

明 細 書

発明の名称：

フィルムラミネート金属板およびその製造方法、ならびにフレキシブルエレクトロニクス用基板および有機ＥＬ用基板

技術分野

[0001] 本発明は、フィルムラミネート金属板およびその製造方法、ならびにフレキシブルエレクトロニクス用基板および有機ＥＬ用基板に関する。

背景技術

[0002] フレキシブルエレクトロニクスとは、フレキシブル性のある材料を用いて曲げられることを特徴とした電子回路による技術の総称である。有機材料をベースとした有機エレクトロニクスや、塗布や印刷により低コスト化が実現されている。さらに、これらを簡便にデバイス作製可能なプリンテッドエレクトロニクス等と組み合わせることにより、様々な機能的な製品を創出することができる。フレキシブルエレクトロニクスには、有機ＥＬ（*Electro-Luminescence*）、有機薄膜太陽電池、有機トランジスタ、電子ペーパー、フレキシブル電池、各種フレキシブルセンサー等の様々な技術がある。

[0003] 従来、有機ＥＬ等のフレキシブルエレクトロニクス用の基板には、平面性、耐熱性、及びガスバリア性に優れるガラスやフレキシブル性に優れる樹脂フィルム等が主に用いられてきた。しかしながら、フレキシブルエレクトロニクス用基板として最も重要である、平滑性、耐熱性、ガスバリア性、及びフレキシブル性を全て満たすのは容易ではない。そのため、例えばガラスを薄膜、高強度化してフレキシブル性を持たせたり、樹脂フィルムの表面にガスバリア層を設けてガスバリア性を持たせたりする工夫がなされている。しかしながら、性能が不十分であったり、高コストであったりと課題も多い。そこで、これらの問題を解決するため、金属板に絶縁膜を被覆させる方法が提案され始めている。

- [0004] 金属板に絶縁膜を被覆させる方法が、特許文献1～3に開示されている。
- 特許文献1には、AlおよびSi含有量を制御した鋼材に熱酸化により、 Al_2O_3 及び SiO_2 の少なくとも一方を含有する絶縁性皮膜と、シリカ系無機有機ハイブリッド材料から形成される絶縁性皮膜とを形成する方法が提案されている。また、特許文献2には、熱硬化性樹脂を含み、固体顔料の体積分率が20%以下である皮膜形成用組成物を焼付けすることで金属板に絶縁膜を形成する方法が提案されている。さらに、特許文献3には、接着剤を介して固体顔料の体積分率が20%以下である熱可塑性樹脂フィルムを積層した金属板に関する提案もなされている。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：国際公開第2016/001971号公報
- 特許文献2：特開2014-208479号公報
- 特許文献3：特開2015-195315号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] しかしながら、特許文献1に記載の方法は、有機溶剤を使用したり、高温の熱処理を必要としたりするために環境負荷が高い。加えて、絶縁性皮膜が無機材料を主成分とする薄い皮膜であるためピンホールによる短絡が発生したり、フレキシブル性に劣ったりするものであった。また、特許文献2に記載の方法も有機溶剤を使用したり、熱処理による乾燥や固化を必要としたりするプロセスがあった。さらに、特許文献3に記載の方法では、接着剤の塗布にコストが掛かるだけでなく、接着剤の固化に時間が掛かるために生産性にも劣るプロセスがあった。また、熱可塑性フィルム表面の急峻な凹凸に起因する絶縁不良が発生し十分な絶縁性がなかった。
- [0007] 本発明は、上記課題に鑑みてなされたものである。その目的は、平滑性、耐熱性、フレキシブル性、及びガスバリア性を満足するだけでなく、環境負

荷が低く生産性にも優れるフィルムラミネート金属板およびその製造方法、ならびにフレキシブルエレクトロニクス用基板および有機EL用基板を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は以上の知見に基づきなされたものであり、その要旨は次のとおりである。

[1] 少なくとも片面が樹脂フィルムで被覆されているフィルムラミネート金属板であって、前記樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a が $0.030\mu m$ 以下であり、前記樹脂フィルム表面の最大山高さ S_p が $0.30\mu m$ 以下であり、前記樹脂フィルム表面の最大谷深さ S_v が $1.0\mu m$ 以下である、フィルムラミネート金属板。

[2] 前記樹脂フィルム表面のクルトシス S_{ku} が3.0以下である、[1]に記載のフィルムラミネート金属板。

[3] 前記樹脂フィルムの灰分が $1000ppm$ 以下である、[1]又は[2]に記載のフィルムラミネート金属板。

[4] 前記樹脂フィルムの静摩擦係数 μ_s が0.10以上1.0以下である、[1]～[3]のいずれかに記載のフィルムラミネート金属板。

[5] 前記樹脂フィルムのDSC測定から得られた冷結晶化熱量 ΔH_c と融解熱量 ΔH_m の比($\Delta H_c/\Delta H_m$)が0.30以下である、[1]～[4]のいずれかに記載のフィルムラミネート金属板。

[6] 前記樹脂フィルムのガラス転移温度 T_g が $120^\circ C$ 以上 $200^\circ C$ 以下である、[1]～[5]のいずれかに記載のフィルムラミネート金属板。

[7] 前記樹脂フィルムの厚みが $10\mu m$ 以上 $100\mu m$ 以下である、[1]～[6]のいずれかに記載のフィルムラミネート金属板。

[8] 前記樹脂フィルムの主成分がポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂のいずれかである、[1]～[7]のいずれかに記載のフィルムラミネート金属板。

[9] [1]～[8]のいずれか記載のフィルムラミネート金属板の製造方

法であって、前記樹脂フィルムを熱圧着により金属板に被覆する、フィルムラミネート金属板の製造方法。

[10] [1] ~ [8] のいずれかに記載のフィルムラミネート金属板を用いる、フレキシブルエレクトロニクス用基板。

[11] [1] ~ [8] のいずれかに記載のフィルムラミネート金属板を用いる、有機EL用基板。

発明の効果

- [0009] 本発明によれば、フレキシブルエレクトロニクス用基板として必要な平滑性、耐熱性、フレキシブル性、及びガスバリア性を満足するだけでなく、環境負荷が低く生産性にも優れるフィルムラミネート金属板を提供することができる。したがって、本発明のフィルムラミネート金属板を、フレキシブルエレクトロニクス用基板および有機EL用基板として用いることができる。

発明を実施するための形態

- [0010] 以下、本発明について説明する。
- [0011] 本発明に係るフィルムラミネート金属板は、少なくとも片面が樹脂フィルムで被覆されている。金属板は、例えば有機ELとして必要な、フレキシブル性とガスバリア性の両立に優れる。加えて、少なくとも片面に樹脂フィルムを被覆することで樹脂フィルムの持つ平滑性と電気絶縁性を付与できる。また、樹脂フィルムを金属板と貼り合わせることで加熱されてもフィルムの寸法変化が抑制され、樹脂フィルム単体よりも耐熱性に優れる。
- [0012] 本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a が $0.030\ \mu\text{m}$ 以下である。樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a は、 $0.025\ \mu\text{m}$ 以下であるとより好ましく、 $0.020\ \mu\text{m}$ 以下であるとさらに好ましく、 $0.015\ \mu\text{m}$ 以下であると特に好ましい。算術平均粗さ S_a が $0.030\ \mu\text{m}$ を超える場合、例えば有機EL用基板として用いた場合、電圧を印加した際に微細なショートが発生しリーク電流が流れ発光効率が低下する場合がある。また、算術平均粗さ S_a は0に近いほど上記の観点で理想的ではあるが、実際は $0.001\ \mu\text{m}$ が下限である。樹脂フィ

