



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2011년08월11일
(11) 등록번호 10-1056277
(24) 등록일자 2011년08월04일

(51) Int. Cl.
B32B 15/08 (2006.01) H05K 3/00 (2006.01)
H05K 13/02 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2006-7016381
(22) 출원일자(국제출원일자) 2004년12월27일
심사청구일자 2008년12월29일
(85) 번역문제출일자 2006년08월14일
(65) 공개번호 10-2006-0124700
(43) 공개일자 2006년12월05일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2004/019522
(87) 국제공개번호 WO 2005/068182
국제공개일자 2005년07월28일
(30) 우선권주장
JP-P-2004-00009530 2004년01월16일 일본(JP)
(56) 선행기술조사문헌
JP11300887 A
JP2001239585 A
JP2003200496 A
전체 청구항 수 : 총 9 항

(73) 특허권자
신닛테츠가가쿠 가부시카이가샤
일본국 도쿄도 치요다쿠 소토칸다 4쵸메 14반 1고
(72) 발명자
미야모토 가즈야
일본 299-1171 치바켄 기미쓰시 야에하라 172-33
도쿠미쓰 아키라
일본 292-0835 치바켄 기사라즈시 쓰키지 1반치
신닛테츠가가쿠가부시카이가샤 전자재료 연구소
내
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
제일특허법인

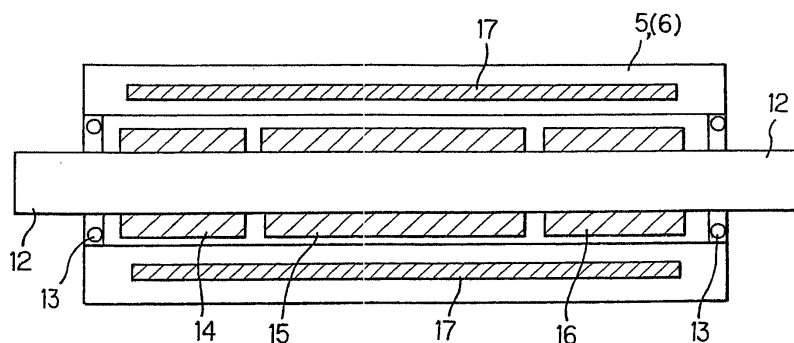
심사관 : 광인구

(54) 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법

(57) 요약

본 발명의 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법은, 세로 주름 등의 외관 불량 없이 품질이 안정한 양면 도체 폴리이미드계 적층체를 롤-권취 상태로 하여 연속적으로 제조하는 방법이며, 폴리이미드계 절연체층을 접착제 없이 가열 경화하여 적층시킨 편면 도체 적층체와 도전성 금속박으로 이루어진 기재를 연속적으로 프레스 롤 사이에 도입하고, 도전성 금속박을 가열 압착에 의해 적층 일체화시키는데 있어서, 상기 프레스 롤은 표면 온도 균일화 수단과 중앙 대역부 및 양측 대역부에 다른 열팽창을 발생시키는 내부로부터의 가열 제어 수단을 갖추고 있고, 상기 가열 제어 수단에 의해 중앙 대역부의 내벽면을 양측 대역부의 내벽면보다 5 내지 20℃ 높은 온도로 가열함으로써, 프레스 롤의 갭 조정시의 미묘한 경사에 의한 가압력의 불균일화를 중앙 대역부의 열팽창에 의해 자동적으로 수정시키면서 가열 압착하여 적층 일체화시키는 것이다.

대표도 - 도4



(72) 발명자

이이 마사카즈

일본 292-0835 치바켄 기사라즈시 쓰키지 1반치 신
닛테츠가가쿠가부시키가이샤 전자재료 사업부 내

시게마쓰 요시히로

일본 292-0835 치바켄 기사라즈시 쓰키지 1반치 신
닛테츠가가쿠가부시키가이샤 기사라즈 제조소 내

히가사야마 이치로

일본 292-0835 치바켄 기사라즈시 쓰키지 1반치 신
닛테츠가가쿠가부시키가이샤 기사라즈 제조소 내

간노 마사히로

일본 292-0835 치바켄 기사라즈시 쓰키지 1반치 신
닛테츠가가쿠가부시키가이샤 기사라즈 제조소 내

나카가와 유지로

일본 292-0835 치바켄 기사라즈시 쓰키지 1반치 신
닛테츠가가쿠가부시키가이샤 기사라즈 제조소 내

특허청구의 범위

청구항 1

도전성 금속박(M_1)의 한 면 상에 폴리이미드계 수지를 포함하는 절연체층을 접착제 없이 가열 경화하여 적층시킨 편면 도체 적층체와 도전성 금속박(M_2)을 포함하는 기재를 연속적으로 한 쌍의 프레스 롤 사이에 도입하여, 상기 절연체층의 탑(top)층에 도전성 금속박(M_2)을 가열 압착에 의해 적층 일체화시키는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법에 있어서,

상기 한 쌍의 프레스 롤이 열 매체에 의한 표면 온도 균일화 수단과, 중앙 대역부 및 양측 대역부에 상이한 열 팽창을 발생시키는 내부로부터의 가열 제어 수단을 갖추고 있고, 상기 기재를 연속적으로 프레스 롤 사이를 통과시킬 때에 상기 가열 제어 수단에 의해 중앙 대역부의 내벽면을 양측 대역부의 내벽면보다 5 내지 20℃ 높은 온도로 가열함으로써, 프레스 롤의 갭 조정시의 미묘한 경사에 의한 가압력의 불균일화를 중앙 대역부의 열팽창에 의해 자동적으로 수정시키면서 가열 압착하여 적층 일체화시키는 것을 특징으로 하는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 표면 온도 균일화 수단이, 프레스 롤의 표면 부근에 매립된 열 매체로 충전된 자켓 또는 히트 파이프에 의한 것이고, 롤 내부로부터의 가열 제어 수단은, 롤 중공 내부의 적어도 3개소에 마련된 유전 가열 코일, 적외선 히터 및 저항 가열 코일로부터 선택되는 복사열에 의한 것이고, 해당 3개소의 가열 수단에 흐르는 전류의 비율을 바꿈으로써 조사하는 복사열을 제어하는 것인 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

청구항 3

제 2 항에 있어서,

상기 한 쌍의 프레스 롤은 질소 분위기 하에서 중심축을 수평으로 하여 상하에 배치된 적어도 한 쪽의 프레스 롤이 소정의 위치까지 가압 수단에 의해 이동되어 양자의 갭 조정이 행해지고, 내부로부터의 가열 제어 수단에 의해 적어도 중앙 대역부에 크라운 상태의 열팽창을 발생시키고, 또한 롤 표면 온도 340 내지 390℃, 프레스 롤 사이의 선압 50Kg/cm 내지 500Kg/cm, 및 통과 시간 2 내지 5초간의 조건 하에서 가열 압착하는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 한 쌍의 프레스 롤은 질소 분위기 하에서 중심축을 수평으로 하여 상하에 배치된 적어도 한 쪽의 프레스 롤이 소정의 위치까지 가압 수단에 의해 이동되어 양자의 갭 조정이 행해지고, 내부로부터의 가열 제어 수단에 의해 적어도 중앙 대역부에 크라운 상태의 열팽창을 발생시키고, 또한 롤 표면 온도 340 내지 390℃, 프레스 롤 사이의 선압 50Kg/cm 내지 500Kg/cm, 및 통과 시간 2 내지 5초간의 조건 하에서 가열 압착하는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

청구항 5

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,

절연체층이 열가소성 폴리이미드계 수지로 이루어진 베이스(base)층, 저열팽창성 폴리이미드계 수지로 이루어진 중간 메인(main)층, 및 열가소성 폴리이미드계 수지를 포함하는 탑층의 적어도 3층의 폴리이미드계 수지층으로 이루어지는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

청구항 6

제 1 항 내지 제 4 항 중 어느 한 항에 있어서,

가열 프레스 롤의 표면 조도(Ra)를 0.01 내지 5 μ m의 조면화 상태로 하여 사용하는 양면 도체 폴리이미드 적층체

의 연속 제조 방법.

