

# 불소를 함유하는 전자재료용 내열성 고분자

김 상 율

## 서 론

기존의 소재보다 더 나은 성능을 갖는 새로운 재료의 필요성은 많은 분야에서 산업구조의 고도화에 비례하여 증폭되고 있다. 내열성 고분자는 주로 우주항공산업과 전자산업분야에서의 재료의 필요성에 의해 지난 30년간 많은 연구가 이루어져 왔는데, 이는 고분자재료가 갖는 독특한 성질에 기인한다. 특히 전자산업에서의 고분자는 microelectronic devices와 components의 packaging 재료로서 중요한 역할을 하고 있으며 점차 그 역할이 더욱 커질것으로 예측되어지는데, chip interconnections과 multichip module 등의 절연재료로의 응용이 그 대표적인 예이다.<sup>1~4</sup> 이러한 용도에 사용하기 위해 필요한 성질을 살펴보면, 우선 가공이 용이해야하며 공정상의 열적, 화학적 및 기계적 충격을 견딜 수 있어야하고 제조후 제품의 형상유지에 필요한 충분한 기계적 성질을 지녀야 한다. 동시에 최종제품이 계획된 제 성능을 발휘하게 해 줄 수 있는 절연성 등을 지녀야 한다. 고분자재료가 이러한 용도에 사용되는 주 이유는 가공이 용이한 점과 더불어 유전상수(dielectric constant)가 무기절연체에 비해 낮기 때문인데(Table 1),<sup>5~7</sup> 절연율이 좋을수록 회로에서의 interconnecting metal lines들간의 폭을 줄일 수 있어 회로를 더욱 고집적화 할 수 있고 propagation delay를 감소시켜 성능을 향상시킬 수 있다.<sup>8</sup>

$$J_d = \frac{\ell \sqrt{\epsilon}}{c} \quad (1)$$

where  $J_d$  : propagation delay  
 $c$  : speed of light  
 $\ell$  : signal traveling distance  
 $\epsilon$  : dielectric constant of insulating medium

Polyimides는 위에 언급한 전자재료로서의 용도에 필요한 성질을 대부분 만족시키고 있어 microelectronic industry에서 널리 사용되어지고 있으나, 최근 chip 및 chip module의 고집적화가 급속히 진행됨에 따라 지금의 polyimides가 갖는 성능이상의 새로운 절연재료( $\epsilon < 3$ )에 대한 필요성이 대두되고 있으며 불소를 포함하는 고분자에 대한 관심이 높아지고 있다. 불소, 주로  $CF_3$  group을 고분자의 주쇄나

### 김 상 율



- 1979 서울대 공업화학과(학사)
- 1982 한국과학기술원 화학과 (석사)
- 1989 미국 RPI 화학과 (이학박사)
- 1980 KIST 연구원
- 1982~ 현대건설 plant 사업부 1984
- 1990 IBM Almaden Research Center
- 1991~ Lucky 고분자 연구소 현재 선임연구원

## Fluorine-Containing High Temperature Polymers for Microelectronic Applications

한국고분자연구소(Sang Yeul Kim, P. O. Box 10, Dae-Deog-Danji Science Town, Dae Jeon 305-343 Korea)

**Table 1.** Properties of Typical Insulators

Material	Dielectric Constant	TEC* (ppm/°C)	Processing Temp(°C)
Alumina	9.4	6.6	1600
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	9.4	2~3	800
SiO <sub>2</sub>	4.2	3~5	1000
Polyimide	3.5	20~40	400
Teflon	2.2	20	400
Epoxy-Fiber glass	4.5~5.0	14~18	175

\* Thermal expansion coefficient

측쇄에 함유시킬 경우 내열성의 현저한 감소없이 고분자의 용해도를 증가시킬 수 있고 아울러 유전상수의 감소 및 흡수율의 저하효과를 얻을 수 있다. 사실이 알려져 있으며,<sup>9</sup> 이를 이용한 유전상수가 낮은 내열성 고분자 절연재료의 개발이 최근 활발히 이루어지고 있다. 참고적으로 현재 알려져 있는 고분자 재료중 가장 낮은 유전상수를 갖는 것은 Du-Pont사의 Teflon AF로서 유전상수가 1.9이다.<sup>10</sup>

본고에서는 condensation polyimides와 poly(aryl ethers)를 중심으로 하여 불소를 함유하는 내열성 고분자에 관하여 논하였다.

