

다이사이클로펜타다이에닐 비스페놀 시아네이트 에스터와 폴리페닐렌에테르를 이용한 저유전손실 고분자 기판 소재

김동국* · 박성대***,† · 이우성** · 유명재** · 박세훈** · 임진규* · 경진범*

*한양대학교 응용화학과, **전자부품연구원

(2007년 6월 6일 접수, 2007년 8월 30일 채택)

Polymer Substrate Materials with Low Dielectric Loss Using Dicyclopentadienyl Bisphenol Cyanate Ester and Polyphenylene Ether

Dong-Kook Kim*, Seong-Dae Park***,†, Woo-Sung Lee**, Myong-Jae Yoo**, Se-Hoon Park**, Jin-Kyu Lim*, and Jin-Bum Kyoung*

*Department of Chemistry & Applied Chemistry, Hanyang University, Ansan 425-791, Korea

**Korea Electronics Technology Institute, Seongnam 463-816, Korea

(Received June 6, 2007; Accepted August 30, 2007)

초록 : 다이사이클로펜타다이에닐 비스페놀 시아네이트 에스터 올리고머와 열가소성 수지인 폴리페닐렌에테르 (PPE)를 복합체화함으로써 유전손실이 적은 고분자 기판소재를 제작하였다. 올리고머와 촉매의 경화반응을 분석하여 최적 촉매첨가량을 Zn 0.02 phr로 선정하고 이를 복합체 제작에 적용하였다. 올리고머와 PPE의 함량비를 변화시키며 제작된 복합체의 동박 박리 강도, gel content 등을 측정하였으며, GHz 대역에서의 유전율과 유전손실을 평가하였다. PPE의 함량은 박리 강도 및 유전특성에 큰 영향을 주었으나, 촉매의 함량에 따라서는 유전특성에 큰 차이가 없었다. 실험결과 박리 강도가 1 kN/m 이상이고, 1 GHz에서 유전손실이 0.004로 낮은 고분자 복합체 라미네이트를 얻을 수 있었다.

Abstract : Polymer substrate materials with low dielectric loss were obtained by fabricating the composite using dicyclopentadienyl bisphenol cyanate ester oligomer and polyphenylene ether (PPE). From the analysis of the curing reaction of oligomer and catalyst, it was observed that the optimum amount of catalyst was 0.02 phr of Zn content. It was applied to the fabrication of polymer composite. By changing oligomer/PPE weight ratio, the peel strength and the gel content of the fabricated composites were measured, and then, the dielectric constant and the dissipation factor were measured in the GHz frequency range. The amount of PPE affected the peel strength and the dielectric properties of composites. However, the amount of catalyst did not affect them at all. Resulting from all experiments, we obtained polymer composite laminates having the peel strength of above 1 kN/m and the low dissipation factor of 0.004 at 1 GHz.

Keywords : dielectric loss, cyanate ester, polyphenylene ether, dissipation factor, peel strength.

서 론

전자산업에 있어서 인쇄회로기판은 컴퓨터의 주기판, 메모리카드 및 이동통신 단말기의 기판재료로서 매우 중요한 위치를 차지하고 있다. 최근 이동통신의 사용 주파수가 높아지면서 기존 인쇄회로기판의 특성보다 고주파 대역에서의 동작성능이 우수한 기판재료에 대한 요구가 증대되고 있다.¹ 고주파 대역에서는 신호의 전송 손실이 증가하게 되는데, 기판소재의 유전손실의 증가가 그 원

인의 하나이다. 따라서 기판소재 자체의 유전손실이 적은 것일수록 이동통신용으로의 적용이 유리하다. 유리섬유에 함침시킨 에폭시 수지를 주성분으로 하고 있는 통상의 인쇄회로기판 소재는 유전손실이 0.015~0.025 수준으로 커서 고주파 대역에서는 요구특성을 만족시키지 못한다.^{2,3}

고주파 대역에서의 특성향상을 위하여 유전손실이 적은 저온소성세라믹 기판에 대한 연구도 진행되어 왔고, 실제 FEM, ASM 등 이동통신 단말기 내부의 모듈 패키지용 소재로 적용이 되어 지고 있다.⁴⁻⁶ 그러나 대면적의 기판을 구현하기 어렵고 수축률의 제어가 어려우며 소재의 가격이 비싼 단점 등에 의해 기판소재로의 확대가 현