청구항 7

제 5 항에 있어서,

가열 프레스 롤의 표면 조도(Ra)를 0.01 내지 $5\mu\text{m}$ 의 조면화 상태로 하여 사용하는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

청구항 8

제 6 항에 있어서,

롤 표면에 세라믹 피막이 용사되어 표면 조도(Ra)가 형성되어 있는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

청구항 9

제 7 항에 있어서,

롤 표면에 세라믹 피막이 용사되어 표면 조도(Ra)가 형성되어 있는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법.

명세서

기술분야

[0001]

본 발명은, 전자기기류의 소형화 및 경량화의 요청에 대응한 배선 재료로서의 플렉시블 프린트 기판 등에 바람직한 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법에 관한 것이며, 특히 가열 프레스 롤을 이용한, 주름 발생이 없고 품질 편차도 없는 롤-권취 제품으로서 안정 생산이 가능한 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법에 관한 것이다.

배경기술

[0002]

최근, 고기능화하는 휴대전화나 디지털 카메라, 내비게이터, 기타 각종 전자기기류의 소형화 및 경량화의 진전에 따라, 이들에 사용되는 전자 배선 재료로서의 플렉시블 프린트 기판(배선 기판)의 소형 고밀도화, 다층화, 미세 배선(fine wiring)화, 저유전화 등의 요청이 높아지고 있다. 이 플렉시블 프린트 배선 기판에 대해서는, 이전에는 폴리이미드 필름과 금속박을 저온 경화가능한 접착제로 접합하여 제조되었지만, 접착제층이 배선 기판으로서의 특성의 저하, 특히 폴리이미드 베이스 필름의 우수한 내열성, 난연성 등을 손상시킨다는 문제가 있다. 또한 접착제층을 갖는 다른 문제로서 배선의 회로 가공성이 나빠진다는 문제도 있다.

[0003]

구체적으로는, 스루홀(through hole) 가공시의 드릴링(drilling)에 의한 수지 스미어(smear)의 발생이나, 도체 스루홀 가공시의 치수 변화율이 크다는 등의 문제를 들 수 있다. 특히, 양면(兩面) 스루홀 구조의 경우(절연체층인 베이스 필름을 중심으로 그 양면에 접착제를 통해 도체인 구리박 등을 접합하여 형성된 것 등)는, 편면(片面) 구조의 플렉시블 프린트 기판과 비교하여 일반적으로 그 유연성이 낮다는 문제가 있다. 한편, IC의 고밀도화, 프린트 배선의 미세화나 고밀도화에 따라 발열이 커져, 양호한 열전도체를 접합하는 것이 필요해지는 경우가 있다. 또한, 보다 콤팩트하게 하기 위해, 하우징과 배선을 일체화하는 방법도 있다. 더욱이, 전기용량이 상이한 배선을 필요로 하거나 보다 고온에 견디는 배선재를 필요로 하는 경우도 있다. 그래서, 접착제를 사용하지 않고 경화 전의 폴리이미산 용액을 구리박 등의 도체에 직접 도포하고 가열하여 경화시키는, 플렉시블 프린트 기판의 제조 방법이 다양하게 제안되어 있다.

[0004]

예컨대, 경화물의 선폭창 계수가 3.0×10^{-5} 이하이고 다이아민과 테트라카복실산 무수물로 합성되는 폴리이미산을 금속박에 도포하여 가열 경화시키는 방법(예컨대 특허문헌 1 참조), 특정 구조 단위를 갖는 폴리이미드이미드 전구체 화합물을 함유하는 수지 용액을 도체 상에 도포하여 이미드화하는 방법(예컨대 특허문헌 2 참조), 및 다이아미노벤즈아닐라이드 또는 그 유도체를 포함하는 다이아민류와 방향족 테트라카복실산의 반응으로 얻어지

는 구조 단위를 갖는 절연재의 전구체 용액을 도체 상에 직접 도포하여 경화시키는 방법(예컨대 특허문헌 3 참조) 등을 들 수 있다. 또한, 금속박과의 밀착성을 높이기 위해 도체 상에 복수의 폴리이미드 전구체 수지 용액을 이용하여, 복수회 도포와 건조를 행함으로써 복수의 폴리이미드 수지층을 갖는 플렉시블 프린트 배선용 기판을 제조하는 방법(예컨대 특허문헌 4 참조)도 제안되어 있다.

[0005] 이들 플렉시블 프린트 배선 기판은, 도전성 금속박의 한 면측에만 접착제 없이 절연체층을 가열 경화시켜 접착시킨 편면 구조에 관한 것이다. 한편, 전자기기류의 소형화 및 경량화에 대응하여, 본 발명자들은 먼저 도전성 금속박(M_1)의 한 면에 적어도 3층의 폴리이미드층을 갖는 편면 도체 적층체를 사용하고, 그 폴리이미드층에 도전성 금속박(M_2)을 가열 가압하여 적층하는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법(예컨대 특허문헌 5 참조)을 제안하고 있다. 이러한 양면 도체 적층체는 특히 기판의 양면에 배선 회로를 형성하는 것이 가능하고, 고밀도 패키징을 위해 이미 실용화되어 최근에는 각종 분야에서 많이 채용되고 있다.

[0006] 하기 특허문헌 5에 있어서의 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법에서는, 열 프레스 장치 등을 이용한 배치식 방식의 구체예를 개시하고 있다. 이 배치식 방식의 열 프레스 장치 등에서는, 열판(hot plate)이라고 불리는 대좌(臺座) 상에, 편면 도체 적층체와 도전성 금속박의 조합물을 복수층 동시에 탑재하여 가열 압착한 것이다. 통상의 가열은, 열판 내에 배치된 전기 히터에 의해 행해지고, 압력은 유압에 의해 대좌가 밀려 올려져 시트를 통해 상부 대좌에 압력을 전달시켜 소정 압력을 유지한다. 이러한 열판에서는 히터의 온도 격차가 크기 때문에, 여러 가지 보정을 행하더라도 가열 부족이나 가열 과잉에 의해 부분적으로 불량 개소가 발생하는 경우가 있다.

[0007] 또한, 복수층을 동시에 처리하는 경우, 장시간의 가열에 의해 적층 수지층의 열화가 촉진되고, 품번(品番)마다의 최적 조건이 좁은 매우 불안정한 프로세스였다. 또한, 적층 기재는 상온으로부터 가열 가압하여 일정 온도에 도달한 후 냉각하는 배치식 방식의 사이클을 반복하여 생산되기 때문에 생산 효율이 낮을 뿐만 아니라, 적층 기재의 재단 작업이 요구되고, 이 시점에서 이물이 말려 들어가기 쉽고, 이물이 부착된 경우, 적층한 것 모두에 이물의 형상이 전사되는 외관 불량을 일으키는 것이 많았다. 그래서, 연속 방식에 의해 안정한 품질을 갖는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법이 강하게 요청되고 있다.