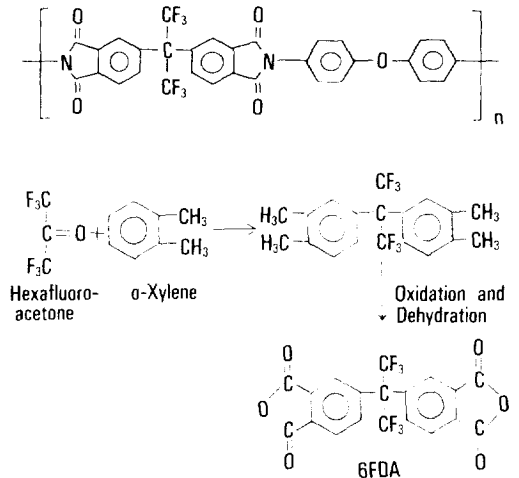
### Polyimides

Condensation polyimides는 뛰어난 내열성과 film 형성력 그리고 무기절연체에 비해 낮은 유전상수 ( $\epsilon \sim 3.5$ ) 등 절연재료로서 사용하기에 적합한 특징을 갖추고 있으며 실제 고집적 회로 및 고성능 computer의 packaging 등에 사용되어지고 있다. 그러나 condensation polyimides는 일반적으로 용매에 녹지 않기 때문에 용매에 녹는 poly(amic acid) precursor를 가공한 뒤(e.g. spin coating) curing하여(imidization) 최종형태의 polyimides를 얻는데, 이때 반응부산물로서 물이 발생하기 때문에 curing시 상당한 주의가 요구된다. 또한 poly(amic acid)는 가수분해에 매우 민감하여 보존가능기간이 짧는데, 이러한 단점들을 극복하기 위해 용매에 녹는 polyimides에 관한 많은 연구가 이루어져 왔다.<sup>9</sup>

고분자의 용해도를 증가시키는 방법으로는 고분자주쇄에 유연하거나 kinked된 연결 group을 도입

하고, 커다란 극성 또는 비극성 치환체를 갖게 하며, 고분자 주쇄의 대칭성(regularity)을 와해시키는 등의 구조변화에 의한 것들이 일반적으로 알려져 있다.<sup>11</sup> Perfluoroalkyl group을 포함하는 polyimides는 이러한 방법에 의한 용해도 증가의 한 예로서 hexafluoroisopropylidene group을 갖는 dianhydride를 monomer로 사용한 Du Pont의 Rogers에 의해 처음 보고되었다.<sup>12</sup> 2,2-Bis(3,4-dicarboxyphenyl)hexafluoropropane dianhydride(6FDA)와 oxydianiline(ODA)을 중합시켜 얻어지는 아래의 polyimides는 Du Pont에 의해 microelectronics용으로 제공되어지고 있는데 유전상수는 2.9이며, 흡수율 2%, 열팽창계수(Thermal Expansion coefficient: TCE) 60ppm/°C, T<sub>g</sub>는 290°C이다.<sup>13</sup> Dianhydride monomer는 hexafluoroacetone과 o-xylene으로부터 만들어지며(Fig. 1), diamine은 1-chloro-4-nitrobenzene과 4-nitrophenol로부터 aromatic nucleophilic substitution 반응을 통해 제조된다(Fig. 2).

Hoechst Cellanese에 의해 상품화가 추진되고 있는 Sixef polyimide는 6FDA와 2,2'-bis(4-aminophenyl)hexafluoropropane(4,4'-6FDA)을 monomer로 사용한 것으로서 유전상수 2.65, T<sub>g</sub>는 322°C, 흡수율 1.1% 등 우수한 성질을 갖는다.<sup>14</sup>



**Fig. 1.** Synthesis of 6FDA monomer.

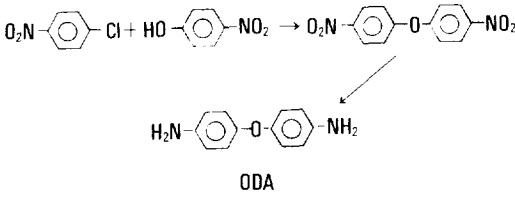


Fig. 2. Synthesis of oxydianiline.

TRW에 의해 특허화되었고 현재 Ethyl사에서 시험적으로 상품화를 시도하고 있는 Eymyd는 2,2-bis(4-aminophenoxyphenyl)hexafluoropropane(4 BDAF)과 6FDA로 구성되어 있다.

