン、蒸留水等を用いて洗浄、真空乾燥させることで、用いた溶媒を除去してもよい。

[0114] ヨウ化ピリジニウムを得る工程において、ヨウ化ピリジニウムの収率は、４０％以上、５５％以上、７０％以上、又は８０％以上であってよい。ヨウ化ピリジニウムの収率は、ヨウ化ピリジニウムの合成に用いた原料から得ることができるヨウ化ピリジニウムの最大量に対する実際に得られた量の比率とする。

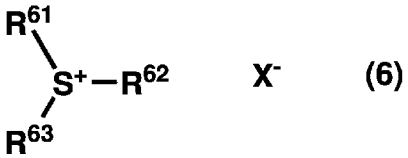
[0115] ピリジニウム塩Ａを得る工程において、反応は、例えば、室温下（２０～３０℃）で行われてよい。反応時間は、例えば、１～１５時間又は１～５時間であってよい。反応終了後、得られたピリジニウム塩Ａに対してアセトン、蒸留水等を用いて洗浄、真空乾燥させることで、用いた溶媒を除去してもよい。

[0116] ピリジニウム塩Ａを得る工程において、ピリジニウム塩Ａの収率は、７０％以上、８０％以上、８５％以上であってよい。ピリジニウム塩Ａの収率は、ピリジニウム塩Ａの合成に用いたヨウ化ピリジニウムから得ることができるピリジニウム塩Ａの最大量に対する実際に得られた量の比率とする。

[0117] ピリジニウム塩Ａが得られたことは、得られた化合物を核磁気共鳴スペクトル（^{1}Ｈ－ＮＭＲ）で測定することにより確認することができる。具体的には、後述の実施例に記載の方法により確認することができる。

[0118] 硬化剤は、例えば、下記一般式（６）で表されるスルホニウム塩を含んでもよい。

[化15]



$$\left[R^{61}-S^{+}(R^{62})-R^{63}\right]\ X^{-} \qquad (6)$$

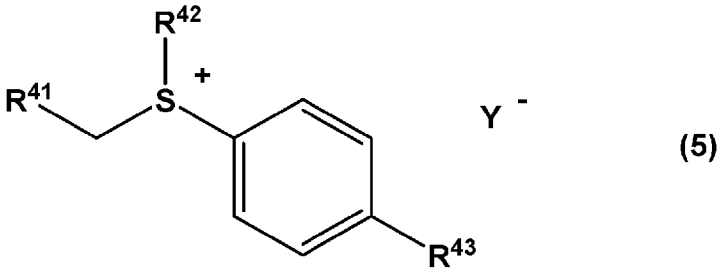
［式（６）中、Ｒ^{61}及びＲ^{62}は、各々独立に、水素原子、炭素数１～２０のアルキル基、又は置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基を含む有機基を示し、Ｒ^{63}は、炭素数１～６のアルキル基を示し、Ｘ$^{-}$は、アニオンを表す。］

[0119] スルホニウム塩は、保存安定性と低温活性の両立の観点から、芳香族スルホニウム塩であってもよい。すなわち、式（６）におけるＲ^{61}、及びＲ^{62}のうちの少なくとも一方が置換若しくは未置換の芳香族炭化水素基を含む有機基であってもよい。

[0120] 式（６）中のＸ$^{-}$は、例えば、ＳｂＦ$_{6}^{-}$、（Ｃ$_{6}$Ｆ$_{5}$）$_{4}$Ｂ$^{-}$、（ＣＦ$_{3}$ＳＯ$_{2}$）$_{3}$Ｃ$^{-}$であってもよい。

[0121] 硬化剤は、例えば、下記一般式（５）で表されるスルホニウム塩を含んでもよい。

[化16]



(5)

［式（５）中、Ｒ^{41}は、フェニル基、１－ナフチル基、２－ナフチル基、又はｏ，ｍ，若しくはｐ位に置換基を有するフェニル基を表し、Ｒ^{42}及びＲ^{43}は電子供与基を表し、Ｙ$^{-}$は、アニオンを表す。］

[0122] 置換基を有するフェニル基の置換基としては、メチル基、シアノ基、ハロゲノ基、ニトロ基、アセチル基、カルボニル基、カルボキシ基、スルホ基等が挙げられる。ハロゲノ基としては、フルオロ基、クロロ基、ブロモ基、ヨード基等が挙げられる。

[0123] 電子供与基としては、例えば、アミノ基、水酸基、メチル基等が挙げられる。

[0124] Ｙ$^{-}$としては、ＳｂＦ$_{6}^{-}$、ＰＦ$_{6}^{-}$、ＰＦ$_{X}$（ＣＦ$_{3}$）$_{6-X}^{-}$（但し、Ｘは１～５の整数）、ＢＦ$_{4}^{-}$、Ｂ（Ｃ$_{6}$Ｆ$_{5}$）$_{4}^{-}$、ＲＳＯ$_{3}^{-}$（但し、Ｒは炭素数１～３

のアルキル基、置換又は無置換のアリール基）、$C(SO_2CF_3)_3^-$、$B(C_6H_3(CF_3)_2)_4^-$（但し、CF_3基はフェニル基の３，５位に置換）等が挙げられる。

[0125] スルホニウム塩は、１－ナフチルメチルメチル－ｐ－ヒドロキシフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート（三新化学工業株式会社製、商品名「ＳＩ－６０」）、４－ヒドロキシ－２－メチルフェニルメチルナフタレン－１－イルメチルスルホニウム塩、３－メチル－２－ブテニルジメチルスルホニウム塩、３－メチル－２－ブテニルテトラメチレンスルホニウム塩、シンナミルジメチルスルホニウム塩、シンナミルテトラメチレンスルホニウム塩などの市販品を用いることができる。

[0126] 接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化反応を充分に促進させる観点から、接着剤組成物の全質量を基準として、１質量％以上、２質量％以上、３質量％以上、４質量％以上、又は５質量％以上であってもよい。接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、接着剤組成物の全質量を基準として、２０質量％以下、１５質量％以下、１０質量％以下、８質量％以下、又は６質量％以下であってもよい。これらの観点から、接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、１～２０質量％であってもよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Ａの含有量は、上記の含有量の範囲内であってもよい。

[0127] 接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化反応を充分に促進させる観点から、導電粒子を除く接着剤組成物の全質量を基準として、１質量％以上、３質量％以上、５質量％以上、又は７質量％以上であってもよい。接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、導電粒子を除く接着剤組成物の全質量を基準として、３０質量％以下、２５質量％以下、２０質量％以下、１５質量％以下、又は１０質量％以下であってもよい。これらの観点から、接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、導電粒子を除く接着剤組成物の全質量を基準として、１～３０質量

％であってもよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Ａの含有量は、上記の含有量の範囲内であってもよい。

[0128] 接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化反応を充分に促進させる観点から、導電粒子及び充填材を除く接着剤組成物の全質量を基準として、１質量％以上、３質量％以上、５質量％以上、又は７質量％以上であってもよい。接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、導電粒子及び充填材を除く接着剤組成物の全質量を基準として、３０質量％以下、２５質量％以下、２０質量％以下、１５質量％以下、又は１０質量％以下であってもよい。これらの観点から、接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、導電粒子及び充填材を除く接着剤組成物の全質量を基準として、１～３０質量％であってもよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Ａの含有量は、上記の含有量の範囲内であってもよい。

[0129] 接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化反応を充分に促進させる観点から、（Ａ）成分１００質量部を基準として、１質量部以上、５質量部以上、８質量部以上、１０質量部以上、又は１２質量部以上であってもよい。接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、（Ａ）成分１００質量部を基準として、４０質量部以下、３０質量部以下、２０質量部以下、１８質量部以下、又は１６質量部以下であってもよい。これらの観点から、接着剤組成物における（Ｂ）成分の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、１～４０質量部であってもよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Ａの含有量は、上記の含有量の範囲内であってもよい。

