



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2015-0041748
(43) 공개일자 2015년04월17일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C09J 9/02 (2006.01) C09J 11/04 (2006.01)
H01B 1/20 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2014-0135546
(22) 출원일자 2014년10월08일
심사청구일자 없음
(30) 우선권주장
JP-P-2013-212121 2013년10월09일 일본(JP)

(71) 출원인
히타치가세이가부시끼가이샤
일본국 도쿄도 치요다쿠 마루노우치 1초메 9반 2고
(72) 발명자
요코타, 히로시
일본 1006606 도쿄도 치요다쿠 마루노우치 1초메 9반 2고 히타치가세이가부시끼가이샤 내
이자와, 히로유키
일본 1006606 도쿄도 치요다쿠 마루노우치 1초메 9반 2고 히타치가세이가부시끼가이샤 내
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
장수길, 박보현

전체 청구항 수 : 총 9 항

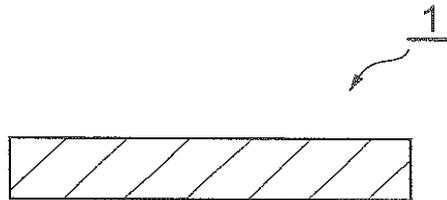
(54) 발명의 명칭 **회로 접속 재료, 회로 부재의 접속 구조체 및 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법**

(57) 요약

본 발명은, 회로 부재끼리의 접속에 사용한 경우에, 저압에서의 접속에 있어서도 충분히 낮은 접속 저항과 양호한 접속 신뢰성을 양립시킬 수 있는 회로 접속 재료를 제공하는 것을 목적으로 한다.

이를 위하여, 제1 기판 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와, 제2 기판 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재를, 제1 접속 단자와 제2 접속 단자가, 전기적으로 접속되도록 접촉하기 위한 회로 접속 재료로서, 제1 회로 부재 및 제2 회로 부재 중 적어도 한쪽이 IC 칩이고, (a) 열가소성 수지와, (b) 라디칼 중합성 화합물과, (c) 라디칼 중합 개시제와, (d) 무기 필러를 함유하며, (d) 무기 필러의 형상이 인편상인, 회로 접속 재료를 제공한다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

아리후쿠, 모토히로

일본 1006606 도쿄도 치요다쿠 마루노우치 1초메
9반 2고 히타치가세이가부시끼가이샤 내

가와카미, 스스무

일본 1006606 도쿄도 치요다쿠 마루노우치 1초메
9반 2고 히타치가세이가부시끼가이샤 내

명세서

청구범위

청구항 1

제1 기관 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와, 제2 기관 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재를, 상기 제1 접속 단자와 상기 제2 접속 단자가, 전기적으로 접속되도록 접촉하기 위한 회로 접속 재료로서, 상기 제1 회로 부재 및 상기 제2 회로 부재 중 적어도 한쪽이 IC 칩이고, (a) 열가소성 수지와, (b) 라디칼 중합성 화합물과, (c) 라디칼 중합 개시제와, (d) 무기 필러를 함유하며, 상기 (d) 무기 필러의 형상이 인편상인, 회로 접속 재료.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 (d) 무기 필러가 알루미늄 및 질화붕소 중 적어도 하나를 포함하는, 회로 접속 재료.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 (d) 무기 필러의 배합량이 회로 접속 재료의 전체 질량에 대하여 1 내지 20질량%인 회로 접속 재료.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, (g) 도전성 입자를 더 함유하는 회로 접속 재료.

청구항 5

제4항에 있어서, 상기 (d) 무기 필러가 상기 (g) 도전성 입자와 복합화되어 있지 않은 상태로 존재하는, 회로 접속 재료.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 필름상인 회로 접속 재료.

청구항 7

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 있어서, 칩 온 플라스틱 실장용인 회로 접속 재료.

청구항 8

제1 기관 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와,

제2 기관 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재와,

상기 제1 회로 부재와 상기 제2 회로 부재 사이에 설치되며, 상기 제1 접속 단자와 상기 제2 접속 단자를 대향 배치시킨 상태에서 상기 제1 회로 부재 및 상기 제2 회로 부재를 접속하는 회로 접속 부재를 구비하고,

상기 제1 기관이 플라스틱 기관이고,

상기 제2 회로 부재가 IC 칩이고,

상기 회로 접속 부재가 제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 기재된 회로 접속 재료의 경화물을 포함하며, 상기 제1 접속 단자와 상기 제2 접속 단자가 전기적으로 접속되어 있는, 회로 부재의 접속 구조체.

청구항 9

제8항에 기재된 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법이며,

상기 제1 기관 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와 상기 제2 기관 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재 사이에 제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 기재된 회로 접속 재료를 배치하고, 상기 제1 회로 부재

및 상기 제2 회로 부재를 통하여 상기 회로 접속 재료를 가열 및 가압하여 경화시켜, 상기 제1 회로 부재와 상기 제2 회로 부재를 접착함과 함께 상기 제1 접속 단자와 상기 제2 접속 단자를 전기적으로 접속하는, 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 회로 접속 재료, 회로 부재의 접속 구조체 및 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 반도체, 액정 디스플레이 등의 분야에서 전자 부품을 고정하고, 회로 접속을 행하기 위하여 각종 접착 재료가 사용되고 있다.

[0003] 예를 들어, 액정 디스플레이와 테이프 캐리어 패키지(Tape Carrier Package: TCP)의 접속, 플렉시블 프린트 기관(Flexible Printed Circuits: FPC)과 TCP의 접속, FPC와 프린트 배선판의 접속에는, 회로 접속을 보다 확실하게 행하기 위하여, 접착제 중에 도전성 입자를 분산시킨 이방 도전성 접착제가 사용되고 있다(예를 들어, 특허문헌 1 내지 4 참조). 또한, 반도체 실리콘 칩을 기관에 실장하는 경우에도, 종래의 와이어 본드 대신에, 반도체 실리콘 칩을 기관에 직접 실장하는 소위 칩 온 유리(Chip-on-glass: COG) 실장이 행하여지고 있으며, 여기에서도 이방 도전성 접착제가 적용되고 있다.

[0004] 이러한 이방 도전성 접착제로서, 예를 들어 특허문헌 5에는 라디칼 중합성 수지 (A), 유기 과산화물 (B), 열가소성 엘라스토머 (C) 및 소정의 인산에스테르 (D), 소정의 에폭시실란 커플링제 (E)를 포함하는 접착성 수지 조성물 중에 도전성 입자를 포함하는 이방 도전성 접착제에 있어서, 라디칼 중합성 수지로서 특정한 우레탄아크릴레이트를 사용하는 것을 특징으로 하는 이방 도전성 접착제가 기재되어 있다. 또한, 예를 들어 특허문헌 6에는 절연성 접착제와, 도전성 입자와, 실란 커플링제를 갖고 이루어지는, 두께 방향으로 도통하고, 면 방향으로는 도통하지 않는 도전 이방성 접착제가 기재되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0005] (특허문헌 0001) 일본 특허 공개(소) 59-120436호 공보
- (특허문헌 0002) 일본 특허 공개(소) 60-191228호 공보
- (특허문헌 0003) 일본 특허 공개(평) 1-251787호 공보
- (특허문헌 0004) 일본 특허 공개(평) 7-90237호 공보
- (특허문헌 0005) 일본 특허 제3503740호 공보
- (특허문헌 0006) 일본 특허 공개(소) 62-62874호 공보
- (특허문헌 0007) 일본 특허 공개 제2000-40418호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 그런데, 최근들어 정밀 전자 기기의 분야에서는, 회로의 플렉시블화가 진행되고 있으며, 반도체 실리콘 칩을 폴리이미드(PI), 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 등의 플라스틱 기관에 접속 단자 등이 형성된 회로 부재(예를 들어, 플렉시블 회로 기관 등)에 직접 실장하는 칩 온 플라스틱(Chip-on-Plastic: COP) 실장이 행하여지기 시작하고 있다. 그러나, 종래의 COG 실장에 사용되고 있는 회로 접속 재료 및 그의 접속 조건에서는, 플렉시블 회로 기관 위의 회로 단락, 열 압착 시의 플라스틱 기관의 변형, 플라스틱 기관에 대한 접착력의 결여 등의 문제점이 있었다. 이들 문제점을 해결하기 위하여, 저온(예를 들어, 100 내지 160℃), 저압(예를 들어, 칩 상의 범프 면적당 10 내지 30MPa), 단시간(예를 들어, 10초 이내)에서의 접속, 바꾸어 말하면 저온저압속경화가 가능한 회로

접속 재료가 요구되고 있다. 또한, COP 실장 및 COG 실장 어느 것에서든, 회로의 고정밀화가 요구되고 있으며, IC 칩 상의 접속 단자 1개당 면적은 작아지고 있다. 즉, 접속 시에 접속 단자 1개당에 가해지는 압력은 증대되기 때문에, 기관에는 국소적으로 압력이 부하되는 경향이 있다. 따라서, 특히 COP 실장의 경우에는, 플라스틱 기관에 대한 대미지 저감의 관점에서, 저압 실장 기술이 특히 중요해진다.

[0007] 종래의 에폭시 수지계를 사용한 회로 접속용 접착제는, 높은 접착력을 얻을 수 있는 한편, 저온속경화를 위해서는 활성이 높은 잠재성 경화제를 사용할 필요가 있어, 보존 안정성과의 양립을 도모하는 것이 곤란했다. 또한, 저압에서의 접속을 달성하기 위해서는, 수지 조성물이 충분한 유동성을 갖는 것이 필수적이지만, 종래의 에폭시 수지계를 사용한 회로 접속용 접착제에서는, 유동성이 부족했다.

[0008] 또한, COP 실장용의 접착 재료로서, 예를 들어 특허문헌 5 및 특허문헌 6과 같이, 불포화 화합물의 라디칼 중합을 이용하는 것을 적용한 경우, 저온속경화가 가능해지고, 수지 조성물의 유동성은 종래의 에폭시 수지계보다도 향상된다. 그러나, 수지 조성물의 유동성은 아직 충분하지 않으며, 저압(예를 들어, 칩 상의 범프 면적당 10 내지 30MPa)에서의 접속은 매우 곤란했다.

[0009] 또한, 예를 들어 특허문헌 7과 같은 무기 필러를 함유하는 접속 재료에는, 접속 시의 내부 응력의 저감에 의해 접속 신뢰성을 향상시키는 효과는 있기는 하지만, 무기 필러에 의해 접속 재료의 유동성이 저하되기 때문에, 저압(예를 들어, 칩 상의 범프 면적당 10 내지 30MPa)에서의 접속은 매우 곤란했다.

[0010] 본 발명은, 상기 종래 기술이 갖는 과제를 감안하여 이루어진 것이며, 회로 부재끼리의 접속에 사용한 경우에, 저압에서의 접속에 있어서도 충분히 낮은 접속 저항과 양호한 접속 신뢰성을 양립시킬 수 있는 회로 접속 재료를 제공하는 것을 목적으로 한다. 본 발명은 또한 상기 회로 접속 재료를 사용한 회로 부재의 접속 구조체 및 그의 제조 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0011] 본 발명자들은, 특정한 형상을 갖는 무기 필러를 함유하는 회로 접속 재료가, 회로 부재의 접속 단자와 IC 칩의 접속 단자를 전기적으로 접속하기 때문에 특히 우수한 것을 발견하고, 본 발명을 완성시켰다.

[0012] 즉, 본 발명은, 제1 기관 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와, 제2 기관 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재를, 제1 접속 단자와 제2 접속 단자가, 전기적으로 접속되도록 접착하기 위한 회로 접속 재료로서, 제1 회로 부재 및 제2 회로 부재 중 적어도 한쪽이 IC 칩이고, (a) 열가소성 수지와, (b) 라디칼 중합성 화합물과, (c) 라디칼 중합 개시제와, (d) 무기 필러를 함유하며, (d) 무기 필러의 형상이 인편상인, 회로 접속 재료를 제공한다.

[0013] 본 발명에 관한 회로 접속 재료는, 회로 부재와 IC 칩을 저압에서 접속한 경우에 있어서, 접속 저항이 충분히 낮아, 예를 들어 85℃, 85%RH의 가속 시험 후에 있어서도 양호한 접속 저항을 나타내는 점에서, 접속 신뢰성이 우수하다. 본 발명에 관한 회로 접속 재료는, 한쪽 회로 부재의 기관이 플라스틱인 경우든, 또는 유리인 경우든 적절하게 사용할 수 있지만, 저온저압속경화가 요구되는 플라스틱의 경우에 특히 우수한 효과를 발현한다.