4BDAF diamine은 2,2-bis(4-hydroxyphenyl)hexafluoropropane(Bisphenol AF)과 4-chloronitrobenzene으로부터 얻어진다.<sup>15</sup>

Diaminophenylindane(DAPI)은 Ciba-Geigy에서 자체적으로 생산(Fig. 3) 소모하고 있는데(Matrimid 5218, Probimide 200등) 6FDA와 중합하여 얻어진 polyimide의 유전상수는 2.92,  $T_g$ 는 331°C 그리고 열팽창계수는 55ppm/°C라고 발표되었다.<sup>16</sup>

Polyimides 유전상수의 hexafluoroisopropylidene group에 의한 변화는 steric effect, electronic polarization, chain packing efficiency 그리고 free volume change 등의 복합적인 영향에 의한 것으로 알려져 있으나 이들 요인들에 대한 정량적인 연구는 되어 있지 않다.

유전상수는 물질의 total polarizability( $\alpha_T$ )의 함수로서,  $\alpha_T$ 는 균일계의 경우 3개의 성분, 전자의 원자핵에 대한 equilibrium position이 변화하는데서 오는 electronic polarizability( $\alpha_E$ ), 원자간의 non-symmetrical displacement에 기인한 atomic polarizability( $\alpha_A$ ), 그리고 전기장에 의한 permanent dipole moment를 갖는 group들의 배열에 의해 얻어지는 orientation polarizability( $\alpha_o$ )로 구성되어진다.

$$\alpha_T = \alpha_E + \alpha_A + \alpha_o \quad (2)$$

일반적으로 electronic and atomic polarization에 의한  $\alpha_T$ 에 대한 영향은 orientation polarization에 의한 영향에 비해 훨씬 작으나 electron displace-

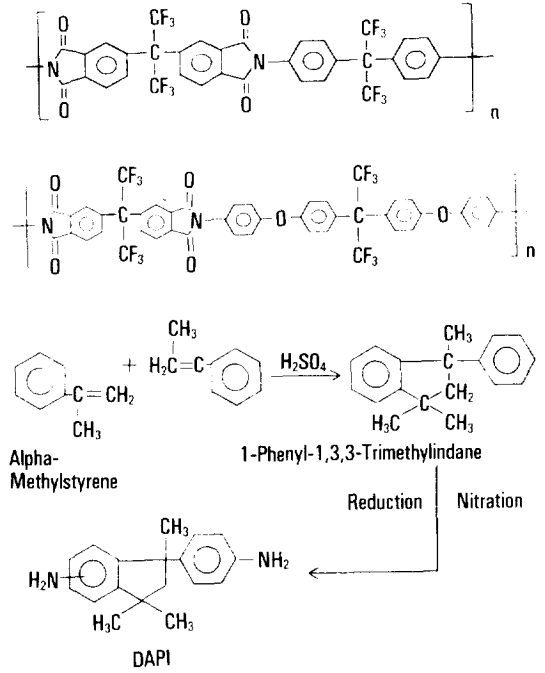


Fig. 3. Synthesis of diaminophenylindane.

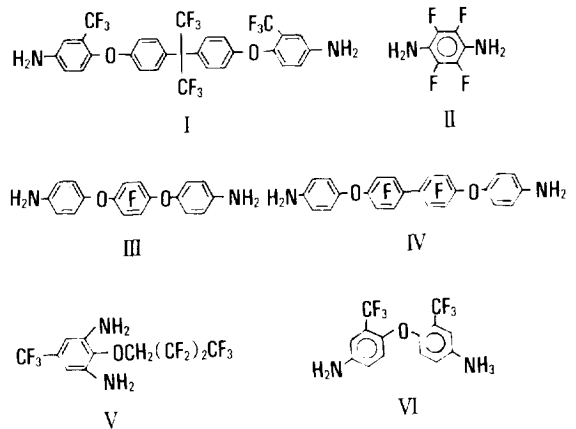


Fig. 4. Fluorinated diamine monomers.

ment가 highly localized되어 있지 않은 conjugated system에서는 electronic polarization에 의한 영향이 상당히 증가한다고 알려져 있다.<sup>22</sup>

Polyimide에 hexafluoroisopropylidene group 같은 커다란 group이 imide linkage간에 도입되면 ste-

