(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第5090308号
(P5090308)

(45)発行日　平成24年12月5日(2012.12.5)　(24)登録日　平成24年9月21日(2012.9.21)

(51)Int.Cl.		F I		
B32B 15/08	(2006.01)	B32B	15/08	K
H05K 3/00	(2006.01)	B32B	15/08	J
B32B 37/06	(2006.01)	H05K	3/00	R
		B32B	31/26	

請求項の数 8　(全 15 頁)

(21)出願番号　特願2008-250191(P2008-250191)
(22)出願日　平成20年9月29日(2008.9.29)
(65)公開番号　特開2009-262531(P2009-262531A)
(43)公開日　平成21年11月12日(2009.11.12)
審査請求日　平成23年1月20日(2011.1.20)
(31)優先権主張番号　特願2008-90238(P2008-90238)
(32)優先日　平成20年3月31日(2008.3.31)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(73)特許権者　000006644
新日鐵化学株式会社
東京都千代田区外神田四丁目１４番１号
(74)代理人　100112335
弁理士　藤本　英介
(74)代理人　100101144
弁理士　神田　正義
(74)代理人　100101694
弁理士　宮尾　明茂
(72)発明者　高田　勝美
千葉県木更津市築地１番地　新日鐵化学株式会社内
(72)発明者　狩野　弥
千葉県木更津市築地１番地　新日鐵化学株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】積層体の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

液晶ポリマーフィルムの片側、又は両側に金属箔を有する積層体を製造する方法において、該フィルムと金属箔とを直接積層してロール状に巻芯に巻き取った後、該積層体ロールを加熱処理する際に、該巻芯に外周壁の軸方向にスリットを有し、且つ該スリットの開き幅が外周長さの５％以内の範囲で形成されている巻芯を用い、スリットの開き幅を変えて巻芯の外径を小さくすることで、該ロールにおける積層体の少なくとも巻き取り開始端を、その外側の積層体面と巻芯面とから接触圧を受けない状態にして加熱処理することを特徴とする積層体の製造方法。

【請求項２】

前記巻芯にスリットの開き幅の可変装置が設けられ、可変装置は、スリット間の一端の外壁に設けられた第１の係合部材と、該スリット間の他端に設けられ、スリット間を架橋して第１の係合部材と係合する第２の係合部材とからなり、第１の係合部材と第２の係合部材との係合関係を調整することにより該スリットの開き幅を変えるものである請求項１記載の積層体の製造方法。

【請求項３】

前記巻き取り開始端以外の積層体においても接触圧を受けない状態とし、且つ該ロールにおける巻き取り積層体同士を５μｍ以上離間させた状態として加熱処理することを特徴とする請求項１～２の何れかの項に記載の積層体の製造方法。

【請求項４】

前記巻き取り積層体ロールは、第一工程で該フィルムと該金属箔とを熱圧着して形成した搬送可能な積層体を第二工程で搬送させながら加熱処理を行った後、金属製巻芯にロール状に巻き取ったものである請求項１～３の何れかの項に記載の積層体の製造方法。
【請求項５】
前記巻き取り積層体ロールの加熱処理における温度が、前記液晶ポリマーフィルムの融点よりも３０℃低い温度以上で同融点よりも１０℃高い温度以下である請求項１～４の何れかの項に記載の積層体の製造方法。
【請求項６】
前記加熱処理において、前記加熱処理温度に到達後、その温度で保持する加熱処理時間が６０分～２４０分の範囲である請求項５に記載の積層体の製造方法。
【請求項７】
前記加熱処理を不活性ガス雰囲気下で行う請求項１～６の何れかの項に記載の積層体の製造方法。
【請求項８】
前記フィルムがサーモトロピック液晶高分子である請求項１～７の何れかの項に記載の積層体の製造方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、樹脂フィルムと金属箔との積層体の製造方法に関するものであり、より詳細には、樹脂フィルム、特には光学的異方性の溶融相を形成し得る液晶ポリマーからなるフィルム(以下、液晶ポリマーフィルムという。)と、金属箔とを重ね合わせて成る積層体の製造方法に関するものである。
【背景技術】
【０００２】
一般に樹脂フィルム、特に液晶ポリマーフィルムは、高耐熱性、吸湿寸法安定性、高周波特性等に優れた材料として知られている。液晶ポリマーフィルムのこのような特性に着目し、これを電子回路基板の絶縁材料に用いることが検討されている。電子回路基板に用いる場合、液晶ポリマーフィルムと銅箔に代表される金属箔との積層体が配線基板用積層体として適している。
【０００３】
従来、液晶ポリマーフィルムと金属箔から成る積層体を製造する技術としては、熱プレス装置を使用していた。代表的な具体例としては、熱プレス装置の上下の熱板間に所定の大きさに裁断された液晶ポリマーフィルムと金属箔を重ねて置き、真空状態で加熱圧着する方法が挙げられる。しかしながら、この方式はバッチ式であるため、剥離強さ等において均一な品質の積層体を製造することができないという問題があり、また、積層体一枚当たりの生産速度が遅いため、コストが高くなるという欠点を有する。
【０００４】
そこで、低コストでありながら生産速度を高めるために、積層体を連続的に生産する方法が提案されている(特許文献１)。これは、液晶ポリマーフィルムと金属箔とを重ね合わせ、該フィルムと該金属箔とを液晶ポリマーの融点より８０℃低い温度から同融点より５℃低い温度までの範囲内の温度で加圧ロール間を通過させ、熱圧着するものである。また、液晶ポリマーの融点より８０℃低い温度から同融点より５℃低い温度までの範囲内の表面温度を有する少なくとも１つのロールを含む加熱・加圧ロール間を通過させることにより、該フィルムと該金属箔とを圧着するとしている。
【０００５】
また、寸法安定性に優れた回路基板用金属張積層板を高い生産性で提供するために、上述の液晶ポリマーフィルムと金属箔の熱圧着を行う第一工程と、第一工程で得られた積層体を、液晶ポリマーフィルムの融点以上で加熱処理する第二工程とを備えた製造方法が提案されている(特許文献２)。