†To whom correspondence should be addressed.
E-mail: sdpark@keti.re.kr

실적으로 불가능하다. 이에 대한 해결 방안으로서 저유전손실을 가지는 고분자 기판의 사용이 대응책으로 제시되고 있다.⁷ 한 가지 예로 PTFE 수지를 이용하는 Duroid 소재의 경우 고주파 대역에서 매우 우수한 유전특성을 가진 것으로 알려져 있다.² 그러나 소재의 용점이 높고 가공성이 좋지 못하여 패키지 기판의 집적도를 높이기 위한 다층화에는 불리하다. 플렉시블 기판 소재로의 적용 가능성이 높은 액정폴리머(LCP, liquid crystal polymer) 소재도 유전특성 및 내열성, 내습성 등이 우수하지만 용점이 높아 적층공정이 까다롭다.⁸ 따라서 유전특성이 좋은 열가소성 수지와 여기에 경화특성을 부여할 수 있는 열경화성 수지를 혼합하여 이를 프리프레그화함으로써 비교적 낮은 온도에서도 다층화 공정이 가능할 수 있도록 하는 고분자 기판소재에 대한 연구가 주목을 받고 있다.⁷⁻¹¹

시아네이트 수지는 열경화성 수지 중에서도 비교적 유전손실이 낮아 상기 복합고분자 기판소재로의 적용 가능성이 높다. 따라서, 시아네이트 수지 자체의 경화물(homopolymer)이나, bismaleimide를 복합한 경화수지의 인쇄회로기판으로의 적용 등이 오래 전부터 연구되어 왔다.¹²⁻¹⁴ 그러나 시아네이트 수지와 열가소성 수지의 복합체 소재들에 있어서는 그 열적, 기계적 특성에 대한 연구에 중점을 두었기 때문에¹⁵⁻¹⁹ 고주파 대역용 기판소재로서의 전기적 특성에 대한 연구는 그다지 많지 않았다.

주목할만한 예로서, Sase 등은 2,2-bis(4-cyano-phenyl)propane을 이용하여 고주파 기판소재로의 적용을 평가한 바 있다.²⁰⁻²⁴ 수지의 경화가 진행되면서 나타나는 점도 상승에 의해 경화가 완전히 이루어지지 못하여 남게 되는 잔류 -NCO기에 의해 유전손실이 나빠지는 것을 막기 위하여, 알킬페놀류를 이용하여 변성 시아네이트 에스터 올리고머를 제조함으로써 유전특성을 향상시키고자 하였다.

본 연구에서는 다이사이클로펜타다이에닐 비스페놀 시아네이트 에스터(DCPBCy) 올리고머를 이용, 이를 열가소성 수지인 polyphenylene ether(PPE)와 혼합하여 복합체화함으로써 유전손실이 작은 고분자 기판소재를 제작하였다. DCPBCy는 구조 내에 벤젠고리와 함께 tricyclodecane(TCD) 고리 구조를 가지고 있기 때문에 구조가 매우 강직하여, 별도의 변성처리를 하지 않아도 경화 후 유전손실이 다른 시아네이트 에스터 소재보다 적은 편이다.¹² PPE 소재는 열가소성 수지로서 저유전율 및 저유전손실을 가지고 있는 재료이나 가공성과 동박접합성 등이 부족하기 때문에,^{7,8} DCPBCy 올리고머를 이용하여 상기 문제점을 해결함과 동시에 유전손실이 적은 고분자 기판소재를 제작하고자 하였다.