**Table 2.** Properties of 6FDA Polyimides

Diamines	T <sub>g</sub> (°C)	Dielectric Constant(ε)	Ref.
ODA	290	2.9 at 1KHZ	13
4,4'-6FDA	322	2.65 at 10MHZ	14
4BDAF	260	2.80 at 1KHZ, 50% RH*	17
DAPI	331	2.92 at 1MHZ, 65% RH	16
I	-	2.71 at 10KHZ, dry	18
II	380	2.75 at 100KHZ, dry	19
III	244	2.83 at 100KHZ, 50% RH	20
IV	271	2.78 at 100KHZ, 50% RH	20
V	227	2.93 at 100KHZ, 50% RH	20
VI	295	2.76 at 1MHZ, 50% RH	21

\*Relative humidity

ric hindrance에 의해 polyimide interchain electronic interaction (charge transfer complex)이 감소되며 결과적으로 유전상수의 저하를 초래한다.<sup>20</sup> 또한 커다란 group의 존재는 polyimide chain의 packing efficiency를 낮추어 free volume의 증가를 초래하여 유전상수를 감소시킨다. 불소의 강한 electron withdrawing inductive effect는 electronic polarizability를 저하시키는 역할을 하는 반면 불소의 높은 electronegativity는 추가적인 dipole moment를 초래하여 orientation polarization에 의한 유전상수의 증가를 야기시킨다. Polyimide의 유전상수에 fluorine group이 미치는 영향은 결과적으로 위의 요인들이 복합적으로 작용한 결과로서 총체적으로 유전상수가 감소하는 것이다.

유전상수는 측정환경(습도, 온도, 주파수등)에 따라 다소차이가 나기때문에 Table 2의 각 고분자들의 유전상수 값을 직접 비교하기는 약간의 무리가 있으나, hexafluoroisopropylidene group을 고분자 주쇄에 도입하는 것 이외에도 aromatic ring의 수소를 불소로 치환하거나 aromatic ring에 pendant perfluoroalkyl group을 도입하면 유전상수의 현저한 감소를 유도할 수 있는 것을 알 수 있다. Aromatic ring에 붙어 있는 불소나 perfluoroalkyl group은 steric hindrance와 동시에 polyimide aromatic ring들의 coplanarity를 저해하여 이러한 결과를 초

래하는 것으로 여겨진다.<sup>19</sup>

Table 2에 언급된 polyimide 이외에도 여러 종류의 dianhydride와 diamine의 조합에 의한 불소를 함유하는 많은 수의 polyimide가 보고되어 있으나 본고에서는 6FDA를 포함하는 polyimide로 범위를 국한시켰다.

### Photosensitive Polyimides

Photosensitive polyimide는 내열성과 더불어 polyimide layer의 patterning process를 간편하게 해주는 direct patterning ability를 갖고 있어 많은 관심을 끌고 있는데,<sup>23</sup> 대부분의 photosensitive polyimides는 negative type으로서 swelling, shrinking during curing등 여러가지 문제점을 안고 있다. 최근 이러한 단점들을 극복하기 위한 한 방법으로 용매에 녹는 polyimide를 이용한 positive type의 polyimides에 관한 연구가 활발히 이루어지고 있는데 khanna와 Mueller<sup>24</sup>에 의해 hexafluoroisopropylidene group을 포함하는 polyimide를 이용한 흥미있는 positive type의 polyimide 조성물이 발표되었다. Matrix resin으로서의 polyimide는 6FDA와 2,2-bis(3-amino-4-hydroxyphenyl)hexafluoropropane (AHHFP)으로부터 제조되는데(Fig. 5) diamine segment의 aromatic ring에 달린 hydroxyl group의 영향으로 aqueous base에 용해된다.

