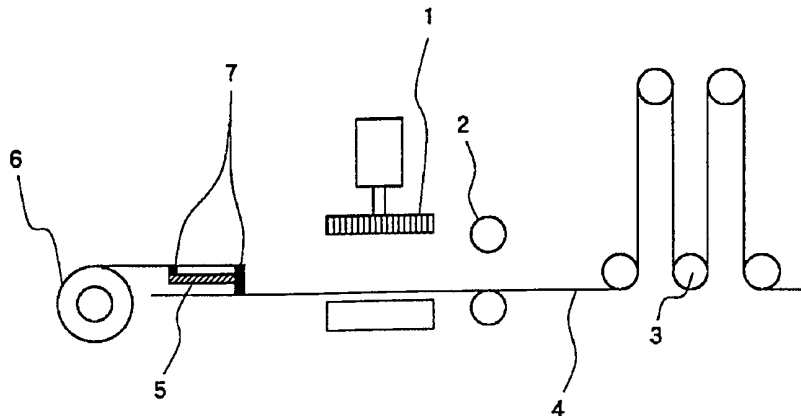




<p>(51) 国際特許分類6 B65H 19/18</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO99/62803</p> <p>(43) 国際公開日 1999年12月9日(09.12.99)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP98/02472</p> <p>(22) 国際出願日 1998年6月4日(04.06.98)</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 三井化学株式会社(MITSUI CHEMICALS, INC.)(JP/JP) 〒100-6070 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および</p> <p>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 田川公照(TAGAWA, Kimiteru)(JP/JP) 〒158-0091 東京都世田谷区中町5丁目20-15 Tokyo, (JP) 木島重基(KIJIMA, Shigemoto)(JP/JP) 〒216-0003 神奈川県川崎市宮前区有馬7丁目11-20 Kanagawa, (JP) 小林喜剛(KOBAYASHI, Yoshitake)(JP/JP) 〒457-0819 愛知県名古屋市中区滝春町5番地G-31 Aichi, (JP) 大坪英二(OHTSUBO, Eiji)(JP/JP) 〒457-0819 愛知県名古屋市中区滝春町5番地 滝春寮 Aichi, (JP)</p>		<p>(74) 代理人 弁理士 若林 忠, 外(WAKABAYASHI, Tadashi et al.) 〒107-0052 東京都港区赤坂1丁目9番20号 第16興和ビル8階 Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 CN, KR, SG, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>

(54)Title: METHOD OF MANUFACTURING CONTINUOUS SUBSTRATE AND APPARATUS THEREFOR

(54)発明の名称 連続基材の製造方法及びその装置



(57) Abstract

A method of manufacturing a continuous substrate by connecting sheet-shaped substrates and an apparatus for use in same, which are utilized in the field of working of metallic foils, composite film substrates made of metals and plastics, and heat resisting resin films of polyimides and the like. The method comprises using a connecting device equipped with a heat press, a substrate fixing device and an accumulator to put a resin adhesive layer between the trailing portion of a sheet-shaped substrate and the leading portion of another sheet-shaped substrate to subject the above portions to thermocompression bonding. Also, the method comprises continuously working sheet-shaped substrates connected to one another by actuating the substrate fixing device to keep the portions being subjected to thermocompression bonding stationary within the heat press when thermocompression bonding is effected, and actuating the accumulator to control the speed of conveying the sheet-shaped substrates on the downstream side to a predetermined one.

(57)要約

金属箔の加工、金属とプラスチックの複合フィルム基材の加工、ポリイミド等の耐熱性樹脂フィルムの加工などの分野に利用されるシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法および該方法に用いる製造装置に関する。

熱プレス機、基材固定装置、及び、アキュムレーターを備えた繋ぎ装置を用いて、シート状基材の最終部分と他のシート状基材の先頭部分の間に樹脂接着層を挟み込み、該箇所を熱圧着する方法を見出した。また、熱圧着をする際は、基材固定装置を作動させて熱圧着箇所を熱プレス機内に静止せしめ、且つ、アキュムレーターを作動させて下流側におけるシート状基材の搬送速度を所定速度に制御することにより、繋ぎが完了したシート状基材を連続的に加工するシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法およびそれに用いる装置。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロヴァキア
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャード
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BJ	ベナン	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GW	ギニア・ビサオ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BY	ベラルーシ	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	HR	クロアチア		共和国	TR	トルコ
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MW	マラウイ	US	米国
CM	カメルーン	IN	インド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノールウェー	ZA	南アフリカ共和国
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュー・ジーランド	ZW	ジンバブエ
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

## 明 細 書

## 連続基材の製造方法及びその装置

## 発明の詳細な説明

## 発明の属する技術分野

本発明は、シート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法および該方法に用いる基材を繋ぐ連続基材の製造装置に関する。詳しくは、金属箔の加工、金属とプラスチックの複合フィルム基材の加工、ポリイミド等の耐熱性樹脂フィルムの加工などの分野に利用され、塗工乾燥装置、熱処理装置などの200℃以上、550℃未満の高温加工を必要とするシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法および該方法に用いる基材を繋ぐ連続基材の製造装置に関する。

## 従来技術

従来、金属箔同士の繋ぎ方法としては、超音波融着による方法が用いられてきた。また、ポリイミド等の耐熱性プラスチック同士の繋ぎ方法としては、耐熱性粘着テープを利用する方法やステープル（Staple）で接続する方法が用いられてきた。

超音波融着は、異なる金属箔同士を繋ぐ場合には利用可能であるが、ポリイミド等の耐熱性プラスチック同士を繋ぐことができない。また、耐熱性粘着テープを用いて繋ぐ方法は、200℃未満の温度範囲では利用可能であるが、200℃以上の温度で利用する場合、粘着力が低下する。そのため、基材に0.1～50kgf/mの張力をかけた場合、繋ぎ部が外れる問題があった。また、ステープルで繋ぐ方法は、厚みが18μm以下の薄い金属箔、プラスチックフィルム等の場合には、接続強度が不足する。そのため、基材に0.1～50kgf/mの張力をかけ

た場合、基材が破断することがあり満足し得る方法ではない。

#### 発明が解決しようとする課題

本発明の目的は、上記従来の問題点に鑑み、金属箔同士、耐熱性プラスチック同士は勿論の事、金属箔と耐熱性プラスチックをも良好に繋ぐことができ、200℃以上、550℃未満の温度条件で基材に0.1～50kgf/mの張力をかけて加工した場合でも、基材同士がはずれることがない、シート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法、および該方法に用いる連続基材繋ぎ装置を提供することにある。

#### 課題を解決するための手段

本発明者達は、上記課題を解決するため、鋭意検討した結果、熱プレス機、基材固定装置、及び、アキュムレーターを備えた繋ぎ装置を用いて、シート状基材の最終部分と他のシート状基材の先頭部分の間に樹脂接着層を挟み込み、該箇所を熱圧着する方法を見出した。また、熱圧着をする際は、基材固定装置を作動させて熱圧着箇所を熱プレス機内に静止せしめ、且つ、アキュムレーターを作動させて下流側におけるシート状基材の搬送速度を所定速度に制御することにより、繋ぎが完了したシート状基材を連続的に加工することが可能であることを見出し、本発明に到った。

