

令和 6 年 6 月 24 日現在

機関番号：30108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04713

研究課題名（和文）ナノインプリント法を用いた超微細配線の創製

研究課題名（英文）Ultrafine Pattern Forming of Organic Substrate Using Nanoimprint Process

研究代表者

見山 克己（Miyama, Katsumi）

北海道科学大学・工学部・教授

研究者番号：70540186

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：プリント配線板の高密度化について、現状の製造技術では配線導体幅 $3\mu\text{m}$ 程度が限界と予想されている。一方半導体の実装端子がますます狭ピッチ化する中、これに対応するサブストレートには配線幅 $1\mu\text{m}$ クラスの実現が求められる。本研究では樹脂の熱可塑性を利用してナノインプリントにより微細な溝（トレンチ）を形成し、そこに金属銅を充填することで $1\mu\text{m}$ 幅の導体を形成することを試みた。樹脂の動的粘弾性挙動測定からナノインプリント条件を適正化するとともに、前処理を含めた銅めっき条件の検討を行った。その結果、導体幅/間隙（Line/Space） $1\mu\text{m}/1\mu\text{m}$ の配線となる金属導体を形成することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現状のICパッケージ基板の最小線幅は $3\mu\text{m}$ 程度が限界と言われている。一方次世代先端半導体が 2nm 設計ルールで開発が進んでいる中、インターポーザと呼ばれる半導体を実装する基板には $2\mu\text{m}$ 以下の配線幅が要求されている。本研究はナノインプリント技術を応用することにより $1\mu\text{m}$ 幅の配線を樹脂基材に形成する技術確立し、次世代先端半導体を搭載するインターポーザ実現に寄与するものである。インプリントの適正条件を見出すため、樹脂の粘弾性挙動と成形性の関連を明らかにしたとともに、ナノインプリントで形成した溝（トレンチ）を銅めっきにより充填して配線導体とすることに成功した。

研究成果の概要（英文）：High performance and downsizing of electrical devices have been achieved by combining various kinds of technology. For example, using the present photolithography process, the conductive pattern width of printed wiring boards (PWB) is predicted to reach $2\text{--}3\mu\text{m}$. However, there is no solution for less than $1\mu\text{m}$ width fabrication. Therefore, we attempted to apply an imprint technique for fine pattern fabrication. In this study, Poly Phenylene Sulfide Resin (PPS) was investigated regarding the processability of thermal imprinting. Furthermore, the imprinting formability of the materials was discussed, correlating with viscoelastic properties.

研究分野：材料加工

キーワード：ナノインプリント プリント配線板 半導体 微細配線 銅めっき 熱可塑性樹脂

1. 研究開始当初の背景

IoTをはじめとする ICT においては多機能化や大容量の高速通信を実現するため、電子機器は年々配線の高密度化が進行してきている。半導体では数 nm の配線ルールが実用化されているが、電子機器として構成する基幹部品であるプリント配線板の高密度化はそれほど進んでいない。プリント配線板製造技術の 2017 年度版ロードマップによれば、最先端スペックでは配線幅 5 μm 以下が実現される予想になっているものの⁽¹⁾、さらなる微細化には有効な技術的解がまだ存在しないのがその理由である。

プリント配線板の導体パターンは、銅箔や銅めっきを用いて作製される。CAD を用いて設計された 2 次元データを基に、フォトリソグラフィによりレジスト膜を露光・現像後、エッチングやめっきにより配線パターンを形成する。一般的なプリント配線板は「サブトラクティブ法」と呼ばれる工法を用いることが多い。これはパネル全面の銅膜上にフォトリソグラフィによりエッチングレジストを形成し、その後露出した銅膜をエッチングにより除去することで導体パターンを得るものである。一方 IC パッケージ基板などでは更に微細な配線が用いられており、これには「セミアディティブ法 (SAP 法)」が用いられることが多い。この工法は絶縁樹脂上に無電解銅めっきでシード層を形成した後、めっきレジストを形成してパターンめっきを行った後、レジスト除去およびエッチングによるシード層除去を行う工法である。これによれば配線幅 3 μm 程度の配線形成が可能と予測されているものの、それ以上の微細化にはレジストの解像度や密着などの制約条件が存在し、サブミクロンオーダーの配線を形成する手法には現実的な解が見当たらないのが実情である。