ルム表面の算術平均粗さ S_a を上記範囲内とするには、樹脂フィルムをラミネートする際に樹脂フィルムの表面形状を悪化させないように圧着させることが重要である。そのためには、後述するように滑剤を含まない、もしくは少量に微分散させた樹脂フィルムを使用すればよい。また、搬送中の擦り傷や熱圧着ロールの転写痕等によっても算術平均粗さ S_a は悪化するため、樹脂フィルムの金属板と密着しない面に予め保護フィルムを貼合しておくことが好ましい。

[0013] また、本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルム表面の最大山高さ S_p が $0.30\ \mu\text{m}$ 以下である。樹脂フィルム表面の最大山高さ S_p は、 $0.25\ \mu\text{m}$ 以下であるとより好ましく、 $0.20\ \mu\text{m}$ 以下であるとさらに好ましく、 $0.15\ \mu\text{m}$ 以下であると特に好ましい。樹脂フィルム表面の最大山高さ S_p が $0.30\ \mu\text{m}$ を超える場合、例えば有機EL用基板として用いた場合、部分的に発光しないダークスポットと呼ばれる未発光欠陥が発生する場合がある。また、最大山高さ S_p は0に近いほど上記の観点で理想的ではあるが、実際は $0.001\ \mu\text{m}$ が下限である。樹脂フィルム表面の最大山高さ S_p を上記範囲内とするには、樹脂フィルムをラミネートする際に樹脂フィルムの表面形状を悪化させないように圧着させることが重要である。そのためには、後述するように滑剤を含まない、もしくは少量に微分散させた樹脂フィルムを使用すればよい。また、搬送中の異物付着や熱圧着ラミネート時にフィルムと金属板の間に気泡が混入することによっても最大山高さ S_p は悪化する。そのため、樹脂フィルムの金属板と密着しない面に予め保護フィルムを貼合したり、気泡の混入を抑制するラミネート条件を制御したりすることが好ましい。

[0014] また、本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルム表面の最大谷深さ S_v が $1.0\ \mu\text{m}$ 以下である。樹脂フィルム表面の最大谷深さ S_v は、 $0.50\ \mu\text{m}$ 以下であるとより好ましく、 $0.30\ \mu\text{m}$ 以下であるとさらに好ましく、 $0.15\ \mu\text{m}$ 以下であると特に好ましい。樹脂フィルム表面の最大谷深さ S_v が $1.0\ \mu\text{m}$ を超える場合、例えば有機EL用基板とし

て用いた場合、ショートが発生し全く発光しない場合がある。また、最大谷深さ S_v は 0 に近いほど上記の観点で理想的ではあるが、実質は 0.001 μm が下限である。樹脂フィルム表面の S_v を上記範囲内とするためには、表面平滑性の高い樹脂フィルムを使用し、ラミネートする際に樹脂フィルムの表面形状を悪化させないことが重要である。また、搬送中の擦り傷や熱圧着ロールの転写痕、ラミネート時の過圧着によっても S_v は悪化する。そのため、樹脂フィルムの金属板と接触しない面に予め保護フィルムを貼合したり、ラミネート温度や加圧面圧を制御したりすることが好ましい。

[0015] 本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルム表面のクルトシス S_{ku} が 3.0 以下であることが好ましい。樹脂フィルム表面のクルトシス S_{ku} は、2.8 以下であるとより好ましく、2.6 以下であるとさらに好ましく、2.5 以下であると特に好ましい。樹脂フィルム表面のクルトシス S_{ku} が 3.0 以下であれば、例えば有機 EL 用基板として用いた場合、リーク電流による発光効率の低下やダークスポットの発生がより抑えられる。また、クルトシス S_{ku} は 0 に近いほど上記の観点で理想的ではあるが、実際は 0.001 が下限である。樹脂フィルム表面のクルトシス S_{ku} を上記の範囲内とするには樹脂フィルムをラミネートする際に樹脂フィルムの表面形状を悪化させないように圧着させることが重要である。そのためには、後述するように滑剤を含まない、もしくは少量に微分散させた樹脂フィルムを使用すればよい。また、熱圧着ロール表面形状の転写によってもクルトシス S_{ku} は悪化するため、樹脂フィルムの金属板と接触しない面に予め保護フィルムを貼合しておくことが好ましい。

[0016] 本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルムの灰分が 1000 ppm（質量基準、以下同じ）以下であることが好ましい。樹脂フィルムの灰分は、800 ppm 以下であるとより好ましく、600 ppm 以下であるとさらに好ましく、500 ppm 以下であると特に好ましい。樹脂フィルムの灰分が 1000 ppm 以下であれば、例えば有機 EL 用基板として用いた場合、リーク電流による発光効率の低下やダークスポットの発生がより

抑えられる。樹脂フィルムの灰分を上記の範囲内とするためには、後述するように滑剤を含まない、もしくは少量分散させた樹脂フィルムを使用したり、ラミネートする際に接着剤を用いず熱圧着ラミネートしたりすることが好ましい。

[0017] 本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルムの静摩擦係数 μ_s が0.10以上1.0以下であることが好ましい。樹脂フィルムの静摩擦係数 μ_s の下限は、0.30以上であるとより好ましく、0.40以上であるとさらに好ましく、0.50以上であると特に好ましい。また、樹脂フィルムの静摩擦係数 μ_s の上限は、0.95以下であるとより好ましく、0.90以下であるとさらに好ましく、0.85以下であると特に好ましい。樹脂フィルムの静摩擦係数 μ_s が1.0以下であれば、例えば有機EL用基板として用いた場合、製造工程におけるロール上での疵発生がより抑制される。一方、樹脂フィルムの静摩擦係数 μ_s が0.10以上であれば、例えば有機EL用基板として用いた場合、製造工程におけるロール上での蛇行がより抑制される。樹脂フィルムの μ_s を上記範囲内とするためには、後述するように滑剤を含まない、もしくは少量分散させた樹脂フィルムを使用することが好ましい。また、ポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂のいずれかから成るフィルムを使用することが好ましい。

[0018] 本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルムのDSC (Differential Scanning Calorimeter) 測定から得られた冷結晶化熱量 ΔH_c と融解熱量 ΔH_m の比($\Delta H_c / \Delta H_m$)が0.30以下であることが好ましい。

[0019] ここでいうDSCとは、示差走査熱量測定のことである。樹脂フィルムの $\Delta H_c / \Delta H_m$ は、0.25以下であるとより好ましく、0.20以下であるとさらに好ましく、0.15以下であると特に好ましい。樹脂フィルムの $\Delta H_c / \Delta H_m$ は小さいほど好ましいが、冷結晶化しない状態、すなわち ΔH_c が0 J/gとなる場合、 $\Delta H_c / \Delta H_m$ は0となり実質的にこれが下限である。樹脂フィルムが冷結晶しないというのは、例えば結晶性熱可塑性樹

脂から成る樹脂フィルムの場合、十分に結晶化が進行していることを示しており、一度溶融させない限り熱によって結晶化が進まない状態のことである。一方、結晶性熱可塑性樹脂が冷結晶化する場合というのは、樹脂フィルム内に多くの非晶が存在しており、その非晶が熱により結晶化することを示している。なお、結晶性熱可塑性樹脂を金属板と熱圧着ラミネートする場合、一般的には熱により樹脂フィルム表面を溶融させて金属板と接着させるため、溶融した樹脂が冷却された際に非晶になる。しかしながら、熱圧着ラミネート時に結晶性熱可塑性樹脂フィルム表面が溶融しすぎるとフィルムラミネート金属板の表面形状が悪化してしまう場合がある。そのため、熱圧着ラミネート時に結晶性熱可塑性樹脂フィルムが溶融しすぎないように、即ちフィルムラミネート金属板の樹脂フィルムが冷結晶化しないようにラミネート条件を制御することが、平滑性の高いフィルムラミネート金属板とする点で重要である。つまり、樹脂フィルムの $\Delta H_c / \Delta H_m$ が小さいということは、熱圧着ラミネート時に結晶性熱可塑性樹脂フィルムが溶融しすぎないようにラミネートされていることを意味するため、 $\Delta H_c / \Delta H_m$ が0.30以下であれば平滑性の高いフィルムラミネート金属板とすることができ好ましい。また、樹脂フィルムの $\Delta H_c / \Delta H_m$ の上限は1だが、これは、結晶性熱可塑性樹脂フィルムを熱圧着ラミネートした際に完全非晶化していることを意味している。なお、非晶性樹脂の場合は、冷結晶化は起こらない。