[0008] 특허문헌 1: 일본 특허공개 제1987-212140호 공보

[0009] 특허문헌 2: 일본 특허공개 제1988-84188호 공보

[0010] 특허문헌 3: 일본 특허공개 제1988-245988호 공보

[0011] 특허문헌 4: 일본 특허공고 제1994-49185호 공보

[0012] 특허문헌 5: 일본 특허공개 제1998-323935호 공보

[0013] 발명의 개시

[0014] 발명이 해결하고자 하는 과제

[0015] 본 발명자들은, 앞서 제안한 특허문헌 5에 있어서의 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법에 있어서의 열 프레스 장치 등을 이용한 배치식 방식 대신에, 한 쌍의 가열 프레스 롤에 의한 가열 압착에 의해 양면 도체 폴리이미드 적층체를 연속 제조하는 방법에 대하여 검토를 진행시킨 결과, 최대의 과제로서, 통상의 균일 가열 방식의 프레스 롤을 사용한 경우이더라도, 상하에 배치된 한 쌍의 프레스 롤을 이동시켜 양자의 겹을 좁힐 때에, 해당 프레스 롤의 축심의 수평도가 기계 정밀도의 한계를 초과한 수 마이크론 단위로 경사져 있을 뿐 아니라 기재와의 접촉면의 일부에 미묘한 극간이 발생하여 압력이 불균일해져, 롤 사이를 통과할 때에 적층체의 표면에 다수의 세로줄의 주름이 발생하여 외관 불량뿐만 아니라 부분적으로 전기적 특성이 불량한 개소의 발생으로 연결되는 것, 또한 롤면이 그의 평활도가 지나치게 높은 상태에서는 기재와 롤면의 밀착도가 강하게 되어 주행 중에 휘말림에 의한 복잡한 주름(이하, '토라레(torare)'라 칭함)이나 불순물에 기인하는 피트(제품 표면에 수십 마이크론의 충격 흔적(impact mark)) 등이 다수 발생하기 쉬운 것 등 여러 해결해야 할 과제가 있다는 것을 알았다.

[0016] 과제를 해결하기 위한 수단

[0017] 본 발명자들은 상기 과제에 관해 예의 검토한 결과, 한 쌍의 가열 프레스 롤로서 표면 온도 균일화 수단과 중앙

대역부 및 양측 대역부에 상이한 열팽창을 발생시키는 가열 제어 수단을 갖춘 것을 사용하고, 중앙 대역부에 크라운(crown) 상태의 열팽창을 발생시켜 프레스 롤의 갭 조정시의 미묘한 경사에 의한 가압력의 불균일화를 자동적으로 수정시키면서 가열 압착에 의해 적층 일체화시키고, 또한 롤 표면을 특징한 조면화 상태로 함으로써, 상기 목적이 달성되는 것을 발견하여 본 발명을 완성하였다.

[0018] 즉, 본 발명은,

[0019] (1) 도전성 금속박(M_1)의 한 면 상에 폴리이미드계 수지로 이루어진 절연체층을 접착제 없이 가열 경화하여 적층시킨 편면 도체 적층체와 도전성 금속박(M_2)으로 이루어진 기재를 연속적으로 한 쌍의 프레스 롤 사이에 도입하고, 상기 절연체층의 탑(top)층에 도전성 금속박(M_2)을 가열 압착에 의해 적층 일체화시키는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법에 있어서, 상기 한 쌍의 프레스 롤은 열 매체에 의한 표면 온도 균일화 수단과, 중앙 대역부 및 양측 대역부에 상이한 열팽창을 발생시키는 내부로부터의 가열 제어 수단을 갖추고 있고, 상기 기재를 연속적으로 프레스 롤 사이를 통과시킬 때에 상기 가열 제어 수단에 의해 중앙 대역부의 내벽면을 양측 대역부의 내벽면보다 5 내지 20℃ 높은 온도로 가열함으로써, 프레스 롤의 갭 조정시의 미묘한 경사에 의한 가압력의 불균일화를 중앙 대역부의 열팽창에 의해 자동적으로 수정시키면서 가열 압착하여 적층 일체화시키는 것을 특징으로 하는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법이다.

[0020] (2) 상기 표면 온도 균일화 수단은, 프레스 롤의 표면 부근에 매립된 열 매체로 충전된 자켓 또는 가열 파이프에 의한 것이고, 롤 내부로부터의 가열 제어 수단은, 롤 중공 내부의 적어도 3개소에 마련된 유전 가열 코일 등의 복사열에 의한 것이고, 해당 3개소의 가열 수단에 흐르는 전류의 비율을 바꿈으로써 조사하는 복사열을 제어하는 것인 상기 (1)에 기재된 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법이다.

[0021] (3) 상기 한 쌍의 프레스 롤은 질소 분위기 하에서 중심축을 수평으로 하여 상하에 배치된 적어도 한 쪽의 프레스 롤이 소정의 위치까지 가압 수단에 의해 이동되어 양자의 갭 조정이 행해지고, 내부로부터의 가열 제어 수단에 의해 적어도 중앙 대역부에 크라운 상태의 열팽창을 발생시키고, 또한 롤 표면 온도 340 내지 390℃, 프레스 롤 사이의 선압 50Kg/cm 내지 500Kg/cm(490N/cm 내지 4900N/cm), 및 통과 시간 2 내지 5초간의 조건 하에서 가열 압착하는 상기 (1) 또는 (2)에 기재된 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법이다.

[0022] (4) 절연체층은 열가소성 폴리이미드계 수지로 이루어진 베이스(base)층, 저열팽창성 폴리이미드계 수지로 이루어진 중간 메인(main)층, 및 열가소성 폴리이미드계 수지로 이루어진 탑층의 3층 이상의 폴리이미드계 수지층으로 이루어지는 상기 (1) 내지 (3) 중 어느 하나에 기재된 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법이다.

[0023] (5) 가열 프레스 롤의 표면 조도(Ra)를 0.01 내지 5 μ m의 조면화 상태로 하여 사용하는 상기 (1) 내지 (4) 중 어느 하나에 기재된 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법이다.

[0024] (6) 롤 표면에 세라믹 피막이 용사되어 표면 조도(Ra)가 형성되어 있는 상기 (5)에 기재된 양면 도체 폴리이미드 적층체의 연속 제조 방법이다.

[0025] 발명의 효과

[0026] 본 발명에 의하면, 프레스 롤의 중앙 대역부를 내부로부터 고온 가열로 유지 함으로써, 프레스 롤이 수 마이크론 단위로 미세하게 경사지는 일이 있더라도 기재와의 접촉면에서의 극간은 중앙 대역부의 열팽창에 의해 흡수되어 이상적인 접촉 상태가 유지된다. 이로부터, 가열 압착시의 적층체의 표면에의 세로줄 등의 외관 불량 방지된다. 또한, 가열 프레스 롤의 표면 조도를 특정 조건으로 유지하는 것으로 기재와 롤 면의 밀착도가 감소함으로써 주행 중에 휘말림에 의한 복잡한 주름(이하, '토라레'라 칭함)이나 피트(제품 표면에 수십 마이크론의 충격 흔적) 등의 발생도 방지된다.

발명의 상세한 설명

[0041] 이하, 본 발명을 실시하기 위한 최선의 형태를 상세히 설명한다.

