熱硬化型PPE樹脂積層板の高周波領域の誘電特性の安定性

新井 雄史*, 横山 秀久*, 木下 昌三*, 片寄 照雄*

Stability of Dielectric Characteristics of Thermosetting PPE Resin Laminate

Takeshi ARAI*, Hidehisa YOKOYAMA*, Shozo KINOSHITA* and Teruo KATAYOSE*

*旭化成工業株式会社製品技術研究所 (〒210 神奈川県川崎市川崎区夜光1-3-1)

*Designed Products Laboratory, Asahi Chemical Industry Co., Ltd. (1-3-1 Yako, Kawasaki-ku, Kawasaki-shi, Kanagawa 210)

概要 耐熱性および優れた誘電特性を有するプリント配線板材料として熱硬化型PPE樹脂S4100を開発した。S4100とガラスクロスを用いて銅張積層板を作成し特性を調べたところ、S4100積層板は2GHzにおける比誘電率が3.36、誘電正接が0.004と良好な高周波特性を有し、かつガラス転移温度が200℃とポリイミドに次ぐ高い耐熱性を合わせ持つ材料であることがわかった。材料の絶縁信頼性の尺度の1つとしてGHz領域の誘電特性の安定性が重要であると考え、S4100積層板の誘電率、誘電正接の温度依存性と加湿条件下での特性変化を調べ、FR-4積層板およびフッ素樹脂積層板と比較した。S4100積層板の誘電率、誘電正接の温度依存性は小さく、代表的な低誘電率低損失材料であるフッ素樹脂積層板以上の安定性を有していた。プレッシャーコッカーによる加湿に対する誘電特性の安定性の評価では、吸水率が0.2%とFR-4積層板の0.9%より小さいため、誘電率、誘電正接の変化が小さかった。この加湿条件ではFR-4積層板にはんだ耐熱試験でふくれが発生したが、S4100積層板には問題は発生しなかった。伝送損失測定により、0.8~4GHzの周波数領域ではS4100積層板がフッ素樹脂積層板と同等の低伝送損失であることがわかった。高速デジタル回路板や高周波通信機器の基板などに有用な材料であることが確かめられた。

Abstract

Thermosetting PPE resin S4100 was developed as an insulating material for printed circuit boards, which has both high glass transition temperature and excellent dielectric characteristics. S4100 laminate produced by using E-glass cloth was evaluated and found to have both superior dielectric properties, such as $\epsilon_r=3.36$, $\tan \delta=0.004$ at 2GHz, and high T_g of 200℃ which is comparable to polyimide laminate. The dependence of dielectric constant and dissipation factor on temperature, and their stability under humidified condition were evaluated and the results were compared with FR-4 and polytetrafluoroethylene(PTFE) laminate based on the idea that stability of dielectric characteristics at GHz region is an important measure of insulation reliability of insulating materials. Dielectric characteristics of S4100 laminate were found to be more stable than PTFE laminate having lower dielectric constant and dissipation factor, under temperature change ranging from -20℃ to 80℃ because of high glass transition temperature of S4100 laminate. Furthermore, S4100 laminate showed smaller change in dielectric constant and dissipation factor under the condition of humidified in pressure vessel because S4100 had low water absorption of 0.2% by weight. Moreover, S4100 laminate had no blistering in solder bath after the test. On the other hand, FR-4 showed high water absorption of 0.9% by weight and blistering in solder bath under the above conditions. The measurement of transmission loss of laminate certified the fact that S4100 laminate has very low transmission loss, which is nearly equal to that of PTFE laminates in the frequency range of 0.8~4GHz. It is confirmed that S4100 is a useful material for the application to PWB's of high speed digital circuits and high frequency communication equipment.

1. まえがき

ポリフェニレンエーテル (PPE) は、低誘電率 ($\epsilon_r=2.45$) かつ耐熱性 (ガラス転移温度 $T_g=210^\circ\text{C}$) の樹脂として知られている。熱可塑性でしかも耐溶剤性に乏しいPPEを熱硬化性にし、プリント配線板材料に用いようとする試みが行われており、エポキシ樹脂とのポリマーアロイが実用化されている。この方法によると、エポキシ樹脂積