2. 研究の目的

この解決手段の一つとして、本研究では熱ナノインプリント技術を応用して 1 μm クラスの配線形成に取り組んだ。熱ナノインプリント技術は、樹脂の熱可塑性を利用してモールド (金型) の凹凸を転写する技術であり、工法としては極めてシンプルである⁽²⁾。これを利用して樹脂基材に微細な溝 (トレンチ) を形成し、そこに金属 (銅) を充填する、いわゆるダマシプロセスを適用することで 1 μm 幅の導体を容易に形成することが期待できる⁽³⁾。本研究では、ナノインプリントの成形性と樹脂の動的粘弾性挙動の相関を明らかにするとともに、熱ナノインプリントおよび銅めっきの最適条件を見出すことを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 基材とモールド

本研究では基材として熱可塑性の PPS (ポリフェニレンサルファイド) を用いた。PPS はスーパーエンジニアリングプラスチックに分類される材料で⁽⁴⁾、現在プリント配線板材料として多く用いられているエポキシ系樹脂に比べ誘電正接が小さいため、高周波信号損失低減が期待できる材料である。インプリント基材として、射出成形により 0.5 mm 厚の板材としたものを用いた。この際、60 (以下“PPS-1”)と 130 (以下“PPS-2”)の金型温度で作製した 2 種類の基材を準備した。成形された板材から 25mm 角に切断してインプリント実験に供した。インプリント条件を決定するにあたり、動的粘弾性測定装置 (DMA) を用いて引張振動 0.5 Hz により基材樹脂の粘弾性挙動を測定した。

インプリントモールドは材質シリコンとし、市販のテスト用モールド (協同国際ナショナル製 DTM-1-2 および DTM2-2) を使用した。前者は線幅/間隙 (以下 L/S) 1.0~50 μm で深さ 5 μm 、後者は L/S 0.5~2.0 μm で深さ 2 μm のトレンチを形成するパターンである。モールドは 25mm 角の中にパターンの異なるブロックが DTM1-2 で 16 ブロック、DTM2-2 で 9 ブロック形成されている。

(2) ナノインプリント装置と手法

熱ナノインプリント装置は SCIVAX 社 X200 を用いた。本装置は上下の熱盤を有し、それぞれ独立した温度設定が可能である。両熱盤の間にモールドと基材樹脂およびダミー盤となるシリコンウエハーとチタンプレートとを配置した (図 1)。これらをセット後、基材樹脂が軟化する温度以上に熱盤を加熱し、所定の加圧力でインプリントを行った。なお、高温での装置および基材の酸化劣化を防ぐため、約 50Pa に減圧してインプリントを行った。