【０００６】
更に、第一工程、第二工程を終了させた後、後段の第三工程として熱処理と冷却固化を複数回繰り返し、熱処理の都度に液晶ポリマーの融点の変化に合わせて、熱処理温度を変える熱処理方法が提案されており(特許文献３)、このような熱処理によって優れた耐熱性と耐磨耗性を有する積層体を得ることができるとしている。この第三工程は熱処理時間が数時間に及ぶため、ロール状に巻き取った積層体をバッチ式で加熱処理するが、その場合、巻芯に貼り付けた積層体巻き取り開始端の段差が熱処理中にロール外方部に転写し、その部分の積層体の外観を悪化させる問題があった。また、液晶ポリマーフィルムの片側にのみ金属箔を有する積層体にあっては、加熱処理中に溶融した該フィルムが隣接する層の金属箔と融着し、該金属箔の表面形状が該フィルムの表面に転写する問題があった。
【０００７】
前記のような段差の転写痕を緩和する方法として、巻芯の両端部外周に、巻き取る基材厚みの１～１０倍の高さを有する凸状段部が設けられた巻芯が提案されている（特許文献４）。また、これと類似した方法として、巻芯の両端部外周に巻き取る基材幅の１％以下であり、かつ基材厚みの±２０％以内であるテープを基材と重なるように設置した巻芯を使用する方法が提案されている(特許文献５)。しかしながら、この方法では基材とテープの接触部分では段差の転写痕の発生を防ぐことができないため、歩留まりを十分に向上させることはできない。また、液晶ポリマーフィルムの片側にのみ金属箔を有する積層体にあっては、融着を防ぐ手法とはなり得ないため、別法の開発が求められる。
【０００８】
【特許文献１】特開平５－４２６０３号公報
【特許文献２】特開２０００－３４３６１０号公報
【特許文献３】特開２０００－４４７９７号公報
【特許文献４】特開平９－５８９３５号公報
【特許文献５】特開２００２－３０８４８３号公報
【発明の開示】
【発明が解決しようとする課題】
【０００９】
本発明は、かかる事情に鑑み、樹脂フィルム、特に液晶ポリマーフィルムを絶縁層に用いた回路基板用金属張積層板の製造工程で発生する積層体巻き取り開始端の段差の転写による外観不良や、フィルムの片側にのみ金属箔を有する積層体の加熱処理中に発生する溶融した該フィルムと隣接する層の金属箔との融着に伴う外観不良を防ぎ、安定的に高歩留まりで製造できる積層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】
【００１０】
本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、高耐熱化のための加熱工程を特定条件下で行うことで、上記課題を解決し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。
即ち、本発明は樹脂フィルム、例えば液晶ポリマーフィルムの片側、又は両側に金属箔を有する積層体を製造する方法において、フィルムと金属箔とを積層して巻芯にロール状に巻き取った後（例えば、第一工程でフィルムと金属箔とを熱圧着して形成した搬送可能な積層体を第二工程で搬送させながら加熱処理を行い、これをロール状に巻芯に巻き取った後）、その積層体ロールを第三工程において加熱炉又は加熱装置により加熱処理する際、巻き取られた積層体ロール（巻き取り装置などによって所定張力を受けて巻き取られたロール）における積層体の少なくとも巻き取り開始端を、その外側の積層体面と巻芯面とから接触圧を受けない状態にして加熱処理する製造方法である。
ここで、接触圧を受けない状態とは、加熱時に実質的に接触部分で巻き取り開始端の段差の転写痕の発生を受けない接触圧の状態又は全く接触しないことによって接触圧を受けない状態をいう。
また、接触圧を受けない状態は、該ロールを縦置いた状態(巻芯長手方向を地面に対し

て垂直にした状態)で巻き解して展開することによって行うこと、及び該ロールを巻き取った後、該巻芯の外径を変えることによって行うことができる。

また、液晶ポリマーフィルムの片側にのみ金属箔を有する積層体にあっては特に、巻き取り開始端以外の積層体においても、巻き取り積層体同士を５μｍ以上離間させた状態で加熱処理することが好ましい。

上記手段によれば、以下のような作用が得られる。

【発明の効果】

【００１１】

本発明の製造方法によれば、積層体巻き取り開始端の段差の転写による外観不良を防ぐことができる。更にフィルムの片側にのみ金属箔を有する積層体にあっては、金属箔の表面形状の該フィルム表面への転写を防ぐことができる。ここで製造された積層体は、液晶ポリマー特有の高耐熱性、吸湿寸法安定性、高周波特性等を損なわず、且つ液晶ポリマーフィルムと金属箔との接着性が損なわれず、優れていることから、例えばフレキシブル回路基板に代表される回路基板に用いられる積層体として有用である。

【発明を実施するための最良の形態】

【００１２】

以下、本発明の実施の形態を添付図面を参照して説明する。

図１～図７は発明を実施する形態であって、本発明の積層体の製造方法は、以下の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々変更を加え得ることは勿論である。

