



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2020-0045015
(43) 공개일자 2020년04월29일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09J 201/00 (2006.01) C09J 11/04 (2006.01)
C09J 4/00 (2006.01) C09J 7/20 (2018.01)
H01R 11/01 (2006.01)
(52) CPC특허분류
C09J 201/00 (2013.01)
C09J 11/04 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2020-7011815(분할)
(22) 출원일자(국제) 2013년04월19일
심사청구일자 없음
(62) 원출원 특허 10-2014-7024907
원출원일자(국제) 2013년04월19일
심사청구일자 2018년04월12일
(85) 번역문제출일자 2020년04월23일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2013/061658
(87) 국제공개번호 WO 2013/161713
국제공개일자 2013년10월31일
(30) 우선권주장
JP-P-2012-100207 2012년04월25일 일본(JP)

(71) 출원인
히타치가세이가부시끼가이샤
일본국 도쿄도 치요다쿠 마루노우치 1초메 9반 2
고
(72) 발명자
구도우, 스나오
일본 3088524 이바라키켄 치쿠세이시 고쇼미야
1150반지 히타치가세이가부시끼가이샤 내
마츠다, 가즈야
일본 3088524 이바라키켄 치쿠세이시 고쇼미야
1150반지 히타치가세이가부시끼가이샤 내
후지나와, 도루
일본 3088524 이바라키켄 치쿠세이시 고쇼미야
1150반지 히타치가세이가부시끼가이샤 내
(74) 대리인
장수길, 오현식

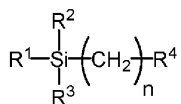
전체 청구항 수 : 총 1 항

(54) 발명의 명칭 회로 접속 재료, 회로 접속 구조체, 접착 필름 및 권중체

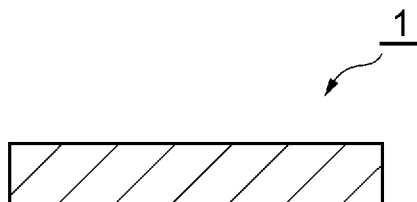
(57) 요약

본 발명은 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료로서, 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제 및 무기 미립자를 함유하고, 라디칼 중합성 화합물의 함유량이 회로 접속 재료의 전량 기준으로 40질량% 이상이고, 라디칼 중합성 화합물 중 분자량 1000 이하의 화합물의 함유량이 회로 접속 재료의 전량 기준으로 15질량% 이하이고, 무기 미립자의 함유량이 회로 접속 재료의 전량 기준으로 5 내지 30질량%이고, 적어도 하기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유하는, 회로 접속 재료에 관한 것이다.

<화학식 1>



대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

C09J 4/00 (2013.01)

C09J 7/20 (2018.01)

H01R 11/01 (2013.01)

Y10S 428/913 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

열 가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제 및 무기 미립자를 함유하는 조성물의, 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료로서의 용도로서,

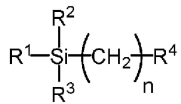
상기 라디칼 중합성 화합물의 함유량이 상기 조성물의 전량 기준으로 40질량% 이상이고,

상기 라디칼 중합성 화합물 중 분자량 1000 이하의 화합물의 함유량이 상기 조성물의 전량 기준으로 15질량% 이하이고,

상기 무기 미립자의 함유량이 상기 조성물의 전량 기준으로 5 내지 30질량%이고,

상기 조성물이 적어도 하기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유하는, 용도.

<화학식 1>



[식 중, R^1 , R^2 및 R^3 은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 1 내지 5의 알킬기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시카르보닐기 또는 아릴기를 나타내며, R^1 , R^2 및 R^3 중 적어도 하나는 탄소수 1 내지 5의 알콕시기이고, R^4 는 (메트)아크릴로일기, 비닐기, 이소시아네이트기, 이미다졸기, 머캅토기, 아미노기, 메틸아미노기, 디메틸아미노기, 벤질아미노기, 페닐아미노기, 시클로헥실아미노기, 모르폴리노기, 피페라지노기, 우레이도기 또는 글리시딜기를 나타내고, n 은 1 내지 10의 정수를 나타냄]

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료, 및 그것을 사용한 회로 접속 구조체, 접착 필름 및 권중체에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 반도체 소자 및 액정 표시 소자에 있어서, 소자 중의 다양한 부재를 결합시키는 목적에서 종래부터 다양한 회로 접속 재료가 사용되고 있다. 회로 접속 재료에 요구되는 특성은, 접착성을 비롯하여, 내열성, 고온고습 상태에서의 신뢰성 등, 다방면에 걸친다.

[0003] 또한, 회로 접속 재료로 접착하는 피착체로서는, 예를 들어, 프린트 배선판, 폴리이미드, 폴리에틸렌테레프탈레이트 및 폴리카르보네이트 등의 유기 기재, 구리 및 알루미늄 등의 금속 기재, 및 IT0, IZO, SiN 및 SiO₂ 등의 무기 기재를 들 수 있고, 다종다양한 표면 상태를 갖는 기체가 사용된다. 그로 인해, 회로 접속 재료는, 각 피착체에 맞춘 분자 설계가 필요하다(예를 들어 특허문헌 1 내지 2).

[0004] 종래부터, 반도체 소자용 또는 액정 표시 소자용의 회로 접속 재료로서는, 고접착성 및 고신뢰성을 나타내는 에폭시 수지를 사용한 열경화성 수지 조성물이 사용되고 있다(예를 들어, 특허문헌 1 참조). 이러한 열경화성 수지 조성물의 구성 성분으로서, 에폭시 수지, 에폭시 수지와 반응성을 갖는 페놀 수지 등의 경화제, 및 에폭시 수지와 경화제의 반응을 촉진하는 열감재성 촉매가 일반적으로 사용되고 있다.

[0005] 상술한 회로 접속 재료는, 실제의 공정에서는, 170 내지 250℃의 온도에서 1 내지 3시간 경화함으로써 원하는 접착을 얻고 있었다. 그러나, 최근의 반도체 소자의 고집적화 및 액정 소자의 고정밀화에 수반하여, 소자 간 및 배선 간 피치가 협소화하여, 경화 시의 가열에 의해 주변 부재에 악영향을 미칠 우려가 나오고 있다.

[0006] 또한, 저비용화를 위해서는, 스루풋을 향상시킬 필요성이 있어, 보다 저온 또한 단시간의 경화, 바꾸어 말하면 저온속경화에서의 접착이 요구되고 있다. 이 저온속경화를 달성하기 위해서는, 활성화 에너지가 낮은 열잠재성 촉매를 사용할 필요가 있어, 실온 부근에서의 저장 안정성을 겸비하는 것이 매우 어렵다.

[0007] 최근 들어, 아크릴레이트 유도체 및/또는 메타크릴레이트 유도체(이후, (메트)아크릴레이트 유도체라고 부름)와 라디칼 중합 개시제인 과산화물을 병용한, 라디칼 경화형 접착제가 주목받고 있다. 라디칼 경화형 접착제는, 반응 활성종인 라디칼이 반응성이 많기 때문에, 단시간 경화가 가능하다(예를 들어, 특허문헌 2 참조).

선행기술문헌

특허문헌

[0008] (특허문헌 0001) 일본 특허 공개 평1-113480호 공보

(특허문헌 0002) 국제 공개98/44067호 팜플릿

발명의 내용

해결하려는 과제

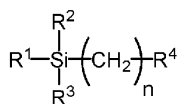
[0009] 그러나, 라디칼 경화형 접착제는, (메트)아크릴레이트의 경화 수축이 에폭시 수지의 경화 수축과 비교하여 크기 때문에, 접속 구조체를 예를 들어 85℃ 85% RH와 같은 고온고습 환경 하에 방치한 경우, 회로 부재와 회로 접속 재료의 계면에 박리 기포가 발생해버리는 경우가 많다. 이것을 해결하기 위해서 (메트)아크릴레이트의 배합량을 적게 한 경우, 회로 부재와 회로 접속 재료의 계면에서의 박리는 억제할 수 있더라도, 접착 강도가 낮아지거나, 상대하는 전극 간의 전기적 접속을 유지할 수 없게 되거나 하게 된다.

[0010] 본 발명은 상기 종래 기술이 갖는 과제를 감안하여 이루어진 것으로서, 라디칼 중합형이면서, 회로 부재를 접속 후에 고온고습 환경 하에 방치한 경우에도, 회로 부재와의 계면에서의 박리 기포의 발생을 충분히 억제할 수 있고 또한 충분한 접속 신뢰성을 유지할 수 있는 회로 접속 재료와, 상기 회로 접속 재료를 사용하여 제작된 회로 접속 구조체와, 상기 회로 접속 재료를 포함하는 접속 재료층을 구비하는 접착 필름과, 상기 접착 필름의 권중체를 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0011] 본 발명은 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료로서, 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제 및 무기 미립자를 함유하고, 상기 라디칼 중합성 화합물의 함유량이 상기 회로 접속 재료의 전량 기준으로 40질량% 이상이고, 상기 라디칼 중합성 화합물 중 분자량 1000 이하의 화합물의 함유량이 상기 회로 접속 재료의 전량 기준으로 15질량% 이하이고, 상기 무기 미립자의 함유량이 상기 회로 접속 재료의 전량 기준으로 5 내지 30질량%이고, 적어도 하기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유하는, 회로 접속 재료를 제공한다.