[0130] （フィルム形成成分）

本実施形態の接着剤組成物は、熱可塑性樹脂（（Ｃ）成分）を含有してもよい。接着剤組成物は、熱可塑性樹脂を含有することで、フィルム状に形成しやすくなる。熱可塑性樹脂としては、フェノキシ樹脂、エポキシ樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステルウレタン樹脂、アクリルゴム等が挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよ

く、二種以上を組み合わせて用いてもよい。エポキシ樹脂のエポキシ当量が４００ｇ／ｅｑ以上であれば、熱可塑性樹脂として扱うものとする。

[0131] 熱可塑性樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）は、例えば、５０００以上、１００００以上、２００００以上、又は４００００以上であってよく、２０００００以下、１０００００以下、８００００以下、又は６００００以下であってよい。熱可塑性樹脂の重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）で測定し、標準ポリスチレンによる検量線を用いて換算した値とする。

[0132] 熱可塑性樹脂の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、５質量％以上、１０質量％以上、又は１５質量％以上であってよい。熱可塑性樹脂の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、５０質量％以下、３５質量％以下、２０質量％以下、又は１０質量％以下であってよい。

[0133] 熱可塑性樹脂の含有量は、カチオン重合性化合物１００質量部を基準として、１０質量部以上、３０質量部以上、５０質量部以上、又は６０質量部以上であってよい。熱可塑性樹脂の含有量は、カチオン重合性化合物１００質量部を基準として、１２０質量部以下、９０質量部以下、６０質量部以下、４０質量部以下、又は２０質量部以下であってよい。

[0134] 接着剤組成物は、導電粒子を含有していてもよい。導電粒子としては、導電性を有する粒子であれば特に制限されず、金、銀、パラジウム、ニッケル、銅、はんだ等の金属で構成された金属粒子；導電性カーボンで構成された導電性カーボン粒子；非導電性のガラス、セラミック、プラスチック（ポリスチレン等）などを含む核と、上記の金属又は導電性カーボンを含み、核を被覆する被覆層と、を備える被覆導電粒子などが挙げられる。導電粒子は、加熱及び／又は加圧することにより変形させることが容易であり、電極同士を電気的に接続する際に、電極と導電粒子との接触面積を増加させて、電極間の導電性をより向上させることができる観点から、被覆導電粒子であってよい。

[0135] 導電粒子の平均粒子径は、分散性及び導電性に優れる観点から、１μｍ以

上、２μｍ以上、又は２．５μｍ以上であってよい。導電粒子の平均粒子径は、隣り合う電極間の絶縁性を確保する観点から、２０μｍ以下、１５μｍ以下、１０μｍ以下、８μｍ以下、６μｍ以下、５．５μｍ以下、又は５μｍ以下であってよい。これらの観点から、導電粒子の平均粒子径は、１～２０μｍ、１～１５μｍ、１～１０μｍ、１～８μｍ、又は１～６μｍであってよい。

[0136] 導電粒子の平均粒子径は、接着剤組成物が含有する導電粒子３００個について、走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）を用いて観察して、各導電粒子の粒子径を測定し、導電粒子３００個の粒子径の平均値とする。なお、導電粒子が球形ではない場合、導電粒子の粒子径は、ＳＥＭを用いた観察画像における導電粒子に外接する円の直径とする。

[0137] 接着剤組成物における導電粒子の粒子密度は、安定した接続抵抗が得られる観点から、１００個／ｍｍ^{2}以上、１０００個／ｍｍ^{2}以上、又は３０００個／ｍｍ^{2}以上であってよい。接着剤組成物における導電粒子の粒子密度は、隣り合う電極間の絶縁性を確保する観点から、１００００個／ｍｍ^{2}以下、５００００個／ｍｍ^{2}以下、又は３００００個／ｍｍ^{2}以下であってよい。これらの観点から、接着剤組成物における導電粒子の粒子密度は、１００～１００００個／ｍｍ^2、１０００～５００００個／ｍｍ^2、又は３０００～３００００個／ｍｍ^{2}であってよい。

[0138] 導電粒子の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、１０質量％以上、２０質量％以上、又は２５質量％以上であってよい。導電粒子の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、５０質量％以下、４０質量％以下、又は３５質量％以下であってよい。

[0139] 導電粒子の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、１０質量部以上、３０質量部以上、５０質量部以上、又は７０質量部以上であってもよい。導電粒子の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、２００質量部以下、１５０質量部以下、１２０質量部以下、又は１００質量部以下であってもよい。

[0140] 接着剤組成物は、カップリング剤を更に含有してよい。接着剤組成物は、カップリング剤を含有することで、接着性をより向上させることができる。カップリング剤は、シランカップリング剤であってよく、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－（メタ）アクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－（メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－（メタ）アクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－（メタ）アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルメチルジメトキシシラン、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－ウレイドプロピルトリエトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、及び、これらの縮合物が挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0141] カップリング剤の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、０．５質量％以上、１質量％以上、又は２質量％以上であってよい。カップリング剤の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、１５質量％以下、１０質量％以下、又は５質量％以下であってよい。

[0142] カップリング剤の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、１質量部以上、３質量部以上、又は５質量部以上であってもよい。カップリング剤の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、３０質量部以下、２０質量部以下、１０質量部以下、又は８質量部以下であってもよい。

[0143] 接着剤組成物は、充填材を更に含有してよい。接着剤組成物は、充填材を含有することで、接続信頼性をより向上させることができる。充填材としては、非導電性のフィラー（例えば、非導電粒子）が挙げられる。充填材は、無機フィラー及び有機フィラーのいずれであってもよい。

[0144] 無機フィラーとしては、シリカ粒子、アルミナ粒子、シリカ－アルミナ粒子、チタニア粒子、ジルコニア粒子等の金属酸化物粒子；金属窒化物粒子な

どが挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0145] 有機フィラーとしては、例えば、シリコーン粒子、メタアクリレート・ブタジエン・スチレン粒子、アクリル・シリコーン粒子、ポリアミド粒子、ポリイミド粒子等が挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0146] 充填材は、フィルム成形性及び接続構造体の信頼性を向上させる観点から、無機フィラーであってよく、シリカ粒子であってよい。シリカ粒子は、結晶性シリカ粒子又は非結晶性シリカ粒子であってよく、これらのシリカ粒子は合成品であってもよい。シリカの合成方法は、乾式法又は湿式法であってよい。シリカ粒子は、ヒュームドシリカ粒子及びゾルゲルシリカ粒子からなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでもよい。

[0147] シリカ粒子は、接着剤成分中での分散性に優れる観点から、表面処理されたシリカ粒子であってよい。表面処理されたシリカ粒子は、例えば、シリカ粒子の表面の水酸基をシラン化合物又はシランカップリング剤により疎水化したものである。表面処理されたシリカ粒子は、例えば、アルコキシシラン化合物、ジシラザン化合物、シロキサン化合物等のシラン化合物により表面処理されたシリカ粒子であってよく、シランカップリング剤により表面処理されたシリカ粒子であってよい。

[0148] アルコキシシラン化合物としては、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ジメトキシジフェニルシラン、テトラエトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ｎ－プロピルトリメトキシシラン、ｎ－プロピルトリエトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、ヘキシルトリエトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、１，６－ビス（トリメトキシシリル）ヘキサン、３，３，３－トリフルオロプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

[0149] ジシラザン化合物としては、１，１，１，３，３，３－ヘキサメチルジシ

ラザン、１，３－ジフェニルテトラメチルジシラザン、１，３－ビス（３，３，３，－トリフルオロプロピル）－１，１，３，３，－テトラメチルジシラザン、１，３－ジビニル－１，１，３，３－テトラメチルジシラザン等が挙げられる。