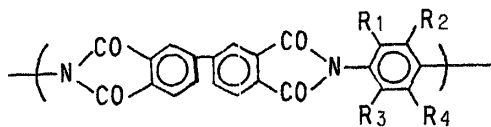
[0042] 우선, 본 발명에 있어서 사용되는 도전성 금속박(M_1 과 M_2)으로서는, 두께가 5 내지 150 μ m인 구리, 알루미늄, 철, 은, 팔라듐, 니켈, 크롬, 몰리브덴, 텅스텐, 아연 및 이들의 합금 등을 들 수 있고, 바람직하게는 구리이다. 특히, 강성이 낮고 가열 압착에 의한 압력 제어가 곤란하여 사용이 경원되어 있던 압연 구리박 제품도 적합하게 사용할 수 있다. 또한, 접착력의 향상을 목적으로, 그 표면에 사이딩(siding), 니켈 도금, 구리-아연 합금 도

금, 또는 알루미늄 알콜레이트, 알루미늄 킬레이트, 실레인 커플링제 등에 의한 화학적 또는 기계적인 표면 처리를 실시할 수 있다.

[0043] 여기서 이러한 도전성 금속박(M₁)의 한 면에 절연체층으로서 폴리이미드계 수지를 접착제 없이 가열 경화하여 접착시킨 편면 도체 적층체로서는, 상기 특허문헌 1 내지 4 및 5에 개시된 공지의 것을 이용할 수 있다. 절연체층으로서 사용되는 폴리이미드계 수지란, 이미드환 구조를 갖는 수지의 총칭이며, 예컨대 폴리이미드, 폴리아미드이미드, 폴리에스터이미드 등을 들 수 있다. 그리고, 폴리이미드계 수지층으로서, 상기 특허문헌 1 내지 4에 기재된 바와 같은 저열팽창성의 것이나, 가열하면 용융되거나 연화되는 열가소성 폴리이미드 등을 이용할 수 있으며, 특별히 한정되지 않는다. 그러나, 특히 바람직한 절연체층은, 특허문헌 5에 기재된 폴리이미드 전구체 수지 용액의 가열 경화에 의해 수득된 열가소성 폴리이미드계 수지로 이루어진 베이스층, 저열팽창성 폴리이미드계 수지로 이루어진 중간 메인층, 및 열가소성 폴리이미드계 수지로 이루어진 탑층의 3층 이상의 폴리이미드계 수지층으로 이루어지는 것이 바람직하다.

[0044] 여기서 중간 메인층을 형성하는 저열팽창 폴리이미드계 수지로서는, 그 선팽창 계수가 30×10^{-6} (1/℃) 이하가 바람직하고, 필름의 내열성 및 가요성에 있어서 우수한 성능을 갖는 것이 좋다. 여기서 선팽창 계수는, 이미드화 반응이 충분히 종료한 시료를 이용하여, 열기계 분석기(Thermomechanical Analyzer; TMA)를 이용하여 250℃로 승온한 후, 10℃/분의 속도로 냉각하여, 240℃ 내지 100℃의 범위에 있어서의 평균 선팽창 계수를 구한 것이다. 이러한 성질을 갖는 저열팽창 폴리이미드계 수지의 구체예로서는, 상기 특허문헌 5에 기재된 하기 화학식 I로 표시되는 단위구조를 갖는 폴리이미드계 수지가 바람직하다.

화학식 I

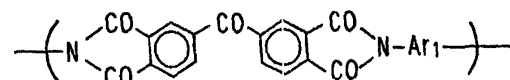


[0045]

[0046] 상기 식에서, R₁ 내지 R₄는 저급 알킬기, 저급 알콕시기, 할로젠기 또는 수소를 나타낸다.

[0047] 또한, 베이스층이나 탑층에 사용되는 열가소성 폴리이미드계 수지로서는, 그 유리 전이점 온도가 350℃ 이하인 것이면 어떠한 구조의 것이라도 좋지만, 바람직하게는 가열 가압하에 압착했을 때에 그 계면의 접착 강도가 충분한 것이 좋다. 여기서 말하는 열가소성 폴리이미드계 수지란, 유리 전이점 이상의 통상의 상태에서 반드시 충분한 유동성을 나타내지 않아도 되고, 가압에 의해 접착가능한 것도 포함된다. 이러한 성질을 갖는 열가소성 폴리이미드계 수지의 구체예로서는, 상기 특허문헌 5에 기재된 하기 화학식 II나 화학식 III으로 표시되는 단위구조를 갖는 것이다.

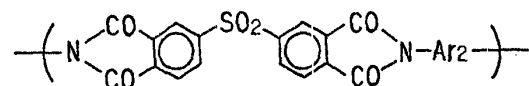
화학식 II



[0048]

[0049] 상기 식에서, Ar₁은 2가의 방향족기로서, 그 탄소수가 12 이상이다.

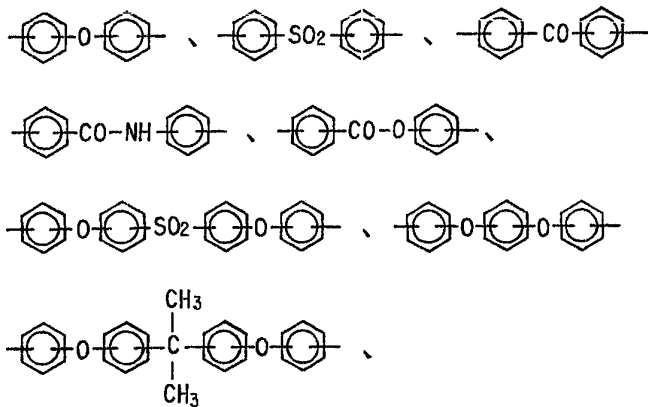
화학식 III



[0050]

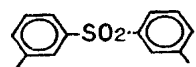
[0051] 상기 식에서, Ar₂는 2가의 방향족기로서, 그 탄소수가 12 이상이다.

[0052] 여기서, 2가의 방향족기 Ar_1 또는 Ar_2 의 구체예로서는, 예컨대



[0053]

[0054] 등을 들 수 있고, 바람직하게는,



[0055]

[0056] 이다.

[0057] 또한, 편면 도체 적층체의 제조 방법으로서, 상기 특허문헌 4 및 5에 기재되어 있는 바와 같이, 폴리이미드 전구체 용액 또는 폴리이미드 용액에 공지의 산무수물계나 아민계 경화제 등의 경화제, 실레인 커플링제, 티타네이트 커플링제, 에폭시 화합물 등의 접착성 부여제, 고무 등의 가요성 부여제 등의 각종 첨가제나 촉매를 가하여 도전성 금속박(M_1)에 도공하고, 이어서 열처리에 의해 열경화하여 편면 도체 적층체를 얻을 수 있다. 또한, 편면 도체 적층체는, 도전성 금속박(M_1)에 베이스층으로서 열가소성 폴리이미드계 수지층이, 중간의 메인층에 저열팽창성 폴리이미드계 수지층이, 또한 탑층(최표면층)으로서 열가소성 폴리이미드계 수지층이 적층되어 있는 것이 바람직하다. 여기서, 중간의 메인층에 저열팽창성 폴리이미드계 수지층을 포함하지 않는 경우는, 가열 경화 공정에서 얻어지는 편면 도체 적층체의 휘어짐(warping)이나 구부러짐(curling)이 커져 이후 공정에서의 작업성이 현저히 저하된다. 또한, 탑층(최표면층)에 열가소성 폴리이미드계 수지층을 포함하지 않으면, 가열 압착 롤 공정에서의 도전성 금속박과의 열압착에 의한 접착력이 충분히 발휘되지 않기 때문에 바람직하지 못하다.