【００１３】

本発明は、図１～図３に示すように、液晶ポリマーフィルム３の片側、又は両側に金属箔４、４’を有する積層体５を製造する方法である。液晶ポリマーフィルム３と金属箔４とを積層してロール状に巻芯に所定の巻き取り力で巻き取った後、巻き取りロール８を加熱処理する際に、ロールにおける積層体の少なくとも巻き取り開始端を、その外側の積層体面と巻芯面とから接触圧を受けない状態にして加熱処理する。

また、巻き取り開始端以外の積層体においても接触圧を受けない状態とし、且つ該ロールにおける巻き取り積層体同士を５μｍ以上離間させた状態として加熱処理する。

本発明の巻き取りロールは、図１に示す第一工程で液晶ポリマーフィルム３と金属箔４、４’とを熱圧着して形成した搬送可能な積層体５を、図２に示す第二工程で搬送させながら必要に応じて加熱処理を行った後の金属製巻芯にロール状に巻き取った積層体ロール８を使用したものである。

【００１４】

本発明の実施形態を更に具体的に説明すると、光学的異方性の溶融相を形成する液晶ポリマーより成るフィルム３と金属箔４とを重ね合わせて積層体を製造する方法に関わるものである。液晶ポリマーフィルム３と金属箔４、４’の両方又は何れか片方と熱圧着して形成した搬送可能な積層体とする第一工程(図１)と、積層体５を架橋搬送させながら加熱処理を行う第二工程(図２)と、第二工程を経た積層体に加熱処理を行う第三工程(図３)から成る。

【００１５】

第一工程は、液晶ポリマーフィルムと金属箔とを熱圧着して積層体を形成する場合に限り、従来から公知の熱圧着工程を使用することができる。例えば、第一工程で均一な品質の積層体を安定的に得るためには、図１に示すように、光学異方性の溶融相を形成する液晶ポリマーより成るフィルム３と金属箔４、４’の両方又は何れか片方を重ね合わせて加圧ロール１、１’の間を通過させることにより液晶ポリマーフィルム３と金属箔４、４’の両方又は何れか片方を積層する。特に、液晶ポリマーフィルム３と金属箔４、４’の両方又は何れか片方を加圧ロール１、１’の間を通過させる工程で、加圧ロール１、１’の外部に適宜加熱ブース２を設けて、液晶ポリマーフィルム３、金属箔４、４’の両方又は何れか片方及び加圧ロール１、１’を加熱又は保温することが望ましい。

【００１６】

液晶ポリマーフィルム３は、光学異方性の溶融相を形成する液晶ポリマーより成るものである。光学異方性の溶融相を形成する液晶ポリマーは、サーモトロピック液晶高分子とも呼ばれている。光学異方性の溶融相を形成する高分子は、当業者には良く知られているように加熱装置を備えた偏光顕微鏡直行ニコル下で溶融状態の試料を観察したときに偏光を透過する高分子である。

【００１７】

液晶ポリマーフィルム３の原料は、特に限定されるものではないが、以下に例示する（１）～（４）に分類される化合物及びその誘導体から導かれる公知のサーモトロピック液晶ポリエステル及びポリエステルアミドを挙げることができる。但し、高分子液晶を形成するためには、其々の原料化合物の組み合わせに適宜な範囲がある。

（１）　芳香族又は脂肪族ジヒドロキシ化合物

（２）　芳香族又は脂肪族ジカルボン酸

（３）　芳香族ヒドロキシカルボン酸

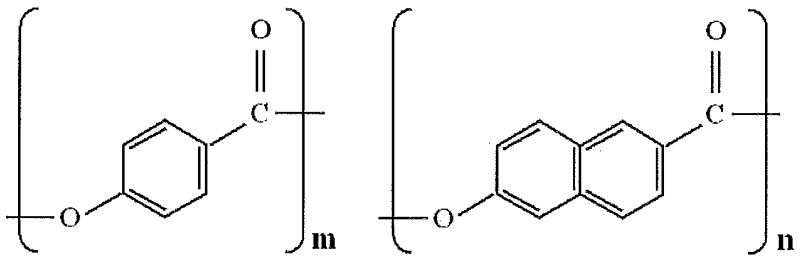
（４）　芳香族ジアミン、芳香族ヒドロキシアミン又は芳香族アミノカルボン酸

【００１８】

これらの原料化合物から得られる液晶ポリマーの代表例として下記式に示す構造単位を有する共重合体を挙げることができる。

【００１９】

【化１】



【００２０】

液晶ポリマーフィルムは耐熱性、加工性の点で、融点温度が２００～４００℃、特に２５０℃～３２０℃の範囲を有するものが好ましい。ここで、液晶ポリマーフィルムの融点とは、熱圧着に供するフィルムを１０℃／分の昇温速度で加熱した時での示差走査熱量測定法（ＤＳＣ）における融解ピーク温度をいう。尚、フィルムはフィルムの特性を損なわない範囲で、潤滑剤、酸化防止剤、充填剤等が配合されていても良い。

【００２１】

液晶ポリマーフィルムは、押出成型して得られる。任意の押出成型法が適用できるが、周知のＴダイ法、ラミネート体延伸法、インフレーション法等が工業的に有利である。特にラミネート体延伸法、インフレーション法では、フィルムの搬送方向（ＭＤ：Ｍａｃｈｉｎｅ　Ｄｉｒｅｃｔｉｏｎ）だけではなく、これと直交する幅方向（ＴＤ：Ｔｒａｎｓｖｅｒｓｅ　Ｄｉｒｅｃｔｉｏｎ）にも応力が加えられるため、ＭＤとＴＤにおける機械的性質のバランスのとれたフィルムが得られる。

