WEEE 中の金属リサイクルに関する研究 * - 金属含有量インベントリ作成のための調査 -

湯 本 徹 也¹ 白 鳥 寿 一²

Study on Recycling of Metals in WEEE - Investigation for making an inventory of metal contents -

by Tetsuya YUMOTO^{a*} and Toshikazu SHIRATORI^a

a. Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University, 6-6-20 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, 980-8579, Japan

(*Corresponding author E-mail: yumoto@ehp.kankyo.tohoku.ac.jp)

Although Cu, Ag, Au and other metals are used for the electrical and electronic equipment (EEE), the many kinds of metals in WEEE (Waste EEE) are not recycled now except Cu and precious metals. It is desired to promote recycling of metals in WEEE. However, EEE is improved with a time and the components and their materials which are used for EEE also change. That is, it means that the quality of recycling resources changes in recycling of WEEE. In this paper, it aimed at creating those inventories as basic information on examination of the recycling system of WEEE. The change of the mobile phone unit by improvement such as a miniaturization and introduction of a new function is quicker than other EEE. Therefore, contents of each element in mobile phone's PCB (Printed Circuit Board) manufactured in 1997, 2002-2003 and 2005-2006 were investigated, and the causes of some changes were considered. It was shown that Pd's substitution material (Ni) and tantalum capacitor's substitute device (ceramic capacitor) have spread, and the amount of Pd and Ta used is decreasing by the unstable supply of metal resources or their rising value. It was shown that the amount of the harmful elements, such as Pb, Sb, Br, is decreasing by new substance regulation and growing environment-conscious. Moreover, some points in the recycling system which should be taken into consideration were clarified.

KEY WORDS: WEEE, Mobile Phone, Metal Resources, Recycling, Inventory

1. は じ め に

現在、金属資源の価格高騰や将来的な枯渇に対する懸念から、金属資源の安定供給のための対応策の一つとしてのリサイクルの必要性はますます高まっている。我が国においても、金属・合金を使用した製品の製造時に発生する端材や工程不良品等については企業努力および経済原則に従って積極的にリサイクルがなされている¹⁻⁴⁾。一方、使用済みとなった電気・電子機器 (Waste Electrical and Electronic Equipment; WEEE) については、家電リサイクル法等により一部の大型家電がリサイクル対象となっているが、その他多くの小型の WEEE (Waste Small Electrical and Electronic Equipment; s-WEEE) については効果的なリサイクルのシステムが整備されていないのが現状である。パソコンや携帯電話のような一部の s-WEEE については、業界団体が中心となって収集・リサイクルを推進しているものの、社会的に定着しておらず、回収台数は伸び悩んでいる^{5,6)}。また、収集された機器において現在回収対象となっている元素としては Fe, Al, Cu 等のベースメタル、

あるいは貴金属類が中心である^{1-3,7-9)}。Cu を主とするベースメタルは機器中に構造材や電子回路として数 wt% ～数 10wt% と多量に使用されているのに対し、貴金属類は主にプリント基板 (Printed Circuit Board; PCB) もしくは実装部品の接点材料等として使用されており、その含有量は数 100mg/kg 程度であるが経済的価値は極めて高い。しかし、ベースメタルや貴金属類以外にも多くのレアメタル類が我が国の産業を支えるハイテクの電子機器に使用されており¹⁰⁾、それらは電子機器の高度な機能を発現させるために不可欠な役割を担っている。レアメタル類は資源的にも重要であるにも関わらず、使用量も少なく金属単価も極端に高いことや、根本的な製錬プロセスが日本国内にないことから、WEEE からリサイクルするには経済原則に合わず、現状ではほとんどリサイクルされていない。

このような状況を踏まえ、レアメタル類の安定供給に関する国レベルの対応策として、代替材料の開発およびリサイクルシステムの開発が検討されている。さらに、一つの社会システムとして、白鳥らは、RtoS (Reserve to Stock, 「人工鉱床構想」) を提唱し、新たなリサイクルの構築について検討している^{11,12)}。この「人工鉱床構想」は、金属資源の循環をより全面的に見直し、より多くの金属資源を回収する考え方を推進しようとする試みであり、具体的には従来の経済原則の中ではリサイクルされてこなかった WEEE 等に含まれるレアメタル類についても、ある程度濃縮させ

*2008 年 8 月 19 日受付 2008 年 11 月 26 日受理

資源・素材学会 2008 年秋季大会 (仙台) にて一部発表

1. 学生会員 東北大学大学院 環境科学研究科

2. 普通会員 工博 東北大学大学院 環境科学研究科 教授

[著者連絡先] FAX: 022-795-7392

E-mail: yumoto@ehp.kankyo.tohoku.ac.jp

キーワード: WEEE, 携帯電話端末, 金属資源, リサイクル, インベントリ

Fig.1 Mobile phone samples.