화학식 1



[0012]

[0013] [식 중, R¹, R² 및 R³은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 1 내지 5의 알킬기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시카르보닐기 또는 아릴기를 나타내며, R¹, R² 및 R³ 중 적어도 하나는 탄소수 1 내지 5의 알콕시기이고, R⁴는 (메트)아크릴로일기, 비닐기, 이소시아네이트기, 이미다졸기, 머캅토기, 아미노기, 메틸아미노기, 디메틸아미노기, 벤질아미노기, 페닐아미노기, 시클로헥실아미노기, 모르폴리노기, 피페라지노기, 우레이도기 또는 글리시딜기를 나타내며, n은 1 내지 10의 정수를 나타냄]

- [0014] 본 발명의 회로 접속 재료는 라디칼 경화형이기 때문에, 저온 또한 단시간에 회로 부재끼리를 접착할 수 있다. 또한, 본 발명의 회로 접속 재료에 의하면, 회로 부재를 접속 후에 고온고습 환경 하에 방치한 경우에도, 회로 부재와의 계면에서의 박리 기포의 발생이 충분히 억제되고, 또한 충분한 접속 신뢰성이 유지된다.
- [0015] 본 발명의 회로 접속 재료에 있어서는, 상기 열가소성 수지가, 유리 전이 온도가 25℃ 이상인 수지를 적어도 1종 포함하고 있을 수도 있다.
- [0016] 본 발명의 회로 접속 재료에 있어서, 상기 무기 미립자의 평균 입자 직경이 1 μ m 미만 있을 수도 있다.
- [0017] 본 발명의 회로 접속 재료는, 도전성 입자가 분산되어 있을 수도 있다. 도전성 입자를 분산시킴으로써, 회로 접속 재료에 도전성 또는 이방 도전성을 부여할 수 있고, 이러한 회로 접속 재료는, 회로 전극을 갖는 회로 부재끼리를 접속하기 위한 용도 등에 보다 적합하게 사용할 수 있다. 또한, 이러한 회로 접속 재료로 접속함으로써, 접속된 회로 전극 간의 접속 저항을 충분히 저감할 수 있다.
- [0018] 즉, 본 발명은 상기 회로 접속 재료와 상기 회로 접속 재료 중에 분산된 도전성 입자를 함유하는 이방 도전성 접착제여도 된다. 또한, 본 명세서 중 「회로 접속 재료의 전량」에는 도전성 입자는 포함되지 않는다.
- [0019] 본 발명의 회로 접속 재료의 형상은, 필름상으로 할 수 있다. 이러한 회로 접속 재료는 취급성이 우수하다.
- [0020] 본 발명에 있어서, 상기 2개의 회로 부재 중 적어도 한쪽은 유리 기판일 수 있다. 또한, 상기 2개의 회로 부재 중 적어도 한쪽은, 플렉시블 기판일 수 있다. 본 발명의 회로 접속 재료는 이러한 회로 부재의 접속에 적절하게 사용할 수 있다.
- [0021] 본 발명은 또한, 대향 배치된 한 쌍의 회로 부재와, 상기 회로 접속 재료의 경화물을 포함하며, 상기 한 쌍의 회로 부재의 사이에 개재하여 각각의 회로 부재가 갖는 회로 전극끼리가 전기적으로 접속되도록 당해 회로 부재끼리를 접속하는 접속 부재를 구비하는, 회로 접속 구조체를 제공한다.
- [0022] 본 발명의 회로 접속 구조체는, 상기 회로 접속 재료의 경화물을 포함하는 접속 부재에 의해 회로 부재끼리가 접착되어 있기 때문에, 고온고습 조건 하에 방치한 경우에도, 회로 부재와 접속 부재의 계면에서의 박리 기포의 발생이 충분히 억제되고, 또한 충분한 접속 신뢰성이 유지된다.
- [0023] 본 발명은 또한, 필름 기재와, 상기 필름 기재의 한쪽면 상에 설치된 상기 회로 접속 재료를 포함하는 필름상 접착제를 구비하는 접착 필름을 제공한다. 이러한 접착 필름은, 상기 회로 접속 재료를 포함하는 필름상 접착제를 구비하기 때문에, 회로 부재끼리의 접속에 적절하게 이용할 수 있다. 또한, 본 발명의 접착 필름은, 릴상으로 권중하여 보관할 수 있다.
- [0024] 종래의 회로 접속 재료를 필름 기재의 한쪽면 상에 도포하여 릴상으로 하여 권중한 경우, 필름 기재의 다른쪽면 상에 필름상 접착제가 전사하여, 유효하게 사용할 수 없게 되는 경우가 있다. 이에 비해 본 발명의 접착 필름에서는, 필름상 접착제가 상기 회로 접속 재료를 포함하는 것이기 때문에, 릴상으로 권중한 경우에도 필름 기재의 다른쪽면 상에의 필름상 접착제의 전사가 충분히 억제된다.
- [0025] 본 발명은 또한, 상기 접착 필름을 릴상으로 권중하여 이루어지는 권중체를 제공한다. 본 발명의 권중체는, 회로 부재끼리의 접속에 적절하게 이용할 수 있다. 또한, 본 발명의 권중체에서는, 필름 기재의 다른쪽면 상으로의 필름상 접착제의 전사가 충분히 억제된다.
- [0026] 또한, 본 발명은 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제 및 무기 미립자를 함유하는 조성물의, 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료로서의 용도라고 할 수도 있다. 여기서, 상기 라디칼 중합성 화합물의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 40질량% 이상이고, 상기 라디칼 중합성 화합물 중 분자량 1000 이하의 화합물의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 15질량% 이하이고, 상기 무기 미립자의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 5 내지 30질량%이고, 상기 조성물은, 적어도 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유한다.
- [0027] 또한, 본 발명은 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제 및 무기 미립자를 함유하는 조성물의, 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료의 제조를 위한 용도라고 할 수도 있다. 여기서, 상기 라디칼 중합성 화합물의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 40질량% 이상이고, 상기 라디칼 중합성 화합물 중 분자량 1000 이하의 화합물의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 15질량% 이하이고, 상기 무기 미립자의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 5 내지 30질량%이고, 상기 조성물은, 적어도 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유한다.

[0028] 이 용도에 의하면, 라디칼 중합형이면서, 회로 부재를 접속 후에 고온고습 환경 하에 방치한 경우에도, 회로 부재와의 계면에서의 박리 기포의 발생을 충분히 억제할 수 있고 또한 충분한 접속 신뢰성을 유지할 수 있는 회로 접속 재료를 얻을 수 있다.

발명의 효과

[0029] 본 발명에 따르면, 라디칼 중합형이면서, 회로 부재를 접속 후에 고온고습 환경 하에 방치한 경우에도, 회로 부재와의 계면에서의 박리 기포의 발생을 충분히 억제할 수 있고 또한 충분한 접속 신뢰성을 유지할 수 있는 회로 접속 재료와, 상기 회로 접속 재료를 사용하여 제작된 회로 접속 구조체와, 상기 회로 접속 재료를 포함하는 접속 재료층을 구비하는 접착 필름과, 상기 접착 필름의 권중체가 제공된다.

도면의 간단한 설명

[0030] 도 1은 본 발명의 회로 접속 재료의 일 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다.

도 2는 본 발명의 접속 구조체의 일 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다.

도 3의 (a) 내지 (c)는 회로 부재를 접속하는 일련의 공정을 도시하는 공정도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0031] 이하, 경우에 따라 도면을 참조하면서, 본 발명의 적합한 실시 형태에 대하여 상세하게 설명한다. 또한, 도면 중, 동일하거나 또는 상당히 부분에는 동일 부호를 붙이고, 중복하는 설명은 생략한다.

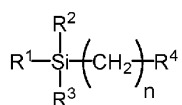
[0032] 또한, 본 명세서에 있어서, (메트)아크릴산이란 아크릴산 또는 거기에 대응하는 메타크릴산을 나타내고, (메트)아크릴레이트란 아크릴레이트 또는 거기에 대응하는 메타크릴레이트를 의미하고, (메트)아크릴로일기란 아크릴로일기 또는 메타크릴로일기를 의미한다.

[0033] 본 실시 형태의 회로 접속 재료는, 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위하여 적절하게 사용할 수 있고, 열가소성 수지(이하, 경우에 따라 「(a) 성분」이라고 칭함)와, 라디칼 중합성 화합물(이하, 경우에 따라 「(b) 성분」이라고 칭함)과, 라디칼 중합 개시제(이하, 경우에 따라 「(c) 성분」이라고 칭함)와, 무기 미립자(이하, 경우에 따라 「(d) 성분」이라고 칭함)를 함유한다.

[0034] 본 실시 형태에 있어서, (b) 성분의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 40질량% 이상이고, (b) 성분 중 분자량 1000 이하의 화합물의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 15질량% 이하이고, (d) 성분의 함유량은, 5 내지 30질량%이다.

[0035] 또한, 본 실시 형태의 회로 접속 재료는, 하기 화학식 1로 표시되는 화합물(이하, 경우에 따라 「실란 커플링제」라고 칭함)를 함유한다.

[0036] <화학식 1>



[0037]

[0038] 화학식 1 중, R^1 , R^2 및 R^3 은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 1 내지 5의 알킬기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시카르보닐기 또는 아릴기를 나타내며, R^1 , R^2 및 R^3 중 적어도 하나는 탄소수 1 내지 5의 알콕시기이고, R^4 는 (메트)아크릴로일기, 비닐기, 이소시아네이트기, 이미다졸기, 머캅토기, 아미노기, 메틸아미노기, 디메틸아미노기, 벤질아미노기, 페닐아미노기, 시클로헥실아미노기, 모르폴리노기, 피페라지노기, 우레이도기 또는 글리시딜기를 나타내며, n은 1 내지 10의 정수를 나타낸다.

[0039] 실란 커플링제는, (b) 성분의 라디칼 중합성 화합물의 일부로서 회로 접속 재료에 배합되어 있어도 되고, (a) 내지 (d) 성분 이외의 성분으로서 회로 접속 재료에 배합되어 있을 수도 있다. 예를 들어, 화학식 1의 R^4 가 (메트)아크릴로일기 또는 비닐기일 때, 실란 커플링제는 (b) 성분 포함된다.

[0040] 본 실시 형태의 회로 접속 부재는, 라디칼 경화형이기 때문에, 저온 또한 단시간에 회로 부재끼리를 접착할 수 있다. 또한, 본 실시 형태의 회로 접속 재료에 의하면, 회로 부재를 접속 후에 고온고습 환경 하에 방치한 경

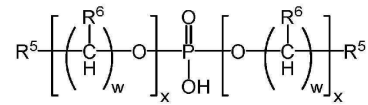
우에도, 회로 부재와의 계면에서의 박리 기포의 발생이 충분히 억제되고, 또한 충분한 접속 신뢰성이 유지된다.

