

실리카 충전제에 의한 반도체 패키징 컴파운드의 물성 거동

고 민 진[†] · 김 명 환

LG 화학 기술원 정보소재 연구소

(1997년 5월 6일 접수)

Silica Filler Effect on the Characteristic of Molding Compounds for Electronic Packaging

Minjin Ko[†] and Myungwhan Kim

LG Chemical Ltd/Research Park Electronic Material Research Institute

P.O. Box 61, Yu Song Science Town, Taejon 305-380, Korea

(Received May 6, 1997)

요 약: 이 논문은 실리카 충전제가 몰딩 컴파운드에 미치는 영향을 신뢰성과 성형성 관점에서 고찰하였다. 먼저 실리카의 고충진화를 위하여 실리카 함량에 따른 유동 특성을 관찰하였다. 미세구 및 구형의 실리카를 사용하면 컴파운드의 유동이 현저히 향상될 수 있음을 보였다. 실리카 함량을 증가시키면 상온과 고온에서 모두 컴파운드의 기계적 강도가 증가하였고 미세구를 사용할 경우 기계적 강도의 저하는 없었다. 실리카 60 vol%를 함유한 컴파운드의 열팽창 계수가 구리 리드프레임의 열팽창 계수와 비슷하여 계면에서의 열응력이 최소화될 수 있다. 반면 합금 42 리드프레임은 열팽창 계수가 낮아 열응력을 줄이기 위해서는 실리카의 함량이 높을수록 좋을 것을 알 수 있었다. 포화 흡수율과 수분침투율 모두 실리카 함량이 높을수록 낮았고, 플래시/블리드는 비표면적이 큰 실리카를 사용하였을 경우 낮았다.

ABSTRACT: In this paper the encapsulating compounds filled with silica were prepared to study the effect on the characteristics of the compounds from reliability and moldability points of view. Both ultra fine and more spherical shaped filler were very effective to increase the flowability. Mechanical strength at room and high temperature is increased with increasing silica filler and is not deteriorated by using ultra fine silica. CTE (coefficient of thermal expansion) of the compound filled with 60 vol% silica is close to that of the copper leadframe, which results in minimizing the thermal stress at the interface. However the CTE of the compounds can not reach to the CTE of Alloy 42 leadframe. Thus the higher filler content the lower thermal stress. The saturated moisture absorption and diffusion rate decreased with increasing the filler content and the flash/bleed level decreased by using the silica with high surface area.

Keywords: silica filler, molding compound, electronic packaging.

서 론

종래에는 트랜지스터, 집적회로(IC), 고집적회로(LSI), 초고집적회로(VLSI)와 같은 반도체 소자의 밀봉에 세라믹이나 유리, 금속 등을 이용한 기밀봉지

방식이 사용되어 왔으나, 가격이 비싸고 대량 생산에 적합하지 못하여 군사적 용도 등의 일부 제한적 영역에서만 사용되고 있으며, 근래에는 90% 이상이 플라스틱 패키징을 사용하고 있다.^{1,2} 특히 에폭시 수지를 함유한 몰딩 컴파운드는 전기 절연성, 기계적 특

성, 내열성, 내습성 등이 매우 우수하기 때문에 높은 신뢰성이 요구되는 전기 전자 부품이나 반도체 장치의 밀봉에 널리 이용되고 있다.³

최근에는 반도체 소자의 집적도가 증가함에 따라 반도체 칩의 크기가 대형화하고, 많은 정보의 전달로 다핀화 추세에 있는 반면 표면실장형 패키지의 확산과 더불어 소형화와 박형화가 이루어지고 있다. 이러한 경향은 반도체 패키지 내부에 열응력을 증가시킬 수 있어 열 충격과 같은 가혹 실험 조건하에서 패키지 크랙을 야기시킬 수 있다. 또한 반도체 패키지의 표면실장시 215~260 °C의 열이 가해져 패키지 보관 중에 외부로부터 흡수된 수분의 기화 팽창으로 수지 조성물과 리드프레임(leadframe) 및 다이패드(die paddle)간의 박리로 인하여 내습성이 저하될 수 있고, 더욱 심한 경우에는 패키지 크랙을 초래할 수 있다.^{4,5} 이러한 문제점을 해결하기 위하여 여러가지 방법들이 제시되어 왔다. 예를 들면 다이패드의 형태를 변형하여 금속과 몰딩 컴파운드간의 계면을 최소화하여 계면에서의 박리를 억제한 경우가 있고,⁶ 다이패드에 폴리이미드를 붙여 컴파운드와의 접착력을 향상시킨 경우도 있으며,⁷ 다이패드들을 직접 리드프레임에 붙여 패키지의 신뢰성을 높인 경우도 있다.⁸ 반면 몰딩 컴파운드의 측면에서는 고온에서의 높은 강도, 고접착력 및 저흡습화를 통해 신뢰성을 향상시키려는 연구가 많이 진행되어 왔다.⁹⁻¹¹