[0014] 상기 회로 접속 재료는, (a) 열가소성 수지와, (b) 라디칼 중합성 화합물과, (c) 라디칼 중합 개시제를 함유하기 때문에, 저온에서 접속하는 경우도 경화가 충분히 진행되어, 예를 들어 85℃, 85%RH의 가속 시험 후에 있어서도 양호한 접속 저항을 유지할 수 있다.

[0015] 또한, 상기 회로 접속 재료는, (d) 무기 필러를 함유하고, 상기 무기 필러의 형상이 인편상이기 때문에, 저압에서 접속하는 경우도 충분한 유동성을 갖고, 회로 부재와 IC 칩간의 수지 배제가 촉진되어, 충분히 낮은 접속 저항이 된다. 또한, 상기 무기 필러를 함유함으로써 상기 회로 접속 재료의 경화 후의 탄성률이 증대되기 때문에, 예를 들어 85℃, 85%RH의 가속 시험 시에도, 회로 부재와 IC 칩간의 접착력이 유지되어 안정된 접속 신뢰성을 얻을 수 있다.

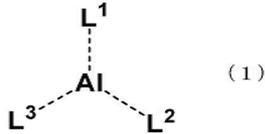
[0016] 또한, (d) 무기 필러로서는, 형상이 인편상인 것이면 특별히 조성을 한정하지 않고 사용할 수 있지만, 회로 접속 재료에 대한 분산성의 관점에서 알루미늄 및 질화붕소 중 적어도 하나를 포함하는 것이 바람직하다. 이들을 무기 필러로서 사용함으로써, 접속 시의 회로 부재의 접속 단자와 IC 칩의 접속 단자 사이의 수지 배제를 촉진할 수 있어, 안정된 접속 신뢰성을 얻을 수 있다.

[0017] 또한, 상기 (d) 무기 필러의 배합량은, 회로 접속 재료 전체에 대하여 1 내지 20질량%인 것이 바람직하다. 이러한 배합량인 것에 의해, 접속 시의 회로 부재의 접속 단자와 IC 칩의 접속 단자 사이의 수지 배제를 촉진할

수 있어, 안정된 접속 신뢰성을 얻을 수 있다.

[0018] 또한, 본 발명에 관한 회로 접속 재료는, (a) 열가소성 수지가 중량 평균 분자량 1000 내지 5000의 아크릴 수지를 포함하는 것이 바람직하다. 이러한 아크릴 수지를 포함함으로써, 회로 접속 재료의 유동성이 더욱 향상되어, 접속 시의 회로 부재의 접속 단자와 IC 칩의 접속 단자 사이의 수지 배제를 더욱 촉진할 수 있어, 안정된 접속 신뢰성의 유지도 가능하게 된다.

[0019] 본 발명에 관한 회로 접속 재료는, 하기 화학식 (1)로 표시되는 (e) 알루미늄 착체를 더 함유할 수도 있다.



[0020] [화학식 (1) 중, L^1 , L^2 및 L^3 은, 각각 독립적으로, 알콕시 음이온, β -디케톤의 공액 음이온 또는 β -케토에스테르의 공액 음이온을 나타내며, L^1 , L^2 및 L^3 은, 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있음]

[0022] 상기 알루미늄 착체를 함유함으로써, 보다 한층 충분한 접착 강도를 얻을 수 있다.

[0023] 본 발명에 관한 회로 접속 재료는, (f) 실란 커플링제를 더 함유할 수도 있다.

[0024] 또한, 상기 실란 커플링제는, 분자 내에 적어도 하나의 알콕시실릴기와 라디칼 중합성 이중 결합을 포함하는 것이 바람직하다. 이에 의해, 접착력이 더욱 향상된다.

[0025] 상기 회로 접속 재료는, (g) 도전성 입자를 더 포함하고 있을 수도 있다. 도전성 입자를 함유함으로써, 접속하는 전극간(접속 단자간 등)의 접속 신뢰성을 높일 수 있음과 함께, 접속 저항을 저감시킬 수 있다.

[0026] 본 발명은, (a) 열가소성 수지, (b) 라디칼 중합성 화합물, (c) 라디칼 중합 개시제, (d) 무기 필러, (e) 알루미늄 착체, (f) 실란 커플링제 및 (g) 도전성 입자를 함유하는 도전성 접착제층과, 상기 도전성 접착제층의 한쪽 면에 형성되고, (a) 열가소성 수지, (b) 라디칼 중합성 화합물, (c) 라디칼 중합 개시제, (d) 무기 필러, (e) 알루미늄 착체 및 (f) 실란 커플링제를 함유하며, (g) 도전성 입자를 함유하지 않는 절연성 접착제층을 적어도 구비하는, 회로 접속 재료를 제공한다.

[0027] 이러한 도전성 접착제층과 절연성 접착제층을 구비하는 회로 접속 재료를 사용하면, 취급이 용이해지기 때문에, 접속 작업을 보다 간편하게 행할 수 있다.

[0028] 또한, 상기 회로 접속 재료는, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리카르보네이트, 폴리이미드 등의 열가소성 수지 등으로 형성된 플라스틱 기판 위에, 접속 단자인 금 도금, ITO(indium tin oxide), SiN_x (질화규소), SiO_2 (이산화규소) 등의 피막이 형성된 회로 부재와 IC 칩을 전기적으로 접속하기 때문에 특히 우수하다. 따라서, 칩 온 플라스틱 실장용으로서 적절하게 사용된다.

[0029] 본 발명에서는 또한, 제1 기판 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와, 제2 기판 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재와, 제1 및 제2 회로 부재 사이에 설치되며, 제1 접속 단자와 제2 접속 단자를 대향 배치시킨 상태에서 제1 회로 부재 및 제2 회로 부재를 접속하는 회로 접속 부재를 구비하고, 제1 기판이 플라스틱 기판이고, 제2 회로 부재가 IC 칩이고, 회로 접속 부재가, 회로 접속 재료의 경화물을 포함하며, 제1 접속 단자와 제2 접속 단자는 전기적으로 접속되어 있는, 회로 부재의 접속 구조체를 제공한다.

[0030] 본 발명에 관한 회로 부재의 접속 구조체에 의하면, 상기 회로 접속 재료를 사용하기 때문에, 제1 회로 부재와 제2 회로 부재가 높은 접착력으로 접착되어, 회로 부재간의 접속 저항이 낮은 상태로 유지되고 있다. 그로 인해, 본 발명에 관한 회로 부재의 접속 구조체는 접속 신뢰성이 우수한 것으로 된다.

[0031] 본 발명에서는 또한, 기판 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와, 제2 기판 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재 사이에 상기 회로 접속 재료를 배치하고, 제1 회로 부재 및 제2 회로 부재를 가열 및 가압하여 회로 접속 재료를 경화시켜, 제1 회로 부재와 제2 회로 부재를 접속함과 함께 제1 접속 단자와 제2 접속 단자를 전기적으로 접속하는, 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법을 제공한다.

[0032] 이 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법에 의하면, 상기 회로 접속 재료를 사용하고 있기 때문에, 한쪽이 플라스틱 기판으로 구성되는 회로 부재인 경우에, 특히 저압에서의 접속으로도 회로 부재간의 접속 저항이 충분히

낮고, 또한 충분한 접착력으로 접착된 회로 부재의 접속 구조체를 얻을 수 있다.

[0033] 본 발명의 회로 접속 재료에 의하면, 회로 부재끼리의 접속에 사용한 경우에, 특히 한쪽 회로 부재가 플라스틱 기판으로 구성되는 회로 부재의 접속에 사용한 경우에, 저압에서의 접속이어도 충분히 낮은 접속 저항과 높은 접속 신뢰성을 양립시킬 수 있다.

[0034] 또한, 본 발명의 회로 접속 재료는, 플라스틱 기판으로 구성되는 회로 부재와 반도체 소자, 액정 표시 소자 등의 IC 칩을 접착하기에 적합하며, 접속 저항 및 접속 신뢰성이 우수하다. 특히, 이 회로 접속 재료를 사용하는 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법에 의하면, 저온저압속경화가 가능해지는 점에서, 회로 부재에 대한 악영향이 충분히 억제된다.

도면의 간단한 설명

[0035] 도 1은 회로 접속 재료의 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다.

도 2는 회로 부재의 접속 구조체의 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다.

도 3은 회로 부재의 접속 구조체의 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다.

도 4의 (a) 내지 (c)는 도 2의 회로 부재의 접속 구조체를 제조하는 일련의 공정도이다.

도 5의 (a) 내지 (c)는 도 3의 회로 부재의 접속 구조체를 제조하는 일련의 공정도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0036] 이하, 경우에 따라 도면을 참조하여, 본 발명의 적합한 실시 형태에 대하여 상세하게 설명한다. 또한, 각 도면에 있어서, 동일하거나 또는 동등한 요소에는 동일한 부호를 부여하고, 중복되는 설명을 생략한다. 또한, 본 명세서에 있어서, 「(메트)아크릴산」이란, 아크릴산 및 그것에 대응하는 메타아크릴산을 의미하고, (메트)아크릴레이트 등의 다른 유사한 표현에 대해서도 마찬가지이다.

[0037] 또한, 본 명세서에 있어서, 중량 평균 분자량(Mw)이란, 하기에 나타내는 조건에 따라, 겔 침투 크로마토그래프(GPC)보다 표준 폴리스티렌에 의한 검량선을 사용하여 측정된 값을 의미한다.

[0038] (측정 조건) 장치: 도소 가부시끼가이샤제 GPC-8020 검출기: 도소 가부시끼가이샤제 RI-8020 칼럼: 히타치 가세이 가부시끼가이샤제 Gelpack GL-A-160-S+GL-A150 시료 농도: 120mg/3mL 용매: 테트라히드로푸란 주입량: 60 μL 압력: 30kgf/cm² 유량: 1.00mL/min

[0039] 또한, 본 명세서에 있어서, 유리 전이 온도(Tg)란, 하기에 나타내는 조건에 따라, 시차 주사 열량 측정(DSC)에 의해 측정된 값을 의미한다.

[0040] (측정 조건) 장치: 퍼킨엘머사제 DSC7 시료 중량: 0.01g

[0041] 측정 분위기: 질소 분위기 하(유량: 50ml/min) 온도 범위: -80 내지 200℃ 승온 속도: 10℃/min 판정 방법: 얻어진 흡열 곡선의 변극점 전후의 직선을 연장하여, 2개의 연장선간의 2분의 1이 되는 직선과 흡열 곡선이 교차하는 온도를 유리 전이 온도라고 한다.

[0042] 또한, 본 명세서에 있어서, 평균 평면 폭이란, 하기에 나타내는 조건에 따라, 주사형 전자 현미경(SEM)에 의해 측정된 값을 의미한다.

[0043] 장치: 가부시끼가이샤 히타치 하이테크놀로지제 S-4500 관찰 배율: 1500배 측정 방법: 평면 방향으로 배향된 입자를 200개 무작위로 추출하여, 입자의 긴 직경 부분을 측정하고, 그의 평균값을 산출한 것을 평균 평면 폭으로 한다.

[0044] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, (a) 열가소성 수지와, (b) 라디칼 중합성 화합물과, (c) 라디칼 중합 개시제와, (d) 무기 필러를 함유하며, (d) 무기 필러의 형상이 인편상이라고 규정되는 것이다.

[0045] (열가소성 수지)

[0046] (a) 열가소성 수지는, 가열에 의해 점도가 높은 액상 상태가 되어 외력에 의해 자유롭게 변형되고, 냉각하여 외력을 제거하면 그의 형상을 유지한 상태에서 단단해지며, 이 과정을 반복하여 행할 수 있는 성질을 갖는 수지(고분자)를 의미한다. 또한, (a) 열가소성 수지는, 상기한 성질을 갖는 반응성 관능기를 갖는 수지(고분자)일

수도 있다.

