

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B1)

(11)特許番号

特許第7133746号

(P7133746)

(45)発行日 令和4年9月8日(2022.9.8)

(24)登録日 令和4年8月31日(2022.8.31)

(51)国際特許分類

F I

C 0 9 J 201/00 (2006.01)

C 0 9 J 201/00

C 0 7 D 213/61 (2006.01)

C 0 7 D 213/61

C 0 7 D 213/84 (2006.01)

C 0 7 D 213/84

Z

C 0 7 F 5/02 (2006.01)

C 0 7 F 5/02

A

C 0 8 G 59/68 (2006.01)

C 0 8 G 59/68

請求項の数 11 (全42頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2022-529068(P2022-529068)

(86)(22)出願日 令和4年4月14日(2022.4.14)

(86)国際出願番号 PCT/JP2022/017841

審査請求日 令和4年5月18日(2022.5.18)

(31)優先権主張番号 特願2021-69569(P2021-69569)

(32)優先日 令和3年4月16日(2021.4.16)

(33)優先権主張国・地域又は機関

日本国(JP)

(31)優先権主張番号 特願2021-130105(P2021-130105)

(32)優先日 令和3年8月6日(2021.8.6)

(33)優先権主張国・地域又は機関

日本国(JP)

早期審査対象出願

(73)特許権者 000004455

昭和電工マテリアルズ株式会社

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号

(73)特許権者 321011088

シーカ・ハマタイト株式会社

神奈川県平塚市四之宮一丁目7番7号

(74)代理人

100088155

弁理士 長谷川 芳樹

(74)代理人

100128381

弁理士 清水 義憲

(74)代理人

100169454

弁理士 平野 裕之

(72)発明者

森谷 敏光

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号

昭和電工マテリアルズ株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 硬化剤、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)【特許請求の範囲】

【請求項1】

ピリジニウム塩を含有する硬化剤であって、

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し、

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、硬化剤。

【請求項2】

前記電子求引基が、シアノ基又はハロゲノ基である、請求項1に記載の硬化剤。

【請求項3】

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 (C₆F₅)₄⁻である、請求項1又は2に記載の硬化剤。

【請求項4】

請求項1又は2に記載の硬化剤と、カチオン重合性化合物と、を含有する、接着剤組成物。

【請求項5】

前記カチオン重合性化合物が、エポキシ化合物を含む、請求項4に記載の接着剤組成物。

【請求項6】

前記ピリジニウム塩の含有量が、前記カチオン重合性化合物100質量部を基準として、0.1～40質量部である、請求項4に記載の接着剤組成物。

【請求項 7】

請求項 4 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 8】

前記ピリジニウム塩の含有量が、前記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%である、請求項 7 に記載の回路接続用接着剤フィルム。

【請求項 9】

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 4 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。

10

【請求項 10】

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 7 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 11】

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 7 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。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、硬化剤、接着剤組成物、回路接続用接着剤フィルム（異方導電性接着剤フィルム又は導電性接着剤フィルム）、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】

対向する回路を加熱及び加圧し、加圧方向の電極間を電氣的に接続する回路接続材料として、エポキシ系接着剤又はアクリル系接着剤に導電粒子を分散させた回路接続用接着剤フィルムが知られている。回路接続用接着剤フィルムは、例えば、液晶ディスプレイ（LCD）を駆動させる半導体が搭載されたTCP（Tape Carrier Package）又はCOF（Chip On Flex）とLCDパネル、或いは、TCP又はCOFとプリント配線板との電氣的接続に用いられている。

30

【0003】

近年、製造効率を高めるために、低温かつ短時間で硬化可能な接着剤が検討されている。例えば、特許文献 1 には、比較的低温（例えば 150～170℃）かつ短時間（例えば 10 秒以内）で硬化可能な接着剤組成物が記載されている。

40

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【文献】特開 2017-214472 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

近年、ディスプレイの軽量化、及びデザイン性の観点から、ディスプレイの額縁が狭くなっており、例えば、スマートフォン等のように、ディスプレイの額縁がほとんど存在しない製品の需要が高まっている。また、ディスプレイ駆動用のドライバIC、TCP等の

50

電子部品を搭載する箇所も狭くなってきており、特に額縁が狭いディスプレイでは、電子部品を表示部の近傍に搭載されることがある。表示部の部材の耐熱性が低いと、電子部品の実装時の熱により、表示部の部材に不具合が生じ得る。そのため、低温で硬化させることができる接着剤組成物が求められる。また、製造効率を高める観点から、接着剤組成物をより低温で硬化させることが求められている。

【0006】

そこで、本開示は、接着剤組成物をより低温（例えば、120℃）で硬化させることができる硬化剤を提供することを目的とする。また、本開示は、当該硬化剤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とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本開示の一側面は、ピリジニウム塩を含有する硬化剤であって、当該ピリジニウム塩が、1位にベンジル基を有し、且つ、2位に電子求引基を有し、当該ベンジル基が電子供与基を有する、硬化剤である。

【0008】

本開示の一側面である硬化剤によれば、接着剤組成物をより低温（例えば、120℃）で硬化させることができる。

【0009】

上記硬化剤において、上記電子求引基は、シアノ基又はハロゲノ基であってよい。

【0010】

上記硬化剤において、上記電子供与基は、アルキル基又はアルコキシ基であってよい。

【0011】

上記硬化剤において、上記ベンジル基が有する上記電子供与基の数が3であり、上記電子供与基がアルキル基であってよい。

【0012】

上記硬化剤において、上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、上記アニオンが $B(C_6F_5)_4^-$ であってよい。

【0013】

本開示の他の一側面は、ピリジニウム塩と、カチオン重合性化合物と、を含有し、当該ピリジニウム塩が、1位にベンジル基を有し、且つ、2位に電子求引基を有し、当該ベンジル基が電子供与基を有する、接着剤組成物である。本開示の一側面である接着剤組成物によれば、より低温（例えば、120℃）で硬化することができる。

【0014】

上記接着剤組成物において、上記電子求引基は、シアノ基又はハロゲノ基であってよい。

【0015】

上記接着剤組成物において、上記電子供与基は、アルキル基又はアルコキシ基であってよい。

【0016】

上記接着剤組成物において、上記ベンジル基が有する上記電子供与基の数が3であり、上記電子供与基がアルキル基であってよい。

【0017】

上記接着剤組成物において、上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、上記アニオンが $B(C_6F_5)_4^-$ であってよい。

【0018】

上記カチオン重合性化合物は、エポキシ化合物を含んでよい。

【0019】

上記硬化剤の含有量は、上記カチオン重合性化合物100質量部を基準として、0.1～40質量部であってよい。

【0020】

10

20

30

40

50

上記接着剤組成物は、導電粒子を更に含有してよい。

【0021】

本開示の他の一側面は、上記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である。本開示の一側面である回路接続用接着剤フィルムによれば、より低温（例えば、120℃）で硬化することができる。

【0022】

上記硬化剤の含有量は、上記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。

【0023】

上記回路接続用接着剤フィルムは、第一の接着剤層と、当該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、当該第一の接着剤層及び当該第二の接着剤層の少なくとも一方が、上記接着剤組成物により形成された層であってよい。すなわち、上記回路接続用接着剤フィルムは、第一の接着剤層と、当該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、当該第一の接着剤層及び当該第二の接着剤層の少なくとも一方が、上記硬化剤と、上記カチオン重合性化合物と、を含有してもよい。

10

【0024】

本開示の他の一側面は、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、当該第一の回路部材及び当該第二の回路部材の間に配置され、当該第一の電極及び当該第二の電極を互いに電気的に接続する接続部と、を備え、当該接続部が、上記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。

20

【0025】

本開示の他の一側面は、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、上記回路接続用接着剤フィルムを介在させ、当該第一の回路部材及び当該第二の回路部材を熱圧着して、当該第一の電極及び当該第二の電極を互いに電気的に接続する工程を備える、接続構造体の製造方法である。

【発明の効果】

【0026】

本開示によれば、接着剤組成物をより低温（例えば、120℃）で硬化させることができる硬化剤を提供することができる。また、本開示によれば、当該硬化剤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。

30

【図面の簡単な説明】

【0027】

【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。

【図5】実施例1の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図6】実施例2の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図7】実施例3の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

40

【図8】実施例4の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図9】実施例5の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図10】実施例6の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図11】実施例7の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図12】実施例8の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図13】実施例9の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図14】比較例1の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図15】比較例2の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図16】比較例3の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

【図17】比較例5の回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果である。

50

【図 18】比較例 6 の回路接続用接着剤フィルムの D S C 測定結果である。

【図 19】比較例 7 の回路接続用接着剤フィルムの D S C 測定結果である。

【発明を実施するための形態】

【0028】

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。

【0029】

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。

【0030】

<ピリジニウム塩>

本開示の一実施形態は、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である。すなわち、ピリジニウム塩が、ピリジン環及びベンゼン環を有し、ピリジン環の窒素原子に対してオルト位に配置された電子求引基を有し、ベンゼン環が電子供与基を有する。1 位にベンジル基を有し、且つ、2 位に電子求引基を有し、ベンジル基が電子供与基を有するピリジニウム塩（以下、「ピリジニウム塩 A」ともいう）は、ピリジニウムカチオンとアニオンとから構成される化合物であってよい。なお、本明細書において、ピリジニウム塩又はピリジニウムカチオンの 1 位とは、ピリジニウム塩又はピリジニウムカチオンのピリジン環における窒素原子の位置を意味する。