[0058] 이 때, 저열팽창성 폴리이미드계 수지층의 두께(t_1)와 열가소성 폴리이미드계 수지층의 두께(t_2)의 두께의 비(t_1/t_2)는 2 내지 100의 범위, 바람직하게는 5 내지 20의 범위가 좋다. 이 두께의 비(t_1/t_2)가 2보다 작으면, 폴리이미드계 수지층 전체의 열팽창 계수가 금속박의 것과 비교하여 지나치게 높아지며, 이 제 1 공정에서 얻어지는 편면 도체 적층체의 휘어짐이나 구부러짐이 커지고, 이후 제 2 공정에서의 작업성이 현저히 저하된다. 또한, 열가소성 폴리이미드계 수지층의 두께(t_2)가 지나치게 작아 두께의 비(t_1/t_2)가 100을 초과할 정도로 커지면, 제 2 공정의 열압착에 의한 접착력이 충분히 발휘되지 않는 경우가 발생한다.

[0059] 도전성 금속박(M_1) 상에 이들 복수의 폴리이미드계 수지의 도공은, 그 수지 용액의 형태로 행할 수 있지만, 바람직하게는 상기 특허문헌 4 및 5에 기재되어 있는 바와 같이 그 전구체 용액의 형태로 복수의 전구체 용액을 일괄적으로 또는 차례로 도공하거나, 또는 이미드 폐환(閉環) 온도 이하에서의 탈용제 처리 후 전구체의 폴리이미드로의 가열 변환을 일괄적으로 행하는 것이 바람직하다. 완전히 폴리이미드로 변환된 층 상에 추가로 다른 폴리이미드계 전구체 용액을 도공하고, 열처리하여 이미드 폐환시키면, 각 폴리이미드계 수지층간의 접착력이 충분히 발휘되지 않는 경우가 있어, 양면 적층체의 제품의 품질을 저하시키는 원인이 된다.

[0060] 도전성 금속박(M_1) 상에 폴리이미드계 수지 용액 또는 그 전구체 용액(폴리아미산 용액)의 도공 방법으로서, 예컨대 나이프 코터, 다이 코터, 롤 코터, 커튼 코터 등을 사용하여 공지의 방법에 의해 실행할 수 있으며, 특히 두껍게 도공하는 경우에는 다이 코터나 나이프 코터가 적합하다. 또한, 도공에 사용하는 폴리이미드계 전구체 용액의 폴리머 농도는 폴리머의 중합도에 따라 다르지만, 통상 5 내지 30중량%, 바람직하게는 10 내지 20중량%이다. 폴리머 농도가 5중량%보다 낮으면 1회의 코팅으로 충분한 막 두께를 얻을 수 없고, 또한 30중량%보다

높아지면 용액 점도가 지나치게 높아져 도공할 수 없게 된다.

[0061] 도전성 금속박에 균일한 두께로 도공된 폴리아믹산 용액은, 다음으로 열처리에 의해 용제가 제거되고, 추가로 이미드 폐환된다. 이 경우, 급격히 고온에서 열처리하면 수지 표면에 스킨층이 생성되어 용제가 증발하지 않게 되거나 발포하기 때문에, 저온에서부터 서서히 고온까지 상승시키면서 열처리해 가는 것이 바람직하다. 이 때의 최종적인 열처리 온도로서는 통상 300 내지 400℃가 바람직하며, 400℃ 이상에서는 폴리이미드의 열분해가 서서히 일어나기 시작하고, 또한 300℃ 이하에서는 폴리이미드 피막이 도전성 금속박 상에 충분히 배향하지 않아 평면성이 좋은 편면 도체 적층체를 얻을 수 없다. 이렇게 하여 형성된 절연체로서의 폴리이미드계 수지층의 전체 두께는 통상 10 내지 150 μ m이다.

[0062] 이하, 도면에 따라 상세히 설명한다. 도 1은, 본 발명의 편면 도체 적층체와 도전성 금속박(M₁)을 한 쌍의 프레스 롤 사이에 도입하고, 가열 압착에 의해 적층 일체화시키는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법을 나타내는 개략도이다. 도 2의 (a)는 프레스 롤에 기재가 이상적으로 접촉한 상태, 도 2의 (b)는 프레스 롤이 경사져 접촉 불량으로 압력의 불균일이 발생한 상태를 나타내는 설명도이다. 도 3의 (a) 내지 도 3의 (d)는 프레스 롤의 중앙 대역부에 크라운 형상을 발생시켜 프레스 롤 사이의 가압력을 변화시킨 경우의 기재와의 접촉 상태를 나타내는 설명도이다. 도 4는 프레스 롤의 일례를 나타내는 개략적인 종단면도이다.

[0063] 도 1에 있어서, 상술한 도전성 금속박(M₁)의 한 면에 폴리이미드계 수지로 이루어진 절연체층을 가열 경화하여 접착시킨 편면 도체 적층체(1)과 도전성 금속박(M₂)(2)은 동시에 롤-권취 상태에서부터 연속적으로 끌어내어져, 복수의 가이드 롤(3, 3', 4, 4') 등을 지나 평면성을 높인 상태로 예비가열된 후에 한 쌍의 가열 프레스 롤(5, 6) 사이에 도입되고, 상기 절연체층의 탑층에 도전성 금속박(M₂)을 가열 압착에 의해 적층 일체화시킨 양면 도체 폴리이미드 적층체(7)로 하여, 적절한 냉각용 불활성 가스 분사 등의 냉각 수단(c)에 의해 예비냉각하고, 복수의 가이드 롤(8, 8')을 지나 외기 중에서 추가로 냉각되면서 롤-권취 제품(9)으로 된다.

[0064] 한편, 평면성을 높인 상태로 예비가열하는 수단으로서, 가열 프레스 롤(5, 6) 직전의 가이드 롤(3'(4'))을 가열 수단 내장 타입으로 하거나, 또는 가열 프레스 롤 바로 앞의 가열 램프 또는 복사 에너지를 방출하는 히터(h₁) 및 (h₂) 등을 설치하여 예비가열할 수도 있고, 또는 양쪽의 예비가열 수단을 병용할 수도 있다. 여기서, 복수의 가이드 롤(3, 3', 4, 4') 등이나 한 쌍의 가열 프레스 롤(5, 6)은 도전성 금속박의 산화를 막기 위해 대기압 이상의 질소 가스 분위기의 처리실(10) 내에 배치되고, 또한 기재 도입구 및 적층체의 배출구에는 질소 밀봉 기구(라비린스(labyrinth) 밀봉)(11)를 마련하는 것이 바람직하다.

[0065] 여기서, 한 쌍의 가열 프레스 롤(5, 6)은 도시되어 있지 않지만 중심축을 수평으로 하여 상하에 배치된 적어도 한 쪽의 프레스 롤을 축심부의 양측에서 유지하여 소정의 위치까지 유압 또는 기어에 의한 가압 수단에 의해 다른 쪽으로 이동시켜 양자의 갭 조정을 행함으로써, 도입되는 기재(1, 2)에 대하여 서로 프레스 롤로부터 최적의 가압력이 전달된다. 여기서 통상의 가열 방식의 프레스 롤을 사용할 때에, 양자의 갭을 좁혔을 때의 갭 조정이 이상적으로 행하여진 경우의 한 쪽의 프레스 롤과 기재는 도 2의 (a)의 이상적인 접촉 상태(단, 다른 쪽의 프레스 롤은 생략한다)로 된다. 그러나, 현실적으로는, 이동시키는 롤은 양단 유지에 의한 휘어짐 발생과 기계 정밀도의 한계로 인해 갭 조정 작업시의 양단 높이 위치가 불균형 상태로 유지되는 것 등에 의해, 롤 중심축이 수 마이크로 정도 불균형하게 경사지는 것을 피할 수 없다.

