

技術論文

無接着剤ポリイミド銅張積層板“エスパネックス® (M,Fシリーズ)”

Adhesiveless Polyimide Copper Clad Laminates “Espanex™ (M,F series)”

西山 哲平* 須藤 芳樹
Teppei NISHIYAMA Yoshiki SUTO

抄 録

日鉄ケミカル&マテリアル(株)では1980年代よりフレキシブル配線基板(FPC)で使用されるフレキシブル銅張積層板(FCCL)の開発及びポリイミド樹脂の開発を行ってきた。2000年代前半に上市したエスパネックス®Mシリーズはその高い寸法安定性から市場で評価され、今日に至るまで量産が続いている。また5Gの普及に伴う低伝送損失材料の要求に対応した低誘電タイプのエスパネックス®Fシリーズを2019年に上市、さらに将来の高周波伝送基板への対応を目的に低誘電特性と低熱膨張係数に優れたポリイミドの開発を行っている。

Abstract

Since the 1980s, Nippon Steel Chemical & Material Co., Ltd. has been developing flexible copper clad laminates (FCCL) and polyimide resins used in flexible printed circuits (FPC). The Espanex™M series, launched in the early 2000s, has been well received in the market for its high dimensional stability and continues to be mass-produced. In order to meet the demand for low transmission loss materials with the spread of 5G, we have developed and launched the low dielectric type Espanex™F series. We have developed polyimide technology with low dielectric properties and a low coefficient of thermal expansion for future high-frequency transmission substrates.

1. はじめに

1990年代中頃に普及し始めた携帯電話は、フィーチャーフォン時代を経て2000年代後半のスマートフォン登場に至るまで、通話機能だけに留まらず様々な機能が搭載され高機能化されていった。こうした携帯電子機器の高機能化に伴う高密度化に加え、携行性向上のためのダウンサイジング要求に対して、その薄さと柔軟性により既にカメラ、プリンター、ハードディスク等の民生機器に採用されていたフレキシブル配線基板(Flexible Printed Circuit, 以下FPC)が注目を集めるようになっていった。

1.1 FPCへの高性能要求

それまでFPC材料として使用されていたフレキシブル銅張積層板(Flexible Copper Clad Laminate, 以下FCCL)は、ポリイミドフィルムと銅箔を耐熱性の低いエポキシ系またはアクリル系接着剤で貼り合わせた3層FCCL(ポリイミド/接着剤/銅箔)であったが、携帯電子機器の高機能化に伴い、配線の多層化や微細化、FPC上へのLSI高温実装ブ

ロセスへの適応性、薄化、柔軟化、繰り返し曲げ耐性など要求が高まっていった。

1.2 エスパネックス®Mシリーズの概要、特徴

日鉄ケミカル&マテリアル(株)は、1980年代後半より3層FCCLの課題を解決しうる絶縁層にオールポリイミドを用いた2層FCCL(ポリイミド/銅箔)であるエスパネックス®を上市した。一般的に2層FCCLの製法としては、あらかじめテンター法等により調製したポリイミドフィルムを銅箔と貼り合わせるラミネート法と、銅箔に直接ポリイミド前駆体溶液(以下、ポリアミック酸ワニス)を塗布し、銅箔上で硬化してポリイミド層を形成するキャスト法に大別される¹⁾。各製法の製法概念を図1に示す。

テンター法(図1左)は、加熱されたドラム上にポリアミック酸ワニスを塗布し、塗布膜を乾燥してゲルフィルムとした後、ドラムより引き剥がし、フィルム端部をテンタークリップで挟んだ後、二軸延伸方式によりライン方向及び幅方向にテンションをかけながら高温熱処理を行う方法である。熱処理されたゲルフィルムはライン方向/幅方向に二軸方

* 日鉄ケミカル&マテリアル(株) 総合研究所 機能樹脂材料開発センター グループリーダー 千葉県木更津市築地1 〒292-0835

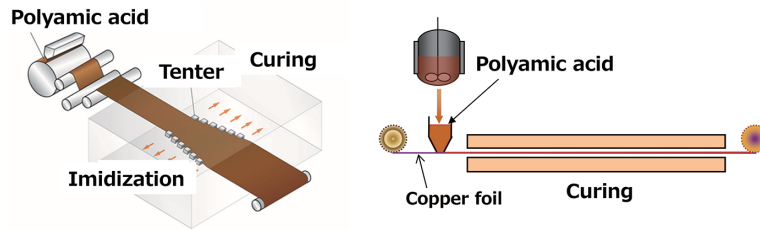


図1 ポリイミドの製膜法概念図
Conceptual diagram of polyimide film forming method

向に延伸されながら搬送されるため、熱処理時の残留応力が硬化後のポリイミドフィルムに残り、ライン方向／幅方向の熱膨張係数（以下 CTE）に異方性、ばらつきが生じやすい。

