不活性冷媒中での銅の腐食挙動†

南 谷 林太郎* 初 田 俊 雄**
島 津 ひろみ** 笠 井 憲 一***

Corrosion Behavior of Copper in Liquid Perfluorocarbon

by

Rintaro MINAMITANI*, Toshio HATSUDA**, Hiromi SHIMAZU**
and Ken'ichi KASAI***

Liquid perfluorocarbon coolant Fluorinert® FC-72 for electronic devices has high thermal stability and low chemical reactivity. However, the presence of water in FC-72 at less than 10 wt ppm has been shown to appreciably increase copper corrosion. In the present study, the corrosion mechanism under low solubility of water in FC-72 was investigated by chemical analysis, water volume measurement, and corrosion testing. It was found that FC-72 liberates no decomposition products in temperatures below 100°C and copper corrosion depends on liquid temperature, dissolved water, and oxygen. In FC-72, copper specimens were corroded by wet oxidation at temperatures of 50, 70, and 85°C and by both wet and dry oxidation at 100°C. Copper corrosion was induced when dissolved water in FC-72 was increased to more than 8 wt ppm. However it was reduced when oxygen in FC-72 was decreased to less than 25 ml/L. Dissolved water in FC-72, as in air, equilibrates with adsorbed water on copper surface. Therefore, the mechanism of copper corrosion in FC-72 is the same as that in air. It is considered that the mechanism for FC-72 can be extended to explain corrosion behavior in almost all inert coolants.

Key words: Perfluorocarbon, Inert coolant, Corrosion, Atmospheric corrosion, Water adsorption, Copper, Electronic device

1 緒 言

液体パーフルオロカーボン¹⁾は、C-F結合を基本構造にもち、化学的に安定な上、熱伝達性、電気的絶縁性に優れた物質である。その組成により、沸点が50～250°Cのものまで10数種類がある¹⁾。これらは、沸点に応じて各々リキッドバーンインテスト²⁾、サーマルショックテスト³⁾、はんだリフロー⁴⁾などの装置の加熱、冷却媒体として使用されている。またサイリスタ⁵⁾や液冷コンピュータ⁶⁾の冷却媒体として使用されるなど、電気電子部品の冷却に非常に有用な液体である。

フロンなど塩素を含むフルオロカーボンは、加水分解時に生成される酸性物質により接液材料の腐食が促進されることが知られている⁷⁾。一方、液体パーフルオロカーボンは化学的に安定で分解し難い物質であるため、接液材料との適合性の検討例は少ない。Leeは数種の液体パーフルオロカーボン中に銅および有機材料を浸せきした実験を行い、液体中の溶存酸素および水分が原因で腐食が起こること、また有機材料が共存すると液体が汚染がされることを指摘した⁸⁾。しかしながら、液体フルオロカーボンの水分溶解量は、室温で10 wt ppm前後と少なく、この微量な水分による腐食のメカニズムは解明されていない。

本報告では、液体パーフルオロカーボン中での微量水

分、酸素の挙動を把握した上で、銅の腐食に及ぼす水分、酸素、温度の影響について調べ、液体パーフルオロカーボン中での金属の腐食メカニズムを明らかにした。

2 実験方法

本研究では、電気電子部品用の熱媒体として広く使用されている液体パーフルオロカーボンのうち、住友3M社製のフロリナートFC-72®(以下FC-72)を対象に検討した。FC-72は、最も化学結合力の強いC-F結合のみを主鎖とした直鎖状飽和化合物C₆F₁₄である。Table Iに、FC-72の代表的な物性値¹⁾を示す。比較として、高沸点フロリナートFC-70(沸点215°C)、および水の物性値を示す。

2・1 FC-72分析方法

受入れFC-72について、ガスクロマトグラフ/質量分析計(以下GC/MS)(日立製163-TCD/電子科学製EMD-05CG)、核磁気共鳴分析計(以下NMR)(日立製R-90H FT-NMR)により成分、組成、構造を調べた。

FC-72中の水分溶解量はカールフィッシャー水分計(京都電子製MKC-210)により、酸素溶解量はガスクロマトグラフ(以下GC)(日立製163-TCD)により測定した。FC-72中の溶解イオン、金属元素は、純水に抽出した後、イオンクロマトグラフ(以下IC)(DIONEX製2010i)、プラズマ発光分光分析計(以下ICP)(日立製306)によ

† 原稿受理 平成10年2月2日 Received Feb. 2, 1998

* 正 会 員 (株)日立製作所機械研究所 〒300-0013 土浦市神立町, Mech. Eng. Res. Lab., Hitachi, Ltd., Kandatsu, Tsuchiura, 300-0013

** (株)日立製作所機械研究所 〒300-0013 土浦市神立町, Mech. Eng. Res. Lab., Hitachi, Ltd., Kandatsu, Tsuchiura, 300-0013

*** 正 会 員 (株)日立製作所汎用コンピュータ事業部 〒259-1304 秦野市堀山下, General Porpose Computer Div., Hitachi, Ltd., Horiyamashita, Hadano, 259-1304

