大気圧プラズマ表面処理した銅線および銅撚線の フラックス無し鉛フリーはんだメッキ*

奥村 智 洋¹ 齋 藤 光 央¹ 西 川 和 孝¹
古 澤 彰 男² 末次憲一郎²

¹松下電器産業株式会社生産コア技術研究所

²松下電器産業株式会社実装コア技術研究所

J. Japan Inst. Metals, Vol. 71, No. 2 (2007), pp. 304-311

© 2007 The Japan Institute of Metals

Atmospheric Pressure Plasma Treatment and Non-Flux Lead-Free Soldering of Cu Wire and Strand

Tomohiro Okumura¹, Mitsuo Saitoh¹, Kazutaka Nishikawa¹,
Akio Furusawa² and Kenichiro Suetsugu²

¹Production Core Engineering Laboratory, Matsushita Electric (Panasonic), Kadoma 571-8502

²Jisso Core Engineering Laboratory, Matsushita Electric (Panasonic), Kadoma 571-8502

There has been an intensive effort in the industries in recent years to replace leaded solder with lead-free process in order to minimize the emission of toxic materials. However, leaded solder is still used in many cases where no alternative lead-free process is currently available. Leaded soldering of the wire terminals is one of the worst examples as it causes cross contamination of lead into the lead-free solder bath during the successive process. To avoid this problem, it is important to develop a new process of successfully removing polymer film coated on a copper wire. We have investigated the use of atmospheric pressure plasma as a solution for the polymer removal in conjunction with lead-free solder plating. The atmospheric plasma technology has some unique advantages compared with the conventional low pressure plasma processes such as low cost operation and high speed processing as the chemical reaction tends to be more enhanced at higher pressure. An atmospheric micro-plasma source was thus developed for this purpose and its high etching rate of more than 100 $\mu\text{m}/\text{min}$ with fluorine gas mixture was demonstrated. Furthermore, it was found that the copper wires processed by this plasma could be readily plated with lead-free solder at low temperature of 250°C without any use of fluxes even at 168 hours after removing the polymer film.

(Received August 28, 2006; Accepted November 28, 2006)

Keywords: polymer removal, polyester-imide, coil terminals, atmospheric pressure plasma, plasma etching, lead-free, solder, plating, flux-free

1. 序 論

近年、鉛による環境問題が注目されるようになり、とくにプリント基板の分野において鉛フリーはんだの実用化が加速している。鉛フリーのリフロー工程とフロー工程はすでに実用化されている¹⁾。しかしながら、フロー工程におけるはんだ槽中の鉛の蓄積が問題となっている。この鉛の発生源は、コイルの端子部に代表されるような、部品端子部に予めメッキされた鉛はんだであるため、部品端子部への鉛フリーはんだメッキの実用化が求められている。しかし、部品端子部のはんだメッキ工法において、実用的な鉛フリーはんだメッキ技術が現存しない。そのため従来通りの方法、つまり約310~380°Cに加熱された溶解鉛はんだに端子を浸す方法によって、コイル端子のポリマー除去と鉛はんだメッキとを同

時に施しているのが現状である。

このような従来方法は鉛フリーはんだメッキには適用困難である。なぜなら、侵食という問題を引き起こすからである。ポリマーが除去された部分が溶解はんだ中に消失してしまうのである。侵食には、液相拡散現象と固相拡散という2種類の拡散現象が関与している。後者は、Snリッチの金属との接触により、Cuが Cu_6Sn_5 や Cu_3Sn といった金属間化合物となる現象として知られている。この侵食はSn-Ag-Cuはんだを用いた場合に特に顕著に見られ、線径の50%近くにまで達することがある²⁾。さらにこの問題は、0.3 mm以下の小さな直径をもつ銅線において顕著に見られる。以上のことから、はんだメッキ処理の前に銅線に被覆されたポリマー膜を予め除去するプロセスの実現が切望されている。

ポリマー除去については、機械的な研削、レーザー照射、化学的ウェットエッチングなどの技術が従来より検討されている。機械的な研削による方法は過剰な研削による線径の減少を引き起こすという欠点がある。レーザー照射による方法