【0031】

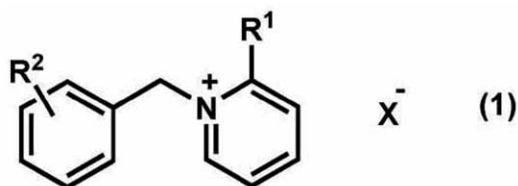
<硬化剤>

ピリジニウム塩 A は、例えば、硬化剤として用いることができる。すなわち、本開示の他の一実施形態は、ピリジニウム塩を含有する硬化剤であって、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。硬化剤が、ピリジニウム塩 A を含有することで、接着剤組成物をより低温（例えば、120℃）で硬化させることができる。

【0032】

ピリジニウム塩 A は、例えば、下記一般式（1）で表される化合物であってよい。

【化 1】



【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。】

【0033】

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、ハロゲン基、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。

【0034】

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

【0035】

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。すなわち、本開示の他の一実施形態は、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3つの電子供与基を有し、電子供与基がいずれもアルキル基である、ピリジニウム塩である。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。

【0036】

ピリジニウム塩Aのピリジニウムカチオンとしては、2-シアノー-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-シアノー-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-シアノー-1-（2,4,6-トリメチルベンジル）ピリジニウムカチオン、2-クロロ-1-（2,4,6-トリメチルベンジル）ピリジニウムカチオン、2-ブロモ-1-（2,4,6-トリメチルベンジル）ピリジニウムカチオン等が挙げられる。ピリジニウム塩Aのピリジニウムカチオンは、接着剤組成物をより短時間で硬化させることができる観点から、2-シアノー-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-シアノー-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

10

20

30

40

50

ー（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。

【００３７】

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。すなわち、本開示の他の一実施形態は、１位にベンジル基を有し、且つ、２位に電子求引基を有するピリジニウムカチオンと、アニオンとから構成され、アニオンが $\text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_4^-$ である、ピリジニウム塩である。

【００３８】

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－シアノー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、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。

【００３９】

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。

【００４０】

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。

【００４１】

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。

【００４２】

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

【００４３】

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

【００４４】

10

20

30

40

50

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。

【0045】

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。

【0046】

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。

【0047】

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。

【0048】

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

【0049】

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。

【0050】

<接着剤組成物>

本開示の他の一実施形態は、ピリジニウム塩 A と、カチオン重合性化合物と、を含有する接着剤組成物である。また、本開示の他の一実施形態は、ピリジニウム塩 A を含有する硬化剤と、カチオン重合性化合物と、を含有する接着剤組成物である。

【0051】

カチオン重合性化合物は、例えば、加熱することによってピリジニウム塩 A（又はピリジニウム塩 A を含む硬化剤）と反応して、架橋する化合物であってよい。カチオン重合性化合物としては、エポキシ化合物、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。カチオン重合性化合物は、エポキシ化合物を含んでよい。カチオン重合性化合物は、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0052】

エポキシ化合物としては、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、及びキシレンノボラック型グリ

10

20

30

40

50

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。

【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、エポキシ化合物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、エポキシ化合物とオキセタン化合物のうち的一方のみを含んでいてもよい。エポキシ化合物とオキセタン化合物のうち的一方のみを含む場合とは、カチオン重合性化合物として、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、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】

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、30質量%以上、40質量%以上、又は50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、65質量%以下、又は50質量%以下であってよい。これらの観点から、カチオン重合性化合物の含有量は、接着剤組成物の全質量を基準として、10～70質量%であってよい。

【0055】

接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aを含有す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、4.5質量%以上、5質量%以上、6質量%以上、7質量%以上、8質量%以上、10質量%以上、11質量%以上、又は11.5質量%以上であってよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aを含有す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、12質量%以下、10質量%以下、9質量%以下、8質量%以下、7質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、又は4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ピリジニウム塩Aを含有す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%又は1～15質量%であってよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aの含有量は、上記の含有量の範囲内であってよい。

【0056】

接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aを含有す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、2質量%以上、3質量%以上、4質量%以上、4.5質量%以上、5質量%以上、6質量%以上、8質量%以上、9質量%以上、10質量%以上、11質量%以上、11.5質量%以上、12質量%以上、又は13質量%以上であってよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aを含有す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、14質量%以下、12質量%以下、10質量%以下、9質量%以下、8質量%以下、7質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、4質量%以下、又は3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ピリジニウム塩Aを含有す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。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aの含有量は、上記の含有量の範囲内であってよい。

【0057】

接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aを含有す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、導電粒子及び充填剤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、4質量%以上、4.5質量%以上、5質量%以上、5.5質量%以上、6質量%以上、7質量%以上、8質量%以上、10質量%以上、11質量%以上、11.5質量%以上、12質量%以上、又は14質量%以上であってよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aを含有す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、導電粒子及び充填剤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、12質量%以下、11質量%以下、10質量%以下、9質量%以下、8質量%以下、7質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、4質量%以下、又は3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ピリジニウム塩Aを含有する硬化剤の含有量は、導電粒子及び充填剤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。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aの含有量は、上記の含有量の範囲内であってよい。

10

【0058】

接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aを含有す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、0.1質量部以上、0.3質量部以上、0.5質量部以上、0.8質量部以上、1質量部以上、3質量部以上、5質量部以上、8質量部以上、10質量部以上、12質量部以上、15質量部以上、20質量部以上、24質量部以上、又は28質量部以上であってよい。ピリジニウム塩Aを含有す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、28質量部以下、25質量部以下、20質量部以下、15質量部以下、12質量部以下、又は10質量部以下であってよい。これらの観点から、ピリジニウム塩Aを含有す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、0.1～40質量部又は1～30質量部であってよい。接着剤組成物におけるピリジニウム塩Aの含有量は、上記の含有量の範囲内であってよい。

20

【0059】

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。

30

【0060】

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 μ m以上、2 μ m以上、又は2.5 μ m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 μ m以下、15 μ m以下、10 μ m以下、8 μ m以下、6 μ m以下、5.5 μ m以下、又は5 μ m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 μ m、1～15 μ m、1～10 μ m、1～8 μ m、又は1～6 μ mであってよい。

40

【0061】

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。

【0062】

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、

50

100個/mm²以上、1000個/mm²以上、又は3000個/mm²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/mm²以下、50000個/mm²以下、又は30000個/mm²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、100~100000個/mm²、1000~50000個/mm²、又は3000~30000個/mm²であってよい。

【0063】

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30質量%以下であってよい。

10

【0064】

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、70質量部以上、又は90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。

【0065】

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、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。

20

【0066】

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

【0067】

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、15質量%以上、20質量%以上、又は25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、40質量%以下、30質量%以下、20質量%以下、又は10質量%以下であってよい。

30

【0068】

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、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よい。

【0069】

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

40

50

【0070】

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。

【0071】

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、4質量部以上、又は6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6質量部以下であってよい。

10

【0072】

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。

【0073】

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。

【0074】

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

20

【0075】

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

【0076】

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。

30

【0077】

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

40

【0078】

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

【0079】

50

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、ヘプタフェニルシロキサン、テトラデカメチルヘキサシロキサン、ドデカメチルペンタシロキサン、ヘキサメチルジシロキサン、デカメチルテトラシロキサン、ヘキサメトキシジシロキサン、オクタメチルトリシロキサン、オクタメチルシクロテトラシロキサン、1, 3-ビニルテトラメチルジシロキサン、2, 4, 6-トリメチル-2, 4, 6-トリビニルシクロトリシロキサン、1, 3-ジメトキシ-1, 1, 3, 3-テトラフェニルジシロキサン、1, 1, 3, 3-テトラメチル-1, 3-ジフェニルジシロキサン、1, 3-ジメチル-1, 3-ジフェニル-1, 3-ジビニルジシロキサン、2, 4, 6, 8-テトラメチル-2, 4, 6, 8-テトラビニルシクロテトラシロキサン、1, 1, 1, 3, 5, 5, 5-ヘプタメチル-3-(3-グリシドイロキシプロピル)トリシロキサン、1, 3, 5-トリス(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)-1, 3, 5-トリメチルシクロトリシロキサン、1, 1, 1, 3, 5, 5, 5-ヘプタメチル-3-[(トリメチルシリル)オキシ]トリシロキサン、1, 3, -ビス[2-(7-オキサビシクロ[4.1.0]ヘプタン-3-イル)エチル]-1, 1, 3, 3, -テトラメチルジシロキサン、1, 1, 1, 5, 5, 5-ヘキサメチル-3-[(トリメチルシリル)オキシ]-3-ビニルトリシロキサン、3-[[ジメチル(ビニル)シリル]オキシ]-1, 1, 5, 5, -テトラメチル-3-フェニル-1, 5-ビニルトリシロキサン、オクタビニルオクタシルセスキオキサン、オクタフェニルオクタシラシルセスキオキサン等が挙げられる。