すなわち、本発明は、先行するシート状基材と後続の他のシート状基材とをそれらの長さ方向に搬送しながら端部同士で繋ぐ連続基材の製造方法であって、

(1) 先行するシート状基材4の最終部分と、後続の他のシート状基材6の先頭部分の間に樹脂接着層5を配設して仮接続する工程、

(2) 前記仮接続部が熱プレス機1に到達するまで先行するシート状基材4及び後続の他のシート状基材6を搬送した時点で、基材固定装置2

を作動せしめて先行するシート状基材4の一部を固定して仮接続部を熱プレス機1内に静止せしめると共に、アキュムレーター3を作動せしめて先行するシート状基材4の下流側の搬送速度を常時一定に制御する工程、

(3) 熱プレス機1を作動せしめて前記仮接続部を熱圧着して先行するシート状基材4と後続の他のシート状基材6とを繋ぐ工程、

(4) 基材固定装置2による固定を解除して、繋がれたシート状基材をアキュムレーター3を介して下流側へ搬送する工程、

の各工程を含むシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法である。

本発明の上記シート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の好ましい態様として、前記熱圧着を、温度 $200^{\circ}\text{C}$ 以上、 $550^{\circ}\text{C}$ 未満、圧力 $0.001\sim 50\text{kgf}/\text{cm}^2$ において実施する前記シート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法、先行するシート状基材4の最終部分、及び後続の他のシート状基材6の先頭部分の長さが、それぞれ $10\sim 1000\text{mm}$ である前記シート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法、先行するシート状基材4、及び、後続の他のシート状基材6が、厚み $5\sim 500\mu\text{m}$ の金属箔または耐熱性樹脂フィルムである前記シート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法、樹脂接着層の厚みが $0.1\sim 50\mu\text{m}$ である前記シート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法、が挙げられる。上記それぞれのシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法は、繋がれたシート状基材が、温度が $200^{\circ}\text{C}$ 以上、 $550^{\circ}\text{C}$ 未満、張力が $0.1\sim 50\text{kgf}/\text{cm}$ の範囲で連続加工される場合、特に好ましく適用される。

また、本発明の他の発明は、前記それぞれのシート状基材を繋ぐ連続基材の製造の実施に使用するシート状基材の繋ぎ装置であって、搬送手段により先行するシート状基材の最終部分に後続する他のシート状基材の先頭部分を樹脂接着層を介して重ねて仮接続した仮接続部分を熱圧着で繋ぐための熱プレス機と、前記熱プレス機に前記仮接続部分を静止さ

せるため前記先行するシート状基材の一部を固定する基材固定装置と、前記基材固定装置より下流側の前記先行する基材の移動速度を常時一定に保つためのアキュムレーターと、からなることを特徴とするシート状基材を繋ぐ連続基材の製造装置である。

本発明によれば、次工程におけるシート状基材の加工が、温度200℃以上、550℃未満、張力0.1～50kgf/cmという厳しい条件下においてなされた場合であっても、シート状基材の切断、はがれ、蛇行、テンションの変動などが無い、良好な加工を行なうことができる。また、本発明を適用してシート状基材同士を繋ぐことにより、安定的に、且つ効率の良い基材同士の繋ぎが可能となり、しかも、常時一定の搬送速度で次工程にシート状基材を搬送することができる。

#### 発明の実施の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明に係わるシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の概要は、先ず、搬送手段により先行するシート状基材の最終部分に、後続の他のシート状基材の先頭部分が樹脂接着層を挟み込んだ状態で重ねられ、粘着テープなどを用いて仮接続される。仮接続されたシート状基材同士は、搬送手段により下流側に搬送されていき、仮接続部分が熱プレス機に達すると、基材固定装置により先行するシート状基材の一部がシート状基材固定装置により固定されて、仮接続部分が熱プレス機内で静止する。このとき、先行するシート状基材の流れ速度を一定とする為に、アキュムレーターが作動し続ける。その後、熱プレス機が作動して、樹脂接着層を間に持つシート状基材同士の仮接続部分が熱圧着される。シート状基材同士の接続が完了した後は、基材固定装置による固定が解除され、接続部分で接続されたシート状基材はアキュムレーターに向かって移動する。

以下、本発明の実施の形態について図面を参照して説明する。

図1乃至図4は、本発明のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の実施に使用する装置の一形態の構成および動作を説明するためのものである。特に、図1は、シート状基材同士の間には樹脂接着層を挟み込んだ状態を示す。図2は、シート状基材同士の接続部を熱プレス機上で静止させる状態を示す。図3は、熱プレス機を作動して、シート状基材同士を熱圧着させる状態を示す。図4は、シート状基材同士の繋ぎが完了した状態を示している。

本形態の装置は、図1乃至図4に示すように、不図示の搬送手段により先行する加工中のシート状基材4の最終部分に、加工予定の後続の他のシート状基材6の先頭部分を樹脂接着層5により繋ぐために熱プレス機1を備えている。

この熱プレス機1の型式には特に制限はないが、ヒーター等を組み込んだ熱板の型式が好ましい。熱圧着時の加熱温度は、樹脂接着層の種類により選択されるが、通常200℃以上、550℃未満、好ましくは200～450℃の温度が好ましい。熱プレス時の圧力は、特に制限はないが、十分な接着力が得られ、且つ、シート状基材を破損しない範囲として、0.001～50kgf/cm<sup>2</sup>が好ましく、さらに好ましくは0.001～1kgf/cm<sup>2</sup>である。

熱および圧力を均一に伝える方法として、熱板上に耐熱性のラバーを付けることも好ましい。また、熱板に凹凸を設け部分的にプレス圧力を高めることも好ましい。熱プレスに必要な時間は、特に制限はないが、実用的な処理に適している時間としては0.1秒～30分間、好ましくは0.5秒～10分、さらに好ましくは1秒～5分である。両シート状基材を熱圧着する箇所長さには、特に制限はないが、次工程におけるシート状基材の加工時にかかる張力等を考慮すると、通常、10～1000mm程度好ましくは50～500mmである。

さらに、本装置は、熱プレス機 1 による接続の際に、加工中の先行するシート状基材 4 の最終部分の移動を止めるための基材固定装置 2 と、基材固定装置 2 より下流側（基材固定装置 2 の、熱プレス機 1 側とは反対側）の加工中の先行するシート状基材 4 の移動速度を常時一定に保つためのアキュムレーター 3 とを備えている。

基材固定装置 2 は、対をなす 2 本のロールから構成され、ロール同士をピンチすることでシート状基材の固定を可能にするものが好ましい。また、アキュムレーター 3 は、複数のロールから構成され、例えば、対向するロールをシート状基材の搬送方向と直角をなす方向に移動せしめることで、ロールに巻きついているシート状基材の長さを調整し、基材固定装置 2 で固定されていても加工中のシート状基材 4 の移動速度を常時一定に保つことができる型式のものが好ましい。