* Mater. Trans. 47(2006) 941-947に掲載

は、銅線表面に残渣を生じさせてしまう。化学的ウェットエッチングによる方法は、高温の有毒な化学的液体を必要とする。さらに、機械的な研削やレーザー照射による方法では、はんだ付にフラックスが必要となる。フラックスは銅線表面の酸化膜を除去して濡れ性を向上させる。しかし、フラックスの残渣は腐食、電氣的リークやマイグレーションなどの深刻な問題を引き起こしかねない。また、多くのフラックスは VOC (Volatile Organic Compounds: 揮発性有機化合物) を含んでおり、光化学大気汚染への影響が起こりうる。VOC フリーのフラックスも開発されているが³⁾、フラックスに関わる問題を回避するには、フラックスフリーのはんだ付が望ましい。

そこで我々は、0.3 mm 以下の線径をもつ銅線にも適用可能な、大気圧プラズマを用いたコイル端子のポリマー除去プロセスと、鉛フリーはんだメッキ特性について検討した。プラズマによるエッチング処理は古くから真空プロセスとして普及しているが、設備コスト面でコイル端子への適用は困難である。最近注目を集めている大気圧プラズマは、低コストで高速反応が可能であるという優れた特性を有しており、さまざまな方式が提案されている⁴⁻⁷⁾。プラズマは、平衡プラズマと非平衡プラズマに大別される。非平衡プラズマにおいては、電子温度が数万℃であるにもかかわらず、イオンや中性粒子の温度は数百℃程度と低く、銅線に熱的・機械的ダメージをほとんど与えることなく、被覆されたポリマーのみを効果的に揮発させることができるという利点がある。今回の検討では、ヘリウムにごくわずかの反応性ガスを添加したものを選択することにより、非平衡の大気圧プラズマを生成し、ポリマーエッチングに適用した。

鉛フリーはんだの表面にアルゴンイオンビームや C_3F_8 リアクティブイオンビームを 10 分間照射した後はんだ同士の接合性を比較し、アルゴンの場合は濡れ性が 24~48 時間しか保持されなかったのに対して、 C_3F_8 の場合は、Sn-Ag はんだの表面上に厚いフッ化物層が形成され、96 時間以上濡れ性が保持されたという事例があるが^{8,9)}、樹脂被覆銅線からポリマーを除去すると同時に銅線とはんだとの接合性を改善することのできる表面処理方法に関する研究は、これまでなされていなかった。また、本研究で用いた方法は、大気圧で高密度に生成されたプラズマを直接銅線に作用させているため、ポリマー除去と表面改質をわずか十数秒で行えるという優れた特長を有する。

本報告では、開発したマイクロプラズマ源の概要について述べ、ガス系、処理時間、マイクロプラズマ源中への銅線配置などに対するエッチング特性の依存性について述べる。また、ポリマー除去後の鉛フリーはんだメッキについて、単線のみならず燃線の一括処理への応用を検討した結果を述べる。また、ポリマー除去反応およびポリマー除去後の表面状態について、XPS による分析結果を交えた考察を述べる。

2. 実 験

2.1 試 料

コイル端子に用いられる単線の銅線として、被覆銅線の直

径が 200 μm 、銅線の直径が 150 μm 、ポリマー膜の厚さが 25 μm のものと、被覆銅線の直径が 240 μm 、銅線の直径が 190 μm 、ポリマー膜の厚さが 25 μm のものの 2 種類を用いた。また、燃り線として、被覆銅線の直径が 120 μm 、銅線の直径が 70 μm 、ポリマー膜の厚さが 25 μm のものを 40 本燃り合わせたものを用いた。被覆ポリマーとしては、ポリエステルイミドを用いた。構造式は Fig. 1 の通りである。ただし、R および R' はアルキル基である。

2.2 管状大気圧プラズマ源

プラズマ源の構成を Fig. 2 に示す。プラズマ源は、セラミック管、平行平板型の上部および下部電極と、接地された金属ケースからなる。管はガス導入口、ガス噴出口と台座からなり、両電極間に配置される。混合ガスはガス導入口から

Fig. 1 Structural formula of polyester-imide used to coat copper wires.

Fig. 2 Atmospheric plasma source and its experimental setup; (a) configuration of the atmospheric plasma source, (b) cross sectional view of the atmospheric plasma source, and (c) front view of the ceramic tube.