상기의 polyimide 18~25%와 diazonaphthoquinone 3~6%를 함유하는 조성물은 novolak-diazonaphthoquinone type의 종래의 positive photoreist와 같이 sip coating, exposure후 aqueous alkaline 용액을 사용하여 가공이 가능하며 140mJ/cm<sup>2</sup>의 sensitivity와 1.5~2.0의 contrast를 갖는다고 보고되었다. 이때 사용되는 polyimide의 분자량(M<sub>w</sub>)은 약 70,000이고, T<sub>g</sub>는 306°C이다. AHHFP diamine은 Bisphenol AF로 부터 3단계의 반응을 거쳐 만들어진다(Fig. 6).<sup>25</sup>

Omote 등은<sup>26</sup> 6FDA와 AHHFP로 부터 얻어진 polyimide의 hydroxyl group에 tert-butoxycarbonyl (t-BOC) protecting group을 도입하고 photo acid generator를 이용, positive type의 photosensitive

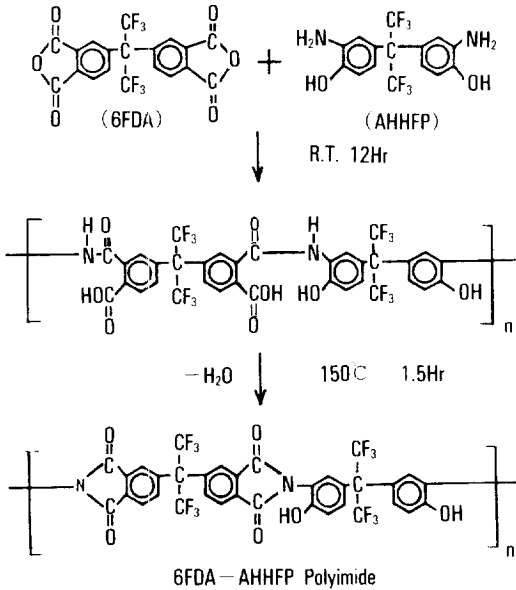


Fig. 5. Synthesis of 6FDA-AHHFP polyimide.

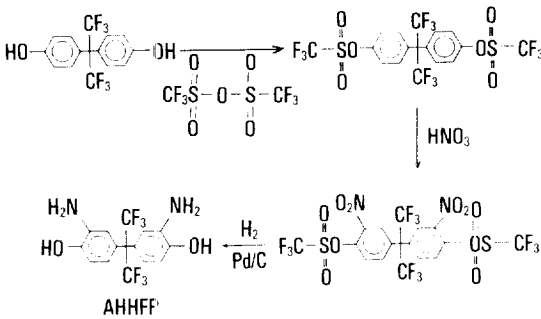


Fig. 6. Synthesis of AHHFP diamine.

polyimide를 합성하였다. t-BOC group으로 보호된 6FDA-AHHFP polyimide는 aqueous alkaline 용액에 녹지않으나 산촉매에 의해 쉽게 acidolysis되어 aqueous alkaline 용액에 녹는 polyimide로 되돌아간다(Fig. 7).

15%의 p-nitrobenzyl-9-10-diethoxyanthracene-2-sulfonate를 photo acid generator로 포함하는 조성물의 경우 sensitivity는 270mJ/cm<sup>2</sup>이고 contrast는 4.2인 것으로 발표되었다. t-BOC group 대신 photosensitive한 5-chlorosulfonyl-1,2-naphthoquinone

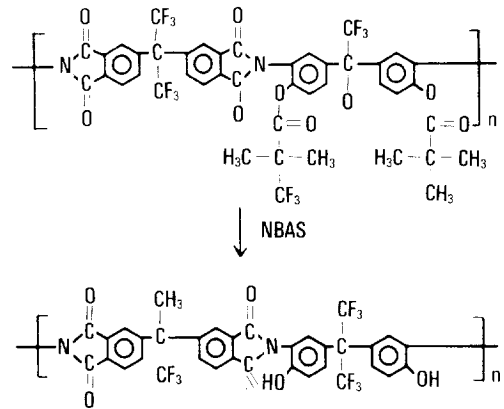


Fig. 7. Acidolysis of t-BOC protected 6FDA-AHHFP polyimide.

diazide(NQDC)를 6FDA-AHHFP polyimide의 hydroxyl group에 반응시켜 얻은 polyimide는 (Fig. 8) diazonaphthoquinone의 함량이 15mol% 이하인 경우는 positive 거동을 보이거나 32mol% 이상인 경우는 negative photoresist로서 작동하는데, 이는 1,2-naphthoquinone diazide가 UV irradiation에 의해 ketene으로 rearrange한후 충분한 수분이 있을 경우는 indenecarboxylic acid로 변화하여 aqueous alkaline 용액에 녹으나, 1,2-naphthoquinone diazide의 함량이 높아지면 소수성의 증가에 의해 film에 흡수된 수분의 양은 줄어드는 반면 광분해에 의해 생성되는 ketene의 양은 증가하여 interchain cross-linking이 주반응으로 일어나 ketene dimer나 butenolide를 형성, aqueous alkaline 용액은 물론 유기 용매에도 녹지 않게 되기 때문인 것으로 보고되었다.<sup>27</sup>