- [0041] (a) 성분으로서, 공지된 열가소성 수지를 특별히 제한없이 사용할 수 있고, 공지된 열가소성 수지를 복수종 혼합하여 사용할 수도 있다.
- [0042] (a) 성분은, 필름 형성성이 한층 향상되는 관점에서, 유리 전이 온도가 25℃ 이상인 수지를 적어도 1종 포함하는 것이 바람직하다. 이러한 수지로서는, 폴리아미드 수지, 폴리아미드 수지, 페녹시 수지, 폴리(메트)아크릴레이트 수지, 폴리에스테르 수지, 폴리우레탄 수지, 폴리비닐부티랄 수지 등을 들 수 있다. 또한, (a) 성분은, 유리 전이 온도가 25℃ 미만인 수지를 함유하고 있을 수도 있다. 또한, 열가소성 수지의 유리 전이 온도는 일반적으로 DSC법이나 DVE법에 의해 구할 수 있고, 본 명세서에 있어서 유리 전이 온도는 DSC법을 사용하여 구한 값을 나타낸다.
- [0043] (a) 성분의 열가소성 수지 중에는, 실록산 결합 또는 불소 치환기(예를 들어, 불소 원자, 불화알킬기 또는 불화아릴기)가 포함되어 있을 수도 있다.
- [0044] (a) 성분으로서 2종 이상의 열가소성 수지를 혼합하여 사용하는 경우, 혼합하는 열가소성 수지끼리가 완전히 상용하거나, 마이크로 상분리가 발생하여 백탁 상태로 되는 것이 바람직하다.
- [0045] 회로 접속 재료는, (a) 성분으로서, 유리 전이 온도가 25℃ 이상인 수지를 적어도 1종 함유하는 것이 바람직하고, 그 수지의 중량 평균 분자량은 5.0×10^3 내지 2.0×10^5 인 것이 바람직하고, 1.0×10^4 내지 1.5×10^5 인 것이 보다 바람직하다.
- [0046] (a) 성분 중, 유리 전이 온도가 25℃ 이상인 수지는, 중량 평균 분자량이 5.0×10^3 미만인 경우, 회로 접속 재료의 접착력이 떨어지는 경향이나, 필름 형성성이 충분히 얻어지지 않는 경향이 있고, 중량 평균 분자량이 2.0×10^5 를 초과하는 경우, 회로 접속 재료의 다른 성분과의 상용성이 떨어져서, 회로 접속 재료의 유동성을 저하시키는 경우가 있다. 이에 비해, 중량 평균 분자량이 상기 범위인 수지에 의하면, 회로 접속 재료의 접착력의 저하 및 유동성의 저하를 충분히 억제할 수 있어, 접속 신뢰성을 한층 향상시킬 수 있다.
- [0047] 또한, 본 명세서에 있어서, 중량 평균 분자량은, GPC법으로 측정되는 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량을 나타낸다.
- [0048] 회로 접속 재료는, (a) 성분으로서, 공지된 고무 성분을 함유하고 있을 수도 있다. 고무 성분의 첨가에 의해, 응력 완화 및 접착성의 향상을 기대할 수 있다. 고무 성분의 구체예로서는, 아크릴 고무, 폴리이소프렌, 폴리부타디엔, 카르복실기 말단 폴리부타디엔, 수산기 말단 폴리부타디엔, 1,2-폴리부타디엔, 카르복실기 말단 1,2-폴리부타디엔, 수산기 말단 1,2-폴리부타디엔, 스티렌-부타디엔 고무, 수산기 말단 스티렌-부타디엔 고무, 카르복실기, 수산기, 카르복시실화니트릴 고무, 수산기 말단 폴리(옥시프로필렌), 알콕시실릴기 말단 폴리(옥시프로필렌), 폴리(옥시 테트라메틸렌)글리콜, 폴리올레핀글리콜 및 폴리-ε-카프로락톤 등을 들 수 있다.
- [0049] 고무 성분의 중량 평균 분자량은, 2.0×10^5 내지 1.0×10^6 인 것이 바람직하다. 고무 성분의 중량 평균 분자량이 2.0×10^5 미만이면 충분한 응력 완화 효과를 얻지 못하게 되는 경우가 있고, 1.0×10^6 을 초과하면 회로 접속 재료의 유동성이 저하하는 경우가 있다. 즉, 중량 평균 분자량이 상기 범위에 있는 고무 성분에 의하면, 회로 접속 재료의 유동성 저하를 충분히 억제하면서, 한층 우수한 응력 완화 효과를 얻을 수 있다.
- [0050] 고무 성분으로서, 접착성 향상의 관점에서, 고극성기인 시아노기 또는 카르복실기를 측쇄 또는 말단에 갖는 고무 성분이 바람직하다. 또한, 고무 성분은 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0051] (a) 성분 중 유리 전이 온도가 25℃ 이상인 열가소성 수지의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 10 내지 50질량%인 것이 바람직하고, 20 내지 40질량%인 것이 보다 바람직하다.
- [0052] (a) 성분 중 유리 전이 온도가 25℃ 이상인 열가소성 수지의 함유량이 10질량% 미만이면 필름 형성성이 떨어지는 경우가 있고, 50질량%를 초과하면, 회로 접속 재료의 유동성이 저하하는 경우가 있다. 이에 비해, 상기 범위이면, 회로 접속 재료의 접착력의 저하 및 유동성의 저하를 충분히 억제하면서, 한층 우수한 필름 형성성 및 접속 신뢰성을 얻을 수 있다.
- [0053] (b) 성분으로서, 공지된 라디칼 중합성 화합물을 사용할 수 있다. 또한 (b) 성분은, 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.

- [0054] 본 실시 형태에 있어서, (b) 성분의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 40질량% 이상이고, 바람직하게는 40 내지 70질량%이고, 보다 바람직하게는 45 내지 65질량%이다.
- [0055] 또한, 본 실시 형태에 있어서, (b) 성분으로서는, 분자량이 1000을 초과하는 화합물(이하, 경우에 따라 「(b-1) 성분」이라고 칭함)을 주로 사용하고, 분자량 1000 이하의 화합물(이하, 경우에 따라 「(b-2) 성분」이라고 칭함)의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 15질량% 이하로 한다. (b-1) 성분의 함유량을 15질량% 이하로 함으로써, 상술한 본 발명의 효과를 현저하게 얻을 수 있다.
- [0056] (b-2) 성분의 함유량은, 15질량% 이하인 것이 바람직하고, 12.5질량% 이하인 것이 보다 바람직하다. 또한, (b-2) 성분의 함유량은, 2.5질량% 이상일 수 있고, 5질량% 이상일 수 있다.
- [0057] (b-1) 성분의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 25질량% 이상이고, 바람직하게는 30질량% 이상이고, 보다 바람직하게는 35질량% 이상이다. 또한, (b-1) 성분의 함유량은, 55질량% 이하일 수 있고, 50질량% 이하일 수도 있다.
- [0058] (b-1) 성분의 분자량은, 바람직하게는 20000 이하이고, 보다 바람직하게는 15000 이하이다. 또한, (b-1) 성분이 분자량 분포를 갖는 경우에는, (b-1) 성분의 중량 평균 분자량을, (b-1)의 분자량으로 간주할 수 있다.
- [0059] 본 실시 형태에 있어서, (b-1) 성분의 함유량 C_1 에 대한 (b-2) 성분의 함유량 C_2 의 비(질량비) C_2/C_1 은, 바람직하게는 0 내지 0.6이고, 보다 바람직하게는 0.05 내지 0.4이고, 더욱 바람직하게는 0.075 내지 0.35이다.
- [0060] (b-1) 성분으로서는, 예를 들어, 에폭시(메트)아크릴레이트올리고머, 우레탄(메트)아크릴레이트올리고머, 폴리 에테르(메트)아크릴레이트올리고머, 폴리에스테르(메트)아크릴레이트올리고머 등의 올리고머; 트리메틸올프로판 트리(메트)아크릴레이트, 폴리에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 폴리알킬렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 디시 클로펜테닐(메트)아크릴레이트, 디시클로펜테닐옥시에틸(메트)아크릴레이트, 네오펜틸글리콜디(메트)아크릴레이 트, 디펜타에리트리톨헥사(메트)아크릴레이트, 이소시아누르산 변성 2관능(메트)아크릴레이트, 이소시아누르산 변성 3관능(메트)아크릴레이트, 비스페놀플루오렌디글리시딜에테르의 글리시딜기에 (메트)아크릴산을 부가시킨 에폭시(메트)아크릴레이트, 비스페놀플루오렌디글리시딜에테르의 글리시딜기에에틸렌글리콜 및/또는 프로필렌글 리콜을 부가시킨 화합물에 (메트)아크릴로일옥시기를 도입한 화합물 등의 다관능 (메트)아크릴레이트를 들 수 있다. 이들 화합물은, 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0061] 또한, (b-2) 성분으로서는, 펜타에리트리톨(메트)아크릴레이트, 2-시아노에틸(메트)아크릴레이트, 시클로헥실 (메트)아크릴레이트, 디시클로펜테닐(메트)아크릴레이트, 디시클로펜테닐옥시에틸(메트)아크릴레이트, 2-(2-에 톡시에톡시)에틸(메트)아크릴레이트, 2-에톡시에틸(메트)아크릴레이트, 2-에틸헥실(메트)아크릴레이트, n-헥실 (메트)아크릴레이트, 2-히드록시에틸(메트)아크릴레이트, 히드록시프로필(메트)아크릴레이트, 이소보르닐(메 트)아크릴레이트, 이소데실(메트)아크릴레이트, 이소옥틸(메트)아크릴레이트, n-라우릴(메트)아크릴레이트, 2- 메톡시에틸(메트)아크릴레이트, 2-페녹시에틸(메트)아크릴레이트, 테트라히드로푸르푸릴(메트)아크릴레이트, 2- (메트)아크릴로일옥시에틸포스페이트, N,N-디메틸아미노에틸(메트)아크릴레이트, N,N-디메틸아미노프로필(메 트)아크릴레이트, (메트)아크릴로일모르폴린 등을 들 수 있다. 이들 화합물은, 1종을 단독으로 또는 2종 이상 을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0062] 회로 접속 재료는, (b) 성분으로서, 분자 내에 2개 이상의 (메트)아크릴로일기를 갖는 화합물을 적어도 1종 함 유하는 것이 바람직하고, (b-1) 성분으로서, 분자 내에 2개 이상의 (메트)아크릴로일기를 갖는 화합물을 적어도 1종 함유하는 것이 보다 바람직하다.
- [0063] (b) 성분으로서는, (메트)아크릴로일기를 갖는 화합물이 바람직한데, (b) 성분으로서 알릴기, 말레이미드기 및 비닐기 등의 활성 라디칼에 의해 중합하는 관능기를 갖는 화합물을 사용할 수도 있다. 이러한 (b) 성분의 구체 예로서는, N-비닐피리다졸, N-비닐피리딘, N-비닐피롤리돈, N-비닐포름아미드, N-비닐카프로락탐, 4,4'-비닐리 덴 비스(N,N-디메틸아닐린), N-비닐아세트아미드, N,N-디메틸아크릴아미드, N-이소프로필아크릴아미드, N,N-디 에틸아크릴아미드, 메틸올아크릴아미드, 4,4'-디페닐메탄비스말레이미드, 3,3'-디메틸-5,5'-4,4'-디페닐메탄비 스말레이미드, 1,6-비스 말레이미드-(2,2,4-트리메틸)헥산 등을 들 수 있다.
- [0064] 또한, 회로 접속 재료는, (b) 성분으로서, 인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물을 함유하고 있을 수 도 있다. 인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물로서는, 예를 들어, 하기 화학식 2 내지 4로 표시되 는 인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물을 들 수 있다. 이러한 화합물을 배합함으로써, 금속 등의 무기물 표면에 대한 접착 강도가 한층 향상하여, 회로 전극끼리의 접착에 한층 유효한 회로 접속 재료가 얻어진

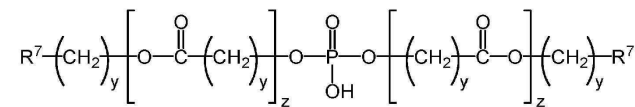
다.

