

5G用プリント配線板の材料開発を支える分析技術

株式会社住化分析センター
 マテリアル事業部
 岡 林 真 義
 大阪ラボラトリー
 大 畑 卓 也



はじめに

5G（第5世代移動通信システム）は4Gに代わる新しい通信規格である。世界各国の標準化団体が参加する3GPP（Third Generation Partnership Project）を通じて国際標準仕様の策定が進み、商用サービスが開始されている。5Gは、「超高速」、「超低遅延」、「多数同時接続」を実現でき、あらゆるモノがインターネットにつながる「IoT（Internet of Things）」の基盤となることが期待されている。

5Gの本格的なサービス開始に伴い、新しい端末やIoT対応電子機器の開発が促進され、これらに使用されるプリント配線板の需要も高まっている。本稿では、そのプリント配線板について、材料に求められる特性とその分析事例について紹介する。

5G用プリント配線板の特性要求

大容量の情報を処理するためには、使用周波数を高周波側にシフトすることが最も効果的であるとされている。従来のプリント配線板を高周波数帯で使用すると、高速信号の遅延・減衰、回路内の発熱などの問題が無視できなくなる。そのため、5G用プリント配線板の材料には、「低伝送損失」および「高放熱化」という二つの特性が要求される。

1. 低伝送損失

伝送損失 (α) は、導体損失 (α_c) と誘電損失 (α_d) で表され、以下の関係がある¹⁾。

$$\alpha = \alpha_c + \alpha_d$$

(α : 伝送損失、 α_c : 導体損失、 α_d : 誘電損失)

導体損失は、表皮効果と導体表面粗さに影響される。表皮効果は、導体（銅箔）を流れる信号が高周波になるにつれて電流密度が銅箔表面に集中する現

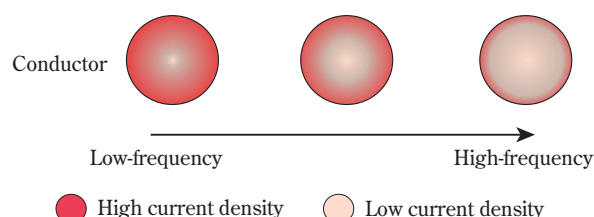


Fig. 1 Skin effect: Skin depth decreases with increasing frequency

象である (Fig. 1)。1 GHzにおいて、信号が流れる表皮深さはわずか2.0 μm ほどであるが、5Gで使用される高周波数帯では、表皮深さはさらに浅くなる。プリント配線板では銅箔と基材樹脂の密着性を高めるため、銅箔表面を粗化処理するが、銅箔表面の粗さが表皮深さより大きい場合、信号が散乱し、導体損失の要因となる。一方、銅箔を平滑にすると導体損失を小さくできるが、基材樹脂との密着性が得られにくくなるという課題が生じる。

誘電損失は、基材樹脂の比誘電率 (ϵ_r) の平方根、誘電正接 ($\tan\delta$)、周波数 (f) に比例する。

$$\alpha_d \propto \sqrt{\epsilon_r} \times f / C \times \tan\delta$$

(ϵ_r : 比誘電率、 f : 周波数、 C : 光速、 $\tan\delta$: 誘電正接)

誘電損失 (α_d) の低減には、比誘電率 (ϵ_r) と誘電正接 ($\tan\delta$) を小さくすることが必要である。誘電特性（比誘電率および誘電正接）を小さくするためには、極性基の低減や分極率の小さな官能基の導入による低極性化（例：フッ化ポリイミドなど）、空孔を利用した多孔質化（例：多孔質ポリイミドなど）、剛直な主鎖による分子運動の抑制（例：液晶ポリマー（LCP）など）などが考えられる。

2. 高放熱化

プリント配線板からの発熱は増大の一途をたどっており、放熱をいかに効率的に行うかが製品の良し悪しを決める。その一つの解決策として、基材樹脂にフィラーを分散させることにより伝熱路を形成させ、熱伝導性を高めたコンポジット材料が開発されている²⁾。基材樹脂とフィラーの親和性や樹脂硬化前、成型前のフィラーの分散性を数値化し、開発にフィードバックする取り組みも注目されている。フィラーは高充填させる方が高放熱には効果的であ

