

## 진공증착중합법을 이용한 6FDA/4-4'DDE 폴리이미드 박막의 제조와 전기적 특성

이봉주 · 김형권\* · 이덕출

인하대학교 전기공학과

\*나고야대학교 전기공학과

(1998년 4월 7일 접수)

## Electrical Properties and Preparation of 6FDA/4-4'DDE Polyimide Thin films by Vapor Deposition Polymerization method

Boong-Joo Lee, Hyeong-Gweon Kim\* and Duck-Chool Lee

Electrical Engineering, Inha University

\*Electrical Engineering, Nagoya University

(Received April 7, 1998)

**요약** - 본 논문에서는 전식증착 중합법에 속하는 진공증착 중합법을 이용하여 내열 절연성 박막을 제작하고 열경화 온도에 따른 박막의 물성과 전기적 특성에 대해 연구하였다. hexafluoroisopropyliden-2,2-bis[phthalic anhydride] (6FDA)와 4,4'-diamino diphenyl ether (DDE) 단량체를 화학량론적으로 최적의 온도인 214°C, 137°C 부분에서 같은 증발율을 보일 때 폴리이미드를 형성하였다. 진공증착 중합된 박막은 열경화에 의해 이미드특성 피이크가 증가되며, 폴리아믹산의 형태에서 폴리이미드 형태로 축중합되어점을 알 수 있었다. 열경화 온도가 증가함에 따라 박막의 두께는 감소되고 굴절율은 증가된다. 열경화 온도가 300°C인 경우 최적임을 알았고, 이 온도에서 열경화 시킨 폴리이미드의 전기적 특성에서 100Hz~200kHz 주파수에서는 3.7의 비유전율을 나타내었고, 유전정밀은 0.008의 낮은 값을 보였다. 또한, 30°C에서 약  $1.05 \times 10^{15} \Omega\text{cm}$ 의 저항율을 보였다.

**Abstract** - In this paper, thin films of Polyimide (PI) were fabricated by vapor deposition polymerization method (VDPM) of dry processes. The film's properties with curing temperature and electrical properties were studied. The synthesis of hexafluoroisopropyliden-2,2-bis[phthalic anhydride] (6FDA) and 4,4'-diamino diphenyl ether (DDE) was carried out by vapor deposition polymerization (VDP) with the same deposition rate. The evaporation temperature of 6FDA and DDE were 214°C and 137°C, respectively, so as to preserve balance of stoichiometry. The polyamic acid (PAA) made by VDPM were changed to PI by thermal curing. The uniformity and density of PI thin films were increased according to increasing curing temperature. The relative permittivity and dissipation loss factor were 3.7 and 0.008 at the frequency of 100Hz~200kHz, respectively, for the fabricated in the curing temperature of 300°C. Also, the resistivity was about  $1.05 \times 10^{15} \Omega\text{cm}$  at 30°C.

### 1. 서 론

20세기는 고분자 성형기술의 발달로 많은 종류의 고분자재료가 출현되어 산업계와 인류문화 생활향상에 기여한바 컸다. 그러나, 고분자 재료는 고온에서 열분해가 용이하게 일어나서, 고유의 특성이 상실되기 때문에 사용범위가 제한되어 왔다. 그래서, 내열성 고분자에 대한

관심이 고조되어, 1960년대 방향족 폴리이미드가 출현하게 되었다[1].

폴리이미드의 구조적인 특징은 방향족 사이에 -O-, -NH-, -CO-등이 연결되어 있기 때문에 뛰어난 열안정성, 내화학성 및 전기적특성이 있다고 알려져 있고, 전기분야에서는 애나멜선, 주형재료 및 성형재료 등 주로 절연재료로써 다양하게 사용되며 전자산업분야에서는

반도체 소자 혹은 관련디바이스에 응용되고 있다[2].

반도체공정에서 사용되는 폴리아미드 박막은 습식법으로 주로 제조하여 사용하고 있는데, 습식제조는 용매가 잔존하고, 용매증발시에 생기는 내부응력의 불균일성 및 용매로 인한 인체에 해로운 영향 등 문제가 있다. 그러나, 건식법으로 폴리아미드 박막을 제조하는 것은 습식의 단점을 보완하여 주며, 구조 및 막두께 제어의 용이성, 외부로부터 오염방지 등 장점이 있다. 특히, 반도체소자 제작시 절연막이나 보호막을 건식법으로 제조하게 되면 반도체 공정을 일괄적으로 진행할 수 있음으로 제조공정을 단순화 시킬수 있는 가능성이 있다.

폴리아미드 박막이 반도체 절연막으로써 이용되려면, 초박막화가 가능해야 하고 신뢰성 있는 절연성 및 열안정성이 있어야 하며 미소거리 배선간 정전용량의 문제점을 고려하여 양호한 유전특성을 가져야 한다.