화학식 2



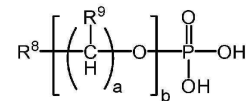
화학식 2 중, R^5 는 (메트)아크릴로일옥시기를 나타내고, R^6 은 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, w 및 x 는 각각 독립적으로 1 내지 8의 정수를 나타낸다. 식 중, R^5 끼리, R^6 끼리, w 끼리 및 x 끼리는 각각 동일하거나 상이할 수도 있다.

화학식 3



화학식 3 중, R^7 은 (메트)아크릴로일옥시기를 나타내고, y 및 z 는 각각 독립적으로 1 내지 8의 정수를 나타낸다. 식 중, R^7 끼리, y 끼리 및 z 끼리는 각각 동일하거나 상이할 수도 있다.

화학식 4



화학식 4 중, R^8 은 (메트)아크릴로일옥시기를 나타내고, R^9 은 수소 원자 또는 메틸기를 나타내고, a 및 b 는 각각 독립적으로 1 내지 8의 정수를 나타낸다.

인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물의 구체예로서는, 에시드포스포옥시에틸메타크릴레이트, 에시드포스포옥시에틸아크릴레이트, 에시드포스포옥시프로필메타크릴레이트, 에시드포스포옥시폴리옥시에틸렌글리콜모노메타크릴레이트, 에시드포스포옥시폴리옥시프로필렌글리콜모노메타크릴레이트, 2,2'-디(메트)아크릴로일옥시디에틸포스페이트, EO 변성 인산 디메타크릴레이트, 인산 변성 에폭시아크릴레이트 및 인산 비닐 등을 들 수 있다.

인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 0.01 내지 10질량%인 것이 바람직하고, 0.5 내지 5질량%인 것이 보다 바람직하다.

또한, 인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물로서, 무수 인산과 2-히드록시에틸(메트)아크릴레이트를 반응시킨 화합물을 사용할 수도 있다. 이러한 인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물로서는, 모노(2-메타크릴로일옥시에틸)에시드포스페이트, 디(2-메타크릴로일옥시에틸)에시드포스페이트 등이 있다. 또한, 인산에스테르 구조를 갖는 화합물은, 1종을 단독으로 사용하거나 2종 이상을 혼합하여 사용해도 된다.

인산에스테르 구조를 갖는 라디칼 중합성 화합물은, (b-1) 성분이거나 (b-2) 성분일 수도 있고, (b-2) 성분인 것이 바람직하다.

회로 접속 재료는 또한, 상술한 바와 같이, 화학식 1로 표시되는 실란 커플링제 중 라디칼 중합성을 갖는 것을 (b) 성분으로서 함유하고 있을 수도 있다.

(c) 성분의 라디칼 중합 개시제로서는, 예를 들어, 가열에 의해 분해되어 유리 라디칼을 발생하는 화합물을 들

수 있고, 과산화물 및 아조 화합물 등의 공지된 화합물을 사용할 수 있다.

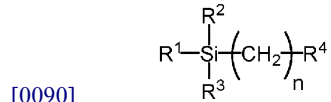
- [0077] (c) 성분은, 안정성, 반응성 및 상용성을 겸비하는 관점에서, 1분간 반감기 온도가 90 내지 175℃이고, 또한 분자량이 180 내지 1000인 과산화물을 적절하게 사용할 수 있다. 여기서 「1분간 반감기 온도」란, 반감기가 1분이 되는 온도를 말하며, 「반감기」란, 화합물의 농도가 초기값의 절반으로 감소할 때까지의 시간을 말한다.
- [0078] (c) 성분의 구체예로서는, 1,1,3,3-테트라메틸부틸퍼옥시네오데카노에이트, 디(4-t-부틸시클로헥실)퍼옥시디카르보네이트, 디(2-에틸헥실)퍼옥시디카르보네이트, 쿠밀퍼옥시네오데카노에이트, 1,1,3,3-테트라메틸부틸퍼옥시네오데카노에이트, 디라우로일퍼옥시드, 1-시클로헥실-1-메틸에틸퍼옥시네오데카노에이트, t-헥실퍼옥시네오데카노에이트, t-부틸퍼옥시네오데카노에이트, t-부틸퍼옥시피발레이트, 1,1,3,3-테트라메틸부틸퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, 2,5-디메틸-2,5-디(2-에틸헥사노일퍼옥시)헥산, t-헥실퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, t-부틸퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, t-부틸퍼옥시네오헵타노에이트, t-아밀퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, 디-t-부틸퍼옥시헥사하이드로테프탈레이트, t-아밀퍼옥시-3,5,5-트리메틸헥사노에이트, 3-히드록시-1,1-디메틸부틸퍼옥시네오데카노에이트, 1,1,3,3-테트라메틸부틸퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, t-아밀퍼옥시네오데카노에이트, t-아밀퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, 3-메틸벤조일퍼옥시드, 4-메틸벤조일퍼옥시드, 디(3-메틸벤조일)퍼옥시드, 디벤조일퍼옥시드, 디(4-메틸벤조일)퍼옥시드, 2,2'-아조비스-2,4-디메틸발레로니트릴, 1,1'-아조비스(1-아세톡시-1-페닐에탄), 2,2'-아조비스이소부티로니트릴, 2,2'-아조비스(2-메틸부티로니트릴), 디메틸-2,2'-아조비스이소부티로니트릴, 4,4'-아조비스(4-시아노발레르산), 1,1'-아조비스(1-시클로헥산카르보니트릴), t-헥실퍼옥시이소프로필모노카르보네이트, t-부틸퍼옥시말레산, t-부틸퍼옥시-3,5,5-트리메틸헥사노에이트, t-부틸퍼옥시라우레이트, 2,5-디메틸-2,5-디(3-메틸벤조일퍼옥시)헥산, t-부틸퍼옥시-2-에틸헥실 모노카르보네이트, t-헥실퍼옥시벤조에이트, 2,5-디메틸-2,5-디(벤조일퍼옥시)헥산, t-부틸퍼옥시벤조에이트, 디부틸퍼옥시트리메틸아디페이트, t-아밀퍼옥시노르말옥토에이트, t-아밀퍼옥시이소노나노에이트, t-아밀퍼옥시벤조에이트 등을 들 수 있다. 또한, (c) 성분은, 1종을 단독으로 사용해도 되고, 2종 이상의 화합물을 혼합하여 사용해도 된다.
- [0079] (c) 성분으로서, 광조사(예를 들어, 파장 150nm 내지 750nm의 광조사)에 의해 라디칼을 발생하는 화합물을 사용할 수도 있다.
- [0080] 이러한 화합물로서는, 예를 들어, Photoinitiation, Photopolymerization, and Photocuring, J.-P. Fouassier, Hanser Publishers(1995년), p17 내지 p35에 기재되어 있는 α-아세토아미노페논 유도체 및 포스핀옥시드 유도체가, 광조사에 대한 감도가 높기 때문에 보다 바람직하다. 이들 화합물은, 1종을 단독으로 사용해도 되고, 상기 과산화물 또는 아조 화합물과 혼합하여 사용해도 된다.
- [0081] 회로 부재의 회로 전극의 부식을 억제하기 위해서, (c) 성분에 함유되는 염소 이온 및 유기산의 양은, 각각 10000질량ppm 이하인 것이 바람직하고, 5000질량ppm 이하인 것이 보다 바람직하다. 또한, 이 상한값 이하이면 회로 전극의 부식이 충분히 억제되는 점에서, (c) 성분에 함유되는 염소 이온 및 유기산의 양은, 500질량ppm 이상일 수 있다.
- [0082] 또한, (c) 성분은, 실온(25℃), 상압 하에서의 24시간의 개방 방치 후의 질량 유지율이 20질량% 이상인 것이 바람직하다. 이러한 질량 유지율을 갖는 (c) 성분에 의하면, 회로 접속 재료의 보존 안정성이 한층 향상된다. 또한, 질량 유지율은, 방치 전후의 중량을 측정함으로써 측정할 수 있다.
- [0083] (c) 성분의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 0.1 내지 30질량%인 것이 바람직하고, 1 내지 20질량%인 것이 보다 바람직하다. (c) 성분의 함유량이 상기 범위이면, 충분한 접착력을 얻기 위한 반응물과 긴 가용시간을 보다 높은 레벨에서 양립할 수 있다.
- [0084] (d) 성분의 무기 미립자로서는, 공지된 무기 미립자를 특별히 제한없이 사용할 수 있다. (d) 성분으로서, 예를 들어, 실리카 미립자, 알루미늄 미립자, 실리카-알루미늄 미립자, 티타니아 미립자, 지르코니아 미립자 등의 금속 산화물 미립자를 들 수 있다. 또한, (d) 성분은, 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0085] (d) 성분의 평균 입자 직경은, 1μm 미만인 것이 바람직하고, 0.1 내지 0.5μm인 것이 보다 바람직하다. 또한, 여기에서 말하는 평균 입자 직경이란, 회로 접속 재료 중에 존재할 때의 장축 방향 모드 직경이다. (d) 성분의 평균 1차 입자 직경은, 100nm 이하인 것이 바람직하고, 10 내지 30nm인 것이 보다 바람직하다. 또한, 본 명세서에 있어서, 평균 입자 직경은, 화상 해석에 의해 측정되는 값을 나타낸다.
- [0086] (d) 성분으로서, 분산성이 우수한 점에서, 표면을 유기기로 수식한 미립자를 적절하게 사용할 수 있다. 유기

기로서는, 예를 들어, 디메틸실록산기, 디페닐실록산기 등을 들 수 있다.

[0087] (d) 성분의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 5 내지 30질량%인 것이 바람직하고, 10 내지 20질량%인 것이 보다 바람직하다. (d) 성분의 함유량이 상기 범위이면, 접속하는 회로 전극 간의 접속 저항을 한층 저감할 수 있고, 또한 본 발명의 효과가 한층 현저하게 발휘된다.

[0088] 화학식 1로 표시되는 실란 커플링제는, 상술한 바와 같이 (b) 성분의 일부로서 회로 접속 재료에 배합되어 있어도 되고, (a) 내지 (d) 성분 이외의 성분으로서 회로 접속 재료에 배합되어 있을 수도 있다.

[0089] <화학식 1>



[0091] 화학식 1 중, R^1 , R^2 및 R^3 은 각각 독립적으로 수소 원자, 탄소수 1 내지 5의 알킬기, 탄소수 1 내지 5의 알콕시, 탄소수 1 내지 5의 알콕시카르보닐기 또는 아릴기를 나타내며, R^1 , R^2 및 R^3 중 적어도 하나는 탄소수 1 내지 5의 알콕시기이고, R^4 는 (메트)아크릴로일기, 비닐기, 이소시아네이트기, 이미다졸기, 머캅토기, 아미노기, 메틸아미노기, 디메틸아미노기, 벤질아미노기, 페닐아미노기, 시클로헥실아미노기, 모르폴리노기, 피페라지노기, 우레이도기 또는 글리시딜기를 나타내며, n 은 1 내지 10의 정수를 나타낸다.

