

(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
2024年7月18日(18.07.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/150765 A1

(51) 国際特許分類:

C09J 163/00 (2006.01) C09J 11/04 (2006.01)
C09J 7/35 (2018.01) C09J 11/06 (2006.01)
C09J 9/02 (2006.01) H05K 1/03 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/000306

(22) 国際出願日: 2024年1月10日(10.01.2024)

(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 2023-002974 2023年1月12日(12.01.2023) JP

(71) 出願人: 株式会社レゾナック (RESONAC CORPORATION) [JP/JP]; 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目9番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 山崎 裕太 (YAMAZAKI Yuta); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目9番1号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 富坂 克彦 (TOMISAKA Katsuhiko); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目9番1号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 森谷 敏光 (MORIYA Toshimitsu); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目9番1号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 宮地 勝将

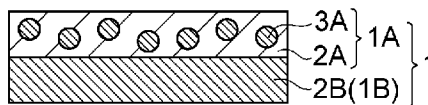
(MIYAJI Masayuki); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目9番1号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP). 小林 亮太 (KOBAYASHI Ryohta); 〒1057325 東京都港区東新橋一丁目9番1号 株式会社レゾナック内 Tokyo (JP).

(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 M Y P L A Z A (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, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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.

(54) Title: ADHESIVE COMPOSITION, ADHESIVE FILM FOR CIRCUIT CONNECTION, CONNECTION STRUCTURE, 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、接続構造体及び接続構造体の製造方法



(57) Abstract: An adhesive composition according to the present invention contains a cationically polymerizable compound and a curing agent. The cationically polymerizable compound contains an epoxy compound having three or more functional groups and an epoxy equivalent weight of more than 100 g/eq to 250 g/eq. The curing agent contains a pyridinium salt, 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. An adhesive film for circuit connection according to the present invention comprises an adhesive layer formed from the adhesive composition.

(57) 要約: 回路接続用接着剤フィルムは、カチオン重合性化合物と、硬化剤と、を含有し、カチオン重合性化合物が、3官能以上であり、且つ、エポキシ当量が100g/eq超250g/eq以下であるエポキシ化合物を含み、硬化剤が、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。当該接着剤組成物により形成された接着剤層を備える。

[続葉有]

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

添付公開書類:

— 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、接続構造体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、接続構造体及び接続構造体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、回路接続を行うために各種の接着材料が使用されている。例えば、液晶ディスプレイと液晶駆動用集積回路との接続、液晶ディスプレイとテープキャリアパッケージ（TCP）との接続、フレキシブルプリント配線基板（FPC）とTCPとの接続、又はFPCとプリント配線板との接続のための接着材料として、接着剤中に導電粒子が分散された接着剤フィルムが使用されている（例えば、特許文献1参照）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2014-084400号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] ところで、接着剤フィルムには、実用上の観点から、低温から高温にかけて幅広い温度範囲の実装に用いることが可能であることが望ましい。

[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く、気泡の発生が少ない耐HAST性を有していることが求められている。

[0006] そこで、本開示の一側面は、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試験後であっても外観が優れ、気泡の発生が少ない接着剤組成物を提供することを目的する。また、本開示の他の側面は、当該接着剤組成物を用いた接着剤組成物、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]～[13]を含む。

[1] カチオン重合性化合物と、硬化剤と、を含有し、

前記カチオン重合性化合物が、3官能以上であり、且つ、エポキシ当量が100g/eq超250g/eq以下であるエポキシ化合物を含み、

前記硬化剤が、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] 前記エポキシ化合物が芳香環を有する、[1]に記載の接着剤組成物。

[3] 前記エポキシ化合物が室温で固体である、[1]又は[2]に記載の接着剤組成物。

[4] 前記カチオン重合性化合物が、トリスフェノールメタン構造を有するエポキシ化合物、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、前記有機基に結合した芳香族環と、を有し、前記芳香族環がエポキシ基を含む置換基を有するエポキシ化合物、及び、ナフタレン構造を有するエポキシ化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含む、[1]～[3]のいずれか一つに記載の接着剤組成物。

[5] 前記電子求引基が、シアノ基又はハロゲン基である、[1]～[4]のいずれか一つに記載の接着剤組成物。

〔 6 〕 前記電子供与基が、アルキル基又はアルコキシ基である、〔 1 〕 ～ 〔 5 〕 のいずれか一つに記載の接着剤組成物。

〔 7 〕 前記ベンジル基が有する前記電子供与基の数が 3 であり、
前記電子供与基がアルキル基である、〔 1 〕 ～ 〔 6 〕 のいずれか一つに記載の接着剤組成物。

〔 8 〕 前記ピリジニウム塩が、ピリジニウムカチオンと、アニオンと、を含み、
前記アニオンが $B(C_6F_5)_4^-$ である、〔 1 〕 ～ 〔 7 〕 のいずれか一つに記載の接着剤組成物。

〔 9 〕 導電粒子を更に含有する、〔 1 〕 ～ 〔 8 〕 のいずれか一つに記載の接着剤組成物。

〔 1 0 〕 〔 1 〕 ～ 〔 9 〕 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接着剤層を備える、回路接続用接着剤フィルム。

〔 1 1 〕 第一の接着剤層と、前記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、

前記第一の接着剤層及び前記第二の接着剤層の少なくとも一方が、〔 1 〕 ～ 〔 9 〕 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層である、回路接続用接着剤フィルム。

〔 1 2 〕 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氣的に接続する接続部と、
を備え、

前記接続部が、〔 1 0 〕 又は 〔 1 1 〕 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。

〔 1 3 〕 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、〔 1 0 〕 又は 〔 1 1 〕 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氣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] 本開示の一側面によれば、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、本開示の他の側面によれば、当該接着剤組成物を用いた接着剤組成物、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、グリシジロ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>

本開示の一実施形態は、カチオン重合性化合物と、硬化剤と、を含有する接着剤組成物である。カチオン重合性化合物は、3官能以上であり、且つ、エポキシ当量が 100 g/eq 超 250 g/eq 以下であるエポキシ化合物を少なくとも含む。硬化剤は、ピリジニウム塩を少なくとも含有し、当該ピリジニウム塩は、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。

[0013] (カチオン重合性化合物)

カチオン重合性化合物は、例えば、加熱することによって硬化剤と反応して、架橋する化合物であってよく、3官能以上であり、且つ、エポキシ当量が 100 g/eq 超 250 g/eq 以下であるエポキシ化合物（このようなエポキシ化合物を「エポキシ化合物X」ともいう）を少なくとも含む。3官能以上のエポキシ化合物とは、エポキシ基の数が3以上のエポキシ化合物を意味する。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。

[0014] カチオン重合性化合物がエポキシ化合物Xを含むことにより、接着剤組成物の外観が優れ、気泡の発生が少なくなる理由について、以下のように推察される。すなわち、エポキシ化合物のエポキシ基の数が3以上であり、且つ、エポキシ当量が 250 g/eq 以下であることにより、接着剤組成物の架橋密度が高くなり、基板との接着性が向上し、HAST試験後であっても外観が優れる。また、エポキシ化合物のエポキシ基の数が3以上であり、且つ、エポキシ当量が 100 g/eq 超であることにより、当該接着剤組成物をフィルムとした際に、フィルムのタックを抑制でき、フィルムの貼り付け時