일반적으로 반도체 몰딩 컴파운드는 10~15가지의 여러 종류로 구성되어 있다. 이들 중에서 몰딩 컴파운드의 물성에 가장 큰 영향을 주는 것이 에폭시 수지, 경화제 및 실리카 충전제라고 할 수 있다. 이 중에 특히 실리카 충전제는 몰딩 컴파운드의 물성에 큰 영향을 주며 현재 고기능 반도체 봉지용 컴파운드의 경우 실리카의 함량을 늘리는 방향으로 개발되어지고 있다.¹⁰ 따라서 실리카 충전제의 종류 또는 양에 따른 반도체 봉지용 컴파운드의 물성 변화를 이해하는 것이 신뢰성 및 성형성이 우수한 봉지제를 만드는 데 필수 불가결한 조건이다. 이 논문에서 이러한 관점에서 실리카 충전제에 따른 몰딩컴파운드의 물성변화를 고찰하였다.

실 험

원재료. 본 실험에서 사용한 에폭시 수지는 울소크

Table 1. Formulation of Epoxy Molding Compound

raw material	parts by weight
epoxy resin (EOCN1020)	100
hardener (PN)	55
accelerator (DBU)	1.0~2.5
filler (fused silica)	700~1200
coupling agent (silane compound)	0~10
carbon black	2
release agent (carnauba wax)	2

레졸 노블락 수지(Nippon Kayaku, EOCN1020)로서 현재 반도체 봉지용 몰딩 컴파운드에 가장 많이 사용되어지는 수지이다. 에폭시 수지를 경화시키기 위하여 경화제로는 페놀노블락 수지(Maiwa Kasei, HF-1)를 사용하였고 촉매로는 1,8-디아조바이 사이클로 (5,4,0)-7-운데센을 사용하였다. 에폭시 수지와 경화제는 에폭시와 하이드록시 당량이 각각 198과 107인 것을 사용하였다. 이밖에 들어가는 첨가제로는 충전제의 표면처리를 위한 커플링제, 이형제, 난연제 및 착색제들이 있으며 그 일반적인 배합량은 Table 1에 나타난다.

몰딩 컴파운드를 만들기 위하여 먼저 실리카를 헨셀 믹서기에 넣고 커플링제를 분무하여 표면처리를 한다. 표면처리된 실리카에 나머지 원료들을 투입한 후 2분간 파우더 상태로 혼련한다. 혼련시 마찰에 의한 온도 상승을 억제하기 위하여 10 °C 물로 냉각시킨다. 혼련된 파우더를 약 110 °C에서 니더를 사용하여 용융 혼련한 후 시트 상태로 냉각시킨다. 냉각된 시트는 다시 핀타입 분쇄기를 이용하여 파우더 상태로 만들고 일정한 크기로 타정을 하여 사용한다.

기계적 특성. 컴파운드의 기계적 특성은 UTM (universal testing machine)을 이용하였다. 굴곡강도와 굴곡탄성률을 상온과 고온(240 °C)에서 ASTM D-790에 의거하여 측정하였다. 고온에서 측정시에는 시편이 측정 온도에 도달하는 시간을 고려하여 고온 chamber에 넣고 5분 후에 측정을 하였다. 테스트 시편은 175 °C, 70 kgf/cm, 120초 조건에서 성형 몰딩을 하고 완전 경화를 위하여 175 °C에서 5시간 동안 경화를 시킨 후 물성 측정을 하였다.