[0092] 화학식 1의 R^4 가 (메트)아크릴로일기 또는 비닐기일 때, 실란 커플링제는 (b) 성분에 포함된다.

[0093] R^1 , R^2 및 R^3 은, 메틸기, 에틸기, 메톡시기 또는 에톡시기인 것이 바람직하고, 메톡시기 또는 에톡시기인 것이 보다 바람직하다.

[0094] R^4 는, (메트)아크릴로일기, 글리시딜기, 머캅토기 또는 비닐기인 것이 바람직하고, (메트)아크릴로일기 또는 글리시딜기인 것이 보다 바람직하다.

[0095] 실란 커플링제의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 0.1 내지 10질량%인 것이 바람직하고, 0.25 내지 5질량%인 것이 보다 바람직하다. 실란 커플링제의 함유량이 상기 범위이면, 회로 부재와 접속 부재의 계면에서의 박리 기포의 발생을 한층 현저하게 억제할 수 있음과 함께, 보다 장기간의 가용 시간을 확보할 수 있다.

[0096] 본 실시 형태의 회로 접속 재료는, 상기 이외의 성분을 함유하고 있을 수도 있다. 예를 들어, 회로 접속 재료에는, 경화 속도의 제어, 저장 안정성의 부여 등의 이유로, 안정화제를 첨가해도 된다. 안정화제로서는, 벤조퀴논, 히드로퀴논 등의 퀴논 유도체; 4-메톡시페놀, 4-*t*-부틸카테콜 등의 페놀 유도체; 2,2,6,6-테트라메틸피페리딘-1-옥실, 4-히드록시-2,2,6,6-테트라메틸피페리딘-1-옥실 등의 아미녹실 유도체; 테트라메틸피페리딜메타크릴레이트 등의 힌더드 아민 유도체 등을 적절하게 사용할 수 있다.

[0097] 회로 접속 재료가 안정화제를 함유할 때, 상기 안정화제의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 0.01 내지 15질량%로 하는 것이 바람직하고, 0.05 내지 10질량%로 하는 것이 보다 바람직하다. 안정화제의 함유량이 0.01질량% 미만이면 첨가 효과가 충분히 얻어지지 않는 경우가 있고, 15질량%를 초과하면 중합 반응이 저해되어, 저온속경화성이 떨어지는 경우가 있다.

[0098] 또한, 본 실시 형태의 회로 접속 재료에는, 응력 완화 및 내열성의 향상을 목적으로 하여, 유기 미립자를 첨가해도 된다. 유기 미립자로서는, 공지된 유기 미립자를 특별히 제한없이 사용할 수 있다.

[0099] 유기 미립자로서는, 예를 들어, 실리콘 미립자, 메타크릴레이트-부타디엔-스티렌 미립자, 아크릴-실리콘 미립자, 폴리아미드 미립자, 폴리이미드 미립자 등을 들 수 있다. 이 유기 미립자는, 균일한 구조이거나 코어-셸형 구조로 되어 있을 수도 있다.

[0100] 회로 접속 재료가 유기 미립자를 함유할 때, 상기 유기 미립자의 함유량은, 회로 접속 재료의 전량 기준으로 1.5 내지 20질량%로 하는 것이 바람직하고, 2 내지 15질량%로 하는 것이 보다 바람직하다.

[0101] 본 실시 형태의 회로 접속 재료에는, 도전성 입자가 분산되어 있을 수도 있다. 이에 의해, 회로 접속 재료에 도전성 또는 이방 도전성을 부여할 수 있고, 이러한 회로 접속 재료는, 회로 전극을 갖는 회로 부재끼리의 접속 용도 등에 보다 적합하게 사용할 수 있다. 또한, 이러한 회로 접속 재료로 접속함으로써, 접속된 회로 전극 간

의 접촉 저항을 충분히 저감할 수 있다.

- [0102] 즉, 본 발명은 회로 접속 재료와 상기 회로 접속 재료 중에 분산된 도전성 입자를 함유하는 이방 도전성 접착제여도 된다. 또한, 본 명세서 중 「회로 접속 재료의 전량」에는 도전성 입자는 포함되지 않는다.
- [0103] 도전성 입자로서는, Au, Ag, Pd, Ni, Cu, 땀납 등이 금속을 포함하는 금속 입자, 카본 입자 등을 들 수 있다. 또한, 도전성 입자는, 유리, 세라믹, 플라스틱 등의 비도전성 재료를 포함하는 입자를 핵체로 하고, 이 핵체에 상기 금속, 금속 입자, 카본 등의 도전성 재료를 피복한 것일 수도 있다.
- [0104] 또한, 도전성 입자로서는, 열용융 금속 입자가 바람직하다. 이러한 도전성 입자는, 가열 가압에 의한 변형성을 가지므로, 회로 부재끼리를 접속할 때에 도전성 입자와 전극의 접촉 면적이 증가하여 회로 부재 간의 접속 신뢰성이 향상되는 경향이 있다.
- [0105] 도전성 입자의 배합량은, 이방 도전 접착제의 총 부피에 대하여 0.1 내지 30부피%로 하는 것이 바람직하고, 0.1 내지 10부피%로 하는 것이 보다 바람직하다. 도전성 입자의 배합량이 0.1부피% 미만이면 도전성이 떨어지는 경향이 있고, 30부피%를 초과하면 회로 전극 간의 단락이 발생하기 쉬워지는 경향이 있다. 또한, 도전성 입자의 배합량은, 경화 전의 회로 접속 재료의 각 성분은 23℃에서의 부피를 바탕으로 결정된다. 각 성분의 부피는, 비중을 이용하여 질량을 부피로 환산함으로써 구할 수 있다. 또한, 부피를 측정하려고 하는 성분을 용해하거나 팽윤시키거나 하지 않고, 그 성분을 잘 침윤시킬 수 있는 적당한 용매(물, 알코올 등)를 메스실린더 등에 넣고, 거기에 측정 대상의 성분을 투입하여 증가한 부피를 그 성분의 부피로서 구할 수도 있다.
- [0106] 본 실시 형태의 회로 접속 재료는, 상술한 각 성분을 용제를 사용하지 않고 혼합하여 제조할 수 있다. 또한, 상술한 각 성분을, 상기 각 성분을 용해 또는 분산할 수 있는 용제와 함께 혼합하여 제조할 수도 있다.
- [0107] 본 실시 형태의 회로 접속 재료는, 필름상으로 하여 사용할 수 있다. 필름의 형상으로 함으로써, 회로 접속 재료의 취급성이 매우 양호해진다.
- [0108] 구체적으로는, 예를 들어, 회로 접속 재료에 필요에 따라서 용제 등을 첨가하여 제조한 용액을 불소 수지 필름, 폴리에틸렌테레프탈레이트 필름, 박리지 등의 박리성 기재 상에 도포한 후, 용제를 제거함으로써, 필름상의 회로 접속 재료(이하, 경우에 따라 「필름상 접착제」라고 칭함)를 얻을 수 있다. 또한, 회로 접속 재료에 필요에 따라서 용제 등을 첨가하여 제조한 용액을 부직포 등의 기재에 함침시켜서 박리성 기재 상에 재치하고, 용제를 제거하는 것에 의해서도 필름상 접착제를 얻을 수 있다. 또한, 혼합 시에 도전성 입자를 배합함으로써, 필름상 접착제에 도전성 입자를 분산시킬 수 있다.
- [0109] 용제로서는, 예를 들어, 메틸에틸케톤, 톨루엔을 적절하게 사용할 수 있다.
- [0110] 도 1은, 본 발명의 회로 접속 재료의 일 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다. 도 1에 도시하는 필름상 접착제(1)는, 상기 회로 접속 재료를 필름상으로 성형하여 이루어지는 것이다. 필름상 접착제(1)는, 취급이 용이해서, 피착체 상에 용이하게 설치할 수 있다. 그로 인해, 필름상 접착제(1)에 의하면, 접속 작업을 용이하게 행할 수 있다.
- [0111] 필름상 접착제(1)는, 2종 이상의 층을 포함하는 다층 구조(도시하지 않음)를 가져도 된다. 또한, 필름상 접착제(1)에는, 도전성 입자(도시하지 않음)가 분산되어 있을 수도 있다. 도전성 입자가 분산된 필름상 접착제는, 이방 도전성 필름상 접착제로서 적절하게 이용할 수 있다. 즉, 본 발명은 상기 회로 접속 재료와 도전성 입자를 함유하는, 이방 도전성 필름상 접착제여도 된다.
- [0112] 본 실시 형태의 회로 접속 재료(예를 들어, 필름상 접착제(1))를 사용한 피착체의 접속 방법으로서, 예를 들어, 가열 및 가압을 병용한 접속 방법을 들 수 있다. 이 방법에 있어서, 가열 온도는 100 내지 250℃인 것이 바람직하다. 또한, 압력은, 피착체에 손상을 끼치지 않는 범위라면 특별히 제한되지 않지만, 일반적으로는 0.1 내지 10MPa인 것이 바람직하다. 이 가열 및 가압은, 0.5초 내지 120초의 범위에서 행하는 것이 바람직하다. 또한, 상기 회로 접속 재료에 의하면, 예를 들어, 가열 온도 150 내지 200℃ 및 압력 3MPa의 조건에서 10초간의 가열 및 가압을 행함으로써, 피착체끼리를 충분히 접속시킬 수 있다.
- [0113] 본 실시 형태의 회로 접속 재료는, 열팽창 계수가 상이한 이종의 피착체 접착제로서 적절하게 사용할 수 있다. 구체적으로는, 예를 들어, 이방 도전 접착제, 은 페이스트, 은 필름 등으로 대표되는 회로 접속 재료로서, 또는, CSP용 엘라스토머, CSP용 언더필재, LOC 테이프 등으로 대표되는 반도체 소자 접착 재료로서 적절하게 사용할 수 있다.