得られたインプリント基材のトレンチ形状は電界放大型走査電子顕微鏡 (FE-SEM, 日本電子 JSM-7001F) を用いて観察を行った。

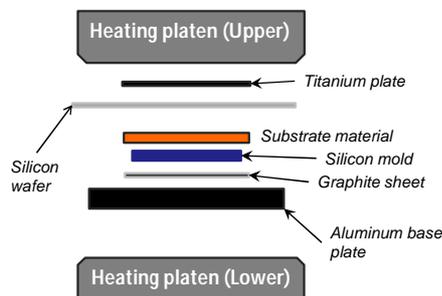


図 1 インプリントの試料・治具配置

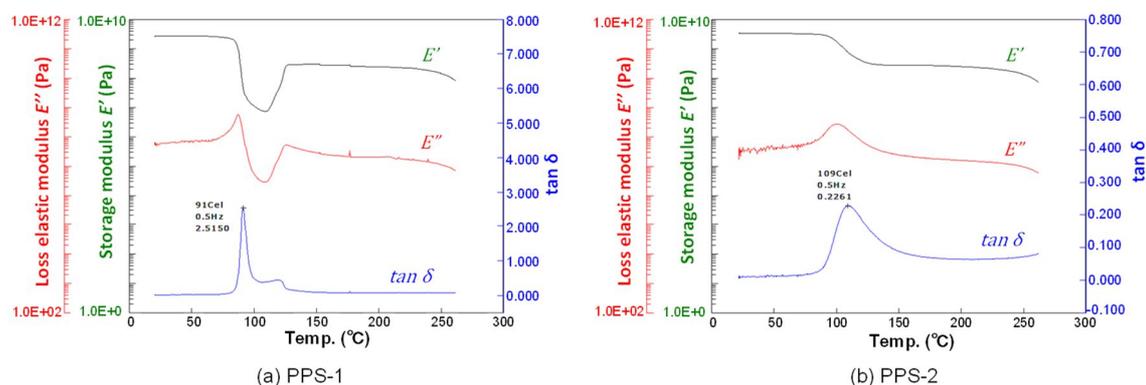


図 2 PPS 材の粘弾性測定

(3) 銅めっきと表層除去

試料表面の付着物等の除去や表面の活性化を目的としてめっき前処理を行った。めっき工程は樹脂上に析出させる無電解めっきとトレンチを充填する電解めっきの2段階で実施した。乾式処理から触媒付与、還元処理まで行った後、無電解銅めっきを温度 32℃、時間を 10 分間実施した。電解めっきは脱脂、酸洗等を行った後、硫酸銅めっきを温度 23℃、電流密度 0.5 A/dm² で 60 分間実施した。最後に表層除去装置を用いて、試料表面に薬液（有機酸-過酸化水素系エッチング液）を高圧でスプレーすることで微細回路内の銅パターンを残した状態で表層の銅めっきのみを除去した。

4. 研究成果

(1) 樹脂基材の粘弾性測定とインプリント条件

本研究で用いた PPS 材の動的粘弾性測定(DMA)の結果を図 2(a), (b)に示す。(a)は PPS-1, (b)は PPS-2 の測定結果である。ヤング率の実数部である貯蔵弾性率 E' は硬さ成分を表し、虚数部である損失弾性率 E'' は粘性成分を表す。また E' と E'' の比である $\tan \delta$ をあわせて示した。通常、熱可塑性樹脂に対する熱ナノインプリントは、硬さと粘性が低下した温度で実施される。本研究で用いた PPS-1 材は 100℃ 近傍の領域で E' と E'' が低下し、その後増加する領域が認められた。低下はガラス転移、増加は冷結晶化に由来し、非晶部の運動性が一度高まりそれにより結晶化が進む⁽⁶⁾。損失弾性率 E'' は前述の通り材料の粘性を表す指標であるので、この領域内で樹脂の流動性が大きくなることが予想される。このことから PPS1 については 110℃ 程度でインプリントを行うことにより、良好な凹凸パターンを形成できると考え、最も損失弾性率 E'' が小さくなっている 108℃ を成形温度としてインプリントを行った。一方 PPS-2 については PPS-1 のような冷結晶化点は見られなかった。射出成形の金型温度が 130℃ であるためすでに結晶化しているためと考えられる。PPS-2 については E'' が室温より減少する 150℃ と融点近傍の 250℃ でインプリントを試みた。なおインプリントの成形圧力はいずれも 5.0MPa とした。

インプリント後の試料表面を SEM により観察した結果を図 3 に示す。PPS-1 の冷結晶化点を利用した(a)は良好なトレンチが形成されているように観察されるが、(b), (c)に示す PPS-2 はいずれの温度においてもトレンチは浅い仕上がりであることが確認された。このことから、粘弾性挙動、特に粘性を表す損失弾性率を基にインプリント温度を設定することの有効性が確認できた。

インプリント成形圧力について、タクトタイムやモールド耐久性の観点からはより低い方が望ましい。PPS-1 材を用いて、インプリント条件の検討を行った。成形圧力は 3.0MPa、3.5MPa、4.0MPa の 3 水準で変化させた。表面観察の結果を図 4 に示す。(c)の 4.0MPa では良好な形状が得られたものの、(a)の 3.0MPa と(b)の 3.5MPa では材料表面に凹凸の発生が認められた。

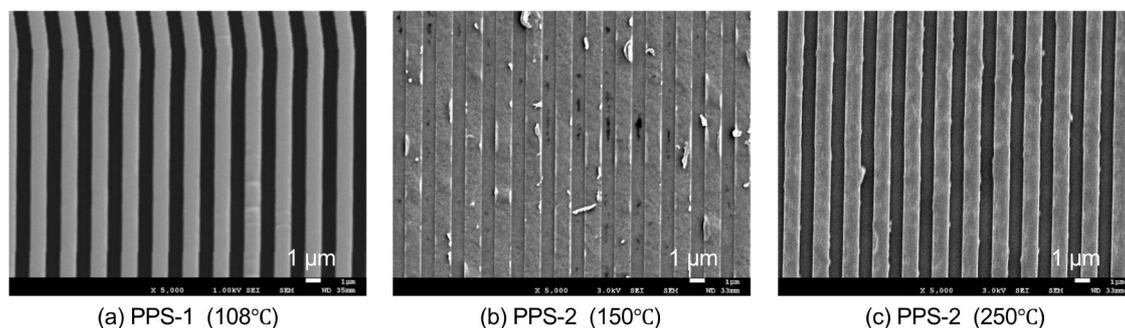


図 3 インプリント後の表面形状(成形圧力 5.0MPa)