Spiral Flow. Spiral flow는 열경화성 수지 몰딩 컴파운드의 유동특성을 나타내는 가장 일반적인 방법

중의 하나이다. 일반적으로 이 물성은 반도체 제조업체에서 요구를 하며 모든 EMC (epoxy molding compound) 제조 업체들이 물성 자료로 제출한다. 이 테스트는 몰딩 컴파운드를 가열된 성형 포트에 넣고 일정한 압력을 가하면 원형 형태의 서클을 따라 진행하다 경화하여 멈추는데까지의 이동 거리를 측정한다. 이동 거리는 EMMI I-66에서 정한 물드를 사용하여 측정하였다.

용융점도. 컴파운드의 용융점도는 flow tester (Shimadzu CFT-500C)를 이용하여 측정하였다. 2g 정도의 EMC 파우더를 타정한 후 flow tester의 포트에 넣은 후, 175 °C에서 0.98 MPa의 압을 가해 금속 노즐 (직경=1 mm, 길이=10 mm)을 통과할 때의 시간에 따른 stroke의 이동속도를 측정하여 계산한다.

Flash/Bleed. Flash/bleed는 5개의 얇은 직사각형의 이동 채널 형태를 한 물드를 제작하여 측정하였다. 채널의 두께는 각각 0.25, 0.5, 1, 2, 3, mil이고 이들 중 2 mil 두께를 갖고 있는 채널을 기준으로 하여 밖으로의 이동거리를 측정하였다.

열팽창 계수. 열팽창 계수는 TMA (TMA/SS-100, Seiko Instrument Inc.)를 이용하여 측정하였다. 0.5 cm 직경에 1 cm 높이의 원기둥형 시편을 제작하여, 분당 1~2 °C로 온도를 증가시키면서 측정하였다. 성형조건과 후경화 조건은 UTM 시편과 동일하며 측정전에 시편의 잔존 수분을 제거하기 위하여 125 °C에서 16시간 건조시킨 후 측정하였다.

결과 및 고찰

먼저 반도체 봉지용 컴파운드의 고충진화를 위해서는 사용되는 실리카의 함량에 따른 점도변화 및 유동특성을 고찰하는 것이 필요하다. Fig. 1은 실리카 양에 따른 컴파운드의 최저점도와 유동성 특성을 나타낸 것이다. 그림에서 볼 수 있는 바와 같이 충전제의 양이 증가함에 따라 몰딩 컴파운드의 점도가 높아지고 이로 인하여 유동성이 현저히 떨어짐을 알 수 있다. Fig. 2는 성형온도 (175 °C)에서 시간에 따른 점도 추이를 나타낸 것으로 실리카 함량이 높은 경우가 낮은 경우에 비해 컴파운드가 녹아 경화되는 시점까지 전반적으로 높은 점도를 유지함을 알 수 있다.

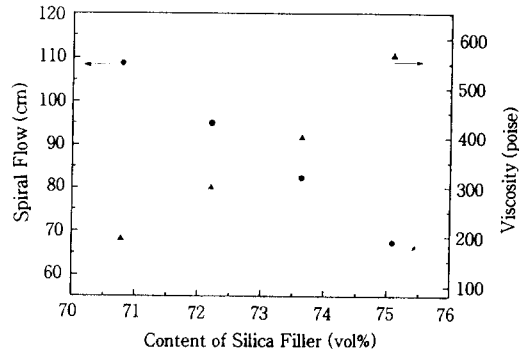


Figure 1. Effect of the filler content on the flowability of molding compounds.

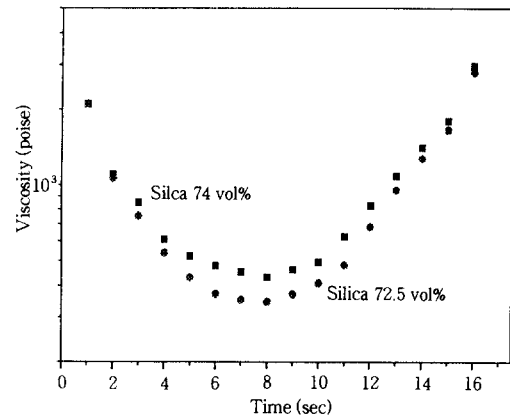


Figure 2. Plot of viscosity versus time for molding compounds at an isothermal condition.