- [0047] 또한, 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료에서는, 열가소성 수지의 일 성분으로서, 특정한 중량 평균 분자량을 갖는 아크릴 수지를 포함하는 것이 바람직하다. 열가소성 수지의 일 성분으로서, 중량 평균 분자량이 1000 내지 5000인 아크릴 수지를 포함함으로써, 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는 보다 높은 유동성과 접속 신뢰성을 겸비할 수 있다.
- [0048] 또한, 상기 아크릴 수지의 중량 평균 분자량은, 유동성과 접속 신뢰성의 양립 관점에서, 1000 내지 5000이 바람직하지만, 회로 접속 재료의 필름 형성성을 높이는 것도 고려하면, 1200 내지 4000이 보다 바람직하고, 1500 내지 3000이 더욱 바람직하다.
- [0049] 또한, 상기 아크릴 수지의 유리 전이 온도(Tg)는, 회로 접속 재료의 유동성을 충분히 향상시키는 관점에서, 70℃ 미만인 것이 바람직하고, 30℃ 미만인 것이 보다 바람직하고, 0℃ 미만인 것이 더욱 바람직하다. 아크릴 수지의 유리 전이 온도(Tg)의 하한은 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어 -80℃ 이상으로 할 수 있다.
- [0050] 또한, 상기 아크릴 수지는, 측쇄에 히드록실기, 카르복실기, 글리시딜기 등의 극성 또는 반응성의 관능기를 갖지 않는 「무관능 타입」인 것이 바람직하다. 「무관능 타입」의 아크릴 수지를 포함함으로써, 다른 성분과의 상호 작용이 억제되어, 그 결과로서 회로 접속 재료의 유동성을 더욱 향상시킬 수 있다.
- [0051] 회로 접속 재료에 있어서의 상기 아크릴 수지의 함유량은, 유동성과 접속 신뢰성의 양립 관점에서, 열가소성 수지 및 라디칼 중합성 화합물의 전체 질량을 기준으로 하여, 1질량% 이상 15질량% 이하가 바람직하고, 2질량% 이상 12질량% 이하가 보다 바람직하고, 4질량% 이상 10질량% 이하가 더욱 바람직하다.
- [0052] 또한, 본 실시 형태에 관한 아크릴 수지는, 상기 특성을 갖는 시판품을 사용할 수 있는 것 이외에, 라디칼 중합 등의 공지의 합성 방법을 사용하여 얻어지는 합성품을 사용할 수도 있다.
- [0053] 본 실시 형태에 관한 아크릴 수지는, 예를 들어 가교성을 갖는 아크릴계 단량체 및 올리고머, 그 밖의 아크릴계 단량체, 및 아크릴계 단량체와 공중합 가능한 단량체 중 어느 1종류 이상과, 라디칼 중합 개시제를 사용한 라디칼 중합에 의해 얻을 수 있다.
- [0054] 가교성을 갖는 아크릴계 단량체 및 올리고머로서는, 예를 들어 폴리테트라메틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 1,6-헥산디올디(메트)아크릴레이트, 1,9-노난디올디(메트)아크릴레이트, 디메틸올트리시클로데칸디아크릴레이트, 2-히드록시-1-아크릴옥시-3-메타크릴옥시프로판디(메트)아크릴레이트 등의 디(메트)아크릴산에스테르 유도체, 에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트 등의 폴리에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 프로필렌글리콜디(메트)아크릴레이트 등의 폴리프로필렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 네오펜틸글리콜디(메트)아크릴레이트, 1,3-부틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 2,2-비스[4-(메타크릴로에톡시)페닐]프로판디(메트)아크릴레이트 등의 2,2-비스[4-(메타크릴옥시폴리에톡시)페닐]프로판디(메트)아크릴레이트, 2,2-수소 첨가 비스[4-(아크릴옥시폴리에톡시)페닐]프로판디(메트)아크릴레이트, 2,2-비스[4-(아크릴옥시에톡시폴리프로폭시)페닐]프로판디(메트)아크릴레이트 등을 들 수 있고, 모두 적절하게 사용할 수 있지만, 측쇄에 히드록실기, 카르복실기, 글리시딜기 등의 극성 또는 반응성의 관능기를 갖지 않는 것이 바람직하다.
- [0055] 그 밖의 아크릴계 단량체로서는, 예를 들어 (메트)아크릴산메틸, (메트)아크릴산에틸, (메트)아크릴산부틸, (메트)아크릴산-2-에틸헥실, (메트)아크릴산스테아릴, 에틸렌글리콜(메트)아크릴레이트, 트리플루오로에틸(메트)아크릴레이트, 펜타플루오로프로필(메트)아크릴레이트, 시클로헥실(메트)아크릴레이트 등의 (메트)아크릴산에스테르 유도체, 트리메틸올프로판트리(메트)아크릴레이트, 테트라메틸메탄트리(메트)아크릴레이트, 테트라메틸올프로판테트라(메트)아크릴레이트, 디알릴프탈레이트 및 그의 이성체, 트리알릴이소시아누레이트 및 그의 유도체, 펜타에리트리톨트리(메트)아크릴레이트, 펜타에리트리톨테트라(메트)아크릴레이트, 디펜타에리트리톨헥사(메트)아크릴레이트 등을 들 수 있고, 모두 적절하게 사용할 수 있지만, 측쇄 및 말단에 히드록실기, 카르복실기, 글리시딜기 등의 극성 또는 반응성의 관능기를 갖지 않는 것이 바람직하다.
- [0056] 아크릴계 단량체와 공중합 가능한 단량체로서는, 예를 들어 스티렌, α-메틸스티렌, p-메틸스티렌, p-클로로스티렌, 클로로메틸스티렌 등의 스티렌 유도체, 염화비닐, 아세트산비닐, 프로피온산비닐 등의 비닐에스테르류, 아크릴로니트릴 등의 불포화 니트릴류, 부타디엔, 이소프렌 등의 공액 디엔류 등을 들 수 있고, 모두 적절하게 사용할 수 있지만, 측쇄 및 말단에 히드록실기, 카르복실기, 글리시딜기 등의 극성 또는 반응성의 관능기를 갖지 않는 것이 바람직하다.
- [0057] (아크릴 수지 이외의 열가소성 수지)

- [0058] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, 아크릴 수지 이외의 열가소성 수지도 적절하게 사용할 수 있다. 아크릴 수지 이외의 열가소성 수지로서는, 예를 들어 페녹시 수지, 폴리우레탄 수지, 폴리에스테르우레탄 수지, 부티랄 수지(예를 들어, 폴리비닐부티랄 수지), 폴리이미드 수지, 폴리아미드 수지, 아세트산비닐을 구조 단위로 갖는 공중합체(아세트산비닐 공중합체, 예를 들어 에틸렌-아세트산비닐 공중합체) 등을 들 수 있다. 이들은 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다. 열가소성 수지 중에는 실록산 결합 또는 불소 치환기가 포함되어 있을 수도 있다. 이들은, 혼합하는 수지끼리 완전히 상용되는 상태 또는 마이크로 상분리를 발생시켜 백탁되는 상태인 것이 바람직하다.
- [0059] 또한, 상기 아크릴 수지 이외의 열가소성 수지의 유리 전이 온도(Tg)는, 회로 접속 재료의 유동성과 접속 신뢰성의 양립 관점에서, -30℃ 이상 190℃ 이하가 바람직하고, -25℃ 이상 170℃ 이하가 보다 바람직하고, -20℃ 이상 150℃ 이하가 더욱 바람직하다.
- [0060] 또한, 회로 접속 재료를 필름상으로 성형하여 이용하는 경우, 열가소성 수지의 Mw가 클수록 양호한 필름 형성성이 용이하게 얻어지고, 또한, 필름상의 회로 접속 재료로서의 유동성에 영향을 미치는 용융 점도를 광범위하게 설정할 수 있다.
- [0061] 본 실시 형태에 관한 아크릴 수지 이외의 열가소성 수지의 Mw는, 5000 이상이 바람직하고, 7000 이상이 보다 바람직하고, 10000 이상이 더욱 바람직하다. 열가소성 수지의 Mw가 5000 이상이면 양호한 필름 형성성이 얻어지기 쉬워진다.
- [0062] 또한, 본 실시 형태에 관한 아크릴 수지 이외의 열가소성 수지의 Mw는, 150000 이하가 바람직하고, 100000 이하가 보다 바람직하고, 80000 이하가 더욱 바람직하다. 열가소성 수지의 Mw가 150000 이하이면, 다른 성분과의 양호한 상용성이 얻어지기 쉬워진다.
- [0063] 회로 접속 재료에 있어서의, 본 실시 형태에 관한 아크릴 수지 이외의 열가소성 수지의 배합량은, 열가소성 수지 및 라디칼 중합성 화합물의 전체 질량을 기준으로 하여, 5질량% 이상이 바람직하고, 15질량% 이상이 보다 바람직하다. 열가소성 수지의 배합량이 5질량% 이상이면 회로 접속 재료를 필름상으로 성형하여 이용하는 경우에, 양호한 필름 형성성이 얻어지기 쉬워진다. 또한, 아크릴 수지 이외의 열가소성 수지의 배합량은, 회로 접속 재료에서의 도전성 입자를 이외의 성분의 전체 질량을 기준으로 하여, 80질량% 이하가 바람직하고, 70질량% 이하가 보다 바람직하다. 열가소성 수지의 배합량이 80질량% 이하이면, 양호한 유동성이 얻어지기 쉬워진다.
- [0064] (라디칼 중합성 화합물)
- [0065] (b) 라디칼 중합성 화합물은, 라디칼에 의해 중합하는 관능기를 갖는 물질이다. 라디칼 중합성 화합물로서는, (메트)아크릴레이트 화합물, 말레이미드 화합물, 스티렌 유도체 등을 들 수 있다. 이들은, 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다. 또한, 라디칼 중합성 화합물은, 단량체 또는 올리고머의 어떤 상태에서든 사용할 수 있고, 단량체와 올리고머를 혼합하여 사용할 수도 있다.
- [0066] (메트)아크릴레이트 화합물로서는, 예를 들어 메틸(메트)아크릴레이트, 에틸(메트)아크릴레이트, 이소프로필(메트)아크릴레이트, 이소부틸(메트)아크릴레이트, 에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 디에틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 트리메틸올프로판트리(메트)아크릴레이트, 테트라메틸렌글리콜디(메트)아크릴레이트, 2-히드록시-1,3-디아크릴옥시프로판, 2,2-비스[4-(아크릴옥시메톡시)페닐]프로판, 2,2-비스[4-(아크릴옥시에톡시)페닐]프로판, 디시클로펜타닐(메트)아크릴레이트트리시클로데카닐(메트)아크릴레이트, 트리스(아크릴옥시에틸)이소시아누레이트, 우레탄(메트)아크릴레이트, 이소시아누르산에틸렌옥시드 변성 디아크릴레이트 등을 들 수 있다. 이들은, 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0067] 말레이미드 화합물은, 예를 들어 말레이미드기를 적어도 1개 갖는 화합물이다. 말레이미드 화합물로서는, 예를 들어 페닐말레이미드, 1-메틸-2,4-비스말레이미드벤젠, N,N'-m-페닐렌비스말레이미드, N,N'-p-페닐렌비스말레이미드, N,N'-4,4'-비페닐렌비스말레이미드, N,N'-4,4'-(3,3'-디메틸비페닐렌)비스말레이미드, N,N'-4,4'-(3,3'-디메틸디페닐메탄)비스말레이미드, N,N'-4,4'-(3,3'-디에틸디페닐메탄)비스말레이미드, N,N'-4,4'-디페닐메탄비스말레이미드, N,N'-4,4'-디페닐프로판비스말레이미드, N,N'-4,4'-디페닐에테르비스말레이미드, N,N'-4,4'-디페닐술폰비스말레이미드, 2,2-비스(4-(4-말레이미드페녹시)페닐)프로판, 2,2-비스(3-s-부틸-3,4-(4-말레이미드페녹시)페닐)프로판, 1,1-비스(4-(4-말레이미드페녹시)페닐)에탄, 4,4'-시클로헥실렌-비스(1-(4-말레이미드페녹시)페녹시)-2-시클로헥실벤젠, 2,2-비스(4-(4-말레이미드페녹시)페닐)헥사플루오로프로판 등을 들 수 있다. 이들은, 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수도 있다.