【0080】

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

【0081】

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。

【0082】

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。

【0083】

充填材の含有量は、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。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、30質量%以下、又は20質量%以下であってよい。

【0084】

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、10質量部以上、25質量部以上、又は40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、100質量部以下、60質量部以下、又は40質量部以下であってよい。

【0085】

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。

【0086】

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用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0087】

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

【0088】

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、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シサイド、ジアシルパーオキシサイド、パーオキシジカーボネート、パーオキシケタール、ハイドロパーオキシサイド、シリルパーオキシサイド等が挙げられる。ラジカル重合開始剤は一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0089】

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、 α -ヘキシルパーオキシネオデカノエート、 α -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、 α -ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、 α -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、 α -ブチルパーオキシイソブチレート、1,1-ビス（ α -ブチル

10

20

30

40

50

パーオキシ) シクロヘキサン、 ϵ -ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、 ϵ -ブチルパーオキシ-3,5,5-トリメチルヘキサノネート、 ϵ -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、 ϵ -ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、 ϵ -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキシルモノカーボネート、 ϵ -ヘキシルパーオキシベンゾエート、 ϵ -ブチルパーオキシアセテート等が挙げられる。

【0090】

ジアルキルパーオキサイドとしては、 α , α' -ビス(ϵ -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(ϵ -ブチルパーオキシ)ヘキサン、 ϵ -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、クメンハイドロパーオキサイド等が挙げられる。

10

【0091】

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、スクシニクパーオキサイド、ベンゾイルパーオキシトルエン、ベンゾイルパーオキサイド等が挙げられる。

【0092】

パーオキシジカーボネートとしては、ジ-n-プロピルパーオキシジカーボネート、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ビス(4- ϵ -ブチルシクロヘキシル)パーオキシジカーボネート、ジ-2-エトキシメトキシパーオキシジカーボネート、ジ(2-エチルヘキシルパーオキシ)ジカーボネート、ジメトキシブチルパーオキシジカーボネート、ジ(3-メチル-3-メトキシブチルパーオキシ)ジカーボネート等が挙げられる。

20

【0093】

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

30

【0094】

シリルパーオキサイドの具体例としては、 ϵ -ブチルトリメチルシリルパーオキサイド、ビス(ϵ -ブチル)ジメチルシリルパーオキサイド、 ϵ -ブチルトリビニルシリルパーオキサイド、ビス(ϵ -ブチル)ジビニルシリルパーオキサイド、トリス(ϵ -ブチル)ビニルシリルパーオキサイド、 ϵ -ブチルトリアリルシリルパーオキサイド、ビス(ϵ -ブチル)ジアリルシリルパーオキサイド、トリス(ϵ -ブチル)アリルシリルパーオキサイド等が挙げられる。

【0095】

<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、ピリジニウム塩Aと、カチオン重合性化合物と、を含有する、回路接続用接着剤フィルムである。また、本開示の他の一実施形態は、ピリジニウム塩Aを含有する硬化剤と、カチオン重合性化合物と、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。

40

【0096】

回路接続用接着剤フィルムにおける導電粒子の粒子密度は、安定した接続抵抗が得られる観点から、 100 個/ mm^2 以上、 1000 個/ mm^2 以上、又は 3000 個/ mm^2 以上であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおける導電粒子の粒子密度は、隣り合う電極間の絶縁性を確保する観点から、 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、回路接続用接着

50

剤フィルム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。

【0097】

導電粒子の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、10質量%以上、20質量%以上、又は25質量%以上であってよい。導電粒子の含有量は、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、50質量%以下、40質量%以下、又は30質量%以下であってよい。

【0098】

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、70質量部以上、又は90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。

【0099】

回路接続用接着剤フィルムにおけるピリジニウム塩Aを含有す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、4.5質量%以上、5質量%以上、6質量%以上、7質量%以上、8質量%以上、10質量%以上、11質量%以上、又は11.5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ピリジニウム塩Aを含有す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、12質量%以下、10質量%以下、9質量%以下、8質量%以下、7質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、又は4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ピリジニウム塩Aを含有す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%又は1～15質量%であってよい。回路接続用接着剤フィルムにおけるピリジニウム塩Aの含有量は、上記の含有量の範囲内であってよい。

【0100】

回路接続用接着剤フィルムにおけるピリジニウム塩Aを含有す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、2質量%以上、3質量%以上、4質量%以上、4.5質量%以上、5質量%以上、6質量%以上、8質量%以上、9質量%以上、10質量%以上、11質量%以上、11.5質量%以上、12質量%以上、又は13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ピリジニウム塩Aを含有す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、14質量%以下、12質量%以下、10質量%以下、9質量%以下、8質量%以下、7質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、4質量%以下、又は3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ピリジニウム塩Aを含有す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。回路接続用接着剤フィルムにおけるピリジニウム塩Aの含有量は、上記の含有量の範囲内であってよい。

【0101】

回路接続用接着剤フィルムにおけるピリジニウム塩Aを含有す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、導電粒子及び充填剤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、4質量%以上、4.5質量%以上、5質量%以上、5.5質量%以上、6質量%以上、7質量%以上、8質量%以上、10質量%以上、11質量%以上、11.5質量%以上、12質量%以上、又は14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ピリジニウム塩Aを含有す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、導電粒子及び充填剤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、12質量%以下、11質量%以下、10質量%以下、9質量%以下、

下、8質量%以下、7質量%以下、6質量%以下、5質量%以下、4質量%以下、又は3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ピリジニウム塩Aを含有する硬化剤の含有量は、導電粒子及び充填剤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。回路接続用接着剤フィルムにおけるピリジニウム塩Aの含有量は、上記の含有量の範囲内であってよい。

【0102】

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担保する観点から、回路接続用接着剤フィルムの全質量を基準として、10質量%以上、20質量%以上、25質量%以上、又は30質量%以上であってよい。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、70質量%以下、50質量%以下、40質量%以下、又は35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、10～70質量%であってよい。

10

【0103】

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。

20

【0104】

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2質量%以下であってよい。

【0105】

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、5質量%以上、10質量%以上、又は12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、30質量%以下、20質量%以下、又は15質量%以下であってよい。

30

【0106】

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。

【0107】

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、ピリジニウム塩A（又はピリジニウム塩Aを含有する硬化剤）と、カチオン重合性化合物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、ピリジニウム塩A（又はピリジニウム塩Aを含有する硬化剤）と、カチオン重合性化合物と、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。

40

【0108】

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

50

配置された第二の領域とを備えていてもよく、第一の領域がピリジニウム塩 A（又はピリジニウム塩 A を含有する硬化剤）と、カチオン重合性化合物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、ピリジニウム塩 A（又はピリジニウム塩 A を含有する硬化剤）と、カチオン重合性化合物と、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。

【0109】

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

【0110】

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、ピリジニウム塩 A（又はピリジニウム塩 A を含有する硬化剤）と、カチオン重合性化合物と、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よい。

【0111】

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 $10\text{ }\mu\text{m}$ 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。

【0112】

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、ピリジニウム塩 A（又はピリジニウム塩 A を含有する硬化剤）と、カチオン重合性化合物と、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、ピリジニウム塩 A（又はピリジニウム塩 A を含有する硬化剤）と、カチオン重合性化合物と、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よい。

【0113】

第一の接着剤層 1 A 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、 $15\text{ }\mu\text{m}$ 以下又は $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下であってよい。第二の接着剤層 1 B の厚さは、例えば、 $3\text{ }\mu\text{m}$ 以上又は $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上であってよく、 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下又は $15\text{ }\mu\text{m}$ 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。

【0114】

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よい。

【0115】

<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。

【0116】

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。

【0117】

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

【0118】

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。

【0119】

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

【0120】

構造体10においては、上述したように、対向する第一の電極42と第二の電極52とが導電粒子3を介して電氣的に接続されている。このため、第一の電極42及び第二の電極52間の接続抵抗が十分に低減される。したがって、第一の電極42及び第二の電極52間の電流の流れを円滑にすることが可能であり、第一の回路部材4及び第二の回路部材5が有する機能を十分に発揮させることができる。

【0121】

<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。

【0122】

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。

【0123】

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。

【0124】

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。

10

【0125】

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。

【0126】

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。

20

【0127】

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】

【0128】

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。

30

【0129】

<硬化剤の作製>

[硬化剤A1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)、4-メトキシベンジルクロリド15.7g(100mmol、東京化成工業株式会社製)、及びヨウ化ナトリウム18.0g(120mmol、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、14.2gの2-シアノー1-(4-メトキシベンジル)ピリジニウム・ヨーダイド(収率40%)を得た。

40

ジクロロメタン35mLと、スターラーチップと、を200mL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-(4-メトキシベンジル)ピリジニウム・ヨーダイド3.5g(10mmol)を200mL三角フラスコに加えて、200mL三角フラスコ中のジクロロメタンに懸濁させた。200mL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70mL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