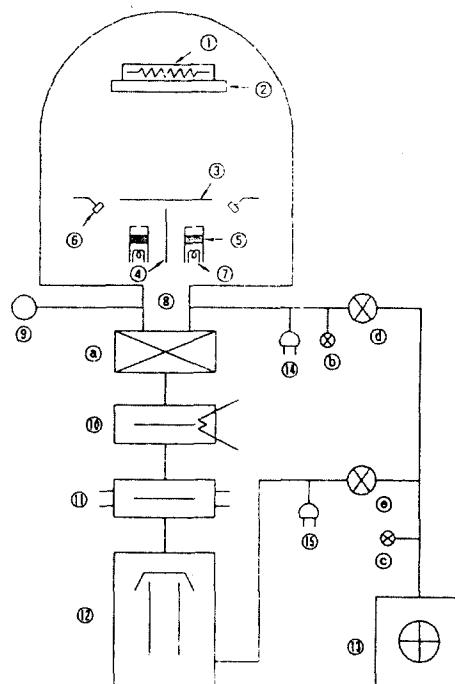
종래 습식법으로 제조하여 오던 폴리아미드 박막을 본 연구에서는 건식법인 진공증착 중합법으로 제조하기 위하여 진공증착중합장치를 제작하고 6FDA와 DDE의 두 단량체에 의해 제조된 폴리아미드 박막을 적외선 분광분석계를 이용하여 열경화온도에 따른 화학조성을 분석하고, 또한 주사전자현미경(SEM), 타원편광해석계(ellipsometer)와 AFM을 이용하여 열경화온도에 따른 중합박막 내·외부의 미세구조 특성을 조사하였다. 이를 바탕으로 하여 최적의 온도를 정하였고 유전율과 전도전류의 측정에 의한 저항율을 조사하였다.

## 2. 실험방법

본 연구실에서 제작된 진공증착 중합장치의 개략도를 Fig. 1에 나타냈다. 실험에 사용된 시약은 CHRISKEV사의 hexafluoroisopropyliden-2,2-bis[phthalic anhydride] (6FDA)와 東京化成의 특급시약인 4,4'-diaminodiphenyl Ether(DDE)를 중합하여 폴리아믹산 박막을 만들고, 열경화에 의해 폴리아미드를 합성하였다. 단량체의 증발율은 각각의 열원인 할로겐 램프로 온도를 제어하며 수정진동자 막두께측정장치(MAXTEX, TM-103R)를 이용하여 몰비가 1:1이 되었을 때 셔터를 열어 기판위에 중합막을 증착시켰다.

실험에 사용된 단량체의 합성기구에 대해서는 Fig. 2에 나타내었고, 실험의 조건은 Table 1에 요약하였다.

화학조성와 아미드화도를 알기 위해 폴리아미드 박막을 KBr 단결정판 위에 형성시킨후, 적외선 분광 분석기



① Heater, ② Substrate, ③ Shutter, ④ Partition,  
⑤ Monomer, ⑥ Thickness, ⑦ Halogen Lamp, ⑧ Gas outlet,  
⑨ Ion gauge, ⑩ Cold trap, ⑪ Water baffle,  
⑫ Oil diffusion pump, ⑬ Rotary pump, ⑭ TC gauge 1,  
⑮ TC gauge 2, ⑯ Main valve, ⑰ Vent valve,  
⑱ Release Valve, ⑲ Roughing vale, ⑳ Foreline valve

Fig. 1. 진공증착 중합장치의 개략도.

(FT-IR, Nicolet model 520)을 이용하여 파수 4000~400 cm<sup>-1</sup>와 해상도 4.0 cm<sup>-1</sup>으로 측정하였다.

제조된 박막의 열경화온도에 따른 내·외부특성을 관찰하기 위해 주사전자현미경(SEM: Scanning Electron Microscope, Hitachi Co., X-650), 타원편광해석계(Ellipsometer, PLAS MOS Co., SD2302), AFM(Atomic Force Microscope, DI Co., DAFM-6300)을 사용하였다.

Table 1. 증착중합의 실험조건

	6FDA	DDE
Monomer의 증발온도	214±1°C	137±1°C
증착증 압력	>1×10 <sup>-5</sup> Torr	
기판온도		상온
증착율		300~400 Å/min
증발원과 기판과의 거리		380 mm
기판		Glass, Quartz, KBr

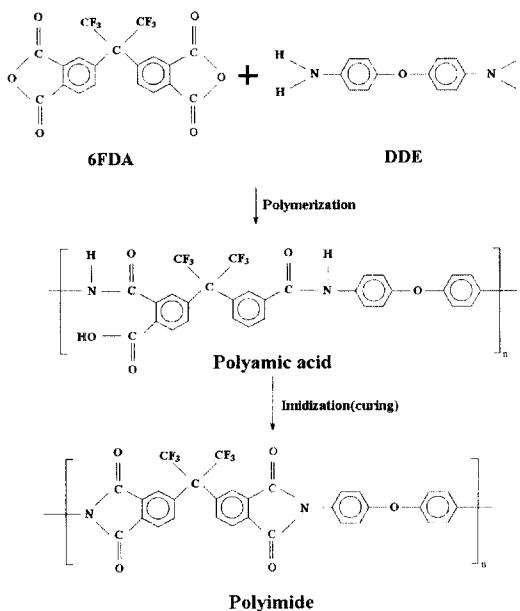


Fig. 2. 진공증착중합에 의한 폴리아미드의 합성기구.