また、シート状基材 4 および 6 としては、銅箔、ステンレス箔、アルミニウム箔、Ni-Fe 合金箔、銅を主体とした合金箔などの金属箔、ポリイミド、ポリアミド、アラミド、液晶ポリマーなどの耐熱性プラスチックフィルム、もしくは金属箔と耐熱性プラスチックとの複合フィルムが挙げられる。シート状基材の厚みは、好ましくは 5~500  $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは 5~100  $\mu\text{m}$ 、最も好ましくは 5~50  $\mu\text{m}$  程度である。

接着層として用いる樹脂接着層 5 は、熱可塑性の特徴を有している樹脂層であれば良い。非熱可塑性ポリイミドフィルム、上記金属箔等の表裏両面に樹脂接着層を形成したものでも良い。いずれの場合においても、接着層となる樹脂接着層の厚みは、0.1~100  $\mu\text{m}$  程度のものが挙げられる。

樹脂接着層としては好ましくはガラス転移温度が 150~350℃である熱可塑性樹脂が用いられ、例えば熱可塑性ポリイミド、芳香族ポリイミド、芳香族ポリエーテルイミド、シリコーン変性ポリイミド



等が例示され、特に好ましくは熱可塑性ポリイミドである。

接着層として用いる熱可塑性ポリイミドフィルムを形成する熱可塑性ポリイミドとしては、ジアミンとテトラカルボン酸二無水物により合成される公知の熱可塑性ポリイミドが利用できる。より具体的にはジアミンとして、1, 3-ビス(3-アミノフェノキシ)ベンゼン、4, 4'-ビス(3-アミノフェノキシ)ビフェニル、及び3, 3'-ジアミノベンゾフェノンから選ばれる少なくとも一種のジアミンが好ましい。

テトラカルボン酸二無水物として、3, 3', 4, 4'-ジフェニルエーテルテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、ピロメリット酸二無水物および、3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物から選ばれる少なくとも一種のテトラカルボン酸二無水物が好ましい。

本発明に用いる熱可塑性ポリイミドフィルムは、好ましくは上記のジアミン群から選ばれる少なくとも一種のジアミン成分と、上記のテトラカルボン酸二無水物群から選ばれる少なくとも一種のテトラカルボン酸二無水物成分から得られる重縮合ポリマーのフィルムである。ジアミン成分とテトラカルボン酸二無水物の反応モル比は、通常、ジアミン成分1モルに対し、テトラカルボン酸二無水物成分0.75~1.25モルの範囲である。好ましくは0.8~1.2モルの範囲である。

上記したジアミンの一部を他のジアミンで代替することができる。代替できるアミン化合物として、例えば、m-フェニレンジアミン、o-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、m-アミノベンジルアミン、p-アミノベンジルアミン、ビス(3-アミノフェニル)スルフィド、(3-アミノフェニル)(4-アミノフェニル)スルフィド、ビス(4-アミノフェニル)スルフィド、ビス(3-アミノフェニル)スルホキシド、(3-アミノフェニル)(4-アミノフェニル)スルホキシド、ビス(3-アミノフェニル)スルホン、(3-アミノフェニ

ル) (4-アミノフェニル)スルホン、ビス(4-アミノフェニル)スル  
 ホン、3, 4'-ジアミノベンゾフェノン、4, 4'-ジアミノベンゾ  
 フェノン、3, 3'-ジアミノジフェニルメタン、3, 4'-ジアミノ  
 ジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-  
 ジアミノジフェニルエーテル、3, 3'-ジアミノジフェニルエーテル、  
 3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、ビス[4-(3-アミノフェ  
 ノキシ)フェニル]メタン、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェ  
 ニル]メタン、1, 1-ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニ  
 ル]エタン、1, 1-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]  
 エタン、1, 2-ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]エタ  
 ン、1, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]エタン、  
 2, 2-ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2,  
 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン、2, 2-  
 ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]ブタン、2, 2-ビ  
 ス[3-(3-アミノフェノキシ)フェニル]-1, 1, 1, 3, 3,  
 3-ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノ  
 キシ)フェニル]-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、  
 1, 3-ビス(3-アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 4-ビス(3-  
 アミノフェノキシ)ベンゼン、1, 4'-ビス(4-アミノフェノキ  
 シ)ベンゼン、4, 4'-ビス(4-アミノフェノキシ)ビフェニル、  
 ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]ケトン、ビス[4-  
 (4-アミノフェノキシ)フェニル]ケトン、ビス[4-(3-アミノ  
 フェノキシ)フェニル]スルフィド、ビス[4-(4-アミノフェノキ  
 シ)フェニル]スルフィド、ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェ  
 ニル]スルホキシド、ビス[4-(アミノフェノキシ)フェニル]スル  
 ホキシド、ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、  
 ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン、ビス[4-

(3-アミノフェノキシ)フェニル]エーテル、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]エーテル、1,4-ビス[4-(3-アミノフェノキシ)ベンゾイル]ベンゼン、1,3-ビス[4-(3-アミノフェノキシ)ベンゾイル]ベンゼン、4,4'-ビス[3-(4-アミノフェノキシ)ベンゾイル]ジフェニルエーテル、4,4'-ビス[3-(3-アミノフェノキシ)ベンゾイル]ジフェニルエーテル、4,4'-ビス[4-(4-アミノ- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル)フェノキシ]ベンゾフェノン、4,4'-ビス[4-(4-アミノ- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル)フェノキシ]ジフェニルスルホン、ビス[4-(4-(4-アミノフェノキシ)フェノキシ)フェニル]スルホン、1,4-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル]ベンゼン、1,3-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル]ベンゼン等が挙げられる。

これらは単独で、または2種以上を組み合わせて使用しても良い。他のアミン化合物による代替量は、通常、前記した特定のジアミンの0~50モル%の範囲である。

上記した上記テトラカルボン酸二無水物と他のテトラカルボン酸二無水物を併用してもよい。併用してもよいものとして、例えば、エチレンテトラカルボン酸二無水物、ブタンテトラカルボン酸二無水物、シクロペンタンカルボン酸二無水物、ピロメリット酸二無水物、2,2',3,3'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2,2',3,3'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、2,2-ビス(3,4-ジカルボキシフェニル)プロパン二無水物、ビス(3,4-ジカルボキシフェニル)エーテル二無水物、ビス(2,3-ジカルボキシフェニル)エーテル二無水物、ビス(3,4-ジカルボキシフェニルスルホン)二無水物、ビス(2,3-ジカルボキシフェニル)スルホン二無水物、1,1-ビス(2,3-ジカルボキシフェニル)メタン二無水物、ビス(3,

4-ジカルボキシフェニル)メタン二無水物、4, 4'- (p-フェニレンジオキシ)ジフタル酸二無水物、4, 4'- (m-フェニレンジオキシ)ジフタル酸二無水物、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、1, 4, 5, 8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 5, 6, -ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 3, 4-ベンゼンテトラカルボン酸二無水物、3, 4, 9, 10-ペリレンテトラカルボン酸二無水物、2, 3, 6, 7-アントラセンテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 7, 8-フェナントレンテトラカルボン酸二無水物等が挙げられる。

これらは、単独または2種以上を組み合わせ使用できる。併用するテトラカルボン酸の代替量は、通常、前記した特定のテトラカルボン酸二無水物の0~50モル%の範囲である。

