

1. 緒言

ポリイミドは、1960年代に、米国デュポン社が工業化に成功して以来、多くの変遷をたどり、現在では電気電子材料分野に用いられるプラスチックとして重要な地位を占めるに到っている。最近では、ICパッケージや電気回路実装の小型化を進めるキーとなる材料として、従来の耐熱性と高強度に加え、新たに高寸法安定性や易加工性、高電気信頼性などの特性が注目されている。本発表では、特にポリイミドフィルムの開発動向と市場状況について述べる。

2. ポリイミドフィルムの市場

ポリイミドフィルムは、当初は航空機や重電分野に用いられる特殊電線の被覆テープとして利用されていた。米国及び欧州の市場では現在もこの分野での使用量が殆どを占めている。テープ状にスリット加工されたポリイミドフィルムを導線に巻き付けて絶縁層とする。この時、熱融着層としてフッ素系樹脂と積層して用いられる事が多い。

一方、日本市場においては、フレキシブルプリント回路基板（FPC）のベース材料としての利用がその殆どを占めている。これは、欧米における航空機産業の位置づけと、日本での家電産業の国際競争力とがその理由であると考える。

FPC市場に於けるポリイミドフィルム使用量は、FPCの普及増大に伴い年率10%程度の着実な成長を遂げつつある。全世界のポリイミドフィルム使用量の約半量を日本市場で占めるに到っているものと推定される。fig-1に、ポリイミドフィルムの国内出荷推移（推定）を示す。

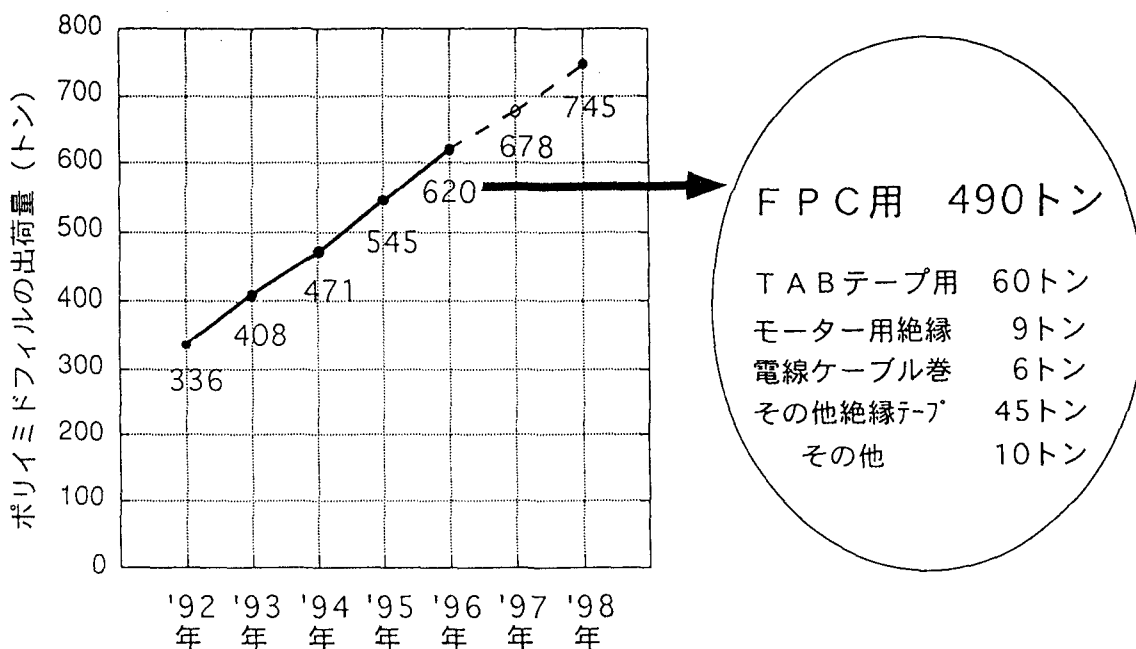


fig-1.ポリイミドフィルムの国内出荷推移

3. フレキシブルプリント回路基板 (FPC) の変遷

FPCの代表的な構造は、ポリイミドフィルム上に接着剤を介して銅箔を貼り合わせた後、この銅箔をエッチングする事により電気回路を形成し、さらに、この上に接着剤を塗布したポリイミドフィルムを、回路保護の目的で貼り合わせて得られる。fig-2にFPCの概念図を示す。

FPCとは、RPC (リジッドプリント回路基板) に対する名称で、折り曲げ或いは、繰り返し屈曲を必要とする際に用いられる。耐熱性が不要な場合にはポリイミドではなくPETフィルムを使用する。

FPCは当初、折り畳み収納可能な利点を活かし、カメラ等の配線やフラットケーブルの軽量化に利用されていた。その後、技術の進歩とコンピューターの普及、特にHDD (ハードディスクドライブ) と (FDD (フロッピーディスクドライブ) の普及が進み、本格的な実装基板としての利用が定着するに到っている。