이는 결국 반도체 성형 process window가 좁아지고 성형 조건을 맞추지 못하면 wire sweep 이나 미충진 등 성형성 불량을 야기시킬 수 있다. 현재까지 점도를 높이지 않으면서 실리카의 함량을 늘리는 연구가 많이 진행되어 왔다. 예를 들면 Rosin-Rammler 수식에서 n 값을 작게 하여 즉 실리카의 크기 분포를 넓게 하여 유동성을 향상시켰다.³ 여기서는 컴파운드의 유동성을 향상시키기 위하여 아래와 같은 두가지 관점에서 유동특성을 고찰하였다.

I) 미세구 첨가에 따른 유동특성 변화 (3 μm 이하 크기)

II) 실리카의 구형 정도에 따른 유동특성 변화.

첫째, 미세구의 효과를 알아보기 위하여 실리카 평균 입경이 다른 두가지 미세구를 사용하였다. 이 미세구는 모두 무정형의 용융 실리카로 평균입경이 각



Figure 3. SEM photograph of ultrafine silica particles (0.5 μm mean sized silica, 1×10000).

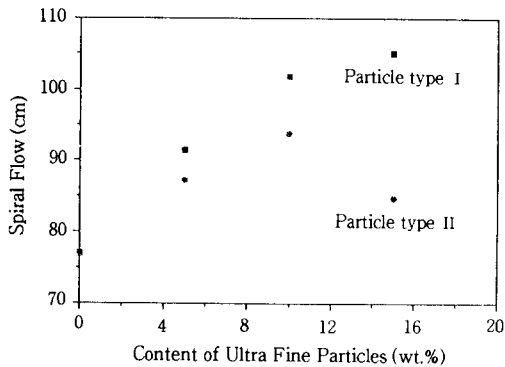


Figure 4. Effect of the ultra fine particles on the flowability of molding compounds.

각 0.5와 2.5 μm 인 실리카이다. 여기서 평균입경은 레이저 타입의 입도 분석기를 이용하여 측정하였으며 누적 무게가 50%인 점을 평균입경으로 하였다. 미세구의 경우 전자 현미경 사진으로 관찰한 결과 Fig. 3에서 보는 바와 같이 완전 구형 미립자이다. Fig. 4는 미세구 종류와 함량에 따른 유동특성을 스파이럴 플로우를 측정하여 나타낸 것이다. 그림에서 알 수 있는 바와 같이 0.5 μm 의 미세구를 사용하였을 경우 소량 첨가시 유동특성이 현저히 향상되고 15 wt% 충전까지 계속 유동성이 증가함을 알 수 있다. 2.5 μm 미세구의 경우 0.5 μm 크기의 미세구보다 유동성의 향상 정도는 적지만 10 wt% 까지 스파이럴 플로우가 계속 증가하고 그 이상 첨가시에는 감소하기 시작하였다. 위의 결과로서 미세구의 두가지 효과가 있음을 알 수 있다. 먼저 미세구를 소량 첨가할 경우 큰 크

기의 실리카 틈새에 끼어들어 입자간의 마찰을 적게 하여 유동성을 향상시키는 윤활 작용을 한다. 이에 반해 과량 투입시에는 미세구 자체의 비표면적이 매우 커 수지와와의 접촉 면적이 넓어지고 마찰에 의한 유동특성 저하를 야기시킨다. 따라서 적절한 크기의 미세구와 양을 선정하는 것이 유동성 및 성형성 측면에서 매우 중요하다.