(Upper: Manufactured in 1997, Middle:2002-2003, Lower:2005-2006)

た状態で蓄積していくことで人工鉱床を形成し、併せて、濃縮・製錬プロセスを考慮することでリサイクルを可能にしようという試みである。それに関連して、平成 18 年度からは秋田県大館市において、一般市民を対象とした WEEE 収集の社会実験を開始し、現在も収集エリアを拡大しながら継続中である¹³⁾。

今後、どのような形でリサイクルを進めるにせよ、その元となる s-WEEE の金属組成は非常に重要なファクターである。これまでも s-WEEE あるいはその中のプリント基板の金属組成についての調査は行われているものの^{1,14,15)}、製造年代による組成の変化についての調査例は無い。特に資源的な側面からリサイクルの考慮が必要とされる s-WEEE に関しては、機器によっても異なるが、概ね 90 年代半ばから急速に開発および普及が進んだものであり、その情報を整理する必要がある。本稿では、使用済み電子機器のリサイクルシステム検討の基礎情報として、それらのインベントリを作成することを目的とした。様々な s-WEEE の中でも特に新機能の導入や小型化・薄型化が盛んに行われており、製品の変化が早いと考えられる携帯電話端末¹⁶⁾を対象として選び、製造年代による金属組成の変化について調査した。また、これらに有する金属資源としてのポテンシャルについても触れた。

2. 調査方法

2・1 試料

大館市での使用済み小型電子・電気機器の収集試験¹³⁾によって実際に市民から集められたものの中から、携帯電話端末について 3 つの製造年代に分けて 6 台ずつ選び出して供試試料とした。

Fig.2 Material weight in mobile phone.

対象とした製造年代は、1997 年、2002-2003 年、2005-2006 年の 3 つである。試料の外観を Fig. 1 に示す。全て日本メーカーの製品であり、1997 年製の端末はいずれもストレートタイプの機体にモノクロ液晶ディスプレイ (LCD; Liquid Crystal Display) を搭載しているのに対し、それ以降の 2 世代の端末は全て折りたたみタイプの機体にフルカラー LCD およびカメラ機能を搭載していた。

2・2 分析方法

選出した携帯電話端末を手解体し、プリント基板、金属、プラスチックおよびその他部品 (LCD、振動モーター、スピーカー、カメラ等の部品、金属・プラスチックの複合部品など) に分類した上で秤量し、各素材の重量組成を算出した。なお、充電電池の重量は含まれていない。また、解体後の携帯電話のうち、LCD の透明電極に使用される In、振動モーターの磁石に使用される Nd およびおもりに使用される W など、主用途が限定され、その部品が独立しているレアメタルについては、部品の重量変化をレアメタルの凡その使用量変化とみなして評価した。それ以外の多くの金属についてはプリント基板上に集約されているため、今回はプリント基板を対象として詳細な金属含有量を分析した。基板分析の前処理として、金切バサミを用いて基板を約 50mm 角に裁断し、これを 2mm および 0.5mm の 2 段階のスクリーンを用いてカッティングミルにより粉砕した後、化学分析により各元素の含有量を定量した。測定元素および分析方法是以下の通りである。Au・Ag・Pd・Pt: 乾式試金法 - ICP-AES, Al・Fe・Cu・Zn・Sn・Ba・Pb: 酸分解/アルカリ融解 - ICP-AES, Ni・Be・Cr・Mn・Co・Ga・Ge・Mo・Ru・Rh・Cd・In・Sb・Te・Ce・Ta・W・Bi: 酸分解/アルカリ融解 - ICP-MS, As・Se: 酸分解 - フレームレス原子吸光度法, Br: 燃焼 - イオンクロマトグラフ。