一方、キャスト法（図1右）は銅箔などの支持体上でポリアミック酸ワニスの乾燥硬化が行われるため、支持体でポリイミドフィルム（ポリイミド層）は拘束され、ライン方向／幅方向の応力の異方性が生じにくい。そのため、一般的にはキャスト法で作製されたポリイミドフィルムは CTE の異方性が少なく、寸法安定性に優れるのが特徴である。2000 年代前半、日鉄ケミカル&マテリアル独自のポリイミド設計技術とプロセス技術を組み合わせた“エスパネックス®M シリーズ”を開発、上市した。日鉄ケミカル&マテリアルのエスパネックス事業における主力製品である“エスパネックス®M シリーズ”は、キャスト法の特徴でもあるポリイミド層の CTE ばらつきが小さく、吸湿率も低い特徴から、熱や吸湿による材料の膨張収縮を抑制することで高い寸法安定性を実現している。それにより、FPC 配線の微細化や多層化による位置ずれの問題を抑制し、市場での高い評価を得ている。

2. 低誘電ポリイミドの開発

その後、携帯電話・スマートフォン端末においては様々な技術革新が進み、それに伴い端末内部で使用される信号は徐々に高周波化が進んでいった。日本では 2020 年 3 月に移動通信システムの第五世代（5G）商用サービスが開始された。それに伴いアンテナ周辺基板を中心に更なる高周波化への対応として、基板材料には低伝送損失化、低誘電化の要求が高まっていった。

日鉄ケミカル&マテリアルではそういった市場のニーズに対応するため、低誘電タイプの“エスパネックス®F シリーズ”の開発、上市を行った。また、2030 年に始まるとされる 6G 通信では通信エリアの拡大（超カバレッジ拡張）や超低消費電力・低コスト化、超高信頼通信の実現を目指して、開発が盛んに進められている。この 6G の実現には、超高速・大容量通信技術の確立が必要であり、伝送信号には 5G で適用される周波数に加えて更なる高周波帯域の採用が見込まれる。この高周波伝送対応のため基板用樹脂には、更なる低伝送損失化の対応が求められる。そこで、日

鉄ケミカル&マテリアルが長年培った FCCL 用ポリイミド技術をベースに、更なる低伝送損失化に有効な低誘電化を実現する新規超低誘電ポリイミド開発に取り組んだ。

2.1 伝送損失について

伝送損失は配線を通る信号が高周波になるほど大きな性質を持っていることから、高周波化が進むほど重要な特性となる。伝送損失とは、誘電損失（D）と導体損失の合計である。そのうち、誘電損失については誘電体の比誘電率（Dk）、誘電正接（Df）に由来する項目で式（1）によって示される通り、誘電損失の低減には、比誘電率の低減以上に誘電正接の低減が効果的である²⁾。また、使用環境によって伝送損失が変化しないためには、低吸湿性も重要となる。

$$D = b \times f \div C \times \sqrt{Dk} \times Df \quad (1)$$

b：定数，f：周波数，C：光速

導体損失は、導体に関する項目であり、導体の抵抗値が悪化した場合には損失が大きくなる。高周波信号においては導体の表面に電流が集中する表皮効果と呼ばれる現象が生じることから、導体の表面形状（表面粗さ、粗化形状）などが重要となる。以上のことから、低伝送損失材料には、低誘電正接化だけでなく、表面形状が平滑な銅箔の採用が要求される。

2.2 低伝送損失材料について

低伝送損失材料の代表例として液晶ポリマー（LCP）が挙げられる。LCP は、分子の双極子性が小さく分子が剛直であることから電場に対する運動性が小さく、それにより誘電特性に優れ、吸湿性も低いといった特徴を持つ³⁾。一方で、熱可塑性であるため、多層化形成時の高温積層プレス時や高温リフロー時には、材料の軟化が進み、配線層やパターン形状に歪みや実装不良などが起こることもあり、FPC メーカーには従来にない製造ノウハウが求められる。また、LCP は銅箔との界面において化学的な結合が生じにくいことにより、平滑な銅箔との密着性を発現しにくい特徴もある。