本発明では、熱可塑性ポリイミドフィルムの原料である熱可塑性ポリイミドのポリマー末端を封止する目的として、ジカルボン酸無水物を添加しても良い。使用されるジカルボン酸無水物としては、無水フタル酸、2, 3-ベンゾフェノンジカルボン酸無水物、3, 4-ベンゾフェノンジカルボン酸無水物、2, 3-ジカルボキシフェニルフェニルエーテル無水物、2, 3-ビフェニルジカルボン酸無水物、3, 4-ビフェニルジカルボン酸無水物、2, 3-ジカルボキシフェニルフェニルスルホン無水物、3, 4-ジカルボキシフェニルフェニルスルホン無水物、2, 3-ジカルボキシフェニルフェニルスルフィド無水物、1, 2-ナフタレンジカルボン酸無水物、2, 3-ナフタレンジカルボン酸無水物、1, 8-ナフタレンジカルボン酸無水物、1, 2-アントラセンジカルボン酸無水物、2, 3-アントラセンジカルボン酸無水物、1, 9-アントラセンジカルボン酸無水物が挙げられる。

これらのジカルボン酸無水物はアミンまたはジカルボン酸無水物と反応性を有しない基で置換されてもよい。ジカルボン酸無水物の添加量は、

通常、主原料である前記特定のジアミンとテトラカルボン酸二無水物の合計量100モルに対して、0.001~0.5モルの範囲である。好ましくは、0.005~0.25モルの範囲である。

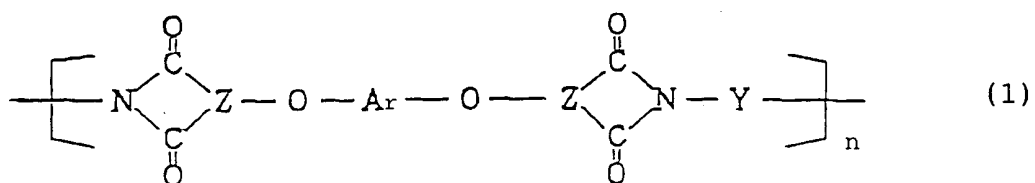
同様に、熱可塑性ポリイミドのポリマー末端を封止する目的でモノアミンを添加してもよい。使用されるモノアミンとしては、例えば、アニリン、*o*-トルイジン、*m*-トルイジン、*p*-トルイジン、2,3-キシリジン、2,4-キシリジン、2,5-キシリジン、2,6-キシリジン、3,4-キシリジン、3,5-キシリジン、*o*-クロロアニリン、*m*-クロロアニリン、*p*-クロロアニリン、*o*-ニトロアニリン、*o*-ブロモアニリン、*m*-ブロモアニリン、*o*-ニトロアニリン、*m*-ニトロアニリン、*p*-ニトロアニリン、*o*-アミノフェノール、*m*-アミノフェノール、*p*-アミノフェノール、*o*-アニリジン、*m*-アニリジン、*p*-アニリジン、*o*-フェネチジン、*m*-フェネチジン、*p*-フェネチジン、*o*-アミノベンツアルデヒド、*m*-アミノベンツアルデヒド、*p*-アミノベンツアルデヒド、*o*-アミノベンゾニトリル、*m*-アミノベンゾニトリル、*p*-アミノベンゾニトリル、2-アミノビフェニル、3-アミノビフェニル、4-アミノビフェニル、2-アミノフェノールフェニルエーテル、3-アミノフェノールフェニルエーテル、4-アミノフェノールフェニルエーテル、2-アミノベンゾフェノン、3-アミノベンゾフェノン、4-アミノベンゾフェノン、2-アミノフェノールフェニルスルフィド、3-アミノフェノールフェニルスルフィド、4-アミノフェノールフェニルスルフィド、2-アミノフェノールフェニルスルホン、3-アミノフェノールフェニルスルホン、4-アミノフェノールフェニルスルホン、 $\alpha$ -ナフチルアミン、 $\beta$ -ナフチルアミン、1-アミノ-2-ナフトール、2-アミノ-1-ナフトール、4-アミノ-1-ナフトール、5-アミノ-1-ナフトール、5-アミノ-1-ナフトール、5-アミノ-2-ナフトール、7-アミノ-2-ナフトール、

8-アミノ-2-ナフトール、1-アミノアントラセン、2-アミノアントラセン、9-アミノアントラセン等が挙げられる。

これらモノアミンは単独でまたは2種以上組み合わせて使用しても良い。モノアミンの添加量は、通常、主原料である前記特定のジアミンとテトラカルボン酸二無水物の合計100モルに対して、0.001~0.5モルの範囲である。好ましくは0.005~0.25モルの範囲である。

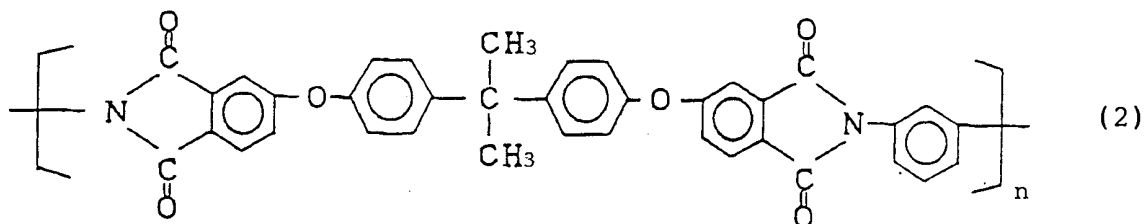
本発明の方法では前記熱可塑性ポリイミドの他に、芳香族ポリエーテルイミド、芳香族ポリアミドイミド、シリコン変性ポリイミド等も樹脂接着層として使用できる。