50

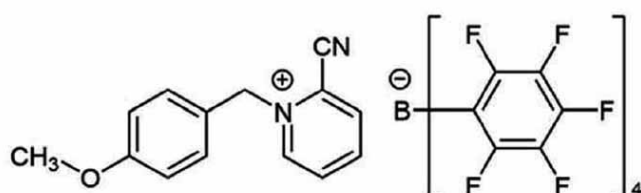
、濃縮し、真空乾燥することで、化合物 7.9 g (収率 87%) を得た。得られた化合物を硬化剤 A 1 とした。

【0130】

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-ECX400II) で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。 $^1\text{H-NMR}$ 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-(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)ボレートであることを確認した。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CD_3OD) , δ : 3.81 (s, 3H) , 6.02 (s, 2H) , 7.03 (d, 2H, $J=8.8\text{ Hz}$) , 7.47 (d, 2H, $J=8.8\text{ Hz}$) , 8.38 (td, 1H, $J=7.2, 1.6\text{ Hz}$) , 8.71 (dd, 1H, $J=1, 2, 7.6\text{ Hz}$) , 8.80 (td, 1H, $J=7.6, 1.2\text{ Hz}$) , 9.20 (d, 1H, $J=5.6\text{ Hz}$)

【化2】



【0131】

〔硬化剤 A 2 の合成、分析〕

アセトニトリル 100 mL と、スターラーチップと、を 300 mL 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 12.5 g (120 mmol、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 16.8 g (100 mmol、東京化成工業株式会社製)、及びヨウ化ナトリウム 17.8 g (119 mmol、東京化成工業株式会社製) を 300 mL 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、29.1 g の 2-シアノー-1-(2, 4, 6-トリメチルベンジル)ピリジニウム・ヨダイド (収率 80%) を得た。

ジクロロメタン 200 mL と、スターラーチップと、を 500 mL 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・ヨダイド 3.6 g (10 mmol) を 500 mL 三角フラスコに加えて、500 mL 三角フラスコ中のジクロロメタンに懸濁させた。500 mL 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%) 72 g (10.2 mmol、日本触媒株式会社製) 及び蒸留水 50 mL 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 8.0 g (収率 88%) を得た。得られた化合物を硬化剤 A 2 とした。

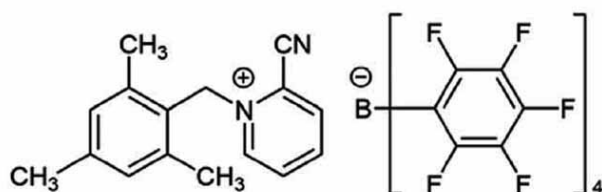
【0132】

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-ECX400II) で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。 $^1\text{H-NMR}$ 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。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, 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,

2 H)

【化 3】



【0133】

〔硬化剤 A 3 の合成、分析〕

アセトニトリル 100 mL と、スターラーチップと、を 300 mL 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。3-シアノピリジン 12.5 g (120 mmol、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 16.8 g (100 mmol、東京化成工業株式会社製)、及びヨウ化ナトリウム 17.8 g (119 mmol、東京化成工業株式会社製) を 300 mL 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、32.1 g の 3-シアノ-1-(2,4,6-トリメチルベンジル)ピリジニウム・ヨウダイド (収率 88%) を得た。

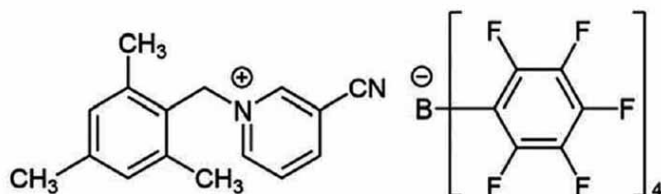
ジクロロメタン 36 mL と、スターラーチップと、を 200 mL 三角フラスコに入れ、マグネチックスターラー上に設置した。得られた 3-シアノ-1-(2,4,6-トリメチルベンジル)ピリジニウム・ヨウダイド 3.6 g (10 mmol) を 200 mL 三角フラスコに加えて、200 mL 三角フラスコ中のジクロロメタンに懸濁させた。200 mL 三角フラスコにナトリウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート水溶液 (固形分 10%) 72 g (10.2 mmol、日本触媒株式会社製) 及び蒸留水 36 mL を加えて、室温 (25℃) で 3 時間攪拌することで、塩交換反応を行った。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 8.2 g (収率 90%) を得た。得られた化合物を硬化剤 A 3 とした。

【0134】

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-ECX400II) で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。 $^1\text{H-NMR}$ による測定から、得られた化合物が下記の構造を有する 3-シアノ-1-(2,4,6-トリメチルベンジル)ピリジニウム・テトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレートであることを確認した。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CD_3OD), δ : 2.27 (s, 6H), 2.31 (s, 3H), 5.97 (s, 2H), 7.06 (s, 2H), 8.22 (t, 1H, $J=6.8\text{ Hz}$), 8.81 (d, 1H, $J=6.0\text{ Hz}$), 8.98 (d, 1H, $J=7.6\text{ Hz}$), 9.44 (s, 1H)

【化 4】



【0135】

〔硬化剤 A 4 の合成、分析〕

アセトニトリル 100 mL と、スターラーチップと、を 300 mL 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。4-シアノピリジン 12.5 g (120 mmol、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 16.8 g (100 mmol、東京化成工業株式会社製)、及びヨウ化ナトリウム 17.8 g (119 mmol、東京化成工業株式会社製)を300 mL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、29.1 gの4-シアノ-1-(2, 4, 6-トリメチルベンジル)ピリジニウム・ヨダイド(収率80%)を得た。

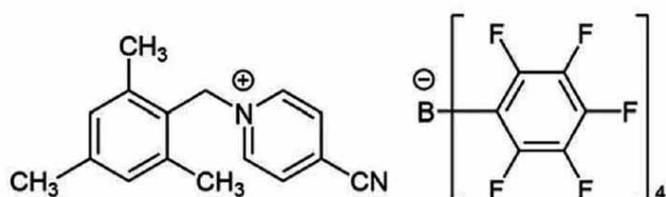
ジクロロメタン36 mLと、スターラーチップと、を200 mL三角フラスコに入れ、マグネチックスターラー上に設置した。得られた4-シアノ-1-(2, 4, 6-トリメチルベンジル)ピリジニウム・ヨダイド 3.6 g (10 mmol)を200 mL三角フラスコに加えて、200 mL三角フラスコ中のジクロロメタンに懸濁させた。200 mL三角フラスコにナトリウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート水溶液(固形分10%) 72 g (10.2 mmol、日本触媒株式会社製)及び蒸留水36 mLを加えて、室温(25℃)で3時間攪拌することで、塩交換反応を行った。攪拌後、有機層を蒸留水で洗浄、濃縮し、真空乾燥することで、化合物 8.5 g (収率93%)を得た。得られた化合物を硬化剤A4とした。

【0136】

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

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CD_3OD), δ : 2.25 (s, 6H), 2.28 (s, 3H), 6.00 (s, 2H), 7.03 (s, 2H), 8.46 (d, 2H, $J=6.0\text{ Hz}$) 8.96 (d, 2H, $J=7.2\text{ Hz}$)

【化5】



【0137】

〔硬化剤A5の合成、分析〕

アセトニトリル100 mLと、スターラーチップと、を300 mL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。N, N-ジメチルアニリン 14.5 g (120 mmol、東京化成工業株式会社製)、4-メトキシベンジルクロリド 15.6 g (100 mmol、東京化成工業株式会社製)を300 mL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により洗浄後、真空乾燥することで、16.6 gのN, N-ジメチル, N-(4-メトキシベンジル)アニリニウム・クロリド(収率60%)を得た。

ジクロロメタン36 mLと、スターラーチップと、を200 mL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N, N-ジメチル, N-(4-メトキシベンジル)アニリニウム・クロリド 2.8 g (10 mmol)を200 mL三角フラスコに加えて、200 mL三角フラスコ中のジクロロメタンに懸濁させた。200 mL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%) 72 g (10.2 mmol、日本触媒株式会社製)及び蒸留水36 mLを加えて、室

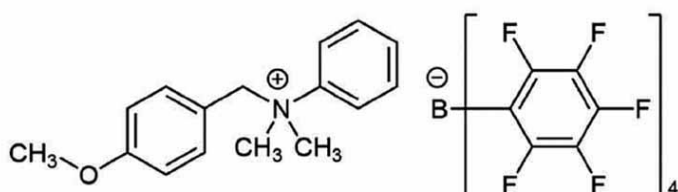
温（25℃）で3時間攪拌することで、塩交換反応を行った。攪拌後、有機層を蒸留水で洗浄、濃縮し、真空乾燥することで、化合物7.8g（収率85%）を得た。得られた化合物を硬化剤A5とした。

【0138】

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-ECX400II）で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。 $^1\text{H-NMR}$ による測定から、得られた化合物が下記の構造を有するN,N-ジメチル、N-(4-メトキシベンジル)アニリニウム・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 : 3.60 (s, 6H), 3.75 (s, 3H), 4.92 (s, 2H), 6.83 (dt, 2H, $J=8.8, 2.4\text{Hz}$), 6.97 (dt, 2H, $J=8.8, 2.4\text{Hz}$), 7.58~7.63 (m, 3H), 7.69~7.73 (m, 2H)