本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルムのガラス転移温度 T_g は、120℃以上200℃以下であることが好ましい。樹脂フィルムのガラス転移温度 T_g の下限は、130℃以上であるとより好ましく、140℃以上であるとさらに好ましく、150℃以上であると特に好ましい。樹脂フィルムのガラス転位温度 T_g の上限は、195℃以下であるとより好ましく、190℃以下であるとさらに好ましく、185℃以下であると特に好ましい。樹脂フィルムのガラス転移温度 T_g が200℃以下であれば、熱圧着ラミネートをより確実に行うことができる。一方、樹脂フィルムのガラス転移温度 T_g が120℃以上であれば、例えば有機EL用基板として用いた

場合、製造工程に受ける熱による樹脂フィルム表面の変形がより小さく抑えられる。樹脂フィルムの T_g を上記の範囲内とするためには、後述するようにポリエステル樹脂の二軸延伸フィルムを使用し、結晶性を損なうことなく熱圧着ラミネートすることが好ましい。また、アクリル樹脂やポリカーボネート樹脂といった高いガラス転移温度を有する非結晶性樹脂から成るフィルムを使用することが好ましい。

[0020] 本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルムの厚みが $10\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。樹脂フィルムの厚みの下限は、 $15\ \mu\text{m}$ 以上であるとより好ましく、 $20\ \mu\text{m}$ 以上であるとさらに好ましく、 $25\ \mu\text{m}$ 以上であると特に好ましい。樹脂フィルムの厚みの上限は、 $80\ \mu\text{m}$ 以下であるとより好ましく、 $60\ \mu\text{m}$ 以下であるとさらに好ましく、 $50\ \mu\text{m}$ 以下であると特に好ましい。樹脂フィルムの厚みが $10\ \mu\text{m}$ 以上であれば、金属板表面凹凸の影響を受けにくく、樹脂フィルムの表面がより平滑なフィルムラミネート金属板を得ることができる。樹脂フィルムの厚みが $100\ \mu\text{m}$ 以下であれば、樹脂フィルムに含まれる水分に起因するダークスポットや、有機ELの寿命に対する影響がより小さいフィルムラミネート金属板を得ることができる。

[0021] 本発明に係るフィルムラミネート金属板では、樹脂フィルムの主成分がポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂のいずれかであることが好ましい。なお、「主成分」とは、特定の成分が全成分中に占める割合が80質量%以上であることを意味し、より好ましくは85質量%以上、さらに好ましくは90質量%以上、特に好ましくは95質量%以上である。100質量%であってもよい。

[0022] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられるポリエステル樹脂は、芳香族ジカルボン酸又は脂肪族ジカルボン酸とジオールとを主成分とする単量体の重合により得られる樹脂、若しくはこれらの混合物であることが好ましい。

[0023] ここで、芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、フ

タル酸、ナフタレンジカルボン酸、ジフェニルジカルボン酸、ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジフェノキシエタンジカルボン酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸等を例示できる。また、脂肪族ジカルボン酸としては、シュウ酸、コハク酸、アジピン酸、スベリン酸、セバシン酸、ダイマー酸、マレイン酸、フマル酸、ドデカンジオン酸、シクロヘキサンジカルボン酸とそれらのエステル誘導体等を例示できる。これらの酸成分は1種類のみを用いてもよいが、2種類以上を併用してもよく、さらには、p-オキシ安息香酸等のオキシカルボン酸等を共重合してもよい。

[0024] また、ジオール成分としては、エチレングリコール、プロパングリコール、ブタングリコール、ペンタングリコール、ヘキサングリコール、ネオペンチルグリコール、シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリアルキレングリコール、2, 2-ビス(4-ヒドロキシエトキシフェニル)プロパン、イソソルビド(1, 4:3, 6-ジアンヒドログルシトール、1, 4:3, 6-ジアンヒドロ-D-ソルビトール)、スピログリコール、ビスフェノールA、ビスフェノールS等を例示できる。中でもエチレングリコールが好ましく用いられる。これらのジオール成分は1種類のみを用いてもよいが、2種類以上を併用してもよい。

[0025] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられるポリエステル樹脂としては、金属板との密着性と耐熱性の観点から、ポリエチレンテレフタレート(PET)及びポリエチレンナフタレート(PEN)が好ましい。これらの混合物も好ましく用いることができる。

[0026] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられるアクリル樹脂は、アクリレート化合物を主たる構成成分とする単量体からの重合により得られる樹脂、若しくはこれらの混合物であることが好ましい。アクリレート化合物としては、例えばモノアクリレート化合物、モノメタクリレート化合物、ジアクリレート化合物、ジメタクリレート化合物等が挙げられる。

[0027] モノアクリレート化合物としては、メチルアクリレート、エチルアクリレ

ート、プロピルアクリレート、イソプロピルアクリレート、*n*-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、*t*-ブチルアクリレート、アミルアクリレート、イソアミルアクリレート、ヘキシルアクリレート、ヘプチルアクリレート、オクチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、ノニルアクリレート、デシルアクリレート、イソデシルアクリレート、ラウリルアクリレート、トリデシルアクリレート、ヘキサデシルアクリレート、ステアリルアクリレート、イソステアリルアクリレート、シクロヘキシルアクリレート、イソボルニルアクリレート、ジエチレングリコールアクリレート、ポリエチレングリコールアクリレート、ポリプロピレングリコールアクリレート、2-メトキシエチルアクリレート、2-エトキシエチルアクリレート、2-ブトキシエチルアクリレート、メトキシジエチレングリコールアクリレート、メトキシポリエチレングリコールアクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチルアクリレート、2-フェノキシエチルアクリレート、フェノキシジエチレングリコールアクリレート、フェノキシポリエチレングリコールアクリレート、2-ベンゾイルオキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリレート、ベンジルアクリレート、2-シアノエチルアクリレート、 γ -アクリロキシエチルトリメトキシシラン、グリシジルアクリレート、テトラヒドロフルフリルアクリレート、ジメチルアミノエチルアクリレート、アクリロキシエチルホスフェート、アクリロキシエチルフェニルアシッドホスフェート等を例示できる。

[0028] モノメタクリレート化合物としては、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、プロピルメタクリレート、イソプロピルメタクリレート、*n*-ブチルメタクリレート、イソブチルメタクリレート、*t*-ブチルメタクリレート、アミルメタクリレート、イソアミルメタクリレート、ヘキシルメタクリレート、ヘプチルメタクリレート、オクチルメタクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレート、ノニルメタクリレート、デシルメタクリレート、イソデシルメタクリレート、ラウリルメタクリレート、トリデシルメタクリレート、ヘキサデシルメタクリレート、ステアリルメタクリレート、イソス

テアリルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、イソボルニルメタクリレート、ジエチレングリコールメタクリレート、ポリエチレングリコールメタクリレート、ポリプロピレングリコールメタクリレート、2-メトキシエチルメタクリレート、2-エトキシエチルメタクリレート、2-ブトキシエチルメタクリレート、メトキシジエチレングリコールメタクリレート、メトキシポリエチレングリコールメタクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチルメタクリレート、2-フェノキシエチルメタクリレート、フェノキシジエチレングリコールメタクリレート、フェノキシポリエチレングリコールメタクリレート、2-ベンゾイルオキシエチルメタクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルメタクリレート、ベンジルメタクリレート、2-シアノエチルメタクリレート、 γ -メタクリロキシエチルトリメトキシシラン、グリシジルメタクリレート、テトラヒドロフルフルルメタクリレート、ジメチルアミノエチルメタクリレート、メタクリロキシエチルホスフェート、メタクリロキシエチルフェニルアシッドホスフェート等を例示できる。