に基板とフィルムとの間に入る気泡が抜けやすくなるため、気泡の発生を抑制することができる。

[0015] エポキシ化合物Xが有するエポキシ基の数は、4以上であってもよく、15以下、12以下、10以下、8以下、6以下、又は4以下であってもよい。

[0016] エポキシ化合物Xのエポキシ当量は、105 g/eq以上、110 g/eq以上、120 g/eq以上、130 g/eq以上、140 g/eq以上、又は150 g/eq以上であってもよく、240 g/eq以下、230 g/eq以下、220 g/eq以下、210 g/eq以下、又は200 g/eq以下であってもよい。

[0017] エポキシ化合物Xは、芳香環を有するものであってもよい。エポキシ化合物Xが芳香環を有し、且つ、エポキシ当量が特定の範囲内であることにより、エポキシ化合物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、気泡の発生がより少ない接着剤組成物を得ることができる。

[0018] エポキシ化合物Xは、室温（25℃）で固体であってもよい。エポキシ化合物Xが室温で固体であり、且つ、エポキシ当量が特定の範囲内であることにより、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く、気泡の発生をより少なくすることができる。

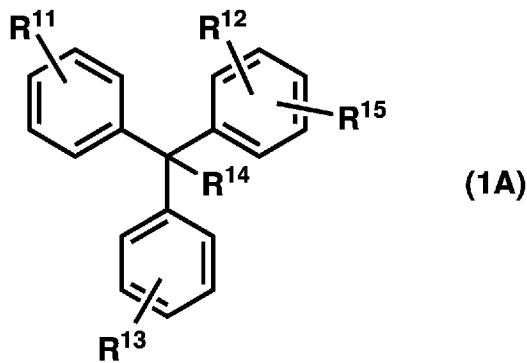
[0019] エポキシ化合物Xの分子量は、200以上、250以上、又は300以上であってもよく、1500以下、1000以下、900以下、800以下、700以下、又は650以下であってもよい。

[0020] エポキシ化合物Xとしては、例えば、トリスフェノールメタン構造を有するエポキシ化合物（以下、このようなエポキシ化合物を「化合物A」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、を有するエポキシ化合物（以下、このようなエポキシ化合物を「化合物B」ともいう）、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化合物（以下、この

ようなエポキシ化合物を「化合物C」ともいう)、及びナフタレン構造を有するエポキシ化合物(以下、このようなエポキシ化合物を「化合物D」ともいう)が挙げられる。

[0021] 化合物Aは、HAST試験後においても優れた優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、以下の一般式(1A)で表される化合物であってもよい。

[0022] [化1]



[式(1A)中、 R^{11} 、 R^{12} 、及び R^{13} は、各々独立に、水素原子、又は、有機基を表し、 R^{11} 、 R^{12} 、及び R^{13} 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^{14} は、水素原子、又は、アルキル基を表し、 R^{15} は、水素原子、又は、有機基を表す。]

[0023] R^{11} 、 R^{12} 、及び R^{13} 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^{11} 、 R^{12} 、及び R^{13} 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、グリシジロキシ基を有する有機基であってもよい。 R^{11} 、 R^{12} 、及び R^{13} は、それぞれ同一であってもよく、異なってもよい。 R^{11} 、 R^{12} 、及び R^{13} は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、いずれもグリシジル基を有する有機基であってもよく、グリシジロキシ基を有する有機基であってもよい。

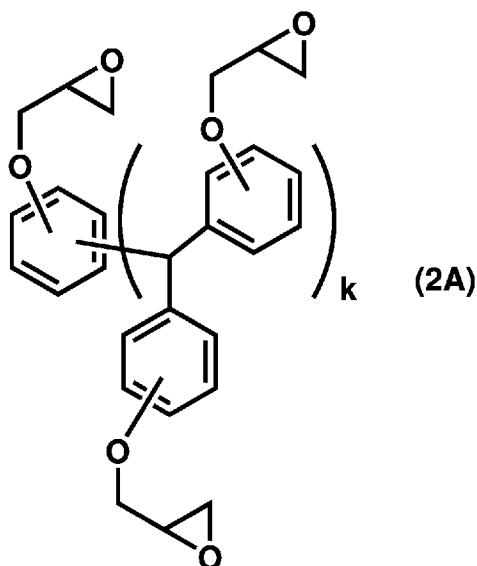
[0024] R^{14} がアルキル基である場合、アルキル基は、例えば、メチル基、エチル基、又はプロピル基であってもよい。アルキル基は、置換基を有していてもよい。 R^{14} は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、水素原子であってもよい。

[0025] R^{15} 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^{15} は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、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、又はグリシジロキシ基を有していてもよい。 R^{15} は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、グリシジロ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。

[0026] 化合物Aが有するエポキシ基の数は、15以下、12以下、又は10以下であってもよい。

[0027] 化合物Aは、具体的には、下記式(2A)で表される化合物であってもよい。

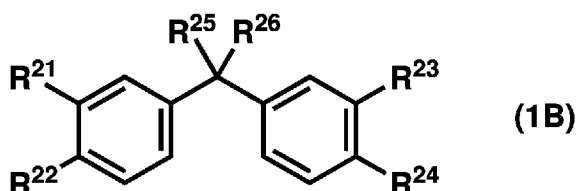
[化2]



[式(2A)中、 k は、1～3の整数を表す。]

[0028] 化合物Bは、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、以下の一般式(1B)で表される化合物であってもよい。

[0029] [化3]



[式(1B)中、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、及び R^{24} 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、グリシジロキシ基を有する有機基を表し、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、及び R^{24} 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^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、及び R^{24} のうちの少なくとも1つは、グリシジロキシ基を有する有機基を表し、 R^{25} 、及び R^{26} は、各々独立に、水素原子、又は、有機基を表す。]

[0030] R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、及び R^{24} 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。

[0031] R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、及び R^{24} は、それぞれ同一であってもよく、異なってもよい。HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、 R^{21} 、及び R^{22} は、それぞれ異なってもよく、 R^{21} 、及び R^{22} 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、他方がグリシジロキシ基を有する有機基であってもよい。HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、 R^{23} 、及び R^{24} は、それぞれ異なってもよく、 R^{23} 、及び R^{24} 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、他方がグリシジロキシ基を有する有機基であってもよい。

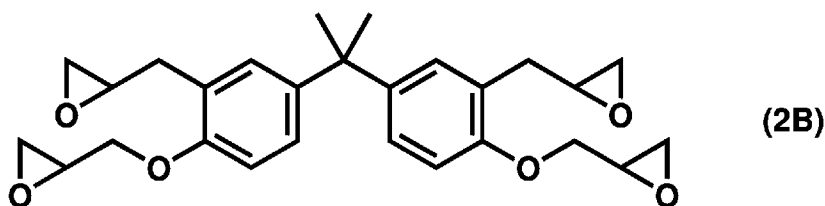
[0032] R^{25} 、及び／又は R^{26} が有機基である場合、有機基としては、例えば、アルキル基、アリール基、アルキルエーテル基、及びアルケニル基が挙げられる。これらの有機基は、置換基を有していてもよい。アルキル基は、例えば、メチル基、エチル基、又はプロピル基であってもよい。アルキル基は、置換基を有していてもよい。 R^{25} 、及び R^{26} は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、水素原子又はアルキル基であってもよく、メチル基であってもよい。