層板の $\epsilon_r=4.7\sim 5.0$ (1MHz), $\tan \delta=0.015\sim 0.019$ (1 MHz), $T_g=160^\circ\text{C}$ に対し $\epsilon_r=3.9\sim 4.3$, $\tan \delta=0.01\sim 0.015$, $T_g=190\sim 200^\circ\text{C}$ と改善されるが、エポキシ樹脂の特性が色濃く現れ、特に誘電特性はエポキシ樹脂に近いものになってしまう。われわれは低誘電率 ($\epsilon_r=3.0\sim 3.5$; Eガラスクロスを用いた積層板としての値, 以下同様), 低誘電正接 ($\tan \delta=0.002\sim 0.003$) かつ耐熱性 ($T_g=230\sim 250^\circ\text{C}$) を有する熱硬化型ポリフェニレンエーテル (PPE)

樹脂を開発し、その物性、多層配線板材料としての加工性および信頼性についてすでに報告した^{1),2)}。今回さらに0.8～10GHzの高周波領域の誘電正接を特に小さくすることに重点を置いて材料設計に検討を加え、従来最高性能として知られるフッ素樹脂積層板に匹敵する低伝送損失の熱硬化型PPE樹脂材料[S4100]を開発したので、これを用いた銅張積層板の高周波領域の誘電特性とその特性の安定性について報告する。

絶縁材料に信号の高速伝送に有利なように低誘電率が要求される高速デジタル回路では、マイクロプロセッサの動作周波数が200MHzを超えるようになったため、材料の誘電特性はその5次高調波である1GHz以上までが評価の対象になってきた。1GHz付近の材料の損失は信号の立ち上がり立ち下がりの波形のなまりとしてLSIの動作に影響を与える。携帯電話、交換機などの通信機器では大容量化、高速化のため搬送波の周波数が相次いでGHz領域に移行しつつあり、この領域で比較的材料の損失が大きくなって無視できなくなるために誘電特性が重要な設計パラメータと考えられるようになった。すなわち、これらの用途においてはGHz領域の材料の伝送損失が小さいことが必要となる。われわれが新たにS4100を開発したのは、この要求に応えるためである。樹脂材料の設計が積層板の伝送損失に及ぼす影響を検討することにより、開発に成功した。

材料の誘電特性は当然優秀であることが望ましいが、温度、湿度といった変化しやすい外部の要因に対して誘電特性が変動すると機器の動作に支障を生じる可能性を考慮する必要がある。著者らは、特にGHz領域で用いられる優秀な誘電特性が必要とされる絶縁材料に対しては、誘電特性の安定性は絶縁信頼性の重要な尺度であると考え、S4100積層板のGHz領域の誘電特性と、その温度依存性および加湿条件下での特性変化を、代表的な配線板材料であるFR-4積層板およびフッ素樹脂積層板と比較して検討した。

2. 実験

2.1 GHz領域の誘電特性の測定方法

試料の誘電率は、被測定積層板により図1に示すトリプレットストリップライン共振器を構成し、共振周波数 f_0 と縁端効果を補正した実効的なストリップ長 L から式(1)を用いて求められる。縁端効果の補正量は、相異なるストリップ長の2組の共振器の共振周波数 f_0 の比較から求めた。誘電正接は同じ共振器を用い、田中らの損失分離法³⁾に従って共振器のQ値から求めた。この方法を用いた理由は、田中らが銅箔の電気導電率は銅箔の品質に著しく依存するという結論を得ていることから、銅箔の電気導電率を実験により決定する本法によらなければ低損失材料の誘電正接を正確に評価することは困難であると考えたためである。田中らの損失分離法は高精度であること、プリント配線板用の積層板をなんら実質的な加工を必要とせず、そのまま

試料に用いることができること等、優れた特徴を有している。共振周波数およびQ値の測定には横河ヒューレット・パッカートのネットワークアナライザHP8510Bシステムを用いた。HP8510Bにより直接測定される共振器の共振特性の例を図2に示す。寸法の異なる複数の共振器を用意し、それぞれについて各共振ピークの共振周波数 f_0 、減衰率 α 、共振の半値幅 $\Delta f/f_0$ を測定すれば損失分離法により誘電正接を決定することができる。

図1. ストリップライン共振器の構造

図2. S4100積層板で構成したトリプレットストリップライン共振器の共振特性 (挿入図は1つの共振ピークの頂上付近の拡大模式図)

$$\epsilon_r = m^2 c^2 / 4L^2 f_0^2 \quad \dots\dots\dots (1)$$

c ; 真空中の光速 $3.0 \times 10^8 \text{ m/s}$
m ; 共振次数 1, 2, 3, $\dots$

誘電率，誘電正接の温度依存性の測定は -20°C と 80°C の間で行った。測定は試料をネットワークアナライザに接続し， f_0 とQ値を観測しながら，試料をドライアイスで冷却あるいはリボンヒータで加熱し，試料に密着させた熱電対で温度を調べるにより行った。