- [0068] 스티렌 유도체는, 스티렌의 α -위치 또는 방향족환에서의 수소 원자가 치환기로 치환된 화합물이다.
- [0069] 또한, 상기 라디칼 중합성 화합물의 배합량은, 열가소성 수지 및 라디칼 중합성 화합물의 전체 질량을 기준으로 하여, 10 내지 95질량%가 바람직하고, 30 내지 80질량%가 보다 바람직하고, 40 내지 60질량%가 더욱 바람직하다. 상기 배합량으로 설정함으로써, 경화 후의 내열성이 충분하여, 양호한 필름 형성성을 갖는 회로 접속 재료가 얻어지기 쉬운 경향이 있다.
- [0070] (라디칼 중합 개시제)
- [0071] (c) 라디칼 중합 개시제로서는, 예를 들어 가열에 의해 분해되어 유리 라디칼을 발생시키는 과산화 화합물, 아조계 화합물 등을 들 수 있다. 이들은 목적으로 하는 접속 온도, 접속 시간, 보존 안정성 등에 따라 적절히 선정되지만, 반응성과 보존 안정성의 관점에서, 10시간 반감기 온도가 40℃ 이상, 또한 1분 반감기 온도가 180℃ 이하인 유기 과산화물 또는 아조계 화합물이 바람직하고, 10시간 반감기 온도가 60℃ 이상, 또한 1분 반감기 온도가 170℃ 이하인 유기 과산화물 또는 아조계 화합물이 보다 바람직하다.
- [0072] 접속 시간을 10초 이하로 한 경우, 라디칼 중합 개시제의 배합량은, 충분한 반응물을 얻기 위하여, 열가소성 수지 및 라디칼 중합성 화합물의 전체 질량을 100질량부로 했을 때, 0.1 내지 30질량부로 하는 것이 바람직하고, 0.5 내지 20질량부로 하는 것이 보다 바람직하다. 라디칼 중합 개시제의 배합량이 0.1질량부 이상으로 함으로써 충분한 반응물을 유지하면서, 양호한 접착 강도 및 낮은 접속 저항을 갖는 회로 접속 재료가 얻어지기 쉽다. 한편, 라디칼 중합 개시제의 배합량을 30질량부 이하로 함으로써, 회로 접속 재료의 유동성 저하, 접속 저항의 상승 및 보존 안정성의 저하를 억제하기 쉽다.
- [0073] 라디칼 중합 개시제의 구체예로서는, 예를 들어 디아실퍼옥시드, 퍼옥시디카르보네이트, 퍼옥시에스테르, 퍼옥시케탈, 디알킬퍼옥시드, 히드로퍼옥시드, 실릴퍼옥시드 등을 들 수 있다. 또한, 회로 부재의 접속 단자의 부식을 억제하기 위하여, 라디칼 중합 개시제 중에 함유되는 염소 이온 및 유기산은 5000ppm 이하인 것이 바람직하다. 이들 중에서도 퍼옥시에스테르, 퍼옥시케탈, 디알킬퍼옥시드, 히드로퍼옥시드 또는 실릴퍼옥시드인 것이 바람직하고, 고반응성이 얻어지는 퍼옥시에스테르 또는 퍼옥시케탈인 것이 보다 바람직하다. 이들은, 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0074] 디아실퍼옥시드로서는, 예를 들어 이소부틸릴퍼옥시드, 2,4-디클로로벤조일퍼옥시드, 3,5,5-트리메틸헥사노일퍼옥시드, 옥타노일퍼옥시드, 라우로일퍼옥시드, 스테아로일퍼옥시드, 숙시닐퍼옥시드, 벤조일퍼옥시톨루엔, 벤조일퍼옥시드 등을 들 수 있다.
- [0075] 퍼옥시디카르보네이트로서는, 예를 들어 디-n-프로필퍼옥시디카르보네이트, 디이소프로필퍼옥시디카르보네이트, 비스(4-t-부틸시클로헥실)퍼옥시디카르보네이트, 디-2-에톡시메톡시퍼옥시디카르보네이트, 디(2-에틸헥실퍼옥시)디카르보네이트, 디메톡시부틸퍼옥시디카르보네이트, 디(3-메틸-3메톡시부틸퍼옥시)디카르보네이트 등을 들 수 있다.
- [0076] 퍼옥시에스테르로서는, 예를 들어 쿠밀퍼옥시네오데카노에이트, 1,1,3,3-테트라메틸부틸퍼옥시네오데카노에이트, 1-시클로헥실-1-메틸에틸퍼옥시네오데카노에이트, t-헥실퍼옥시네오데카노에이트, t-부틸퍼옥시피발레이트, 1,1,3,3-테트라메틸부틸퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, 2,5-디메틸-2,5-디(2-에틸헥사노일퍼옥시)헥산, 1-시클로헥실-1-메틸에틸퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, t-헥실퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, t-부틸퍼옥시-2-에틸헥사노에이트, t-부틸퍼옥시이소부틸레이트, 1,1-비스(t-부틸퍼옥시)시클로헥산, t-헥실퍼옥시이소프로필모노카르보네이트, t-부틸퍼옥시-3,5,5-트리메틸헥사노에이트, t-부틸퍼옥시라우레이트, 2,5-디메틸-2,5-디(m-톨루오일퍼옥시)헥산, t-부틸퍼옥시이소프로필모노카르보네이트, t-부틸퍼옥시-2-에틸헥실모노카르보네이트, t-헥실퍼옥시벤조에이트, t-부틸퍼옥시아세테이트 등을 들 수 있다.
- [0077] 퍼옥시케탈로서는, 예를 들어 1,1-비스(t-헥실퍼옥시)-3,3,5-트리메틸시클로헥산, 1,1-비스(t-헥실퍼옥시)시클로헥산, 1,1-비스(t-부틸퍼옥시)-3,3,5-트리메틸시클로헥산, 1,1-비스(t-부틸퍼옥시)시클로도데칸, 2,2-비스(t-부틸퍼옥시)데칸 등을 들 수 있다.
- [0078] 디알킬퍼옥시드로서는, 예를 들어 α, α' -비스(t-부틸퍼옥시)디이소프로필벤젠, 디쿠밀퍼옥시드, 2,5-디메틸-2,5-디(t-부틸퍼옥시)헥산, t-부틸쿠밀퍼옥시드 등을 들 수 있다.
- [0079] 히드로퍼옥시드로서는, 예를 들어 디이소프로필벤젠히드로퍼옥시드, 쿠멘히드로퍼옥시드 등을 들 수 있다.
- [0080] 실릴퍼옥시드로서는, 예를 들어 t-부틸트리메틸실릴퍼옥시드, 비스(t-부틸)디메틸실릴퍼옥시드, t-부틸트리비닐실릴퍼옥시드, 비스(t-부틸)디비닐실릴퍼옥시드, 트리스(t-부틸)비닐실릴퍼옥시드,

t-부틸트리알릴실릴퍼옥시드, 비스(t-부틸)디아릴실릴퍼옥시드, 트리스(t-부틸)알릴실릴퍼옥시드 등을 들 수 있다.

[0081] 이들 가열에 의해 유리 라디칼을 발생시키는 라디칼 중합 개시제는, 분해 촉진제, 억제제 등을 더 혼합하여 사용할 수도 있다. 또한, 이들 라디칼 중합 개시제를 폴리우레탄계, 폴리에스테르계의 고분자 물질 등으로 피복하여 마이크로 캡슐화한 것은, 가사 시간이 연장되기 때문에 바람직하다.

[0082] (무기 필러)

[0083] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, (d) 무기 필러를 함유하고, 상기 무기 필러의 형상은 인편상으로 규정된다. 인편상이란 비늘과 같은 편평상 또는 박편의 부정 형상을 의미하며, 평면 방향을 갖고, 또한 상기 평면 방향에 직교하는 방향으로 두께를 갖는 형상의 것을 포함한다. 또한, 인편상에 있어서는, 엄밀하게 물고기의 비늘 형상에 한정되는 것은 아니며, 좁은 의미의 인편상뿐만 아니라, 판상, 원형, 타원형, 다각형과 비슷한 형태인 입자를 포함한다.

[0084] 상기 인편상의 무기 필러를 사용함으로써, 접속 단자간의 접속 저항이 낮아지는 이유는 반드시 명백하지는 않으나, 본 발명자들은, 제1 회로 부재와 제2 회로 부재 사이에, 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료를 개재시켜, 제1 회로 부재 및 제2 회로 부재의 어느 일방향, 또는 양방향으로부터 압력을 인가할 때, 무기 필러의 평면 방향으로 선택적으로 압력이 인가되고, 인가하는 압력이 저압이라도, 제1 접속 단자와 제2 접속 단자 사이에 개재하는 회로 접속 재료의 수지 배제가 촉진되기 때문이라고 생각하고 있다.

[0085] 또한, 접속 신뢰성이 향상되는 이유로서는, 회로 접속 재료의 경화물의 탄성률이 향상되기 때문이라고 생각하고 있다. 회로 접속 재료의 경화물의 탄성률이 향상됨으로써, 예를 들어 85℃, 85RH% 내습 시험 후에도 낮은 접속 저항을 유지할 수 있다.

[0086] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료의 피착체는, 제1 회로 부재 및 제2 회로 부재 중 적어도 한쪽이 반도체 소자, 액정 표시 소자 등의 IC 칩이다. IC 칩을 회로 부재에 실장하는 경우에 있어서는, IC 칩의 회로 단자 부분에 국소적으로 압력이 인가되기 때문에, 저압에서의 접속이 가능한 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료가 특히 유용해진다.

[0087] 또한, 무기 필러의 평균 평면 폭은, 0.5 내지 20 μ m가 바람직하고, 1 내지 15 μ m가 보다 바람직하고, 1 내지 10 μ m가 더욱 바람직하다. 또한, 무기 필러의 평균 두께는 0.001 내지 1 μ m가 바람직하고, 0.002 내지 0.8 μ m가 보다 바람직하고, 0.005 내지 0.5 μ m가 더욱 바람직하다. 평균 평면 폭이 0.5 μ m 이상인 경우, 회로 접속 시에 IC 칩의 접속 단자와 회로 부재의 접속 단자 사이의 수지 배제가 촉진되어 바람직하다. 또한, 평균 평면 폭이 20 μ m 이하인 경우, 회로 접속 재료에 대한 무기 필러의 분산성이 양호해지기 때문에 바람직하다.

[0088] 무기 필러는, 상기에 기재한 인편상의 입자 형상을 갖는 것이면 특별히 조성은 한정되지 않지만, 알루미늄 및 질화붕소 중 적어도 하나를 포함하는 것이 바람직하다. 이들을 사용함으로써, 회로 접속 재료에 대한 무기 필러의 분산성을 향상시킬 수 있고, 접속 시의 회로 부재의 접속 단자와 IC 칩의 접속 단자 사이의 수지 배제를 촉진할 수 있다.

[0089] 질화붕소의 종류로서는, 무정형 질화붕소(a-BN), 육방정 질화붕소(h-BN), 입방정 질화붕소(c-BN) 등을 들 수 있지만, 높은 윤활성, 내열성의 관점에서, 육방정 질화붕소(h-BN)를 사용하는 것이 바람직하다.

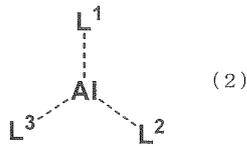
[0090] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료가, 후술하는 (g) 도전성 입자를 포함하는 경우, 무기 필러는 상기 도전성 입자와 복합화(또는 일체화)되어 있지 않은 상태로 존재하는 것이 바람직하다.

[0091] 무기 필러의 배합량은, 회로 접속 재료의 전체 질량에 대하여, 1 내지 20질량%가 바람직하고, 1.2 내지 15질량%가 보다 바람직하고, 1.5 내지 10질량%가 특히 바람직하다. 1 내지 20질량%의 경우, 접속 시의 회로 부재의 접속 단자와 IC 칩의 접속 단자 사이의 수지 배제가 촉진됨과 함께, 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료의 경화물의 탄성률이 향상되기 때문에, 안정된 접속 신뢰성을 유지할 수 있다.

[0092] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, (e) 알루미늄 착체를 더 함유하고 있을 수도 있다.