3. 分析結果および考察

3・1 材料組成

素材ごとの重量を Fig. 2 に示す。このとき、各製造年代群の値は選出した 6 台の平均値である。1997 年製の携帯電話はすべてストレートタイプであったのが、その後折りたたみタイプが主流となり筐体 (プラスチック) 容積が増加したことに加え、カメラの搭載や LCD およびスピーカー等の部品の重量増 (Fig. 3) などが要因となり、携帯電話の総重量は増加傾向にある。端末がストレートタイプのモノクロ LCD から折りたたみタイプのフルカラー LCD に移行した段階で LCD 重量は大きく増加し、その後は大きな変化はない。2002 年から 2005 年にかけて LCD 面積は増加しているが、同時に薄型化も進んだため重量としてはわずかに

Fig.3 Weight of component.

減少することとなった。現状ではLED バックライトを備えた液晶ディスプレイが主流であるが、今後は有機 EL ディスプレイに移行することも予想され、その場合はディスプレイの薄型化および軽量化がさらに進むため、その動向にも注目する必要がある。また、プラスチック部品の比率が高いことも特徴である。s-WEEE の処理を考える場合にこれらのプラスチックの処理は今後大きな課題となるであろう。s-WEEE のプラスチックは携帯電話に代表されるように、マテリアルリサイクルが可能な単純なプラスチックではなく、多くの場合難燃剤を含有し、表面にはメッキ処理や耐 UV 塗料の塗布などが行われていることに注意が必要である。

プリント基板については、実装部品の小型化や実装技術の高密度化などの実装技術の発展もあり、重量としては微増に留まっているが、その結果として、携帯電話全体における基板の重量割合は減少している。その他の代表的な部品の傾向としては、振動モーターの重量減少 (Fig.3) が確認された。最近の携帯電話は薄型化・軽量化が進む反面、ワンセグ放送や音楽ファイルの視聴機能も重視されるため、LCD やスピーカーといった映像・音楽機能に関連する部品は今後もある程度のサイズおよび重量を維持するものと予想される。前述したように、LCD には In, 振動モーターには Nd や W といったレアメタルが使用されている。リサイクルの対象としては、これらの部品の選別とそこからの金属回収が最も取り組みやすく、その際にこのような製造年代別の変化を把握しておけば、携帯電話の生産あるいは販売実績等の統計データから、より高精度な資源化のポテンシャルを推計することが可能になると考えられる。携帯電話端末 100 万台あたりの LCD 重量は、1997 年ではおよそ 2.9t, 2002 年は 8.1t, 2005 年は 7.9t になると推算され、また、携帯電話端末の国内出荷実績は、1997 年度は 2,100 万台¹⁷⁾, 2002 年度は 4,422 万台, 2005 年度は 4,867 万台である¹⁸⁾ ので、それぞれ LCD 重量に換算すると 61t, 358t, 384t に相当する。LCD の In 濃度を 250g/t とすると¹⁹⁾, 毎年出荷される携帯電話端末の LCD だけで、In 換算にして 1997 年では約 15kg, 2002 年および 2005 年度では約 90 ~ 100kg のポテンシャルが存在することとなる。

プリント基板上には抵抗器やコンデンサ、IC 等の多くの電子部品が実装されており、各部品にはそれぞれ特有のレアメタルが使用されている。その中でも、レアメタルが主要材料として使用されている最たる例としてタンタルコンデンサが挙げられる。タンタルコンデンサは小型で大容量を持つという特徴から、多くの小型機器に採用されている²⁰⁾ が、Ta は日本国内で製錬を行って

Fig.4 Number of tantalum capacitor.

おらず、全量を製品の形で輸入に依存している金属であり、2000 年頃の IT バブル期には原料不足による供給障害も発生し²¹⁾, 経済産業省などが定める要注視レアメタルの一つである²²⁾。携帯電話 1 台あたりにおけるタンタルコンデンサのサイズ別の使用個数の推移を Fig. 4 に示す。凡例の 4 桁の数字はコンデンサの縦横の寸法 (mm) を示しており、例えば「1608」は 16mm × 8mm サイズを意味する。調査の結果、年代を経るごとにプリント基板に実装されるタンタルコンデンサは小型化し、なおかつ実装個数も著しく減少していることが確認された。これは、前述した 2000 年頃に生じた Ta 原料の供給不足と価格暴騰を契機として、各メーカーがタンタルコンデンサからセラミックコンデンサへの代替を進めていった結果である。