[0029] ジアクリレート化合物としては、エチレングリコールジアクリレート、1, 4-ブタンジオールジアクリレート、1, 6-ヘキサジオールジアクリレート、1, 9-ノナンジオールジアクリレート、1, 3-ブタンジオールジアクリレート、ネオペンチルグリコールジアクリレート、トリエチレングリコールジアクリレート、テトラエチレングリコールジアクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレート、トリプロピレングリコールジアクリレート、ポリプロピレングリコールジアクリレート、ビスフェノールA、ビスフェノールFまたはビスフェノールAD 1モルとグリシジルアクリレート2モルとの反応物、ビスフェノールA、ビスフェノールFまたはビスフェノールADのポリプロピレンオキサイド付加物のジアクリレート、ビス（アクリロキシプロピル）ポリジメチルシロキサン、ビス（アクリロキシプロピル）メチルシロキサン-ジメチルシロキサンコポリマー等を例示できる。

[0030] ジメタクリレート化合物としては、エチレングリコールジメタクリレート

、 1, 4-ブタンジオールジメタクリレート、 1, 6-ヘキサジオールジメタクリレート、 1, 9-ノナンジオールジメタクリレート、 1, 3-ブタンジオールジメタクリレート、 ネオペンチルグリコールジメタクリレート、 トリエチレングリコールジメタクリレート、 テトラエチレングリコールジメタクリレート、 ポリエチレングリコールジメタクリレート、 トリプロピレングリコールジメタクリレート、 ポリプロピレングリコールジメタクリレート、 ビスフェノールA、 ビスフェノールF またはビスフェノールAD 1 モルとグリシジルメタクリレート 2 モルとの反応物、 ビスフェノールA、 ビスフェノールF またはビスフェノールAD のポリプロピレンオキサイド付加物のジメタクリレート、 ビス（メタクリロキシプロピル）ポリジメチルシロキサン、 ビス（メタクリロキシプロピル）メチルシロキサン-ジメチルシロキサンコポリマー等を例示できる。これらのアクリレート化合物は 1 種類のみを用いてもよいが、 2 種類以上を併用してもよい。

[0031] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられるアクリル樹脂としては、金属板との密着性の観点から、ポリメチルメタクリレート（PMMA）が好ましい。ガラス転移温度を制御する観点で、メタクリレート以外の上記アクリレート化合物を併用することが好ましい。

[0032] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられるポリカーボネート樹脂は、芳香族ジヒドロキシ化合物とホスゲン、ジフェニルカーボネートのような炭酸結合生成性の化合物との重合により得られる樹脂、若しくはこれらの混合物であることが好ましい。

[0033] ここで芳香族ジヒドロキシ化合物としては、1, 1-ビス（4-ヒドロキシ-3-tert-ブチルフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3-tert-ブチルフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3-ブロモフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジブロモフェニル）プロパンなどのビス（ヒドロキシアリール）アルカン類、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）シクロペンタン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）

）シクロヘキサンなどのビス（ヒドロキシアリール）シクロアルカン類、4，4′－ジヒドロキシジフェニルエーテル、4，4′－ジヒドロキシ－3，3′－ジメチルフェニルエーテルなどのジヒドロキシアリールエーテル類、4，4′－ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4，4′－ジヒドロキシ－3，3′－ジメチルフェニルスルフィドなどのジヒドロキシアリールスルフィド類、4，4′－ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、4，4′－ジヒドロキシ－3，3′－ジメチルフェニルスルホキシドなどのジヒドロキシアリールスルホキシド類、4，4′－ジヒドロキシジフェニルスルホン、4，4′－ジヒドロキシ－3，3′－ジメチルフェニルスルホンなどのジヒドロキシアリールスルホン類等を例示できる。中でも2，2－ビス（4－ヒドロキシフェニル）プロパン（ビスフェノールA）が好ましく用いられる。これらの芳香族ジヒドロキシ化合物は1種類のみを用いてもよいが、2種類以上を併用してもよい。また、一般に炭酸成分の一部をテレフタル酸および／またはイソフタル酸成分で置き換えたポリカーボネートを使用してもよい。

[0034] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられる樹脂フィルムには、本発明の効果を阻害しない限りにおいて、トリメリット酸、トリメシン酸、トリメチロールプロパン等の多官能化合物を共重合してもよい。さらに、機能性の付与を目的として上記した主成分以外の樹脂成分を使用してもよい。上記樹脂成分としては、ポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂の他にポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ（4－メチルペンテンー1）、ポリアセタール等の鎖状ポリオレフィン、ノルボルネン類の開環メタセシス重合、付加重合、他のオレフィン類との付加共重合体である脂環族ポリオレフィン、ポリ乳酸、ポリブチルサクシネート等の生分解性ポリマー、ナイロン6、ナイロン11、ナイロン12、ナイロン66等のポリアミド、アラミド、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、エチレン酢酸ビニルコポリマー、ポリアセタール、ポリグルコール酸、ポリスチレン、スチレン共重合ポリメタクリル酸メチル、ポリエーテルサルフォン、ポリエーテルエーテルケトン、変性ポリフェニ

レンエーテル、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリアリレート、4フッ化エチレン樹脂、3フッ化エチレン樹脂、3フッ化塩化エチレン樹脂、4フッ化エチレン-6フッ化プロピレン共重合体、ポリフッ化ビニリデン等を用いることができる。なお、これらは共重合体であっても混合物であってもよい。

[0035] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられる樹脂フィルムには、公知の酸化防止剤を0.0001質量%以上1.0質量%以下添加することが耐熱性を向上させる点から好ましい。さらに好ましくは0.001質量%以上1.0質量%以下である。酸化防止剤の種類としては特に限定されるものではないが、例えばヒンダードフェノール類、ヒドラジン類、フォスファイト類等に分類される公知の酸化防止剤を使用できる。

[0036] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に用いられる樹脂フィルムには、本発明の効果を阻害しない範囲で上記した酸化防止剤の他にも種々の添加材を含有させてもよい。例えば易滑剤、結晶核剤、熱安定剤、帯電防止剤、ブロッキング防止剤、充填剤、粘度調整剤等である。これらは樹脂フィルムに混合してもよいが、特に滑剤である易滑剤やブロッキング防止剤は溶媒と混合しスラリーとしてフィルム表面に塗布し、乾燥させることで機能付与してもよく、樹脂フィルム表面に少量分散させることが出来る点で好ましい。なお、フィルムラミネート金属板の平滑性、即ち樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、クルトシス S_{ku} を小さく好ましい範囲に制御できる点、及び有機EL用基板として用いた場合に製造工程におけるロール上での疵発生や蛇行を抑制するために、静摩擦係数 μ_s を好ましい範囲に制御できる点で、上記したような少量分散させた樹脂フィルムを使用することが好ましく、滑剤を含まないと特に好ましい。滑剤を少量分散させる場合、滑剤の平均粒径は $0.3\mu m$ 以下とする。 $0.2\mu m$ 以下であると好ましく、 $0.1\mu m$ 以下であるとさらに好ましい。滑剤を含まない、もしくは少量であるかどうかは、樹脂フィルムの灰分を測定することで把握することができ、滑剤を含まない場合は、樹脂フィルムの灰分は $500ppm$ 以下になる