加湿条件下での誘電率，誘電正接の安定性を評価するためにプレッシャークッカー試験を実施した。加湿条件は 121°C ，2気圧，相対湿度100%とした。加湿は6時間行い，プレッシャークッカーから取り出した試料を 23°C ，相対湿度50%の環境に1時間放置した後測定に用いた。加湿後の試料については，はんだ耐熱試験も実施した。はんだ耐熱試験の条件は 260°C ，120秒とした。

伝送損失の測定は，トリプレート構造の特性インピーダンス 50Ω の伝送路を作成し，ネットワークアナライザで直接に高周波信号の減衰量を調べるにより行った。試料単位長さ当たりの減衰率を決定するにあたっては，コネクタの結合損失の影響を除くために伝送路長として10cmおよび5cmの2種類の試料を用意し，式(2)に従って求めた。

$$\text{単位長さ当たりの減衰率} = (10\text{cm試料の損失} - 5\text{cm試料の損失}) / (10\text{cm} - 5\text{cm}) \quad \dots\dots\dots (2)$$

2.2 試料

熱硬化型PPE樹脂S4100積層板は，樹脂を有機溶剤によりワニスとし，ガラスクロスに含浸，乾燥した後銅箔と重ね合わせて加熱プレスするという通常の銅張積層板製造プロセスにより作成した。ガラスクロスとしてはプリント配線板に用いる際のドリル加工性を考慮し，FR-4銅張積層板に一般的に用いられているEガラスクロスを使用した。

用いた各種試料の電気用銅張積層板としての一般的な特性値を，表1に示す。S4100積層板は，誘電正接が $0.0017 \sim 0.0020$ とフッ素樹脂積層板の $0.0010 \sim 0.0015$ に近い，きわめて良好な値を示している。 $T_g = 200^\circ\text{C}$ は，FR-4の T_g (160°C)を上回り，ポリイミド($T_g = 250^\circ\text{C}$)に次ぐ良好な値である。S4100は低誘電率，低誘電正接と耐熱性を兼ね備えたユニークな材料である。すべての試料の厚みは 0.8mm とした。誘電率，誘電正接の測定用試料は，両面銅

表1. 銅張積層板の特性値

	S4100	フッ素樹脂	FR-4
比誘電率 (1MHz)	3.4~3.6	2.5~2.7	4.7~5.0
誘電正接 (1MHz)	0.0017~0.0020	0.001~0.0015	0.015~0.019
ガラス転移温度 (DMA) ($^\circ\text{C}$)	200	25	160
銅箔引きはがし強さ (N/mm)	1600~1800	2200	1900~2300
燃焼性 (UL94)	V-0	V-0	V-0

張積層板として入手したものを，エッチングにより銅箔を完全に取り除いて用いた。ストリップライン共振器のストリップ導体は，厚み $35\mu\text{m}$ の銅箔を必要な形状に切ったものを積層板に貼り付けて形成した。伝送損失測定に使用した試料は，形態を実際に使用される条件になるべく近づけるために，伝送路をエッチングにより形成した。特性インピーダンス Z_0 の設計は式(3)，(4)⁴⁾により行った。

$$Z_0 = 60\sqrt{\epsilon} / \log_e(4b/\pi d) \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$d = (w/2) \cdot \left[1 + (t/\pi w) \cdot (1 + \log_e(4\pi w/t) + 0.51\pi(t/w)^2) \right] \quad \dots\dots\dots (4)$$

- ϵ ; 積層板の比誘電率
b ; ストリップライン伝送路の厚み (mm)
w ; ストリップ導体の幅 (mm)
t ; ストリップ導体の厚み (mm)
d ; ストリップライン伝送路の形状により定まるパラメータ

2.3 測定の精度

誘電率の測定精度は測定時の試料の温度の安定度，共振周波数の精度，ストリップ導体の長さLの精度，およびストリップ導体の縁端効果の見積り精度により支配される。誘電正接の測定精度に影響する因子は，試料の温度の安定度，ストリップ導体の厚みtの精度，共振器の厚みbの精度，および共振半値幅($\Delta f/f_0$)の測定精度である。このうち，共振半値幅は外部要因であるストリップライン共振器の組み付け精度にも影響される。われわれの検討では，本研究の測定における各要因の寄与の大きさは明らかではないが，同一試料の繰り返し測定では比誘電率測定値のばらつきは ± 0.005 程度，誘電正接測定値のばらつきは誘電正接が 10^{-3} オーダーの場合 ± 0.0005 ， 10^{-2} オーダーの場合 ± 0.001 程度である。測定精度についてわれわれは誘電率標準試料の参照は行っていない。田中らはポリエチレン試料の誘電率および誘電正接の値を空洞共振器の結果と比較し，損失分離法と空洞共振器法が同等の測定値を与えることを確かめている³⁾。