その他、実装技術、配線技術についてもさまざまな開発が進められており、特に 2005 年以降の携帯電話端末においては、部品の小型化はもとより、SoC (System on Chip) あるいは SiP (System in Package) と呼ばれる部品の集約化・複合化が多数行われていた。また、物理的な補強用フレームや、熱電磁対策としてのシールドなど、部品を覆うような構造も多く見られた。収集後の WEEE からの金属回収に際して、実装部品の物理選別などを実施する場合には、WEEE の金属含有量の情報だけでは評価が難しいこのような実装技術の動向にも注意が必要である。

3・2 プリント基板含有金属分析

プリント基板の化学分析の結果を Fig. 5 に示す。最も多いのは Cu であり、基板重量のおよそ 30wt% を占める。冒頭で述べたように、現在主に銅製錬所で行われているプリント基板からの金属リサイクルでは、Cu を中心として同時に Au, Ag が回収される。Cu の使用量には大きな変化は認められないが、幾つかの元素については、携帯電話端末の製造年代によって特徴的な傾向が見られている。Pb 含有量が減少しているのは、Sn-Pb 共晶はんだの Pb フリー化の影響であり、Br および Sb 含有量が減少しているのはプラスチック部材における難燃剤の Br フリー化および Sb フリー化の推進によるものと推測される²³⁻²⁵⁾。Pb に関しては RoHS 指令での対象物質であることから、各メーカーが一斉に対応していることが伺える。一方、Br に関しては、ポリ臭化ビフェニルおよびポリ臭化ジフェニルエーテルが RoHS 指令の対象物質となっているものの、他の Br 系難燃剤については対象外であり、同様に Sb を含む難燃剤も対象外であるにもかかわらず、業界のトレンドとして使用量削減が急速に進んでいることが示された。Pb フリー化と関連して、Pb フリーはんだに使用される Bi および In

Fig.5 Content of each element in mobile phone's PCB.

の含有量が2006年製において高くなっていることも確認された。また、貴金属に目を向けると、AuやAg、Pdのように比較的多量に使用されているものの他にも、PtやRuのような他の白金族元素も微量ではあるが確認できる。Pdについては含有量が著しく減少しているが、これはセラミックコンデンサの電極材料として使用されるPdのNi代替化の動きを反映しているものであると推測される²⁶⁾。一方で、Ptは2006年製になって含有濃度がそれまでの6倍以上になっているが、この要因については明らか

になっていない。Ruは厚膜チップ抵抗器において、抵抗ペーストとして使用されている。このチップ抵抗は基板上に数100個程度も実装されるものであるが、個々のサイズは極めて微小で、Ruもごく微量にしか使われていないため、全体におけるRu濃度は極めて低い値になっている。Fig.4で示したタンタルコンデンサの実装個数の減少について、化学分析においてもTa含有量は著しく減少していることが確認された。このようなはんだやプラスチック難燃剤、コンデンサは携帯電話端末に限らず電子機器全般において使用されるものであり、ここで示された使用金属量の変動は他の電子機器においても基本的には同様の傾向を示すものと予想される。

CrおよびWは含有量の増加傾向がみられ、主に前述の補強フレームやシールドへの使用と思われるが、原因となる部品あるいは部材に対する一つ一つの確認は行っていない。また、携帯電話基板の特徴としてGa使用部品の存在が挙げられる。具体的には、携帯電話の通信機能を担うGaAs半導体や、ボタン等のバックライト照明として基板上に多数実装されているLEDなどである。このような事実からは、特徴的なレアメタルを使用する部品を搭載する機器からそのレアメタルを回収しようとする場合、他の機器と別系統で処理した方が効率的であることが示唆された。