둘째, 구상 실리카의 구형 정도에 따른 유동성 측면을 고찰하기 위하여 평균입경이 30 μm 정도이고 제조 방법이 다른 두 종류(합성과 천연 실리카)의 실리카를 선정하여 실험을 하였다. 천연 실리카는 결정 상태의 원석을 용융하여 무정형의 인고트를 만들고 일정 크기로 분쇄하여 각형 실리카를 만든다. 이를 다시 고온에서 용융시켜 열역학적으로 안정된 구형의 실리카를 만들 수 있다. 합성 실리카는 알콕시 실란이나 클로로 실란 화합물을 가수분해 또는 연소시켜 얻어진다. 여기서 실리카 입자의 구형 정도는 두가지 인자로 수치화 하였다 (aspect ratio (=장축/단축)와 roughness (=원주길이²/면적)). 여기서 두 인자 모두 입자의 모양이 구형에 가까울수록 값이 1에 가까워지며 완전 구형일 경우 두 인자 모두 1이 된다. 일반적으로 합성 실리카가 천연 용융 실리카보다 제조 특성상 완전 구형에 가깝다. Fig. 5에서 알 수 있는 바와 같이 같은 양의 실리카를 함유한 몰딩 컴파운드의 경우 입자의 모양이 구형에 가까울수록 유동특성이 향상됨을 알 수 있다. 이는 입자가 구형에 가까울수록 상대적으로 비표면적이 적어지고 수지와와의 접촉면적이 적어져 유동특성이 향상되는 것으로 보인다.

반도체 봉지용 컴파운드에서 실리카를 고충진하는 이유 중 하나는 컴파운드의 기계적 강도를 높여 패키지의 크랙 진행을 억제하기 위한 것이다. 여기서는 실제 실리카 함량 증가에 따른 기계적 특성 변화를 알아 보았다. Fig. 6은 실리카 함량에 따른 컴파운드의 굴곡강도와 굴곡탄성률을 상온과 실장온도 (240 $^{\circ}\text{C}$)에서 측정한 값을 나타낸다. 충전제의 함량이 증가함에 따라 컴파운드의 굴곡강도와 굴곡탄성률이 모두 비례적으로 증가함을 알 수 있다. 특히 고온에서의 굴곡강도가 실리카 증가에 따라 비례적으로 증가하였는데 이는 IR solder시 계면에서 박리 후 크랙 진행을 억제하는데 큰 효과가 있어 바람직하다. 반면 고

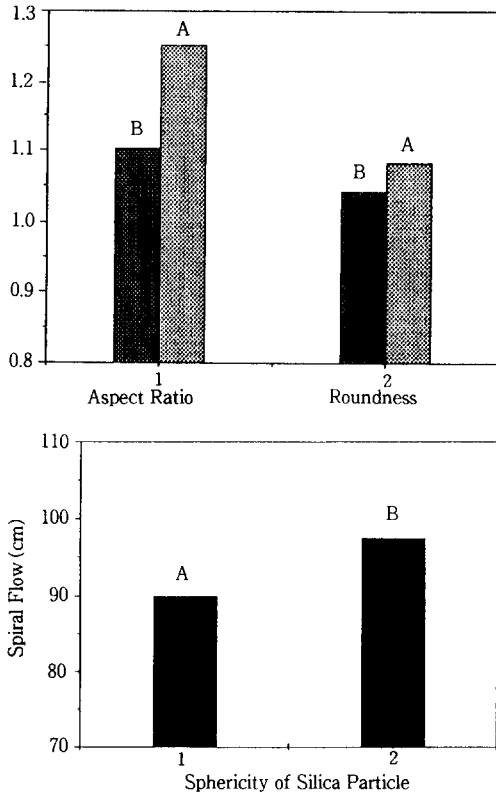


Figure 5. Effect of the particle's sphericity on the flowability of molding compounds.

온에서의 굴곡강도는 상온에 비해 현저히 떨어지는데 그 이유는 사용한 올소크레졸 노볼락 에폭시 수지는 경화후 유리전이온도가 150 °C 정도로 표면실장 온도보다 낮기 때문이다. 유동성에 좋은 영향을 주는 미세구가 컴파운드의 기계적 강도에 끼치는 영향을 알아보았다. Fig. 7은 미세구 함량에 따른 굴곡강도의 변화를 나타낸다. 결과에서 보는 바와 같이 미세구의 함량을 증가시켜도 기계적 강도의 물성 저하는 없고, 오히려 조금 증가함을 알 수 있다.