[0093] 알루미늄 착체는, 알루미늄에 유기기를 포함하는 배위자가 결합된 분자이다. 배위자는 배위 부위를 1개소에만 갖는 단좌 배위자일 수도 있고, 배위 부위를 2개소 이상에 갖는 다좌 배위자일 수도 있다. 알루미늄과 배위자의 결합은, 수소 결합 또는 배위 결합 중 어느 하나일 수도 있다. 유기기로서는, 예를 들어 탄소 원자, 수소 원자 및 산소 원자로 구성되는 기를 들 수 있고, 그들은 황 원자, 질소 원자 등을 더 포함하고 있을 수도 있다.

[0094] 알루미늄 착체는, 하기 화학식 (2)로 표시되는 것이 바람직하다.



[0095]

[0096] [화학식 (2) 중 L^1 , L^2 및 L^3 은, 각각 독립적으로, 알콕시 음이온, β -디케톤의 공액 음이온 또는 β -케토에스테르의 공액 음이온을 나타내며, L^1 , L^2 및 L^3 은, 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있음]

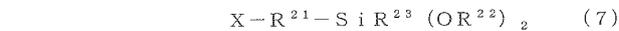
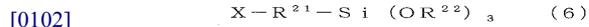
[0097] 화학식 (2)로 표시되는 알루미늄 착체의 구체예로서는, 예를 들어 알루미늄트리스(아세틸아세토네이트), 알루미늄트리스(에틸아세토아세테이트), 알루미늄모노아세틸아세토네이트비스(에틸아세토아세테이트), 알루미늄모노아세틸아세토네이트비스(올레일아세토아세테이트), 디소프로폭시알루미늄에틸아세토아세테이트, 디소프로폭시알루미늄알킬아세토아세테이트 등을 들 수 있다.

[0098] 이들은, 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.

[0099] 회로 접속 재료에 있어서의 알루미늄 착체의 배합량은, 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들어 열가소성 수지 및 라디칼 중합성 화합물의 전체 질량을 100질량부로 했을 때, 0.1 내지 20질량부로 할 수 있다. 또한, 경화물성의 관점에서, 0.5 내지 15질량부로 하는 것이 바람직하고, 1 내지 10질량부로 하는 것이 보다 바람직하다.

[0100] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, (f) 실란 커플링제를 더 함유할 수도 있다.

[0101] 실란 커플링제는, 그 분자 중에 알콕시실릴기(Si-OR)를 갖는 화합물이다. 실란 커플링제로서는 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 분자 내에, 적어도 1개 알콕시실릴기(Si-OR)를 갖는 하기 화학식 (6) 내지 (8)로 표시되는 화합물을 사용할 수 있다.



[0103]

[0104] [식 (6) 내지 (8) 중 R^{21} 은, 탄소수 1 내지 6의 알킬렌기를 나타내고, R^{22} 및 R^{23} 은, 각각 독립적으로, 탄소수 1 내지 12의 직쇄상 또는 분지상의 알킬기, 시클로알킬기, 페닐기 또는 치환 페닐기를 나타내고, X는 우레이드기, 3,4-에폭시시클로헥실기, 글리시딜옥시기, 이소시아나이드기, 비닐기, 메타크릴옥시기, 아크릴옥시기 또는 머캡토기를 나타냄]

[0105] 또한, 화학식 (6) 내지 (8) 중의 X로서, (메트)아크릴옥시기 등의 라디칼 중합성 이중 결합을 갖는 기를 포함하는 것이 바람직하다. 이에 의해, 접착력이 더욱 향상된다.

[0106] 실란 커플링제로서는, 구체적으로는 예를 들어 3-메타크릴옥시프로필메틸디메톡시실란, 3-메타크릴옥시프로필트리메톡시실란, 3-메타크릴옥시프로필메틸디에톡시실란, 3-메타크릴옥시프로필트리에톡시실란, 3-아크릴옥시프로필트리메톡시실란 등을 들 수 있다.

[0107] 이들은, 1종을 단독으로, 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.

[0108] 회로 접속 재료에 있어서의 실란 커플링제의 함유량은, 특별히 제한되는 것은 아니지만, 예를 들어 열가소성 수지 및 라디칼 중합성 화합물의 전체 질량을 100질량부로 했을 때, 0.1 내지 30질량부로 할 수 있다. 또한, 접착력의 관점에서, 1 내지 20질량부로 하는 것이 바람직하고, 2 내지 10질량부로 하는 것이 보다 바람직하다.

[0109] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, (g) 도전성 입자를 더 포함할 수도 있다.

[0110] 도전성 입자로서는, Au, Ag, Ni, Cu, 땀납 등의 금속 입자, 카본 등의 도전성 물질을 들 수 있다. 충분한 보존 안정성을 얻기 위해서는, 표층이 Au, Ag 등의 귀금속류인 것이 바람직하고, Au인 것이 보다 바람직하다. 또한, Ni, Cu 등의 전이 금속류의 표면을 Au, Ag 등의 귀금속류로 피복층을 형성할 수도 있다. 또한, 비도전성의 유리, 세라믹, 플라스틱 등의 표면에 상기 도전성 물질로 피복층을 형성한 것도 사용할 수 있고, 이 경우에 있어

서도 피복층은 귀금속류로 형성한 것이 바람직하다.

- [0111] 도전성 입자로서, 비도전성의 플라스틱 등을 도전성 물질로 피복한 것 또는 열용융 금속 입자를 사용하면, 가열 및 가압에 의해 이 도전성 입자는 변형되기 때문에, 접촉 시에 전극과의 접촉 면적이 증가되어, 회로 부재에 있어서의 전극의 두께 편차를 흡수하는 경향이 있어서 바람직하다.
- [0112] 귀금속류의 피복층의 두께는, 양호한 저항을 얻는 관점에서, 10nm 이상으로 하는 것이 바람직하다. 단, Ni, Cu 등의 전이 금속류 위에 귀금속류의 층을 형성하는 경우에는, 귀금속류층의 결손 등에 의해 발생하는 산화 환원 작용으로 유리 라디칼이 발생하여, 보존 안정성의 저하를 야기하는 경향이 있기 때문에, 이것을 방지하는 관점에서, 피복층의 두께는 30nm 이상으로 하는 것이 바람직하다. 또한, 피복층의 두께 상한은 특별히 제한되지 않지만, 얻어지는 효과가 포화되기 때문에, 1 μ m 이하로 하는 것이 바람직하다.
- [0113] 도전성 입자의 평균 입경은, SEM 관찰에 의해 구할 수 있다. 도전성 입자의 평균 입경은, 분산성 및 도전성이 양호해지는 관점에서 1 내지 18 μ m인 것이 바람직하다. 도전성 입자의 배합량은, 회로 접속 재료에서의 도전성 입자 이외의 성분 100부피부에 대하여 0.1 내지 60부피부로 하는 것이 바람직하고, 이 범위 내에서 용도에 따라 적절히 조절하는 것이 바람직하다. 또한, 도전성 입자가 과잉으로 존재하는 것에 의한 인접 회로의 단락 등을 방지하는 관점에서, 배합량은 0.1 내지 30부피부로 하는 것이 보다 바람직하다.
- [0114] (안정화제)
- [0115] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료에는, 경화 속도의 제어 및 저장 안정성을 더욱 향상시키기 위하여, 안정화제를 첨가할 수 있다. 이러한 안정화제로서는, 특별히 제한없이 공지의 화합물을 사용할 수 있지만, 예를 들어 벤조퀴논, 히드로퀴논 등의 퀴논 유도체, 4-메톡시페놀, 4-t-부틸카테콜 등의 페놀 유도체, 2,2,6,6-테트라메틸피페리딘-1-옥실, 4-히드록시-2,2,6,6-테트라메틸피페리딘-1-옥실 등의 아미녹실 유도체, 테트라메틸피페리딜메타크릴레이트 등의 힌드드아민 유도체 등을 들 수 있다. 안정화제는, 1종을 단독으로 또는 2종 이상을 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0116] 안정화제의 배합량은, 회로 접속 재료에서의 도전성 입자 이외의 성분의 전체 질량을 기준으로 하여, 0.005질량% 이상이 바람직하고, 0.01질량% 이상이 보다 바람직하고, 0.02질량% 이상이 더욱 바람직하다. 상기 배합량이 0.005질량% 이상이면 경화 속도를 제어하기 쉬움과 함께 저장 안정성이 향상되기 쉬운 경향이 있다. 안정화제의 배합량은, 회로 접속 재료에서의 도전성 입자 이외의 성분의 전체 질량을 기준으로 하여, 10질량% 이하가 바람직하고, 8질량% 이하가 보다 바람직하고, 5질량% 이하가 더욱 바람직하다. 상기 배합량이 10질량% 이하이면, 다른 성분과 상용되기 쉬운 경향이 있다.
- [0117] (그 밖의 성분)
- [0118] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, 연화제, 노화 방지제, 난연화제, 색소, 티크스토로픽제, 페놀 수지, 멜라민 수지, 이소시아네이트류 등을 더 함유하고 있을 수도 있다.
- [0119] (회로 접속 재료의 일 형태)
- [0120] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, 필름상으로 성형하여 사용할 수 있다. 도 1은 회로 접속 재료의 일 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다. 회로 접속 재료(1)는, 제1 기판 위에 제1 접속 단자가 형성된 제1 회로 부재와, 제2 기판 위에 제2 접속 단자가 형성된 제2 회로 부재를, 제1 접속 단자와 제2 접속 단자가, 전기적으로 접속되도록 접착하기 위한 회로 접속 재료이다.
- [0121] 또한, 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료는, 2층 이상의 층을 포함하는 다층 구성(도시하지 않음)으로 할 수도 있다. 예를 들어, 2층 필름형 회로 접속 재료에서는, 도전성 입자를 함유하는 도전성 접착제층과, 상기 도전성 접착제층의 한쪽면에 형성된 절연성의 절연성 접착제층을 구비하고, 도전성 접착제층 및 절연성 접착제층 모두 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제, 무기 필러, 알루미늄 착체 및 실란 커플링제를 함유한다. 또한, 도전성 접착제층에 있어서, 무기 필러는 도전성 입자와 복합화(또는 일체화)되어 있지 않은 상태로 존재하는 것이 바람직하다. 도전성 접착제층 및 절연성 접착제층에 함유되는 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제, 무기 필러, 알루미늄 착체 및 실란 커플링제는, 각각 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있다. 또한, 본 발명에서 규정되는 형상이 인편상인 무기 필러는, 적어도 한쪽의 층에 포함되어 있으면 된다.
- [0122] 본 실시 형태에 관한 회로 접속 재료가, 다층 구성의 필름상인 경우, 예를 들어 각 층을 따로따로 제작한 후, 각각의 층을 접합함으로써 다층 필름형 회로 접속 재료를 제작할 수 있다. 예를 들어, 도전성 입자를 함유하는

도전성 접착제층과, 상기 도전성 접착제층의 한쪽면에 형성된 절연성의 절연성 접착제층의 2층 필름형 회로 접속 재료인 경우, 도전성 접착제층의 구성 성분의 조성물을, 용매에 용해한 것을 지지체(PET(폴리에틸렌테레프탈레이트) 필름 등) 위에 도공 장치를 사용하여 도포하고, 조성물이 경화되지 않는 온도에서 소정 시간 열풍 건조함으로써, 도전성 접착제층을 제작할 수 있다. 마찬가지로 하여, 절연성 접착제층도 제작할 수 있다. 이어서, 도전성 접착제층과 절연성 접착제층을, 예를 들어 핫 롤 라미네이터를 사용하여 접합함으로써, 2층 필름형 회로 접속 재료를 제작할 수 있다. 또한, 도전성 접착제층의 두께는, 예를 들어 1 내지 10 μ m로 할 수 있고, 절연성 접착제층의 두께는, 예를 들어 5 내지 40 μ m로 할 수 있고, 2층 필름형 회로 접속 재료 전체의 두께는, 예를 들어 6 내지 50 μ m로 할 수 있다.

[0123] (회로 부재의 접속 구조체)

[0124] 도 2는 회로 부재의 접속 구조체의 일 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다. 도 2에 도시한 바와 같이, 본 실시 형태의 회로 부재의 접속 구조체는, 서로 대향하는 기관(21)으로 구성되는 제1 회로 부재(20) 및 기관(31)으로 구성되는 제2 회로 부재(30)를 구비하고 있고, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30) 사이에는, 이들을 접속하는 회로 접속 부재(10)가 설치되어 있다.