るが、機械特性・表面平滑性・加工性などの新たな課題も生じることから、バランスを考えた設計が必要である。

プリント配線板材料の開発課題、評価項目および分析技術

三層構造を有するプリント配線板は、銅箔、接着剤、基材樹脂で構成される (Fig. 2)。各構成部材の開発課題とその評価項目および分析技術について Table 1 に示す。

Table 1 Development issues, items, and analyses of each material of the printed wiring board

Loss	Material	Development issue	Item	Analysis	
Dielectric loss	Base/cover material + filler	Low dielectric constant (Dk) and low dielectric loss tangent (Df)	Dk and Df measurement system	Cylindrical cavity resonator, Balanced-type circular disk resonator	
			Chemical structure	Supercritical methanol decomposition GC-MS, Supercritical methanol decomposition LC-MS, Pyrolysis GC-MS, ¹³ C solid-state nuclear magnetic resonance (NMR), FT-IR	
		Low water absorption	Water absorption rate measurement	Gravimetric analysis (JIS C 6481), Heat evaporation Karl Fischer analysis	
		Low coefficient of thermal expansion	Coefficient of thermal expansion measurement	High sensitivity thermomechanical analysis	
		Suppression of polar group mobility	Molecular mobility	Pulsed NMR	
		Surface roughness	Roughness analysis		Contact-type surface roughness measuring instrument, Confocal microscope
		Low Dk and low Df	Dk and Df measurement system		Cylindrical cavity resonator, Balanced-type circular disk resonator
				Particle size distribution	Laser diffraction analysis, Cross-section scanning electron microscopy (SEM), Image-analysis particle size distribution
			Content		Inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy (ICP-AES), Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS)
Dispersibility base/cover material and filler	Compatibility	Dispersibility		Hansen solubility parameter	
				Ultrasonic spectroscopy, Pulsed NMR, Centrifugal sedimentation, Rheometer	
			Particle size distribution	Laser diffraction analysis, Cross-section SEM, Image-analysis particle size distribution	
High thermal conductivity	Low Dk and low Df	Dk and Df measurement system		Cylindrical cavity resonator, Balanced-type circular disk resonator	
Conductor loss	Surface-treated foil	Low surface roughness	Surface observation	Laser microscope, SEM, Confocal microscope	
			Specific surface area	Gas (Kr) adsorption-desorption isotherm	
—	Interface between base/cover material and surface-treated foil	Adhesion	Adhesion test	Peel test, Surface and interfacial cutting analysis system (SAICAS)	
			Surface analysis	X-ray photoelectron spectroscopy (XPS), Time-of-flight secondary ion mass spectrometry (TOF-SIMS), etc.	
			Surface observation	SEM, Transmission electron microscope (TEM), etc.	

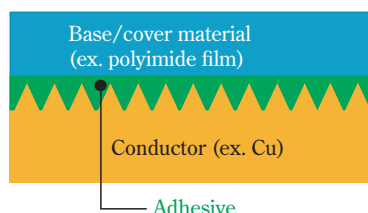


Fig. 2 Schematic view of a printed wiring board

本項では、銅箔の分析事例として比表面積測定による表面形状の粗さ評価、基材樹脂の分析事例としてポリイミドフィルムの誘電特性と化学構造解析について紹介する。

1. 銅箔の分析事例：比表面積測定による表面粗度評価（導体損失）

高周波数帯では表皮効果の影響が無視できないため、銅箔は低粗度が求められる。銅箔表面の観察法としてSEMやAFMがあるが、いずれも銅箔の観察範囲が一部に制限される。また、AFMでは表面凹凸を高低差として数値化できるが、複雑な表面凹凸形状を数値化できないことが課題である。そこで、銅箔の表面凹凸形状を比較的大面積で測定かつ数値化可能なKrガス吸着法による比表面積測定が有効となる。

本試験では箔厚18 μm の原箔、表面処理箔(1)、表面処理箔(2)の3種を用いてKrガス吸着測定を実施した。銅箔は短冊状の形状で合計150 cm^2 を供した。Table 2