[0033] 化合物Bが有するエポキシ基の数は、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。

[0034] 化合物Bは、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、複数のグリシジル基と複数のグリシジロキシ基と、を有する化合物であってもよい。

[0035] 化合物Bとしては、具体的には、下記式(2B)で表される化合物であってもよい。

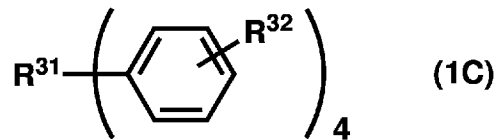
[化4]



[0036] 化合物Cは、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、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、それぞれ異なってもよく、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、同一であってもよい。化合物Cは、例えば、以下の一般式(1C)で表される化合物であってもよい。

[0037]

[化5]



[式(1C)中、 R^{31} は、4価の有機基を表し、 R^{32} は、エポキシ基を有する有機基を表す。]

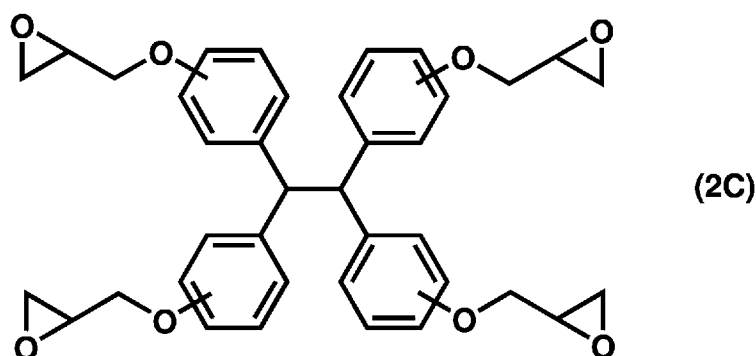
[0038] R^{31} が表す有機基としては、例えば、アルキル基、アルキルエーテル基、及びアルケニル基が挙げられる。これらの有機基は、置換基を有していてもよい。有機基の炭素数は、例えば、2以上、又は3以上であってもよく、8以下、6以下、4以下、又は3以下であってもよい。 R^{31} は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、アルキル基であってもよく、エチル基であってもよい。

[0039] R^{32} 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^{32} は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、グリシジルオキシ基を有する有機基であってもよい。

[0040] 化合物Cが有するエポキシ基の数は、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。

[0041] 化合物Cとしては、具体的には、下記式(2C)で表される化合物であってもよい。

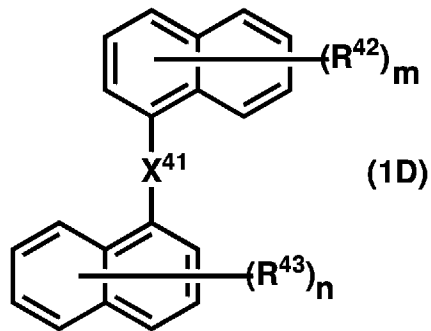
[化6]



[0042] 化合物Dは、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観

点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、以下の一般式（1D）で表される化合物であってもよい。

[0043] [化7]

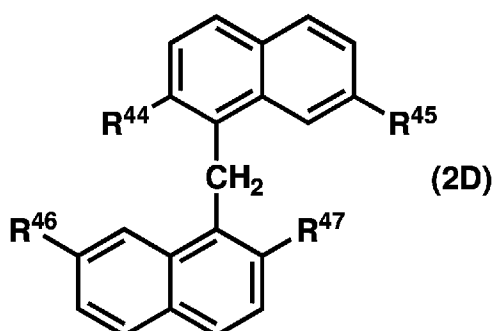


[式（1）中、 X^{41} は、酸素原子、硫黄原子、又は、炭素数1～10のアルキレン基を示し、 R^{42} 及び R^{43} は、それぞれ独立にグリシジル基、又はグリシジルオキシ基を示し、 m 及び n はそれぞれ独立に1～7の整数を示し、 $m+n$ が3以上である。]

[0044] X^{41} は、置換基を有していてもよい。 X^{41} がアルキレン基である場合、アルキレン基の炭素数は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、8以下、6以下、4以下、3以下、又は2以下であってもよい。 X^{41} は、HAST試験後においても優れた接続抵抗をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、エチレン基であってもよい。

[0045] 化合物Cとしては、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、下記式（2D）で表される化合物であってもよい。

[化8]



[式(2D)中、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} 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^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} のうちの3つ以上がグリシジル基又はグリシジルオキシ基である。]

[0046] 式(2D)中、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} 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。

[0047] カチオン重合性化合物は、化合物A～Dのいずれかを単独で含むものであってもよく、化合物A～Dののうちから2種以上を含むものであってもよい。カチオン重合性化合物は、トリスフェノールメタン構造を有するエポキシ化合物、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化合物、及び、ナフタレン構造を有するエポキシ化合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。

[0048] カチオン重合性化合物は、化合物A～Dと共に化合物A～D以外のカチオン重合性化合物を含むものであってもよい。化合物A～D以外のカチオン重合性化合物としては、エポキシ化合物(但し、化合物A～Dを除く)、ビニルエーテル化合物、オキセタン化合物等が挙げられる。

[0049] エポキシ化合物(但し、化合物A～Dを除く)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、ビスフェノールF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(ビー7-オキサビシクロ[4, 1, 0]ヘプタン)、3, 4-エポキシシクロヘキシルメチル(メタ)アクリレート、(3, 3', 4, 4'-ジエポキシ)ビシクロヘキシル、ジシクロペンタジエンジメタノールジグリシジルエーテル、キシレン-ノボラック型グリシ

ジルエーテル、ビフェニル型エポキシ樹脂等が挙げられる。エポキシ化合物は、ビスフェノール A 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、ジシクロペンタジエンジメタノールジグリシジルエーテル、及びキシレンーノボラック型グリシジルエーテル、脂環式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いてもよい。エポキシ化合物は、グリシジルエーテル系化合物を含んでいてもよい。低温硬化性の更なる向上の観点から、エポキシ化合物は、脂環式エポキシ樹脂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、エポキシ化合物は、脂環式エポキシ樹脂を含まなくてもよい。

[0050] カチオン重合性化合物は、エポキシ化合物 X と共に、2 官能以下のエポキシ化合物（以下、このようなエポキシ化合物を「エポキシ化合物 Y」ともいう）を含むものであってもよい。カチオン重合性化合物がエポキシ化合物 X と共にエポキシ化合物 Y を含むことにより、架橋密度を調整することができる。

[0051] エポキシ化合物 Y のエポキシ当量は、 100 g/eq 以上、 100 g/eq 超、 110 g/eq 以上、 120 g/eq 以上、 140 g/eq 以上、又は 160 g/eq 以上であってもよく、 300 g/eq 以下、 250 g/eq 以下、 220 g/eq 以下、又は 200 g/eq 以下であってもよい。