【化6】



【0139】

〔硬化剤A7の合成、分析〕

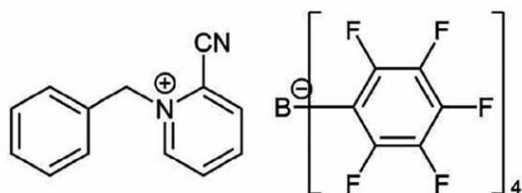
アセトニトリル100mLと、スターラーチップと、を300mL三角フラスコに入れ、マグネチックスターラー上に設置した。2-シアノピリジン12.5g（120mmol、東京化成工業株式会社製）、ベンジルクロリド12.6g（100mmol、東京化成工業株式会社製）、及びヨウ化ナトリウム17.8g（119mmol、東京化成工業株式会社製）を300mL三角フラスコ中のアセトニトリルに加え、室温（25℃）で24時間反応させた後、トルエン100mLを加え結晶を得た。得られた結晶をガラスフィルターでろ過し、ガラスフィルター上の結晶をトルエンにより洗浄後、真空乾燥することで、2-シアノー-1-（ベンジル）ピリジニウム・ヨウ化ナトリウム及び未反応のヨウ化ナトリウムの混合物を得た。

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。得られた上記混合物を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7.9g（収率90%）を得た。得られた化合物を硬化剤A7とした。

【0140】

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-ECX400II）で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。 $^1\text{H-NMR}$ 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-（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 : 6.11 (s, 2H), 7.48~7.52 (m, 5H), 8.43 (ddd, 1H, $J=8.0, 6.0, 1.2\text{Hz}$), 8.75 (dd, 1H, $J=8.0, 1.2\text{Hz}$), 8.84 (td, 1H, $J=8.8, 1.2\text{Hz}$), 9.31 (d, 1H, $J=6.0\text{Hz}$)

【化 7】



【0141】

〔硬化剤 A 8 の合成、分析〕

アセトニトリル 100 mL と、スターラーチップと、を 300 mL 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 12.5 g (120 mmol、東京化成工業株式会社製)、4-クロロベンジルクロリド 16.1 g (100 mmol、東京化成工業株式会社製)、及びヨウ化ナトリウム 17.8 g (119 mmol、東京化成工業株式会社製) を 300 mL 三角フラスコ中のアセトニトリルに加え、室温 (25℃) で 24 時間反応させた後、トルエン 100 mL を加え結晶を得た。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トルエンにより洗浄後、真空乾燥することで、2-シアノ-1-(4-クロロベンジル)ピリジニウム・ヨウ化ドと副生成物の塩化ナトリウムおよび未反応のヨウ化ナトリウムの混合物を得た。

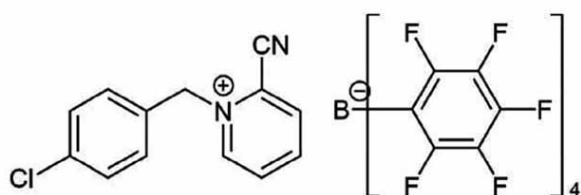
ジクロロメタン 200 mL と、スターラーチップと、を 500 mL 三角フラスコに入れ、マグネチックスターラー上に設置した。得られた上記混合物を 500 mL 三角フラスコに加えて、500 mL 三角フラスコ中のジクロロメタンに懸濁させた。500 mL 三角フラスコにナトリウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート水溶液(固形分 10%) 72 g (10.2 mmol、日本触媒株式会社製) 及び蒸留水 50 mL を加えて、室温 (25℃) で 3 時間攪拌することで、塩交換反応を行った。攪拌後、有機層を蒸留水で洗浄、濃縮し、真空乾燥することで、化合物 8.2 g (収率 90%) を得た。得られた化合物を硬化剤 A 8 とした。

【0142】

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-ECX400II) で測定したところ、以下のスペクトルデータが得られた。 $^1\text{H-NMR}$ 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-1-(4-クロロベンジル)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。

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CD_3OD) , δ : 6.11 (s, 2H) , 7.50~7.55 (m, 4H) , 8.43 (ddd, 1H, $J=8.0, 6.0, 1.2\text{ Hz}$) , 8.75 (dd, 1H, $J=8.0, 1.2\text{ Hz}$) , 8.85 (td, 1H, $J=8.8, 1.2\text{ Hz}$) , 9.31 (d, 1H, $J=6.0\text{ Hz}$)

【化 8】



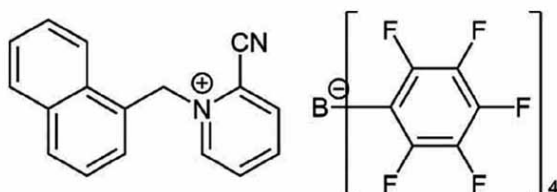
【0143】

〔硬化剤 A 9 の合成、分析〕

アセトニトリル 100 mL と、スターラーチップと、を 300 mL 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 12.5 g (120 mmol、東京化成工業株式会社製)、1-クロロメチルナフタレン 17.7 g (100 mmol、東京化成工業株式会社製)、及びヨウ化ナトリウム 17.8 g (119 mmol、東京化成工業株式会社製) を 300 mL 三角フラスコ中のアセトニトリルに加え、室温 (25℃) で 24 時間反応させた後、トルエン 100 mL を加え結晶を得た。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トルエンにより洗浄後、真空乾燥することで、2-シアノ-1-(1-クロロメチルナフタレン-2-イル)ピリジニウム・ヨウ化ドと副生成物の塩化ナトリウムおよび未反応のヨウ化ナトリウムの混合物を得た。

し、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時間反応させた後、トルエン100mLを加え結晶を得た。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トルエンにより洗浄後、真空乾燥することで、2-シアノー-1-(ナフチルメチル)ピリジニウム・ヨウダイドと副生成物の塩化ナトリウムおよび未反応のヨウ化ナトリウムの混合物を得た。

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。得られた上記混合物を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8.3g(収率90%)を得た。得られた化合物を硬化剤A9とした。得られた化合物は、下記の構造を有する2-シアノー-1-(ナフチルメチル)ピリジニウム・テトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレートであった。
【化9】



【0144】

<導電粒子の作製>

架橋ポリスチレン粒子の表面上に、層の厚さが0.15μmとなるようにニッケルからなる層を形成した。このようにして、平均粒子径3.3μm、最大粒子径3.5μm、比重2.7の導電粒子を得た。

【0145】

<回路接続用接着剤フィルムの作製>

表1～3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1～3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是不揮発分の配合量を表す。

・硬化剤

A1～A5、A7～A9:上記で合成した硬化剤

A6:1-ナフチルメチルメチル-p-ヒドロキシフェニルスルホニウムヘキサフルオロアンチモネート(SI-60、三新化学株式会社製)

・安定化剤

B:4-ヒドロキシフェニルジメチルスルホニウム硫酸塩(東京化成工業株式会社製)

・カチオン重合性化合物

C1: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(商品名:EP-4088S,株式会社ADEKA製)

C2:ビスフェノールA型エポキシ樹脂(商品名:YL980、三菱ケミカル株式会社製)

C3:テトラメチルビフェノール型エポキシ樹脂(商品名:YX4000、三菱ケミカル株式会社製)

C4:キシレン-ノボラック型グリシジルエーテル(商品名:YX7700、三菱ケミカル株式会社製)

C5:ビスフェノールA型固形エポキシ樹脂(商品名:jER1010、三菱ケミカル

株式会社製)

・熱可塑性樹脂

D：フェノキシ樹脂 a（合成品）

・カップリング剤

E：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）

・充填材

F1：表面処理されたシリカ微粒子（トリメトキシオクチルシランとシリカの加水分解生成物、商品名：アエロジルR805、Evonik Industries AG社製、有機溶媒で不揮発分の含有量を10質量%に希釈したものを使用）

F2：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）

・導電粒子

G：上記で作製した導電粒子

【0146】

＜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、三菱化学株式会社製）をN-メチルピロリドン1000mLに溶解して反応液とした。この反応液に炭酸カリウム21gを加え、マントルヒーターで110℃に加熱しながら3時間攪拌した。攪拌後の反応液を1000mLのメタノールが入ったビーカーに滴下し、吸引ろ過することによって生成した沈殿物をろ取した。ろ取した沈殿物をさらに300mLのメタノールで3回洗浄して、フェノキシ樹脂 a を75g得た。得られたフェノキシ樹脂 a の分子量を高速液体クロマトグラフ（東ソー株式会社製、GP8020、カラム：日立化成工業株式会社製Gelpack GL-A150S及びGLA160S、溶離液：テトラヒドロフラン、流速：1.0mL/分）を用いて測定したところ、ポリスチレン換算で $M_n = 15769$ 、 $M_w = 38045$ 、 $M_w/M_n = 2.413$ であった。

【0147】

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。実施例1～10及び比較例1～7の各回路接続用接着剤フィルムの第一の接着剤層の厚さは7μmであり、第二の接着剤層の厚さは11μmであった。

