

誘電損失の低減を目指したダブルデッカー型 シルセスキオキサン含有ポリエステルイミド の合成

○佐子奈津子・吉田絵里菜・前田颯・畠山歆・難波江裕太・澤田梨々花・
安藤慎治・早川晃鏡（科学大物質理工）

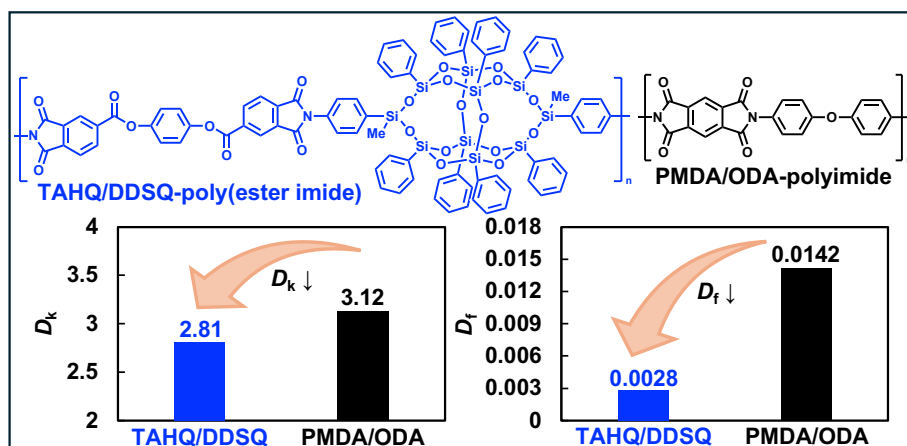
次世代移動体通信技術（5G, 6G）では、GHz～THz 帯の高周波数領域においても安定に動作する低誘電率（ D_k ）かつ低誘電正接（ D_f ）を示す高分子絶縁材料の開発が強く求められている。ポリイミド（PI）は優れた耐熱性や微細加工性から、半導体素子の層間絶縁膜として広く用いられてきたが、芳香族系 PI は極性の高いイミド基に起因して高 D_k 、高 D_f を示すことが課題であった。近年では、イミド基の部分置換による高極性官能基の低減や分子運動の抑制を目的としたポリエステルイミド（PEI）が、低 D_f 特性を示す材料として注目されているが、 D_k のさらなる低減には分子構造の一層の工夫が必要である。

本研究では、低誘電損失 PEI の開発に向け、主鎖に多数のケイ素原子を含むダブルデッカー型シルセスキオキサン（DDSQ）を導入した PEI の合成を目的とした。DDSQ は、2つのシルセスキオキサン環が積層された構造を有し、そのかさ高く中空かつ剛直な形状により、PI のモル容積を増加させるとともに、主鎖の分子運動を効果的に抑制することが期待される。

DDSQ 含有 PEI は、エステル結合を有するテトラカルボン酸二無水物（TAHQ）と DDSQ ジアミンを用いて合成し、ガラス基板上に塗布した後、段階的な加熱処理によりイミド化を行った。構造は FT-IR により確認し、得られた自己支持性フィルムに対して、10 GHz および 20 GHz での誘電特性測定（TE₀₁₁ モード）ならびに波長 1310 nm における面内屈折率（ n_{TE} ）測定を行った。その結果、TAHQ/DDSQ-PEI は、汎用の全芳香族系 PI（PMDA/ODA-PI、 $D_k = 3.12$ 、 $D_f = 0.0142$ 、 $n_{TE} = 1.691$ ）と比較して、 $D_k = 2.81$ 、 $D_f = 0.0028$ 、 $n_{TE} = 1.563$ と、低誘電特性および低屈折率を示した。これらの改善は、DDSQ のかさ高さに起因するモル容積の増加と単位体積あたりの電子分極率の低下により D_k が低下し、また DDSQ の剛直性に起因する分子運動性の抑制により D_f が低下したことを示している。

DDSQ 含有 PEI は、エステル結合を有するテトラカルボン酸二無水物（TAHQ）と DDSQ ジアミンを用いて合成し、ガラス基板上に塗布した後、段階的な加熱処理によりイミド化を行った。構造は FT-IR により確認し、得られた自己支持性フィルムに対して、10 GHz および 20 GHz での誘電特性測定（TE₀₁₁ モード）ならびに波長 1310 nm における面内屈折率（ n_{TE} ）測定を行った。その結果、TAHQ/DDSQ-PEI は、汎用の全芳香族系 PI（PMDA/ODA-PI、 $D_k = 3.12$ 、 $D_f = 0.0142$ 、 $n_{TE} = 1.691$ ）と比較して、 $D_k = 2.81$ 、 $D_f = 0.0028$ 、 $n_{TE} = 1.563$ と、低誘電特性および低屈折率を示した。これらの改善は、DDSQ のかさ高さに起因するモル容積の増加と単位体積あたりの電子分極率の低下により D_k が低下し、また DDSQ の剛直性に起因する分子運動性の抑制により D_f が低下したことを示している。

【謝辞】 DDSQ 誘導体は JNC(株)から提供されたものを用いた。



1) J. Hecht, *Nature*, **2016**, 536, 139.

2) R. Sawada, S. Ando, *J. Phys. Chem. C*, **2024**, 128, 6979.

3) M. Hasegawa *et al.*, *Polym. Advan. Technol.*, **2020**, 31, 389.

4) N. Sashi *et al.*, *J. Photopolym. Sci. Technol.*, in press.