[0052] エポキシ化合物 X の含有量に対するエポキシ化合物 Y の含有量の比率（エポキシ化合物 Y の含有量／エポキシ化合物 X の含有量）は、0.1 以上、0.2 以上、0.5 以上、又は 0.8 以上であってもよく、10 以下、8 以下、6 以下、4 以下、2 以下、又は 1.5 以下であってもよい。

[0053] 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、カチオン重合性化合物は、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、カチオン重合性化合物は、オキセタン化合物を含まなくてもよい。カチオン重合性化合物は、化合物 X と共に、エポキシ化合物（但し、化合物 X を

除く)とオキセタン化合物と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、カチオン重合性化合物は、エポキシ化合物(但し、化合物Xを除く)とオキセタン化合物のうちの一方向のみを含んでいてもよい。エポキシ化合物(但し、化合物Xを除く)とオキセタン化合物のうちの一方向のみを含む場合とは、カチオン重合性化合物として、化合物Xと共に、化合物X以外のエポキシ化合物及びオキセタン化合物から選ばれる一種を単独で用いる場合、並びに、化合物Xと共に、化合物X以外のエポキシ化合物及びオキセタン化合物から選ばれる一種とビニルエーテル化合物等のカチオン重合性化合物とを併用する場合が挙げられる。

[0054] 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。

[0055] カチオン重合性化合物の含有量は、接着剤組成物の硬化性を十分に担保する観点から、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%以上であってよい。カチオン重合性化合物の含有量は、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%以下であってよい。

[0056] カチオン重合性化合物におけるエポキシ化合物（化合物A～Dを含む）の含有量は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、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エポキシ化合物（化合物A～Dを含む）の含有量は、実質的に100質量%（カチオン重合性化合物がエポキシ化合物（化合物A～Dを含む）からなる態様）であってもよい。

[0057] カチオン重合性化合物におけるエポキシ化合物Xの合計の含有量は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、カチオン重合性化合物の全質量を基準として、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。カチオン重合性化合物におけるエポキシ化合物Xの合計の含有量は、カチオン重合性化合物の全質量を基準として、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。

[0058] カチオン重合性化合物における化合物A～Dの合計の含有量は、HAST試験後においても優れた外観をより実現しやすい観点、及び気泡の発生がより少なくなる観点から、カチオン重合性化合物の全質量を基準として、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。カチオン重合性化合物における化合物A～Dの合計の含有量は、カチオン重合性化合物の全質量を基準として、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。

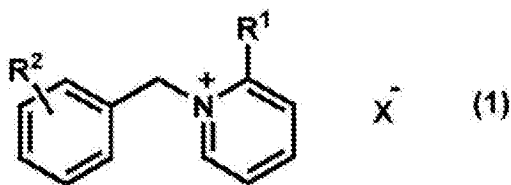
[0059] （硬化剤）

硬化剤は、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、このようなピリジニウム塩を「ピリジニウム塩A」ともいう）を含む。接着剤組成物が、カチオ

ン重合性化合物としてエポキシ化合物Xを含み、硬化剤として、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試験後であっても外観が優れ、気泡の発生が少ない接着剤組成物を得ることができる。

[0060] ピリジニウム塩Aは、例えば、下記一般式（3）で表される化合物であってよい。

[0061] [化9]



[式（1）中、R¹は、電子求引基を表し、R²は、電子供与基を表し、X⁻は、アニオンを表す。]

[0062] 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。

[0063] 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、及び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、及び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、及び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 以上であってよく、3 であってもよい。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よい。

[0064] 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。

[0065] 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、及び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。

[0066] ピリジニウム塩Aのアニオンは、 SbF_6^- 、 PF_6^- 、 $\text{PF}_x(\text{CF}_3)_{6-x}^-$ (但し、Xは1～5の整数)、 BF_4^- 、 $\text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_4^-$ 、 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)、 $\text{C}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_3^-$ 、 $\text{N}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2^-$ 、 $\text{O}(\text{SO}_2\text{CF}_3)^-$ 、 $\text{B}(\text{C}_6\text{H}_3(\text{CF}_3)_2)_4^-$ (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、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、 $\text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_4^-$ であってよい。

[0067] 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。

[0068] 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。

[0069] 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。

[0070] 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。

[0071] 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-クロロピリジンであってもよい。

[0072] 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であってもよい。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であってもよい。

[0073] 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。

[0074] 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。

[0075] 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。

[0076] 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。

[0077] 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、又は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。

[0078] 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（¹H-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。

[0079] 接着剤組成物における硬化剤の含有量は、硬化反応を十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%以上であってよい。接着剤組成物における硬化剤の含有量は、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%以下であってよい。これらの観点から、接着剤組成物における硬化剤の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、1～20質量%であってよい。

[0080] 接着剤組成物における硬化剤の含有量は、硬化反応を十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%以上であってよい。接着剤組成物における硬化剤の含有量は、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%以下であってよい。これらの観点から、接着剤組成物における硬化剤の含有量は、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%であってよい。

[0081] 接着剤組成物における硬化剤の含有量は、硬化反応を十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%以上であってよい。接着剤組成物における硬化剤の含有量は、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%以下であってよい。これらの観点から、接着剤組成物における硬化剤の含有量は、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%であってよい。

[0082] 接着剤組成物における硬化剤の含有量は、硬化反応を十分に促進させる観点から、カチオン重合性化合物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質量部以上であつ

てよい。接着剤組成物における硬化剤の含有量は、硬化物の物性を向上させる観点から、カチオン重合性化合物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よい。これらの観点から、接着剤組成物における硬化剤の含有量は、カチオン重合性化合物100質量部を基準として、1～40質量部であってよい。

[0083] (導電粒子)

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、電極同士を電氣的に接続する際に、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。

[0084] 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、1 μm 以上、2 μm 以上、又は2.5 μm 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、20 μm 以下、15 μm 以下、10 μm 以下、8 μm 以下、6 μm 以下、5.5 μm 以下、又は5 μm 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、1～20 μm 、1～15 μm 、1～10 μm 、1～8 μm 、又は1～6 μm であってよい。

[0085] 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。

[0086] 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、 100000 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、 $100 \sim 100000$ 個/ mm^2 、 $1000 \sim 50000$ 個/ mm^2 、又は $3000 \sim 30000$ 個/ mm^2 であってよい。

[0087] 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。

[0088] 導電粒子の含有量は、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 70 質量部以上であってよい。導電粒子の含有量は、カチオン重合性化合物 100 質量部を基準として、 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よい。

[0089] 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、熱可塑性樹脂、カップリング剤、充填材、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。

[0090] (熱可塑性樹脂)

接着剤組成物は、熱可塑性樹脂を更に含有してよい。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。

[0091] 熱可塑性樹脂の重量平均分子量(M_w)は、例えば、5000以上、10000以上、20000以上、又は40000以上であってよく、20000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。

[0092] 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、60質量%以下、50質量%以下、又は40質量%以下であってもよい。

[0093] 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、150質量部以下、120質量部以下、100質量部以下、80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もよい。