몰딩 컴파운드는 반도체 패키징 내부의 여러 물질과 접촉하고 있다. 예를 들면 메탈인 리드프레임과 다이패드, 무기물인 실리콘 다이, 고분자인 폴리이미드 passivation 등과 계면을 형성하고 있는데 이들 각각 서로 다른 열팽창 계수를 갖고 있기 때문에 경화 후 고온에서 상온으로 냉각시 혹은 외부로부터 열충격시 열응력이 발생할 수 있어 두 물질간의 선팽창 계수를 맞추는 것이 필요하다. 특히 폴리이미드와 몰

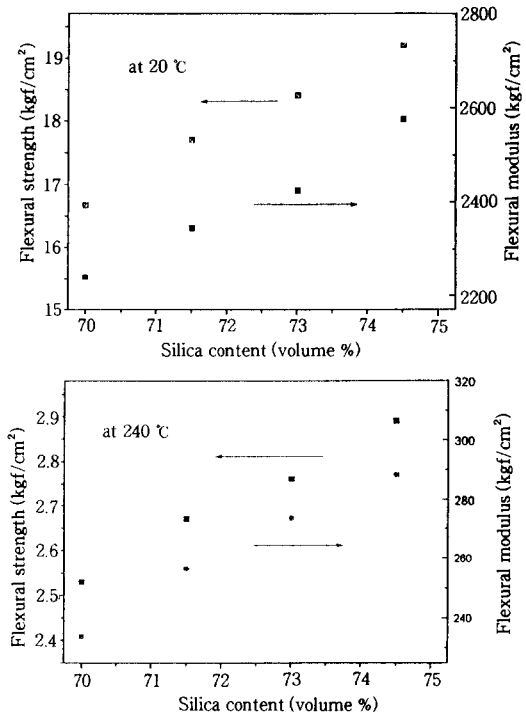


Figure 6. Mechanical Properties of molding compounds at various content of silica filler.

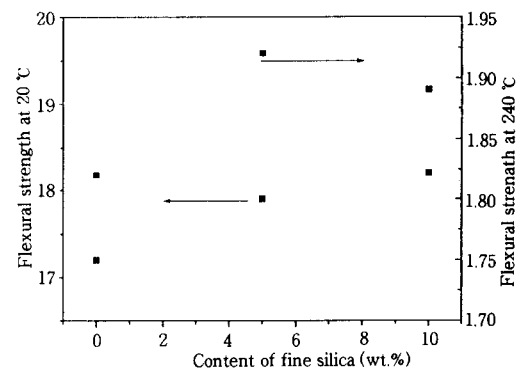


Figure 7. Mechanical properties of molding compounds at various content of fine silica filler.

딩컴파운드간의 접착력은 매우 우수하며 실리콘 다이와의 열팽창 계수 차이는 매우 크나 컴파운드에 커플링제가 있어 실리콘 다이의 산화층과 화학적 결합을 형성하여 접착력이 우수한 것으로 알려져 있다.¹² 반면 몰딩 컴파운드와 금속간의 접착력이 현저히 떨어지기 때문에 두 물질간의 선팽창 계수가 특히 중요

Table 2. Coefficient of Thermal Expansion for Semiconductor Packaging Components

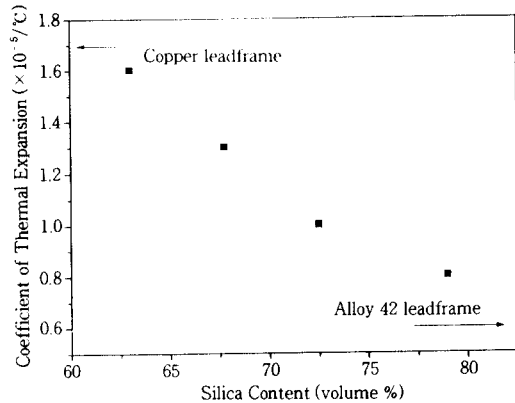
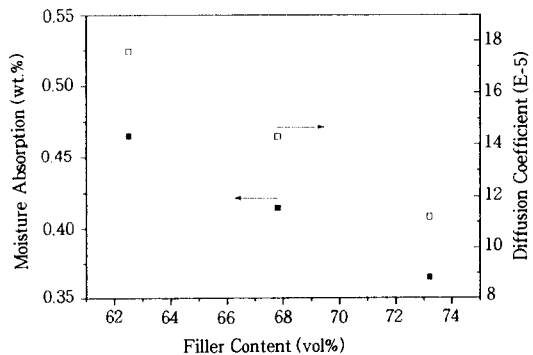
	materials	CTE ($\times 10^{-5}$)
chip	silicon die	0.3~0.4
	aluminum	2.3
passivation	polyimide	40
leadframe	alloy 42	0.6
	copper	1.7
compounds	silica	0.02
	epoxy	30