【００２２】

液晶ポリマーフィルムの好ましい厚み範囲は、５００μｍ以下であり、より好ましくは１０～２５０μｍ、特に好ましくは１５～１５０μｍである。フィルム厚みが５００μｍを超えるとフィルムが剛直になり、ロール状に巻き取ることが困難になるため、取り扱いは難しい。また、フィルム厚みが１０μｍに満たないと、フィルムが容易に裂け、取り扱いが困難となる恐れがある。

【００２３】

金属箔４、４′の材質は、本発明において特に制限は無い。金、銀、銅、ステンレス、ニッケル、アルミニウムなどが例示される。好ましく用いられる金属箔としては、銅箔、ステンレス箔が挙げられる。銅箔としては、圧延法や電解法によって製造されるいずれの

ものでも使用することができる。金属箔には液晶ポリマーフィルムとの接着力を確保することなどを目的として、粗化処理などの物理的表面処理や酸洗浄などの化学的表面処理を本発明の効果が損なわない範囲で施していても良い。

【００２４】

金属箔の好ましい厚さ範囲は、５～１５０μｍであり、より好ましくは６～７０μｍ、特に好ましくは９～３５μｍの範囲である。金属箔の厚みを薄くすることは、ファインパターンを形成可能であるという点からは好ましいが、その厚さが薄くなりすぎると、製造工程で金属箔に皺が生じるほか、配線基板として回路形成した場合にも配線の破断が生じるなど回路基板としての信頼性が低下する恐れがある。一方、金属箔の厚みが厚くなると、金属箔をエッチング加工する際、回路側面にテーパーが生じ、ファインパターン形成に不利が生じる。

【００２５】

液晶ポリマーフィルム３と金属箔４、４’との熱圧着は、加圧ロール１、１’で行われ、通常一対の加圧ロールが使用される。一対の加圧ロール１、１’は、ゴムロール、金属ロール、樹脂被覆金属ロール等を挙げることができる。加圧ロール１、１’による圧着時の圧力は、幅方向に均一に加圧できる範囲であれば特に制限されないが、５～２００ｋＮ／ｍであることが好ましく、１０～４０ｋＮ／ｍであることがより好ましい。

【００２６】

加圧ロールが金属ロールを構成部分として有する場合は、その内部を内部加熱手段で加熱することが好ましい。例えば、誘電加熱方式や熱媒循環方式の加熱機構を備えた金属ロール部分を有する加熱・加圧ロールを用いることが好ましい。

【００２７】

本発明の製造方法の第一工程は種々の公知の工程を採用することができる。しかし、図１に示すような以下の特徴のある第一工程を実施することにより、品質的に安定した巻き取り搬送可能な積層体を第二工程へ提供することができる。

【００２８】

加熱・加圧ロールの表面は、ロール外部より加熱又は保温されることが好ましい。図１において加熱ブース２は、加圧ロール１、１’の全体を覆い、保温する。

【００２９】

加熱ブース２の構造は、加圧ロールの全体を囲む密閉構造とし、更に断熱材で覆われていることが好ましい。ブース内は加熱され、指定した範囲の温度を一定に保つようにすることが好ましい。ブース内の加熱方法は特に限定されないが、熱風循環ブロアやセラミックヒーターなどが好ましく適用できる。また、ブース内にファンを設置しても良い。金属箔の通紙作業や掃除のために、ブースの一部が解放できる構造が好ましい。

【００３０】

次に、本発明に係る積層体の製造方法の第二工程について、図２に従って説明する。第一工程を経た巻き取り搬送可能な積層体は、一旦ロール状に巻き取った後に第二工程に使用しても良く、また第一工程から直接第二工程へ使用しても良い。

【００３１】

本発明では、積層体幅が７０～１２００ｍｍの範囲が適しており、２００～６４０ｍｍの範囲がより好ましい。積層体幅が７０ｍｍ未満では、積層体の寸法特性がばらつくことが少なく、第二工程の効果が少ない。一方、積層体幅が１２００ｍｍを超える場合には、ロールなどを含めた設備的な部材の寸法が過大となり、温度制御も難しくなる傾向にある。

【００３２】

図２に示すように、本発明の第二工程は、第一工程で得られた搬送可能な積層体５を、その幅方向（図の紙面手前から奥方向）をほぼ水平に維持して架橋搬送させながら、液晶ポリマーの融点よりも２０℃低い温度以上で加熱処理を行うことが好ましい。また、第二工程の熱処理温度の上限は、液晶ポリマーの融点よりも１０℃高い温度以下であることが好ましい。このような加熱処理により、第一工程の加熱ロール間で金属箔との圧着時に生

じる液晶ポリマーフィルムの張力、その分子の変動、及び表面の加熱に伴う分子配向の変化等が解消し、等方性及び寸法安定性の良好な積層体となる。尚、上記融点との関係の温度未満では液晶ポリマーフィルムの張力や分子配向変化の解消が十分でなく、良好な寸法安定性が得られず、また上記融点との関係の温度を超えると、フィルムに溶融が生じて外観を悪化させたりするため好ましくない。