一方ポリイミドは、FPC 材料として長年の使用実績があり、耐熱性、耐屈曲性、寸法安定性、銅箔や多層 FPC 製造時のボンディングシートとの接着性等の他の樹脂にはな

い優れた特性を有していることから、高速伝送に対応可能なポリイミドを用いたFCCLが強く求められていた。

日鉄ケミカル&マテリアルはそのような市場での高周波材料へのニーズの高まりを受けて、低誘電正接ポリイミドの開発ならびに平滑銅箔との組み合わせにより高周波信号用FPCに要求される低伝送損失を実現する新規ポリイミドFCCLの開発を行ってきた。

2.3 低誘電Fシリーズの開発

一般的に樹脂の低誘電化には、極性基濃度の低減が有効である。しかし、ポリイミドにおいて極性基濃度を低減した場合、ガラス転移温度(Tg)の低下による耐熱性の低下やCTEの増大による寸法安定性の悪化が懸念される。そのため、ポリイミドFCCLの要求特性として、はんだ耐熱性や寸法安定性を担保しながら、ポリイミドを低誘電化するための極性基濃度低減には限界があった。

一方、日鉄ケミカル&マテリアルは長年培ったキャスト法によるポリイミドFCCLの様々な寸法制御技術を有しており、この寸法制御技術を最大限活用し、ポリイミドFCCLとして寸法安定性を担保しつつ可能な限り極性基濃度を低減した低誘電Fシリーズの開発に成功した。Fシリーズ、Mシリーズ及びLCP-FCCLの絶縁層の特性比較を表1に示す。なお、比較に用いたLCP-FCCLの絶縁層は市販のLCPフィルムを用いたものである。

Fシリーズは従来のMシリーズと比較して誘電特性、吸水特性が優れていることがわかる。誘電正接は0.003、吸水率は0.8%まで低く抑えられ、従来にないポリイミドの特性を発現している。一般的にポリイミドFCCLにおいて、ポリイミドの極性基濃度を低下させた場合、耐熱性の低下が懸念されるが、FシリーズはFCCL用の耐熱試験の中でも厳しい試験の一つである吸湿はんだ耐熱試験において、320℃以上と十分な耐熱性を示している。

また、ピール強度は、高周波用途で用いられる粗化を微細化した銅箔(Rzjis1.0μm)との組み合わせでの評価結果であるが、キャスト面(塗布面)及びラミネート面(圧着面)のいずれも1.0kN/m以上の値となっており、高周波用途の銅箔とも十分な密着性を発現していることが確認された。

2.4 低誘電Fシリーズの伝送損失測定結果

表1に示す通り、LCPの比誘電率/誘電正接はそれぞれ3.4/0.002であり、Fシリーズの比誘電率/誘電正接はそれぞれ3.3/0.003であり、FシリーズよりもLCPの方が誘電損失は小さい。これに対して、Fシリーズは、LCPと比較し、金属との密着性が発現しやすいため、より平滑な、高周波伝送に適した銅箔を使用し、導体損失を低減することができる。なお、伝送損失測定に用いたサンプルは、絶縁層厚み25μm、回路幅50μm及び線路長100mmであり、23℃50%RH環境下で24時間の調湿を行い、ネットワークアナライザを用いてSパラメータの測定によって伝送損失を求めた。図2に各ポリイミドとLCPのマイクロストリップライン構造における伝送損失の比較を示す。

Fシリーズは平滑な銅箔を使用できる強みを最大限生かし、誘電損失、導体損失、双方からのアプローチにより高周波信号用途に適応可能なポリイミドFCCLであることがわかる。

2.5 6G分野の高周波伝送基板対応材料の提案に向けて

日鉄ケミカル&マテリアルでは上述の通り、寸法安定性(低CTE)を担保しつつ可能な限り極性基濃度を低減した低誘電Fシリーズを開発・上市している。今後、6G用途に向けた具体的な基板材料への要求特性は未だ明確にはなっていないが、暫定目標値として表2に示す開発目標を定め、新規超低誘電ポリイミドの開発にも着手している。