供給され、ガス噴出口に向けて管内を流れる。ポリマー膜が被覆された銅線は、ガス噴出口から挿入され、台座間に配置される。被覆銅線は管の内壁に接触することなく浮かせられる。電極間距離 G は 1 mm、電極長 L は 5 mm、ガス流路の幅 W は 5 mm、ガス噴出口の高さ H は 0.7 mm である。He, O_2 , CF_4 からなる混合ガスが管内を流れる。各ガスの流量はマスフローコントローラによって制御される。高周波 (13.56 MHz) 電圧を上部電極に印加することにより、プラズマが管内の電極間に生成される。

2.3 評価方法

Fig. 3 は、ポリマー除去速度の測定方法である。刃タイプのマイクロメータを用いてエッチング前後に線径を測定することにより、ポリマー除去速度を算出する。線径は、A, B の双方向において測定された値を平均して求めた。

ポリマーの除去後、フラックスを用いずに、銅線を 250°C (はんだの融点より 32°C 高い温度) の Sn-3.0Ag-0.5Cu はんだ槽に 3 秒間浸し、線方向のメッキ長さを測定することにより、メッキ特性を評価した。

プラズマによるポリマー除去後の銅線表面を分析するため、XPS (X-ray Photoelectron Spectroscopy) を用いた。XPS 分析のために平滑な表面をもつ銅板を用意した。それは、円筒型の銅線を XPS 分析に供するのが困難なためである。He + O_2 + CF_4 プラズマ処理したものと、He + H_2 プラズマ処理したものの 2 枚の銅板を比較した。前者は、プラズマ処理によって表面改質された銅線表面を模擬したものである。後者は、He + H_2 プラズマ照射によって試料表面を還元したもので、機械的な研削の代替品として XPS 分析の信頼性を確保

Fig. 3 Measurement of a wire diameter by using a wedge shape micrometer.

するためのものである。分析はプラズマ照射の直後と 168 時間大気放置 (気温 $23.5 \pm 2^\circ\text{C}$, 湿度 $50 \pm 10\%$) したもののについて実施した。深さ方向分布はアルゴンスパッタにより取得した。

撚り線メッキ後の断面観察においては SEM (Scanning Electron Microscope) を用いた。

3. 結 果

3.1 ポリマー除去プロセス

被覆銅線を溶解鉛フリーはんだ槽に浸漬した場合の一例を Fig. 4 に示す。このように、鉛はんだメッキにおいて用いられていた方法を鉛フリーはんだに適用しようとすると、銅線の浸食が起き、ポリマーが除去された部分が溶解はんだ中に消失してしまう。

ポリマー除去プロセスの開発において、当初 He + O_2 ガス系の大気圧プラズマの照射を検討した。処理後の銅線表面を Fig. 5(a) に示す。表面は炭素様の残渣で覆われ、フラックスを用いても鉛フリーはんだメッキを行うことはできなかった。しかし、He + O_2 + CF_4 ガス系のプラズマを用いると、ポリマーは完全に除去され、Fig. 5(b) に示すようにクリーンな表面が現れた。銅線はフラックスを用いることなく、容易に鉛フリーはんだメッキされた。なお、フッ素を含むガスとして CF_4 を用いた理由は、このガスがドライエッチング

Fig. 4 A microscope photo of a damaged polymer coated copper wire due to the reaction with a lead-free solder.

Fig. 5 Comparison of the etching performance between two different gas mixture. (a) He + O_2 and (b) He + O_2 + CF_4 .

用あるいはプラズマクリーニング用ガスとして半導体メーカーが数百トン単位で消費しており、比較的安価に入手できるためである。

除去されたポリマー膜厚とエッチング時間の関係を Fig. 6 に示す。処理条件は、圧力が 100 kPa, 高周波電力が 120 W, He 流量が 1000 sccm, O₂ 流量が 40 sccm, CF₄ 流量が 13.4 sccm である。本実験においては、被覆銅線の直径は 200 μm , 銅線の直径は 150 μm である。除去膜厚は 5 秒から 15 秒まで線形的に増加し、ポリマー膜エッチング速度は 104 $\mu\text{m}/\text{min}$ であった。除去膜厚は 15 秒から 20 秒までの間増加しなかったため、銅線自体は過剰なプラズマ照射によってもエッチングされなかったことがわかる。

管内のプラズマ発光をガス噴出口側から見た画像を Fig. 7 に示す。A, B, C は試料配置の位置を示す。各位置の間隔は X 方向に 1.5 mm, Y 方向に 0.1 mm である。7.5 秒間のエッチングにおける位置 A, B, C でのポリマー除去速度は、それぞれ 14.3 μm , 12.7 μm , 11.9 μm であった。したがって、ポリマー除去厚さの平均は $13.0 \mu\text{m} \pm 9.2\%$ であった。良好なエッチング速度均一性は、管内のプラズマ密度分布が均一であることを示している。

ポリマーが除去された銅線の線方向の断面形状を Fig. 8

Fig. 6 Removed thickness of polymer film as a function of etching time.