また、年度ごとの携帯電話端末の国内出荷台数およびそれぞれの年代のプリント基板平均重量から、携帯電話のプリント基板として日本国内に出回った元素量を推算した(Fig. 6)。1997年度から2005年度にかけて出荷台数が倍増していることもあり、ほとんどの元素は2~3倍に増加しているのに対し、Pb、Sb、Ta、Pdは大きく減少していることが示された。2005年度を見た場合、Cuは約500t、Al、Fe、Ni、Zn、Sn、Baはおおよそ20~40t程度、Pb、Ag、Cr、W、Mn、Au、Biは数t、Ta、Sb、Pd、Co、Mo、Gaは数100kgの資源化ポテンシャルが新たに発生したことになる。Inについても、プリント基板だけで55kgとなり、LCDに含まれるIn量のおよそ半分に相当することが分かった。しかしながら、これらのポテンシャルにそれぞれの金属の単価を掛け合わせると、Au、Ag、Cuの金銭価値が他の元素に比べて格段に高くなり、現在のリサイクルがAu、Ag、Cuを回収する目的で行われている状況は明らかである。その他のレアメタル類についても、携帯電話端末だけで1年間で数100kgから数tのポテンシャルが発生し、一旦は社会に蓄積するが、既報^{11,12)}にあるように、WEEEの大部分は廃棄されてしまう結果となっている。資源を持たない我が国では、今後も常に政治的、投機的あるいは事故による供給不安があることを考えると、WEEEを単純に廃棄せずに、資源化できる形で保持することや、それを効率的に回収することを将来に向けて考える必要があると考えられる。

以上のように、今回の調査結果からは、RoHS指令への対応や、価格高騰による材料の代替はドラスティックに進行することが確認された。今後も増え続ける携帯電話端末等小型家電の廃棄に伴い、リサイクルが叫ばれているわけであるが、リサイクルシステムを考慮する上では、中長期的な資源戦略の中において回収元素を選定し、国外への流出も注意した資源フローをコントロールする資源面と、他方では回収資源以外のものが廃棄物として国内外を問わず適正に処理・処分されることを担保する環境面との両面での配慮が必要である。具体的には、資源面では特に貴金属やIn、Ta、希土類元素などのレアメタルの使用量変化やマテリアルフローの把握、そして環境面においては、有害金属やプラスチック類などの処理が重要であると考えられる。また、全体の循環を考える際には、上記のような製造側の基準等以外に、リサイクル側の視点に立った場合に考慮が必要な事項も多い。例えば、

Fig.6 Total amount of each element in mobile phone's PCB.

RoHS 指令で対象となっていない有害物質は、製品の製造に関する基準を満たすのみでなく、廃棄時には環境基準や要監視項目も含めて対応することはもとより、労働安全上の事項も考慮される必要がある。

また、携帯電話端末については、その貴金属価値ばかりが目されるが、マテリアルリサイクルが困難な廃プラスチックは総重量の半分以上を占め、基板や部品を回収した後はほぼ価値がなくなってしまう。これらの処理を含めて完結させなければ社会的

に許容できるリサイクルシステムとはならない。今後、使用済み機器リサイクルのための基礎情報として、このようなインベントリを蓄積していくことは重要であろう。このインベントリをベースとして、現状で回収すべき（回収可能な）元素、投入する製錬プロセスを考慮することによって回収できるようになる元素、あるいは現在のプロセスで回収できずとも、ある程度の資源ポテンシャルがあり、事前に分離することで将来的な回収を考慮できる元素、環境中への拡散を防止する観点で対応すべき元素が明らかになる。この際、拡大生産者責任の一環として、EEE の製造者による自社製品の含有元素情報の調査・開示がなされれば、より精度の高いインベントリが作成でき、WEEE の分別作業も効率的に行えるようになることが期待できる。リサイクル時において簡便に元素情報を与える方法としては、各製品・部品における特定元素の含有（あるいは非含有）を意味するマークや色の表示、そして将来的には IC タグ等の RFID (Radio Frequency Identification) 技術による製品の元素情報の自動認識システムなども考えられる。

4. ま と め

今後リサイクル対象とされる使用済みの小型電子機器のうち、携帯電話端末を年代別に調査して以下のことが分かった。

- ・従来のプリント基板からのリサイクルで主に回収対象とされてきた Cu, Au, Ag 以外にも多くの種類のレアメタル類が使用されており、幾つかの元素についてはその使用量が大きく変動していた。
- ・金属資源の供給不安や価格高騰により、Pd の代替材料 (Pd から Ni へ) あるいはタンタルコンデンサの代替部品 (タンタルコンデンサからセラミックコンデンサへ) への移行が進み、Pd および Ta の使用量が減少傾向にあることが示された。
- ・環境への放出が懸念される物質の使用抑制などにより、Pb や Sb, Br など有害性のある幾つかの元素の使用量が減少していることが示された。また、それに対応して代替材料となる元素の増加がみられた。このような傾向は携帯電話端末に限ったことではなく、他の電子機器においても基本的にはほぼ同様であると考えられる。