- [0114] 본 실시 형태의 회로 접속 재료는, 필름 기재의 한쪽면 상에서 필름상으로 형성되어 있을 수도 있다.
- [0115] 즉, 본 발명은 필름 기재와 상기 필름 기재의 한쪽면 상에 설치되고, 상기 회로 접속 재료를 포함하는 필름상 접착제를 구비하는 접착 필름일 수도 있다. 이러한 접착 필름은, 필름 기재를 박리함으로써 상술한 필름상 접착제로서 적절하게 사용할 수 있다.
- [0116] 접착 필름에서는, 필름상 접착제가 상술한 특정한 구성을 갖는 회로 접속 재료를 포함하기 때문에, 필름 기재의 다른쪽면과 필름상 접착제가 접하도록 될상으로 권중한 경우에도, 필름 기재의 다른쪽면 상으로의 필름상 접착제의 전사가 충분히 억제된다.
- [0117] 종래의 회로 접속 재료로 동일한 권중체를 제작한 경우, 필름 기재 사이로부터 회로 접속 재료가 스며나오는 경우가 있는데, 이 접착 필름에서는, 필름상 접착제가 상술한 특정한 구성을 갖는 회로 접속 재료를 포함하기 때문에, 될상으로 권중한 경우에도, 필름상 기재 사이로부터의 필름상 접착제의 스며나움이 충분히 억제된다. 그로 인해, 접착 필름은, 될상으로 권중한 권중체로서 적절하게 보관할 수 있어, 취급성이 한층 우수하다.
- [0118] 필름 기재로서는, 예를 들어, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리카르보네이트, 폴리프로필렌을 들 수 있다.
- [0119] 접착 필름은, 예를 들어, 폭 5mm 이하(바람직하게는 0.5 내지 5.0mm), 길이 1m 이상(바람직하게는 10 내지 500m)으로 할 수 있다. 이러한 사이즈의 접착 필름은, 될상으로 권중하여 보관하는 것이 바람직하기 때문에, 상술한 효과가 특히 유효해진다.
- [0120] 접착 필름은, 필름상 접착제 상에 설치된 보호 필름을 더 구비하고 있을 수도 있다. 보호 필름은, 피착체의 접속 전에 박리할 필요가 있기 때문에, 박리성이 우수한 것이 바람직하다.
- [0121] 이하, 본 실시 형태의 회로 접속 재료를 사용하여, 회로 기관의 주면 상에 회로 전극이 형성된 회로 부재끼리를 접속하는 경우의 일례에 대해서 설명한다. 또한, 이하의 설명에서는, 회로 접속 재료에 도전성 입자를 분산시켜서 이방 도전성 접착제로 한 경우를 예시했지만, 회로 접속 재료에 도전성 입자를 분산시키지 않는 경우에도 동일한 방법에 의해 회로 부재끼리의 접속을 행할 수 있다.
- [0122] 이방 도전성 접착제를, 회로 기관 상의 서로 대향하는 회로 전극 사이에 배치하고, 가열 가압함으로써, 대향하는 회로 전극 간의 전기적 접속과 회로 기관 간의 접착을 행하여, 회로 부재끼리를 접속할 수 있다.
- [0123] 회로 기관으로서, 예를 들어, 유리 기관; 폴리이미드, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리카르보네이트 등이 유기물을 포함하는 플렉시블 기관을 들 수 있다. 여기서, 회로 기관으로서, 한쪽이 유리 기관이고, 다른쪽이 플렉시블 기관인 경우에 특히 본 발명의 효과가 크다. 또한, 회로 기관으로서, 유리/에폭시 등의 무기물과 유기물을 조합한 기관을 사용할 수도 있다.
- [0124] 도 2는, 본 발명의 회로 접속 구조체의 일 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다. 도 2에 도시하는 회로 접속 구조체는, 서로 대향하는 제1 회로 부재(20) 및 제2 회로 부재(30)를 구비하고 있고, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30)의 사이에는, 이들을 접속하는 접속 부재(10)가 설치되어 있다.
- [0125] 제1 회로 부재(20)는 회로 기관(제1 회로 기관)(21)과, 회로 기관(21)의 주면(21a) 상에 형성되는 회로 전극(제1 회로 전극)(22)을 구비하고 있다. 또한, 회로 기관(21)의 주면(21a) 상에는, 경우에 따라 절연층(도시하지 않음)이 형성되어 있을 수도 있다.
- [0126] 한편, 제2 회로 부재(30)는 회로 기관(제2 회로 기관)(31)과, 회로 기관(31)의 주면(31a) 상에 형성되는 회로 전극(제2 회로 전극)(32)을 구비하고 있다. 또한, 회로 기관(31)의 주면(31a) 상에도, 경우에 따라 절연층(도시하지 않음)이 형성되어 있을 수도 있다.
- [0127] 제1 및 제2 회로 부재(20, 30)로서는, 전기적 접속을 필요로 하는 전극이 형성되어 있는 것이라면 특별히 제한은 없다. 구체적으로는, 액정 디스플레이에 사용되고 있는 ITO, IZO 등으로 전극이 형성되어 있는 유리 또는 플라스틱 기관, 프린트 배선판, 세라믹 배선판, 플렉시블 배선판, 반도체 실리콘 칩 등을 들 수 있고, 이것들은 필요에 따라서 조합하여 사용된다. 이와 같이, 본 실시 형태에서는, 프린트 배선판이나 폴리이미드 등이 유기물을 포함하는 재질을 비롯하여, 구리, 알루미늄 등의 금속이나 ITO(indium tin oxide), 질화규소(SiN_x), 이산화규소(SiO_2) 등의 무기재질과 같이 다종다양한 표면 상태를 갖는 회로 부재를 사용할 수 있다.
- [0128] 접속 부재(10)는 절연성 물질(11) 및 도전성 입자(7)를 함유하고 있다. 도전성 입자(7)는 대향하는 회로 전극(22)과 회로 전극(32) 사이뿐만 아니라, 주면(21a, 31a)끼리 사이에도 배치되어 있다. 이 회로 접속 구조체에

있어서는, 회로 전극(22, 32)이 도전성 입자(7)를 통하여 전기적으로 접속되어 있다. 즉, 도전성 입자(7)가 회로 전극(22, 32)의 양쪽에 직접 접촉하고 있다.

- [0129] 여기서, 도전성 입자(7)는 먼저 설명한 도전성 입자이고, 절연성 물질(11)은 상기 회로 접속 재료의 경화물이다.
- [0130] 이 회로 접속 구조체에 있어서, 상술한 바와 같이, 대향하는 회로 전극(22)과 회로 전극(32)이 도전성 입자(7)를 통하여 전기적으로 접속되어 있다. 이로 인해, 회로 전극(22, 32) 간의 접속 저항이 충분히 저감된다. 따라서, 회로 전극(22, 32) 간의 전류 흐름을 원활하게 할 수 있어, 회로가 갖는 기능을 충분히 발휘할 수 있다. 또한, 접속 부재(10)가 도전성 입자(7)를 함유하고 있지 않은 경우에는, 회로 전극(22)과 회로 전극(32)이 직접 접촉함으로써, 전기적으로 접속된다.
- [0131] 접속 부재(10)는 상기 회로 접속 재료의 경화물과 도전성 입자로 구성되어 있는 것 때문에, 회로 부재(20 또는 30)에 대한 접속 부재(10)의 접착 강도가 충분히 높아져서, 신뢰성 시험(고온고습 시험) 후에서도 안정된 성능(양호한 접착 강도 및 접속 저항)을 유지할 수 있다.
- [0132] 이어서, 도 3을 참조하면서, 상술한 회로 접속 구조체의 제조 방법 일례에 대하여 설명한다. 먼저, 상술한 제1 회로 부재(20)와, 필름상 접착제(40)를 준비한다(도 3의 (a) 참조). 필름상 접착제(40)는 도전성 입자가 분산된 회로 접속 재료를 필름상으로 성형하여 이루어지는 것이고, 회로 접속 재료(5)와 도전성 입자(7)를 포함한다. 또한, 필름상 접착제(40)에 도전성 입자(7)가 분산되어 있지 않은 경우(즉, 필름상 접착제(40)가 회로 접속 재료(5)를 포함하는 경우)에도, 그 필름상 접착제는 절연성 접착제로서 이방 도전성 접착에 사용할 수 있고, 이때 회로 접속 재료는 NCP(Non-Conductive Paste)라고 불리는 경우도 있다. 또한, 회로 접속 재료(5)에 도전성 입자(7)가 분산되어 있는 경우, 그 재료는 ACP(Anisotropic Conductive Paste)라고 불리는 경우도 있다.
- [0133] 필름상 접착제(40)의 두께는 6 내지 50 μ m인 것이 바람직하다. 필름상 접착제(40)의 두께가 6 μ m 미만이면 회로 전극(22, 32) 사이에 회로 접속 재료(5)가 충전 부족이 되는 경향이 있다. 한편, 50 μ m를 초과하면, 회로 전극(22, 32) 사이의 회로 접속 재료(5)를 충분히 전부 배제할 수 없게 되어, 회로 전극(22, 32) 사이의 도통 확보가 곤란해지는 경향이 있다.
- [0134] 이어서, 필름상 접착제(40)를 제1 회로 부재(20)의 회로 전극(22)이 형성되어 있는 면 상에 얹는다. 또한, 필름상 접착제(40)가 지지체(도시하지 않음) 상에 부착되어 있는 경우에는, 필름상 접착제(40)측을 제1 회로 부재(20)를 향하도록 하고, 제1 회로 부재(20) 상에 얹는다. 이때, 필름상 접착제(40)는 필름상이고, 취급이 용이하다. 이로 인해, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30) 사이에 필름상 접착제(40)를 용이하게 개재시킬 수 있고, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30)의 접속 작업을 용이하게 행할 수 있다.
- [0135] 그리고, 필름상 접착제(40)를 도 3의 (a)의 화살표 A 및 B 방향으로 가압하여, 필름상 접착제(40)를 제1 회로 부재(20)에 임시 접속한다(도 3의 (b) 참조). 이때, 가열하면서 가압해도 된다. 단, 가열 온도는 필름상 접착제(40)(필름상 접착제(40)를 구성하는 회로 접속 재료(5))가 경화하지 않는 온도보다도 낮은 온도로 한다.
- [0136] 계속해서, 도 3의 (c)에 도시한 바와 같이, 제2 회로 부재(30)를 제2 회로 전극(32)을 제1 회로 부재(20)를 향하도록 하여 필름상 접착제(40) 상에 얹는다. 또한, 필름상 접착제(40)가 지지체(예를 들어 상술한 필름상 기재(도시하지 않음)) 상에 부착되어 있는 경우에는, 지지체를 박리하고 나서 제2 회로 부재(30)를 필름상 접착제(40) 상에 얹는다. 이때 제1 및 제2 회로 전극(22, 23)이 서로 대향하도록 위치 정렬을 하고 나서, 제2 회로 부재(30) 위로부터 가열, 가압함으로써 제2 회로 부재(30)를 임시 고정할 수 있다. 이렇게 함으로써 계속되는 본 접속 시의 전극의 위치 어긋남을 억제할 수 있다. 임시 고정 시의 가열 온도는 필름상 접착제(40) 중의 회로 접속 재료(5)가 경화하지 않는 온도보다도 낮은 온도로 하고, 스루풋 단축을 위해 위치 정렬부터 임시 고정 완료까지의 시간은 5초 이하인 것이 바람직하다.
- [0137] 그리고, 필름상 접착제(40)를 가열하면서, 도 3의 (c)의 화살표 A 및 B 방향으로 제1 및 제2 회로 부재(20, 30)를 통하여 가압한다. 이때의 가열 온도는, 중합 반응이 개시 가능한 온도로 한다. 이렇게 해서, 필름상 접착제(40)가 경화 처리되어서 본 접속이 행하여져, 도 2에 도시한 바와 같은 회로 접속 구조체가 얻어진다.
- [0138] 여기서, 접속 조건은 상술한 바와 같이, 가열 온도 100 내지 250℃, 압력 0.1 내지 10MPa, 접속 시간 0.5초 내지 120초간인 것이 바람직하다. 이러한 조건은, 사용하는 용도, 회로 접속 재료, 회로 부재에 따라 적절히 선택되고, 필요에 따라, 후경화를 행해도 된다.