실 험

시약 및 재료. 실험에 사용한 DCPBCy 올리고머는 Shanghai Huifeng사에서 제공받은 것(상품명 : HF-3)으로, MEK에 75 wt%로 용해시켜 용액상태로 제공되었다. 열가소성 수지로는 GE Plastics사의 Noryl IC780을 구입하여 사용하였다. IC780 수지는 polystyrene이 소량 함유된 변성 polyphenylene ether(modified PPE) 수지이다. Figure 1에 DCPBCy 올리고머 및 PPE 수지의 구조도를 각각 나타내었다. 경화촉매로는 Wako Pure Chemical Inc.의 zinc naphthenate mineral spirits solution(Zn=8%)을

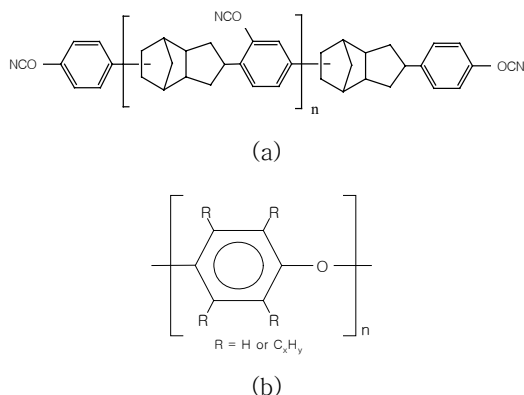


Figure 1. Structures of (a) DCPBCy and (b) PPE.

구입하여, 톨루엔에 10% 용액으로 희석하여 사용하였다. 복합체 필름을 제작하기 위하여 용제로는 삼진순약의 톨루엔을 이용하였다.

촉매함량에 따른 DCPBCy 경화반응. 촉매의 함량이 DCPBCy 올리고머의 경화특성에 미치는 영향을 알아보기 위하여, Zn 함량이 0.005, 0.01, 0.02, 0.05, 0.1 phr이 되도록 Zn naphthenate 희석용액의 첨가량을 조정하여 DCPBCy 수지와 혼합한 후 MEK를 건조시키고, DSC를 이용하여 촉매함량에 따른 경화온도의 변화를 관찰하였다. 또한 각 시료들을 220 °C의 convection oven에서 1 시간 동안 경화시킨 후, TGA를 이용하여 온도에 따른 중량감소를 측정함으로써 촉매함량이 경화수지의 열 안정성에 미치는 영향을 평가하였다. DCPBCy 수지의 경화거동 및 열적 특성분석을 위한 기기로는 Netzsch사의 STA 409PG TG-DSC 장치를 이용하였다. DSC 및 TGA 분석은 공기 중에서 이루어졌으며, 승온속도는 5 °C/min로 하였다.

수지 복합체 필름 제작. 먼저 IC780 수지를 톨루엔에 녹여 최종적으로 수지 농도 20 wt% 용액이 되도록 처리하였다. 이 용액과 DCPBCy 용액, 촉매희석용액 등을 혼합하여 바니시를 제조하고 comma roll coater를 이용하여 PET carrier 필름 위에 도포, 건조하여 수지 복합체 필름을 제조하였다. 최종필름 중에 IC780 수지의 함량이 50, 60, 70, 75, 80, 85, 90 wt%가 되도록 배합량을 조절하였다. 촉매희석용액은 Zn 함량이 0.02 및 0.1 phr이 되도록 조절하여 첨가하고 복합체 경화 후 유전특성을 비교하였다.

적층체의 제조 및 평가. Figure 2는 제조된 필름을 이용하여 적층체를 제조하고 평가하는 공정을 도시한 것이다. 제조된 복합체 필름을 100×100 mm 크기로 절단하고, 최종 유전층 두께가 0.5 mm 이상이 되도록 두 장의 18 μm 동박 사이에 여러 장의 필름이 겹치게 배열한 후, 진공 라미네이터에서 함께 가압 적층하였다. 가압적층 조건은 진공 중에서 180 °C, 60분, 30 kgf/cm²의 온도 및 압력 조건으로 실시하였다. 적층체 양면의 동박을 에칭하여 10×80 mm strip 패턴을 형성시킨 후 박리 강도를 측정하였다. 동박의 에칭액으로 온도 40 °C의 제2염화철(FeCl₂) 30% 수용액을 사용하였으며, 에칭은 콘베이어형 에칭기(Bungard DL500)를 사용하여 약 1 분 30초간 스프레이하여 실시하였다. 박리 강도의 측정에는 Instron사의 5543 모델 인장시험기와 test jig를 이용하였다. 이후 동박을