### Poly(aryl ethers)

Microelectronics의 절연물질로 개발이 이루어지고 있는 고분자중의 하나인 poly(aryl ethers)는 용매에 녹으며, 내열성, 절연성, 기계적 성질들이 우수한 고분자재료이다. Poly(aryl ethers)는 일반적으로 activated된 aromatic dihalides 또는 dinitro 화합물과 alkali-metal bisphenolate의 aromatic nucleophilic substitution 반응을 통해 제조되나,<sup>28,29</sup> 그중 일부는 Friedal-Craft acylation 반응을 거쳐

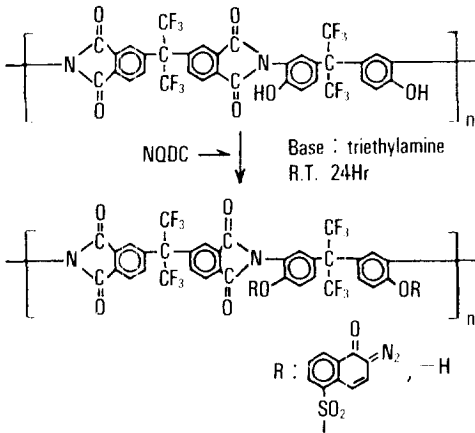
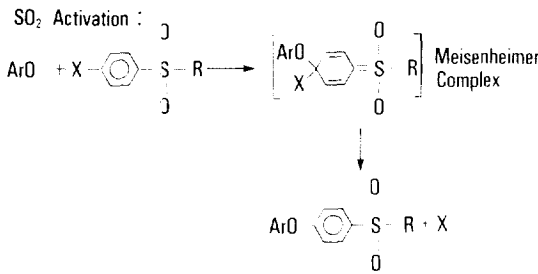
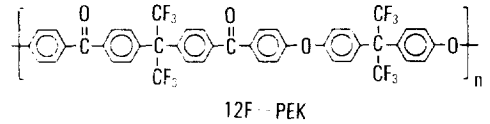


Fig. 8. Diazonaphthoquinone substituted 6FDA-AHHFP polyimide.

만들어지기도 한다.<sup>30,31</sup> Activating group으로는 반응중 형성되는 negative charge를 띠는 Meisenheimer complex를 안정화시켜줄 수 있는 electron withdrawing 능력을 가진 sulfonyl, carbonyl, heterocyclic ring(imides, quinoxalines, benzoxazole 등) 등이 있다.



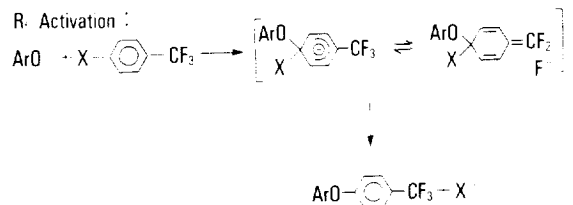
Poly(aryl ethers)의 대표적인 고분자인 poly(ether ether ketone)(PEEK)은 비교적 제한된 용해도를 갖고 있어 고분자량의 물질을 얻기 어려운데, Cassidy<sup>32</sup> 등은 hexafluoroisopropylidene group을 갖는 monomer인 2,2-bis[4-(4-fluorobenzoyl)phenyl]hexafluoropropane과 bisphenol AF를 사용하여 용해도가 우수하며 개량된 전기절연성을 갖는 poly(ether ketone)(12F-PEK)을 합성하였다.



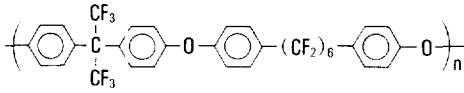
12F-PEK는 우수한 내열성과 낮은 유전상수( $\epsilon = 2.40$  at 10GHz)를 갖고 있으나  $T_g$ 가 180C로서 polyimide에 비해 낮다.