[0150] シロキサン化合物としては、テトラデカメチルシクロヘプタシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ヘキサフェニルシクロシロキサン、オクタデカメチルシクロノナシロキサン、ヘキサデカメチルシクロオクタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、オクタフェニルシクロテトラシロキサン、ヘキサメチルシクロトリシロキサン、ヘプタフェニルヂシロキサン、テトラデカメチルヘキサシロキサン、ドデカメチルペンタシロキサン、ヘキサメチルジシロキサン、デカメチルテトラシロキサン、ヘキサメトキシジシロキサン、オクタメチルトリシロキサン、オクタメチルシクロテトラシロキサン、１，３－ビニルテトラメチルジシロキサン、２，４，６－トリメチル－２，４，６－トリビニルシクロトリシロキサン、１，３－ジメトキシ－１，１，３，３－テトラフェニルジシロキサン、１，１，３，３－テトラメチル－１，３－ジフェニルジシロキサン、１，３－ジメチル－１，３－ジフェニル－１，３－ジビニルジシロキサン、２，４，６，８－テトラメチル－２，４，６，８－テトラビニルシクロテトラシロキサン、１，１，１，３，５，５，５，－ヘプタメチル－３－（３－グリシドイロキシプロピル）トリシロキサン、１，３，５－トリス（３，３，３－トリフルオロプロピル）－１，３，５－トリメチルシクロトリシロキサン、１，１，１，３，５，５，５，－ヘプタメチル－３－［（トリメチルシリル）オキシ］トリシロキサン、１，３，－ビス［２－（７－オキサビシクロ［４．１．０］ヘプタン－３－イル）エチル］－１，１，３，３，－テトラメチルジシロキサン、１，１，１，５，５，５－ヘキサメチル－３－［（トリメチルシリル）オキシ］－３－ビニルトリシロキサン、３－［［ジメチル（ビニル）シリル］オキシ］－１，１，５，５，－テトラメチル－３－フェニル－１，５－ビニルトリシロキサン、オクタビニルオクタシルセスキオキサン、オクタフェニル

オクタシラシルセスキオキサン等が挙げられる。

[0151] シランカップリング剤としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、３－グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、ｐ－スチリルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルメチルジメトキシシラン、Ｎ－２－（アミノエチル）－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリメトキシシラン、３－アミノプロピルトリエトキシシラン、３－トリエトキシシリル－Ｎ－（１，３－ジメチル-ブチリデン）プロピルアミン、Ｎ－フェニル－３－アミノプロピルトリメトキシシラン、トリス－（トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレート、３－ウレイドプロピルトリアルコキシシラン、３－メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、３－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、３－イソシアネートプロピルトリエトキシシラン、３－トリメトキシシリルプロピルコハク酸無水物等が挙げられる。

[0152] シラン化合物又はシランカップリング剤により表面処理されたシリカ粒子は、シリカ粒子表面の水酸性基残基を更に疎水化するために、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、トリメトキシフェニルシラン等のシラン化合物などを用いて表面処理し、更に疎水化させてもよい。

[0153] 表面処理されたシリカ粒子は、接着剤組成物を回路接続用接着剤フィルムとして用いた際に、回路接続用接着剤フィルムを圧着するときに、流動性を制御しやすい観点、圧着後の接続構造体の機械的物性及び耐水性を向上させ

る観点から、シリカとトリメトキシオクチルシランとの反応生成物（加水分解生成物）、シリカとジメチルシロキサンとの反応生成物、二酸化ケイ素又はシリカとジクロロ（ジメチル）シランとの反応生成物、シリカとビス（トリメチルシリル）アミンの反応生成物（加水分解生成物）、及びシリカとヘキサメチルジシラザンの反応生成物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでよく、シリカとトリメトキシオクチルシランとの反応生成物、及び、シリカとビス（トリメチルシリル）アミンの反応生成物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでもよい。

[0154] 充填材の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、１質量％以上、３質量％以上、又は５質量％以上であってよい。充填材の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、５０質量％以下、４０質量％以下、又は３５質量％以下であってよい。

[0155] 充填材の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、１質量部以上、５質量部以上、又は１０質量部以上であってもよい。充填材の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、２００質量部以下、１５０質量部以下、又は１００質量部以下であってもよい。

[0156] 接着剤組成物は、上記の成分以外の他の成分を更に含有してよい。他の成分としては、安定化剤、着色剤、酸化防止剤、ピリジニウム塩Ａを含有する硬化剤以外の硬化剤等を含有してよい。接着剤組成物は、ラジカル重合性化合物と、ラジカル重合開始剤とを更に含有してよい。

[0157] ラジカル重合性化合物としては、アクリル系化合物が挙げられる。アクリル系化合物としては、例えば、（メタ）アクリル酸化合物、（メタ）アクリレート化合物、及びこれらのイミド化合物が挙げられる。これらはモノマー、オリゴマーいずれの状態で用いてもよく、モノマーとオリゴマーとを併用してもよい。ラジカル重合性化合物は一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0158] アクリル系化合物としては、例えば、メチルアクリレート、エチルアクリレート、イソプロピルアクリレート、イソブチルアクリレート等のアルキル

（メタ）アクリレート化合物；エチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、テトラメチロールメタンテトラアクリレート等のポリオールポリ（メタ）アクリレート化合物；２－ヒドロキシ－１，３－ジアクリロキシプロパン、２，２－ビス［４－（アクリロキシメトキシ）フェニル］プロパン、２，２－ビス［４－（アクリロキシポリエトキシ）フェニル］プロパン等のアリールオキシ－ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート化合物；ジシクロペンテニルアクリレート、トリシクロデカニルアクリレート、及びトリス（アクリロイロキシエチル）イソシアヌレートなどが挙げられる。

[0159] ラジカル重合開始剤は、光又は熱により遊離ラジカルを発生するものであってもよい。ラジカル重合開始剤としては、有機過酸化物、及びアゾ系化合物等が挙げられる。有機過酸化物としては、パーオキシエステル、ジアルキルパーオキサイド、ジアシルパーオキサイド、パーオキシジカーボネート、パーオキシケタール、ハイドロパーオキサイド、及びシリルパーオキサイド等が挙げられる。ラジカル重合開始剤は一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0160] パーオキシエステルとしては、クミルパーオキシネオデカノエート、１，１，３，３－テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、１－シクロヘキシル－１－メチルエチルパーオキシネオデカノエート、ｔ－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－エチルヘキサノネート、２，５－ジメチル－２，５－ジ（２－エチルヘキサノイルパーオキシ）ヘキサン、１－シクロヘキシル－１－メチルエチルパーオキシ－２－エチルヘキサノネート、Ｌ－ヘキシルパーオキシ－２－エチルヘキサノネート、Ｌ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノネート、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ネート、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）ヘキサン、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、及びｔ－ブチルパーオキシアセテート等が挙げられる。

[0161] ジアルキルパーオキサイドとしては、α，α’－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－ブチルパーオキシ）ヘキサン、ｔ－ブチルクミルパーオキサイド等が挙げられる。ハイドロパーオキサイドとしては、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド、及びクメンハイドロパーオキサイド等が挙げられる。

[0162] ジアシルパーオキサイドとしては、イソブチルパーオキサイド、２，４－ジクロロベンゾイルパーオキサイド、３，５，５－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、及びベンゾイルパーオキサイド等が挙げられる。

[0163] パーオキシジカーボネートとしては、ジ－ｎ－ブ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、及びジ（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。

[0164] パーオキシケタールの具体例としては、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）シクロヘキサン、１，１－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）－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、及び２，２－ビス（ｔ－ブチルパーオキシ）デカン等が挙げられる。

[0165] シリルパーオキサイドの具体例としては、ｔ－ブチルトリメチルシリルパ

ーオキサイド、ビス（ｔ－ブチル）ジメチルシリルパーオキサイド、ｔ－ブチルトリビニルシリルパーオキサイド、ビス（ｔ－ブチル）ジビニルシリルパーオキサイド、トリス（ｔ－ブチル）ビニルシリルパーオキサイド、ｔ－ブチルトリアリルシリルパーオキサイド、ビス（ｔ－ブチル）ジアリルシリルパーオキサイド、及びトリス（ｔ－ブチル）アリルシリルパーオキサイド等が挙げられる。

[0166] ＜回路接続用接着剤フィルム＞

本実施形態の回路接続用接着剤フィルムは、上述した本実施形態の接着剤組成物により形成された領域を有する。領域は、フィルム状であってもよく、層であってもよい。すなわち、本開示の他の一実施形態は、（Ａ）成分と、（Ｂ）成分と、を含有し、（Ａ）成分として多官能エポキシ樹脂を含有する、回路接続用接着剤フィルムである。回路接続用接着剤フィルムは、導電粒子を含有していてもよい。