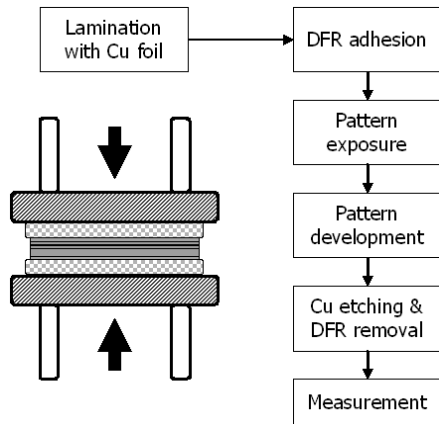


Figure 2. Procedures for the fabrication of the test substrate using DCPBCy-blended PPE film (DFR : dry film resist).

완전히 에칭해 내고 유전특성 평가 및 추출실험을 실시하였다. 유전율은 기관 상에 ring resonator를 형성하여 4 GHz 대역에서 측정하여 평가하였으며, 유전손실은 AET사의 dielectrometer를 이용하여 1.0~9.4 GHz 대역에서 측정하였다. 추출실험은 Soxhlet 추출기에서 용매로 xylene을 사용하여 48시간 실시하고, 건조 후 gel content를 계산하였다.

결과 및 토론

DCPBCy의 경화반응. DSC 분석을 통하여 촉매의 함량에 따른 DCPBCy 올리고머의 경화 피크의 변화를 측정한 결과는 Figure 3과 같다. 촉매의 함량이 증가할수록 경화온도가 점차 낮아지고 있음을 확인할 수 있다. 촉매를 첨가하지 않은 경우에는 경화피크 온도가 200 °C였으나, 촉매의 첨가량 증가에 따라 188, 180, 173, 163, 155 °C로 급격히 감소하였다.

경화 후 DCPBCy 수지의 열 안정성 분석을 위하여 220 °C에서 1시간 동안 충분히 경화된 시료들에 대하여 TGA 분석을 실시하였다. Figure 4에 경화된 DCPBCy 올리고머의 촉매함량에 따른 TGA 분석결과를 나타내었다. 촉매를 사용하지 않은 경우에는 250 °C 부근까지 중량감소가 없이 안정영역을 형성하고, 이후 약간의 중량감소를 보이다가, 420 °C 이상에서 중량감소가 급격히 일어났다. 이것은 산화반응에 따른 경화수지의 연소에 의한 것으로 판단된다. 촉매의 첨가량에 따라 안정영역의 감소 현상을 관찰할 수 있다. 200 °C 이상의 온도가 되면 서서히 중량감소가 진행되고 있는데 촉매의 함량이 많아질수록 중량감소 속도가 빠른 것을 관찰할 수 있다. Zn 0.005 및 0.01 phr인 경우 유사한 중량감소 경향을, Zn 0.02 및 0.05 phr인 경우도 서로 유사한 중량감소 곡선을 나타내었으며, 촉매함량이 가장 많은 Zn 0.1 phr의 경우에는 200 °C를 넘어서자마자 급격한 중량감소를 나타내었다.

과량의 촉매 사용시 최종 경화물은 급격한 경화반응에 의해 분자량이 큰 경화물의 생성이 어려울 수 있으며, 이에 따라 열 안정성도 나빠져 Figure 4와 같은 중량감소 거동을 나타내는 것으로 판단된다.

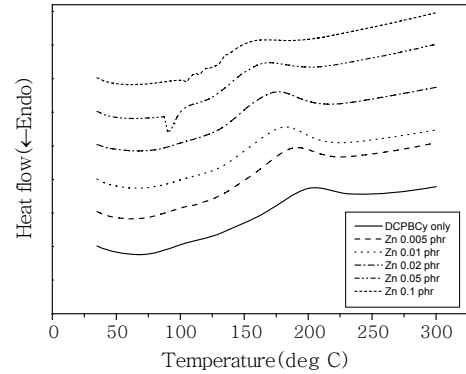


Figure 3. DSC analysis results of DCPBCy according to catalyst amount.