に示す。本実験においては、被覆銅線の直径は 240 μm , 銅線の直径は 190 μm である。図の右側が上流側, 左側が下流側である。ポリマーが除去された範囲の長さは 4.5 mm (位置 3~7.5 mm) である。

3.2 メッキプロセス

処理後の銅線を 250°C の鉛フリーはんだ槽に 3 秒間浸したものを Fig. 9 に示す。浸漬においてはフラックスを用いていない。プラズマ照射と浸漬の間の時間間隔は 168 時間 (1 週間) である。つまり、居住空間に放置して 168 時間経た後であっても、銅線に鉛フリーはんだメッキを施すことが可能である。

Fig. 8 Cross sectional profile of a coated wire whose polymer film was removed in the middle.

Fig. 9 A microscope picture of a polymer removed wire after dipped in lead-free solder bath. The interval between the plasma irradiation and the dipping was 168 hours (i.e. 1 week).

● : Sample placement locations

Fig. 7 Image of the ceramic tube containing plasma observed from the direction of the gas outlet. Dispersion in removal rate among the three positions A, B and C was $103.6 \mu\text{m}/\text{min} \pm 9.0\%$.

Fig. 10 は、プラズマエッチングによるものと機械的な研削によるものとを、銅線の線方向の鉛フリーはんだメッキ長さにおいて比較したものである。ポリマー除去後すぐに鉛フリーはんだ槽に浸した場合、メッキ長さはプラズマエッチングでは 5.6 mm、機械的な研削では 5.0 mm であった。しかし、ポリマー膜除去後 168 時間大気暴露した場合、メッキ長さはプラズマエッチングでは 5.0 mm、機械的な研削では 2.0 mm に減少した。

3.3 撚り線一括処理への応用展開

我々は、今回検討した技術の応用展開として、撚り線の一括処理を検討した。手順を Fig. 11 に示す。初期の撚り線 (a) に大気圧マイクロプラズマを照射してポリマー膜を除去した (b)。そして、プラズマ照射後に銅線を撚り合わせ、鉛フリーはんだでメッキした (c)。撚り線の一括処理後の断面 SEM 像を Fig. 12 に示す。合金層が銅線とはんだの界面に

Fig. 10 Comparison between plasma etching and mechanical grinding in terms of plated length of lead-free solder along the length of the copper wires.

Fig. 11 A batch process applied for a strand of coated copper wires.

Fig. 12 Cross sectional view of a part of a copper strand after applying the plating process as a batch process.

形成されていた。この合金は、Sn-Ag-Cu はんだにおいて典型的に見られる Cu_3Sn と Cu_6Sn_5 であると考えられる¹⁰⁾。

4. 考 察

4.1 ポリマー除去反応

ポリマーは構成元素として C, O, H, N を含んでいる。したがって、プラズマによる除去プロセスの基本反応は下記のようなになる。

ここで、 O^* は酸素ラジカルである。式(1)の右辺の全ての生成物は常温常圧で気体であるから、ポリマー膜は酸素ラジカルの存在下で除去されるものと思われる。しかし、実験結果によれば、式(1)に示した反応は、除去プロセスを十分に表現していないことがわかる。式(1)における炭素除去速度が非常に小さいため、 $\text{He} + \text{O}_2$ 系ガスを用いた場合は炭素残渣が銅線表面に残ったものと考えられる。フッ素ラジカルによるポリマーからの水素原子の引き抜き反応がおそらく高速反応に寄与しているものと考えられる。フッ素ラジカルが水素原子と結合して HF 分子を生成し、これがポリマー連鎖における C-C 結合を切断するのに寄与しているものと考えられる。推察された反応は以下の通りである。