[0066] 이 결과, 기재와의 접촉면의 일부에 도 2의 (b)와 같이 극간(s)(단, 다른 쪽의 프레스 롤은 생략한다)이 발생하기 쉽다. 이 극간 부분이 존재하면 가압력이 불균일해져, 특히 두께가 매우 얇은 금속박이 롤 사이를 통과할 때 적층체의 표면에서 다수의 세로줄, 가로주름이나 수렴된 주름 등이 발생하여 외관 불량으로 연결된다. 수 마이크로 정도의 경사는 가압 수단이나 주변 점점 부품끼리의 기계 정밀도의 한계를 초과하여, 이를 작업자가 일정한 갭 상태로 유지하는 것은 불가능하다. 이를 해결하기 위해, 본 발명에서는 도 3의 (a) 내지 도 3의 (d)에 도시하는 바와 같이 롤 중앙 대역부에 열팽창에 의한 크라운 상태를 발생시킴으로써 롤의 중심축이 미소의 수 마이크로 단위로 경사지는 것에 의한 극간을 흡수시키는 것이다.

[0067] 도 3의 (a) 내지 도 3의 (d)는 종축에 프레스 롤 사이의 갭 조정시의 가압(프레스압)을 취하고, 가압이 변화된 경우의 기재의 롤 면에 대한 접촉 상태를 한 쪽의 롤에 의해서만 나타내는 설명도이다. 도 3의 (a)는 가압이 낮은 상태로, 열팽창에 의한 크라운 상태로 인해 기재의 양단에 극간이 발생하는 접촉 초기 단계를 나타낸다. 도 3의 (b)와 도 3의 (c)는 프레스 롤 사이의 가압이 적절하고 크라운 상태로 서로 가압 밀착하고 있어 평탄화된 최적의 접촉 상태를 유지한 단계를 나타내고, 도 3의 (d)는 프레스 롤 사이의 가압이 지나친 경우로서, 프레스 롤의 중심부에 기재와의 사이에 공간이 발생하는 상태를 나타낸다. 따라서, 프레스 롤 사이에서 최적의 접

축 상태를 유지하기 위한 기체에 걸리는 가압력에는 바람직한 범위가 존재하는 것을 알았다.

[0068] 여기서, 프레스 롤의 중앙 대역부에 열팽창에 의한 크라운 상태를 발생시키는데 바람직한 프레스 롤의 일례를, 도시한 도 4에서 설명한다. 프레스 롤 (5(6))은 내부가 공동의 외주부와 그의 양단으로부터 돌출한 고정된 중심축(12)이 롤 외주부의 양단 내부에 배치된 베어링 등의 회전 지지 부재(13)를 거쳐 일체화된 것이다. 여기서, 프레스 롤(5(6))은 도시되어 있지 않은 회전 구동원으로부터 적절한 기어 등의 전달 수단을 거쳐 중심축(12)의 주위를 베어링 등의 회전 지지 부재(13)를 이용하여 강제 회전된다. 또한, 중심축(12)에는 양단과 중앙의 3개소에 별도로 배치된 유전 가열에 의한 가열 코일, 적외선 히터, 저항 가열 코일 및 기타 등으로부터 선택된 복사열에 의한 가열 제어 수단(14, 15, 16)이 고정되어 있고, 이들 가열 제어 수단에 흐르는 전류의 비율(전체로는 일정한 전류치)을 바꾸는 것으로 프레스 롤의 내벽면에 조사하는 복사열 에너지를 제어한다.

[0069] 이 경우, 중앙 대역부의 내벽면을 양측 대역부의 내벽면보다 5 내지 20℃, 바람직하게는 7 내지 15℃ 높은 온도로 가열함으로써, 중앙 대역부가 크게 열팽창하여, 프레스 롤의 갭 조정시의 미묘한 경사에 의한 가압력의 불균일화를 자동적으로 수정할 수 있다. 이 온도차가 5℃ 이하에서는 열팽창이 지나치게 작고, 20℃ 이상에서는 롤 표면 온도의 균일화가 곤란해져 바람직하지 못하다. 또한, 롤 외표면 부근에는, 열전도성이 양호한 유기 열 매체가 충전되어 있는 자켓 또는 히트 파이프(17)라고 불리는 표면 온도를 균일화하는 열전도 소자가 매립되어 있다. 이러한 히트 파이프는 상기 중심축(12)의 가열 수단(14, 15, 16)으로부터 롤 외표면 전체에 순간적으로 열이 전달되기 때문에 표면 온도 정밀도가 높고, 축방향의 온도차가 거의 발생하지 않는다. 롤 외표면 온도는 열가소성 폴리이미드계 수지의 유리 전이점 이상인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 350 내지 390℃로 가열 온도를 제어한다.

[0070] 롤 외표면 온도는 롤 표면에 매립된 온도 센서로써 제어하는 것이 바람직하다. 또한, 상기 한 쌍의 가열 프레스 롤은 질소 분위기 하에서, 중심축을 수평으로 하여 상하에 배치된 한 쌍의 프레스 롤의 적어도 한 쪽의 프레스 롤을 소정의 위치까지 이동시켜, 양자의 상하에 배치된 한 쌍의 프레스 롤 사이의 선압은 적어도 한 쪽의 프레스 롤을 소정의 위치까지 이동시켜 양자의 갭을 좁혀, 도입된 기체를 통하여 프레스 롤 사이에 가압력이 전달된다. 이 경우의 프레스 롤 사이의 선압은, 상기한 도 3에서 설명한 바와 같이 프레스 롤 사이에서 최적의 접촉 상태를 유지하기 위해 기체에 걸리는 가압력에는 바람직한 범위가 존재하여, 50 내지 500Kg/cm(490N/cm 내지 4900N/cm), 바람직하게는 100 내지 300Kg/cm(980N/cm 내지 2940N/cm) 및 통과 시간 2 내지 5초간의 조건 하에서 가열 압착하는 것이 바람직하다.

[0071] 또한, 사용되는 한 쌍의 가열 프레스 롤은 프레스 롤의 표면 조도(Ra)를 0.01 내지 5 μ m, 바람직하게는 0.1 내지 3 μ m의 조면화 상태에서 사용하는 것이 바람직하다. 프레스 롤의 표면 조도(Ra)가 0.01 μ m 이하에서는 가열 롤 사이에서 나오는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 롤 밀착에 의한 토라레가 발생하여 주행 중에 주름이 발생한다. 5 μ m 이상에서는 롤 표면의 요철이 적층체 표면에 전사되기 때문에 바람직하지 못하다. 롤 표면을 상기 범위내의 조면으로 하기 위해서는 세라믹 피막을 용사함으로써 조정할 수 있다. 한편, 표면 조도(Ra)는 다이아몬드 칩에 의해 측정식 표면조도계로써 구한다.

[0072] 한편, 도 1에서 가열 프레스 롤(5, 6)에 의해 편면 도체 폴리이미드 적층체(7)를 탑층에 도전성 금속박(M₂)(2)을 가열 압착함으로써 적층 일체화시킨 양면 도체 폴리이미드 적층체(7)를 형성한 후에는, 냉각용 불활성 가스 분사 등의 냉각 수단(c)에 의해 예비냉각하는 것이 바람직하지만, 냉각 수단(c)에 의한 냉각 온도는 너무 급격히 냉각한 경우, 적층체(7)에 휘어짐이 발생하여 주행이 방해되므로 바람직하지 못하기 때문에, 200℃ 이상이고 탑층 수지인 열가소성 폴리이미드계 수지의 유리 전이점 이하인 온도, 바람직하게는 200 내지 300℃가 바람직하다.