- [0139] 상기와 같이 하여 회로 접속 구조체를 제조함으로써, 얻어지는 회로 접속 구조체에 있어서, 도전성 입자(7)를 대향하는 회로 전극(22, 32)의 양쪽에 접촉시키는 것이 가능하게 되어, 회로 전극(22, 32) 사이의 접속 저항을 충분히 저감할 수 있다.
- [0140] 또한, 필름상 접착제(40)의 가열에 의해, 회로 전극(22)과 회로 전극(32) 사이의 거리를 충분히 작게 한 상태에서 회로 접속 재료(5)가 경화하여 절연성 물질(11)이 되고, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30)가 접속 부재(10)를 통하여 견고하게 접속된다. 즉, 얻어지는 회로 접속 구조체에 있어서는, 접속 부재(10)가 상술한 회로 접속 재료를 포함하는 절연성 물질(11)을 구비하는 것으로부터, 회로 부재(20 또는 30)에 대한 접속 부재(10)의 접착 강도가 충분히 높아짐과 함께, 전기적으로 접속한 회로 전극 간의 접속 저항을 충분히 저감할 수 있다. 또한, 고온고습 환경 하에 장기간 두어진 경우에도, 회로 부재(20, 30)와 접속 부재(10)의 계면에서의 박리 기포의 발생을 충분히 억제할 수 있음과 함께, 접착 강도의 저하 및 접속 저항의 증대를 충분히 억제할 수 있다.
- [0141] 이상, 본 발명의 적합한 실시 형태에 대하여 설명했지만, 본 발명은 상기 실시 형태에 한정되는 것은 아니다.
- [0142] 예를 들어, 본 발명은 상기 열가소성 수지, 상기 라디칼 중합성 화합물, 상기 라디칼 중합 개시제 및 상기 무기 미립자를 함유하는 조성물의, 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료로서의 용도라고 할 수도 있다. 또한, 본 발명은 상기 열가소성 수지, 상기 라디칼 중합성 화합물, 상기 라디칼 중합 개시제 및 상기 무기 미립자를 함유하는 조성물의, 서로 대향하는 2개의 회로 부재를 전기적으로 접속하기 위한 회로 접속 재료의 제조를 위한 용도라고 할 수도 있다.
- [0143] 이 용도 시에, 상기 라디칼 중합성 화합물의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 40질량% 이상이고, 상기 라디칼 중합성 화합물 중 분자량 1000 이하의 화합물의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 15질량% 이하이고, 상기 무기 미립자의 함유량은, 상기 조성물의 전량 기준으로 5 내지 30질량%이고, 상기 조성물은, 적어도 상기 화학식 1로 표시되는 화합물을 함유한다.
- [0144] 이 용도에 의하면, 라디칼 중합형이면서, 회로 부재를 접속 후에 고온고습 환경 하에 방치한 경우에도, 회로 부재와의 계면에서의 박리 기포의 발생을 충분히 억제할 수 있고 또한 충분한 접속 신뢰성을 유지할 수 있는, 상술한 회로 접속 재료를 얻을 수 있다.
- [0145] 실시예
- [0146] 이하, 실시예에 의해 본 발명을 보다 구체적으로 설명하는데, 본 발명은 실시예에 한정되는 것은 아니다.
- [0147] (제조예 1: 열가소성 수지의 합성)
- [0148] 환류 냉각기, 온도계 및 교반기를 구비한 세퍼러블 플라스크에, 에테르 결합을 갖는 디올로서 폴리프로필렌글리콜(Mn=2000) 1000질량부 및 용매로서 메틸에틸케톤 4000질량부를 첨가하고, 40℃에서 30분간 교반하였다. 이 용액을 70℃까지 승온한 후, 촉매로서 디메틸주석라우레이트 1질량부를 첨가하고, 계속해서, 이 용액에 대하여 디이소시아네이트 화합물로서 4,4-디페닐메탄-디이소시아네이트 125질량부를 메틸에틸케톤 125질량부에 용해시킨 용액을 1시간에 걸쳐 적하하였다.
- [0149] 그 후, 적외선 분광 광도계로 NCO(이소시아네이트기)의 흡수 피크를 볼 수 없게 될 때까지 70℃에서 교반을 계속하여, 폴리우레탄 수지의 메틸에틸케톤 용액을 얻었다. 이 용액을 고형분 농도가 30질량%로 되도록 조정하고, 실시예 및 비교예에서 사용하였다.
- [0150] 얻어진 폴리우레탄 수지의 폴리스티렌 환산의 중량 평균 분자량은, GPC에 의한 측정의 결과, 320000이었다. GPC의 분석 조건을 하기 표 1에 나타내었다.

표 1

장치	도소 가부시끼가이샤 제조 GPC-8020
검출기	도소 가부시끼가이샤 제조 RI-8020
컬럼	히다치 가세이 고교 가부시끼가이샤 제조 Gelpack GL-A-160-S+GL-A150-SG2000Hhr
시료 농도	120mg/3ml
용매	테트라히드로푸란
주입량	60μl
압력	30kgf/cm ²
유량	1.00ml/min

[0151]

- [0152] (제조예 2: 라디칼 중합성 화합물의 합성)
- [0153] 온도계, 교반기, 불활성 가스 도입구 및 환류 냉각기를 구비한 2리터의 4구 플라스크에, 폴리카르보네이트디올 (알드리치사제, 수 평균 분자량 2000) 4000질량부, 2-히드록시에틸아크릴레이트 238질량부, 히드로퀴논모노메틸 에테르 0.49질량부 및 주석계 촉매 4.9질량부를 투입하여 70℃로 가열하고, IPDI(이소포론다이소시아네이트) 666질량부를 3시간에 걸쳐 균일하게 적하하고, 반응시켰다. 적하 완료 후 15시간 반응을 계속하고, NCO%(우레 탄기에 대한 이소시아네이트기의 양)가 0.2% 이하로 된 시점을 반응 종료로 하여, 우레탄 아크릴레이트를 얻었다. GPC에 의한 분석의 결과, 얻어진 우레탄 아크릴레이트의 중량 평균 분자량은 8500이었다. 또한, GPC 분석은 표 1의 조건에서 행하였다.
- [0154] (제조예 3: 도전성 입자의 제작)
- [0155] 폴리스티렌 입자의 표면 상에, 두께 0.2 μ m의 니켈을 포함하는 층을 설치하고, 이어서 이 니켈을 포함하는 층의 표면 상에, 두께 0.04 μ m로 되도록 금을 포함하는 층을 형성하였다. 이렇게 하여 평균 입자 직경 5 μ m의 도전성 입자를 제작하였다.
- [0156] (실시에 1 내지 6 및 비교예 1 내지 4)
- [0157] (a) 성분의 열가소성 수지로서는, 페녹시 수지(PKHC, 유니온 카바이트사제 상품명, 중량 평균 분자량(45000, 표 중 「PKHC」라고 나타냄) 40g을 메틸에틸케톤 60g에 용해한 고형분 농도 40질량%의 용액, 및 제조예 1에서 얻어진 폴리우레탄 수지(표 중 「PU」라고 나타냄)의 고형분 농도 30질량%의 용액을 사용하였다.
- [0158] 또한, (b) 성분의 라디칼 중합성 화합물로서는, 제조예 2에서 얻어진 우레탄 아크릴레이트(표 중 「UA」라고 나타냄), 시클로헥실아크릴레이트(도아 고세 가부시끼가이샤 제조, 표 중 「CHA」라고 나타냄), 2-(메트)아크릴로 일옥시에틸포스페이트(라이트에스테르 P-2M, 교에샤 가부시끼가이샤 제조 상품명, 표 중 「P-2M」라고 나타냄), 및 3-메타크릴옥시프로필트리메톡시실란(KBM503, 신에쓰 가가꾸 고교 가부시끼가이샤 제조 상품명, 실란 커플링제, 표 중 「KBM」라고 나타냄)을 사용하였다.
- [0159] 또한, (c) 성분의 라디칼 중합 개시제로서는, t-헥실폐옥시-2-에틸헥사노에이트(퍼헥실 0, 유시 세형 가부시끼가이샤 제조 상품명, 표 중 「과산화물」이라고 나타냄)를 사용하였다.
- [0160] 또한, (d) 성분의 무기 미립자로서는 R711(닛본 에어로실 가부시끼가이샤 제조 상품명, 표 중 「R711」라고 나타냄) 10g을, 톨루엔 45g 및 아세트산에틸 45g의 혼합 용매에 분산시켜서, 10질량%의 용액으로서 사용하였다.
- [0161] 상기 각 성분을 표 2에 기재된 고형분 중량비가 되도록 배합하고, 계속하여 제조예 3에서 얻어진 도전성 입자를, 접착제 성분의 총 부피에 대하여 1.5부피% 배합하여 분산시키고, 도공액을 얻었다. 얻어진 도공액을, 두께 50 μ m의 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 필름에 도포 시공 장치를 사용하여 도포하고, 70℃, 10분의 열풍 건조를 행하여, 두께 16 μ m의 필름상 접착제를 얻었다.
- [0162] 각 실시에 및 비교예의 필름상 접착제에서의 라디칼 중합성 화합물의 함유량, 분자량이 1000을 초과하는 라디칼 중합성 화합물((b-1) 성분)의 함유량, 분자량 1000 이하의 라디칼 중합성 화합물((b-2) 성분)의 함유량 및 무기 미립자의 함유량은, 각각의 배합량으로부터 계산하여 표 3에 기재된 대로였다(모두 회로 접속 재료(필름상 접착제의 도전성 입자 이외의 성분)의 전량 기준의 질량%). 또한, 실란 커플링제의 3-메타크릴옥시프로필트리메톡시실란은 (b-2) 성분에 포함된다.