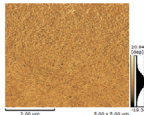
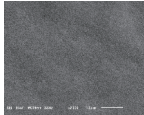
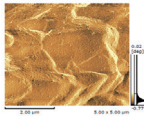
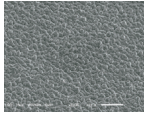
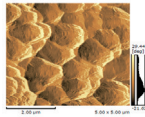
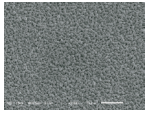
に各銅箔におけるKrガス吸着法の比表面積測定結果およびAFM、SEM観察結果を示す。Krガス吸着法の結果から、2種の表面処理箔の方が原箔より比表面積が大きいことが分かった。これは、SEMおよびAFMによる表面形状観察結果と傾向が一致した。Krガス吸着法は、大きい面積の銅箔表面形状の粗さを数値化できる。

2. 基材樹脂（ポリイミドフィルム）の分析事例：誘電特性と化学構造解析（誘電損失）

ポリイミドはスーパーエンジニアリング・プラスチックの一つであり、その優れた耐熱性、機械特性、電気特性に加え、比較的安価であることから、プリント配線板の基材樹脂として広く利用されている。しかし、高速信号に対しては損失が大きいため、低誘電特性を有するポリイミドが求められている。ポリイミドの低誘電特性化の方法の一つとして低吸湿化が挙げられる。ポリイミドは他の基材樹脂に比べ吸湿性が高く、吸湿状態では誘電特性が悪化することが知られている³⁾。ポリイミドの吸湿性を下げるためには水と相互作用するイミド基の含有率をその化学構造から低減させる必要があり、その一つとして分子量の大きなモノマーを採用する方法が挙げられる。

今回、2種類のポリイミドフィルムについて化学構造解析を実施し、その結果を基にイミド基の含有率を算出し、吸水率および誘電特性との関係性を評価した。ポリイミドの構成モノマーの定性は超臨界

Table 2 Specific surface area and surface observation of raw foil and surface-treated foil (1) (2)

	Gas (Kr) adsorption-desorption isotherm (specific surface area)	Surface observation	
		AFM	SEM
Raw foil	0.018 m^2/g	 Rz: 0.0982 μm Ra: 0.00554 μm	
Surface-treated foil (1)	0.028 m^2/g	 Rz: 0.735 μm Ra: 0.109 μm	
Surface-treated foil (2)	0.046 m^2/g	 Rz: 1.93 μm Ra: 0.232 μm	

AFM: Atomic force microscope, SEM: Scanning electron microscopy, Rz: Surface roughness depth, Ra: Arithmetic average roughness

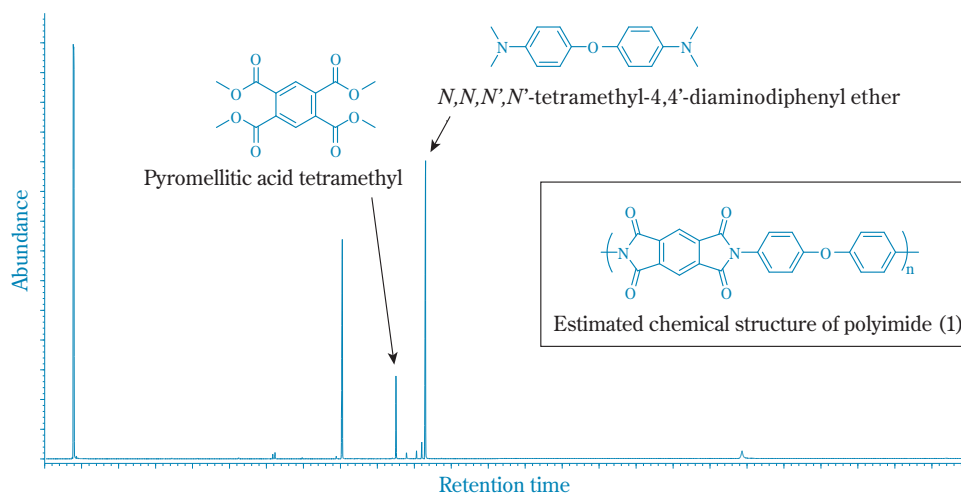


Fig. 3 GC-MS TIC chromatogram of polyimide (1) decomposed by supercritical methanol