며, 용력의 측정을 위하여 광학적 방법 중 레이저 빔(laser beam)으로 (박막+기판)계를 일정한 간격으로 주사하고, 그 반사된 빔이 일정한 주사 간격에 대해 스크린 상에서 이동하는 거리를 측정하여 (박막+기판)계의 곡률변경을 결정하는 레이저 주사법(laser scanning method)을 이용하였다.

전기적 특성을 분석하기 위해 하부전극은 3 mm 폭의 알루미늄으로 증착하였고, 알루미늄의 안정화를 위해 400°C에서 10분간 열처리를 한후 폴리아미드 박막을 성막시키고, 그 위에 수직위치로 3 mm 폭의 알루미늄으로 상부전극을 증착한 MIM(Al-polyimide-Al)구조의 십자형으로 만들었다.

최적의 온도인 300°C로 열경화한 폴리아미드를 100 Hz~1 MHz 주파수와 25~80°C 온도범위에서 임피던스 분석기(Impedance Analyzer, Hewlett Packard, LF 4192A)를 이용하여 유전특성을 측정하였다.

전도전류는 시편에 전계 51.39 kV/cm를 일정하게 인가하고 상온에서 150°C까지 변화시키면서 미소전류계(Takeda Riden, TR9461)로 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 화학조성분석

일반적으로 anhydride와 diamine 계 단량체는 아미드

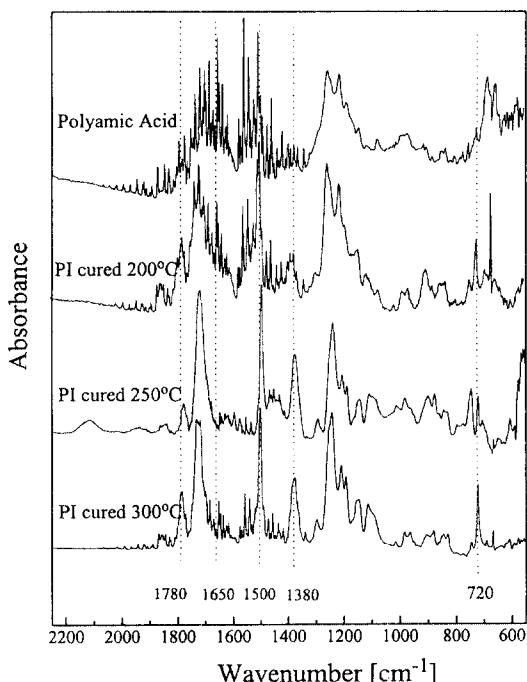


Fig. 3. 진공증착중합 막의 열경화 온도에 따른 적외선 분광스펙트라.

화(amidation)반응을 거쳐 폴리아믹산이 되고, 이를 열경화함으로써 폴리아미드가 형성된다.

진공증착중합막을 200°C, 250°C 및 300°C로 각각 한시간 동안 열경화시킨 막과 열경화시키지 않은 막의 적외선흡수스펙트라를 Fig. 3에 나타냈다.

열경화시키지 않은 진공증착중합막은 C=O 산축진동에 의한 1720 cm<sup>-1</sup>파이크, amide 결합에 의한 1650 cm<sup>-1</sup>파이크, 2차 아미드의 N-H 산축진동에 의한 1540 cm<sup>-1</sup>파이크, C=C stretching vibration에 의한 1500 cm<sup>-1</sup>파이크가 보여 폴리아믹산박막임을 알 수 있었고, 열경화시킨 막은 이미드특성파이크인 1780, 1720, 1380, 720 cm<sup>-1</sup>의 이미드 흡수파이크가 현저히 나타났고, amide 결합에 의한 1650 cm<sup>-1</sup>의 파이크는 줄어들었다. 그러므로, 열경화온도가 증가함에 따라 폴리아믹산 박막은 가교반응과 탈수반응에 의해 폴리아미드 박막으로 변환되어 짐을 알 수 있다[3].

이때 최적의 열경화 온도를 분석하기 위해 Fig. 3에서 기준파이크를 1500 cm<sup>-1</sup>로 했을 때 각각의 파이크들에 대한 흡수강도를 Fig. 4에 나타내었다. 이때 1500 cm<sup>-1</sup>는 단량체 DDE의 C=C stretching vibration에 의한 단

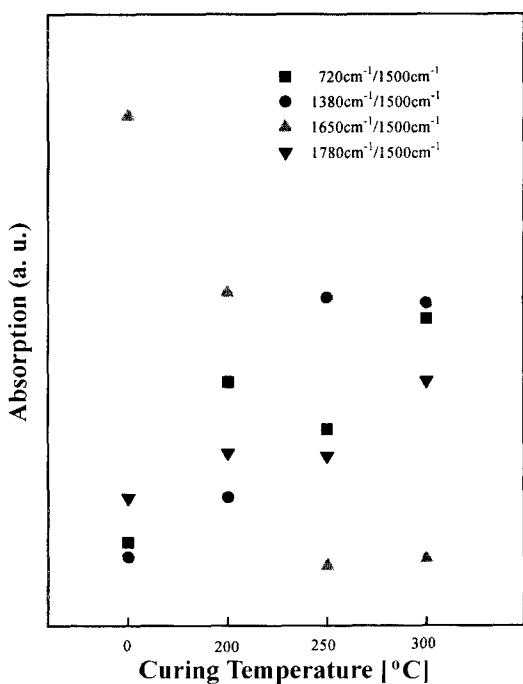


Fig. 4. 진공증착 중합막의 열경화 온도에 따른 흡수밀도의 변화.