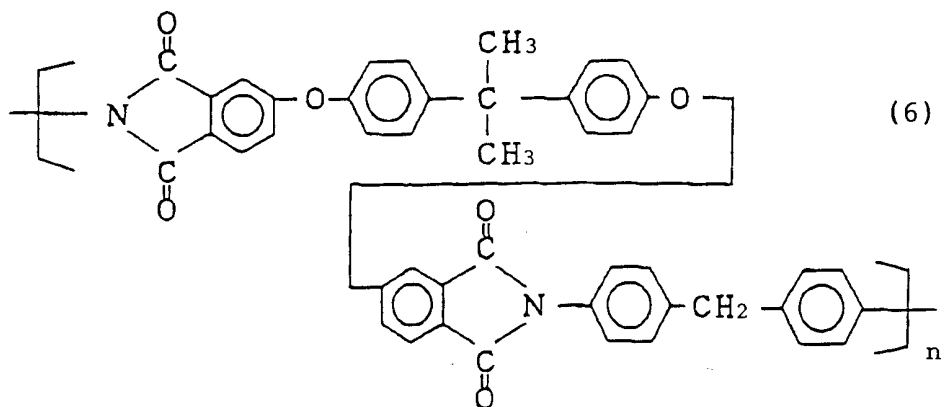
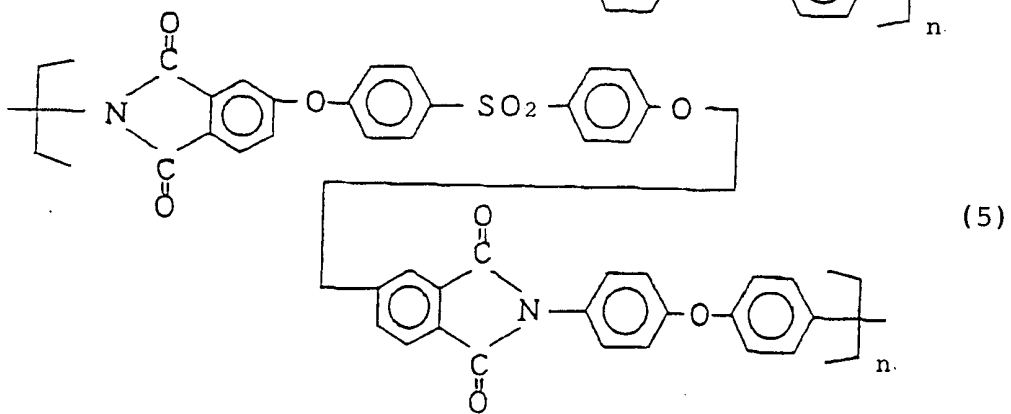
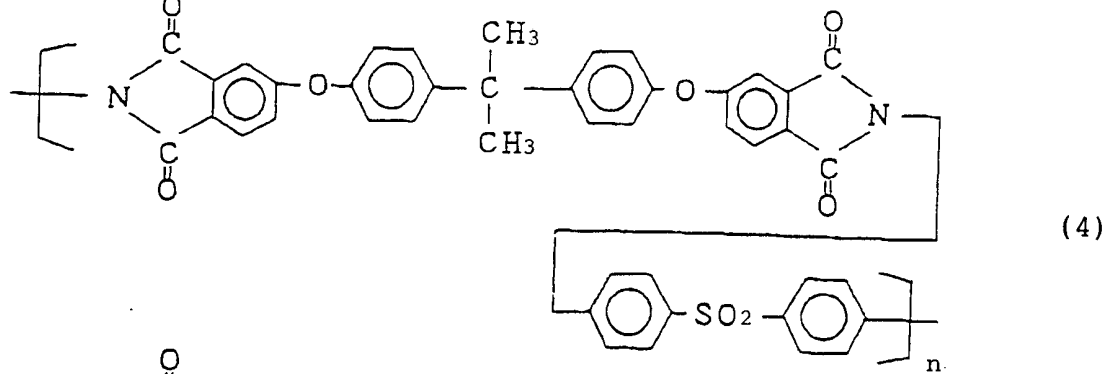
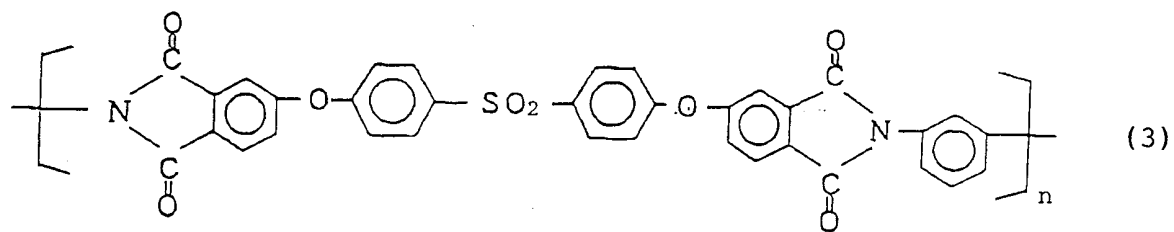
芳香族ポリエーテルイミドとしては、エーテル結合とイミド結合の二者を必須の結合単位として構成される重合体であり、下記一般式(1)

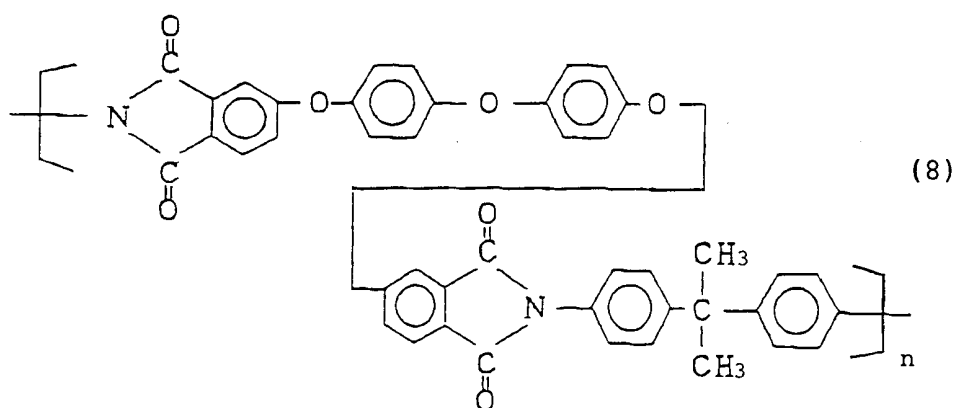
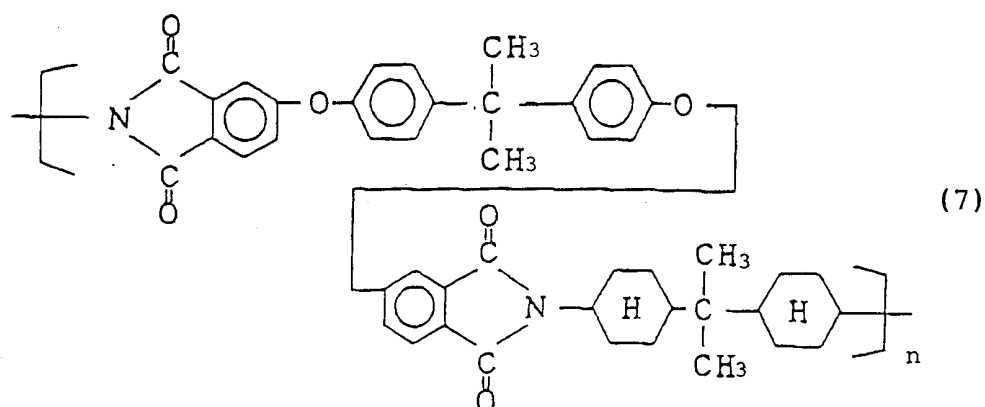


で表される繰り返しが主要単位となっている。

ここでZは三官能基のうち二官能基が隣接炭素に結合している三官能芳香族基、Arは二価の芳香族残基である。そして、具体例としては次の構造の(2)~(8)ものを列記することができる。

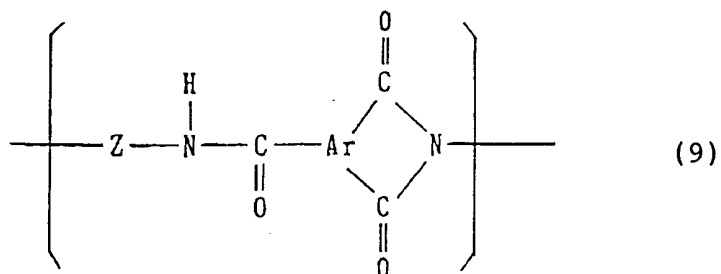






これらの芳香族ポリエーテルイミドは、米国GE社からウルテム-1000、ウルテム-4000、ウルテム-6000等の名称で市販されている。

芳香族ポリアミドイミドは主鎖のくり返し単位中にイミドとアミド結合をもつものであり、下記一般式(9)