。

[0037] 本発明のフィルムラミネート金属板に用いられる樹脂フィルムは、同一樹脂組成物の単層構成でも好ましく用いることができるが、機能性付与を目的として2層以上に積層した構成とすることも好ましい。例えば金属板接着面に積層する表層はフィルム間ブロッキングを防止する目的で表面凹凸を持たせ、その反対側の表層は平滑性に優れた樹脂組成とする等が可能である。これにより樹脂フィルムとしての性能とフレキシブルエレクトロニクス用基板としての機能を両立することが可能となる。積層方向としては、上記した厚み方向の積層だけでなく、長手方向や幅方向に積層してもよいが、フィルムラミネート金属板としての機能付与の観点で厚み方向への積層が好ましい。積層方法としては、例えばフィードブロック方式やマルチマニホールド方式を用いた共押出法、他のフィルムとの貼り合わせや溶融した樹脂組成物を直接フィルム上に積層するラミネート法などを用いることができる。また、溶媒に溶解させた樹脂組成物をフィルム上に塗布した後に乾燥させるコーティング法なども用いることができる。

[0038] 本発明のフィルムラミネート金属板に用いられる樹脂フィルムは、厚みばらつき抑制の観点や、ポリエステル樹脂の場合は、二軸配向した結晶が耐熱性に寄与する観点で二軸延伸フィルムであると好ましい。二軸延伸させる方法としては、縦方向（長手方向）と横方向（幅方向）の延伸を順次行う逐次二軸延伸法、又は縦方向と横方向を同時に延伸する同時二軸延伸法等を用いることができる。逐次二軸延伸法の場合は、品質の均一化や設備省スペース化の観点で縦方向に延伸後、横方向に延伸することが好ましい。

[0039] 次に、本発明に係るフィルムラミネート金属板の製造方法を以下に説明するが、必ずしもこれに限定されるものではない。本発明に係るフィルムラミネート金属板を製造する際は、まず、上述した好ましいポリエステル樹脂をペレット等の形態で用意する。ペレットは、必要に応じて熱風中又は真空中で乾燥された後、種々の添加剤と共に押出機に供給される。押出機内において、融点以上に加熱溶融された樹脂は、ギアポンプ等で押出量を均一化され

、フィルター等を介して異物や変性した樹脂等を取り除かれる。積層構成とする場合は、上記とは別の押出機に供給され、それぞれが異なる流路を通り積層装置に送り込まれる。積層装置としては、フィードブロックやマルチマニホールドダイを用いることができる。

[0040] これらの樹脂はＴダイにてシート状に成形された後、吐出される。そして、Ｔダイから吐出された熔融シートは、キャストイングドラム等の冷却体上に押し出された後、冷却固化されて無延伸フィルムとして得られる。この際、キャストイングドラム等の冷却体と熔融シートの密着性を高める目的で、ワイヤー状、テープ状、針状、又はナイフ状等の電極を用いて静電気力により密着させ急冷固化させることが好ましい。また、スリット状、スポット状、面状の装置からエアーを吹き出して密着させ急冷固化させる方法や、ニップロールにて密着させ急冷固化させる方法、さらにはこれらの組み合わせる方法も好ましい。

[0041] このようにして得られた無延伸フィルムは、縦方向（長手方向）及び横方向（幅方向）に二軸延伸することが好ましい。ここでは縦方向に延伸後、横方向に延伸する逐次二軸延伸法について記述する。

[0042] まず、得られた無延伸フィルムは縦方向へ延伸される。ここで、縦方向への延伸とは、フィルムに長手方向の分子配向を与えるための延伸を意味する。通常はロールの周速差により施され、その走行方向の延伸は１段階で行ってもよく、また複数本のロール対を使用して多段階に行ってもよい。縦方向延伸での延伸の倍率としては樹脂の種類により異なるが、３．０倍以上６．０倍以下であることが好ましい。３．３倍以上５．０倍以下であるとより好ましく、３．５倍以上４．５倍以下であるとさらに好ましい。延伸倍率が上記の範囲内であれば、表面凹凸が小さい、即ち表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v が小さく好ましい範囲に制御されたフィルムを効率よく得ることができる。

[0043] また、縦方向延伸での延伸温度としては、樹脂フィルムを構成する樹脂のガラス転移温度以上、ガラス転移温度＋５０℃以下が好ましい。ガラス転移

温度 + 5 °C 以上、ガラス転移温度 + 4 0 °C 以下がさらに好ましく、ガラス転移温度 + 1 0 °C 以上、ガラス転移温度 + 3 0 °C 以下が特に好ましい。延伸温度が上記の範囲内であれば、表面凹凸が小さい、即ち表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v が小さく好ましい範囲に制御されたフィルムを効率よく得ることができる。

[0044] 一軸延伸された樹脂フィルムを一旦徐冷し、次いで、テンター式延伸機に樹脂フィルムの端部を把持させて導入する。横方向延伸での延伸倍率としては、3.0 倍以上 8.0 倍以下であることが好ましく、3.5 倍以上 7.0 倍以下であるとより好ましく、4.0 倍以上 6.0 倍以下であるとさらに好ましい。延伸倍率が上記の範囲内であれば、厚み斑が小さく、表面凹凸も小さい、即ち表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v が小さく好ましい範囲に制御されたフィルムを効率よく得ることができる。

[0045] 横方向延伸での延伸温度としては、樹脂フィルムを構成する樹脂のガラス転移温度以上、ガラス転移温度 + 8 0 °C 以下が好ましい。ガラス転移温度 + 1 0 °C 以上、ガラス転移温度 + 7 0 °C 以下がより好ましく、ガラス転移温度 + 1 5 °C 以上、ガラス転移温度 + 6 0 °C 以下が特に好ましい。延伸温度が上記の範囲内であれば、厚み斑が小さく、表面凹凸も小さい、即ち表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v が小さく好ましい範囲に制御されたフィルムを効率よく得ることができる。

[0046] 横方向へ延伸されたフィルムは、このあと熱固定することが好ましい。熱固定は高温に加熱したテンター内で行うことが好ましく、熱固定温度としては横方向延伸での延伸温度以上、融点 - 5 0 °C 以下が好ましい。横方向延伸での延伸温度 + 2 0 °C 以上、融点 - 6 0 °C 以下がさらに好ましく、横方向延伸での延伸温度 + 4 0 °C 以上、融点 - 7 0 °C 以下が特に好ましい。熱固定温度が上記の範囲内であれば、厚み斑が小さく、表面凹凸も小さい、即ち表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v が小さく好ましい範囲に制御されたフィルムを効率よく得ることができる。

[0047] さらに、熱固定はフィルムを長手方向及び／又は幅方向に弛緩させながら

行ってもよい。弛緩率としては0.3%以上5.0%以下が好ましく、0.5%以上4.0%以下がより好ましく、0.8%以上3.0%以下がさらに好ましい。熱固定と同時に弛緩することで、二軸配向した樹脂フィルムの残留応力はさらに低減し好ましい。弛緩率が上記の範囲内であれば、より効果的に残留応力を低減でき、厚み斑が小さく、表面凹凸も小さいフィルムを得ることができる。即ち、表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v が小さく好ましい範囲に制御されたフィルムを効率よく得ることができる。熱固定された樹脂フィルムは、その後テンター内で徐冷され二軸延伸フィルムが得られる。

[0048] なお、上記樹脂フィルムには、少なくとも金属板に接着する面とは反対の面（すなわちフィルムラミネート金属板の表層面側）に保護フィルムを貼合することがラミネート金属板の表面平滑性を高く維持できる点で好ましい。即ち、樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v 、クルトシス S_{ku} を小さく好ましい範囲に制御できる点で好ましい。保護フィルムによって、金属板へのラミネート時やフレキシブルエレクトロニクス基板として使用する際に表面に擦り疵や押し跡が入ることを防ぐことができる。樹脂フィルムに貼合した保護フィルムは、熱圧着ラミネート時に溶融したり寸法変化したりしないようにPETやPENなどのポリエステル樹脂を基材とすることが好ましい。また、フレキシブルエレクトロニクス用基板として使用する際に保護フィルムを剥離する必要があるため、樹脂フィルムとの接着面は微粘着性であることが好ましい。