량체의 주쇄피이크이기 때문에 실질적으로 아미드화에는 영향을 미치지 못하여 기준피이크로 설정하였고 base-line법에 의해 각각의 흡수피이크들의 아미드화도를 결정하였다[4, 5]. 그림에서 보듯이 경화온도의 증가에 따라 amide bonding에 의한  $1650\text{ cm}^{-1}$  피이크는 감소하고 있으며, 아미드 특성피이크인  $1780, 1380, 720\text{ cm}^{-1}$ 는 증가하는 경향을 볼 수 있다. 이와 같이 모든 peak들의 흡수강도에 알 수 있듯이 열경화 온도가 증가함에 따라 아미드 특성 피이크가 보이지만, 일반적인 반도체 공정을 고려할 때  $350^{\circ}\text{C}$  이하에서 박막이 제조되어져야 함으로[6], 최적의 온도를  $300^{\circ}\text{C}$ 로 정하였다.

이와 같은 결과로 부터 폴리아믹산 박막은 시편의 열

Table 2. 진공증착중합박막의 적외선 분광분석에서 관측된 주 피이크

파수	진동의 형태
$1780\text{ cm}^{-1}$	anhydride의 carbonyl 신축진동
$1720\text{ cm}^{-1}$	symmetric carbonyl 신축진동
$1650\text{ cm}^{-1}$	secondary amide carbonyl 신축진동
$1500\text{ cm}^{-1}$	벤젠고리의 $\text{C}=\text{C}$ 결합의 신축진동
$1380\text{ cm}^{-1}$	$\text{C}-\text{N}$ 결합의 신축진동
$720\text{ cm}^{-1}$	아미드고리의 carbonyl 신축 혹은 deformation

경화 온도가 증가함에 따라 폴리아미드로 변화되어짐을 알았다. 각각의 아미드 특성피이크에 대한 것은 Table 2에 나타내었다.

### 3.2 열경화 온도에 따른 특성

#### 3.2.1 박막의 내부분석

타원편광해석계를 이용하여 폴리아미드 박막의 두께와 굴절율을 측정하여 Fig. 5에 나타내었다. 이때 광원의 파장은  $6343\text{ nm}$ 이고 입사각은  $70^{\circ}$ 이다.

그림에서 보면, 열경화 온도의 증가에 따라 제조된 박막의 두께는 감소되고, 굴절율은 증가됨을 알 수 있다. 이는 열경화 온도가 증가하면 박막내의 기둥구조 사이의 void가 감소된다. 즉, 박막의 내부기둥 구조가 감소되어 박막의 부피가 감소되는 현상이라 생각된다. 즉, 열경화 온도가 증가함에 따라 박막의 조밀도(packing density: p)[7]의 증가로 인해 굴절율이 증가되고 두께가 감소됨을 알 수 있다.

주사형 전자현미경(Scanning Electron Microscope; SEM)을 이용하여 증착 중합 박막의 열경화 온도에 따른 폴리아미드 박막의 단면을 Fig. 6에 나타내었다. 사진에서 보면 타원편광해석계에서와 같이 열경화 온도가 증가함에 따라 박막의 두께가 감소됨을 알 수 있다. 또한 박막의 표면은 열경화 온도의 증가에 따라 균일해짐을 알 수 있다. 이러한 결과로부터 증착중합한 시료는