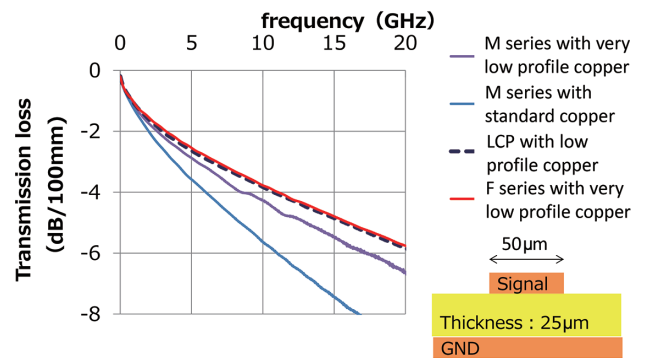


図2 マイクロストリップライン構造における伝送損失
Transmission loss in microstrip line

表1 エスパネックス®F, Mシリーズ, LCP-FCCLの特性
Properties of Espanex™ F, M series, LCP-FCCL

		F series	M series	LCP-FCCL
Dielectric constant	10 GHz	3.3	3.4	3.4
Dissipation tangent	10 GHz	0.003	0.005	0.002
Peel strength [kN/m]	Cast side	1.2	1.1	—
	Laminate side	1.7	1.6	1.0
Water absorption [wt%]		0.8	1.1	<0.1
Dimensional stability [%]	After etching (MD/TD)	0 / -0.04	0.05 / -0.04	0.03 / -0.02
	After heating (MD/TD)	-0.04 / -0.02	-0.04 / -0.06	-0.03 / 0.09
Solder heatproof [°C]	105°C, 1 h	380	380	270
	40°C, 90%RH, 8 day	320	320	270

表2 新規超低誘電ポリイミドの特性
Properties of new ultra-low dielectric polyimide

		Target	New ultra-low dielectric polyimide
Dielectric constant	10 GHz	≤3.0	2.8
Dissipation tangent	10 GHz	≤0.001	0.0014
CTE [ppm/K]		≤20	≤20
Water absorption [wt%]		≤0.2	≤0.2

更なる低誘電化の実現に向けては極性基濃度の低減以外の設計が必要となる。そこで、ポリイミド分子レベルでの運動抑制コンセプト技術を考案し、ポリイミド樹脂設計に反映させた。

その結果、開発品ではあるものの表2に示す通り比誘電率2.8、誘電正接0.0014、CTE 20ppm/K以下の特性を発現することができた。従来設計では実現できない優れた低誘電特性と低CTEを両立した新規超低誘電ポリイミドの可能性を確認している。現在、このコンセプトを元に樹脂組成等の最適化を行い、誘電正接0.001以下達成を目指している。

今後も基板の高密度化、高集積化が進むことを踏まえ、FCCLに限らず様々な用途で低誘電化と低CTEを両立

する材料へのニーズは高まると想定される。そういったニーズにも柔軟に対応するため、本技術はFCCL用途に限定せず、様々な製品展開を視野に開発を進めていく。

3. 結 言

エスパネックス®Fシリーズは、Mシリーズ同等の加工性、はんだ耐熱性、寸法安定性及び配線密着性を担保しつつ、低誘電化を実現したグレードとなっており、既に量産され一部のアイテムに採用されている。また、6Gを想定した更なる低誘電樹脂の開発を進めている。

日鉄ケミカル&マテリアルはこれまで2層FCCL及びポリイミド材料メーカーとして、長年培ってきた様々な技術を有しており、その技術を活かしつつ新たな技術展開を進め、今後の更なる高周波化に対応するだけでなく、様々な特徴を持ったポリイミド材料を幅広い用途に提供していきたいと考えている。

参照文献

- 1) エレクトロニクス実装学会誌. 4(2), 113(2001)
- 2) (株)東レリサーチセンター編：低誘電率材料の最新動向. 2008, 1章, p.5
- 3) エレクトロニクス実装用基板材料の開発. 2005, 6章, p.154



西山哲平 Teppei NISHIYAMA
日鉄ケミカル&マテリアル(株)
総合研究所 機能樹脂材料開発センター
グループリーダー
千葉県木更津市築地1 〒292-0835



須藤芳樹 Yoshiki SUTO
日鉄ケミカル&マテリアル(株)
総合研究所 機能樹脂材料開発センター
チームリーダー・研究員