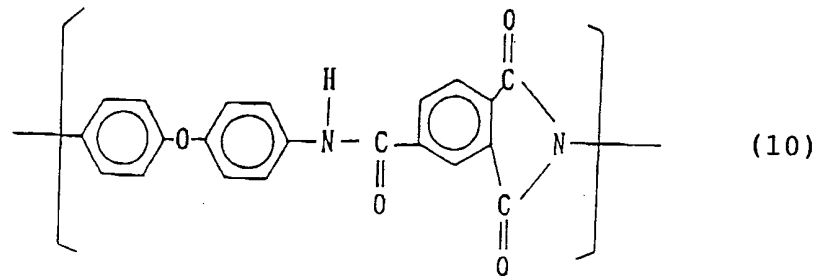


(式中Arは少なくとも一つのベンゼン環を含む3価の芳香族基、Z

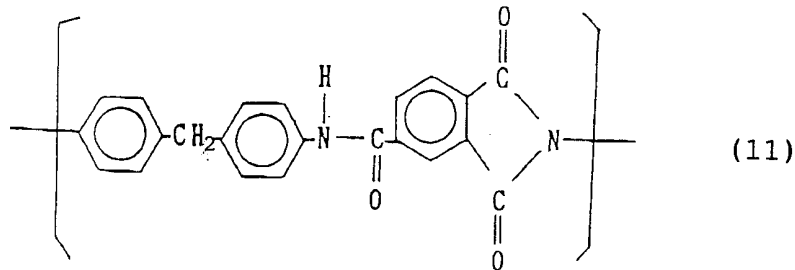


は2個の有機基を示す) で表される繰返し単位を有する芳香族ポリアミドイミドである。

本発明において使用される特に好ましい芳香族ポリアミドイミドは一般式(10)または(11)



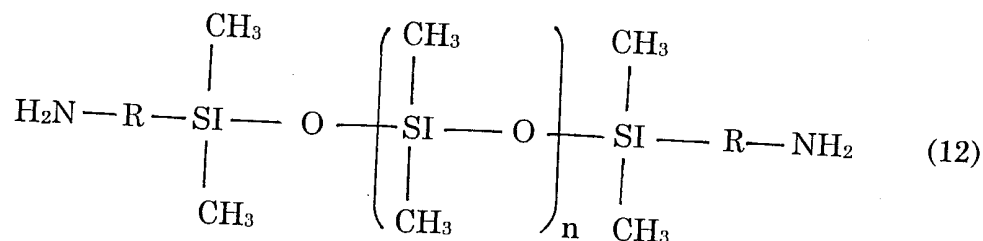
および式、



で表される繰返し単位を有する芳香族ポリアミドイミドである。

これらの芳香族ポリアミドイミドは、例えば米国アモコ社よりトロン(TORLON)の商品名で市販されている。

また、本発明の方法で用いられるシリコーン変性ポリイミドは、シリコーンジアミンを必須成分として含むジアミンとテトラカルボン酸二無水物との重縮合ポリマーである。代表的なシリコーンジアミンとしては一般式(12)



で表される $\alpha$ 、 $\omega$ -ビスアミノポリジメチルシロキサンが挙げられる。式(10)における $n$ の値は0~10が好ましい。 $n$ が4~10、またはこれに $n=0$ のモノマーを混合して用いることが特に好ましい。

全アミンに占めるシリコーンジアミンの量は50~5モル%であることが好ましい。シリコーンジアミンが5モル%以上では吸水性が低く好ましく、50モル%以下ではガラス転移温度が高くて耐熱性が良好で好ましい。シリコーン変性ポリイミドの製造に用いるシリコーンジアミン以外のジアミンとしては、熱可塑性ポリイミドの原料として用いるジアミンと同様のものが挙げられる。またテトラカルボン酸二無水物についても前記と同様のものが挙げられる。

次に、図1乃至図4に基づき、本形態のシート状基材繋ぎ装置の動作を説明する。まず、図1に示すように、加工中の先行するシート状基材4は、熱プレス機1を通して、不図示の搬送手段によって搬送される。先行するシート状基材4の最終部分と加工予定の後続の他のシート状基材6の先頭部分とは、熱プレス機1を通過する前に、樹脂接着層5を挟み込んだ状態で重ねられ、粘着テープ7によって仮接続される。粘着テープ7としては、市販されている両面粘着テープが挙げられる。尚、この段階では、熱プレス機1、基材固定装置2、およびアキュムレーター3は共に作動していない。

次いで、図2に示すように、シート状基材4の最終部分とシート状基材6の先頭部分とが仮接続された状態で搬送されていき、仮接続部分が熱プレス機1に達すると、熱プレス機1とアキュムレーター3の間に設置された基材固定装置2により、加工中のシート状基材4の一部が固定されて、仮接続部分が熱プレス機1内で静止する。このとき、加工中のシート状基材4の流れ速度を一定とする為にあキュムレーター3は作動している。

さらに、図3に示すように、熱プレス機1が作動して、樹脂接着層5

を挟持したシート状基材4の最終部分とシート状基材6の先頭部分が熱圧着される。

シート状基材4とシート状基材6の熱圧着による接続が完了した後、基材固定装置2による固定が解除され、図4に示すようにシート状基材4とシート状基材6の接続部分がアキュムレーター3に向かって移動する。

以上のようにして本形態の方法および装置は、シート状基材4とシート状基材6を安定的、効率的に連続して繋ぐことができる。そして、繋がったシート状基材4とシート状基材6は、次工程における塗工乾燥装置、熱処理装置等で加工される際に、200℃以上、550℃未満の高温に曝され、且つ、0.1～50kgf/cmの張力がかかる。このような厳しい条件下での加工に際しても、シート状基材の切断、蛇行、テンションの変動などの不具合が全く無く良好に加工することができる。

## 実施例

以下、本発明の実施の形態について実施例を挙げて詳しく説明する。

### 実施例1

実施例1では、温度が300℃である乾燥炉に連続的にシート状基材が搬送される搬送機を使用した。搬送中のシート状基材は銅箔であり、シート状基材の厚みは18μmであった。次に加工する予定のシート状基材はポリイミドフィルムであり、シート状基材の厚みは13μmであった。

搬送中の銅箔が搬送終了してポリイミドフィルムの搬送に移行する際に、両面粘着テープにより、銅箔の最終部とポリイミドフィルムの先頭部を重ね合わせ（重ね合わせ長さ300mm）、重ね合わせ部に樹脂接着層として熱可塑性ポリイミドフィルムを挟み込む操作を行なった。この熱可塑性ポリイミドフィルムは、ポリイミドフィルム〔カネカ（株）

製、商品名：アピカル、厚み； $25\mu\text{m}$ 〕の表裏両面に熱可塑性ポリイミド層（各厚み； $8\mu\text{m}$ ）を形成したフィルムを使用した。

