

ポリイミドフィルム用ポリアミド接着剤・改質剤の開発

日本化薬株式会社 機能化学品開発研究所

○石川和紀、内田誠、植原隆治

【緒言】

従来、フレキシブルプリント配線板用基板フィルムはポリイミド、ポリエステルなどからなる絶縁体と、銅箔等の導体とを接着剤を介して貼り合わせて製造している。しかし、通常は接着剤を使用すると耐熱性、難燃性等が低下することや、反応性の官能基等を持たないフィルムに対し、接着性が充分でないといった問題があり、現在フレキシブルプリント配線板用基板フィルムの接着は非常に困難な問題である。このような問題を解決するために、ポリイミド系樹脂層を導体上に直接形成するフレキシブルプリント基板を製造する方法が検討されている。こうした基板フィルムは、樹脂層と導体との接着に優れているものの、基板フィルムの加工や基板フィルムどうしの接着に関しては、その表面に反応性の官能基等を持たないため、やはり困難である。

本発表では、これらフレキシブルプリント配線板用基板周辺において利用価値が高い、接着特性に優れたポリイミドフィルム用ポリアミド接着剤・改質剤について報告する。

【実験】

実験1：接着剤 (KAYAFLEX-BP) 単独の接着性試験

市販のポリイミドフィルム (宇部興産製ユーピレックス 25S ; 厚さ 25 μ m) 上に、ポリイミドフィルム用ポリアミド含有接着剤 (日本化薬製 : 以下 KAYAFLEX-BP と略す) を厚さ 20 μ m で塗布、130 $^{\circ}$ C で 10 分間乾燥した。さらにこれらを 190 $^{\circ}$ C で 1 時間、30Kg/cm² の加熱プレスにて、ポリイミドフィルム同士を接着した。

図1に接着剤硬化物のモルフォロジーを示す。ナノスケールの海島構造を持つナノ相分離構造を特徴としている。

実験 2 : エポキシ系接着剤と改質剤の併用による接着性評価

ガラス基板上にポリイミド前駆体ワニス(日本化薬製)を厚さ 100 μm で塗布、130 $^{\circ}\text{C}$ で 10 分間乾燥した。その上に、フェノール性水酸基含有ポリアミドを含むポリイミド表面用改質剤(日本化薬製)を 20 μm で塗布、130 $^{\circ}\text{C}$ で 10 分間乾燥した。さらにこれを窒素気流下 350 $^{\circ}\text{C}$ で 2 時間加熱処理し、表面が活性なポリイミドフィルムを作製した。このフィルムに一般的なエポキシ系接着剤(日本化薬製)を厚さ 20 μm で塗布、130 $^{\circ}\text{C}$ で 10 分間乾燥し、これらを 190 $^{\circ}\text{C}$ で 1 時間、30Kg/cm² の加熱プレスにて、ポリイミドフィルム同士を接着した。

実験 3 : KAYAFLEX-BP と改質剤の併用による接着性評価

ガラス基板上にポリイミド前駆体ワニス(日本化薬製)を厚さ 100 μm で塗布、130 $^{\circ}\text{C}$ で 10 分間乾燥した。その上に、改質剤を 20 μm で塗布、130 $^{\circ}\text{C}$ で 10 分間乾燥した。さらにこれを窒素気流下 350 $^{\circ}\text{C}$ で 2 時間加熱処理し、表面が活性なポリイミドフィルムを作製した。このフィルムに KAYAFLEX-BP を厚さ 20 μm で塗布、130 $^{\circ}\text{C}$ で 10 分間乾燥した。さらにこれらを 190 $^{\circ}\text{C}$ で 1 時間、30Kg/cm² の加熱プレスにて、ポリイミドフィルム同士を接着した。

実験 4 : エポキシ系接着剤単独による接着性評価

ユーピレックス 25S 上にエポキシ系接着剤を厚さ 20 μm で塗布、130 $^{\circ}\text{C}$ で 10 分間乾燥し、これらを 190 $^{\circ}\text{C}$ で 1 時間、30Kg/cm² の加熱プレスにて、ポリイミドフィルム同士を接着した。