[0073] 본 발명에서 얻어지는 양면 도체형 폴리이미드 적층체는, 절연체로서의 폴리이미드계 수지층의 양면에 도체로서의 도전성 금속층을 갖고, 외관이 양호하며 주름의 발생이 없는 것과 더불어 품질 편차도 없는 롤-권취 제품이며, 고기능화하는 휴대전화나 디지털 카메라, 내비게이터, 그 밖의 각종 전자기기류의 소형화 및 경량화의 진전에 따라 사용되는 전자 배선 재료로서 바람직하다.

실시예

[0074] 이하, 실시예에 기초하여 본 발명의 실시예를 구체적으로 설명한다. 한편, 이하의 실시예에 있어서, 선행장 계수, 편면 동장품(銅張品)의 구부러짐 및 접착력은 이하의 방법으로 측정했다.

- [0075] 즉, 선팡창 계수는 세이코전자공업주식회사(Seiko Electronic Ind. Co.,Ltd.)제 열기계 분석기(TMA100)를 이용하여, 250℃로 승온 후 10℃/분의 속도로 냉각하여 240℃ 내지 100℃ 사이에서의 평균 선팡창 계수를 산출하여 구했다. 편면 동장품의 구부러짐으로서는, 열처리하여 이미드변환한 후에 있어서 100mm×100mm 치수의 동장품의 곡률 반경을 측정했다.
- [0076] 편면 동장품의 접착력은 JIS C5016:7.1항에 따라 도체폭 3mm의 패턴을 사용하여 구리박을 180°의 방향으로 50mm/분의 속도로 박리했을 때의 값으로서 구했다.
- [0077] 또한, 실시예 및 비교예 중에서는 이하의 약호를 사용했다.
- [0078] PMDA: 무수 피로멜리트산
- [0079] BTDA: 3,3',4,4'-벤조페논테트라카복실산 무수물
- [0080] DDE: 4,4-다이아미노다이페닐에테르
- [0081] MABA: 2'-메톡시-4,4'-다이아미노벤즈아닐리드
- [0082] <합성예 1>
- [0083] 유리제 반응기에 질소를 통과시키면서 N,N-다이메틸아세트아미드 2532g을 충전하고, 이어서 교반하에 0.5몰의 DDE와 0.5몰의 MABA를 충전하고, 그 후 완전히 용해시켰다. 이 용액을 10℃로 냉각하고, 반응액이 30℃ 이하의 온도로 유지되도록 1몰의 PMDA를 소량씩 첨가하고, 첨가 종료 후 잇따라 실온에서 2시간 교반하여 중합 반응을 완결시켰다. 수득된 폴리이미드 전구체 용액은 폴리머 농도 15중량% 및 B형 점도계에 의한 25℃에서의 겔보기 점도 1000mPa·s이었다.
- [0084] <합성예 2>
- [0085] 다이아민 성분으로서 DDE 1몰을 사용하고, 산무수물 성분으로서 BTDA 1몰을 사용한 것 외에는, 합성예 1과 같이 하여 폴리이미드 전구체 용액을 제조했다. 수득된 폴리이미드 전구체 용액은 폴리머 농도 15중량% 및 B형 점도계에 의한 25℃에서의 겔보기 점도 300mPa·s이었다.
- [0086] <편면 도체 적층체의 제작>
- [0087] 35μm 롤 형상의 전해 구리박(닛코골드사(Nikko Gould Co. Ltd.)제)의 조면화된 면에 다이 코터를 이용하여 합성예 2에서 제조한 폴리이미드 전구체 용액 (2)를 12μm의 두께로 균일하게 도공한 후, 120℃의 열풍 건조로에서 연속적으로 처리하여 용제를 제거했다. 다음으로, 이 폴리이미드 전구체층 상에 리버스식 롤 코터를 이용하여 합성예 1에서 제조한 폴리이미드 전구체 용액 (1)을 200μm의 두께로 균일하게 도공하고, 120℃의 열풍 건조로에서 연속적으로 처리하여 용제를 제거한 후, 추가로 합성예 2에서 제조한 폴리이미드 전구체 용액 (2)을 15μm의 두께로 균일하게 도포하고, 이어서 열풍 건조로에서 30분에 걸쳐 120℃에서 360℃까지 승온시켜 열처리하여 이미드화시켜, 폴리이미드 수지층의 두께가 25μm인 휘어짐이나 구부러짐이 없고 평면성이 양호한 편면 도체 적층체(편면 동장품)(a)를 얻었다. 이 편면 도체 적층체(a)의 구리박층과 폴리이미드 수지층 사이의 180° 박리 강도(JIS C-5016)를 측정한 결과는 0.8Kg/cm이며, 예칭 후의 필름의 선팡창 계수는 $23.5 \times 10^{-6} (1/^\circ\text{C})$ 이었다.
- [0088] 실시예 1
- [0089] 합성예에서 제조한 편면 도체 적층체의 동장품의 횡폭 500mm의 롤-권취 시트의 수지면과 동일한 횡폭 치수 35μm의 롤-권취 시트인 압연 구리박의 조면화된 면을 각각 질소 분위기 하에 가이드 롤을 경유하여 한 쌍의 가열 프레스 롤 사이에 도입하고, 롤 표면 온도 360 내지 390℃, 프레스 롤 사이의 선압 50 내지 170Kg/cm의 범위내, 통과 시간 2 내지 5초간의 범위내로 조정가능한 조건 하에서 양 기재를 가열 압착가능하게 구성하였다. 이 때, 가열 프레스 롤의 외경은 300mm이고 폭은 800mm로, 표면 부근에는 균일 가열 수단으로서 나프탈렌을 봉입한 자켓식 히트 파이프가 매설되고, 내부의 중심축에는 양단과 중앙의 3개소에 유전 가열 코일(중앙에 폭 400mm의 메인 코일, 그 양측에 폭 200mm의 서브 코일)을 배치하여 내장시킨 구조로 하였다.
- [0090] 한편, 메인 코일과 서브 코일에 대하여 흐르는 전류치의 배분을 조정하여 복사 가열 온도를 조정했다. 또한, 회전 속도는 4m/분으로 일정하게 했다. 여기서 롤 표면의 설정 온도는 360℃, 프레스 롤 사이의 선압은 150Kg/cm, 통과 시간은 3초간으로 일정하게 설정하고, 또한 프레스 롤 내부로부터 중앙 대역부의 가열 온도를 양측 대역부와 다르게 다양하게 변경함으로써 중앙 대역부의 내벽면과 양측 대역부의 내벽면의 온도차를 0℃, 10℃, 14℃ 및 20℃의 4단계로 변화시킨 경우에 얻어진 양면 동장품의 표면 상태를 육안으로 조사한 결과를 표

1에 나타낸다.

표 1

온도차(℃)	양면 동장품의 표면 상태
0	불량(세로줄의 주름 발생)
10	외관 양호(주름 발생 없음)
14	외관 양호(주름 발생 없음)
20	약간의 주름 발생

실시예 2

상기 실시예 1에 있어서, 롤 표면의 설정 온도 360℃, 프레스 롤 사이의 선압 150kg/cm, 통과 시간 3초간으로 하고, 또한 중앙 대역부의 내벽면과 양측 대역부의 내벽면의 온도차가 없는 경우(0℃)와 10℃ 및 20℃의 경우에 있어서, 각각 세라믹 피막을 용사시켜 프레스 롤 표면 조도(Ra)를 0.01 이하, 0.05, 0.20 및 10.0μm의 4단계로 변화시킨 경우에 얻어진 양면 동장품의 표면 상태를 조사한 결과를 표 2에 나타낸다.