ここで、 F^* はフッ素ラジカルである。

除去速度とエッチング時間の線形性は、ポリマー除去プロセスは熱反応が主体ではなく、プラズマ活性化による化学反応が主体であることを示唆している。なぜなら、プラズマ照射による温度上昇が除去速度の増加をもたらしていないためである。さらに、 $100 \mu\text{m}/\text{min}$ を越える高いエッチング速度が得られたのは、不安定なアーク放電を引き起こすことなく高い高周波電力を投入することができたためで、セラミック管と狭ギャップ電極を用いたユニークなプラズマ源を用いたことが奏功している。なお、一般的な真空プラズマにおけるポリマーエッチング速度は、せいぜい $10 \mu\text{m}/\text{min}$ 程度である。

また、良好なエッチング選択性が得られている。クリーンな銅表面が露出した後、酸素ラジカルやフッ素ラジカルが銅と反応する可能性がある。しかし、本プロセスにおいては、銅線表面において化学反応が停止した。選択反応が起きた理由としては、銅の酸化物や銅のフッ化物の沸点が非常に高いことが考えられる。 CuF と Cu_2O の沸点はそれぞれ 1100°C 、 1800°C である¹¹⁾。

また、管内の上流側ではエッチング速度分布曲線の傾きは非常に急で $78 \mu\text{m}/\text{mm}$ であるのに対し、下流側では比較的緩やかで $34 \mu\text{m}/\text{mm}$ である。酸素およびフッ素ラジカル密度が傾きの違いの原因となっているものと考えられる。下流側では、活性粒子は衝突、再結合、緩和などによって失われることが考えられるが、放電中で生成されたラジカルは下流側でも一部存在しており、このことにより、エッチング速度がガス流れに沿って徐々に減少しているものと考えられる。

本方式ではプラズマによる気相反応を用いてポリマー除去

と表面改質を行っているため、熱線を一括処理する際に各銅線間の間隔が狭くてもフッ素ラジカルや酸素ラジカルが十分に供給されることから、各銅線表面が全周に渡って処理されたものと考えられる。

4.2 分 析

プラズマエッチングと機械的な研削のメッキ特性の違いを調べるため、XPS 分析を実施した。プラズマ照射直後の銅線表面におけるワイドスキャン XPS データを Fig. 13 に示す。

$\text{He} + \text{H}_2$ ガス系における銅表面の XPS 深さプロファイルを図 14 に示す。(a)はプラズマ照射直後、(b)はプラズマ照射から 168 時間後である。 $\text{He} + \text{H}_2$ プラズマ照射により試料表面は還元され、クリーンな表面が現れる。しかし、数秒間の大気暴露によってわずかに 1 nm 深さのところまで酸化されている。オージェ電子分光法(AES)により、酸化物は主として Cu_2O からなることがわかった。つまり、銅は一価の状態であった。168 時間の大気暴露後、2 から 3 nm 厚の自然酸化膜が表面に形成されていた。AES より酸化物は Cu_2O と CuO の双方からなり、最表面は主として CuO になることがわかった。結局、この間に酸化が進行していた。

$\text{He} + \text{O}_2 + \text{CF}_4$ ガス系における銅表面の XPS 深さプロファイルを図 15 に示す。(a)はプラズマ照射直後、(b)はプラズマ照射から 168 時間後である。 $\text{He} + \text{O}_2 + \text{CF}_4$ プラズマ照射によって、表面は深さ約 10 nm までフッ化されていた。 5 nm 深さのところではプロファイルの傾きが変化している。このことは、フッ素原子が 5 nm 深さのところから深さ 10 nm のところまで熱拡散していることを示唆している。

168 時間の大気暴露の間に、フッ素原子の総量(=表面からバルクまで深さ方向に積分したもの)が増加したように見える。これは、島状の CuO が CuF_2 層の上に存在しており、島状 CuO の間を通じて CuF_2 層からのフッ素原子を 2 重にカウントしているためであると考えられる。Fig. 15(b)における深さ 12 nm のところからのフッ素の深さプロファイルと積分値は、Fig. 15(a)の最表面からのプロファイルおよび積分値に近い。このことは、Fig. 15(a)における最表面が、Fig. 15(b)における深さ 12 nm のところに相当していることを示唆している。 Cu-F と Cu-O の結合強度は、それぞれ 413 kJ/mol (4.3 eV) と 269 kJ/mol (2.8 eV) であるから¹²⁾、酸素原子がフッ素原子に置き換わるとは考えにくい。銅原子がバルクから CuF_2 層のピンホールを通じて最表面に移動し、空気中の酸素と反応したものと考えられる。