표 2

	(a) 성분		(b) 성분				(c) 성분	(d) 성분
	PKHC	PU	(b-1)		(b-2)		과산화물	R711
			UA	CHA	P-2M	KBM(실란 커플링제)		
실시예 1	35	15	50	0	3	3	3	20
실시예 2	25	15	60	0	3	3	3	20
실시예 3	15	15	70	0	3	3	3	20
실시예 4	35	15	50	0	3	3	3	30
실시예 5	25	15	50	10	3	3	3	20
비교예 1	45	15	40	0	3	3	3	0
비교예 2	45	15	40	0	3	3	3	5
비교예 3	25	15	45	15	3	3	3	20
비교예 4	35	15	30	20	3	3	3	0
비교예 5	35	15	50	0	3	0	3	20

[0163]

표 3

	(b) 성분 함유량	(b-1) 성분 함유량	(b-2) 성분 함유량	(d) 성분 함유량
실시예 1	43.4	38.8	4.7	15.5
실시예 2	51.2	46.5	4.7	15.5
실시예 3	58.9	54.3	4.7	15.5
실시예 4	40.3	36.0	4.3	21.6
실시예 5	51.2	38.8	12.4	15.5
비교예 1	42.2	36.7	5.5	0.0
비교예 2	40.4	35.1	5.3	4.4
비교예 3	51.2	34.9	16.3	15.5
비교예 4	51.4	27.5	23.9	0.0
비교예 5	42.1	39.7	2.4	15.9

[0164]

[0165] (실시예 6 내지 10 및 비교예 6 내지 10)

[0166] 실시예 1 내지 5 및 비교예 1 내지 5의 각 필름상 접착제를 사용하여, 실시예 6 내지 10 및 비교예 6 내지 10의 접속 구조체를 제작하였다.

[0167] 구체적으로는, 상기 필름상 접착제를, 70℃의 온도에서 1MPa, 2초간의 조건에서 두께 0.2μm의 산화인듐(ITO)의 박막이 형성된 유리 기판(두께 1.1mm)에 전사로 하였다. 이어서, 이 유리 기판과, 라인 폭 75μm, 피치 150μm 및 두께 18μm의 구리 회로 500개가 에폭시 수지계 접착제로 폴리이미드 상에 배선된 플렉시블 회로판(FPC 기판)을 필름상 접착제를 통하여 대향하도록 배치하고, 열 압착 장치(가열 방식: 콘스탄트히트형, 도레이 엔지니어링 가부시끼가이샤 제조)를 사용해서 160℃의 온도에서 3MPa에서 10초간의 가열 가압을 행하였다. 이에 의해, 폭 2mm에 걸쳐 FPC 기판과 유리 기판(ITO 기판)이 필름상 접착제의 경화물(접속 부재)에 의해 접속된 접속체(회로 접속 구조체)를 얻었다.

[0168] (회로 접속 구조체의 평가 1: 초기 접속 저항의 평가)

[0169] 실시예 및 비교예에서 얻어진 회로 접속 구조체에 대해서, 각각 인접 회로 간의 저항값(접속 저항)을 멀티미터로 측정하였다. 인접 회로 간의 저항 37점의 평균을 초기 접속 저항의 평가 결과로 하였다. 평가 결과를 표 4에 나타내었다.

[0170] (회로 접속 구조체의 평가 2: 초기 접착력의 평가)

[0171] 실시예 및 비교예에서 얻어진 회로 접속 구조체에 대해서, 각각 접속 부재와 FPC 기판 사이의 접착력을 JIS-Z0237에 준한 90도 박리법으로 측정하고, 측정된 값을 초기 접착력의 평가 결과로 하였다. 또한, 접착력의 측정 장치는 도요 볼드윈 가부시끼가이샤 제조 텐실론 UTM-4(박리 속도 50mm/min, 25℃)를 사용하였다. 평가 결과를 표 4를 나타낸다.

[0172] (회로 접속 구조체의 평가 3: 고온고습 시험 후의 특성 평가)

[0173] 실시예 및 비교예에서 얻어진 회로 접속 구조체를, 85℃, 85% RH의 조건 하에 250시간 유지하고, 측정 샘플을

얻었다. 얻어진 샘플에 대해서, 상기 평가 1 및 2과 동일한 방법에 의해, 접속 저항 및 접착력의 평가를 행하였다. 평가 결과를 표 4에 나타내었다.

[0174] 또한, 얻어진 샘플에 대해서, 현미경(상품명: ECLIPSE L200, 가부시끼가이샤 니콘제)을 사용하여, 접속 부재와 FPC 기판의 계면, 및 접속 부재와 유리 기판의 계면에서의 박리의 유무를 조사하였다. 계면 박리가 없었던 것을 「A」, 계면 박리가 조금 있었던 것을 「B」, 실용상 문제가 있을 정도로 계면 박리가 발생하고 있었던 것을 「C」로서 평가하였다. 평가 결과를 표 4에 나타내었다.

표 4

	필름상 접착제	접속 저항(Ω)		접착력(N/cm)		계면 박리
		초기	고온고습 시험 후	초기	고온고습 시험 후	
실시에 6	실시에 1	0.9	1.3	9.7	9.7	A
실시에 7	실시에 2	1.0	1.3	9.7	9.6	A
실시에 8	실시에 3	1.0	1.4	9.2	9.1	A
실시에 9	실시에 4	1.1	2.0	10.6	10.2	A
실시에 10	실시에 5	1.0	1.2	8.8	8.7	A
비교예 6	비교예 1	0.9	25.9	9.1	5.4	B
비교예 7	비교예 2	1.2	9.8	8.6	7.3	B
비교예 8	비교예 3	0.9	1.2	8.3	8.0	C
비교예 9	비교예 4	1.0	4.8	8.8	6.3	C
비교예 10	비교예 5	1.1	1.6	9.1	8.4	C

[0175] 표 4에 나타낸 결과로부터 명백해진 바와 같이, 실시에 6 내지 10에서 얻어진 회로 접속 구조체는, 초기 및 고온고습 시험 후의 어느 경우에도 3 Ω 이하의 저항값을 나타내고, 접속 부재와 회로 부재의 계면에 박리 기포 등은 발생하지 않았다.

[0177] 한편, 무기 미립자를 포함하지 않는 비교예 1의 필름상 접착제를 사용하여 얻어진 비교예 6의 회로 접속 구조체와, 무기 미립자의 함유량이 5질량% 미만인 비교예 2의 필름상 접착제를 사용하여 얻어진 비교예 7의 회로 접속 구조체에서는, 고온고습 시험 후에, 접속 저항이 현저하게 상승하고, 접착력이 저하되어, 접속 부재와 회로 부재의 계면에 박리가 보였다. 또한, (b-2) 성분의 함유량이 15질량%를 초과하는 비교예 3의 필름상 접착제를 사용하여 얻어진 비교예 8의 회로 접속 구조체와, 실란 커플링제를 함유하지 않는 비교예 5의 필름상 접착제를 사용하여 얻어진 비교예 10의 회로 접속 구조체에서는, 고온고습 시험 후에 접속 부재와 회로 부재의 계면에 현저하게 박리가 발생하였다. 또한, 무기 미립자를 포함하지 않고, (b-2) 성분의 함유량이 15질량%를 초과하는 비교예 4의 필름상 접착제를 사용하여 얻어진 비교예 9의 회로 접속 구조체에서는, 접속 저항이 상승하고, 접착력이 저하되어, 접속 부재와 회로 부재의 계면에 현저하게 박리가 발생하였다.

[0178] (실시에 11 내지 15 및 비교예 11 내지 15))

[0179] 실시에 1 내지 5 및 비교예 1 내지 5의 필름상 접착제의 제조에 사용한 도공액을 각각, 두께 50 μ m의 폴리에틸렌 테레프탈레이트(PET) 필름 상에 10m 도포 시공하고, 70℃, 10분의 열풍 건조를 행하고, PET 필름 상에 두께 16 μ m의 필름상 접착제를 형성하여, PET 필름과 필름상 접착제를 구비하는 접착 필름을 얻었다.

[0180] 얻어진 접착 필름을, 폭 2mm로 재단하고, 내경 66mm의 릴상으로 권중하여, 접착 필름의 권중체를 얻었다.

[0181] (접착 필름의 권중체의 평가)

[0182] 얻어진 접착 필름의 권중체 선단부에, 75g의 하중을 고정해서 30℃ 분위기 하에서 6시간 하중을 축 늘어뜨린 채 방치하였다. 방치 후의 권중체를 관찰하고, PET 필름 사이로부터의 필름상 접착제의 스며나옴 유무를 확인하였다. 또한, 방치 후의 권중체로부터 접착 필름을 인출하고, 필름상 접착제의 PET 필름 이면에서의 전사의 유무를 확인하였다. 스며나옴 및 전사 모두 보이지 않았던 경우를 「A」, 전사는 보이지 않았지만 스며나옴이 보였던 경우를 「B」, 스며나옴 및 전사가 모두 보였던 경우를 「C」로서 평가하였다. 평가 결과를 표 5에 나타내었다.

표 5

	도공액	권중체 평가
실시예 11	실시예 1	A
실시예 12	실시예 2	A
실시예 13	실시예 3	A
실시예 14	실시예 4	A
실시예 15	실시예 5	A
비교예 11	비교예 1	C
비교예 12	비교예 2	B
비교예 13	비교예 3	B
비교예 14	비교예 4	C
비교예 15	비교예 5	A

[0183]

[0184]

표 5에 나타난 결과로 명백해진 바와 같이, 실시예 11 내지 15에서 얻어진 접착 필름에서는 30℃ 75g의 하중 하 6시간 방치 후에서도 필름상 접착제의 스며나옴은 보이지 않고, PET 필름 이면의 전사도 보이지 않았다. 한편, 비교예 11 내지 13에서는, 권중체에 있어서 PET 필름 사이로부터의 필름상 기재의 스며나옴이 보였다. 또한, 비교예 11, 14에서는, 스며나옴 뿐만 아니라, PET 필름 이면의 필름상 접착제의 전사가 보였다.

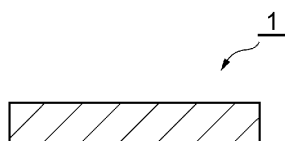
부호의 설명

[0185]

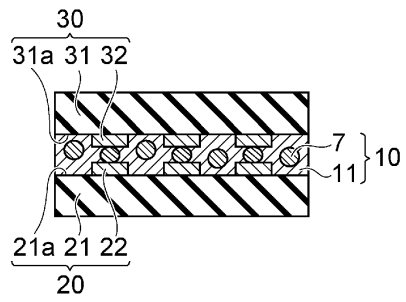
- 1: 필름상 접착제
- 5: 회로 접속 재료
- 7: 도전성 입자
- 10: 접속 부재
- 11: 절연성 물질
- 20: 제1 회로 부재
- 21: 회로 기관(제1 회로 기관)
- 21a: 주면
- 22: 회로 전극(제1 회로 전극)
- 30: 제2 회로 부재
- 31: 회로 기관(제2 회로 기관)
- 31a: 주면
- 32: 회로 전극(제2 회로 전극)
- 40: 필름상 접착제

도면

도면1



도면2



도면3