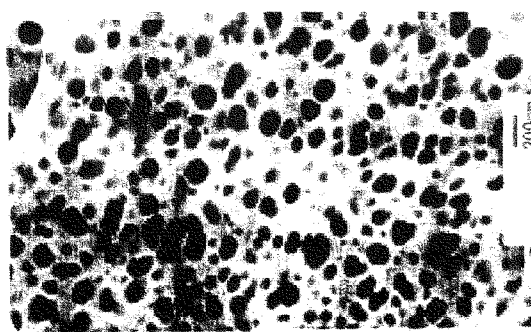


図 1. 接着剤硬化物のモルフォロジー

【結果と考察】

各種接着剤および改質剤の効果について評価した結果を表1に示す。

表1. ポリイミドフィルムの接着特性

	実験1	実験2	実験3	実験4
接着剤	KAYAFLEX BP	エポキシ系	KAYAFLEX BP	エポキシ系
PI フィルム	ユビレックス 25S	日本化薬製	日本化薬製	ユビレックス 25S
改質剤	無	使用	使用	無
接着強度 kg/cm	0.7	1.2	>1.6	0.4
剥離界面	PI/接着剤	PI/接着剤	PI 凝集破壊	PI/接着剤

実験1、4の結果より、市販のポリイミドフィルム同士の接着において、KAYAFLEX-BPを接着剤に用いた場合、接着強度は0.7kg/cmであり、一般的なエポキシ系接着剤を用いた場合の0.4kg/cmに対し、1.7倍以上向上した。これは含有するポリアミドが柔軟であり、かつポリイミドに対し相互作用が強いためと考えられる。

実験2、4の結果より、表面を改質したフィルムは、一般的なエポキシ系接着剤を用いても接着強度が1.2kg/cmであり、改質を施していない場合の接着強度(0.4kg/cm)に対し、3倍程度向上した。これは改質剤中のフェノール性水酸基がフィルム表面に存在することで、接着剤であるエポキシと反応したためと考えられる。実験3の結果より、表面を改質したポリイミドフィルム同士をKAYAFLEX-BPで接着した場合、接着部で剥離することはなく、フィルムが凝集破壊を起こした。このため接着強度1.6kg/cm以上で測定不能となった。これは、接着剤と改質剤の双方の効果が発現したためと考えられる。

【まとめ】

緒言で述べたように、ポリイミドフィルムの利用価値は高い。しかしながら、このフィルム同士は接着しにくいという問題点があった。そこで、当社では次の2つの観点からその問題点を解決していく検討を行った。

- ① ポリイミドフィルム表面にも接着する接着剤の開発
- ② ポリイミドフィルム表面を接着しやすくする改質剤の開発

検討の結果、

- i) 柔軟で接着性に優れたポリイミドフィルム用のポリアミド含有接着剤を開発した。
- ii) ポリイミドフィルムに対し、ポリアミド改質剤を用いることで、エポキシ系接着剤単独でも接着強度が飛躍的に向上することが分かった。
- iii) ポリイミドフィルムに対し、ポリアミド含有接着剤と改質剤を併用することで、非常に高い接着強度となることが分かった。

以上のように本報告の材料は、これらの高度情報化社会を支える各種機器の基盤材料として、非常に価値ある性能が見出された。今後とも、本材料の高性能化に努めていきたい。

Development of the adhesive containing polyamide and the modifying polyamide filler for polyimide films.

Kazunori Ishikawa, Makoto Uchida, Seiichi Hayashi, Ryuji Uehara, Hiroo Koyanagi

Nippon Kayaku Co.,Ltd. Functional Chemicals Research Labs.

Tel:03-3598-5099 Fax:03-3598-5431

kazunori.ishikawa@nipponkayaku.co.jp