このように処理された積層体は図示しない巻き取り装置によって、巻き取り装置の回転トルク（所定の張力）を受けて金属巻芯に巻き取られる。

【００３３】

第二工程において、加熱処理の手段は限定されないが、積層体に接触することなく、積層体を精度良く加熱処理することができるという観点から、加熱炉を使用することが好ましい。加熱炉を用いる場合、その種類は特に限定されるものではなく、熱風式加熱炉、熱風循環式加熱炉、赤外線ヒーター式加熱炉などが好ましいものとして例示される。

巻き取り装置は特に限定されず、公知の装置で使用が可能である。また、巻芯の素材は金属芯に限定されるものではない。後述するように径調整可能な構造を有する巻芯を使用することもできる。

【００３４】

本発明における第三工程では、積層体の耐熱性、加工性の向上を目的として、上記第二工程後に加熱処理を行う。この際使用する装置は、不活性ガス雰囲気にて加熱することができる炉であれば種類は特に限定されるものではなく、バッチ式炉を用いると安定した生産性が得られて好ましい。また、加熱方式に関しては、赤外線ヒーター式加熱炉、黒鉛ヒーター式加熱炉、金属線式加熱炉などが好ましいものとして例示される。

【００３５】

第三工程で用いるバッチ式の炉は、第二工程を経た積層体を加熱状態にすることができるものであれば特に限定されるものではないが、炉の容積が８～５００Ｌの範囲が適しており、４０～３００Ｌの範囲がより好ましい。炉の容積が８Ｌ未満では、第二工程からの積層体ロール８を入れるには小さすぎる。一方、炉の容積が５００Ｌを超える場合は、設備的な部材の寸法が過大となり、温度制御も難しくなる傾向にある。

【００３６】

第三工程では、第二工程を経た巻き取り搬送可能な積層体５を金属製の巻芯１１に巻き取った後、図３に示すように、加熱ボックスで加熱する。

加熱する際、巻き解して展開する方法と、巻芯自身の径を収縮させる方法により、巻芯に貼り付けた積層体巻き取り開始端が巻き解した外側の積層体面と巻芯面とから接触圧を受けない状態とすることができる。このような構造では内部の接触圧を確実に除くことができる。

巻き解して展開する方法では、図３（ａ）及び図４に示すように積層体ロール８を縦置いた状態（巻芯長手方向を地面に対して垂直にした状態）で巻き解して展開することが好ましい。巻芯の径を変える場合には、前記のように縦置いた状態で作業をする他、図３（ｂ）に示すように横置き状態で作業をしてもよい。

【００３７】

また、フィルムの片側にのみ金属箔を有する積層体にあっては、巻芯１１に貼り付けた積層体巻き取り開始端１５以外の積層体部分１２を、巻き解した外側積層体面と内側積層面とから接触圧を受けない状態とすることが好ましい。この場合、各積層体面を５μｍ以上、より好ましくは、３０μｍ以上１０ｃｍ未満の範囲で離間させ、これをそのまま炉内へ置くことで可能となる。このとき形成させる離間距離が３０μｍ未満では加熱処理において、液晶ポリマーフィルムの厚み方向への熱膨張により十分に融着を防ぐことができない恐れがあり、１０ｃｍ以上では巻き解した積層体全体の大きさが過大となり、加熱処理に用いる炉の都合が設備的に困難になる。

【００３８】

具体的に、巻き解して展開するには図４及び図５に示すように、積層体ロールを受ける金属製の受け皿１４上で行い、巻芯１１から積層体ロールを巻き解すため、その周部には

巻き解した積層体１２を支持できる、初期積層体ロール径より大径なガイドリング１３があることが好ましい。前記金属製巻芯、金属製受け皿及びガイドリングの材質は特に限定されるものではないが、ステンレスやアルミニウムが好ましいものとして例示される。

【００３９】

具体的に、巻芯の径を調整して上記接触圧を受けないようにするには、図６に示す巻芯などが使用される。

図６に示すように巻芯２１は円筒状からなり、巻芯の外周壁にはその軸方向に沿ってスリット２２を有している。図７に示すように、スリット２２の開き幅Ｓは外周（スリット幅を含む全周）長さＬの５％以内の範囲で形成されることが好ましい。スリットの開き幅を収縮することにより、図７（ｂ）に示すように巻芯の外径を変えることができる。

また、巻芯２１にスリットの開き幅の可変装置２３を設けることができる。可変装置としては例えば、図６に示すように、ナット及びボルトの取付部材２４及び２５がスリットを跨いでそれぞれの端の外壁に設けられる。取付部材２４には第１の係合部材であるナット２６が設けられ、取付部材２５には第２の係合部材であるネジ２７がスリット間を架橋して設けられ、その螺合関係を調整することによりスリットの開き幅を可変させる。

尚、上記実施形態では、ボルトとナットとの緊縛による可変装置としたが、架橋部材からなる係合部材の係合関係によって、上記効果を奏するものであれば、ボルト、ナットの螺合関係に限ることはなく、歯車とラチェットとの係合関係やその他の公知の係合関係を使用した可変装置でもよい。また、外壁の内側、外側のどちらに設けても良い。

【００４０】

このような巻芯２１は、巻き取り装置の巻芯支持軸(エアーシャフト等、巻芯内周部に押圧を加えることで固定する支持軸)に該巻芯を固定した際に、巻芯内周部が支持軸から受ける押圧の調整によりスリットの開き幅が制御でき、これにより径を任意に可変とすることができる。また、スリットにボルトを渡し、その締付け・緩めによりスリットの開き幅を上記５％範囲内で調整できるようにすることで、より広範囲に径を可変とすることができる。