【0148】

＜接続構造体 A の作製＞

第一の回路部材として、無アルカリガラス基板（OA-11、日本電気硝子株式会社製、外形：38mm×28mm、厚さ：0.3mm）の表面に、AlNd（100nm）/Mo（50nm）/ITO（100nm）の配線パターン（パターン幅：19μm、電極間スペース：5μm）を形成したものを準備した。第二の回路部材として、バンプ電極を2列で千鳥状に配列したICチップ（外形：0.9mm×20.3mm、厚さ：0.3mm、バンプ電極の大きさ：70μm×12μm、バンプ電極間スペース：12μm、バンプ電極厚さ：8μm）を準備した。

【0149】

実施例1～9及び比較例1～7の各回路接続用接着剤フィルムを用いて接続構造体 A の作製を行った。まず、回路接続用接着剤フィルムの第一の接着剤層を第一の回路部材上に配置した。セラミックヒータからなるステージとツール（8mm×50mm）とから構成される熱圧着装置（株式会社大橋製作所製）を用いて、50℃、0.98MPa（10k

10

20

30

40

50

g f/cm^2) の条件で 2 秒間加熱及び加圧して、回路接続用接着剤フィルムを第一の回路部材に貼り付けた。次いで、回路接続用接着剤フィルムの第一の回路部材とは反対側の基材を剥離し、第一の回路部材のバンプ電極と第二の回路部材の回路電極との位置合わせを行った。次いで、ヒートツール ($8\text{ mm} \times 45\text{ mm}$) を用いて、緩衝材として厚さ $50\text{ }\mu\text{m}$ の PTFE シートを介して、 80°C に加熱した台座上にて 120°C 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 A を作製した。 120°C で実装できなかった場合は、実装温度を上げて、接続構造体 A を作製した。なお、温度は回路接続用接着剤フィルムの実測最高到達温度とし、圧力は第二の回路部材のバンプ電極が第一の回路部材に対向する面の合計面積に対して算出される値とした。

10

【0150】

<接続構造体 B 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： $38\text{ mm} \times 28\text{ mm}$ 、厚さ： 0.5 mm) の表面に、Al 合金 (200 nm) / Mo 合金 (100 nm) / ITO (40 nm) の配線パターン (パターン幅： $19\text{ }\mu\text{m}$ 、電極間スペース： $5\text{ }\mu\text{m}$) を形成したものをを用いたこと、及び実装温度を 120°C 又は 135°C としたこと以外は接続構造体 A と同様にして、実施例 1～3 及び比較例 1～5 の各回路接続用接着剤フィルムを用いて接続構造体 B を作製した。

【0151】

<接続構造体 C 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： $38\text{ mm} \times 28\text{ mm}$ 、厚さ： 0.3 mm) の表面に、ITO (300 nm) の配線パターン (パターン幅： $19\text{ }\mu\text{m}$ 、電極間スペース： $5\text{ }\mu\text{m}$) を形成したものをを用いたこと、及び実装温度を 120°C 又は 135°C としたこと以外は接続構造体 A と同様にして、実施例 1～3 及び比較例 1～5 の各回路接続用接着剤フィルムを用いて接続構造体 C を作製した。

20

【0152】

<接続抵抗の評価>

接続構造体 A を用いて、四端子測定法にて、14 箇所の接続抵抗を測定し、接続構造体作製直後 (初期) と高温高湿試験後の接続抵抗値の最大値 (最大抵抗値) を評価した。高温高湿試験は、温度 85°C 湿度 $85\% \text{ RH}$ の恒温恒湿槽にて接続構造体を 250 時間保管することにより行った。接続抵抗の測定にはマルチメータ (MLR21、ETAC 社製) を用いた。接続抵抗の評価は、接続抵抗が $1\text{ }\Omega$ 未満を評価 A、 $1\text{ }\Omega$ 以上 $2\text{ }\Omega$ 未満を評価 B、 $2\text{ }\Omega$ 以上 $5\text{ }\Omega$ 未満を評価 C、 $5\text{ }\Omega$ 以上 $10\text{ }\Omega$ 未満を評価 D、 $10\text{ }\Omega$ 以上を評価 E として、評価した。評価結果を表 4 及び 5 に示す。

30

【0153】

<接続抵抗及び外観の評価>

接続構造体 B を用いて、四端子測定法にて、14 箇所の接続抵抗を測定し、高速劣化試験後の接続抵抗値の最大値 (最大抵抗値) を評価した。高速劣化試験は、温度 110°C 湿度 $85\% \text{ RH}$ の恒温恒湿槽にて接続構造体を 16 時間保管することにより行った。接続抵抗の測定及び評価は、接続構造体 A を用いた場合の評価と同様にして行った。外観の評価は、回路接続用接着剤フィルムの剥離が確認されなかったものを評価 A、剥離した部分の面積が 30% 以下であるものを評価 B、 30% 超であるものを評価 C として、評価した。評価結果を表 6 に示す。

40

【0154】

接続構造体 C を用いて、四端子測定法にて、14 箇所の接続抵抗を測定し、接続構造体作製直後 (初期) と高温高湿試験後の接続抵抗値の最大値 (最大抵抗値) を評価した。高温高湿試験、接続抵抗の測定及び評価は、接続構造体 A を用いた場合の評価と同様にして行った。外観の評価は、接続構造体 B を用いた場合の評価と同様にして行った。評価結果を表 6 に示す。表 6 中、評価が「-」と記載されているものは未測定であることを意味す

50

る。

【0155】

<回路接続用接着剤フィルムの貼り付け性>

回路接続用接着剤フィルムを接続構造体Cの第一の回路部材に貼り付けるときの密着性、及び回路接続用接着剤フィルムから基材を剥離するときの剥離性を評価した。密着性は、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る際に、加圧が不要なものを評価A、わずかな加圧が必要なものを評価B、十分な加圧が必要なものを評価C、加圧しても貼り付かなかったものを評価Dとして、評価した。剥離性は、回路接続用接着剤フィルムから基材を剥離したときに、第一の回路部材から回路接続用接着剤フィルムが剥離せずに基材を剥離できたものを評価A、第一の回路部材から回路接続用接着剤フィルムが剥離したものを評価Bとして、評価した。評価結果を表6に示す。

10

【0156】

<保存安定性の評価>

各実施例及び比較例で得られた回路接続用接着剤フィルムを40℃の恒温装置に15時間保管した後、上記と同様に、実装温度135℃で接続構造体Cを作製し、接続抵抗（初期）、外観（初期）及び密着性の評価を行った。評価結果を表7に示す。

【0157】

<DSC測定>

実施例1～9及び比較例1～3、5～7の回路接続用接着剤フィルムについて、TAインストルメントジャパン株式会社製の示差走査熱量計（商品名：DSC Q1000）を使用して、窒素雰囲気下、昇温速度10℃/分、測定温度範囲50～300℃の条件で示差走査熱量測定（DSC）を行った。DSC測定は、採取直後の試料、30℃で24時間保管後の試料、及び40℃で12時間保管後の試料に対して行った。各回路接続用接着剤フィルムのDSC測定結果を図5～19に示す。

20

【0158】

【表1】

	成分		実施例1	実施例2	実施例3
第一の接着剤層	硬化剤	A1	7	—	—
		A2	—	7	7
	安定剤	B	0.1	—	0.1
	カチオン重合性化合物	C1	25	25	25
		C2	25	25	25
	熱可塑性樹脂	D	30	30	30
	カップリング剤	E	3	3	3
	充填材	F1	5	5	5
		F2	15	15	15
	導電粒子	G	45	45	45
第二の接着剤層	硬化剤	A1	7	—	—
		A2	—	7	7
	安定剤	B	0.1	—	0.1
	カチオン重合性化合物	C1	15	15	15
		C3	15	15	15
		C4	10	10	10
		C5	30	30	30
	熱可塑性樹脂	D	10	10	10
	カップリング剤	E	3	3	3
	充填材	G2	20	20	20

30

40

【0159】

50

【表 2】

	成分		実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9
第一の接着剤層	硬化剤	A2	5	10	14	14	14	14
	安定剤	B	—	0.05	—	0.05	0.1	0.15
	カチオン重合性化合物	C1	25	25	25	25	25	25
		C2	25	25	25	25	25	25
	熱可塑性樹脂	D	30	30	30	30	30	30
	カップリング剤	E	3	3	3	3	3	3
	充填材	F1	5	5	5	5	5	5
		F2	15	15	15	15	15	15
第二の接着剤層	導電粒子	G	45	45	45	45	45	45
	硬化剤	A2	5	10	14	14	14	14
	安定剤	B	—	0.05	—	0.05	0.1	0.15
	カチオン重合性化合物	C1	15	15	15	15	15	15
		C3	15	15	15	15	15	15
		C4	10	10	10	10	10	10
		C5	30	30	30	30	30	30
	熱可塑性樹脂	D	10	10	10	10	10	10
	カップリング剤	E	3	3	3	3	3	3
	充填材	G2	20	20	20	20	20	20