[0167] 本実施形態の接着剤組成物が導電粒子を含む場合、回路接続用接着剤フィルムにおける導電粒子の粒子密度は、安定した接続抵抗が得られる観点から、１００個／ｍｍ^{2}以上、１０００個／ｍｍ^{2}以上、又は３０００個／ｍｍ^{2}以上であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおける導電粒子の粒子密度は、隣り合う電極間の絶縁性を確保する観点から、１００００００個／ｍｍ^{2}以下、５００００個／ｍｍ^{2}以下、又は３００００個／ｍｍ^{2}以下であってよい。これらの観点から、回路接続用接着剤フィルムにおける導電粒子の粒子密度は、１００～１００００００個／ｍｍ^2、１０００～５００００個／ｍｍ^2、又は３０００～３００００個／ｍｍ^{2}であってよい。

[0168] 導電粒子の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１０質量％以上、２０質量％以上、又は２５質量％以上であってよい。導電粒子の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、５０質量％以下、４０質量％以下、又は３５質量％以下であってよい。

[0169] 導電粒子の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、１０質量部以上、３０質量部以上、５０質量部以上、又は７０質量部以上であってもよ

い。導電粒子の含有量は、（Ａ）成分１００質量部を基準として、２００質量部以下、１５０質量部以下、１２０質量部以下、又は１００質量部以下であってもよい。

[0170] 回路接続用接着剤フィルムにおける（Ａ）成分の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの硬化性を担保する観点から、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１０質量％以上、２０質量％以上、２５質量％以上、又は３０質量％以上であってもよい。回路接続用接着剤フィルムにおける（Ａ）成分の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの形成性を担保する観点から、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、６０質量％以下、５０質量％以下、４５質量％以下、又は４０質量％以下であってもよい。これらの観点から、回路接続用接着剤フィルムにおける（Ａ）成分の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１０～６０質量％であってもよい。

[0171] 回路接続用接着剤フィルムにおける多官能エポキシ樹脂の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの硬化性を担保する観点から、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、５質量％以上、１０質量％以上、１２質量％以上、又は１５質量％以上であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおける多官能エポキシ樹脂の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの形成性を担保する観点から、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、５０質量％以下、４０質量％以下、３５質量％以下、又は３０質量％以下であってよい。これらの観点から、回路接続用接着剤フィルムにおける多官能エポキシ樹脂の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、５～５０質量％、又は１０～５０質量％であってよい。

[0172] 回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、硬化反応を充分に促進させる観点から、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１質量％以上、２質量％以上、３質量％以上、４質量％以上、又は５質量％以上であってもよい。回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、回路接続用接着剤フィルムの

全質量を基準として、２０質量％以下、１５質量％以下、１０質量％以下、８質量％以下、又は６質量％以下であってもよい。これらの観点から、回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１～２０質量％であってもよい。

[0173] 回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、硬化反応を充分に促進させる観点から、導電粒子を除く回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１質量％以上、３質量％以上、５質量％以上、又は７質量％以上であってもよい。回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、導電粒子を除く回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、３０質量％以下、２５質量％以下、２０質量％以下、１５質量％以下、又は１０質量％以下であってもよい。これらの観点から、回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、導電粒子を除く回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１～３０質量％であってもよい。

[0174] 回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、硬化反応を充分に促進させる観点から、導電粒子及び充填材を除く回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１質量％以上、３質量％以上、５質量％以上、又は７質量％以上であってもよい。回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、導電粒子及び充填材を除く回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、３０質量％以下、２５質量％以下、２０質量％以下、１５質量％以下、又は１０質量％以下であってもよい。これらの観点から、回路接続用接着剤フィルムにおける（Ｂ）成分の含有量は、導電粒子及び充填材を除く回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１～３０質量％であってもよい。

[0175] 回路接続用接着剤フィルムにおける熱可塑性樹脂の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、５質量％以上、１０質量％以上、又は１５質量％以上であってもよい。回路接続用接着剤フィルムにおける熱可塑性樹脂の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、４

０質量％以下、３０質量％以下、又は２０質量％以下であってもよい。

[0176] 回路接続用接着剤フィルムにおけるカップリング剤の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、０．５質量％以上、１質量％以上、又は１．５質量％以上であってもよい。回路接続用接着剤フィルムにおけるカップリング剤の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１０質量％以下、５質量％以下、又は３質量％以下であってもよい。

[0177] 回路接続用接着剤フィルムにおける充填材の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、１質量％以上、３質量％以上、又は５質量％以上であってもよい。回路接続用接着剤フィルムにおける充填材の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、５０質量％以下、４０質量％以下、又は３５質量％以下であってもよい。

[0178] 回路接続用接着剤フィルムにおける各成分の（Ａ）成分１００質量部を基準とした含有量は、上記の接着剤組成物における各成分の（Ａ）成分１００質量部を基準とした含有量と同じ範囲内であってもよい。

[0179] 回路接続用接着剤フィルムは、単層であってもよく、複数の層が積層された多層構造を有するものであってもよい。回路接続用接着剤フィルムが多層構造を有する場合、回路接続用接着剤フィルムは、例えば、（Ａ）成分と、（Ｂ）成分と、を含有する第一の接着剤層、及び第一の接着剤層以外の第二の接着剤層を備えてよい。すなわち、回路接続用接着剤フィルムは、第一の接着剤層と、第一の接着剤層上に積層された第二の接着剤層と、を備えていてもよい。第一の接着剤層及び第二の接着剤層の少なくとも一方は、（Ａ）成分と、（Ｂ）成分と、導電粒子と、を含有してもよい。回路接続用接着剤フィルムが多層構造を有する場合、各層における上記の各成分の含有量は、各層の全質量を基準として、上記の含有量の範囲内であってもよい。

[0180] 回路接続用接着剤フィルムは、成分の種類、含有量等が異なる複数の領域を有するものであってもよい。回路接続用接着剤フィルムは、例えば、第一の領域と、第一の領域上に配置された第二の領域とを備えていてもよく、第一の領域が（Ａ）成分と、（Ｂ）成分と、を含有する領域であってもよい。

すなわち、回路接続用接着剤フィルムには、（Ａ）成分と、（Ｂ）成分と、を含有する第一の接着剤組成物から形成される領域である第一の領域と、第一の領域上に配置された第二の接着剤組成物から形成される領域である第二の領域と、が存在してもよい。回路接続用接着剤フィルムが複数の領域を有する場合、各領域における上記の各成分の含有量は、各領域の全質量を基準として、上記の含有量の範囲内であってもよい。

[0181] 回路接続用接着剤フィルムは、基材（例えばＰＥＴフィルム）等の上に設けられていてもよい。基材付きの回路接続用接着剤フィルムは、例えば、導電粒子を含有する接着剤組成物を、ナイフコーター、ロールコーター、アプリケーター、コンマコーター、ダイコーター等を用いて基材上に塗布して作製することができる。

[0182] 図１は、一実施形態に係る回路接続用接着剤フィルムを示す模式断面図である。図１に示すように、回路接続用接着剤フィルム１は、一実施形態において、接着剤成分２と、接着剤成分２中に分散された導電粒子３とからなる単層で構成されている。一実施形態において、接着剤成分２は、上述した（Ａ）成分及び（Ｂ）成分を少なくとも含有する。回路接続用接着剤フィルム１は、未硬化の状態であってよく、一部が硬化している状態であってもよい。

[0183] 回路接続用接着剤フィルム１の厚さは、例えば、３μｍ以上又は１０μｍ以上であってよく、３０μｍ以下又は２０μｍ以下であってよい。

[0184] 一実施形態において、回路接続用接着剤フィルムは、第１の接着剤成分を含む第１の領域と、該第１の領域に隣接して設けられた、第２の接着剤成分を含む第２の領域と、を備え、第１の領域及び第２の領域のうちの一方又は両方が、上述した本実施形態の接着剤組成物により形成されていてもよい。第１の領域及び第２の領域はそれぞれ、層であってもよい。