スリット２２を開いた状態で巻芯２１に積層体を巻き取り、スリット２２を閉じて巻芯２１の径を縮小させることで巻芯２１と積層体１６の間に空間を形成させ、これにより巻芯２１に貼り付けた積層体巻き取り開始端１５と積層体１６隣接部分を接触しない状態にする（図７（ｂ））。スリットの開き幅は、ボルトを渡した際にそれらが湾曲せず、締め付けや緩めに支障がない範囲であり、さらに望ましいのは、開き幅Ｓが巻芯外周長さＬの２％以下の範囲である。

前記巻芯を加熱処理に供する場合は、その材質は金属であることが望ましく、ステンレスやアルミニウムが好ましい材質として例示される。

【００４１】

巻芯２１に積層体を巻き取る際には、必要に応じて他の材料を伴巻きすることができる。加熱方式に通電加熱方式を利用する場合は、ロール層間の絶縁を確保する必要があるため、絶縁材を伴巻きする。この絶縁材は耐熱性を有し、積層体の外観を悪化させるような表面形状のものでなければ特に限定されるものではないが、ポリイミドフィルムが好ましい材料として例示される。

【００４２】

巻芯２１に積層体、又は伴巻き材を巻き取る際の巻き取り張力は、１ｋｇｆ以上、７ｋｇｆ未満であることが望ましい。巻き取り張力が１ｋｇｆ未満では、巻き取り装置内での搬送時に積層体や伴巻き材が弛み易く、皺を発生させる恐れがある。また、巻き取り張力が７ｋｇｆ以上では、巻き取り後のロール内部に強い応力が蓄積され、加熱処理の際に基材を座屈させて外観を悪化させる恐れがある。

巻芯と加熱処理方法は、液晶ポリマーと金属箔から成る積層体の製造に供することを目的として検討・開発されたものであるが、その用途は該積層体に限定されるものでは無く、加熱処理条件を適宜調整することで、例えば液晶ポリマー以外の材料を用いた積層体や樹脂フィルム、金属箔等、広範囲の巻き取り積層体に適用することが可能である。

【００４３】
第三工程における加熱処理温度は、液晶ポリマーの融点よりも３０℃低い温度以上で、同融点よりも１０℃高い温度以下であることが好ましい。より好ましくは、液晶ポリマーの融点よりも１０～３０℃低い温度の範囲である。加熱処理温度が液晶ポリマーの融点よりも３０℃低い温度未満では、積層体の耐熱性が十分に向上せず、また、液晶ポリマーの融点よりも１０℃高い温度を超えるとフィルムに溶融が生じ、外観を著しく悪化させる。
【００４４】
第三工程の加熱処理において、前記加熱処理温度に到達後、その温度で保持する加熱処理時間は６０分～２４０分の範囲が適しており、８０～２００分の範囲が好ましい。加熱処理時間が２４０分を超えると液晶ポリマーフィルムに外観不良が生じる恐れがある。また、加熱処理時間が６０分未満では、積層体の耐熱性、加工性の改善効果が十分とならない可能性がある。
【００４５】
第三工程の加熱処理は不活性ガス雰囲気下で行うのが適しており、窒素ガス雰囲気下で行うのが好ましい。空気中で加熱処理を行った場合、積層体表面の金属箔が酸化により変色してしまう恐れがある。加熱処理後は冷却した後に雰囲気を空気に置換し、積層体を取り出すことができる。
【００４６】
本発明の製造方法によって得られる積層体は、良好な外観を有し、液晶ポリマーの有する優れた機械的強度、電機特性、耐薬品特性及び耐熱性を保持しており、しかも該フィルム層が金属箔と常温条件下のみならず高温条件下においても強固に接着している。このため、ＦＰＣ、ＴＡＢ用テープ等を製造するための材料として有用である。
【００４７】
以上の最良の実施形態では積層体を一層の液晶ポリマーフィルムと一層又は二層の金属箔との構造としている。しかしながら、本発明にあって製造される積層体は、少なくとも一層のフィルムと少なくとも一層の金属箔を含むものであれば良く、例えば下記（１）に示した二層構造、（２）の三層構造、（３）の四層構造、又は（４）の五層構造などを例示することができる。
尚、このような実施形態の製造方法では液晶ポリマーほど、目的効果を奏しないが、一般的な樹脂フィルムに適用することが可能である。
【００４８】
（１）　金属箔／フィルム
（２）　金属箔／フィルム／金属箔
（３）　金属箔／フィルム／フィルム／金属箔
（４）　金属箔／フィルム／金属箔／フィルム／金属箔
【００４９】
（実施例及び比較例）
以下、実施例によって本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例によって何ら限定されるものではない。
【００５０】
実施例において得られた積層体の評価は、目視による外観不良（巻芯に貼り付けた積層体巻き取り開始端の段差による転写痕、および巻き取り開始端以外の積層体層での挫屈などの外観不良、更に液晶ポリマーフィルムの片側にのみ金属箔を有する積層体においては、該フィルムと隣接する金属箔との融着による金属箔の表面形状の転写）の有無の観察による。
【００５１】
（実施例１）
第一工程において、厚さ５０μｍの液晶ポリマーフィルム(商品名ベクスター、融点２８０℃)の両面に９μｍの厚さの電解銅箔を重ね合わせ、同時に一対の加圧ロール間に１ｍ／分で連続的に供給した。ロールは内部の加熱機構により２５０～２６０℃で加熱した