前記熱可塑性ポリイミドは、3, 3', 4, 4'-ベンゾフェノンテトラカルビン酸二無水物と1, 3'-ビス（3-アミノフェノキシ）ベンゼンをジメチルアセトアセド中で室温で混合し、ポリアミック酸ワニスを出発原料として使用した。熱可塑性ポリイミド層の形成方法として、前記ポリイミドフィルムに前記ポリアミック酸を塗工、乾燥、イミド化反応を行ない形成した。このときの温度条件は $300^{\circ}\text{C}$ であった。

基材固定装置により重ね合わせ部を熱プレス機部に停止させた。両側から熱板で圧力 $0.1\text{kgf}/\text{cm}^2$ 、温度 $300^{\circ}\text{C}$ において、30秒間プレスを行なった。繋ぎ部を観察した結果、良好に接合されていた。熱板には凹凸を付け、プレスの圧力が凸部に集中するように工夫した。凸部の面積から計算した圧力は、 $1.0\text{kgf}/\text{cm}^2$ であった。

次いで、銅箔に引き続きポリイミドフィルムを $300^{\circ}\text{C}$ の乾燥炉に搬送しシート状基材を加工した。加工中のシート状基材にかかる張力は $5\text{kgf}/\text{m}$ であり、大きな引っ張り力が生じていた。加工中シート状基材の切断、蛇行、テンションの変動などの不具合は全く無く、良好に加工された。

## 実施例2

実施例2では、加工温度を $250^{\circ}\text{C}$ とし、実施例1と同様の装置を使用した。加工中のシート状基材と繋ぐシート状基材として、実施例1と同様の銅箔とポリイミドフィルムを使用した。熱可塑性ポリイミドフィルムとして、三井化学（株）製、商品名：レグルスを使用した。繋ぎ条件は、圧力 $0.1\text{kgf}/\text{cm}^2$ 、温度 $340^{\circ}\text{C}$ 、時間1分間で行なった。繋ぎ部は、良好に接合され、銅箔に引き続きポリイミドフィルムを炉内に搬送した。加工中のシート状基材にかかる温度は $250^{\circ}\text{C}$ であり、張力は $10\text{kgf}/\text{m}$ であった。シート状基材のはがれ、蛇行、テンシ

ヨンの変動などの不具合は全く無く良好に加工することができた。

### 発明の効果

本発明を適用し、接着層として樹脂接着層を用いてシート状基材同士を熱圧着により端部で繋ぐことにより、次工程におけるシート状基材の加工が、温度200℃以上、550℃未満、張力0.1～50kgf/cmという厳しい条件下でなされても、シート状基材の切断、はがれ、蛇行、テンションの変動などが無い、良好な加工を行なうことができる。また、本発明を適用してシート状基材同士を繋ぐことにより、安定的に、且つ効率の良い基材同士の繋ぎが可能となり、しかも、常時一定の搬送速度で次工程にシート状基材を搬送することができる。

### 図面の簡単な説明

#### 図1

本発明のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の実現に使用する装置の一形態において、シート状基材同士の間には樹脂接着層（熱可塑性ポリイミドフィルム）を挟み込んだ状態を示す図である。

#### 図2

本発明のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の実現に使用する装置の一形態において、シート状基材同士の接続部を熱プレス機上で静止させる状態を示す図である。

#### 図3

本発明のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の実現に使用する装置の一形態において、熱プレス機を作動しシート状基材同士を熱圧着させる状態を示す図である。

#### 図4

本発明のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の実現に使用する装

置の一形態において、シート状基材同士の繋ぎが完了した状態を示す図である。

#### 符号の説明

- 1 熱プレス機
- 2 基材固定装置
- 3 アキュームレーター
- 4 加工中のシート状基材
- 5 樹脂接着層
- 6 加工予定のシート状基材
- 7 粘着テープ

## 請求の範囲

1. 先行するシート状基材と後続の他のシート状基材とをそれらの長さ方向に搬送しながら端部同士で繋ぐ連続基材の製造方法であって、
  - (1) 先行するシート状基材4の最終部分と、後続の他のシート状基材6の先頭部分の間に樹脂接着層5を配設して仮接続する工程、
  - (2) 前記仮接続部が熱プレス機1に到達するまで先行するシート状基材4及び後続の他のシート状基材6を搬送した時点で、基材固定装置2を作動せしめて先行するシート状基材4の一部を固定して仮接続部を熱プレス機1内に静止せしめると共に、アキュムレーター3を作動せしめて先行するシート状基材4の下流側の搬送速度を常時一定に制御する工程、
  - (3) 熱プレス機1を作動せしめて前記仮接続部を熱圧着して先行するシート状基材4と後続の他のシート状基材6とを繋ぐ工程、
  - (4) 基材固定装置2による固定を解除して、繋がれたシート状基材をアキュムレーター3を介して下流側へ搬送する工程、の各工程を含むシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。
2. 前記熱圧着を、温度200℃以上、550℃未満、圧力0.001～50kgf/cm<sup>2</sup>において実施することを特徴とする請求項1記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。
3. 先行するシート状基材4の最終部分、及び後続の他のシート状基材6の先頭部分の長さが、それぞれ10～1000mmであることを特徴とする請求項1記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。
4. 先行するシート状基材4、及び、後続の他のシート状基材6が、厚み5～500μmの金属箔または耐熱性樹脂フィルムであることを特

徴とする請求項1記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。

5. 樹脂接着層が熱可塑性ポリイミド、芳香族ポリエーテルイミド、芳香族ポリアミドイミド、シリコーン変性ポリイミドからなる群から選ばれた熱可塑性樹脂のフィルムである請求項1記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。

6. 樹脂接着層は熱可塑性ポリイミドフィルムである請求項5記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。

7. 樹脂接着層の厚みが0.1～50 $\mu$ mであることを特徴とする請求項1記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。

8. 繋がれたシート状基材が、温度が200℃以上、550℃未満、張力が0.1～50kgf/cmの範囲で連続加工されることを特徴とする請求項1記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法。

9. 請求項1～8のいずれか1項記載のシート状基材を繋ぐ連続基材の製造方法の実施に使用する連続基材の製造装置であって、

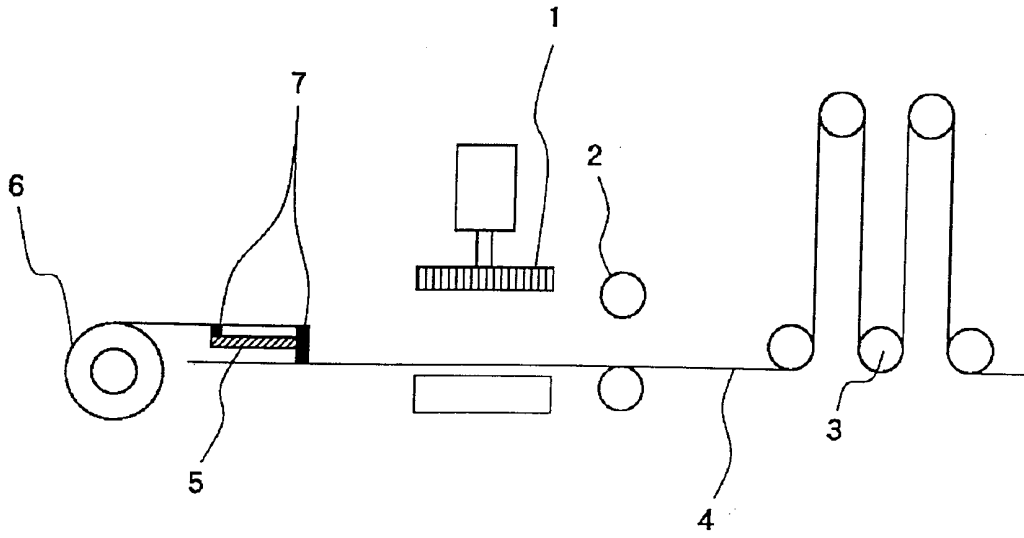
搬送手段により先行するシート状基材の最終部分に後続する他のシート状基材の先頭部分を接着層を介して重ねて仮接続した仮接続部分を熱圧着で繋ぐための熱プレス機と、