[0094] (カップリング剤)

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、これらの縮合物であってもよい。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用いてもよい。

[0095] 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。

[0096] カップリング剤の含有量は、カチオン重合性化合物100質量部を基準として、1質量部以上、3質量部以上、又は5質量部以上であってよい。カップリング剤の含有量は、カチオン重合性化合物100質量部を基準として、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よい。

[0097] (充填材)

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。

[0098] 無機フィラーとしては、シリカ粒子、アルミナ粒子、シリカーアルミナ粒子、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用いてもよい。

[0099] 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、及び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用いてもよい。

- [0100] 充填材は、フィルム成形性及び接結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。
- [0101] 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。
- [0102] 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、及び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。
- [0103] 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、及び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。
- [0104] 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、ヘプタフェニルジシロキサン、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、及びオクタフェニルオクタシルシルセスキオキサン等が挙げられる。

[0105] 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、及び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。

[0106] 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。

[0107] 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。

[0108] 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。

[0109] 充填材の含有量は、カチオン重合性化合物100質量部を基準として、1質量部以上、5質量部以上、又は10質量部以上であってよい。充填材の含有量は、カチオン重合性化合物100質量部を基準として、200質量部以下、150質量部以下、又は100質量部以下であってよい。

[0110] 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もよく、二種以上を組み合わせてもよい。

[0111] 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ロキシヒドロキシアリル（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。

[0112] 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用いてもよい。

[0113] 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-エチルヘキサノエート、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-エチルヘキサノエート、L-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、L-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルパーオキシイソブチレート、1, 1-ビス(t-ブチルパーオキシ)シクロヘキサン、t-ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、t-ブチルパーオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、t-ブチルパーオキシラウレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(m-トルオイルパーオキシ)ヘキサン、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。

[0114] 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。

[0115] 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。

[0116] 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。

[0117] 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。

[0118] 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。

[0119] <回路接続用接着剤フィルム>

接着剤組成物は、フィルム状であってよい。すなわち、本開示の他の一実施形態は、エポキシ化合物Xを含むカチオン重合性化合物と、ピリジニウム塩Aを含有する硬化剤と、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。

- [0120] 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、 $100\text{個}/\text{mm}^2$ 以上、 $1000\text{個}/\text{mm}^2$ 以上、又は $3000\text{個}/\text{mm}^2$ 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、 $100000\text{個}/\text{mm}^2$ 以下、 $50000\text{個}/\text{mm}^2$ 以下、又は $30000\text{個}/\text{mm}^2$ 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、 $100\sim100000\text{個}/\text{mm}^2$ 、 $1000\sim50000\text{個}/\text{mm}^2$ 、又は $3000\sim30000\text{個}/\text{mm}^2$ であってよい。
- [0121] 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、 $10\text{質量}\%$ 以上、 $20\text{質量}\%$ 以上、又は $25\text{質量}\%$ 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、 $50\text{質量}\%$ 以下、 $40\text{質量}\%$ 以下、又は $35\text{質量}\%$ 以下であってよい。
- [0122] 導電粒子の含有量は、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 70質量部 以上であってよい。導電粒子の含有量は、カチオン重合性化合物 100質量部 を基準として、 200質量部 以下、 150質量部 以下、 120質量部 以下、又は 100質量部 以下であってよい。
- [0123] 回路接続用接着剤フィルムにおけるカチオン重合性化合物の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの硬化性を十分に担保する観点から、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、 $10\text{質量}\%$ 以上、 $20\text{質量}\%$ 以上、 $25\text{質量}\%$ 以上、又は $30\text{質量}\%$ 以上であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおけるカチオン重合性化合物の含有量は、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、 $60\text{質量}\%$ 以下、 $50\text{質量}\%$ 以下、 $45\text{質量}\%$ 以下、又は $40\text{質量}\%$ 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カチオン重合性化合物の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、 $10\sim60\text{質量}\%$ であってよい。

- [0124] 回路接続用接着剤フィルムにおけるエポキシ化合物Xの含有量は、回路接続用接着剤フィルムの硬化性を十分に担保する観点から、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エポキシ化合物X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エポキシ化合物X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、10～50質量%であってよい。
- [0125] 回路接続用接着剤フィルムにおける化合物A～Dの合計の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの硬化性を十分に担保する観点から、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化合物A～Dの合計の含有量は、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化合物A～Dの合計の含有量は、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。
- [0126] 回路接続用接着剤フィルムにおける硬化剤の含有量は、硬化反応を十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%以上であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおける硬化剤の含有量は、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硬化剤の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を

基準として、1～20質量%であってよい。

[0127] 回路接続用接着剤フィルムにおける硬化剤の含有量は、硬化反応を十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%以上であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおける硬化剤の含有量は、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硬化剤の含有量は、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%であってよい。

[0128] 回路接続用接着剤フィルムにおける硬化剤の含有量は、硬化反応を十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%以上であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおける硬化剤の含有量は、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硬化剤の含有量は、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%であってよい。

[0129] 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、40質量%以下、30質量%以下、又は20質量%以下であってよい。

[0130] 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%以下であってよい。

[0131] 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%以下であってよい。

[0132] 回路接続用接着剤フィルムにおける各成分のカチオン重合性化合物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カチオン重合性化合物100質量部を基準とした含有量と同じ範囲内であってよい。

[0133] 回路接続用接着剤フィルムは、単層であってよく、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、エポキシ化合物Xを含むカチオン重合性化合物と、ピリジニウム塩Aを含有する硬化剤と、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、エポキシ化合物Xを含むカチオン重合性化合物と、ピリジニウム塩Aを含有する硬化剤と、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よい。

[0134] 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、第一の領域がエポキシ化合物Xを含むカチオン重合性化合物と、ピリジニウム

塩 A を含有する硬化剤と、を含有する領域であってよい。すなわち、回路接続用接着剤フィルムには、エポキシ化合物 X を含むカチオン重合性化合物と、ピリジニウム塩 A を含有する硬化剤と、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よい。

[0135] 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、アプリケーションャー、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。

[0136] 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、エポキシ化合物 X を含むカチオン重合性化合物と、ピリジニウム塩 A を含有する硬化剤と、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。

[0137] 回路接続用接着剤フィルム 1 の厚さは、例えば、 $3\text{ }\mu\text{m}$ 以上又は $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上であってよく、 $30\text{ }\mu\text{m}$ 以下又は $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下であってよい。

[0138] 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 3 A を含む層（接着剤成分 2 A と、接着剤成分 2 A 中に分散された導電粒子 3 A とからなる第一の接着剤層）1 A と、導電粒子を含まない層（接着剤成分 2 B からなる第二の接着剤層）1 B 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 1 A は、エポキシ化合物 X を含む

カチオン重合性化合物と、ピリジニウム塩 A を含有する硬化剤と、導電粒子と、を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 1 B は、エポキシ化合物 X を含むカチオン重合性化合物と、ピリジニウム塩 A を含有する硬化剤と、を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 1 B が含有する各成分の種類、含有量等は、第一の接着剤層 1 A と同じであってよく、異なってもよい。回路接続用接着剤フィルム 1 の第一の接着剤層 1 A 及び第二の接着剤層 1 B 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。