[0185] 一実施形態において、回路接続用接着剤フィルムは二以上の層を有する多層構造であってもよく、例えば、図２に示すように、回路接続用接着剤フィルム１は、導電粒子３Ａを含む層（接着剤成分２Ａと、接着剤成分２Ａ中に

分散された導電粒子３Ａとからなる第一の接着剤層）１Ａと、導電粒子を含まない層（接着剤成分２Ｂからなる第二の接着剤層）１Ｂとを備える二層構造であってよい。この場合、第一の接着剤層１Ａは、上述した（Ａ）成分及び（Ｂ）成分と、導電粒子と、を少なくとも含有する接着剤組成物（第一の接着剤組成物）からなる層であってよい。第二の接着剤層１Ｂは、上述した（Ａ）成分及び（Ｂ）成分を少なくとも含有する接着剤組成物（第二の接着剤組成物）からなる層であってよい。第二の接着剤層１Ｂが含有する各成分の種類、含有量等は、第一の接着剤層１Ａと同じであってよく、異なっていてもよい。回路接続用接着剤フィルム１の第一の接着剤層１Ａ及び第二の接着剤層１Ｂは、それぞれ未硬化の状態であってよく、一部が硬化している状態であってもよい。

[0186] 第一の接着剤層１Ａの厚さは、例えば、１μｍ以上又は３μｍ以上であってよく、１５μｍ以下又は１０μｍ以下であってよい。第二の接着剤層１Ｂの厚さは、例えば、１μｍ以上又は３μｍ以上であってよく、２０μｍ以下又は１５μｍ以下であってよい。第一の接着剤層１Ａの厚さは、第二の接着剤層１Ｂの厚さと同じであってよく、異なっていてもよい。第一の接着剤層１Ａの厚さと第二の接着剤層１Ｂの厚さとの比（第一の接着剤層１Ａの厚さ／第二の接着剤層１Ｂの厚さ）は、０．１以上又は０．３以上であってよく、１．５以下又は０．５以下であってよい。

[0187] 上記の回路接続用接着剤フィルムは、異方導電性接着剤フィルム（異方導電フィルム）であってもよく、異方導電性を有しない導電性接着剤フィルムであってもよい。

[0188] ＜接続構造体＞

本開示の他の実施形態は、第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材と、第一の回路部材及び第二の回路部材の間に配置され、第一の電極及び第二の電極を互いに電気的に接続する接続部と、を備え、接続部が、上記の回路接続用接着剤フィルムの硬化物を含む、接続構造体である。

[0189] 図３は、接続構造体の一実施形態を示す模式断面図である。図３に示すように、構造体１０は、相互に対向する第一の回路部材４及び第二の回路部材５と、第一の回路部材４及び第二の回路部材５の間において第一の回路部材４及び第二の回路部材５を接続する接続部６と、を備えている。

[0190] 第一の回路部材４は、第一の回路基板４１と、第一の回路基板４１の主面４１ａ上に形成された第一の電極４２とを備えている。第二の回路部材５は、第二の回路基板５１と、第二の回路基板５１の主面５１ａ上に形成された第二の電極５２とを備えている。

[0191] 第一の回路部材４及び第二の回路部材５は、電気的接続を必要とする電極が形成された部材であれば特に制限はない。電極が形成された部材（回路部材等）としては、半導体、ガラス、セラミック等の無機基板；ＴＣＰ、ＦＰＣ、ＣＯＦ等に代表されるポリイミド基板；ポリカーボネート、ポリエステル、ポリエーテルスルホン等のフィルム上に電極を形成した基板；プリント配線板などが用いられ、これらのうちの複数を組み合わせて用いてもよい。

[0192] 接続部６は、回路接続用接着剤フィルム１の硬化物を含み、接着剤成分２の硬化物である絶縁性物質７と、導電粒子３とを含有している。導電粒子３は、対向する第一の電極４２と第二の電極５２との間のみならず、第一の回路基板４１の主面４１ａと第二の回路基板５１の主面５１ａとの間に配置されていてもよい。構造体３０においては、第一の電極４２及び第二の電極５２が、導電粒子３を介して電気的に接続されている。すなわち、導電粒子３が第一の電極４２及び第二の電極５２の双方に接触している。

[0193] 構造体１０においては、上述したように、対向する第一の電極４２と第二の電極５２とが導電粒子３を介して電気的に接続されている。このため、第一の電極４２及び第二の電極５２間の接続抵抗が充分に低減される。したがって、第一の電極４２及び第二の電極５２間の電流の流れを円滑にすることが可能であり、第一の回路部材４及び第二の回路部材５が有する機能を充分に発揮させることができる。

[0194] ＜接続構造体の製造方法＞

本開示の他の実施形態は、第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材との間に、上記の回路接続用接着剤フィルムを介在させ、第一の回路部材及び第二の回路部材を熱圧着して、第一の電極及び第二の電極を互いに電気的に接続する工程を備える、接続構造体の製造方法である。

[0195] 図４は、接続構造体の製造方法の一実施形態を示す模式断面図である。図４（ａ）に示されるように、まず、第一の回路部材４と、回路接続用接着剤フィルム１とを用意する。次に、回路接続用接着剤フィルム１を第一の回路部材４の主面４１ａ上に配置する。回路接続用接着剤フィルム１が基材（図示せず）上に積層されている場合には、当該基材の回路接続用接着剤フィルム１側を第一の回路部材４に向けるようにして、積層体を第一の回路部材４上に配置する。回路接続用接着剤フィルム１が図２に示されるように第一の接着剤層１Ａと第二の接着剤層１Ｂとを有する場合、対向する電極間に捕捉される導電粒子数を向上させる観点から、導電粒子を含む接着剤層（第一の接着剤層１Ａ）側を第一の回路部材４の主面４１ａと接するようにして配置することが好ましい。

[0196] そして、回路接続用接着剤フィルム１を、図４（ａ）の矢印Ａ及びＢ方向に加圧し、回路接続用接着剤フィルム１を第一の回路部材４に仮接続する（図４（ｂ）参照）。このとき、加圧と共に加熱を行ってもよい。

[0197] 続いて、図４（ｃ）に示すように、第一の回路部材４上に配置された回路接続用接着剤フィルム１上に、第二の電極５２側を第一の回路部材４に向けるようにして（すなわち、第一の電極４２と第二の電極５２とが対向配置される状態にして、第一の回路部材４と、第二の回路部材５との間に、回路接続用接着剤フィルム１を介在させて）第二の回路部材５を更に配置する。回路接続用接着剤フィルム１が基材（図示せず）上に積層されている場合には、基材を剥離してから第二の回路部材５を回路接続用接着剤フィルム１上に配置する。

[0198] そして、回路接続用接着剤フィルム１を図４（ｃ）の矢印Ａ及びＢ方向に

熱圧着する。これにより、回路接続用接着剤フィルム１が硬化され、第一の電極４２及び第二の電極５２を互いに電気的に接続する本接続が行われる。その結果、図３に示すような構造体１０が得られる。

[0199] 上記のようにして得られる構造体１０においては、対向する第一の電極４２及び第二の電極５２の双方に導電粒子３を接触させることが可能であり、第一の電極４２及び第二の電極５２間の接続抵抗を充分に低減することができる。

[0200] 回路接続用接着剤フィルム１を加熱しながら加圧することにより、第一の電極４２及び第二の電極５２間の距離を充分に小さくした状態で接着剤成分２が硬化して絶縁性物質７となり、第一の回路部材４と第二の回路部材５とが接続部６を介して強固に接続される。また、構造体１０では、接着強度が充分に高い状態が長期間にわたって持続される。したがって、構造体１０では、第一の電極４２及び第二の電極５２間の距離の経時的変化が充分に抑制され、第一の電極４２及び第二の電極５２間の電気特性の長期信頼性が優れる。