RPCに比較すると、FPCの課題としては、製造工程が複雑であることに起因する高コストと、原料ポリイミドフィルムの寸法変化が、回路パターンのファイン化を妨げていることが挙げられる。以下、このFPCのファインパターン化を進めるための、ポリイミドフィルムの寸法安定性について述べる。

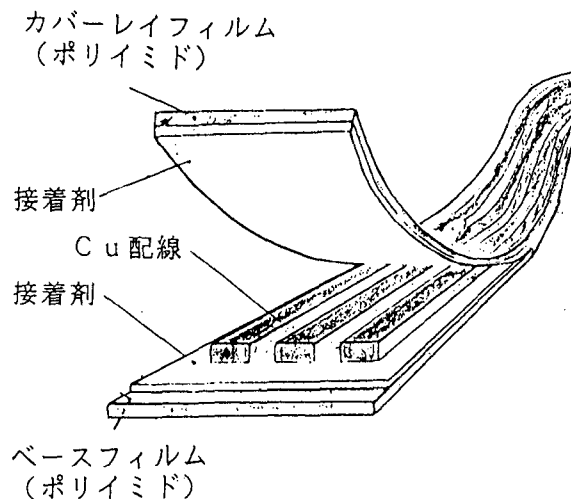


fig-2. F P C の概念図

4. FPCのファインパターン化を進めるためのポリイミドフィルムの品質設計

FPCのファインパターン化を阻害する要因の一つに、FPC製造工程中に於けるポリイミドフィルムの寸法変化がある。FPC製造工程中では、ポリイミドフィルムはロールトゥロールにて連続的に処理される。この時のテンションによる寸法変化のバラツキ (機械長手方向の伸びと幅方向の縮み) がファインパターン回路設計を困難にしている。また、このFPC製造工程中ではフィルム/銅箔積層体は、高温 (接着剤の硬化温度) 及び吸脱湿 (エッチング工程) の環境下にさらされる。この時の、ポリイミドフィルムと銅箔の寸法変化量の差が、応力歪みとしてフィルム内に蓄積される。この応力歪みが解放されると、初期設計回路とのズレを生じる。

以上を、数式として整理したものを、fig-3に示す。MD方向とは、機械流れ方向即ちフィルム長手方向を意味する。TD方向とはフィルム幅方向を意味する。これより分かるように、ポリイミドフィルムの線膨張係数及び弾性率を銅箔に近づけることが重要である。

しかしながら、一般的にフィルムに低線膨張係数を付与すれば、その可撓性 (フレキシビリティ) が阻害される。FPCのベースフィルムとしては、この矛盾する二つの

性質、低線膨張係数とフレキシビリティを両立させる必要がある。

これを解決するために各種共重合法について検討した結果の一例について、以下に紹介する。

MD方向の寸法変化

$$= - \left[+ \left(\frac{1}{E_f} - \frac{1}{E_c} \right) \sigma + (\alpha_f - \alpha_c) \Delta T + (a_f - a_c) P \right]$$

$$= - \left[+ \frac{\sigma}{E_f} + (\alpha_f - \alpha_c) \Delta T + a_f P \right]$$

TD方向の寸法変化

$$= - \left[- \left(\frac{\gamma_f}{E_f} - \frac{\gamma_c}{E_c} \right) \sigma + (\alpha_f - \alpha_c) \Delta T + (a_f - a_c) P \right]$$

$$= - \left[- \frac{\gamma_f \sigma}{E_f} + (\alpha_f - \alpha_c) \Delta T + a_f P \right]$$

材料物性

E : 弾性率
 α : 1°C当たりの熱膨張率
a : 圧縮に関する実験定数
 γ : ポアソン比
添字 f : ベースフィルムに関するもの
添字 c : 銅箔に関するもの

加工条件

σ : テンション
 ΔT : 温度差
P : ニップ圧

fig-3. 寸法変化モデル計算式

5. シーケンスコントロール共重合法について

従来より、一般的に使用されているポリイミドフィルムは、デュポン社により開発されたものであり、ODA（オキシジアニリン）とPMDA（ピロメリット酸二無水物）の重縮合により得られる。現在では、デュポン社、東レデュポン社（カプトン）及び鐘淵化学、KHM社（アピカル）にて製造販売されている。

このODA/PMDA系ポリイミドフィルムは、耐熱性、機械的強度その他において優れた品質バランスを有し、FPCベースフィルムとして広く普及している。しかしながら、ファインパターンを実現するには、その線膨張係数が約30ppmと銅箔の約15ppmと比較して大きいことが課題である。

線膨張係数を小さくする一般的な方法としては、ODA（オキシジアニリン）の一部を剛直構造であるp-フェニレンジアミンに置き換え共重合する事が有効である。しかしながら、こうして得られるポリイミドフィルムは、その破断時伸び率は大きく低下すると共に、フレキシビリティの面でも不十分なものであった。