[0139] 第一の接着剤層 1 A の厚さは、例えば、 $1\ \mu\text{m}$ 以上又は $3\ \mu\text{m}$ 以上であってよく、 $15\ \mu\text{m}$ 以下又は $10\ \mu\text{m}$ 以下であってよい。第二の接着剤層 1 B の厚さは、例えば、 $1\ \mu\text{m}$ 以上又は $3\ \mu\text{m}$ 以上であってよく、 $20\ \mu\text{m}$ 以下又は $15\ \mu\text{m}$ 以下であってよい。第一の接着剤層 1 A の厚さは、第二の接着剤層 1 B の厚さと同じであってよく、異なってもよい。第一の接着剤層 1 A の厚さと第二の接着剤層 1 B の厚さとの比（第一の接着剤層 1 A の厚さ／第二の接着剤層 1 B 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。

[0140] 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。

[0141] <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氣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。

[0142] 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。

[0143] 第一の回路部材 4 は、第一の回路基板 4 1 と、第一の回路基板 4 1 の主面 4 1 a 上に形成された第一の電極 4 2 とを備えている。第二の回路部材 5 は、第二の回路基板 5 1 と、第二の回路基板 5 1 の主面 5 1 a 上に形成された第二の電極 5 2 とを備えている。

[0144] 第一の回路部材 4 及び第二の回路部材 5 は、電氣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。

[0145] 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 4 2 と第二の電極 5 2 との間のみならず、第一の回路基板 4 1 の主面 4 1 a と第二の回路基板 5 1 の主面 5 1 a との間に配置されていてもよい。構造体 3 0 においては、第一の電極 4 2 及び第二の電極 5 2 が、導電粒子 3 を介して電氣的に接続されている。すなわち、導電粒子 3 が第一の電極 4 2 及び第二の電極 5 2 の双方に接触している。

[0146] 構造体 1 0 においては、上述したように、対向する第一の電極 4 2 と第二の電極 5 2 とが導電粒子 3 を介して電氣的に接続されている。このため、第一の電極 4 2 及び第二の電極 5 2 間の接続抵抗が十分に低減される。したがって、第一の電極 4 2 及び第二の電極 5 2 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 が有する機能を十分に発揮させることができる。

[0147] <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氣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。

[0148] 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。

[0149] 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。

[0150] 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。

[0151] 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を互いに電氣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。

[0152] 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間の接続抵抗を十分に低減することができる。

[0153] 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間の距離を十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、接着強度が十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十分に抑制され、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

[0154] 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。

[0155] <硬化剤の作製>

[硬化剤B1の合成、分析]

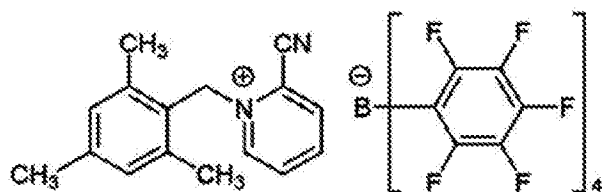
アセトニトリル100mLと、スターラーチップと、を300mL三角フラスコに入れ、マグネチックスターラー上に設置した。2-シアノピリジン12.5g(120mmol、東京化成工業株式会社製)、2,4,6-トリメチルベンジルクロリド16.8g(100mmol、東京化成工業株式会社製)、及びヨウ化ナトリウム17.8g(119mmol、東京化成工業株式会社製)を300mL三角フラスコ中のアセトニトリルに加え、室温(25℃)で24時間反応させて結晶を得た。得られた結晶をガラスフィルターでろ過し、ガラスフィルター上の結晶をアセトン及び蒸留水により洗浄後、真空乾燥することで、29.1gの2-シアノ-1-(2,4,6-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。

[0156] 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-シアノー1-(2, 4, 6-トリメチルベンジル)ピリジニウム・ヨード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時間攪拌することで、塩交換反応を行った。攪拌後、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。

[0157] 得られた化合物を核磁気共鳴スペクトル($^1\text{H-NMR}$ 、日本電子株式会社製、JNM-ECX40011)で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。 $^1\text{H-NMR}$ 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-シアノー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。

$^1\text{H-NMR}$ (400MHz, CD_3OD), δ : 2.26 (s, 6H), 2.32 (s, 3H), 6.10 (s, 2H), 7.08 (s, 2H), 8.25 (td, 1H, $J=3.2, 6.4\text{ Hz}$) 8.43 (d, 1H, $J=6.4\text{ Hz}$) 8.77-8.82 (m, 2H)

[化10]



[0158] <フェノキシ樹脂aの合成>

ジムロート冷却管と、塩化カルシウム管と、攪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'-テトラメチルピフェノールジグリシジルエーテル50g(商品名: YX-4000H、三菱ケミカル株式会社製)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: 昭和電工マテリアルズ株式会社製Gel pack 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 $M_n = 15769$ 、 $M_w = 38045$ 、 $M_w/M_n = 2.413$ であった。

[0159] <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 $0.15\mu\text{m}$ 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 $3.0\mu\text{m}$ の導電粒子を得た。

[0160] <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。

・カチオン重合性化合物

A1: ビスフェノールA型エポキシ樹脂(2官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製、商品名: YL980、エポキシ当量: $180\sim 190\text{g/eq}$)

A2: ナフタレン型エポキシ樹脂(4官能エポキシ樹脂、DIC株式会社製、商品名: HP4700、エポキシ当量: 165g/eq 、室温で固体)

A3: トリスフェノールメタン型エポキシ樹脂(多官能エポキシ樹脂、三

菱ケミカル株式会社製、商品名：j E R 1 0 3 2 H 6 0、エポキシ当量：1 6 3 ～ 1 7 5 g / e q、室温で固体)

A 4：テトラキスフェノールメタン型エポキシ樹脂（4 官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製、商品名：j E R 1 0 3 1 S、エポキシ当量：1 8 0 ～ 2 2 0 g / e q、室温で固体)

A 5：ビスフェノール A 型エポキシ樹脂（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、商品名：B A T G、エポキシ当量：1 2 0 ～ 1 2 8 g / e q、室温で液体)

A 6：ビスフェノール F 型エポキシ樹脂（2 官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製、商品名：Y L 9 8 3 U、エポキシ当量：1 6 5 ～ 1 7 5 g / e q)

A 7：アラルキル骨格を有するノボラック型エポキシ樹脂（3 官能エポキシ樹脂、三菱ケミカル株式会社製、商品名：Y X 7 7 0 0、エポキシ当量：2 6 0 ～ 2 8 5 g / e q、室温で固体)

A 8：脂肪族エポキシ樹脂（4 官能エポキシ樹脂、昭和電工株式会社製、商品名：P E T G、エポキシ当量：9 0 ～ 1 0 0 g / e q)

・硬化剤

B 1：上記で合成した硬化剤

B 2：スルホニウム塩（三新化学株式会社製、商品名：S I 6 0)

・熱可塑性樹脂

C 1：上記で合成したフェノキシ樹脂 a

C 2：エポキシ樹脂（三菱ケミカル株式会社製、商品名：j E R 1 0 1 0、エポキシ当量：3 0 0 0 ～ 5 0 0 0 g / e q)