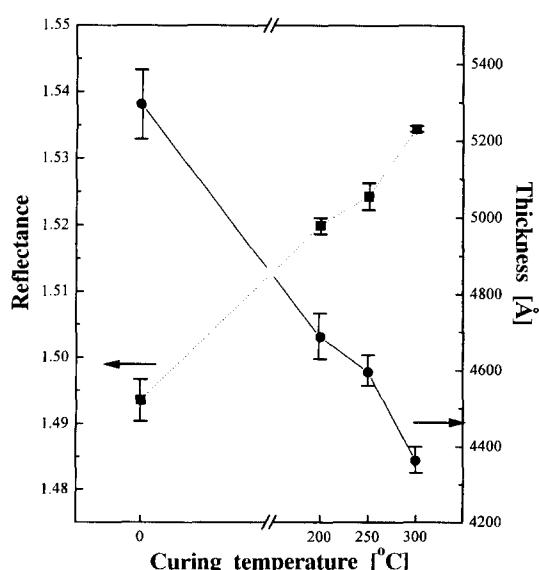
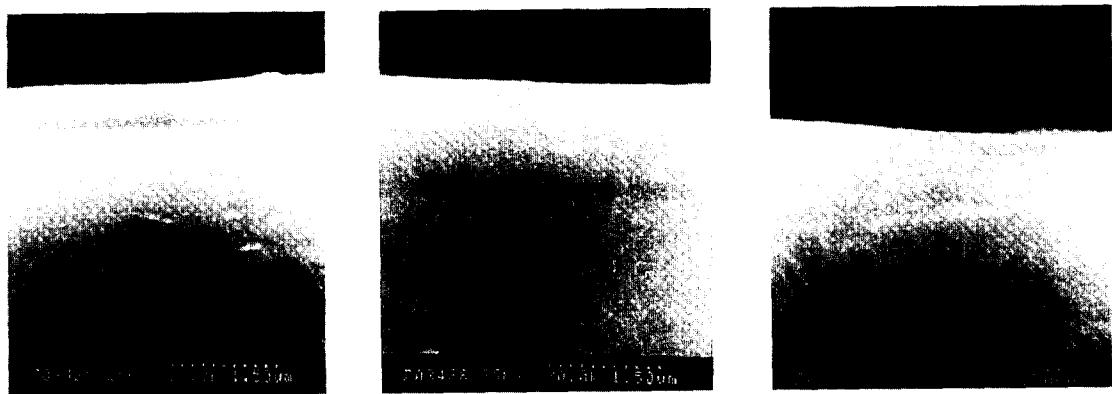


Fig. 5. 열경화 온도에 따른 박막의 두께와 굴절율.



(a) PI (curing temp.:200°C) (b) PI (curing temp.:250°C) (c) PI (curing temp.:300°C)

Fig. 6. 열경화된 폴리아미드 박막의 SEM 단면 (a) 200°C, (b) 250°C, (c) 300°C.

열경화 온도가 증가함에 따라 박막의 부피가 줄어들어 두께가 감소되고 표면의 상태가 균일하게 됨을 알 수 있다.

### 3.2.2 박막의 표면분석

일반적으로 AFM(atomic force microscope)는 물질의 표면 구조에 있어 표면의 입체적인 정보뿐만 아니라, Angstrom 단위까지 표면의 원자배치를 아주 간단하게 파악할 수 있고 표면의 차리없이 자연상태 그대로 관찰

이 가능하여 광범위하게 사용되고 있다.

$0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$  크기의 폴리아미드 박막의 열경화 온도에 따른 표면의 거칠기(roughness)와 표면의 미세 구조(surface morphology) 형상은 Fig. 7와 8에 나타내었다. Fig. 7에서 보면 열경화 온도가 증가함에 따라 표면의 거칠기 값은 감소됨을 알 수 있다. 이와 같이 열경화에 의해 표면의 거칠기가 감소되면 폴리아미드 박막이 반도체 소자의 절연막에 이용될 경우 후공정 박막의 안정된 특성을 보일 것이라 사료된다. 또한, Fig. 8의 형상에서 보면 열경화 온도가 증가함에 따라 입자가 성장되어 가고 있음을 볼 수 있다.

이와 같은 결과는 SEM과 ellipsometer의 측정에서와 같이 열경화 온도가 증가함에 따라 내부의 기둥구조가 감소되어 조밀도가 향상되고 박막의 표면상태가 균일해짐으로써 보다 양호한 폴리아미드 박막을 형성할 수 있다고 생각되어진다. 즉, 열경화 온도가 300°C일 경우가 안정된 폴리아미드 박막이 제조되어지리라 생각되어진다.

### 3.2.3 응력

진공증착법에 의해 기판상에서 증착된 폴리아미드 박막과 열경화에 따른 폴리아미드 박막의 응력 변화를 알아 보기 위하여 bending plate method 중 광학적 방법을 이용하였다.

측정된 광률반경을 이용하여 막의 두께가 기판(wafer)의 두께에 비해 상당히 작다고 가정한다면, 다음의 식 [8]에 의해 막의 응력을 측정할 수 있다.

$$\sigma_F = \pm \left( \frac{t_s^2}{6t_F R} \right) \times \left( \frac{E_s}{1 - \nu_s} \right)$$

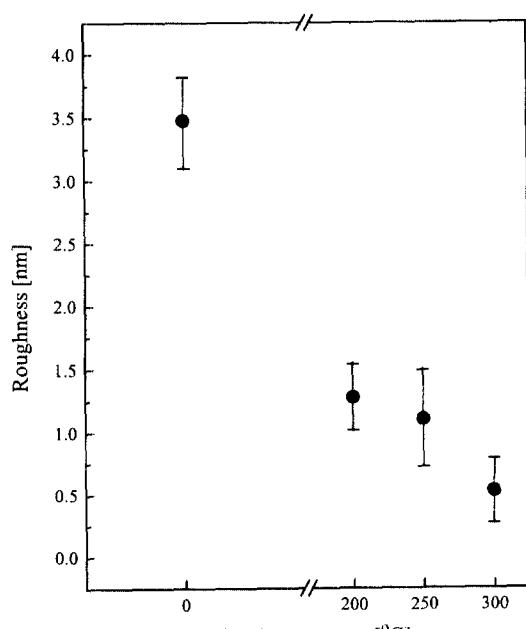


Fig. 7. 열경화 온도에 따른 표면의 거칠기.