前記熱プレス機に前記仮接続部分を静止させるため前記先行するシート状基材の一部を固定する基材固定装置と、

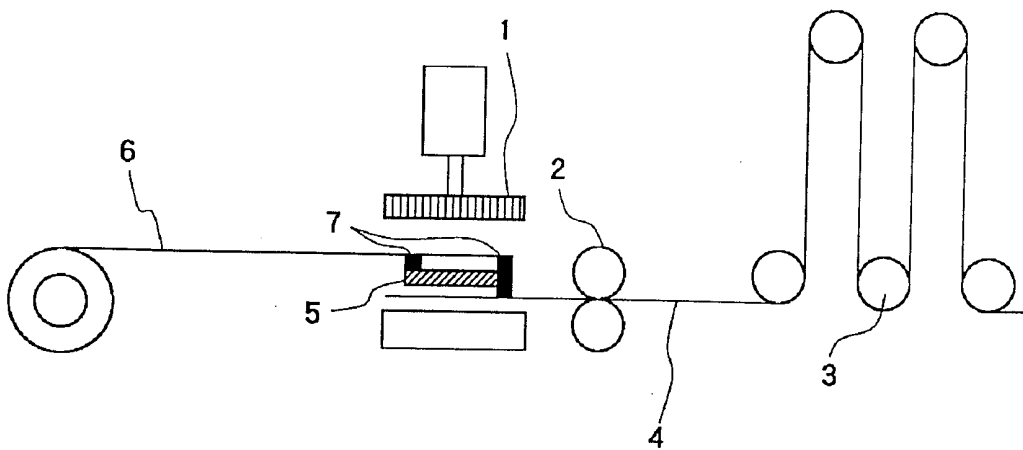
前記基材固定装置より下流側の前記先行する基材の移動速度を常時一定に保つためのアキュムレーターと、  
からなることを特徴とするシート状基材を繋ぐ連続基材の製造装置。



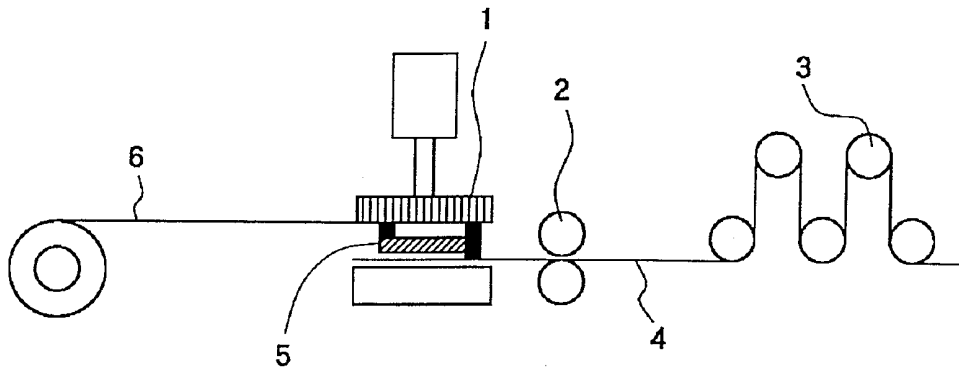
第1図



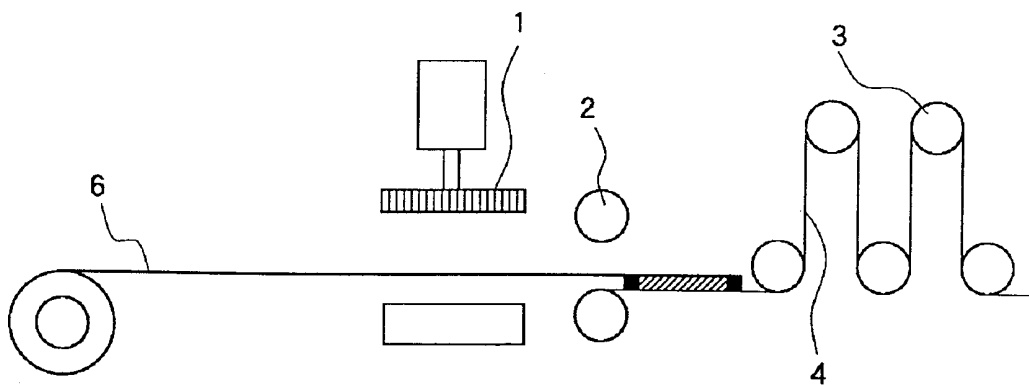
第2図



第3図



第4図



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.  
PCT/JP98/02472

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int.Cl <sup>6</sup> B65H19/18				
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>				
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>6</sup> B65H19/18, 21/00, B65B41/12				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Kokoku Koho 1926-1998    Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1998 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1998				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)				
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>				
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
Y	JP, 4-106060, A (Shikoku Kakoki K.K.), 8 April, 1992 (08. 04. 92) & EP, 472245, A1	1-9		
Y	JP, 62-135584, A (Toyota Motor Corp.), 18 June, 1987 (18. 06. 87) (Family: none)	1-9		
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.				
<table style="width:100%; border: none;"> <tr> <td style="width:50%; border: none; vertical-align: top;">                     * Special categories of cited documents:                      "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance                      "E" earlier document but published on or after the international filing date                      "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)                      "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means                      "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed                 </td> <td style="width:50%; border: none; vertical-align: top;">                     "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention                      "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone                      "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art                      "&amp;" document member of the same patent family                 </td> </tr> </table>			* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family			
Date of the actual completion of the international search 1 September, 1998 (01. 09. 98)		Date of mailing of the international search report 8 September, 1998 (08. 09. 98)		
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer		
Facsimile No.		Telephone No.		

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int, C1 <sup>6</sup> B65H19/18		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int, C1 <sup>6</sup> B65H19/18, 21/00, B65B41/12		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
日本国実用新案公告公報 1926-1998年 日本国公開実用新案公報 1971-1998年 日本国登録実用新案公報 1994-1998年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 4-106060, A (四国化工機株式会社), 8. 4月. 1992 (08. 04. 92) & E P, 472245, A1	1-9
Y	J P, 62-135584, A (トヨタ自動車株式会社), 18. 6月. 1987 (18. 06. 87) (ファミリーなし)	1-9
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 01. 09. 98	国際調査報告の発送日 <b>08.09.98</b>	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 菅野 あつ子	3 F 7030 印
電話番号 03-3581-1101 内線 3352		