・充填材

D 1：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)

D 2：表面処理されたシリカ粒子（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、Evonik Industries AG社製、商品名：アエロジルR805、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：シランカップリング剤（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

[0161] 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7 μm であり、第二の接着剤層の厚さは7 μm であった。

[0162] <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：38 mm×28 mm、厚さ：0.3 mm）の表面に、AlNd（100 nm）/Mo（50 nm）/ITO（100 nm）の配線パターン（パターン幅：19 μm 、電極間スペース：5 μm ）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：0.9 mm×20.3 mm、厚さ：0.3 mm、バンプ電極の大きさ：70 μm ×12 μm 、バンプ電極間スペース：12 μm 、バンプ電極厚さ：8 μm ）を準備した。

[0163] 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（8 mm×50 mm）とから構成される熱圧着装置（株式会社大橋製作所製）を用いて、60℃、0.98 MPa（10 kgf/cm²）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 bumps 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（8 mm×45 mm）を用いて、緩衝材として厚さ 50 μm 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、60 MPa 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、実装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 bumps 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。

[0164] ＜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 10%未満であるものを評価 B、10%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。

[0165] ＜気泡の評価＞

HAST 試験後の気泡の有無を評価した。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。気泡の評価は、回路接続用接着剤フィルムの接着面の面積に対して、気泡が発生した箇所の面積が 10%未満であるものを評価 A、10%以上であるものを評価 B として、評価した。評価結果を表 2 に示す。

[0166]

[表1]

	成分	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
第一の接着剤組成物	カチオン重合性化合物	A1	35	35	35	70	35	35	35	35
		A2	35	-	-	-	-	-	-	-
		A3	-	35	-	-	-	-	-	-
		A4	-	-	35	-	-	-	-	-
		A5	-	-	-	35	-	-	-	35
		A6	-	-	-	-	35	-	-	-
		A7	-	-	-	-	-	35	-	-
		A8	-	-	-	-	-	-	35	-
	硬化剤	B1	10	10	10	10	10	10	10	-
	B2	-	-	-	-	-	-	-	-	10
第二の接着剤組成物	熱可塑性樹脂	C1	30	30	30	30	30	30	30	30
	充填材	D2	10	10	10	10	10	10	10	10
	カップリング剤	E1	4	4	4	4	4	4	4	4
	導電粒子	F1	55	55	55	55	55	55	55	55
	カチオン重合性化合物	A1	30	30	30	70	30	30	30	30
		A2	40	-	-	-	-	-	-	-
		A3	-	40	-	-	-	-	-	-
		A4	-	-	40	-	-	-	-	-
		A5	-	-	-	40	-	-	-	40
		A6	-	-	-	-	40	-	-	-
		A7	-	-	-	-	-	40	-	-
		A8	-	-	-	-	-	-	40	-
	硬化剤	B1	10	10	10	10	10	10	10	-
	B2	-	-	-	-	-	-	-	-	10
	熱可塑性樹脂	C1	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
	カップリング剤	E1	5	5	5	5	5	5	5	5

[0167] [表2]

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

[0168] 表2に示されるように、接着剤組成物が、カチオン重合性化合物として、3官能以上であり、且つ、エポキシ当量が100g／eq超250g／eq以下であるエポキシ化合物を含み、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試験後であっても外観が優れ、気泡の発生が少ないことが確認できた。

符号の説明

[0169] 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] カチオン重合性化合物と、硬化剤と、を含有し、
前記カチオン重合性化合物が、3官能以上であり、且つ、エポキシ当量が 100 g/eq 超 250 g/eq 以下であるエポキシ化合物を含み、
前記硬化剤が、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] 前記エポキシ化合物が芳香環を有する、請求項1に記載の接着剤組成物。
- [請求項3] 前記エポキシ化合物が室温で固体である、請求項1に記載の接着剤組成物。
- [請求項4] 前記カチオン重合性化合物が、トリスフェノールメタン構造を有するエポキシ化合物、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ロキシ基と、を有するエポキシ化合物、4価の有機基と、前記有機基に結合した芳香族環と、を有し、前記芳香族環がエポキシ基を含む置換基を有するエポキシ化合物、及びナフタレン構造を有するエポキシ化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種を含む、請求項1に記載の接着剤組成物。
- [請求項5] 前記電子求引基が、シアノ基又はハロゲン基である、請求項1に記載の接着剤組成物。
- [請求項6] 前記電子供与基が、アルキル基又はアルコキシ基である、請求項1に記載の接着剤組成物。
- [請求項7] 前記ベンジル基が有する前記電子供与基の数が3であり、
前記電子供与基がアルキル基である、請求項1に記載の接着剤組成物。
- [請求項8] 前記ピリジニウム塩が、ピリジニウムカチオンと、アニオンと、を

含み、

前記アニオンが $B(C_6F_5)_4^-$ である、請求項1に記載の接着剤組成物。

[請求項9] 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10] 請求項1～9のいずれか一項に記載の接着剤組成物により形成された接着剤層を備える、回路接続用接着剤フィルム。

[請求項11] 第一の接着剤層と、前記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、

前記第一の接着剤層及び前記第二の接着剤層の少なくとも一方が、請求項1～9のいずれか一項に記載の接着剤組成物により形成された層である、回路接続用接着剤フィルム。

[請求項12] 第一の電極を有する第一の回路部材と、

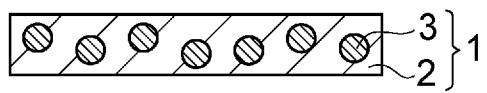
第二の電極を有する第二の回路部材と、

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氣的に接続する接続部と、を備え、

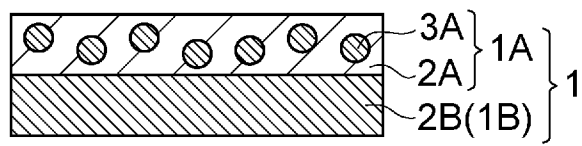
前記接続部が、請求項10に記載の回路接続用接着剤フィルムの硬化物を含む、接続構造体。

[請求項13] 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10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氣的に接続する工程を備える、接続構造体の製造方法。

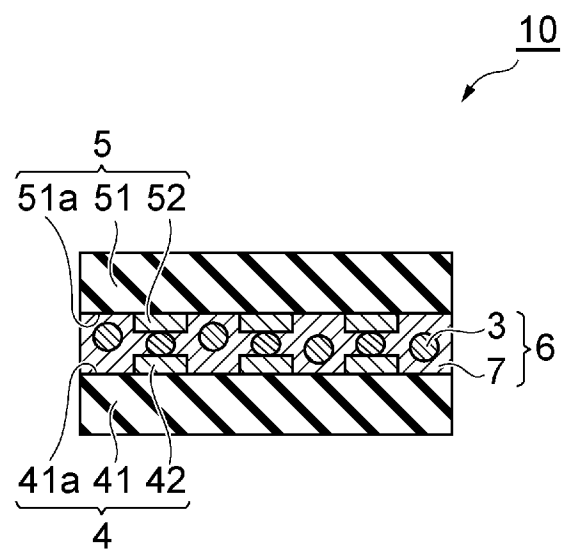
[図1]