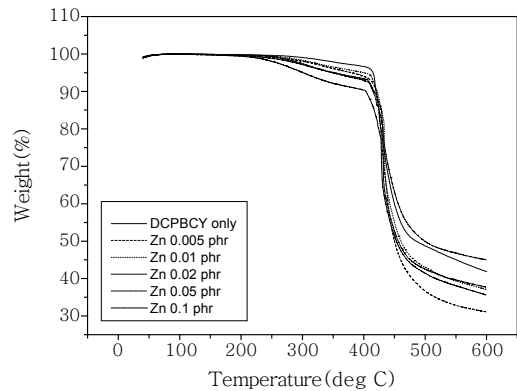


Figure 4. TGA analysis of cured DCPBCy according to catalyst amount (in air).

이후 복합체 제조시의 가압적층 조건과 열안정성, 및 경시변화 등을 감안하여 촉매함량은 Zn 0.02 phr로 하고 고분자 복합체 관련 실험을 진행하였다. 유전특성 비교를 위하여 촉매가 0.1 phr로 과량 첨가된 조성물도 함께 제작하여, 촉매함량이 복합체 기관의 유전특성에 영향을 미치는지에 대하여 알아보았다.

고분자 수지 복합체의 제조 및 평가. DCPBCy와 IC780 수지를 혼합하여 제조한 필름으로 제작한 적층체의 특성을 평가하였다. Figure 5는 Zn 0.02 phr일 때의 IC780 PPE의 함량별 박리 강도 측정결과를 나타낸 것이다. 측정시 동박 strip의 폭은 10 mm, 동박의 두께는 18 μm였다.

대부분의 상용 기관소재들이 통상 1 kN/m 이상의 박리 강도를 가지고 있기 때문에, 기관재료로서의 적용기준은 1kN/m 이상 되는 것이 바람직하다.³ 측정결과 PPE 함량이 70 및 80 wt%일 때 peel 강도가 1.7~2.0 kN/m 수준으로 가장 우수하였다. 90 wt%인 경우에는 DCPBCy의 함량이 너무 적어 접합력의 불균일에 의해 조기에 급격한 박리가 발생한 것으로 추정된다. 한편 PPE 함량이 50 및 60 wt%일 때 예상과 달리 오히려 박리 강도가 떨어지는데, 이는 DCPBCy와 PPE 사이의 혼화성이 감소하여 상분리가 심하게 발생하였기 때문으로 생각된다.

Figure 6은 적층 후 동박을 에칭하여 제거한 라미네이트의 표면을 관찰한 것이다. PPE 함량이 50 및 60 wt%인 복합체에서 상분리가 뚜렷이 관찰되고 있다. Figure 6의 (a), (b) 사진에서 어둡게

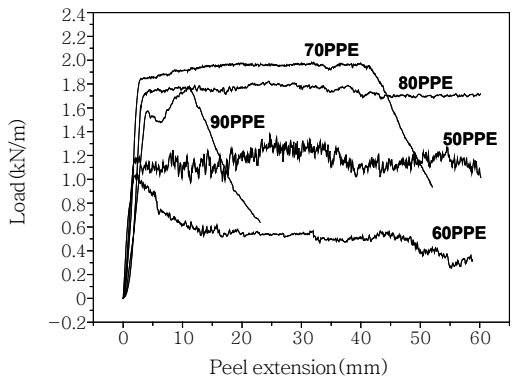


Figure 5. Peel strength result of DCPBCy-PPE composite in 0.02 phr of Zn.