[0049] 上記した樹脂フィルムを熱圧着により金属板に被覆させる。具体的には、金属板を樹脂フィルムの融点を超える温度で加熱し、その片面又は両面に圧着ロールを用いて樹脂フィルムを接触させ、熱圧着させる方法（熱圧着フィルムラミネート法）がある。この方法であれば、有機溶剤や大型サイズの乾燥炉を使用しないため環境負荷が低く、ロールtoロールで樹脂フィルムを両面に被覆した金属板を得られるために生産性に優れる点で好ましい。また、接着剤などを用いることなく絶縁膜である樹脂フィルムと、耐熱性、フレ

キシブル性、ガスバリア性を有する金属板のみで構成されるため、有機ELの発光効率を低下させるような不純物が混入しにくい点でも好ましい。フレキシブルエレクトロニクス用基板として用いる際は、表面にITO等の透明電極をエッチングにて形成することがあるが、エッチング溶液に金属板が溶解する可能性がある。そのため、金属板両面に樹脂フィルムをラミネートすることが好ましい。なお、本発明に係る樹脂フィルムが被覆されている面とは反対面の樹脂フィルムは、金属板に密着する樹脂フィルムであれば特に限定されるものではないが、熱可塑性樹脂フィルムが好ましい。例えば市販のPETフィルムを用いることができる。

[0050] 本発明に係るフィルムラミネート金属板に被覆させた樹脂フィルムは、表面平滑性と耐熱性を保持させる必要があるため、金属板に接する僅かな厚みの部分のみを溶融させ金属板に密着させることが好ましい。ラミネート開始時の金属板の温度はポリエステル樹脂フィルムの場合は、融点 -20°C 以上、融点以下が好ましく、融点 -15°C 以上、融点 -5°C 以下がより好ましい。アクリル樹脂やポリカーボネート樹脂フィルムの場合は、ガラス転移温度 $+20^{\circ}\text{C}$ 以上、ガラス転移温度 $+100^{\circ}\text{C}$ 以下が好ましく、ガラス転移温度 $+40^{\circ}\text{C}$ 以上、ガラス転移温度 $+80^{\circ}\text{C}$ 以下がより好ましい。

この範囲内であれば、所望とする樹脂フィルムと金属板との密着力と表面平滑度が得られる。即ち、樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ S_v 、クルトシス S_{ku} が小さく優れたフィルムラミネート金属板を得ることができる。さらに、冷結晶化がし難く樹脂フィルムの $\Delta H_c/\Delta H_m$ やガラス転移温度 T_g も好ましい範囲に制御し易くなる。ラミネート時にフィルムの受ける温度履歴として、フィルムがラミネートロールで加圧される時間を 15 msec 以上 35 msec 以下にすることが好ましい。また、 20 msec 以上 30 msec 以下であるとより好ましい。この範囲内であれば、ラミネートの温度履歴によるフィルム表面の変形が抑制でき、所望とする樹脂フィルムと金属板との密着力と表面平滑度が得られる。即ち、樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a 、最大山高さ S_p 、最大谷深さ

S_v、クルトシスS_{k u}が小さく優れたフィルムラミネート金属板を得ることができる。また、冷結晶化がし難く樹脂フィルムの $\Delta H_c / \Delta H_m$ やガラス転移温度T_gも好ましい範囲に制御し易くなる。ラミネート時の圧着ロールの加圧は、面圧として10 kgf / cm²以上25 kgf / cm²以下とすることが好ましい。また、12 kgf / cm²以上23 kgf / cm²であることより好ましく、15 kgf / cm²以上20 kgf / cm²であるとさらに好ましい。この範囲内であれば、ラミネート時におけるフィルムと金属板間に混入する気泡の発生を抑制することができ、所望とする樹脂フィルムと金属板との密着力と表面平滑度が得られる。即ち、樹脂フィルム表面の算術平均粗さS_a、最大山高さS_p、最大谷深さS_v、クルトシスS_{k u}が小さく優れたフィルムラミネート金属板を得ることができる。

[0051] さらに、金属板と密着しない面、すなわち樹脂フィルムの表面側を熱履歴が及ばないように冷却しておくことが好ましい。樹脂フィルムの表面側を冷却する方法としては、冷却ロールでニップする方法、冷却ガスで表面を冷やす方法、ラミネート部周辺を冷却槽で囲う方法等が採用できるが、冷却ロールでニップする方法が好ましい。また、冷却ロール温度は20℃以上50℃以下とすることが好ましい。ラミネート冷却ロール温度は25℃以上45℃以下とするとより好ましい。この範囲内であれば、ラミネートの温度履歴によるフィルム表面の変形が抑制でき、所望とする樹脂フィルムと金属板との密着力と表面平滑度が得られる。即ち、樹脂フィルム表面の算術平均粗さS_a、最大山高さS_p、最大谷深さS_v、クルトシスS_{k u}が小さく優れたフィルムラミネート金属板を得ることができる。また、冷結晶化がし難く樹脂フィルムの $\Delta H_c / \Delta H_m$ やガラス転移温度T_gも好ましい範囲に制御し易くなる。ラミネートされた金属板は、樹脂フィルムの表面平滑性および耐熱性を損なわないようにすぐに水冷することが好ましい。樹脂フィルム圧着から水冷までの時間は0.1秒以上0.8秒以下とすることが好ましい。この範囲内であれば、樹脂フィルム表面の算術平均粗さS_a、最大山高さS_p、最大谷深さS_v、クルトシスS_{k u}が小さく制御できる。また、冷結晶化が

し難く樹脂フィルムの $\Delta H_c / \Delta H_m$ やガラス転移温度 T_g も好ましい範囲に制御し易くなるため、より表面平滑性および耐熱性に優れたフィルムラミネート金属板を得ることができる。

[0052] 本発明に係る金属板としては、缶用材料として広く使用されているアルミニウム板や軟鋼板等を用いることができる。特に下層が金属クロム、上層がクロム水酸化物からなる二層皮膜を形成させた表面処理鋼板（いわゆるTFS）等が最適である。TFSの金属クロム層及びクロム水酸化物層の付着量については特に限定されない。加工後密着性・耐食性の観点からは、何れもCr換算で、金属クロム層は 50 mg/m^2 以上 200 mg/m^2 以下、クロム水酸化物層は 5 mg/m^2 以上 35 mg/m^2 以下とすることが望ましい。

[0053] 本発明に係るフィルムラミネート金属板は、平滑性、耐熱性、フレキシブル性、及びガスバリア性の観点でフレキシブルエレクトロニクス用基板として好適に使用することができる。特に有機EL用として好ましく用いることができる。

実施例

[0054] 以下、実施例により本発明を詳細に説明する。

（実施例1）

樹脂フィルムの原料樹脂として、ポリエステル樹脂であるガラス転移温度 80°C 、融点 250°C のPETのペレットを準備し、水分を含まないように真空高温下にて十分に乾燥させた。これを易滑性や耐ブロッキング性などを目的とする粒子を含まずに単軸押出機に投入し 280°C で熔融混練した。次いで、 $25\text{ }\mu\text{m}$ カットの焼結フィルターを介して異物除去を行った後、Tダイから吐出し、 25°C に表面温度を制御したキャストドラム上で冷却固化させて無延伸フィルムを得た。次いで、加熱したセラミックロールを用いて樹脂フィルム温度が 95°C になるように予熱を行い、樹脂フィルムの縦方向に3.5倍延伸を行った。その後、テンター式延伸機に端部をクリップで把持させて導入し、 100°C で4.0倍に横方向に延伸した。そのまま、 140°C で熱固定しながら横方向に0.8%の弛緩を施した。その後、室温