。加熱・加圧ロールはブース内に配置し、ブースは熱風循環ブロアにより２００～２３０℃に加熱した。

【００５２】

続く第二工程において、熱風式加熱炉により積層体に加熱処理を行った。この際、加熱処理は熱風式加熱炉を約１００秒間通過させることで行ったが、炉内最高温度領域を液晶ポリマーの融点より１０℃低い温度とし、２ｍ／分で連続的に処理し、巻き取り装置によって金属巻芯に巻き取った。

【００５３】

続く第三工程において、ロール状に巻き取った積層体を縦置いて巻き解した状態とし、加熱炉中に静置した後に窒素雰囲気にして加熱処理を行った。また、炉内窒素圧力は１×１０^{5}Ｐａ、設定加熱温度は２６０℃とし、設定温度到達後にその温度を９０分保持して加熱処理を施した。得られた積層体の評価結果を表１に示す。

【００５４】

（比較例１）

実施例１と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において熱風式加熱炉により加熱処理を行った。続く第三工程においては、ロール状の積層体を巻き解さずに縦置きで炉内に静置したこと以外は実施例１と同様に行った。得られた積層体の評価結果を表１に示す。

【００５５】

（実施例２）

実施例１と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において熱風式加熱炉により加熱処理を行った。続く第三工程においても実施例１と同様に行い、発明の効果の再現性を確認した。得られた積層体の評価結果を表１に示す。

【００５６】

【表１】

	段差転写痕の有無	挫屈の有無
実施例1	なし	なし
比較例1	あり	あり
実施例2	なし	なし

【００５７】

（実施例３）

第一工程において、実施例１と同様の液晶ポリマーフィルムの片面に９μｍの厚みの電解銅箔を重ね合わせ、同時に一対の加圧ロール間に１ｍ／分で連続的に供給した。ロールは内部の加熱機構により２１０～２６０℃で加熱した。加熱・加圧ロールはブース内に配置し、ブースは熱風循環ブロアにより２３０℃に加熱した。

【００５８】

続く第二工程において、熱風式加熱炉により積層体に加熱処理を行った。この際、加熱処理は熱風式加熱炉を約２００秒間通過させることで行ったが、炉内最高温度領域を液晶ポリマーの融点より１０℃低い温度とし、１ｍ／分で連続的に処理した。続く第三工程においては、縦置いて巻き解した積層体の各離間幅を５μｍ～８０μｍとし、実施例１と同様の条件で加熱処理を行った。得られた積層体の評価結果を表２に示す。

【００５９】

（比較例２）

実施例３と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において熱風式加熱炉により加熱処理を行った。続く第三工程においては、ロール状の積層体を巻き解さずに横置きで炉

内に静置したこと以外は実施例３と同様に行った。得られた積層体の評価結果を表２に示す。

【００６０】

（実施例４）

実施例３と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において熱風式加熱炉により加熱処理を行った。続く第三工程においても実施例３と同様に行い、発明の効果の再現性を確認した。得られた積層体の評価結果を表２に示す。

【００６１】

【表２】

	段差転写痕の有無	銅箔表面形状の転写の有無
実施例3	なし	なし
比較例2	あり	あり
実施例4	なし	なし

【００６２】

（実施例５）

実施例１と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において、熱風式加熱炉により積層体に加熱処理を行った。この際、加熱処理は熱風式加熱炉を約１００秒間通過させることで行ったが、炉内最高温度領域を２７０℃として２ｍ／分で連続的に処理し、巻き取り装置によってプラスチック製巻芯に巻き取った。

続く第三工程において、図６及び図７（ａ）に示すように、スリットを全開した状態で開き幅が１ｃｍの本発明の外周長さ５０ｃｍの巻芯（ステンレス製）に、プラスチック製巻芯に巻き取った積層体を巻き取り張力１ｋｇｆにて巻き替えた後、スリットを閉じて巻芯の径を縮小させることで空間を形成させ、巻芯に貼り付けた積層体巻き取り開始端と積層体層が接触しない状態にした。これを加熱炉中に横置きで静置した後に窒素雰囲気にして加熱処理を行った。また、炉内窒素圧力は1×10^{5}Ｐａ、設定加熱温度は２６０℃とし、設定加熱温度到達後にその温度を９０分保持して加熱処理を施した。得られた積層体の評価結果を表３に示す。

【００６３】

（比較例３）

実施例５と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において熱風式加熱炉により加熱処理を行った。続く第三工程においては、積層体をスリットのない外周長さ５０ｃｍの巻芯（ステンレス円筒）にロール状に巻き取り張力１ｋｇｆにて巻き取り、炉内に横置きし静置したこと以外は実施例５と同様に行った。得られた積層体の評価結果を表３に示す。

【００６４】

（実施例６）

実施例５と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において熱風式加熱炉により加熱処理を行った。続く第三工程においては、スリットを全開した状態で開き幅が１ｃｍの本発明の外周長さ５０ｃｍの巻芯（ステンレス製）に、プラスチック製巻芯に巻き取った積層体を巻き取り張力８ｋｇｆにて巻き替えた後、スリットを閉じて巻芯の径を縮小させることで空間を形成させ、炉内に横置きし静置したこと以外は実施例５と同様に行った。得られた積層体の評価結果を表３に示す。

【００６５】

（実施例７）

実施例５と同様、第一工程で積層体とし、続く第二工程において熱風式加熱炉により加

熱処理を行った。続く第三工程においては、積層体に厚さ７５μｍのステンレス箔及び厚さ５０μｍのポリイミドフィルムを巻き取り張力１ｋｇｆにて伴巻きしたこと以外は実施例５と同様に行い、伴巻き材を有する場合における発明の効果の有効性を確認した。得られた積層体の評価結果を表３に示す。