[0125] 기관(21)으로 구성되는 제1 회로 부재(20)는, 기관(21)(제1 기관)과, 기관(21)의 주면(21a) 위에 형성된 접속 단자(제1 접속 단자)(22)를 구비하고 있다. 또한, 기관(21)의 주면(21a) 위에는 경우에 따라 절연층(도시하지 않음)이 형성되어 있을 수도 있다.

[0126] 제1 회로 부재(20)로서는, 예를 들어 전기적 접속을 필요로 하는 전극이 형성되어 있는 것이면 특별히 제한은 없다. 구체적으로 접속 단자는, 액정 디스플레이에 사용되고 있는 ITO에 의해 전극이 형성되어 있는 기관으로 구성되는 회로 부재 등을 들 수 있다. 이 기관은, 예를 들어 폴리이미드(PI) 수지, 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 수지, 폴리카르보네이트(PC) 수지, 메타크릴 수지, 환상 올레핀 수지 등의 플라스틱으로 형성된다. 또한, 본 실시 형태에서는, 금, 구리, 알루미늄 등의 금속 또는 ITO(indium tin oxide), 질화규소(SiN_x), 이산화규소(SiO₂) 등의 무기 재료를 포함하는 재질로 표면의 적어도 일부가 형성되는, 다종다양한 표면 상태를 갖는 회로 부재를 사용할 수 있다.

[0127] 한편, 제2 회로 부재(30)는, 기관(제2 기관)(31)과, 기관(31)의 주면(31a) 위에 형성된 접속 단자(제2 접속 단자)(32)를 구비하고 있다. 또한, 기관(31)의 주면(31a) 위에도 경우에 따라 절연층(도시하지 않음)이 형성되어 있을 수도 있다. 제2 회로 부재(30)는, 반도체 소자, 액정 표시 소자 등의 IC 칩이다.

[0128] 회로 접속 부재(10)는, 절연성 물질(11) 및 도전성 입자(7)를 함유하고 있다. 도전성 입자(7)는, 대향하는 접속 단자(22)와 접속 단자(32) 사이뿐만 아니라, 주면(21a)과 주면(31a) 사이에도 배치되어 있다. 회로 부재의 접속 구조체에 있어서는, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32)가, 도전성 입자(7)를 통하여 전기적으로 접속되어 있다.

[0129] 이 회로 부재의 접속 구조체에 있어서는, 상술한 바와 같이, 대향하는 접속 단자(22)와 접속 단자(32)가 도전성 입자(7)를 통하여 전기적으로 접속되어 있다. 이로 인해, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 접속 저항이 충분히 저감된다. 따라서, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 전류 흐름을 원활하게 할 수 있어, 회로가 갖는 기능을 충분히 발휘할 수 있다.

[0130] 도 3은 회로 부재의 접속 구조체의 다른 실시 형태를 도시하는 모식 단면도이다. 도 3에 도시하는 회로 부재의 접속 구조체는, 회로 접속 부재(10)가 도전성 입자(7)를 함유하고 있지 않은 것 이외는, 상술한 실시 형태에 관한 회로 부재의 접속 구조체와 동일하다. 도 3에 도시하는 회로 부재의 접속 구조체에서는, 접속 단자(22)와 접속 단자(32)가 도전성 입자를 통하지 않고, 전기적으로 접속된다.

[0131] 회로 접속 부재(10)는 후술하는 바와 같이, 상기 회로 접속 재료의 경화물에 의해 구성되어 있는 점에서, 기관(21)으로 구성되는 제1 회로 부재(20) 및 기관(31)으로 구성되는 제2 회로 부재(30)에 대한 회로 접속 부재(10)의 접착 강도가 충분히 높은 것이다. 또한, 예를 들어 85 $^{\circ}$ C, 85RH%의 고온 고습 환경 하에서도 안정된 접착 강도가 얻어진다. 또한, 회로 부재의 접속 구조체에서는 접착 강도가 충분히 높은 상태가 장기간에 걸쳐 지속된다. 따라서, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 거리 경시적 변화가 충분히 방지되어, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 전기 특성의 장기 신뢰성을 충분히 높이는 것이 가능해진다.

[0132] 또한, 회로 접속 부재(10)는, 상술한 다층 필름 구성의 회로 접속 재료의 경화물에 의해 구성되어 있을 수도 있다. 예를 들어, 도전성 입자를 포함하는 도전성 접착제층과, 상기 도전성 접착제층의 한쪽면에 형성된 절연성

의 절연성 접착제층을 적어도 갖고, 도전성 접착제층 및 절연성 접착제층 모두 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제, 알루미늄 착체, 실란 커플링제를 적어도 포함하는 회로 접속 재료의 경화물에 의해 구성되어 있을 수도 있다. 이 경우, 제1 접속 단자(22) 및 제2 접속 단자(32) 중 적어도 한쪽 접속 단자의 높이가 3.0 μ m 이하이고, 회로 접속 재료(1)에 있어서의 도전성 접착제층이, 높이가 3.0 μ m 이하인 접속 단자측에 배치되어 있는 것이 바람직하다.

- [0133] (회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법)
- [0134] 이어서, 상술한 회로 부재의 접속 구조체의 제조 방법에 대하여 설명한다. 도 4 및 도 5는 회로 부재의 접속 구조체의 제조하는 일련의 공정도이다.
- [0135] 우선, 상술한 제1 회로 부재(20)와, 회로 접속 재료(40)를 준비한다(도 4의 (a) 및 도 5의 (a) 참조). 회로 접속 재료(40)는, 도전성 입자 이외의 성분(5)과, 도전성 입자(7)를 함유하는 경우와, 도전성 입자 이외의 성분(5)만을 함유하는 경우가 있다.
- [0136] 회로 접속 재료(40)의 두께는, 10 내지 50 μ m인 것이 바람직하다. 회로 접속 재료(40)의 두께가 10 μ m 이상이면 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이에 회로 접속 재료가 충분히 충전되어 바람직하다. 한편, 50 μ m 이하이면, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 회로 접속 재료의 배제와 충전을 양립시킬 수 있고, 도통과 접속 신뢰성을 확보할 수 있기 때문에 바람직하다.
- [0137] 이어서, 회로 접속 재료(40)를 제1 회로 부재(20)의 접속 단자(22)가 형성되어 있는 면 위에 싣는다. 또한, 회로 접속 재료(40)가 지지체(도시하지 않음) 위에 부착되어 있는 경우에는, 회로 접속 재료(40)측을 제1 회로 부재(20)를 향하도록 하고, 제1 회로 부재(20) 위에 싣는다. 이때, 회로 접속 재료(40)는 필름상이기 때문에, 취급이 용이하여, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30) 사이에 회로 접속 재료(40)를 용이하게 개재시킬 수 있어, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30)의 접속 작업을 용이하게 행할 수 있다.
- [0138] 그리고, 회로 접속 재료(40)를, 도 4의 (a) 및 도 5의 (a)의 화살표 A 및 B 방향으로 가압하고, 회로 접속 재료(40)를 제1 회로 부재(20)에 가접속한다(도 4의 (b) 및 도 5의 (b) 참조). 이때, 가열하면서 가압할 수도 있다. 단, 가열 온도는 회로 접속 재료(40) 중의 라디칼 중합 개시제가 라디칼을 발생시키는 온도보다도 낮은 온도로 한다.
- [0139] 계속해서, 도 4의 (c) 및 도 5의 (c)에 도시한 바와 같이, 제2 회로 부재(30)를, 제2 접속 단자(32)를 제1 회로 부재(20)를 향하도록 하고(즉, 제1 접속 단자(22)와 제2 접속 단자(32)가 대향 배치되는 상태로 하고) 회로 접속 재료(40) 위에 싣는다. 또한, 회로 접속 재료(40)가 지지체(도시하지 않음) 위에 부착되어 있는 경우에는, 지지체를 박리하고 나서 제2 회로 부재(30)를 회로 접속 재료(40) 위에 싣는다.
- [0140] 그리고, 회로 접속 재료(40)를 가열하면서, 도 4의 (c) 및 도 5의 (c)의 화살표 A 및 B 방향으로 제1 회로 부재(20) 및 제2 회로 부재(30)를 통하여 가압한다. 이때의 가열 온도는, 라디칼 중합 개시제가 라디칼을 발생 가능한 온도로 한다. 이에 의해, 라디칼 중합 개시제에 있어서 라디칼이 발생하여, 라디칼 중합성 화합물의 중합이 개시된다. 이렇게 하여, 회로 접속 재료(40)가 경화 처리되어, 본접속이 행하여져, 도 2 및 3에 도시한 바와 같은 회로 부재의 접속 구조체가 얻어진다.
- [0141] 가열 온도는, 예를 들어 90 내지 200 $^{\circ}$ C로 하고, 가압 압력은, 예를 들어 5 내지 80MPa로 하고, 접속 시간은, 예를 들어 1초 내지 10분으로 한다. 이러한 조건은, 회로 접속 재료, 회로 부재에 의해 적절히 선택되어, 필요에 따라 후경화를 행할 수도 있다. 예를 들어, 본 실시 형태와 같이, 라디칼 중합성 화합물 및 라디칼 중합 개시제를 사용하고 있는 경우, 가열 온도를 100 내지 160 $^{\circ}$ C로 하고, 가압 압력을 10 내지 30MPa로 하고, 접속 시간을 10초 이내로 하여, 저온저압속경화시킬 수도 있다.
- [0142] 상기 회로 부재의 접속 구조체의 제조에 의하면, 얻어지는 회로 부재의 접속 구조체에 있어서, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 접속 저항을 충분히 저감시킬 수 있다.
- [0143] 또한, 회로 접속 재료(40)의 가열에 의해, 접속 단자(22)와 접속 단자(32) 사이의 거리를 충분히 작게 한 상태에서 도전성 입자 이외의 성분(5)이 경화되어 절연성 물질(11)이 되고, 제1 회로 부재(20)와 제2 회로 부재(30)가 회로 접속 부재(10)를 통하여 견고하게 접속된다. 즉, 얻어지는 회로 부재의 접속 구조체에 있어서는, 회로 접속 부재(10)는, 상기 회로 접속 재료의 경화물에 의해 구성되어 있는 점에서, 제1 회로 부재(20) 또는 제2 회로 부재(30)에 대한 회로 접속 부재(10)의 접착 강도가 충분히 높아지고, 특히 고온 고습 조건 하에서 충분히 접착 강도가 높아진다. 또한, 회로 부재의 접속 구조체에서는 접착 강도가 충분히 높은 상태가 장기간에 걸쳐

지속된다. 따라서, 얻어지는 회로 부재의 접속 구조체는, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 거리 경시적 변화가 충분히 방지되어, 접속 단자(22) 및 접속 단자(32) 사이의 전기 특성의 장기 신뢰성이 우수하다.

[0144] 또한, 상기 실시 형태에서는, 회로 접속 재료(40)에, 적어도 가열에 의해 라디칼을 발생시키는 라디칼 중합 개시제를 포함하는 것이 사용되고 있지만, 이 라디칼 중합 개시제 대신에, 광조사만으로 라디칼을 발생시키는 라디칼 중합 개시제를 사용할 수도 있다. 이 경우, 회로 접속 재료(40)의 경화 처리 시에 가열 대신에 광조사를 행하면 된다. 이 밖에도 필요에 따라 초음파, 전자파 등에 의해 라디칼을 발생시키는 라디칼 중합 개시제를 사용할 수도 있다. 또한, 경화성 성분으로서 에폭시 수지 및 잠재성 경화제를 사용할 수도 있다.

[0145] 또한, 도전성 입자(7) 대신에 다른 도전 재료를 사용할 수도 있다. 다른 도전 재료로서는, 입자상 또는 단섬유상의 카본, Au 도금 Ni선 등의 금속 선조 등을 들 수 있다.

[0146] 이하에, 본 발명을 실시예에 기초하여 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이것에 한정되는 것은 아니다.

[0147] (무기 필러의 준비)

[0148] 무기 필러로서, 인편상 질화붕소 입자(상품명: 덴카보론나이트라이드 HGP, 덴끼 가가꾸 고교 가부시끼가이샤), 인편상 알루미늄 입자(상품명: 세라프 02025, 긴세이마테크 가부시끼가이샤제), 구상 실리카 입자(상품명: 에어로실 R805, 닛본 에어로실사제)를 준비했다.