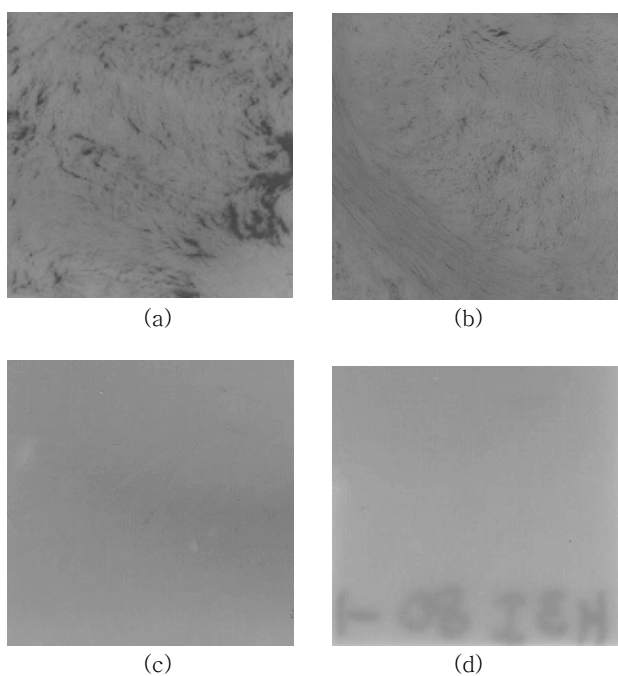


Figure 6. Surface structure of DCPBCy-PPE composite according to amount of PPE: (a) PPE 50 wt%, (b) PPE 60 wt%, (c) PPE 70 wt%, and (d) PPE 80 wt%.

보이는 부분이 DCPBCy 상이다. 사진 (c)와 (d)에서는 명도의 차이만 있을 뿐 상분리는 관찰되지 않는다. 이러한 상분리 현상이 접합력을 저하시키는 원인을 제공하였을 것으로 추정된다.

Zn 0.02 phr인 조건에서 DCPBCy-PPE 복합체 라미네이트의 가교밀도를 측정하기 위하여 조성별로 약 1 g의 시료를 Soxhlet 추출기로 xylene을 사용하여 48시간 추출한 후 잔류물의 양을 측정하여 gel content를 계산한 결과는 Figure 7과 같다. 경화가 진행되면서 점도상승에 의하여 경화가 방해받는 것이 일반적이므로 대체로 DCPBCy의 초기 함량보다 낮은 값을 나타낼 것으로 예상되었으며, 결과도 같았다. 일부 초기값을 약간 넘어선 값들은 측정오차에 의한 것으로 생각된다. PPE 80~85 wt% 조성에서 예상치보다 작은 값이 얻어졌는데, 복합체의 가교상태가 온도, 압력, 두께, 그리고 혼합성분 분포 균일도 등에 의해 다양하게 영향을

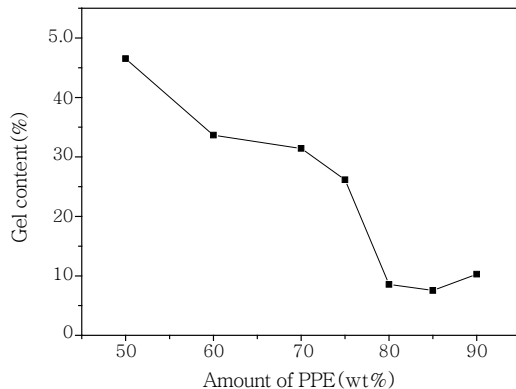


Figure 7. Gel contents of DCPBCy-PPE composite in 0.02 phr of Zn.

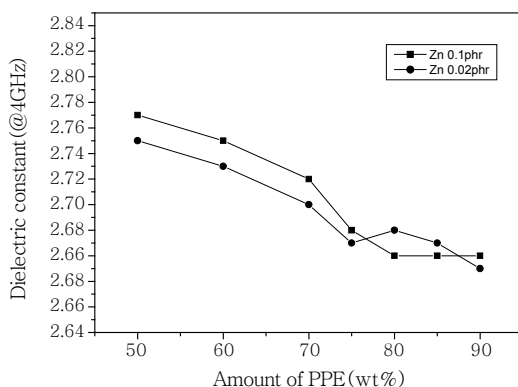


Figure 8. Dielectric constant of DCPBCy-PPE composites as a function of PPE amount.

받을 수 있기 때문에 원인을 명확히 규명하지는 못하였다. 측정결과로부터 DCPBCy는 PPE를 가교시키기 보다는 DCPBCy가 자체적으로 homopolymerization되어 semi-IPN 구조를 형성하는 것으로 판단된다. PPE를 가교시키는 기능을 하였다면, 적층 후 라미네이트의 gel content가 DCPBCy 초기 함량보다 더 큰 값이 얻어졌을 것이다.