この問題を解決すべく取り組んだ結果、1分子内に剛直構造を規則正しく配置することにより破断時伸び率やフレキシビリティを大きく損なうことなく、低線膨張係数化を実現できた。この共重合法（シーケンスコントロール共重合法）によるポリイミドフィルムは、現在、アピカルNPIの名称で市販されている。

fig-4に、このアピカルNPIと、従来のODA/PMDA系フィルム（アピカルAH）を用いてFCCL（FPC回路加工前のポリイミドフィルム/銅箔積層板）

を作成した時の寸法変化率の一例を示す。アピカルNPIは、各種の張り合わせ温度条件下で小さな寸法変化を示し、且つ張り合わせ温度の影響を受けにくいことが分かる。

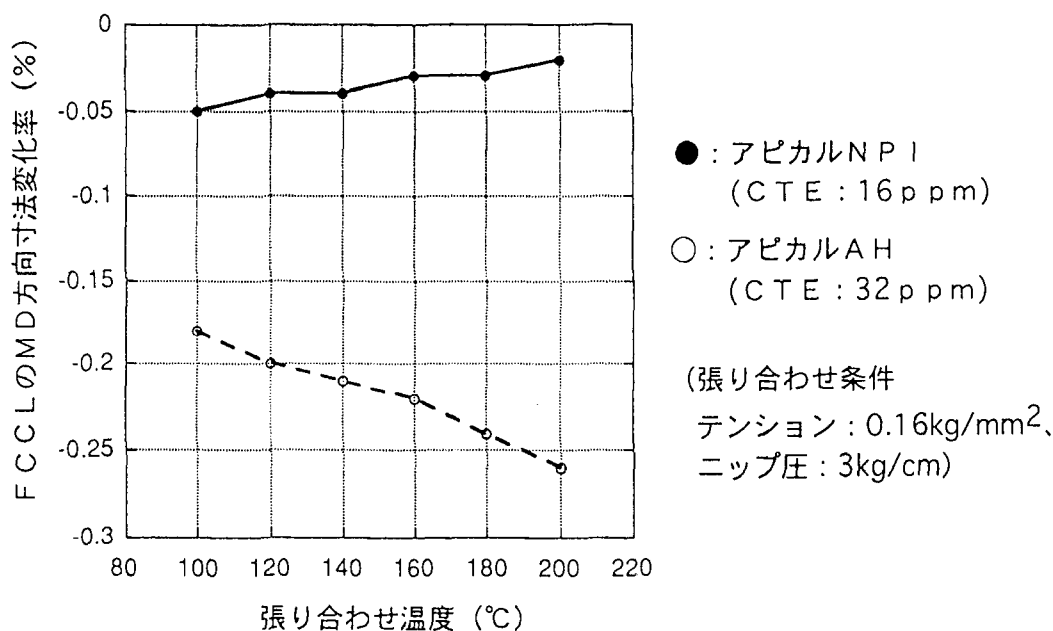


fig-4.銅箔／ポリイミドフィルムの張り合わせ温度とFCC Lの寸法変化率

6. ポリイミドの応用の拡大

6-1) ICパッケージ材料

ICの容量拡大が進む中、チップ面積を最小限に抑える努力が続いている。これに伴い、パッケージに要する面積も最小限にすべく、新たなパッケージ方式の開発が行われている。CSP (Chip Sized Package) と呼ばれ、チップのサイズより拮げることなく封止することを目標とするものである。TBGA方式等もその一例である。

これに用いられるポリイミドには、低吸湿特性や、低線膨張係数等の特性が要求されている。

6-2) ハードディスクワイヤレスサスペンション

コンピューターのハードディスクの読み取りヘッドへの接続回路のベース材料として、ポリイミドが大量に用いられている。この用途では、ヘッドの読み取り応答速度の向上が課題である。これを実現するためには、回路の軽量化が重要である。また、携帯用には消費電力の極小化も必要となる。

このためには、配線回路のファイン化と絶縁層の薄膜化がポイントであり、使用環境変動に対する寸法変化の小さなポリイミドが要望されている。

6-3) その他

高電気信頼性接着剤として、熱可塑性ポリイミドをホットメルトタイプの接着剤として用いる応用例が増えつつある。また、光透過性ポリイミド、光反応性ポリイミドなどの実用化も着実に増加している。

7. まとめと今後の展望

従来、ポリイミドは、その高いガラス転移温度と熱分解開始温度により、所謂耐熱性プラスチックの頂点に位置する材料として使用されてきた。従ってポリイミドの示す高耐熱性や高強度の発現機構については多くの研究がなされている。

一方、近年に至り、その特徴として、比較的低いガラス転移温度を有する特定構造のポリイミドにおいて、ガラス転移温度近辺の条件下で使用する際、他のプラスチックに比べ長時間の使用に耐えうるとの性質が利用されるようになってきている。この特異的な性質の発現機構に関する研究が待たれる。

また、光反応性や光透過性等の機能付与の検討が進むものと考えられる。こうしたポリイミドの利用が進み市場規模も拡大するものと期待する。これを支える生産技術の進歩と相俟って、ポリイミドの有用な特性が広く利用され、社会の進歩に貢献できれば幸いである。

以上