하다. Table 2는 각 반도체 패키징 구성 재료의 선팽창 계수를 나타낸다. 실제 몰딩 컴파운드의 실리카 함량에 따른 선팽창 계수를 측정하여 메탈 리드프레임과의 차이를 알아 보았다. Fig. 8에서 보는 바와 같이 실리카 (0.2 ppm)의 열팽창 계수가 에폭시 수지 (300 ppm)의 열팽창 계수에 비하여 매우 낮기 때문에 실리카의 함량이 증가함에 따라 컴파운드의 열팽창 계수가 작아짐을 알 수 있다. Table 2에서 보는 바와 같이 구리와 합금 42의 선팽창 계수는 각각 1.7×10^{-5} 과 0.6×10^{-5} 으로 열팽창 계수 측면에서 보면 리드프레임으로서 구리를 사용하는 경우 60 vol% 정도의 낮은 실리카 충전으로 열팽창 계수를 같게 할 수 있는 반면, 합금 42일 경우 80 vol% 이상 고충진하여야 계면에서의 열 응력을 최소화할 수 있음을 보여준다.

수분 흡수는 IR solder시 반도체 패키지 크랙의 가장 큰 원인 중의 하나이다. 본 실험에서는 실리카 함량에 따른 경화물 컴파운드의 수분흡수 정도를 알아보기 위하여 직경이 5 cm이고 두께가 1 mm인 원형 시편을 제작하여 IR solder의 JEDEC (Joint Electronic Device Committee) Level I 전처리 조건인 85 °C/85 RH에서 시간에 따른 무게 변화를 측정하였다. Diffusion coefficient는 Fick's second law에 의거하여 계산하였다.¹³

$$q_v(t)/Q_v = 4(Dt/l^2\pi)^{1/2}$$

여기서 Q_v 와 q_v 는 각각 포화 흡수량 및 일정시간 t 에서의 흡수량을 나타내며, l 은 시료의 두께 D 는 diffusion coefficient를 나타낸다. 포화 수분 흡수량은 위 조건에서 1000시간후 무게 변화를 측정하여

**Figure 8.** Coefficient of thermal expansion of molding compounds filled with various silica content.**Figure 9.** Moisture permeation characteristics at various content of fillers.

계산하였다. Fig. 9는 실리카 함량에 따른 수분 흡수 특성을 나타낸다. 포화 수분 흡수율은 실리카 함량이 2.5 vol% 증가함에 따라 0.1 wt% 감소하였다. 이는 실리카 자체는 수분을 흡수하지 않기 때문에 실리카 표면의 chemisorption량을 무시할 경우 실리카 함량이 많아지면 상대적으로 수분을 흡수하는 수지의 분율이 작아지므로 결국 포화 흡수율은 낮아지는 것으로 생각된다. 또한 실리카 함량이 증가하면 수분의 투과하는 속도도 늦어짐을 알 수 있다. 이 현상은 수분이 침투하는데 있어서 실리카가 장애물 역할을 하는 것으로 생각된다. 즉 수분이 실리카를 직접 투과하지 못하고 표면을 타고 돌아가야 하기 때문에 투과 경로가 길어지고 결국 투과 속도를 지연시키게 된다. 이러한 포화 흡수율의 감소와 투과율의 감소는 리드프레임과 몰딩 컴파운드 계면에서의 수분량을 감소시

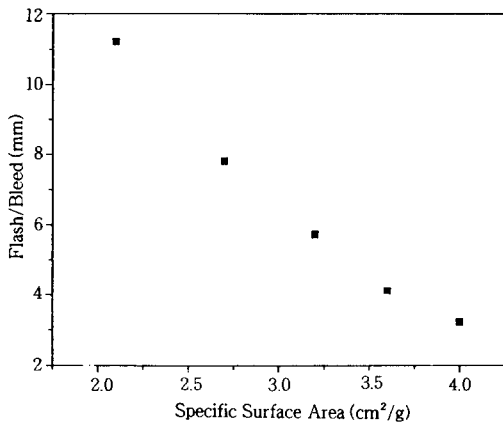


Figure 10. Relationship between silica surface area and molding compound's flash/bleed level.