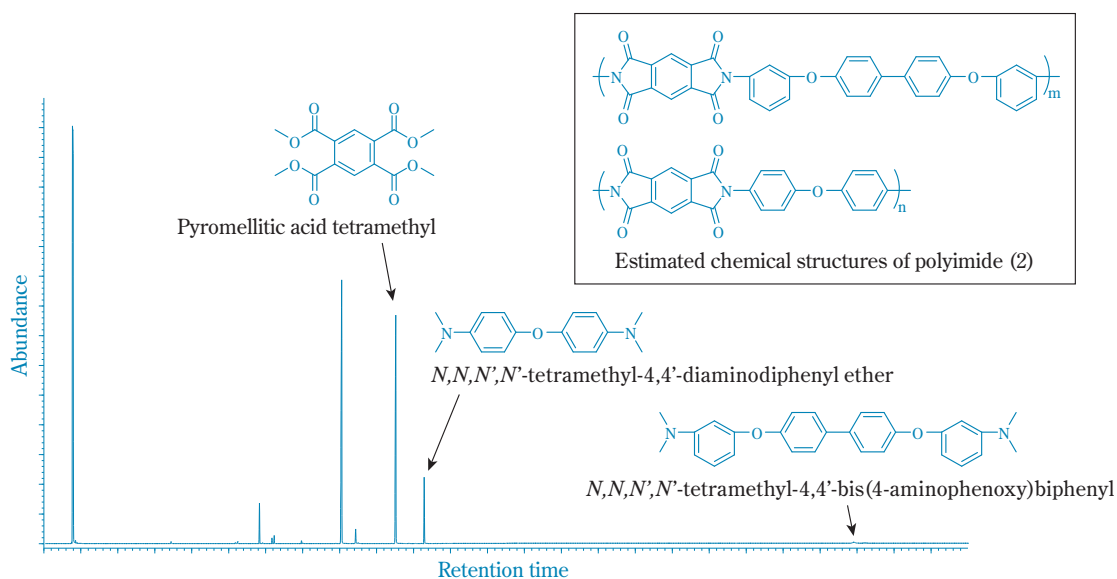


Fig. 4 GC-MS TIC chromatogram of polyimide (2) decomposed by supercritical methanol

メタノール分解GC-MSで行った。超臨界状態のメタノールで処理することによりイミド結合が選択的に切断されるため、モノマーの構造を保持した状態で分解することができる⁴⁾。2種類のポリイミドフィルムの超臨界メタノール分解GC-MSクロマトグラムを**Fig. 3**および**Fig. 4**に示す。**Fig. 3**において、ピロメリット酸（テトラメチル化体）および4,4'-ジアミノジフェニルエーテル（テトラメチル化体）が検出されたことから、ポリイミド(1)は4,4'-ジアミノジフェニル

ルエーテル・無水ピロメリット酸重縮合物であることが推定された。同様に、ポリイミド(2)はポリイミド(1)の重縮合物に加え、4,4'-ビス(3-アミノフェノキシ)ピフェニル・無水ピロメリット酸重縮合物も含まれることが推定された。ポリイミド(2)について、重縮合物のモル比を算出するために¹³C固体NMR測定を行った。その結果を**Fig. 5**に示す。シグナルの積分強度比から、モル比は11:1と算出された。ポリイミドの化学構造から算出したイミド基の含有率を