【００６６】

【表３】

	段差転写痕の有無	挫屈の有無
実施例5	なし	なし
比較例3	あり	なし
実施例6	なし	あり
実施例7	なし	なし

【産業上の利用可能性】

【００６７】

本発明による積層体の製造方法は、高い寸法安定性の要求される回路基板用金属張積層板に好適に使用される積層体を、その製造工程における外観不良発生を抑えて安定的に製造できる産業上の利用可能性が高いものである。

【図面の簡単な説明】

【００６８】

【図１】本発明に係る積層体の製造方法における第一工程を示す概略説明図である。

【図２】本発明に係る積層体の製造方法における第二工程を示す概略説明図である。

【図３】本発明に係る積層体の製造方法における第三工程を示す概略説明図であり、（ａ）は積層体を縦置きにした場合で、（ｂ）は横置きした場合での概略説明図である。

【図４】ロール状に巻き取った積層体を巻き解した様子を側面から示す概略説明図である。

【図５】ロール状に巻き取った積層体を巻き解した様子を上面から示す概略説明図である。

【図６】本発明に係る積層体の製造方法において使用される外径を変えることのできる巻芯の一実施態様を示す斜視図である。

【図７】図６に示す巻芯の外径が変化する状態を示したものであり、（ａ）はスリットを開いた状態で、また（ｂ）はスリットを閉じた状態での積層体が巻かれた様子を上面から示す概略説明図である。

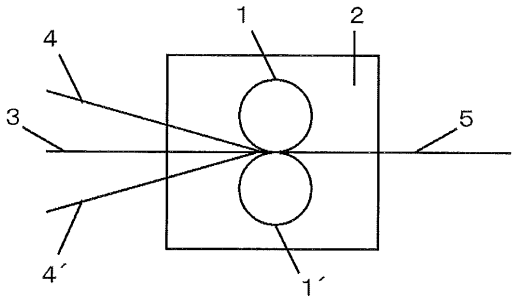
【符号の説明】

【００６９】

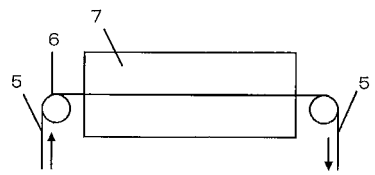
１、１’・・・・・加圧ロール
２・・・・・・・・加熱ブース
３・・・・・・・・液晶ポリマーフィルム
４、４’・・・・・金属箔
５・・・・・・・・積層体
６・・・・・・・・架橋ロール
７・・・・・・・・加熱炉
８・・・・・・・・積層体
９・・・・・・・・ヒーター
１０・・・・・・・加熱炉
１１・・・・・・・金属製巻芯
１２・・・・・・・巻き解された積層体

１３・・・・・・・積層体支持用ガイドリング
１４・・・・・・・金属製受け皿
１５・・・・・・・金属製巻芯に貼り付けた積層体端
１６・・・・・・・積層体端以外の積層体層
２１・・・・・・・巻芯
２２・・・・・・・スリット
２３・・・・・・・可変装置
２４、２５・・・・ナットおよびネジの取付部材
２６・・・・・・・ナット
２７・・・・・・・ネジ

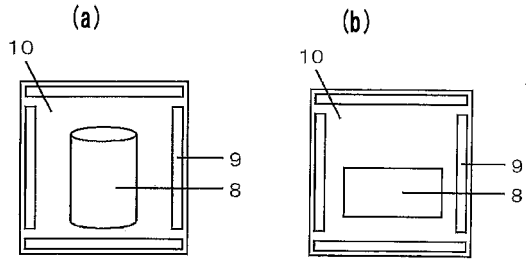
【図１】



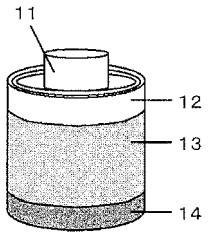
【図２】



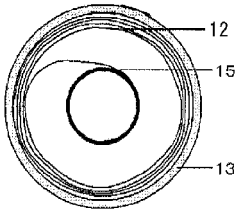
【図３】



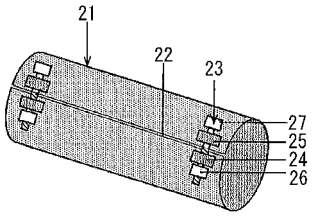
【図４】



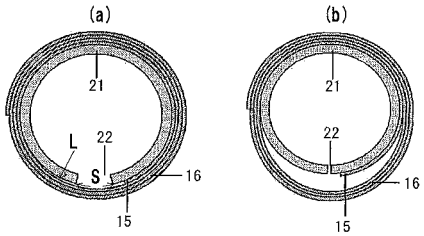
【図５】



【図６】



【図７】



フロントページの続き

(72)発明者　植田　和憲
東京都千代田区外神田四丁目１４番１号　新日鐵化学株式会社内
(72)発明者　藤原　宗孝
千葉県木更津市築地１番地　新日鐵化学株式会社内

審査官　横田　晃一

(56)参考文献　特開平０９－３１５６９２（ＪＰ，Ａ）
特開２００４－０６７２７１（ＪＰ，Ａ）
特開２００４－０９０２４７（ＪＰ，Ａ）
特開２００６－２７２７４４（ＪＰ，Ａ）
特開平０４－０８４４８８（ＪＰ，Ａ）
特開２００７－２６８７１６（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｂ３２Ｂ　１／００－　４３／００
Ｈ０５Ｋ　３／００