実施例

[0201] 以下、実施例により本開示を具体的に説明する。但し、本開示は下記の実施例のみに限定されるものではない。

[0202] ＜ピリジニウム塩（硬化剤Ｂ１）の合成＞

アセトニトリル１００ｍＬと、スターラーチップと、を３００ｍＬ三角フラスコに入れ、マグネチックスターラー上に設置した。２－シアノピリジン１２．５ｇ（１２０ｍｍｏｌ、東京化成工業株式会社製）、２，４，６－トリメチルベンジルクロリド１６．８ｇ（１００ｍｍｏｌ、東京化成工業株式会社製）、及びヨウ化ナトリウム１７．８ｇ（１１９ｍｍｏｌ、東京化成工業株式会社製）を３００ｍＬ三角フラスコ中のアセトニトリルに加え、室温（２５℃）で２４時間反応させて結晶を得た。得られた結晶をガラスフィルターでろ過し、ガラスフィルター上の結晶をアセトン及び蒸留水により洗浄後、真空乾燥することで、２９．１ｇの２－シアノ－１－（２，４，６－ト

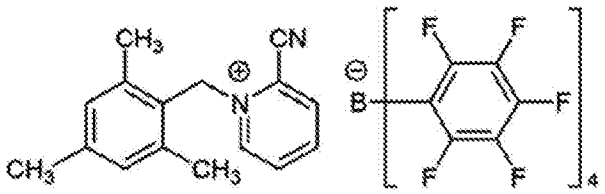
リメチルベンジル）ピリジニウム・ヨーダイド（収率８０％）を得た。

[0203] ジクロロメタン２００ｍＬと、スターラーチップと、を５００ｍＬ三角フラスコに入れ、マグネチックスターラー上に設置した。得られた２－シアノ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウム・ヨーダイド３．６ｇ（１０ｍｍｏｌ）を５００ｍＬ三角フラスコに加えて、５００ｍＬ三角フラスコ中のジクロロメタンに懸濁させた。５００ｍＬ三角フラスコにナトリウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート水溶液（固形分１０％）７２ｇ（１０．２ｍｍｏｌ、日本触媒株式会社製）及び蒸留水５０ｍＬを加えて、室温（２５℃）で３時間撹拌することで、塩交換反応を行った。撹拌後、有機層を蒸留水で洗浄、濃縮し、真空乾燥することで、化合物８．０ｇ（収率８８％）を得た。得られた化合物を硬化剤Ｂ１とした。

[0204] 得られた化合物を核磁気共鳴スペクトル（１Ｈ－ＮＭＲ、日本電子株式会社製、ＪＮＭ－ＥＣＸ４００ＩＩ）で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。^{1}Ｈ－ＮＭＲによる測定から、得られた化合物が下記の構造を有する２－シアノ－１－（２，４，６－トリメチルベンジル）ピリジニウム・テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートであることを確認した。

^{1}Ｈ－ＮＭＲ（４００ＭＨｚ，CD_3OD），δ：２．２６（ｓ，６Ｈ），２．３２（ｓ，３Ｈ），６．１０（ｓ，２Ｈ），７．０８（ｓ，２Ｈ），８．２５（ｔｄ，１Ｈ，Ｊ＝３．２，６．４Ｈｚ）８．４３（ｄ，１Ｈ，Ｊ＝６．４Ｈｚ）８．７７－８．８２（ｍ，２Ｈ）

[0205] [化17]



[0206] ＜フェノキシ樹脂ａ（フィルム形成成分Ｃ１）の合成＞

ジムロート冷却管と、塩化カルシウム管と、撹拌モーターに接続されたテ

フロン（登録商標）攪拌棒と、を装着した３０００ｍＬの３つ口フラスコ中で、４，４’－（９－フルオレニリデン）－ジフェノール４５ｇ（シグマアルドリッチジャパン株式会社製）及び３，３’，５，５’－テトラメチルビフェノールジグリシジルエーテル５０ｇ（商品名：ＹＸ－４０００Ｈ、三菱化学株式会社製）をＮ－メチルピロリドン１０００ｍＬに溶解して反応液とした。この反応液に炭酸カリウム２１ｇを加え、マントルヒーターで１１０℃に加熱しながら３時間攪拌した。攪拌後の反応液を１０００ｍＬのメタノールが入ったビーカーに滴下し、吸引ろ過することによって生成した沈殿物をろ取した。ろ取した沈殿物をさらに３００ｍＬのメタノールで３回洗浄して、フェノキシ樹脂ａを７５ｇ得た。得られたフェノキシ樹脂ａの分子量を高速液体クロマトグラフ（東ソー株式会社製、ＧＰ８０２０、カラム：日立化成工業株式会社製Ｇｅｌｐａｃｋ　ＧＬ－Ａ１５０Ｓ及びＧＬＡ１６０Ｓ、溶離液：テトラヒドロフラン、流速：１．０ｍＬ／分）を用いて測定したところ、ポリスチレン換算でＭｎ＝１５７６９、Ｍｗ＝３８０４５、Ｍｗ／Ｍｎ＝２．４１３であった。

[0207] ＜導電粒子の作製＞

架橋ポリスチレン粒子の表面上に、層の厚さが０．１５μｍとなるようにニッケルからなる層を形成して、平均粒子径３．０μｍの導電粒子を得た。

[0208] ＜回路接続用接着剤フィルムの作製＞

表１に示す配合量（単位：質量部）で各成分を混合し、第一の接着剤層を形成する第一の接着剤組成物、及び第二の接着剤層を形成する第二の接着剤組成物を調製した。なお、表１中の各成分の詳細は以下のとおりであり、表中の各成分の配合量は不揮発分の配合量を表す。

・エポキシ樹脂

Ａ１：ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（商品名：ＹＬ９８０、三菱ケミカル株式会社製）

Ａ２：４官能ナフタレン骨格エポキシ樹脂（商品名：ＨＰ４７００、ＤＩＣ株式会社製）

Ａ６：トリスフェノールメタン型エポキシ樹脂（商品名：ｊＥＲ１０３２Ｈ６０、多官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製）

Ａ７：テトラキスフェノールエタン型エポキシ樹脂（商品名：ｊＥＲ１０３１Ｓ、４官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製）

Ａ８：アラルキル骨格を有するノボラック型エポキシ樹脂（商品名：ＹＸ７７００、３官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製）

Ａ９：ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（商品名：ＢＡＴＧ、４官能エポキシ樹脂、２つのグリシジル基と２つのグリシジルオキシ基を有するエポキシ樹脂、昭和電工株式会社製）

Ａ１０：脂肪族エポキシ樹脂（商品名：ＰＥＴＧ、４官能エポキシ樹脂、昭和電工株式会社製）

Ａ１１：ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂（商品名：ＹＬ９８３Ｕ、２官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製）

・硬化剤

Ｂ１：上記で合成したピリジニウム塩

Ｂ２：１－ナフチルメチルメチル－ｐ－ヒドロキシフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート（商品名：ＳＩ－６０、三新化学工業株式会社製）

・熱可塑性樹脂

Ｃ１：上記で合成したフェノキシ樹脂ａ

Ｃ２：エポキシ樹脂（商品名：ｊＥＲ１０１０、三菱ケミカル株式会社製、エポキシ当量：３０００～５０００ｇ／ｅｑ）

・充填材

Ｄ１：表面処理されたシリカ粒子（シリカとビス(トリメチルシリル）アミンとの加水分解生成物）

Ｄ２：表面処理されたシリカ微粒子（トリメトキシオクチルシランとシリカの加水分解生成物、商品名：アエロジルＲ８０５、Ｅｖｏｎｉｋ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ　ＡＧ社製、有機溶媒で不揮発分の含有量を１０質量％に希

釈したものを使用）

・カップリング剤

Ｅ１：３－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（商品名：ＫＢＭ－４０３、信越化学工業株式会社製）

・導電粒子

Ｆ１：上記で作製した導電粒子

[0209] 基材（ＰＥＴフィルム）の上に第二の接着剤組成物を塗布して、基材上に第二の接着剤層を形成した。さらに、第二の接着剤層の上に第一の接着剤組成物を塗布して、第一の接着剤層を形成して、第一の接着剤層、第二の接着剤層、基材がこの順に積層した回路接続用接着剤フィルムを作製した。各実施例、比較例において、回路接続用接着剤フィルムの第一の接着剤層の厚さは７μｍであり、第二の接着剤層の厚さは７μｍであった。