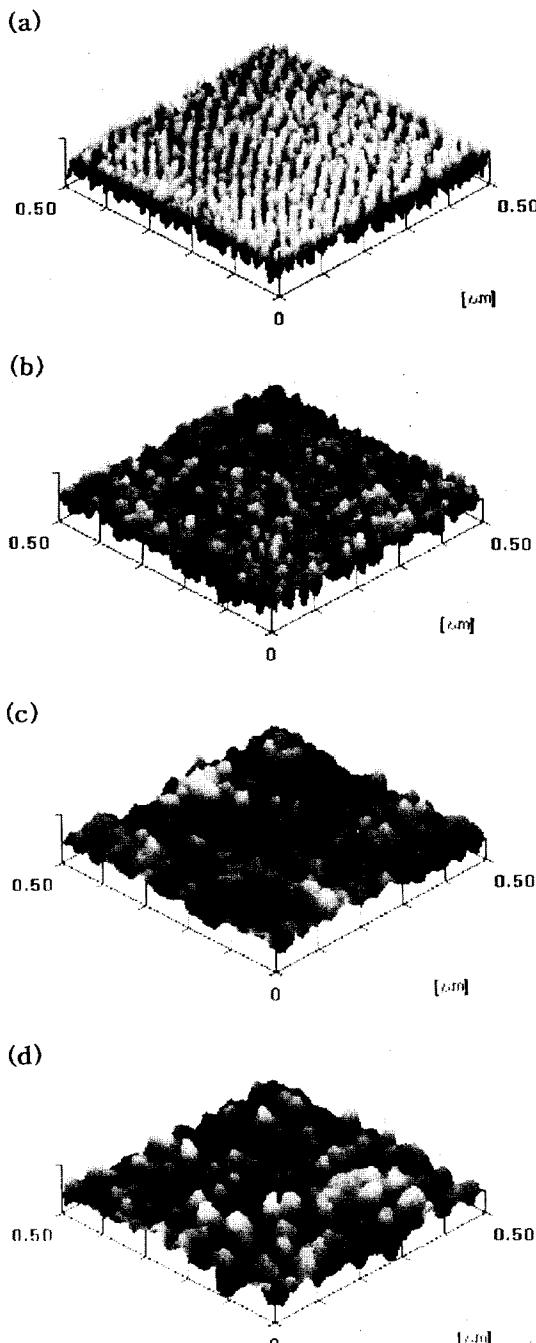


Fig. 8. 열경화 온도에 따른 폴리아미드의 AFM 형상.

단,  $\sigma_t$  = 막의 응력,  $t_s$  = 기판의 두께,  $t_f$  = 막의 두께,  
 $R$  = 곡률반경  $E_s$  = 기판의 Young's modulus,  
 $\nu_s$  = 기판의 Poisson's ratio,  $\pm$  = 막응력 표시 (+:tension)

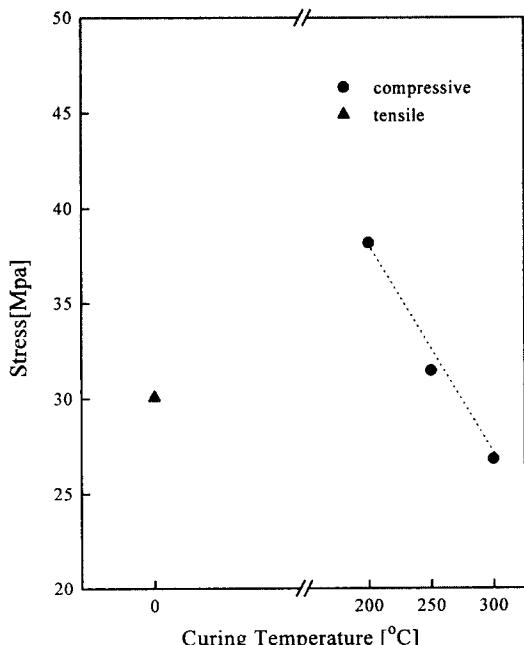


Fig. 9. 열경화 온도에 따른 응력.

Fig. 9은 곡률반경에 의해 계산된 막의 응력의 변화를 나타낸 것이다. 그림에서 보면 막이 증착된 당시는 곡률반경이 작아짐에 의해 tensile 형태를 보이고 있으며, 열경화 온도가 증가함에 따라 곡률반경이 증가함에 의해 compressive 형태로 응력은 감소됨을 알 수 있다. 이는 열경화 온도가 증가 함에 따라 막이 부드러워지고 내부 기둥구조의 감소함에 따라 부피가 감소되어 막의 응력이 감소된다고 사료된다. 또한, 일반적으로 박막은 인장(tensile) 응력을 가지고 활성반응으로 얻어진 유전체 박막은 압축(compressive) 응력을 보이는 것[9]과 일치함을 알 수 있었다.