낮은 유전상수를 갖는 poly(aryl ethers)를 합성하기 위한 시도로서 perfluoroalkyl group을 activating group으로 사용한 poly(aryl ether)의 새로운 제조방법이 최근 IBM에 의해 개발되었는데,<sup>33,34</sup> perfluoroalkyl group을 activating group으로 사용하여 carbonyl 같은 극성인 functional group을 고분자 주쇄에서 제거하므로써 불소가 주는 효과와 더불어 더 많은 유전상수의 저하를 기대할 수 있다. Perfluoroalkyl group의 electron affinity는 공명효과를 생각하지 않을 경우 -CF<sub>3</sub>의 Hammett  $\sigma$  값이 0.54로서 carbonyl의 0.50과 큰 차이가 나지 않으며, <sup>1</sup>H NMR에서 보여주는 aromatic ring의 ortho proton에 대한 deshielding 정도도 -CF<sub>3</sub>의 경우  $\delta = 7.6$ 과 carbonyl의 경우  $\delta = 7.9$ 로서 trifluoromethyl group이 electron withdrawing group으로서 효과적인임을 보여준다. Perfluoroalkyl group은 이중결합을 갖고 있지는 않으나 carbon-carbon sigma bond를 통한 hyperconjugation으로 Meisenheimer-like complex를 안정화시킬 수 있다.

Perfluoroalkylene group을 activating group으로 사용하여, 1,6-bis(4-fluorophenyl)perfluorohexane과 Bisphenol AF로 부터 얻어진 고분자의 유전상수는 2.35이고, 우수한 내열성을 (5% weight loss te-



temperature in  $N_2$  :  $480^\circ\text{C}$ ) 갖고 있으나 유연한 perfluoroethylene group이 주쇄에 도입된 결과로서 상당한 낮은  $T_g(95^\circ\text{C})$ 를 갖는다.



Perfluoroalkyl group을 pendant group으로 갖는 poly(aryl ether) block copolymer도 합성되었으나<sup>35</sup>  $T_g$ 가  $138^\circ\text{C}$ 로서 커다란 향상을 보여주지는 않았으며 aromatic ring의  $-\text{CF}_3$  group을 activating group으로 사용한 향상된  $T_g$ 를 갖는 poly(aryl ethers)의 합성에 관한 연구가 진행중에 있다.

## 요 약

Trifluoromethyl group을 내열성고분자의 주쇄에 도입하면 내열성의 큰 손실없이 용해도의 증가 및 유전상수의 감소등 절연재료로서의 성능을 향상시켜 주지만, 유연한기의 도입에 따른  $T_g$ 의 저하등 부정적인 효과도 나타낸다. 분자구조설계에 의해 기존 고분자재료의 성능을 향상시키려는 시도는 흔히 향상되어지는 성질들에 반비례하여 어느 다른 성질의 저하를 초래하는 경향이 있으나, 유전상수나 가공성 이외에도 낮은 열팽창계수를 갖는 polyimides,<sup>36</sup> 열경화성수지인 poly(benzocyclobutene)<sup>37</sup> 등의 packaging 재료로서의 개발등, 낮은 열연율, 내열성, 가공성, 접착력, 적절한 열팽창계수 및 기계적 성질등 가능한 모든 필요성질을 동시에 최대한 만족시키는 고분자재료에 대한 개발노력이 계속되어지고 있으며 장차 혁신적인 새로운 고분자 재료의 등장도 이루어지리라 본다.

## 참 고 문 헌

1. J. H. Lupinski and R. S. Moore in "Polymeric Materials for Electronic Packaging and Interconnec-

tion", ACS Symp. Ser. 407, Ed. by J. H. Lupinski and R. S. Moore, p. 1, ACS, Washington D. C., 1989.