[0210] ＜接続構造体の作製＞

第一の回路部材として、無アルカリガラス基板（ＯＡ－１１、日本電気硝子株式会社製、外形：３８ｍｍ×２８ｍｍ、厚さ：０．３ｍｍ）の表面に、ＡｌＮｄ（１００ｎｍ）／Ｍｏ（５０ｎｍ）／ＩＴＯ（１００ｎｍ）の配線パターン（パターン幅：１９μｍ、電極間スペース：５μｍ）を形成したものを準備した。第二の回路部材として、バンプ電極を２列で千鳥状に配列したＩＣチップ（外形：０．９ｍｍ×２０．３ｍｍ、厚さ：０．３ｍｍ、バンプ電極の大きさ：７０μｍ×１２μｍ、バンプ電極間スペース：１２μｍ、バンプ電極厚さ：８μｍ）を準備した。

[0211] 各実施例、比較例の各回路接続用接着剤フィルムを用いて接続構造体の作製を行った。まず、回路接続用接着剤フィルムの第一の接着剤層を第一の回路部材上に配置した。セラミックヒータからなるステージとツール（８ｍｍ×５０ｍｍ）とから構成される熱圧着装置（ＬＤ－０６、株式会社大橋製作所製）を用いて、６０℃、０．９８ＭＰａ（１０ｋｇｆ／ｃｍ^2）の条件で１秒間加熱及び加圧して、回路接続用接着剤フィルムを第一の回路部材に貼り付けた。次いで、回路接続用接着剤フィルムの第一の回路部材とは反対側の

基材を剥離し、第一の回路部材のバンプ電極と第二の回路部材の回路電極との位置合わせを行った。次いで、ヒートツール（８ｍｍ×４５ｍｍ）を用いて、緩衝材として厚さ５０μｍのＰＴＦＥシートを介して、９０℃に加熱した台座上にて表２に示す実装温度で５秒間、６０ＭＰａにて加熱及び加圧することで、回路接続用接着剤フィルムの第二の接着剤層を第二の回路部材に貼り付けて、接続構造体を作製した。なお、温度は回路接続用接着剤フィルムの実測最高到達温度とし、圧力は第二の回路部材のバンプ電極が第一の回路部材に対向する面の合計面積に対して算出される値とした。

[0212] ＜外観の評価＞

ＨＡＳＴ試験後の外観を評価した。ＨＡＳＴ試験は、加速寿命試験装置（株式会社平山製作所製、商品名：ＰＣ－２４２ＨＳＲ２、条件：１１０℃／８５％ＲＨ／１５０時間）に設置し、ＨＡＳＴ試験を実施した。外観の評価は、回路接続用接着剤フィルムの剥離面積が接着面の面積に対して１％未満であるものを評価Ａ、１％以上５％未満であるものを評価Ｂ、５％以上５０％未満であるものを評価Ｃ、５０％以上であるものを評価Ｄとして、評価した。評価結果を表２に示す。

[0213]

[表1]

	成分		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	比較例1	比較例2	比較例3
第一の接着剤組成物	エポキシ樹脂	A1	35	35	35	35	35	35	70	35	35
		A2	35	–	–	–	–	–	–	–	–
		A6	–	35	–	–	–	–	–	–	–
		A7	–	–	35	–	–	–	–	–	–
		A8	–	–	–	35	–	–	–	–	–
		A9	–	–	–	–	35	–	–	–	35
		A10	–	–	–	–	–	35	–	–	–
		A11	–	–	–	–	–	–	–	35	–
	硬化剤	B1	10	10	10	10	10	10	10	10	–
		B2	–	–	–	–	–	–	–	–	10
	熱可塑性樹脂	C1	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	充填材	D2	10	10	10	10	10	10	10	10	10
	カップリング剤	E1	4	4	4	4	4	4	4	4	4
	導電粒子	F1	55	55	55	55	55	55	55	55	55
第二の接着剤組成物	エポキシ樹脂	A1	30	30	30	30	30	30	70	30	30
		A2	40	–	–	–	–	–	–	–	–
		A6	–	40	–	–	–	–	–	–	–
		A7	–	–	40	–	–	–	–	–	–
		A8	–	–	–	40	–	–	–	–	–
		A9	–	–	–	–	40	–	–	–	40
		A10	–	–	–	–	–	40	–	–	–
		A11	–	–	–	–	–	–	–	40	–
	硬化剤	B1	10	10	10	10	10	10	10	10	–
		B2	–	–	–	–	–	–	–	–	10
	熱可塑性樹脂	C1	10	10	10	10	10	10	10	10	10
		C2	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	充填材	D1	60	60	60	60	60	60	60	60	60
	カップリング剤	E1	5	5	5	5	5	5	5	5	5

[0214] [表2]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	比較例1	比較例2	比較例3
外観	120℃実装	A	A	A	A	A	A	A	A	D
	150℃実装	A	A	A	B	A	A	D	D	D

[0215] 表２に示されるように、カチオン重合性化合物として、多官能エポキシ樹脂を含み、硬化剤として１位にベンジル基を有し、且つ、２位に電子求引基を有し、ベンジル基が電子供与基を有するピリジニウム塩を含む接着剤組成物は、低温（例えば、１２０℃）から高温（例えば、１５０℃）にかけて実

装可能であり、且つ、低温実装時及び高温実装時のいずれの場合においても、ＨＡＳＴ試験後であっても優れた外観を実現することができることが確認できた。

符号の説明

[0216] １…回路接続用接着剤フィルム、１Ａ…第一の接着剤層、１Ｂ…第二の接着剤層、２，２Ａ，２Ｂ…接着剤成分、３，３Ａ…導電粒子、４…第一の回路部材、５…第二の回路部材、６…接続部、７…絶縁性物質、１０…構造体、４１…第一の回路基板、４２…第一の電極、５１…第二の回路基板、５２…第二の電極。

請求の範囲

[請求項1] （Ａ）エポキシ樹脂と、（Ｂ）硬化剤と、を含有し、

前記（Ａ）成分として、多官能エポキシ樹脂を含み、

前記（Ｂ）成分として、ピリジニウム塩を含有し、

前記ピリジニウム塩が、１位にベンジル基を有し、且つ、２位に電子求引基を有し、

前記ベンジル基が電子供与基を有する、接着剤組成物。

[請求項2] 前記エポキシ樹脂が芳香族系エポキシ樹脂である、請求項１に記載の接着剤組成物。

[請求項3] 導電粒子を更に含有する、請求項１に記載の接着剤組成物。

[請求項4] 請求項１又は２に記載の接着剤組成物により形成された領域を有する、回路接続用接着剤フィルム。

[請求項5] 第１の接着剤成分を含む第１の領域と、該第１の領域に隣接して設けられた、第２の接着剤成分を含む第２の領域と、を備え、

前記第１の領域及び前記第２の領域のうちの一方又は両方が、請求項１又は２に記載の接着剤組成物により形成されている、回路接続用接着剤フィルム。

[請求項6] 第一の電極を有する第一の回路部材と、

第二の電極を有する第二の回路部材と、

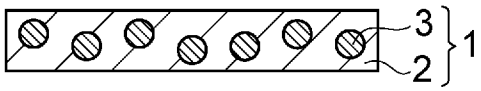
前記第一の回路部材及び前記第二の回路部材の間に配置され、前記第一の電極及び前記第二の電極を互いに電気的に接続する接続部と、を備え、

前記接続部が、請求項３に記載の回路接続用接着剤フィルムの硬化物を含む、接続構造体。

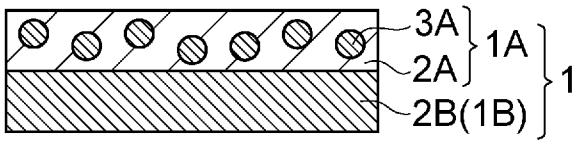
[請求項7] 第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材との間に、請求項３に記載の回路接続用接着剤フィルムを介在させ、前記第一の回路部材及び前記第二の回路部材を熱圧着して、前記第一の電極及び前記第二の電極を互いに電気的に接続する工程を