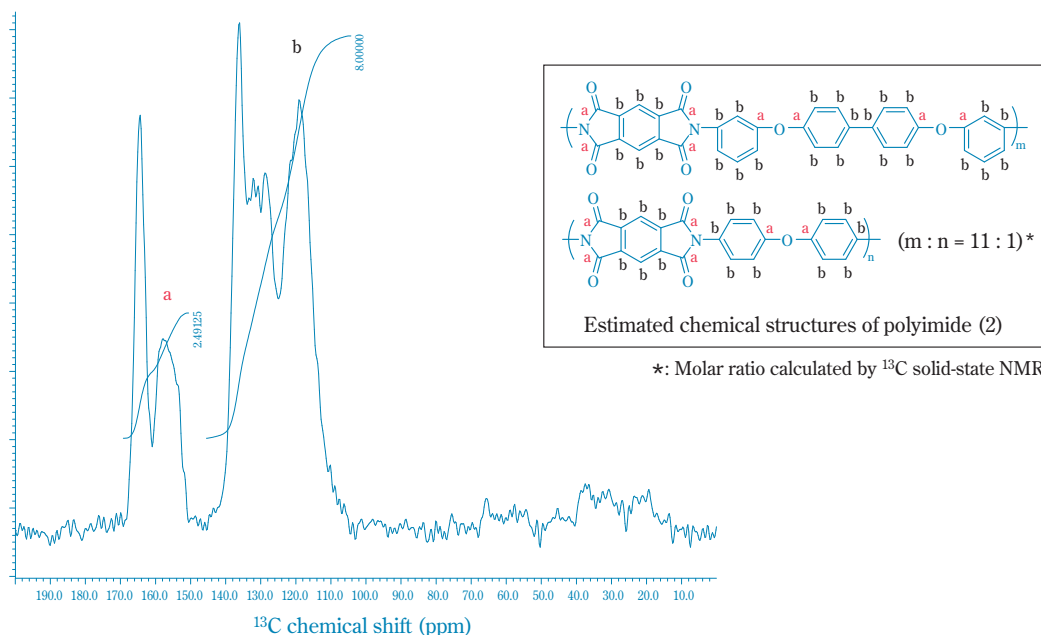


Fig. 5 ^{13}C solid-state NMR spectrum of polyimide (2)

Table 3 Results of physical property measurements and chemical structure analysis of two types of polyimides

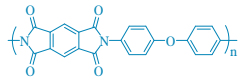
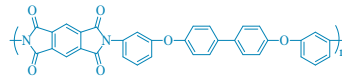
Evaluation item		Method	Polyimide (1)	Polyimide (2)
Physical property measurement	Dielectric constant	Cylindrical cavity resonator (10GHz)	3.33 ± 0.02	2.96 ± 0.01
	Dielectric loss tangent	ASTM D 2520 (JIS C 2565)	0.0256 ± 0.0003	0.0097 ± 0.0002
	Water absorption	Test methods of copper-clad laminates for printed wiring boards JIS C 6481	2.5%	1.4%
Chemical structure analysis	Chemical structure	<ul style="list-style-type: none"> •Supercritical methanol decomposition GC-MS •Supercritical methanol decomposition LC-MS •Pyrolysis GC-MS •^{13}C solid-state NMR •FT-IR 	Polycondensation product: •4,4'-diaminodiphenyl ether •Pyromellitic dianhydride 	Polycondensation product: •4,4'-bis(4-aminophenoxy)biphenyl •Pyromellitic dianhydride 
		Imide group concentration	(Calculated by chemical structure)	36.6 wt%

Table 3に示す。ポリイミド(1)よりもポリイミド(2)の方が分子量の大きなモノマーを採用しており、イミド基の含有率が低いことが分かった。それに伴い、吸水率および誘電特性値も低くなっており、イミド

基の含有率との相関関係が認められた。化学構造と物性は切っても切り離せない関係であり、化学構造を解明することで低誘電特性化に向けた開発指針が得られることを期待する。

おわりに

本稿では、銅箔の表面凹凸形状を、大きい面積で測定可能かつ数値化可能なKrガス吸着法、ポリイミドフィルムの誘電特性と化学構造の関連性について事例を紹介した。当社では他にも**Table 1**に示したような幅広い分析・評価技術を保有している。これらの技術を活用して5G向け材料開発を支援できれば幸いである。

引用文献

- 1) 大野 大典, ネットワークポリマー, 38(6), 277 (2017).
- 2) 馬場 大三, 澤田 知昭, パナソニック電工技報, 59(1), 17 (2011).
- 3) 福永 香, 倉橋 真司, 第21回エレクトロニクス実装学会講演大会論文集, 85 (2007).
- 4) 岡田 明彦 ほか, 住友化学, 2002-I, 4 (2002).