### 3.3 전기적 특성 분석

전기적 특성을 측정하기 위하여 폴리아미드 박막의 제조조건은 물성특성에서 얻어진 최적 열경화 온도 300°C로 일정하게 하였다. 또한, 일반적으로 반도체 절연막으로 쓰이고 있는 SiO<sub>2</sub>[10]의 전기적 특성과 비교하고자 한다.

#### 3.3.1 유전특성분석

상온에서 주파수의 변화에 따른 비유전율특성과 유전정접(dielectric dissipation factor) 특성을 Fig. 10에 나타낸다. 그림에서 보면 측정 주파수가 증가함에 따라 200

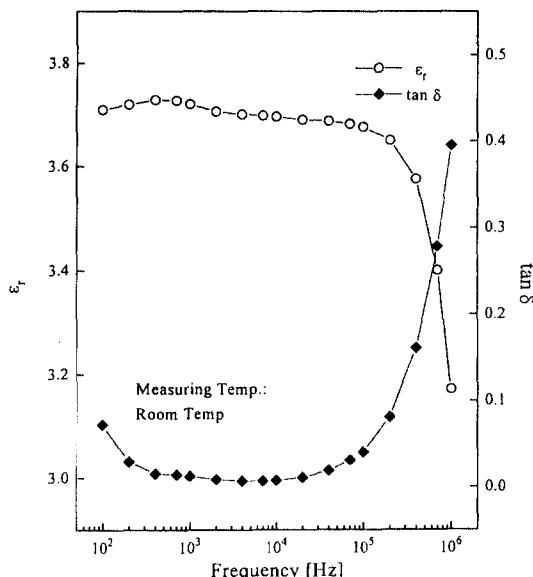


Fig. 10. 폴리아미드 박막의 주파수 내 유전 특성.

KHz 까지는 비유전율이 3.7 정도로 일정한 경향을 나타나고 그 이후의 주파수에서는 감소되는 경향을 볼 수 있다. 이는 박막 내에 존재하는 쌍극자의 재배열이 주파수 변화를 따라가지 못하는 유전분산현상에 기인하는 것으로 추정되며, 이것은 일반적인 PI박막의 유전 특성과 일치함을 알 수 있다[11]. 이와 같은 결과는  $\text{SiO}_2$  박막[10]의 비유전율이 3.5~4.0의 값과 비슷한 값을 보이고 있음을 알 수 있다. 또한, 유전정접은 200 Hz~20 KHz 까지는 0.008의 낮은 값을 보이고 있으며 200 KHz 이상의 주파수 영역에서 유전정접이 급격히 증가하고 있음을 알 수 있다. 이는 분극의 원인이 되는 하전 입자의 고유 진동수가 주파수와 일치되어 유전정접이 증가하는 것이라고 생각할 수 있다.

종합 박막(PAA)을 300°C에서 열경화시켜 완전히 폴리아미드가 된 종합 박막에 대한 온도 변화에 따른 비유전율 변화 특성을 Fig. 11에 나타내었다.

온도가 증가함에 따라 비유전율은 60°C 부근까지는 일정하나 그 이상의 온도에서는 감소하는 경향을 갖는다. 이는 정전용량이 분극에 관계하기 때문이라 사료된다. 즉 유전체에 전계를 가했을 때 각 분자들은 전계의 방향으로 배향하려는데 온도가 증가하면 분자들의 열진동에 의해 쌍극자 배향을 방해하여 분극이 감소된다. 즉, 정전용량은 감소하여 비유전율이 감소하는 특성을 보인다고 사료된다. 또한, 이와 같은 현상은 주파수가

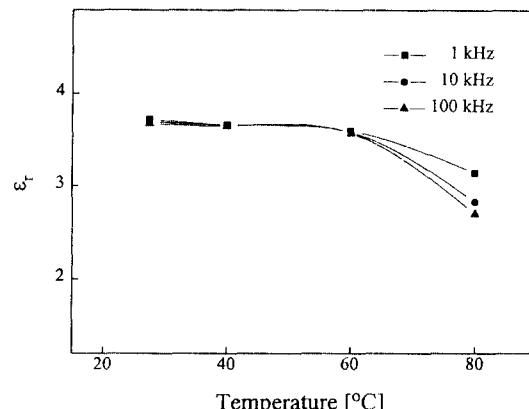


Fig. 11. 주파수의 변화에 따른 온도대 비유전율 특성.

변화하여도 비슷한 경향이 나타난을 알 수 있다.

### 3.3.2 전도특성

300°C에서 1시간 열경화시킨 폴리아미드 박막에 전압을 가할때 나타나는 전류의 변화는 Fig. 12에 나타내었다. Fig.은 51.39 kV/cm의 전계를 인가했을 때 각각의 다른 온도에서 측정된 시간에 따른 전류변화를 보여주고 있다.