まで徐冷し、端部を除去した樹脂フィルムを巻取機で巻き取り、厚み $50\mu\text{m}$ の二軸延伸フィルムを得た。次いで、得られた二軸延伸フィルムに厚み $125\mu\text{m}$ のPEN製保護フィルムを貼合した。続いて、得られた二軸延伸フィルムを金属板にラミネートした。金属板として厚さ 0.22mm のTFS（金属Cr層： $120\text{mg}/\text{m}^2$ 、Cr酸化物層：金属Cr換算で $10\text{mg}/\text{m}^2$ ）を用い、熱圧着フィルムラミネート法を利用して金属板の両面に上記樹脂フィルムを被覆した。金属板の一方の表面には上記で得られた二軸延伸フィルムを、他方の表面には東レ株式会社製PETフィルム（ルミラー（登録商標）S10： $20\mu\text{m}$ ）をラミネートした。具体的なラミネート条件は、ラミネート直前の金属板温度 245°C 、ラミネート冷却ロール温度 25°C 、ラミネート加圧面圧 $15\text{kgf}/\text{cm}^2$ とした。ラミネートロールで加圧される時間は 20ms であった。なお、ラミネート時の温度は、放射温度計によってラミネート前の温度を測定した（ニップ位置から 100mm の位置）。その後、熱圧着から 0.1 秒経過後に水冷することにより、金属板の両面に樹脂フィルムを被覆したフィルムラミネート金属板を得た。

（実施例2）

フィルム製造時の搬送性や、フィルムの巻取性を向上させるため、PET樹脂と共に平均粒径 $0.1\mu\text{m}$ の SiO_2 の粒子を 300ppm 含有させた以外は実施例1と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

（実施例3）

PET樹脂と共に平均粒径 $0.1\mu\text{m}$ の SiO_2 の粒子を 500ppm 含有させた以外は実施例1と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

（実施例4）

ラミネート加圧面圧を $12\text{kgf}/\text{cm}^2$ とした以外は実施例1と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

（実施例5）

ラミネート加圧面圧を $10\text{kgf}/\text{cm}^2$ とした以外は実施例1と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 6)

ラミネート加圧面圧を 23 kg f / cm^2 とした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 7)

ラミネート加圧面圧を 25 kg f / cm^2 とした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 8)

PET 樹脂と共に平均粒径 $0.2 \mu\text{m}$ の SiO_2 の粒子を 300 ppm 含有させた以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 9)

PET 樹脂と共に平均粒径 $0.3 \mu\text{m}$ の SiO_2 の粒子を 300 ppm 含有させた以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 10)

PET 樹脂と共に平均粒径 $0.1 \mu\text{m}$ の SiO_2 の粒子を 800 ppm 含有させた以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 11)

PET 樹脂と共に平均粒径 $0.1 \mu\text{m}$ の SiO_2 の粒子を 1000 ppm 含有させた以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 12)

PET 樹脂と共に平均粒径 $0.2 \mu\text{m}$ の SiO_2 の粒子を 300 ppm 含有させ、ラミネート加圧面圧を 10 kg f / cm^2 とした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 13)

ラミネート開始時の温度を 251°C とし、樹脂フィルム圧着から水冷までの時間を 1.0 秒とした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 14)

二軸延伸フィルムの厚みを $110 \mu\text{m}$ となるように T ダイから樹脂吐出量

を制御した以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 1 5)

樹脂フィルムをガラス転移温度 1 2 5 °C の P M M A 樹脂とし、ラミネート開始時の金属板の温度を 2 0 5 °C とした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(実施例 1 6)

樹脂フィルムをガラス転移温度 1 5 0 °C の P C (ポリカーボネート) 樹脂とし、ラミネート開始時の金属板の温度を 2 3 0 °C とした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(比較例 1)

P E T 樹脂と共に平均粒径 0. 5 μ m の S i O₂ の粒子を 1 0 0 0 p p m 含有させた以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(比較例 2)

延伸を施さずに無延伸フィルムとした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

(比較例 3)

熱圧着ラミネート法の代わりにポリエステル系接着剤を用いて金属板と樹脂フィルムをラミネートした以外は実施例 1 と同様にフィルムラミネート金属板を得た。

[0055] 得られたフィルムラミネート金属板の特性は、以下に示す方法により測定、評価した。

[0056] (1) 算術平均粗さ、最大山高さ、最大谷深さ、クルトシス

オリンパス株式会社製 3 D 測定レーザー顕微鏡 L E X T (O L S 5 0 0 0) を用いて、5 0 倍対物レンズにて測定した (I S O 2 5 1 7 8 - 2 : 2 0 1 2 に準拠)。測定範囲は 2 5 0 μ m $\times$ 2 5 0 μ m とし、室温の大気中にて測定を行った。フィルムラミネート金属板の樹脂フィルムについて、無作為に選んだ 3 箇所を測定し、算術平均粗さ S a、最大山高さ S p、最大谷深さ S v、クルトシス S k u のそれぞれについて平均値を求めた。

(2) 灰分

フィルムラミネート金属板の金属板を塩酸で溶解させ、樹脂フィルムを採取した。JIS K 7250に従い、初期質量 W_0 の樹脂フィルムを白金坩堝に入れ、まずガスバーナーで十分に燃焼させた後、750～800℃の電気炉で1時間処理して完全に灰化した。得られた灰の質量 W_1 を測定し、下記式から算出した。それぞれ同様の測定を3回行い、その平均値を灰分とした。

$$\text{灰分} = (W_1 / W_0) \times 1,000,000 \text{ (ppm)}$$

(3) 静摩擦係数

フィルムラミネート金属板をサンプルサイズ150mm×40mmにせん断し、新東科学株式会社製静摩擦係数測定機TYPE:10を用いて、150g平面圧子にて測定した。それぞれ同様の測定を5回行い、その平均値を静摩擦係数とした。

(4) 樹脂フィルム厚み

フィルムラミネート金属板の金属板を塩酸で溶解させ、樹脂フィルムを採取した。株式会社ミットヨ製ダイヤルゲージスタンド7001-10に設置した同じく株式会社ミットヨ製のダイヤルゲージ2110S-10（超硬ボール付測定子）にて、採取した樹脂フィルムの厚みを測定した。測定は無作為に選んだ10箇所について行い、その平均値を樹脂フィルムの厚みとした。

(5) 樹脂フィルムの熱特性（冷結晶化熱量、融解熱量、ガラス転移温度）

フィルムラミネート金属板をサンプルサイズ10mm×10mmにせん断後、塩酸に浸漬させて金属板のみを溶解し樹脂フィルムを単離した。単離した樹脂フィルム5mgを試料としてアルミニウム製パンに採取し、TAインスツルメント製示差走査熱量計(DSC-Q100)を用いて測定した。まず、窒素雰囲気下で-50℃まで冷却し、そこから290℃まで20℃/分で昇温した(1st Run)。1st Run測定にて得られたチャートより冷結晶化熱量、融解熱量、ガラス転移温度を求めた。それぞれ同様の測定を3回行い、その平均値を樹脂フィルムの冷結晶化熱量 ΔH_c 、融解熱量 Δ