복합체 기판의 유전율을 ring resonator를 이용하여 측정한 결과를 Figure 8에 나타내었다. PPE의 첨가량이 많아질수록 유전율이 감소하고 있음을 관찰할 수 있다. 개별 소재의 유전율이 DCPBCy는 약 2.9, PPE는 약 2.5 수준이기 때문에 PPE 첨가량에 따라 복합체의 유전율은 감소하게 된다. 촉매의 함량에 대해 비교하면 Zn 0.02 phr의 경우가 대체로 더 작은 값을 보였지만 큰 차이가 있다고 보기는 어렵다. 따라서 촉매의 함량이 복합체의 유전율에 미치는 영향은 크지 않다고 할 수 있다.

Figures 9와 10은 dielectrometer를 이용하여 주파수 대역별로 유전손실을 측정된 결과이다. 유전율과 마찬가지로 PPE의 함량이 늘어날수록 유전손실이 감소하는 경향을 보였으며, 촉매의 함량에 따른 차이는 별로 없었다. 한편 주파수의 증가에 따라서는 유전손실이 증가하는 경향을 보였다.

요약하면, DCPBCy와 PPE 복합체 실험조성의 최저 유전손실은 PPE 80wt% 이상일 때 1GHz 대역에서 약 0.004까지 얻을 수 있

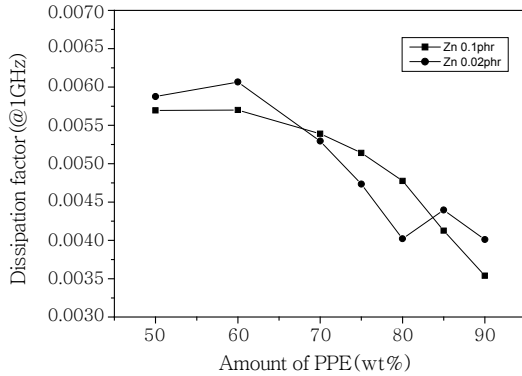


Figure 9. Dissipation factor of DCPBCy-PPE composites as a function of PPE amount.

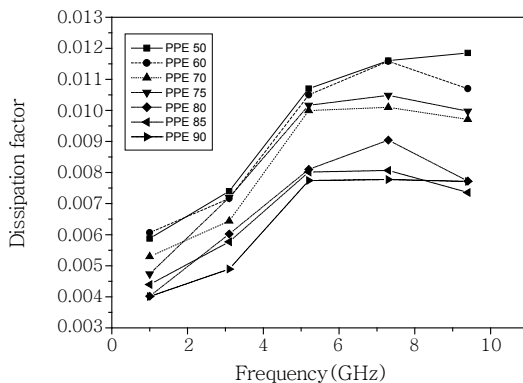


Figure 10. Dissipation factors of DCPBCy-PPE composites as a function of measured frequency.

었다. 이는 유전손실이 0.01~0.02 수준인 범용 에폭시 기판과 비교하여 매우 작은 값이라 할 수 있다. 또한 PPE를 DCPBCy 올리고머와 함께 용매에 용해시켜 바니시를 제작하고 이를 필름화할 수 있기 때문에 가압적층 전 단계에서는 고분자 복합체 필름이 유연성을 가질 수 있어, 취성(brittleness) 때문에 가공성이 좋지 않은 순수 PPE 수지에 비해 장점을 가질 수 있다.

결 론

분자구조 내에 벤젠링과 함께 TCD 구조를 가지고 있는 dicyclopentadienyl cyanate ester(DCPBCy) 올리고머를 사용하여, 별도의 변성처리를 하지 않고도 PPE와 같은 열가소성 수지와와의 복합체로 제조시 저유전손실을 가지는 고분자 기판소재를 제작하였다. TG-DSC를 이용하여 올리고머의 경화특성 및 경화 후 열안정성을 분석하고, 공정조건에 적합한 최적 촉매함량을 선정하였다. DCPBCy와 열가소성 PPE 수지의 함량비를 변화시키며 semi-IPN 구조의 고분자 복합체 적층기판을 제작한 후, 동박의 바리 강도, gel content 및 유전특성 등을 분석하였다. PPE의 함량이 많아짐에 따라 유전율과 유전손실은 감소하는 경향을 나타내었다. 또한 유전손실은 측정주파수가 높아지면 커지는 경향을 나타내었다. 실험결과 동박의 바리 강도가 1.5 kN/m 이상으로 우수하고 1 GHz에서의 유전손실이 0.004로 낮은 고분자 복합체 기판소재를 얻을 수 있었다.