[0149] (합성예 1: 아크릴 수지 AR-1의 합성)

[0150] 교반기, 온도계, 냉각기 및 적하 깔때기를 구비한 플라스크에, 이소프로필알코올(이후, IPA) 1kg을 투입하고, 70℃로 가열했다. 별도로, 노난디올디아크릴레이트(시그마·알드리치사제) 335g, n-부틸아크릴레이트(시그마·알드리치사제) 210g, 아조비스이소부티로니트릴(이후, AIBN, 시그마·알드리치사제) 4g, IPA 400g을 포함하는 혼합 용액을 제조하고, 상기 적하 깔때기로부터 5시간에 걸쳐 플라스크 내에 연속 적하하여 중합을 행했다. 적하 종료 후 AIBN 4g을 더 첨가하고, 80℃에서 4시간 숙성했다.

[0151] 중합 종료 후, 감압 하에서 반응액으로부터 미반응 단량체, 용제 등의 휘발 성분을 제거하고, 액상의 AR-1을 얻었다. AR-1의 중량 평균 분자량은 1600, 유리 전이 온도는 -70℃이었다.

[0152] (합성예 2: 아크릴 수지 AR-2의 합성)

[0153] 교반기, 온도계, 냉각기 및 적하 깔때기를 구비한 플라스크에, 이소프로필알코올(이후, IPA) 1kg을 투입하고, 70℃로 가열했다. 별도로, 디시클로펜테닐옥시에틸메타크릴레이트(시그마·알드리치사제) 420g, n-부틸아크릴레이트(시그마·알드리치사제) 210g, AIBN 4g, IPA 400g을 포함하는 혼합 용액을 제조하고, 상기 적하 깔때기로부터 5시간에 걸쳐 플라스크 내에 연속 적하하여 중합을 행했다. 적하 종료 후 AIBN 4g을 더 첨가하고, 80℃에서 4시간 숙성했다.

[0154] 중합 종료 후, 감압 하에서 반응액으로부터 미반응 단량체, 용제 등의 휘발 성분을 제거하고, 액상의 AR-2를 얻었다. AR-2의 중량 평균 분자량은 1700, 유리 전이 온도는 -51℃이었다.

[0155] (합성예 3: 아크릴 수지 AR-3의 합성)

[0156] 교반기, 온도계, 냉각기 및 적하 깔때기를 구비한 플라스크에, 이소프로필알코올(이후, IPA) 1kg을 투입하고, 70℃로 가열했다. 별도로, n-부틸아크릴레이트(시그마·알드리치사제) 800g, AIBN 4g, IPA 400g을 포함하는 혼합 용액을 제조하고, 상기 적하 깔때기에 의해 5시간에 걸쳐 플라스크 내에 연속 적하하여 중합을 행했다. 적하 종료 후 AIBN 4g을 더 첨가하고, 80℃에서 4시간 숙성했다.

[0157] 중합 종료 후, 감압 하에서 반응액으로부터 미반응 단량체, 용제 등의 휘발 성분을 제거하고, 액상의 AR-3을 얻었다. AR-3의 중량 평균 분자량은 1800, 유리 전이 온도는 -70℃이었다.

[0158] (합성예 4: 우레탄아크릴레이트 UA-1의 합성)

[0159] 교반기, 온도계, 염화칼슘 건조관을 구비한 환류 냉각관 및 질소 가스 도입관을 구비한 반응 용기에, 수 평균 분자량 2000의 폴리카프로락톤디올(지방족 폴리에스테르디올, 상품명: 플라셀 220EB, 다이셀 가가꾸 고교 가부시끼가이샤제) 2000질량부(1.00몰), 디부틸주석디라우레이트(시그마·알드리치사제) 5.53질량부를 투입했다. 충분히 질소 가스를 도입한 후, 70 내지 75℃로 가열하고, 이소포론디이소시아네이트(지방족 이소시아네이트, 시그마·알드리치사제) 688질량부(3.10몰)를 3시간에 걸쳐 균일하게 적하하여, 반응시켰다. 적하 종료 후 약 10시간 반응을 계속했다. 이것에 2-히드록시에틸아크릴레이트(시그마·알드리치사제) 238질량부(2.05몰), 히드

로퀴논모노메틸에테르(시그마·알드리치사제) 0.53질량부를 투입하고, 재차 10시간 반응시켜, IR 측정에 의해 이소시아네이트가 소실된 것을 확인하고 반응을 종료하여, 우레탄아크릴레이트(UA-1)를 얻었다. 얻어진 우레탄아크릴레이트의 중량 평균 분자량은 10000이었다. 얻어진 UA-1은 고형분 40질량%로 되도록 메틸에틸케톤에 용해했다.

[0160]

(합성에 5: 폴리에스테르우레탄 수지 PEU-1의 합성)

[0161]

디카르복실산으로서 테레프탈산(시그마·알드리치사제), 디올로서 프로필렌글리콜(시그마·알드리치사제) 및 네오펜틸글리콜(시그마·알드리치사제), 디이소시아네이트로서 4,4'-디페닐메탄디이소시아네이트(시그마·알드리치사제)를 사용했다.

[0162]

(수순 1: 폴리에스테르폴리올의 합성)

[0163]

먼저, 테레프탈산/프로필렌글리콜/네오펜틸글리콜을 질량비로 59/21/3으로 되도록 혼합하고, 교반기, 온도계, 콘텐서, 진공 발생 장치 및 질소 가스 도입관이 구비된 히터가 장착된 스테인리스제 오토클레이브에 투입했다. 또한, 촉매로서 삼산화안티몬을 상기 테레프탈산 100mol에 대하여 0.003mol의 비율로, 계면 활성제로서 수산화콜린을 상기 테레프탈산 100mol에 대하여 4mol의 비율로 각각 투입했다. 계속해서, 0.35MPa의 질소압 하에서 2.5시간에 걸쳐 250℃까지 승온하고, 250℃에서 1시간 교반했다. 그 후, 대기압(0.1MPa)까지 4.0×10^{-3} MPa/분의 조건에서 감압하고, 그대로 250℃에서 3시간 교반했다. 25℃까지 냉각한 후, 백색 침전을 취출하고, 수세 후, 진공 건조시킴으로써 폴리에스테르폴리올을 얻었다.

[0164]

(수순 2: 폴리에스테르우레탄 PEU-1의 합성)

[0165]

수순 1에 의해 얻어진 폴리에스테르폴리올을 충분히 건조한 후, 톨루엔에 용해하고, 교반기, 적하 깔때기, 환류냉각기 및 질소 가스 도입관을 설치한 4구 플라스크에 투입했다. 촉매로서 디부틸주석라우레이트를 폴리에스테르폴리올 100질량부에 대하여 0.02질량부의 비율로 투입했다. 한편, 4,4'-디페닐메탄디이소시아네이트를, 테레프탈산 59질량부에 대하여 17질량부로 되도록 준비하고, 톨루엔에 용해하고, 상기한 적하 깔때기에 투입했다. 반응계 내를 건조 질소로 치환하고 나서 가열을 개시하고, 환류하기 시작하면 적하 깔때기 내의 4,4'-디페닐메탄디이소시아네이트 용액의 절반을 한번에 첨가하고, 격렬하게 교반했다. 나머지 절반의 용액은 3시간에 걸쳐 적하하고, 적하 후 재차 1시간 교반했다. 25℃까지 냉각함으로써 얻어진 침전을, 디메틸포름아미드에 용해하고, 디메틸포름아미드와 등량의 메탄올을 첨가하여, 냉장고(5℃) 내에 밤새 방치했다. 방치 후, 얻어진 침전을 취출하고, 진공 건조시킴으로써, PEU-1을 얻었다. 얻어진 폴리에스테르우레탄 수지의 중량 평균 분자량은 45000, 유리 전이 온도는 106℃이었다. 얻어진 폴리에스테르우레탄 수지를 메틸에틸케톤과 톨루엔의 1:1 용매에 고형분 32질량%로 되도록 용해했다.

[0166]

(YP-70: 폐녹시 수지의 준비)

[0167]

열가소성 수지로서, 고형분 40질량%로 되도록 메틸에틸케톤에 용해한 폐녹시 수지(신닛테츠 가가꾸 가부시끼가이샤제, 상품명: YP-70)를 준비했다.

[0168]

(M313: 우레탄아크릴레이트의 준비)

[0169]

라디칼 중합성 화합물로서, 고형분 80질량%로 되도록 메틸에틸케톤에 용해한 다관능 우레탄아크릴레이트(신나까무라 가가꾸 고교 가부시끼가이샤제, M313)를 준비했다.

[0170]

(INI: 디라우로일퍼옥시드의 준비)

[0171]

라디칼 중합 개시제로서, 고형분 20질량%로 되도록 톨루엔에 용해한 디라우로일퍼옥시드(와코 준야꾸 고교 가부시끼가이샤제, 기호: INI)를 준비했다.

[0172]

(AC-1: 알루미늄 착체의 준비)

[0173]

알루미늄 착체로서, 고형분 80질량%로 되도록 메틸에틸케톤에 용해한 비스(에틸아세토아세테이트)(2,4-펜탄디오나토)알루미늄(와코 준야꾸 고교 가부시끼가이샤제, 기호: AC-1)을 준비했다.

[0174]

(SC-1: 실란 커플링제의 준비)

[0175]

실란 커플링제로서 3-메타크릴옥시프로필트리메톡시실란(와코 준야꾸 고교 가부시끼가이샤제, 기호: SC-1)을 준비했다.

[0176]

(CP-1: 도전성 입자의 준비)

[0177]

폴리스티렌을 핵으로 하는 입자의 표면에 두께 0.2 μ m의 니켈층을 형성하고, 이 니켈층의 외측에 두께 0.02 μ m의 금층을 형성한 평균 입경 3 μ m, 비중 2.5의 도전성 입자(기호: CP-1)를 제작하여 준비했다.

[0178]

[실시에 1 내지 10, 비교예 1 내지 4](회로 접속 재료의 제작)

[0179]

표 1에 나타낸 배합비로 각 성분을 배합하고, 두께 40 μ m의 PET 수지 필름에 도공 장치를 사용하여 도포하고, 70 $^{\circ}$ C, 5분의 열풍 건조에 의해 두께가 20 μ m인, 실시예 1 내지 10 및 비교예 1 내지 4의 회로 접속 재료를 얻었다.

표 1

	열가소성 수지					무기 필러			라디칼중합성 화합물		라디칼중합 개시제	알루미늄 착체	실란 커플링제	도전성 입자
	PEU-1	YP-70	AR-1	AR-2	AR-3	HGP	O2025	R805	UA-1	M313	INI	AC-1	SC-1	CP-1
실시예1	45	-	5	-	-	2	-	-	25	25	5	5	5	30
실시예2	45	-	5	-	-	5	-	-	25	25	5	5	5	30
실시예3	45	-	5	-	-	15	-	-	25	25	5	5	5	30
실시예4	45	-	-	5	-	5	-	-	25	25	5	5	5	30
실시예5	45	-	-	-	5	5	-	-	25	25	5	5	5	30
실시예6	50	-	-	-	-	5	-	-	25	25	5	5	5	30
실시예7	50	-	-	-	-	-	5	-	25	25	5	5	5	30
실시예8	50	-	-	-	-	-	15	-	25	25	5	5	5	30
실시예9	-	50	-	-	-	-	5	-	25	25	5	5	5	30
실시예10	-	50	-	-	-	15	-	-	25	25	5	5	5	30
비교예1	50	-	-	-	-	-	-	-	25	25	5	5	5	30
비교예2	-	50	-	-	-	-	-	-	25	25	5	5	5	30
비교예3	50	-	-	-	-	-	-	5	25	25	5	5	5	30
비교예4	50	-	-	-	-	-	-	15	25	25	5	5	5	30

[0180]

[0181]

표 1 중 도전성 입자를 제외하고, 각 수치는 고형분 환산한 질량부를 나타낸다. 도전성 입자의 수치는, 도전성 입자 이외의 각 성분의 합계 100부피부에 대한 부피부를 나타낸다.