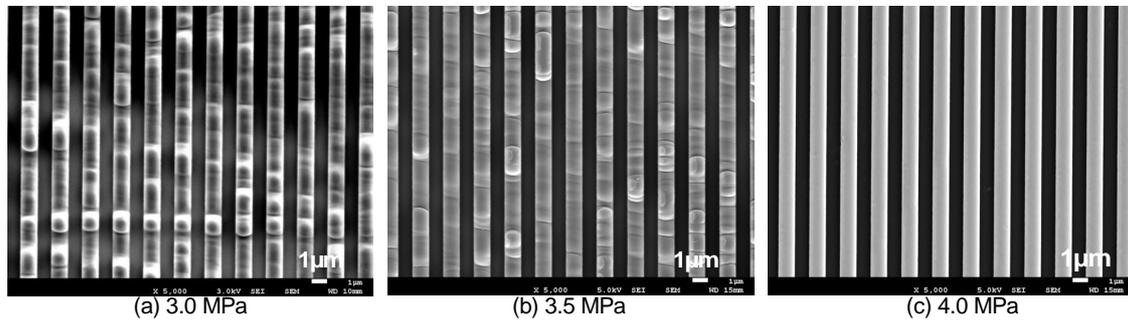


図4 インプリント成形圧力の影響

これは成型時の圧力不足で、樹脂が十分に流動せずモールドに対する追従が不十分であったものと考えられる。これらの結果から、インプリント成形圧力は 4.0MPa 以上で良好な形状が得られることが確かめられた。

(2) インプリント条件の適正化（耐熱性付与）

本研究で用いた PPS-1 材は射出成型時の温度が 60 であるため、室温で非結晶である。前述のとおり冷結晶化点を越えた温度で結晶化が始まるが、この際基材に反りを伴う変形が発生する。プリント基板へ部品を実装するにはリフロー加熱により 250 程度に昇温されるため、耐熱性確保のため基板使用時には結晶化されている必要がある。変形を防ぎつつ結晶化を完了するため、インプリント工程でモールドを保持したまま結晶化を完了するプロセス確立を試みた。

前節の結果から、良好なトレんチを形成できていた 108 /4.0MPa の条件でインプリントを行い、引き続いて結晶化処理を行った。インプリントを行って 300s 経過後に除荷するとともにモールド位置は保持しながら、温度を結晶化温度以上に昇温した。このとき結晶化の温度は冷結晶化点以上でかつ若干余裕をもたせて 180 とした。なお図示しないが結晶化前と結晶化後の外観を比較したところ、結晶化処理を行っていない試料ではインプリント前と同様に樹脂は透明であったが、結晶化処理を行った試料は別に準備した結晶化済みの PPS 材同様白濁していたことから、結晶化が進んでいることを確認できた。

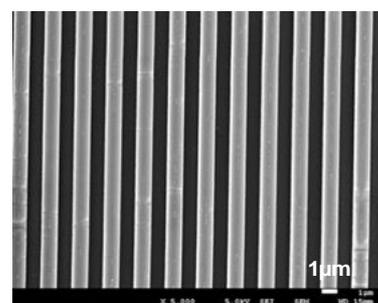
結晶化処理を含めて適正化したインプリント条件で成形した試料の表面観察および断面（深さ）観察の結果を図 5(a), (b) に示す。SEM 観察による計測から深さ 1.93μm が得られ、モールドの設計値である深さ 2μm に相当するトレんチ形成がなされていることが確認できた。また結晶化処理を行うことにより、モールドから基材を離型する際の抜型性が向上した。これは結晶化処理により起こるわずかな体積収縮が寄与したためと考えられる。

(3) 銅めっきと表層除去

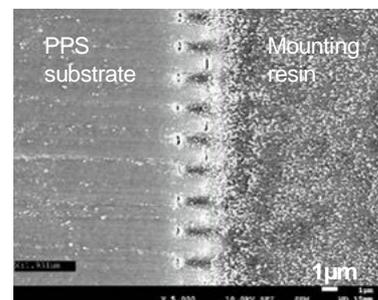
銅めっき用の試料は、前節 4・2 節で決定した結晶化を組み込んだ条件により、深さ 5μm のモールド A を用いて作製した。トレんチを形成した試料に対し、以下のプロセスで銅めっきおよび表層除去を実施した。