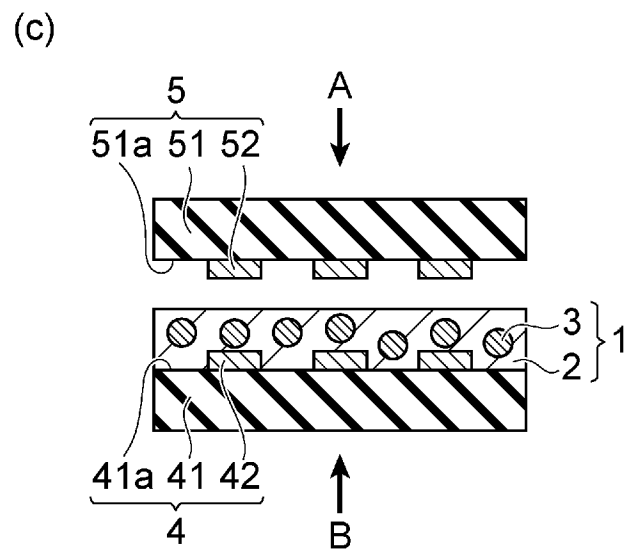
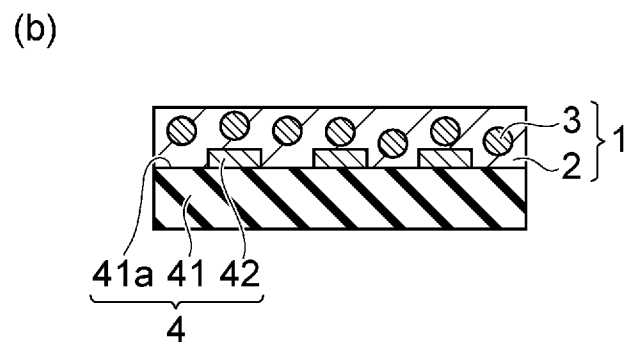
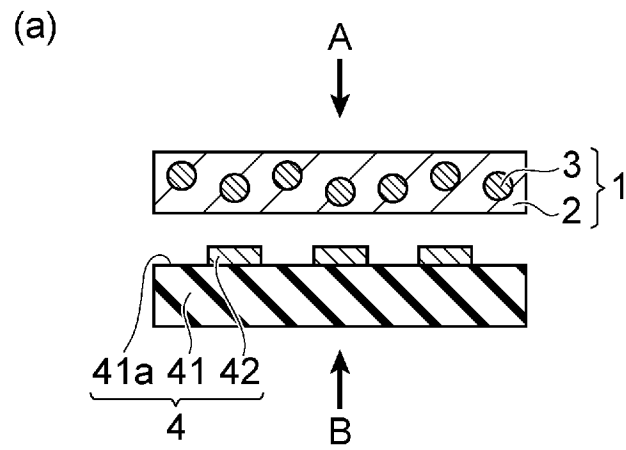
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/000306

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>C09J 163/00</i> (2006.01)i; <i>C09J 7/35</i> (2018.01)i; <i>C09J 9/02</i> (2006.01)i; <i>C09J 11/04</i> (2006.01)i; <i>C09J 11/06</i> (2006.01)i; <i>H05K 1/03</i> (2006.01)i FI: C09J163/00; C09J11/06; C09J7/35; C09J11/04; C09J9/02; 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) C09J163/00; C09J7/35; C09J9/02; C09J11/04; C09J11/06; 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 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 10-251610 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 22 September 1998 (1998-09-22) claims, paragraph [0006], examples	1-13
Y	JP 7133746 B1 (SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.) 08 September 2022 (2022-09-08) claims, examples	1-13
A	JP 02-043202 A (KOEI CHEM CO LTD) 13 February 1990 (1990-02-13) entire text	1-13
A	JP 2021-185256 A (SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.) 09 December 2021 (2021-12-09) entire text	1-13
P, X	WO 2023/136273 A1 (RESONAC CORP) 20 July 2023 (2023-07-20) claims, examples	1-13
☒ 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 “D” document cited by the applicant in the international application “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 20 February 2024		Date of mailing of the international search report 05 March 2024
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

International application No.

PCT/JP2024/000306

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2023/136272 A1 (RESONAC CORP) 20 July 2023 (2023-07-20) claims, examples	1-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2024/000306

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
JP	10-251610	A	22 September 1998	(Family: none)			
JP	7133746	B1	08 September 2022	WO	2022/220285	A1	
				TW	202244220	A	
JP	02-043202	A	13 February 1990	(Family: none)			
JP	2021-185256	A	09 December 2021	JP	2017-214472	A	
				JP	2023-14078	A	
				JP	2023-17871	A	
				JP	2023-118776	A	
WO	2023/136273	A1	20 July 2023	(Family: none)			
WO	2023/136272	A1	20 July 2023	(Family: none)			

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
C09J 163/00(2006.01)i; C09J 7/35(2018.01)i; C09J 9/02(2006.01)i; C09J 11/04(2006.01)i;
C09J 11/06(2006.01)i; H05K 1/03(2006.01)i
FI: C09J163/00; C09J11/06; C09J7/35; C09J11/04; C09J9/02; 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））
C09J163/00; C09J7/35; C09J9/02; C09J11/04; C09J11/06; 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 1971-2024年
日本国実用新案登録公報 1996-2024年
日本国登録実用新案公報 1994-2024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）
CAplus/REGISTRY (STN)

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
Y	JP 10-251610 A（日立化成工業株式会社）22.09.1998（1998-09-22） 特許請求の範囲、[0006]、実施例	1-13
Y	JP 7133746 B1（昭和電工マテリアルズ株式会社）08.09.2022（2022-09-08） 特許請求の範囲、実施例	1-13
A	JP 02-043202 A（広栄化学工業株式会社）13.02.1990（1990-02-13） 全文	1-13
A	JP 2021-185256 A（昭和電工マテリアルズ株式会社）09.12.2021（2021-12-09） 全文	1-13
P, X	WO 2023/136273 A1（株式会社レゾナック）20.07.2023（2023-07-20） 特許請求の範囲、実施例	1-13
P, X	WO 2023/136272 A1（株式会社レゾナック）20.07.2023（2023-07-20） 特許請求の範囲、実施例	1-13

☐ 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、一般的技术水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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
20.02.2024

国際調査報告の発送日
05.03.2024

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）
水野 明梨 4Z 5085
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/JP2024/000306

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	10-251610	A	22.09.1998	(ファミリーなし)	
JP	7133746	B1	08.09.2022	WO 2022/220285 A1	
				TW 202244220 A	
JP	02-043202	A	13.02.1990	(ファミリーなし)	
JP	2021-185256	A	09.12.2021	JP 2017-214472 A	
				JP 2023-14078 A	
				JP 2023-17871 A	
				JP 2023-118776 A	
WO	2023/136273	A1	20.07.2023	(ファミリーなし)	
WO	2023/136272	A1	20.07.2023	(ファミリーなし)	