[0182]

(접속 저항의 평가)

[0183]

실시예 1 내지 10 및 비교예 1 내지 4의 회로 접속 재료를, (A) 폴리이미드(PI) 기판(외형 38mm \times 28mm, 두께 0.125mm, 표면에 ITO 배선 패턴(패턴 폭 50 μ m, 피치 50 μ m)을 갖는 것), 또는 (B) 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 기판(외형 38mm \times 28mm, 두께 0.125mm, 표면에 금(Au) 배선 패턴(패턴 폭 50 μ m, 피치 50 μ m)을 갖는 것)에, 2mm \times 20mm의 크기로 PET 수지 필름으로부터 전사했다. IC 칩(외형 1.7mm \times 17.2mm, 두께 0.55mm, 범프의 크기 50 μ m \times 50 μ m, 범프의 피치 50 μ m, 범프의 높이 15 μ m)을 140 $^{\circ}$ C, 5초의 조건에서, 30MPa(범프 면적 환산)의 하중을 가하여 가열 가압하여 실장했다. 얻어진 접속 구조체의 인접 회로간의 저항값(14단자 측정된 중의 평균값)은, 멀티미터를 사용하여 측정했다. 또한, 상기 저항값은, 접속 직후(표 2 중 「시험 전」이라고 표시)와, 고온 고습 시험(85 $^{\circ}$ C, 85%RH)을 48시간 행한 후(표 2 중 「시험 후」라고 표시)에 측정했다.

표 2

	PI/ITO		PET/Au	
	시험전(Ω)	시험후(Ω)	시험전(Ω)	시험후(Ω)
실시예1	2.2	9.0	1.9	2.3
실시예2	2.1	8.7	1.8	2.2
실시예3	2.0	8.3	2.0	2.2
실시예4	1.8	8.6	1.7	2.1
실시예5	2.0	8.7	1.8	2.3
실시예6	4.5	9.1	2.3	2.6
실시예7	4.7	9.2	2.3	2.7
실시예8	4.9	9.0	2.4	2.7
실시예9	5.3	8.8	2.8	3.6
실시예10	5.6	8.7	2.9	3.5
비교예1	7.9	23.1	7.1	14.3
비교예2	7.1	22.4	6.3	13.1
비교예3	8.7	25.3	8.2	16.7
비교예4	10.2	27.6	8.9	18.9

[0184]

[0185]

접속 직후(고온 고습 시험 전)에 있어서, 실시예 1 내지 10의 회로 접속 재료를 사용했을 때의 저항값은, 비교예 1 내지 4에 비하여, 충분히 낮아 양호했다. 또한, 고온 고습 시험 후에 있어서, 상기 저항값은, 비교예 1 및 2에 비하여 충분히 낮아, 실시예 1 내지 10의 회로 접속 재료를 사용한 회로 부재의 접속 구조체는 양호한 접속 신뢰성을 나타냈다.

[0186]

[실시예 11 내지 16, 비교예 5 내지 8](회로 접속 재료의 제작: 2층 필름형 회로 접속 재료)

[0187]

(도전성 접착제층의 제작)

[0188]

표 3에 나타내는 배합비로, 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제, 알루미늄 착체, 실란 커플링제 및 도전성 입자를 배합하여, 두께 40 μ m의 PET 수지 필름에 도공 장치를 사용하여 도포하고, 70 $^{\circ}$ C, 5분의 열풍 건조에 의해 두께가 6 μ m인 도전성 접착제층을 제작했다.

[0189]

(절연성 접착제층의 제작)

[0190]

표 4에 나타내는 배합비로, 열가소성 수지, 라디칼 중합성 화합물, 라디칼 중합 개시제, 알루미늄 착체 및 실란 커플링제를 배합하여, 두께 40 μ m의 PET 수지 필름에 도공 장치를 사용하여 도포하고, 70 $^{\circ}$ C, 5분의 열풍 건조에 의해 접착제층의 두께가 14 μ m인 절연성 접착제층을 제작했다.

[0191]

(2층 구성 필름형 회로 접속 재료의 제작)

[0192]

상기 도전성 접착제층과 상기 절연성 접착제층을, 핫 롤 라미네이터를 사용하여 접합하여, 실시예 11 내지 16 및 비교예 5 내지 8의 2층 필름형 회로 접속 재료를 얻었다.

표 3

	도전성 접착제층						
	열가소성 수지	라디칼중합성 화합물		라디칼 중합 개시제	알루미늄 착체	실란 커플링제	도전성 입자
	PEU-1	UA-1	M313	INI	AC-1	SC-1	CP-1
실시에 11	50	25	25	5	5	5	30
실시에 12	50	25	25	5	5	5	30
실시에 13	50	25	25	5	5	5	30
실시에 14	50	25	25	5	5	5	30
실시에 15	50	25	25	5	5	5	30
실시에 16	50	25	25	5	5	5	30
비교예 5	50	25	25	5	5	5	30
비교예 6	50	25	25	5	5	5	30
비교예 7	50	25	25	5	5	5	30
비교예 8	50	25	25	5	5	5	30

[0193]

표 4

	절연성 접착제층											
	열가소성 수지					무기 필러		라디칼중합성 화합물		라디칼중합 개시제	알루미늄 착체	실란 커플링제
	PEU-1	YP-70	AR-1	AR-2	AR-3	HGP	R805	UA-1	M313	INI	AC-1	SC-1
실시에 11	45	-	5	-	-	2	-	25	25	5	5	5
실시에 12	45	-	5	-	-	5	-	25	25	5	5	5
실시에 13	45	-	5	-	-	15	-	25	25	5	5	5
실시에 14	45	-	-	5	-	5	-	25	25	5	5	5
실시에 15	45	-	-	-	5	5	-	25	25	5	5	5
실시에 16	50	-	-	-	-	5	-	25	25	5	5	5
비교예 5	50	-	-	-	-	-	-	25	25	5	5	5
비교예 6	-	50	-	-	-	-	-	25	25	5	5	5
비교예 7	50	-	-	-	-	-	5	25	25	5	5	5
비교예 8	50	-	-	-	-	-	15	25	25	5	5	5

[0194]

[0195] 표 3, 4 중, 도전성 입자를 제외하고, 각 수치는 고형분 환산한 질량부를 나타낸다. 도전성 입자의 수치는, 도전성 입자 이외의 각 성분의 합계 100부피부에 대한 부피부를 나타낸다.

[0196] (접속 저항의 평가)

[0197] 실시예 11 내지 16 및 비교예 5 내지 8의 2층 필름형 회로 접속 재료를, (A) 폴리이미드(PI) 기판(외형 38mm×28mm, 두께 0.125mm, 표면에 ITO 배선 패턴(패턴 폭 50μm, 피치 50μm)을 갖는 것), 또는 (B) 폴리에틸렌테레프탈레이트(PET) 기판(외형 38mm×28mm, 두께 0.125mm, 표면에 금(Au) 배선 패턴(패턴 폭 50μm, 피치 50μm)을 갖는 것)에, 2mm×20mm의 크기로, 도전성 접착제층이 각각의 기판에 접하도록 배치하고, PET 수지 필름으로부터 전사했다. IC 칩(외형 1.7mm×17.2mm, 두께 0.55mm, 범프의 크기 50μm×50μm, 범프의 피치 50μm, 범프의 높이 15μm)을 140℃, 5초의 조건에서, 30MPa(범프 면적 환산)의 하중을 가하여 가열 가압하여 실장했다. 얻어진 접속 구조체의 인접 회로간의 저항값(14단자 측정된 중의 평균값)은, 멀티미터를 사용하여 측정했다. 또한, 상기 저항값은, 접속 직후(표 5 중 「시험 전」이라고 표시)와, 고온 고습 시험(85℃, 85%RH)을 48시간 행한 후(표 5 중 「시험 후」라고 표시)에 측정했다.

표 5

	PI/ITO		PET/Au	
	시험전(Ω)	시험후(Ω)	시험전(Ω)	시험후(Ω)
실시예 11	1.7	7.8	0.8	1.5
실시예 12	1.5	7.5	0.7	1.6
실시예 13	1.8	6.8	1.0	1.3
실시예 14	0.8	6.6	0.5	1.2
실시예 15	0.8	6.4	0.6	1.3
실시예 16	1.4	6.9	1.1	1.7
비교예 5	6.0	17.1	4.8	9.3
비교예 6	6.2	17.3	5.1	9.7
비교예 7	7.4	19.2	5.9	10.2
비교예 8	8.6	20.5	6.8	12.6

[0198]

[0199]

접속 직후(고온 고습 시험 전)에 있어서, 실시예 11 내지 16의 회로 접속 재료를 사용했을 때의 저항값은, 비교예 5 내지 8에 비하여, 충분히 낮아 양호했다. 또한, 고온 고습 시험 후에 있어서, 상기 저항값은, 비교예 5 내지 8에 비하여 충분히 낮아, 실시예 11 내지 16의 회로 접속 재료를 사용한 회로 접속 부재의 접속 구조체는 양호한 접속 신뢰성을 나타냈다.

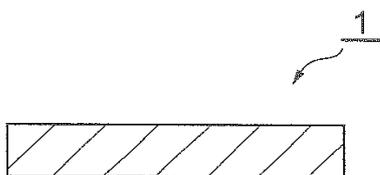
부호의 설명

[0200]

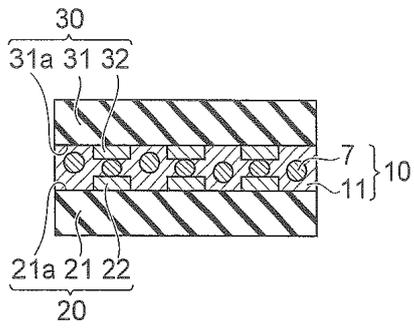
- 1, 40 회로 접속 재료
- 5 도전성 입자 이외의 성분
- 7 도전성 입자
- 10 회로 접속 부재
- 11 절연성 물질
- 20 제1 회로 부재
- 21 기판(제1 기판)
- 21a 주면
- 22 접속 단자(제1 접속 단자)
- 30 제2 회로 부재
- 31 기판(제2 기판)
- 31a 주면
- 32 접속 단자(제2 접속 단자)

도면

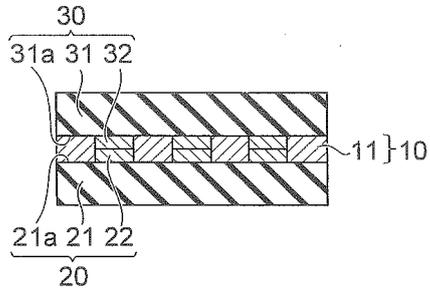
도면1



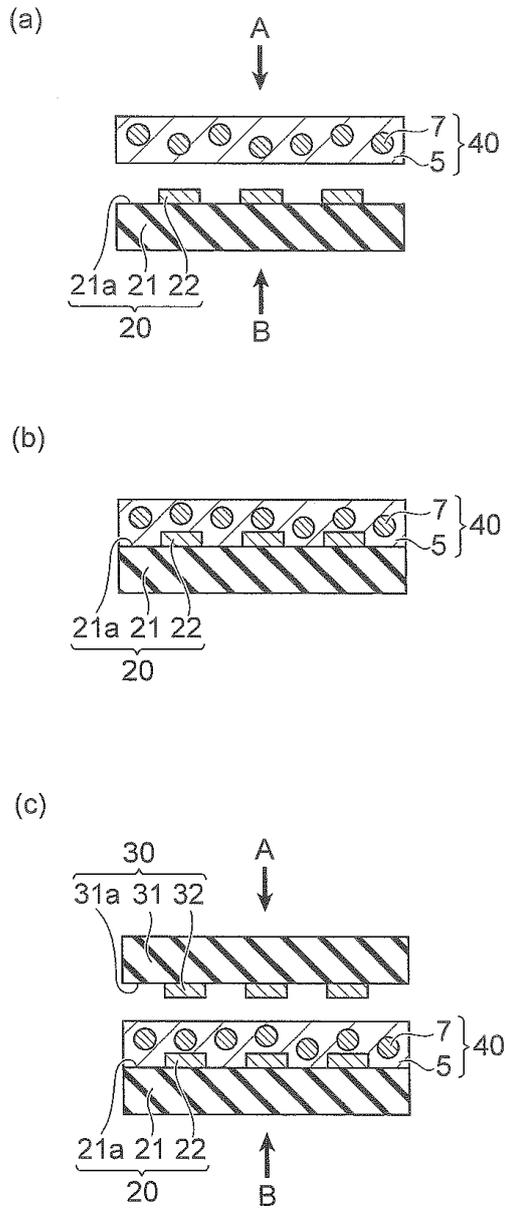
도면2



도면3



도면4



도면5