감사의 글 : 이 연구는 산업자원부의 전자부품기반기술개발사업(차세대 마이크로시스템 모듈용 EPD 소재 및 응용기술 개발)의 연구비 지원으로 수행되었으므로 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. F. Miyashiro and S. Wakabayashi, *Electronics Materials toward Ubiquitous Network Age*, CMCbooks, Tokyo, 2003.
2. Y. S. Lee, K. C. Kim, S. D. Park, and J. C. Park, *J. Microelectronics & Packaging Society(Korean)*, **9**, 7 (2002).
3. H. R. Kim, *PCB Material Technology(Korean)*, Hongneung Science Pub., Seoul, 2006.
4. J. H. Park and J. K. Park, *Ceramist(Korean)*, **4**, 41 (2001).
5. C. J. Lee, H. J. Kim, and S. C. Choi, *J. Kor. Ceram. Soc.*, **37**, 302 (2000).
6. S. H. Sim, C. Y. Kang, J. W. Choi, Y. J. Yoon, H. J. Kim, H. W. Choi, and S. J. Yoon, *J. Kor. Ceram. Soc.*, **40**, 375 (2003).
7. *Resins for Electronics (Japanese)*, TRC, Tokyo (2000).
8. *New Trends of Polymers for Electronic Components IV (Japanese)*, ST-TECHNO, Yokohama (2005).
9. T. Ito, K. Ichinomiya, S. Asami, and T. Yamada, Japanese Patent 238761 (2003).
10. Y. Satsuu, S. Amo, A. Takahishi, N. Watabe, M. Unno, T. Fujieda, H. Akaboshi, and A. Nagai, Japanese Patent 041966 (2005).
11. K. Kaneko, T. Hirose, K. Goto, and A. Hasegawa, Japanese Patent 045318 (2006).
12. I. Hamerton, *Chemistry and Technology of Cyanate Ester Resins*, Blackie A&P, London, 1994.
13. A. Deutsch et al., *IEEE Trans. Components, Packaging, and Manufacturing Technology-Part B*, **19**, 331 (1996).
14. A. Gu, *Composites Science and Technology*, **66**, 1749 (2006).
15. Y. D. Kim and S. C. Kim, *Polymer(Korea)*, **19**, 75 (1995).
16. D. H. Wertz and D. C. Prevorsek, *Polym. Eng. Sci.*, **25**, 804 (1985).
17. J. N. Suman, J. Kathi, and S. Tammishetti, *Eur. Polym. J.*, **41**, 2963 (2005).
18. Y. S. Kim, H. S. Min, and S. C. Kim, *Macromol. Res.*, **10**, 60 (2002).
19. I. B. Recalde, D. Recalde, R. Garcia-Lopera, and C. M. Gomez, *Eur. Polym. J.*, **41**, 2635 (2005).
20. S. Sase, Y. Mizuno, D. Fujimoto, and M. Nomoto, *J. Network Polymer (Japanese)*, **22**, 150 (2001).
21. S. Sase, Y. Mizuno, D. Fujimoto, and M. Nomoto, *J. Network Polymer (Japanese)*, **22**, 192 (2001).
22. S. Sase, Y. Mizuno, D. Fujimoto, N. Takano, T. Iijima, H. Negishi, and T. Sugimura, *Proc. of IPC Printed Circuits Expo 2002*, S05-2-1 (2002).
23. D. Fujimoto, Y. Mizuno, N. Takano, S. Sase, H. Negishi, and T. Sugimura, *Proc. of IEEE Polytronic 2002 Conference*, 114 (2002).
24. Y. Mizuno, D. Fujimoto, N. Takano, S. Sase, T. Iijima, H. Negishi, and T. Sugimura, *Proc. of the 38th IMAPS Nordic Conference*, 35 (2001).