結局、 $\text{He} + \text{O}_2 + \text{CF}_4$ プラズマ照射によって表面に銅の移動チャンネルが残存し、このため鉛フリーはんだに対する濡れ性が長時間に渡って維持されたものと考えられる。 $\text{He} + \text{H}_2$ プラズマ照射は強固な酸化膜の形成を促し、はんだに対する濡れ性を低下させた。

5. 結 論

大気圧プラズマを用いたコイル端子のポリマー除去プロセスと、鉛フリーはんだメッキ特性について検討した。セラミ

Fig. 13 Wide scan XPS results of copper surfaces immediately after plasma irradiation; (a) He + H₂ plasma treatment and (b) He + O₂ + CF₄ plasma treatment.

Fig. 14 XPS depth profiles of copper surfaces in the case of He + H₂ plasma treatment: (a) immediately after and (b) 168 hours after plasma irradiation.

Fig. 15 XPS depth profiles of copper surfaces in the case of He + O₂ + CF₄ plasma treatment; (a) immediately after and (b) 168 hours after plasma irradiation.

ック管，平行平板型の上部および下部電極，金属ケースからなるプラズマ源を開発した．マイクロプラズマを用いたポリマー除去プロセスにおいてフッ素ラジカルが重要な役割を果たすこと，そして He + O₂ + CF₄ 系ガスをを用いた場合 104 $\mu\text{m}/\text{min}$ というエッチング速度が得られることがわかった．銅線径の減少は見られなかった．したがって，銅に対するポリマー膜のエッチング選択比は十分に高かった．さらに，250°C という低温の鉛フリーはんだによって，フラックスを用いることなく銅線をメッキ処理することができた．大気圧プラズマ照射は，鉛フリーはんだに対して長時間に渡って濡れ性を確保する上で効果的であり，ポリマー除去後 168 時間空气中に暴露してもメッキ処理が可能であった．本方法を撚り線の一括処理に応用展開する可能性を検討し，40 本の

銅線を同時に処理することに成功した．断面 SEM 観察により，銅線とはんだの界面に合金層が形成されていることがわかった．XPS 分析によって，銅線上に約 10 nm 厚のフッ化銅が形成されていることがわかった．He + O₂ + CF₄ ガス系プラズマ照射によって表面に銅の移動チャネルが残存し，このため鉛フリーはんだに対する濡れ性が長時間に渡って維持されたものと考えられる．

本研究を進めるにあたり，有意義な議論をして下さった榎 UJT ラボの伊藤裕之さんに深く感謝します．また，XPS 分析に関してナショナルバッテリーエンジニアリング榎青谷登さん，出口三奈子さん到大変お世話になりました．この場をお借りして謝意を表します．

文 献

- 1) A. Furusawa, Y. Wada, K. Suetsugu, H. Yokoyama, K. Todoroki and T. Ikari: Matsushita Technical Journal **49** (2003) 85-90.
- 2) I. Sakamoto: IEICE Tech. Rept. EMD2002-6 (2002) 1-4.
- 3) E. Westerlaken and T. Morgan: Electro. Prod. **30** (2001) 12-15.
- 4) K. Inomata, H.-K. Ha, B.-J. Lee and H. Koinuma: IEICE Tech. Rept. SDM94-116 (1994) 35-40.
- 5) T. Ichiki, R. Taura and Y. Horiike: J. Appl. Phys. **95** (2004) 35-39.
- 6) T. Okumura, M. Saitoh, Y. Yashiro and T. Kimura: Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) 3995-3999.
- 7) T. Okumura, M. Saitoh and I. Matsuda: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 3959-3963.
- 8) N. Hosoda, M. Toyoda, I. Iwamoto and T. Suga: Micro Electronics Symp. (2000) 219-222.
- 9) N. Hosoda and T. Suga: Appl. Surface Sci. (2004) 81-86.
- 10) M. Kitajima, T. Shohno and M. Noguchi: Fujitsu **51** (2000) 341-344.
- 11) The Chemical Society of Japan: *Kagaku Binran Kisohen Kaitei-4 I*, (Maruzen, 1993) 144-145.
- 12) D. R. Lide: *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, (CRC Press, 2004) Chap. 9, 54.