켜 패키지의 표면실장시 수분의 기화에 의한 응력을 최소화할 수 있어 매우 바람직하다.

몰딩 작업중 컴파운드가 리드프레임 밖으로 흘러나와 얇은 필름을 형성할 수 있는데 이를 flash 또는 resin bleed라 한다. 이들은 solder dipping 또는 solder plating시 dewetting 현상을 야기시킬 수 있다. Flash/bleed는 몰딩 컴파운드의 여러 성분 (수지 점도, wax 종류 및 양 등)에 영향을 받는데 여기서는 실리카의 영향에 대하여 알아 보았다. Fig. 10은 실리카의 비표면적과 flash/bleed의 관계를 나타낸 것이다. 비표면적이 큰 실리카를 사용하였을 경우 즉 작은 입도의 실리카를 사용하였을 경우 flash/bleed의 정도가 낮아짐을 알 수 있다.

결 론

최근 반도체 소자 봉지용 몰딩 컴파운드의 신뢰성을 높이기 위하여 실리카 충전제의 양을 늘리는 방법이 제시되고 있다. 본 연구에서는 실리카 충전제가 몰딩 컴파운드의 물성에 미치는 영향을 성형성 및 신

뢰성 측면에서 고찰하였다. 먼저 미세구와 구형 실리카의 적절한 사용으로 컴파운드의 유동성을 향상시킬 수 있었다. 또한 실리카 함량 및 종류는 몰딩 컴파운드의 기계적 강도, 열팽창 계수, 수분 흡수율, flash/bleed 등 여러 물성에 큰 영향을 보였다. 본 실험은 신뢰성과 작업성이 우수한 고기능 반도체 몰딩 컴파운드의 최적화에 도움이 되었으면 한다.

참 고 문 헌

1. C. P. Wong, *Adv. Polym. Sci.*, **84**, 65 (1988).
2. R. R. Tummala, E. J. Rymaszewski, and A. G. Klopfenstein, "Microelectronics Packaging Handbook, Van Nostrand Reinhold", New York, 1989.
3. N. Kinjo, M. Ogata, K. Nish, and Aizou Kaneda, *Adv. Polym. Sci.*, **88**, 1 (1989).
4. I. Fukuzawa, S. Ishiguro, and S. Nanbu, *Proc. IRPS*, 192 (1985).
5. R. Lin, E. Blackshear, and P. Seriky, *Proc. IRPS*, 82 (1988).
6. N. Umehara, S. Inomata, Y. Umeda, M. Naeshiro, and K. Sakamoto, *IEEE 45th ECTC*, 470 (1995).
7. K. Jugita et al., *Proc. 18th R & M Symposium*, 31 (1988).
8. J. C. Yang, C. W. Leong, J. S. Goh, and C. K. Yen, *IEEE 46th ECTC*, 48 (1996).
9. Y. Nakamura, M. Yamaguchi, A. Kitayama, M. Okubo, and T. Matsumoto, *Polymer*, **32**, 2221 (1991).
10. S. Eguchi, A. Nagai, T. Ishii, S. Numara, M. Ogata, K. Nishi, and G. Murakami, *SEMICON Singapore*, 209 (1994).
11. A. A. Gallo and T. R. Tubbs, *IEEE Transaction CPMT-Part A*, **8**, 646 (1995).
12. T. J. Cho, K. J. Lee, M. H. Lee, S. H. Ahn, and S. Y. Oh, *IEEE 46th ECTC*, 931 (1996).
13. M. Ogata, N. Kinjo, and T. Kawata, *J. Appl. Polym. Sci.*, **48**, 583 (1993).