以上のように、使用金属は、性能・機能の問題もあるが、種々の規制や原料価格高騰といった社会的要因から短期間で大きく変化していくことが明らかになった。また、部材ごとの考察を行ったことも併せ、リサイクルシステムでの考慮すべき点を明確にすることができた。今後、筆者らは他の機器についても調査を実施し、有効なリサイクルについて技術面とシステム面から検討を進めたい。

謝辞 本研究の一部は JOGMEC との共同研究「廃小型電子・電気機器からの希少金属回収」の中で実施したものである。ここに謝意を表明する。

References

- 1) T.Morise, M. Naka and T. Shiratori: Journal of MMIJ, **123** (2007), 758-762.
- 2) S.Akagi, T. Aoki, J. Yoneda, M. Narisako and J. Hino: Journal of MMIJ, **123** (2007), 763-767.
- 3) K. Takahashi, A. Sasaki and H. Umeda: Journal of MMIJ, **123** (2007), 744-746.
- 4) A. Okuda: Journal of MMIJ, **123** (2007), 737-740.
- 5) T. Unno: Journal of MMIJ, **123** (2007), 823-827.
- 6) F. Inamasu: Journal of MMIJ, **123** (2007), 828-831.
- 7) K. Nakajima, K. Yoshikawa: Journal of MMIJ, **123** (2007), 796-798.
- 8) T. Hishi and K. Fujisaki: Journal of MMIJ, **123** (2007), 814-818.
- 9) T. Matsuto, C.H. Jung and N. Tanaka: Waste Management, **24** (2004), 425-436.
- 10) Y. Baba: Metal Resource Report, **35** (2005), 414-420.
- 11) T. Shiratori and T. Nakamura: Journal of MMIJ, **122** (2006), 325-329.
- 12) T. Shiratori and T. Nakamura: Journal of MMIJ, **123** (2007), 171-178.
- 13) Japan Oil, Gas and Metals National Corporation (JOGMEC): Heisei 19 nendo Enerugi Shiyuu Gourika Gijutsu Kaihatsu Kishou Kinzoku Tou Koukouritsu Kaishuu Sisutemu no

- Kaihatsujigyo Seikahoukokusho* (2008) .
- 14) S. Tsujioka: *IT Kiki no Kaishuu Shori Recycle ni kansuru Chousahoukokusho* (Denshi Joho Gijutsu Sangyo Kyokai, Tokyo, 2007) , pp.57-58.
 - 15) T. Shirahase and A. Takada: Proceedings of the Annual Conference of the Japan Society of Waste Management Experts, **18** (2007) , 300-302.
 - 16) R. Hayashi: Sharp Technical Journal, **95** (2007) , 24-28.
 - 17) K. Kuwatsu: *Korekara Jouhou Tsuushin Shijou de Nani ga Okorunoka* (Nomura Sogo Kenkyujo, Tokyo, 2008) , pp.341.
 - 18) Japan Electronics and Information Technology Association (JEITA) : Ido Denwa Kokunai Shukka Daisuu Jisseki (2005) .
 - 19) T. Honma and T. Muratani: Sharp Technical Journal, **92** (2005) , 17-22.
 - 20) Function and Materials, **22** (2002) , 48-56.
 - 21) H. Minami: Metal Resource Report, **37** (2007) , 665-670.
 - 22) Agency for Natural Resources and Energy: *Rare Metal Yochuushi 9 Koushu tou no Jukyu no Genjo nitsuite* (2004) .
 - 23) W. Jöhler: IEEE Transactions on components and packaging technologies, **27** (2004) , 30-41.
 - 24) K. Takahashi: *Japan Jisso Technology Roadmap 2007* (JEITA, Tokyo, 2007) , pp.97-113, pp.181-185.
 - 25) H. Nishizawa: *The latest technology of epoxy resin for electronic devices*, (CMC Publishing, Tokyo, 2006) , pp.73-81.
 - 26) T. Kimura: *Handbook of Electronic Materials* (Asakura Publishing, Tokyo, 2006) , pp.315-316.