그림에서 보면 전류는 전압인가 후 바로 순시충전전류값에 도달하며, 서서히 감소하면서 흡수전류가 나타나는데 이것은 시료내부의 쌍극자들이 전계방향으로 배

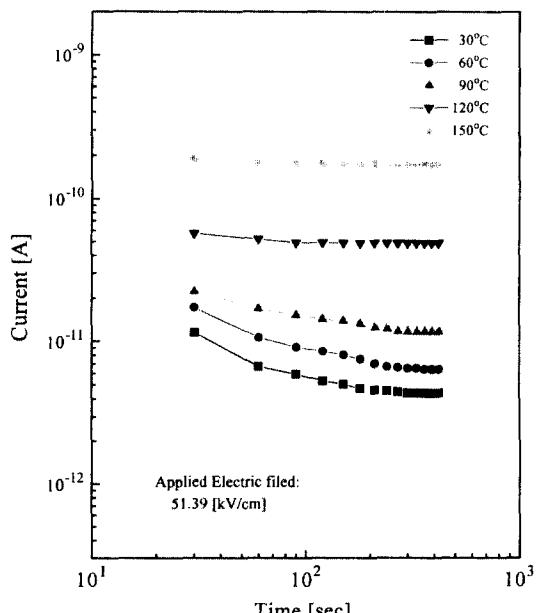


Fig. 12. 시간에 대한 전류의 변화 특성.

열함에 의한 것으로 생각할 수 있으며, 쌍극자들이 전계 방향으로 배열하면서 발생하는 흡수전류가 나타나고 있다. 쌍극자들의 배열이 완전히 이루어진 후 평형누설전류가 나타나는데 이는 박막내의 결합이나 불순물에 기인한다. 그리고 측정온도가 120°C, 150°C인 영역에서는 평형누설전류가 증가하여, 흡수전류가 거의 나타나지 않음을 알 수 있다. 이는 고온영역에서는 캐리어가 활성화되어 누설전류 값이 증가하게 되며 또한 누설전류 값에 비하여 흡수전류 값이 상대적으로 작아져 흡수전류 값이 온도의 증가에 따라 감소되는 것처럼 보이는 것이다 [12]. 그러므로, 흡수전류가 나타나지 않고 누설전류가 지배적으로 흐르게 되기 때문에 생각할 수 있다. 이것 은 열적으로 전도가 활성화되었다는 것을 의미하므로 이온전도의 가능성이 크다는 것을 알 수 있다. 즉, 일정 전계상태에서 시간에 따라 전류값이 감소하는데 그 감소폭은 온도가 증가할수록 작아짐을 알 수 있다.

이와 같은 결과로 부터 본 폴리이미드 박막은 측정시간 6분일 때 30°C에서  $1.05 \times 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$ 을 나타내며, 이 값은 일반적인  $\text{SiO}_2$  막[10]의 저항률인  $10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 에 비해 약간 낮은 값을 보이지만 절연성이 좋은 편으로 볼 수 있다.

#### 4. 결 론

본 실험은 자체 제작된 전공증착중합장치에서 단량체 6FDA와 DDE를 사용하여 중합박막(PAA)을 만들고, 열경화에 의한 폴리이미드(PI)박막의 특성을 알아 보았고, 최적의 열경화 온도를 구하여 그에 따른 폴리이미드 박막의 전기적인 특성을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 전공증착법에 의해 제조된 박막은 폴리아미산 박막이고 열경화 후 폴리이미드 박막이 됨을 알 수 있었다.

2) 폴리이미드 박막을 형성시키는데 열경화 온도는 중요한 요인이 되며, 최적 열경화 온도는 300°C임을 제시할 수 있다.

3) 열경화온도 300°C에서 제조된 폴리이미드 박막의 100 Hz~200 KHz의 주파수에서 비유전율은 3.7 정도이고 유전정접은 0.008의 낮은 값을 보이며, 30°C에서의 저항률은  $1.05 \times 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$ 이다.

#### 참고문헌

- 1 A. M. Wilson, *Polyimides: Synthesis, Characterization and Applications*, p. 715 (Plenum, New York, 1980).
- 2 Y. Takahashi, *J. Vac. Sci. Technol.* **5**(4), 2253-2256 (1987)
- 3 C. A. PRYDE, *J. Polym. Sci.* **A27**, 711-724 (1989).
- 4 Yasuhiko ITO, *Jpn. J. Appl. Physics*, **29**(6), 1128-1131 (1990).
- 5 J. R. Salem, *J. Vac. Sci. Technol.* **A4**(3), 369-373 (1986).
- 6 佐藤任延, 鉛木廣, 内村後一郎, 牧野大輔, 絶縁材料研究會, EIM-85-48, 1~14 (1985).
- 7 K. H. Guenther and H. K. Pulker, *Appl. Opt.*, **15**, 2992 (1976).
- 8 K. L. Mittal, *Polyimides, Synthesis, Characterization, and Applications*, pp. 695~711 (Plenum Press, New York, 1984).
- 9 Kasturi L. Chopra, *The Materials Science of Thin Films*, pp. 403~438 (Academic Press, New York, 1987).
- 10 H. Satou, H. Suzuki, and D. Makino, *Polyimides*, p. 230 (Chapman & Hall, USA, 1990).
- 11 電氣學會通信教育會, 誘電體現象論, pp. 229~232 (日本電氣學會, 1985).
- 12 山中後一, 日野太郎, 近代電氣材料工學, pp. 145~146 (電氣書院, 1970).