2. C. P. Wong, *Adv. Polym. Sci.*, **84**, 63 (1989).
3. R. Iscoff, *Semicond. Int.*, **14**(10), 64 (1991).
4. P. Burggraaf, *Semicond. Int.*, **11**(3), 58 (1988).
5. J. Duran and N. S. Viswanathan in "Polymers in Electronics" ACS Symp. Ser. 242, Ed. by T. Davidson, p. 240, 1984.
6. W. Kern in "Microelectronic Materials and Processes", Ed. by R. A. Levy, Kluwer, Dordrecht, p. 247, 1989.
7. D. P. Seraphim, D. E. Barr, W. T. Chemand, and G. P. Schmitt in "Advanced Thermoset Composites", Ed. by J. M. Margolis, p. 110, Van Nostrand Reinhold, New York, 1986.
8. M. F. Yan and W. W. Rhodes in "Electronic Packaging Material Science III", MRS Symp. Proc. 108, Ed. by R. Jaccodine, K. A. Jackson and R. C. Sundahl, p. 439, MRS, Pittsburgh, 1988.
9. P. E. Cassidy, T. M. Aminabhavi, and J. M. Farley, *J. Macromol. Sci., Rev. Macromol. Chem. Phys.*, **C29**, 365 (1989).
10. P. Resnick, *Polymer Preprints*, **31**(1), 312 (1990).
11. J. P. Critchley, G. J. Knight and W. W. Wright, "Heat Resistant Polymers", Plenum Press, New York, 1983.
12. F. E. Rogers, U. S. Patent 3,356,648 (1967).
13. J. Miron and A. Brief, "Polyimides: Skeist Report", p. 457, 1990.
14. Hoechst Celanese, "Sixef-44: Product Data Sheet", 1987.
15. R. J. Jones, M. K. O'Rell, and J. M. Hom, U. S. Patent 4,111,906 (1978).
16. M. J. Wusik, *Polymer Preprints*, **32**(3), 218 (1991).
17. D. L. Goff, E. L. Yuan, H. Long, and H. J. Neuhaus in "Polymeric Materials for Electronics Packaging and Interconnection", ACS Symp. Ser. 407, Ed.

- by J. H. Lupinski and R. S. Moore, p. 93, ACS, Washington D. C., 1989.
18. F. W. Mercer and T. D. Goodman, *Polymer Preprints*, **32(2)**, 189 (1991).
  19. G. Hougham, G. Tesoro, and J. Shaw in "Polyimides : Materials, Chemistry and Characterization", Ed. by C. Feger, M. M. Khojasteh and J. E. McGrath, p. 465, Elsevier, Amsterdam, 1989.
  20. A. C. Misra, G. C. Tesoro and G. Hougham, *Polymer Preprints*, **32(2)**, 191 (1991).
  21. R. A. Buchanan, R. F. Mundhenke, and H. C. Lin, *Polymer Preprints*, **32(2)**, 193 (1991).
  22. C. C. Ku and R. Liepins, "Electrical Properties of Polymers", Hanser, Munich, 1987.
  23. H. Ahne, H. Krüger, E. Pammer, and R. Rubner in "Polyimides" Ed. by K. L. Mittal, p. 905, Plenum Press, New York, 1984.
  24. D. N. Khanna and W. H. Mueller, *Polym. Eng. Sci.*, **29(14)**, 954 (1989).
  25. K. S. Y. Lau, A. L. Landis, N. J. Kelleghan, and C. D. Beard, *J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed.*, **20**, 2381 (1982).
  26. T. Omote, K. Koseki, and Y. Yamaoka, *Macromolecules*, **23**, 4783 (1990).
  27. T. Omote, H. Mochizuki, K. Koseki, and T. Yamaoka, *Macromolecules*, **23**, 4796 (1990).
  28. R. N. Johnson, A. G. Farnham, R. A. Clendinning, W. F. Hale, and C. N. Merriam, *J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed.*, **5**, 2375 (1967).
  29. S. Maiti and B. K. Mandal, *Prog. Polym. Sci.*, **12**, 111 (1986).
  30. J. Lee and C. S. Marvel, *J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed.*, **29**, 2189 (1983).
  31. H. M. Colquhoun and D. F. Lewis, *Polymer*, **29**, 1902 (1988).
  32. G. Tullios, P. E. Cassidy, and A. K. St. Clair, *Macromolecules*, **24**, 6059 (1991).
  33. J. W. Labadie, S. Y. Kim, D. R. Mckean, and J. L. Hedrick, *Polymer Preprints*, **32(1)**, 357 (1991).
  34. J. W. Labadie and J. L. Hedrick, *Polymer Preprints*, **31(1)**, 344 (1990).
  35. S. Y. Kim and J. W. Labadie, *Polymer Preprints*, **32(1)**, 164 (1991).
  36. S. Numata and N. Kinjo, *Polym. Eng. Sci.*, **28(14)**, 906 (1988).
  37. S. F. Hahn, P. H. Townsend, D.C. Burdeaux, and J. A. Gilpin in "Polymeric Materials for Electronic Packaging and Interconnection", ACS Symp. Ser. 407, Ed. by J. H. Lupinski and R. S. Moore, p. 199, ACS, Washington D. C., 1989.