【 0 1 6 0 】

10

20

30

40

50

【表 3】

	成分		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7
第一の接着剤層	硬化剤	A3	7	-	-	-	-	-	-
		A4	-	7	-	-	-	-	-
		A5	-	-	7	-	-	-	-
		A6	-	-	-	7	-	-	-
		A7	-	-	-	-	7	-	-
		A8	-	-	-	-	-	7	-
		A9	-	-	-	-	-	-	7
		B	-	-	-	0.1	-	-	-
		C1	25	25	25	25	25	25	25
	カチオン重合性化合物	C2	25	25	25	25	25	25	25
		D	30	30	30	30	30	30	30
		E	3	3	3	3	3	3	3
	充填材	F1	5	5	5	5	5	5	5
		F2	15	15	15	15	15	15	15
	導電粒子	G	45	45	45	15	45	45	45
第二の接着剤層	硬化剤	A3	7	-	-	-	-	-	-
		A4	-	7	-	-	-	-	-
		A5	-	-	7	-	-	-	-
		A6	-	-	-	7	-	-	-
		A7	-	-	-	-	7	-	-
		A8	-	-	-	-	-	7	-
		A9	-	-	-	-	-	-	7
		B	-	-	-	0.1	-	-	-
		C1	15	15	15	15	15	15	15
	カチオン重合性化合物	C3	15	15	15	15	15	15	15
		C4	10	10	10	10	10	10	10
		C5	30	30	30	30	30	30	30
	充填材	D	10	10	10	10	10	10	10
		E	3	3	3	3	3	3	3
		G2	20	20	20	20	20	20	20

【0161】

10

20

30

40

50

【表 4】

実装温度(°C)	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7
	120	120	120	135	135	125	135	135	135	135
	A	B	B	D	E	E	E	E	E	D
接続抵抗	B	B	C	E	E	E	E	E	E	E
高温高湿試験後										

10

20

30

40

【 0 1 6 2 】

【表 5】

		実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9
実装温度(°C)		120	120	120	120	120	120
接続抵抗	初期	B	A	B	A	A	B
	高温高湿試験後	B	B	B	B	B	C

【 0 1 6 3 】

50

【表 6】

		実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	
実装温度 120℃	接続抵抗	初期	A	A	B	E	E	E	E	
		高温高湿試験後	A	A	B	-	-	-	-	-
		高速劣化試験後	A	A	B	E	E	E	E	E
	外観	初期	A	A	A	C	C	C	C	C
		高温高湿試験後	B	A	A	-	-	-	-	-
		高速劣化試験後	B	B	A	C	C	C	C	C
	貼り付け性	密着性	A	A	A	A	A	A	A	A
		剥離性	A	A	A	A	A	A	A	A
		初期	A	A	A	A	B	E	E	E
		高温高湿試験後	A	A	A	B	B	E	E	E
実装温度 135℃	接続抵抗	高温高湿試験後	A	A	A	A	A	E	E	
		高速劣化試験後	A	A	A	A	A	E	E	E
		初期	A	A	A	A	A	C	C	C
	外観	高温高湿試験後	B	A	B	B	A	C	C	C
		高速劣化試験後	C	B	B	A	A	C	C	C
		密着性	A	A	A	A	A	A	A	A
	貼り付け性	剥離性	A	A	A	A	A	A	A	A
		初期	A	A	A	A	A	E	E	E
		高温高湿試験後	A	A	A	B	B	E	E	E
		高速劣化試験後	A	A	A	A	A	E	E	E

【0164】

10

20

30

40

50

【表 7】

保存安定性	接続抵抗 外観 貼り付け性	実施例 1 初期 初期 密着性 剥離性	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5
			A	A	B	A	B	E	E	E
			A	A	B	A	B	B	B	B
			C	C	B	A	A	B	B	A
			B	A	A	A	A	A	A	A

10

20

30

40

【0165】

表 4 及び表 5 に示されるように、ピリジニウム塩を含有する硬化剤であって、当該ピリジニウム塩が、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場合、当該硬化剤を用いた接着剤組成物をより低温（例えば、120℃）で硬化させることができる。また、当該接着剤組成物を用いた接着剤フィルムは、初期及び高温高湿試験後のいずれにおいても優れた接続抵抗を実現できる。

【0166】

表 6 に示されるように、ピリジニウム塩を含有する硬化剤であって、当該ピリジニウム塩が、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

50

基を有する場合、当該硬化剤を用いた接着剤フィルムは、初期、高温高湿試験後、及び高速劣化試験後のいずれにおいても、優れた接続抵抗と、優れた外観とを実現できる。また、当該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。さらに、表 7 に示されるように、当該硬化剤がピリジニウム塩の 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であるピリジニウム塩を含有することにより（硬化剤 A 2 を用いることにより）、硬化剤 A 1 と比較して、保存安定性に優れ、40℃で 15 時間接着剤フィルムを保存した後であっても、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できる。なお、比較例 1 及び 2 は、実装温度 135℃であれば、接着剤組成物を硬化でき、保存安定性も優れるが、120℃での低温硬化は実現できなかった。

10

【符号の説明】

【0167】

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。

20

30

40

50

【要約】

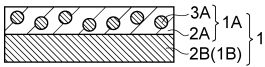
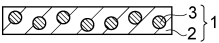
ピリジニウム塩を含有する硬化剤であって、前記ピリジニウム塩が、1位にベンジル基を有し、且つ、2位に電子求引基を有し、前記ベンジル基が電子供与基を有する、硬化剤。ピリジニウム塩と、カチオン重合性化合物と、を含有し、前記ピリジニウム塩が、1位にベンジル基を有し、且つ、2位に電子求引基を有し、前記ベンジル基が電子供与基を有する、接着剤組成物。当該接着剤組成物により形成された接着剤層を備える、回路接続用接着剤フィルム。