- 表面改質
- 脱脂
- 触媒付与・還元
- 無電解銅めっき
- 硫酸銅電解めっき（トレんチ充填）
- 表層銅めっき層除去エッチング
- ベーキング

表面改質 は、微細トレんチへの薬液浸透のため必要であった。表面改質条件が過度の場合、樹脂がエッチングされてトレんチ幅の広がり認められたので、種々条件を検討した結果 O₂ プラズマ処理 1 min で表面改質を実施した。②～⑤のプロセスにはプリント配線板用のめっき薬液を用い、樹脂上に析出させる無電解めっきとトレんチを充填する電解めっきの 2 段階で実施した。乾式処理から触媒付与、還元処理まで行った後、無電解銅めっきを温度 32 ，時間を 10 分間実施した。電解めっきは脱脂、酸洗等を行った後、硫酸銅めっきを温度 23 ，電流密度 0.5 A/dm² で 60 min 実施した。最後に試料表面に薬液（有機酸-過酸化水素系エッチング液）を高圧でスプレーすることで微細回路



(a) surface



(b) cross-section

図5 結晶化処理後の表面形状と断面

内の銅パターンを残した状態で表層の銅めっきのみを除去した()。なお のペーキングは樹脂基材上の直接めっきにおいて密着強度向上のため一般的に行われるので本研究においても実施した。

銅めっき・表層除去後の試料をトレンチに対して垂直に切断した断面をFE-SEMにより観察した結果を図6に示す。図中灰白色の部分がめっき析出した銅である。幅1 μm / 深さ5 μmのトレンチが良好に充填されているとともに表層全面に析出していた銅めっき層が除去され、トレンチが独立した金属導体となっていることが確かめられた。

得られた導体寸法をSEM画像から計測した。複数のサンプルを測定した結果、導体幅は0.83~1.09 μmの値が得られ、 $1.0 \pm 0.2 \mu\text{m}$ (設計値 $\pm 20\%$)の範囲に仕上がっていることが確認できた。モールドをSEMにより実測したトレンチ幅は0.75~0.83 μmであったことから、設計値1.0 μm幅の配線幅を形成するためにはインプリント後で0.80 μm程度にトレンチ幅が仕上がる金型を用いるとよいことがわかった。なおインプリント状態から最終的な導体幅が拡大する理由については、プラズマを用いた前処理で樹脂がわずかにエッチングされることや、電解めっきの銅析出・充填によりトレンチが押し広げられたことが影響したと考えられる。

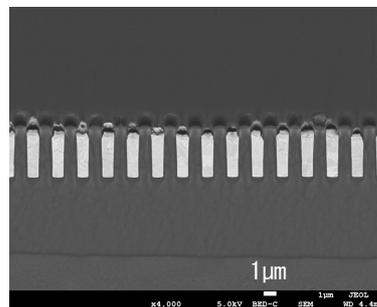


図6 銅めっきで充填されたトレンチ断面

<引用文献>

- (1) 一般社団法人日本電子回路工業会：2021年度版日本実装技術ロードマップ pp. 316-317 (2017)
- (2) 松井真二, 平井義彦 編著：「ナノインプリント技術」, 電子情報通信学会, (2014)
- (3) 斎藤隆之, 片山直樹, 見山克己, 矢島正喜, 渡辺英雄：「熱ナノインプリント法による微細同パターンの両面形成」, 表面技術, Vol.66, No.9, pp.425-430, (2015)
- (4) 本間精一：「プラスチック材料大全」, 日刊工業新聞社 (2015)
- (5) Ashok S. Rahate, Kailash Rambhau Nemade and Sandeep A. Waghuley: Polyphenylene sulfide (PPS): state of the art and applications, Reviews in Chemical Engineering, Vol.29, No.6, pp.471-489, (2013)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 見山 克己, 八甫谷 明彦, 齋藤 隆之, 櫻庭 洋平
2. 発表標題 ナノインプリントを応用した有機基板超微細配線の形成
3. 学会等名 2023年電気学会電子・情報・システム部門大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Katsumi Miyama
2. 発表標題 The ultra-fine pattern forming with imprinted trenches using thermoplastic resin
3. 学会等名 IMPACT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	齋藤 隆之 (Saito Takayuki) (20469703)	地方独立行政法人北海道立総合研究機構・産業技術環境研究本部 工業試験場・研究主幹 (80122)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------