표 2

온도차(℃)	Ra(μm)	양면 동장품의 표면 상태
0	0.01 이하	불량(복잡한 주름(토라레)과 피트 발생)
	0.05	불량(주름 발생)
	0.20	불량(주름 발생)
	10.0	불량(요철의 발생)
10	0.01 이하	불량(주름(토라레)과 피트 발생)
	0.05	외관 양호(주름과 피트 없음)
	0.20	외관 양호(주름과 피트 없음) (양호)
	10.0	불량(요철의 발생)
20	0.01 이하	불량(주름(토라레)과 피트 발생)
	0.05	외관 양호(단, 약간의 주름 발생)
	0.20	외관 양호(주름과 피트 없음)
	10.0	양호(요철의 발생)

실시예 3

상기 실시예 1에 있어서, 롤 표면의 설정 온도 360℃, 중앙 대역부와 그 양측 대역부의 온도차를 10℃로 설정하고, 또한 프레스 롤 표면 조도(Ra)를 0.2μm로 설정한 조건 하에서 프레스 롤 사이의 선압을 10 내지 500Kg/cm의 범위로 변경한 경우의 양 기재의 프레스 롤과의 접촉 상태 및 수득된 양면 동장품의 표면 상태를 조사했다. 그 결과, 선압 50 내지 300Kg/cm의 조건 하에서의 프레스 롤과의 접촉 상태는 최적이고, 또한 수득된 적층 일체화품의 표면에는 주름의 발생이 없고, 더욱이 품질 편차도 없는 롤-권취 제품으로서 안정 생산이 가능한 것을 확인할 수 있었다. 한 쪽 선압이 10kg/cm 이하인 경우에는, 프레스 롤이 크라운 상태이기 때문에 양 기재와 프레스 롤 접촉 상태는 약간의 극간이 인정되고, 또한 수득된 적층 일체화품의 표면에는 다수의 주름 발생이 인정되었다. 또한, 선압이 500Kg/cm 이상인 경우에는, 압력 과잉으로 인해 양 프레스 롤 사이의 중앙부에 공동이 발생하고, 또한 수득된 적층 일체화품의 표면에는 다수의 세로 주름의 발생이 인정되었다.

산업상 이용 가능성

본 발명의 도전성 금속박을 가열 압착에 의해 적층 일체화시키는 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법은, 세로 주름 등의 외관 불량이 없고 품질이 안정한 양면 도체 폴리이미드계 적층체를 롤-권취 상태로 연속적으로 제조하는 방법으로, 산업상 이용 가능성이 높은 것이다.

도면의 간단한 설명

- [0027] 도 1은 본 발명의 양면 도체 폴리이미드 적층체의 제조 방법을 나타내는 개략도이다.

[0028] 도 2의 (a)는 물과 기재의 이상적인 접촉 상태를 나타내는 설명도이고, 도 2의 (b)는 물이 경사져 물과 기재의 접촉 불량 상태를 나타내는 설명도이다.

[0029] 도 3의 (a) 내지 도 3의 (d)는 물의 중앙 대역부의 크라운 형상과 물 사이의 가압력을 변화시킨 경우의 기재와의 접촉 상태를 나타내는 설명도이다.

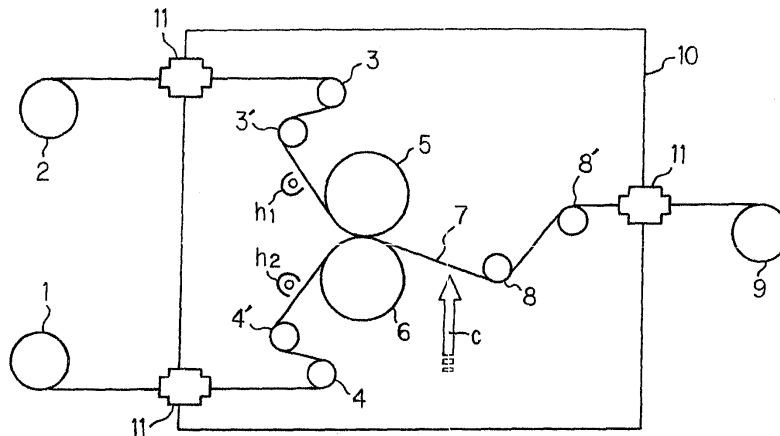
[0030] 도 4는 프레스 롤의 일례를 나타내는 개략적인 종단면도이다.

[0031] 도면의 주요부분에 대한 부호의 설명

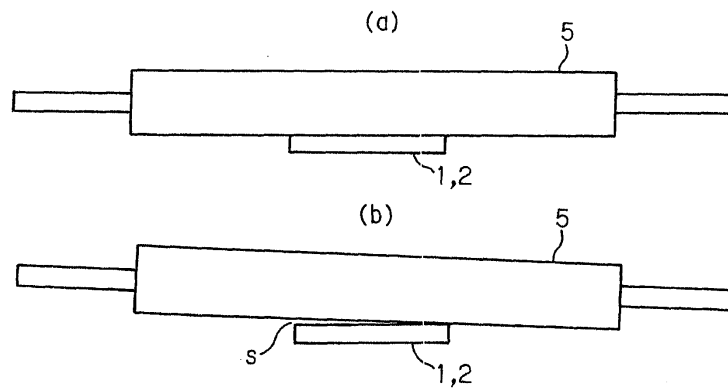
[0032]	1 편면 도체 적층체	2 도전성 금속박
[0033]	3 가이드 롤	4 가이드 롤
[0034]	5 가열 프레스 롤	6 가열 프레스 롤
[0035]	7 양면 도체 폴리이미드 적층체	8 가이드 롤
[0036]	9 롤-권취 제품	10 질소 가스 분위기의 처리실
[0037]	11 질소 밀봉 기구	12 중심축
[0038]	13 회전 지지 부재(베어링)	14 편측(偏側) 가열 수단
[0039]	15 중앙부 가열 수단	16 편측 가열 수단
[0040]	17 히트 파이프(heat pipe)	

도면

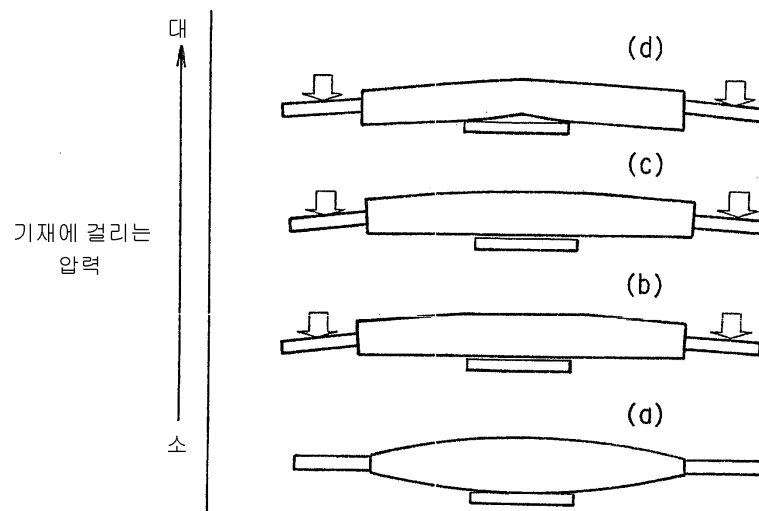
도면1



도면2



도면3



도면4