H_m、ガラス転移温度 T_g とした。

(6) 有機 EL 用基板の発光外観

フィルムラミネート金属板を基板として用いて、樹脂フィルムの表面上に陽極（アルミニウム・金電極）、正孔輸送層、発光層兼電子輸送層、及び半透明陰極（銀・マグネシウム電極）を順に真空蒸着した。なお、発光面積が 2 mm×2 mm となるように金属マスクを設けた。具体的な有機 EL デバイス作製方法を下記する。まず、基板を洗浄し、110℃で1時間乾燥を行った。その後、基板を真空蒸着機内に取り付け0.001 Pa 以下まで減圧した。次いで、陽極としてアルミニウム及び金を蒸着し、陽極を覆うように正孔輸送層として α -NPD（N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ（ α -ナフチル）-ベンジジン）を蒸着速度 6 nm/min で膜厚 50 nm となるように形成した。この正孔輸送層の上に、発光層兼電子輸送層として Alq₃（トリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム）を蒸着速度 6 nm/min で膜厚 50 nm となるように形成した。最後に、銀およびマグネシウムを半透明電極となるように蒸着して陰極を形成した。このように作製した有機 EL デバイスに封止を施した。なお、有機 EL デバイスは同様な方法で 20 素子作製した。20 素子それぞれに対して電圧 10 V を印加し有機 EL 発光を確認した。各素子のダークスポット個数の平均値を求め、下記判断基準により有機 EL 用基板の発光外観を評価した。

- A（優良）：ダークスポット個数が0個
- B（良好）：ダークスポット個数が1～10個
- C（可）：ダークスポット個数が11～100個
- D（不可）：ダークスポット個数が101個以上

(7) 有機 EL 用基板の電気絶縁性

上項と同様に有機 EL デバイスを 20 素子作製し、それぞれの素子に対して電圧 10 V で通電し有機 EL 発光を確認した。下記判断基準により有機 EL 用基板の電気絶縁性を評価した。

- A（優良）：20 素子全てが発光

B（良好）：20素子中15～19素子が発光（1～5素子はショート）

C（可）：20素子中1～14素子が発光（6～19素子はショート）

D（不可）：20素子全てがショートして発光しない

（8）有機EL用基板の発光効率

上項と同様に有機ELデバイスを20素子作製し、それぞれの素子に対して電圧5Vで通電した際の電流密度を測定した。ショートした素子を除いて、電流密度の平均値をリーク電流量とし、下記判断基準により有機EL用基板の発光効率を評価した。

A（優良）：電流密度 $1.0 \times 10^{-5} \text{ mA/cm}^2$ 未満

B（良好）：電流密度 $1.0 \times 10^{-5} \text{ mA/cm}^2$ 以上 $1.0 \times 10^{-3} \text{ mA/cm}^2$ 以下

C（可）：電流密度 $1.0 \times 10^{-3} \text{ mA/cm}^2$ 以上 $1.0 \times 10^{-1} \text{ mA/cm}^2$ 以下

D（不可）：電流密度 $1.0 \times 10^{-1} \text{ mA/cm}^2$ を超える、もしくは全てショート

実施例1～16及び比較例1～5の有機EL用基板評価の結果を、以下の表1に示す。なお、表中のTgを「-」で示しているのは、Tgが無いことを意味する。

[0057]

[表1]

	実施例1		実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	比較例1	比較例2	比較例3
	算術平均粗さ	Sa μm																		
最大山高さ		Sp μm	0.020	0.029	0.013	0.015	0.012	0.014	0.013	0.015	0.019	0.030	0.015	0.014	0.010	0.011	0.010	0.040	0.050	0.035
最大谷深さ		Sv μm	0.14	0.15	0.20	0.27	0.09	0.08	0.13	0.15	0.18	0.29	0.30	0.14	0.10	0.14	0.15	0.32	0.48	0.22
クルトシス		Sku μm	0.13	0.15	0.15	0.15	0.28	0.49	0.12	0.15	0.17	0.31	0.11	0.45	0.12	0.35	0.14	1.2	0.43	0.29
灰分		ppm	2.4	2.5	2.2	2.3	2.1	2.0	2.9	3.3	2.6	3.5	2.9	2.2	2.3	2.4	2.5	4.1	3.1	2.6
静電係数		μs	50	500	50	50	50	50	300	300	900	1100	300	50	100	100	100	1200	50	1500
冷却係数		ΔHc J/g	0.55	0.48	0.80	0.66	0.89	0.95	0.58	0.49	0.59	0.39	0.09	0.85	0.80	0.84	0.83	0.80	0.80	0.80
融解熱量		ΔHm J/g	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	15	7.2	0	0	7.2	49	0
ΔHc/ΔHm		—	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.31	0.15	0	0	0.15	1.0	0
ガラス転移温度		Tg ℃	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	80	—	125	150	—	80	—
フィルム厚み		μm	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	110	50	50	50	50	50
樹脂成分		PET																		
		PET																		
		PET																		
		PET																		
有機EL基板評価値	発光外観		A	A	A	B	A	A	B	C	B	C	C	A	C	A	A	D	D	C
	電気絶縁性		A	A	A	A	B	C	B	C	B	C	B	C	A	C	A	D	C	B
	発光効率		A	B	A	A	A	A	B	C	B	C	C	A	A	A	A	D	D	D

[0058] 表 1 に示すように、比較例 1 ～ 3 では、発光外観、電気絶縁性、発光効率のいずれか、もしくは全てが D（不可）評価であった。これに対して、実施例 1 ～ 16 では、発光外観、電気絶縁性、発光効率のいずれか、もしくは全てが C（可）評価以上であった。これらは、本発明の課題である、平滑性、耐熱性に優れることにより、改善される特性である。このように、本発明によれば、フレキシブルエレクトロニクス用基板に必要な平滑性を満足するフィルムラミネート金属板を提供できることが確認された。また、本発明のフィルムラミネート金属板はフレキシブル性、ガスバリア性を備え、環境負荷が低く、生産性にも優れる等、フレキシブルエレクトロニクス用基板として優れた特性を有する。

産業上の利用可能性

[0059] 本発明によれば、平滑性、耐熱性、フレキシブル性、及びガスバリア性を満足するだけでなく、環境負荷が低く生産性にも優れるフィルムラミネート金属板、フレキシブルエレクトロニクス用基板、及び有機 EL 用基板を提供することができる。

請求の範囲

- [請求項1] 少なくとも片面が樹脂フィルムで被覆されているフィルムラミネート金属板であって、
前記樹脂フィルム表面の算術平均粗さ S_a が $0.030\mu m$ 以下であり、
前記樹脂フィルム表面の最大山高さ S_p が $0.30\mu m$ 以下であり、
前記樹脂フィルム表面の最大谷深さ S_v が $1.0\mu m$ 以下である、
フィルムラミネート金属板。
- [請求項2] 前記樹脂フィルム表面のクルトシス S_{ku} が 3.0 以下である、請求項1に記載のフィルムラミネート金属板。
- [請求項3] 前記樹脂フィルムの灰分が $1000ppm$ 以下である、請求項1又は2に記載のフィルムラミネート金属板。
- [請求項4] 前記樹脂フィルムの静摩擦係数 μ_s が 0.10 以上 1.0 以下である、請求項1～3のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板。
- [請求項5] 前記樹脂フィルムのDSC測定から得られた冷結晶化熱量 ΔH_c と融解熱量 ΔH_m の比 ($\Delta H_c / \Delta H_m$) が 0.30 以下である、請求項1～4のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板。
- [請求項6] 前記樹脂フィルムのガラス転移温度 T_g が $120^\circ C$ 以上 $200^\circ C$ 以下である、請求項1～5のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板。
- [請求項7] 前記樹脂フィルムの厚みが $10\mu m$ 以上 $100\mu m$ 以下である、請求項1～6のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板。
- [請求項8] 前記樹脂フィルムの主成分がポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂のいずれかである、請求項1～7のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板。
- [請求項9] 請求項1～8のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板の製造方法であって、前記樹脂フィルムを熱圧着により金属板に被覆す

る、フィルムラミネート金属板の製造方法。

[請求項10] 請求項1～8のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板を用いる、フレキシブルエレクトロニクス用基板。

[請求項11] 請求項1～8のいずれか1項に記載のフィルムラミネート金属板を用いる、有機EL用基板。