備える、接続構造体の製造方法。

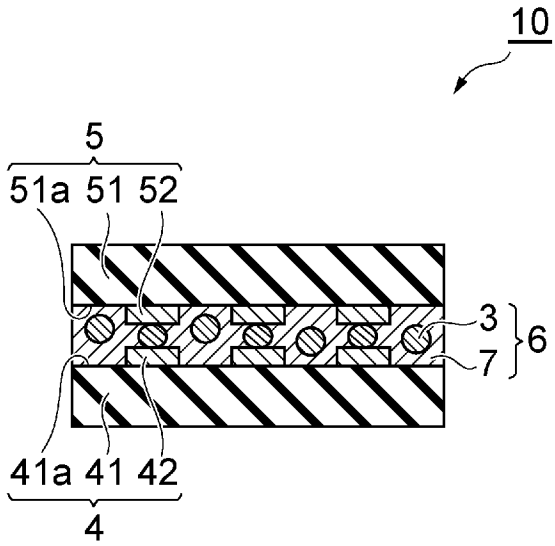
[図1]



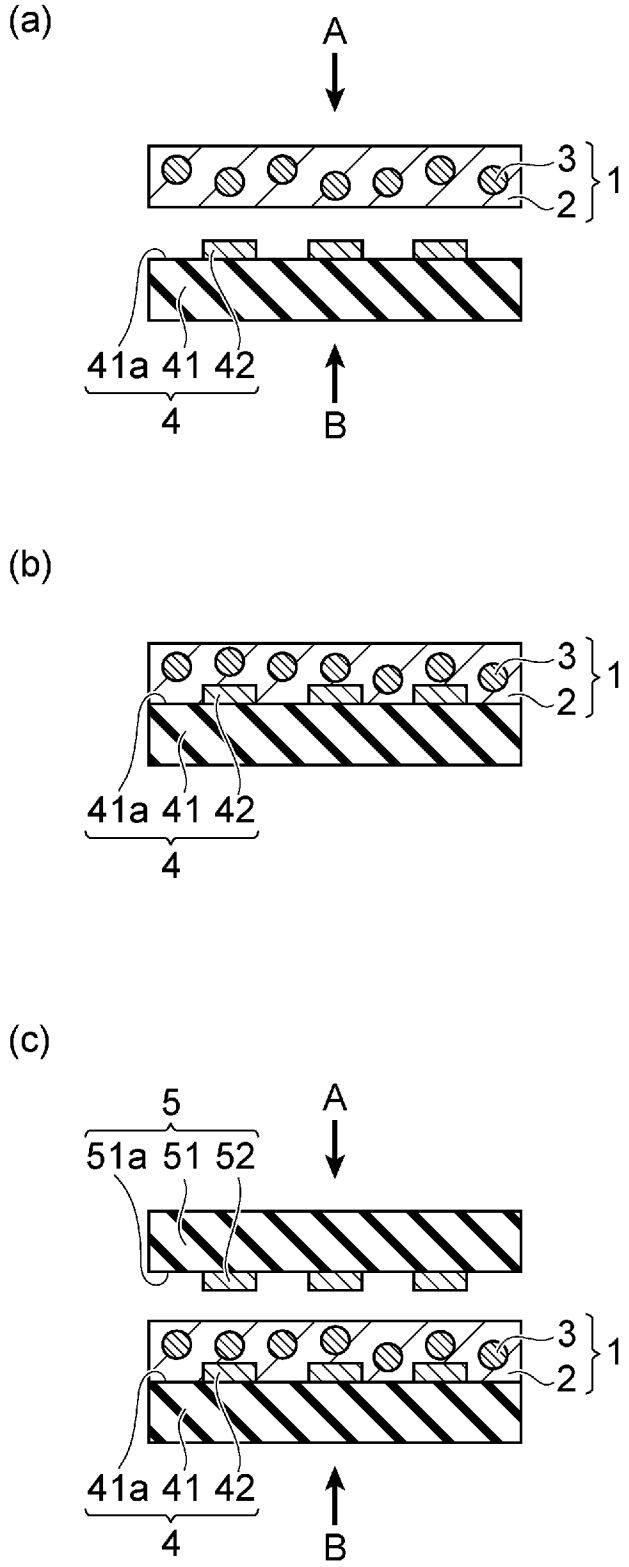
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2023/000533

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09J 9/02(2006.01)i; ***C09J 11/06***(2006.01)i; ***C09J 163/00***(2006.01)i; ***H01B 1/20***(2006.01)i; ***C09J 7/30***(2018.01)i; ***H05K 1/03***(2006.01)i
FI: C09J163/00; C09J11/06; C09J7/30; C09J9/02; H01B1/20 D; H05K1/03 610L

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C09J9/02; C09J11/06; C09J163/00; H01B1/20; C09J7/30; H05K1/03

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 9-194816 A (TOYO INK MFG CO LTD) 29 July 1997 (1997-07-29) entire text, all drawings	1-7
A	JP 5-262813 A (NIPPON SODA CO) 12 October 1993 (1993-10-12) entire text, all drawings	1-7
A	JP 5-5006 A (NIPPON KAYAKU CO LTD) 14 January 1993 (1993-01-14) entire text, all drawings	1-7
A	JP 3-109465 A (DAINIPPON INK & CHEM INC) 09 May 1991 (1991-05-09) entire text, all drawings	1-7
A	JP 1-299803 A (NIPPON PAINT CO LTD) 04 December 1989 (1989-12-04) entire text, all drawings	1-7
P, A	JP 2022-164657 A (SHOWA DENKO MAT CO LTD) 27 October 2022 (2022-10-27) entire text, all drawings	1-7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
15 February 2023	**07 March 2023**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/000533

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 9-194816 A	29 July 1997	(Family: none)	
JP 5-262813 A	12 October 1993	(Family: none)	
JP 5-5006 A	14 January 1993	US 5359017 A entire text, all drawings EP 511405 A1 KR 10-1992-7003649 A	
JP 3-109465 A	09 May 1991	(Family: none)	
JP 1-299803 A	04 December 1989	US 5070161 A entire text, all drawings EP 343690 A2	
JP 2022-164657 A	27 October 2022	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/000533

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C09J 9/02(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; C09J 163/00(2006.01)i; H01B 1/20(2006.01)i; C09J 7/30(2018.01)i; H05K 1/03(2006.01)i
FI: C09J163/00; C09J11/06; C09J7/30; C09J9/02; H01B1/20 D; H05K1/03 610L

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C09J9/02; C09J11/06; C09J163/00; H01B1/20; C09J7/30; H05K1/03

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２３年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 9-194816 A (東洋インキ製造株式会社) 29.07.1997 (1997-07-29) 全文、全図	1-7
A	JP 5-262813 A (日本曹達株式会社) 12.10.1993 (1993-10-12) 全文、全図	1-7
A	JP 5-5006 A (日本化薬株式会社) 14.01.1993 (1993-01-14) 全文、全図	1-7
A	JP 3-109465 A (大日本インキ化学工業株式会社) 09.05.1991 (1991-05-09) 全文、全図	1-7
A	JP 1-299803 A (日本ペイント株式会社) 04.12.1989 (1989-12-04) 全文、全図	1-7
P, A	JP 2022-164657 A (昭和電工マテリアルズ株式会社) 27.10.2022 (2022-10-27) 全文、全図	1-7

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
15.02.2023	07.03.2023

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
福山　駿 4Z 4803

電話番号 03-3581-1101 内線 3480

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2023/000533

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 9-194816 A	29.07.1997	（ファミリーなし）	
JP 5-262813 A	12.10.1993	（ファミリーなし）	
JP 5-5006 A	14.01.1993	US 5359017 A 全文、全図 EP 511405 A1 KR 10-1992-7003649 A	
JP 3-109465 A	09.05.1991	（ファミリーなし）	
JP 1-299803 A	04.12.1989	US 5070161 A 全文、全図 EP 343690 A2	
JP 2022-164657 A	27.10.2022	（ファミリーなし）	