【図面】

【図 1】

【図 2】

10



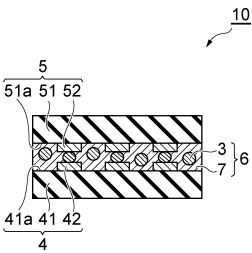
20

30

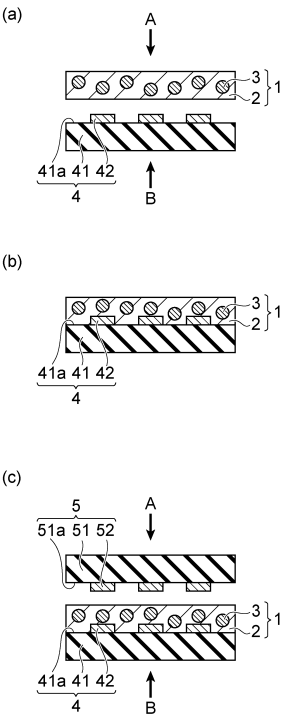
40

50

【図 3】



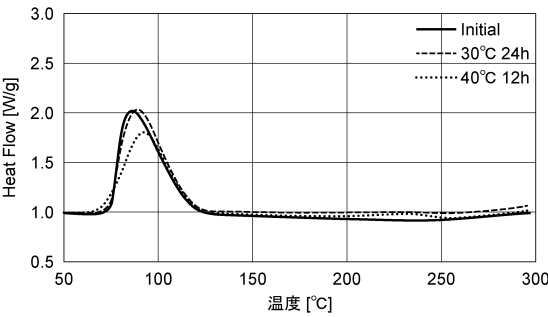
【図 4】



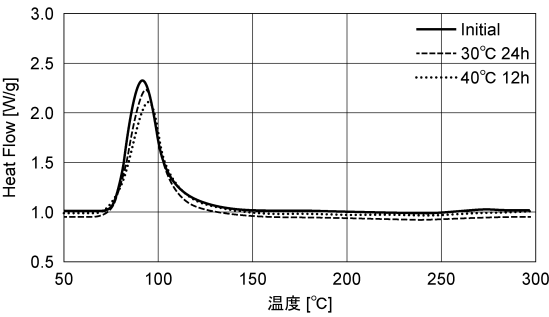
10

20

【図 5】



【図 6】

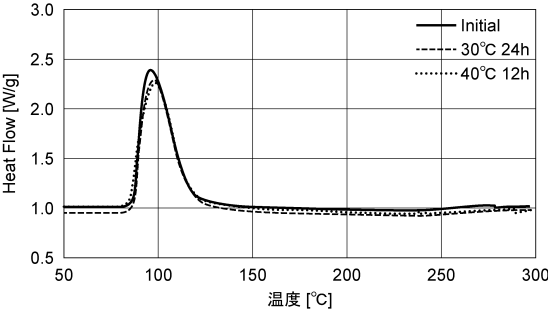


30

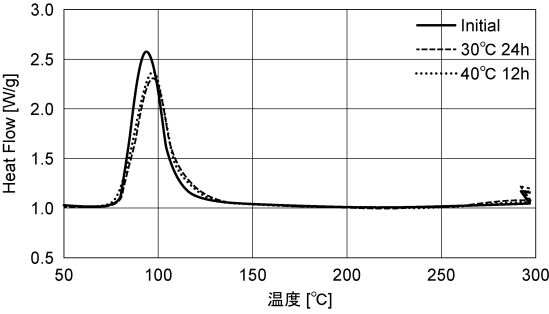
40

50

【図 7】



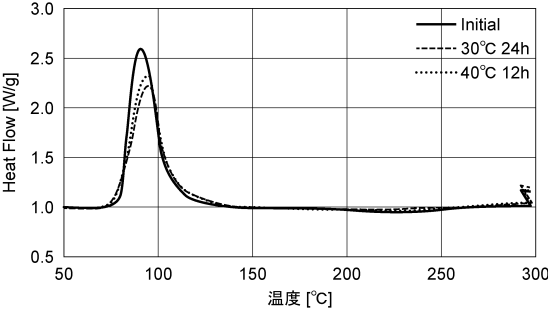
【図 8】



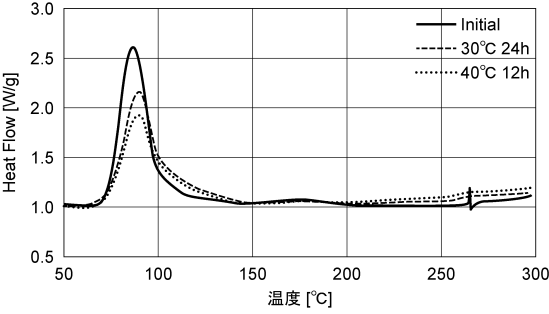
10

20

【図 9】



【図 10】

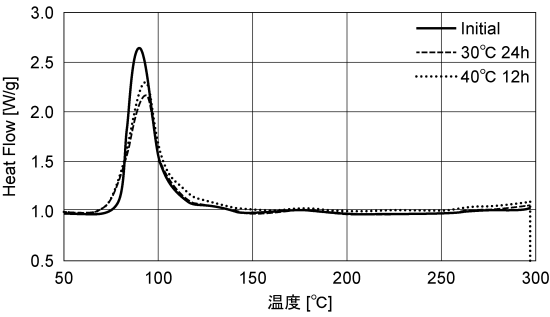


30

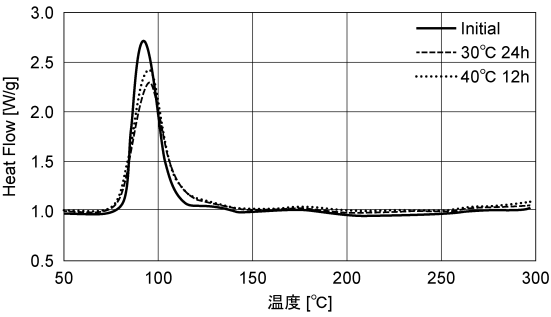
40

50

【図 1 1】



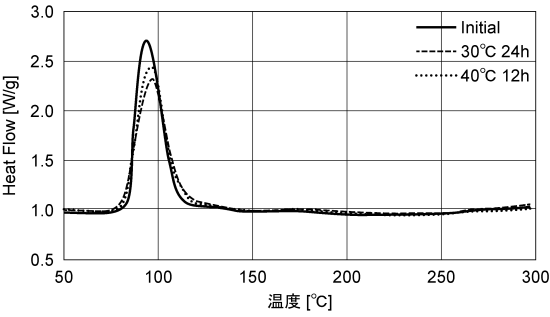
【図 1 2】



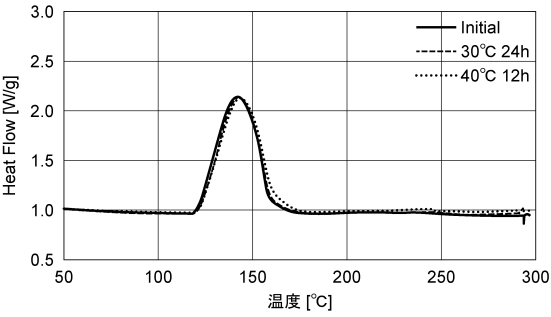
10

20

【図 1 3】



【図 1 4】

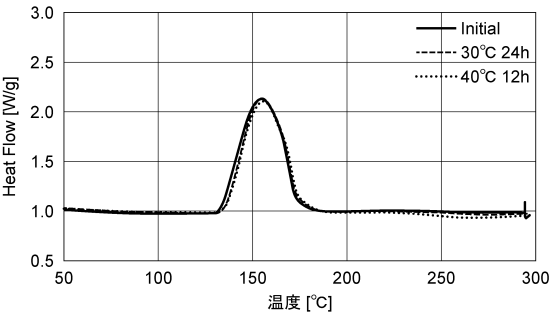


30

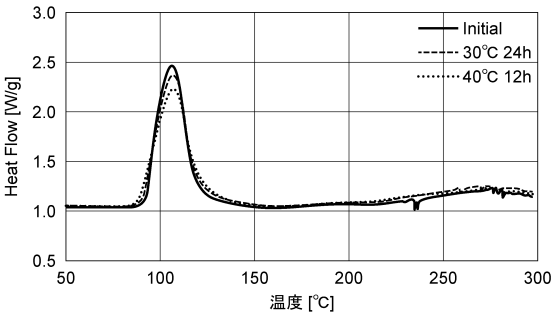
40

50

【図 1 5】



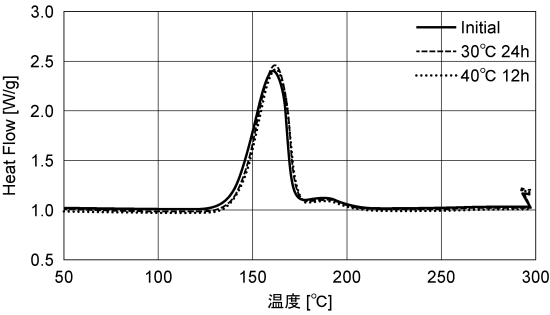
【図 1 6】



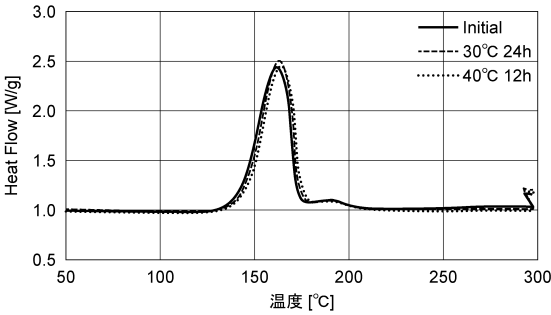
10

20

【図 1 7】



【図 1 8】

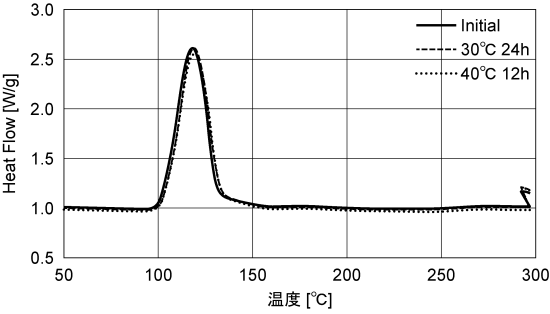


30

40

50

【図 19】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

C 0 8 G	85/00 (2006.01)	C 0 8 G	85/00	
C 0 9 J	7/30 (2018.01)	C 0 9 J	7/30	
C 0 9 J	11/06 (2006.01)	C 0 9 J	11/06	
C 0 9 J	163/00 (2006.01)	C 0 9 J	163/00	
C 0 9 K	3/00 (2006.01)	C 0 9 K	3/00	W
H 0 1 B	1/20 (2006.01)	H 0 1 B	1/20	D
H 0 5 K	1/03 (2006.01)	H 0 5 K	1/03	6 5 0

(72)発明者 市村 剛幸

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内

(72)発明者 宮地 勝将

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内

(72)発明者 小林 亮太

東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 昭和電工マテリアルズ株式会社内

(72)発明者 石川 和憲

神奈川県平塚市四之宮一丁目7番7号

(72)発明者 伊藤 つばさ

神奈川県平塚市四之宮一丁目7番7号

審査官 水野 明梨

(56)参考文献

特開平05-005006 (JP, A)

特開平05-262813 (JP, A)

特開平01-299803 (JP, A)

特開平03-109465 (JP, A)

特開2017-214472 (JP, A)

特開2017-152354 (JP, A)

Quaternary Ammonium Salts as Useful Cationic Initiators. Synthesis, Activity, and Thermal Latency of AT-Benzylpyridinium Salts and the Role of the Pyridine Moiety, Macromolecules, 1991年, volume 24 Issue 10, 2689-2683

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C 0 9 J 2 0 1 / 0 0

C 0 7 D 2 1 3 / 6 1

C 0 7 D 2 1 3 / 8 4

C 0 7 F 5 / 0 2

C 0 8 G 5 9 / 6 8

C 0 8 G 8 5 / 0 0

C 0 9 J 7 / 3 0

C 0 9 J 1 1 / 0 6

C 0 9 J 1 6 3 / 0 0

C 0 9 K 3 / 0 0

H 0 1 B 1 / 2 0

H 0 5 K 1 / 0 3

C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)