伝送損失の測定精度は減衰率の精度により支配される。HP8510Bの較正キットと較正ソフトウェアによる補正を施した状態で，減衰率は $\pm 0.1\text{dB}$ 程度のばらつきを有する。本研究では試料長を10cmおよび5cmとしているので，単位長さ当たりの伝送損失は最も精度が良いときで $\pm 0.02\text{dB/cm}$ 程度の幅を有する。

3. 結果と考察

エポキシ樹脂積層板(FR-4)，フッ素樹脂積層板(PTFE)，および熱硬化型PPE樹脂積層板(S4100)の常温における比誘電率の周波数依存性の測定結果を図3に示す。同じく誘電正接の常温における周波数依存性の測定結果を図4に示す。比誘電率および誘電正接のいずれにおいても，S4100はFR-4より優れていることがわかる。S4100の比誘

図3. 23℃における比誘電率の周波数依存性

図4. 23℃における誘電正接の周波数依存性

電率は0.8～10GHzの周波数範囲でほぼ一定値を示している。FR-4はこの範囲で0.3程度比誘電率が変化する。つまりS4100は使用周波数が変わっても特性インピーダンスに影響が出ないので、FR-4に比べ設計を共通化しやすいというメリットがある。S4100の誘電正接はPTFEに近い。周波数依存性も比較的フラットであり、周波数変更時の設計への影響は小さいと考えられる。FR-4積層板で構成したストリップライン共振器のQ値が5 GHz以上の周波数では50を下回るようになるため測定が困難になり、5 GHz以上の領域のFR-4の誘電正接の正確な値は求められなかった。

2 GHzにおける各材料の誘電率および誘電正接の温度依存性をそれぞれ図5および図6に示す。本研究の測定温度範囲ではS4100のみ、比誘電率が不変であった。フッ素樹脂積層板の誘電率の20℃付近における階段状の変化は、フッ素樹脂のガラス転移によるものである。温度特性が重要な用途では、この急激な変化を十分に見込む必要があると考えられる。この誘電率の階段状変化は、小林らによるフッ素樹脂積層板の平衡形円板共振器による精密な複素誘電率測定においてすでに見いだされているものと同様である⁵⁾。FR-4の比誘電率の緩やかな変化は、エポキシ樹脂の熱膨張に由来するものと考えられる。FR-4およびS4100のガラス転移温度は、それぞれ160℃および200～220℃なので、ガラス転移温度が測定温度範囲により近いFR-4の方に熱膨張の影響が大きく現れたものと考えられる。誘電正接の温度依存性は、フッ素樹脂積層板およびS4100積層板ではほとんどなく、FR-4積層板では明瞭である。FR-4積層板はもともと誘電正接が大きい上、温度依存性があるので、2 GHz以上の周波数での使用には基本的に不向きであると考えら

図5. 比誘電率の温度依存性 (2GHz)

図6. 誘電正接の温度依存性 (2GHz)

れる。

2GHzで測定したプレッシャークーラー試験前後の誘電特性の変化、および吸湿後のはんだ耐熱試験の評価結果を表2に示す。3種類の材料を比較すると、FR-4積層板は最も吸水率が大で、誘電率、誘電正接の変化も大きい。フッ素樹脂積層板はこの試験条件では最も特性が安定している。S4100はわずかに誘電正接の増大が認められるが、2 GHzにおいて $\epsilon_r=3.45$, $\tan \delta=0.0068$ は十分良好な値であると考えられる。フッ素樹脂積層板に近い安定した特性であると言える。プレッシャークーラー吸湿後のはんだ耐熱試験では、FR-4にのみふくれが発生した。FR-4の吸水率が0.9%とS4100の0.2%、PTFEの0.0%に比べ大きいことが、誘電特性にもはんだ耐熱性にも影響している。

図7に、室温で測定した各材料の伝送損失の周波数依存

表2. プレッシャークーラー試験前後の誘電特性の変化(2GHz)

測定温度：23℃

	S4100	フッ素樹脂	FR-4
比誘電率 試験前	3.36	2.65	4.20
試験後	3.45	2.65	4.39
誘電正接 試験前	0.0040	0.0013	0.0166
試験後	0.0068	0.0013	0.0277
吸水率 %	0.2	0.0	0.9
吸湿後はんだ耐熱性 260℃、120秒	OK	OK	ふくれ発生

図7. 伝送損失の周波数依存性

性を示す。測定精度の範囲内（±0.02dB/cm）で、S4100積層板の伝送損失は、4 GHz程度まではフッ素樹脂積層板と同等であると考えられる。S4100積層板は10GHzまで0.1dB/cm以下の低伝送損失であり、高周波用プリント配線板用として好ましい材料であることがわかった。

S4100積層板とフッ素樹脂積層板を比較した場合、特に低い周波数側では各材料の誘電正接および誘電率の値の差ほどには伝送損失の差は現れていない。著者らはプリント回路上の信号の伝送損失 α_{total} は材料の誘電率の平方根と誘電正接の積に比例する誘電体損失 $\alpha_{\text{dielectric}}$ が主であると考えていたが、表2に示した2 GHzにおけるS4100とPTFEの比誘電率および誘電正接の値を用いると、S4100積層板の損失はPTFE積層板の損失の3.5倍と計算されるので、この考えでは実測値を説明しにくい。プリント回路のもう一方の損失要因である導体損失 $\alpha_{\text{conductor}}$ も無視できるほどには小さくないと推定される。式(5)、(6)、(7)に示すとおり誘電体損失は周波数に比例し、導体損失は周波数の平方根に比例することが知られている⁴⁾。実測値の低周波側で、導体損失の寄与が比較的大きく見られることと定性的に一致する。これらのことから、低損失材料については、材料の誘電率、誘電正接を知るだけでは損失挙動の推定を完全に行うことはできないと考えられる。損失測定を精度良く行い、かつ環境に対する安定性の評価を実施して、実際の高周波回路における信号損失挙動の安定性を材料の特性値から定量的に議論することが、絶縁信頼性の観点からも今後必要になると考えられる。

$$\alpha_{\text{total}} = \alpha_{\text{dielectric}} + \alpha_{\text{conductor}} \quad (5)$$

$$\alpha_{\text{dielectric}} = 27.3 \cdot f \cdot \sqrt{\epsilon} \cdot \tan \delta / c \quad (6)$$

$$\alpha_{\text{conductor}} = \frac{2.02 \times 10^{-6} \sqrt{\epsilon} \sqrt{f} Z}{b} \left[\frac{1}{1-t/b} + \frac{2w/b}{(1-t/b)^2} + \frac{1+t/b}{\pi(1-t/b)^2} \log_e \left(\frac{1}{1-t/b} + 1 \right) \right] \quad (7)$$

f ; 周波数 (Hz)

c ; 真空中の光速 (cm/s ; 損失をdB/cmで表示する場合)

Z ; ストリップラインの特性インピーダンス (50Ω)
(他の記号は図1と同じ)

4. 結論

高耐熱性、かつ良好な誘電特性を有する熱硬化型PPE樹脂S4100を開発した。S4100の積層板について0.8~10GHzにおける誘電率、誘電正接を測定し、それらの温度および湿度に対する安定性を評価した。FR-4積層板、フッ素樹脂積層板と比較したところ、S4100積層板はフッ素樹脂積層板に近い性能、および安定性を有することが確認された。伝送損失を測定したところ、S4100積層板は、4 GHz程度までフッ素樹脂積層板に匹敵する低伝送損失であることがわかった。

謝辞

本研究における高周波測定の治具を設計し、測定全般を実施した樋山豊一氏（旭化成工業）に感謝いたします。

(1994.12.8－受理 1995.1.23－再受理)

文 献

- 1) Hiroji Oda, Takeshi Arai, Haruhisa Sasaki, Teruo Katayose: "Unique Allylated Polyphenylene Ether for Low Dielectric Printed Circuit Boards", Proceeding of Printed Circuit World Convention VI, T6-1 (1993)
- 2) 新井雄史, 小田弘治, 片寄照雄: "低誘電率プリント配線板用アリル化ポリフェニレンエーテル", サーキットテクノロジー, 9 (6), 429 (1994)
- 3) Hiroyuki Tanaka and Fumiaki Okada: "Precise Measurements of Dissipation Factor in Microwave Printed Circuit Boards", IEEE Transaction on Instrumentation and Measurement, 38 (2), 509 (1989)
- 4) Harlan Howe, Jr.: "Stripline Circuit Design", Chapter 1, Artech House (1974)
- 5) 小林禧夫, 于 静: "平衡形円板共振器による複素誘電率の自動測定", 電子情報通信学会技報マイクロ波MW91-17, 5月, (1991)