Table I. Typical properties of Fluorinert FC72.¹⁾

Typical properties	FC-72	FC-70	Water
Boiling point °C	56	215	100
Volume resistivity (25°C) $\times 10^{15} \Omega\text{-cm}$	1.0	2.3	$<1.8 \times 10^7$
Solubility of water (25°C) wt ppm	10	8	—
Solubility of air (25°C) ml (gas)/L (liquid)	480	220	19
Density (25°C) g/cm ³	1.68	1.97	1.0
Kinematic viscosity (25°C) $\times 10^{-6} \text{m}^2/\text{s}$	0.4	13.4	0.893
Average molecular weight g/mol	338	820	18

Fig. 1. Moisture sensor calibration diagram.

Fig. 2. Oxygen sensor calibration diagram.

り測定した。

2・2 FC-72 中での水分、酸素測定方法

FC-72 は電気絶縁性に優れているため、気相や液相中で用いるセンサは FC-72 中でも動作する。そこで、FC-72 中の水分溶解量と酸素溶解量を in-situ でモニタリングする方法を考案した。水分センサには高分子抵抗型湿度センサ（神栄製 THP-B8T）を用い、Fig. 1 に示すようにカールフィッシャ水分計により校正した。同様に、酸素センサには溶存酸素センサ（東亜電波工業製 DO-11P）を用い、Fig. 2 に示すように GC により校正した。

上記水分センサおよび酸素センサを用いて、気相・液相からなる密閉系において、FC-72 中の水分量および酸素量の経時変化を測定した。水分量はシリカゲルや水を

共存させ、酸素量は N_2 、 O_2 ガスを吹き込むことで調整した。

また水晶振動子微量天秤 Quartz Crystal Microbalance (AT カット、共振周波数 5MHz) を用いて、FC-72 中での金属表面（金スパッタ電極）の水分吸着挙動を測定した。

2・3 腐食評価方法

試料 ($20 \times 10 \times 0.1 \text{mm}$) は、リン脱酸銅 ($\text{Cu} = 99.96\%$, $\text{P} = 0.028\%$) を用い、エメリ紙 #1000 で研磨、アセトン中で超音波洗浄した後、FC-72 (10ml) と共に SUS304 ステンレス製オートクレーブ（内容量 10ml）に封入し、恒温槽 ($50, 70, 85, 100^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$) に所定期間（最長 5000-h）放置した。FC-72 の水分溶解量、酸素溶解量は、受入れ状態を基準に、室温での飽和値の範囲内で調整した。所定の期間後に取り出した試料はカソード還元法（窒素脱気 0.1N-KCl 水溶液、カソード電流密度 -0.02mA/cm^2 、室温）により腐食生成物を同定、定量化した。さらに、薄膜 X 線回折分析計（以下 $\mu\text{-XRD}$ ）（リガク製 RAD-B）、オージェ電子分光分析計（以下 AES）（日本電子製 JAMP-10S）、X 線光電子分光分析（以下 XPS）（VG 製 ESCA LAB5）により腐食生成物を評価した。

FC-72 の液量に対して銅試料の表面積を 5 倍に増やした試験を実施した結果、腐食速度は同程度であり、FC-72 中には腐食反応に対して十分な水分、酸素が存在していることがわかった。本試験において FC-72 の液質は、試験期間を通して一定に保たれているといえる。

さらに、FC-72 に加えて、他のフロリナート FC-84（沸点 b. p. 80°C ）、FC-43（b. p. 174°C ）、FC-70（b. p. 215°C ）の腐食試験も併せて実施した。

3 実験結果

3・1 FC-72 分析

Fig. 3 に、受入れ FC-72 の GC-RTIC（Reconstructed Total Ion Chromatogram）クロマトグラムにより分離したフラグメントイオンをモニタした結果を示す。図中 6 種のピークが観察されることから、受入れ FC-72 は 6 成分から構成されていることがわかる。さらに、NMR を用いて FC-72 の構造を調べた結果、鎖状アルキル末端の CF_3 基が存在することがわかった。Table II に、GC/MS により得られた no.1 ~ 6 の各保持時間ごとの質量、および NMR の結果から推定される組成式を示す。FC-72 は主成分 C_6F_{14} が約 94%、その他に炭素数が 4 あるいは 5 の飽和化合物が残り 6% を占める。

また、IC により FC-72 中の各種イオン分析、また IPC により金属分析を行った結果、全ての項目で検出限界以下であり、遊離フッ素イオンは検出されなかった。

Fig. 4 に、FC-72 の水分溶解量の温度依存性を、比較として沸点 102°C の FC-75 の結果と共に示す。FC-72 の水分溶解量の測定値は、 15 wt ppm (25°C) と Table I のデータ¹⁾ に比べ高い値を示した。ここでは、FC-72 の水分溶解量として Fig. 4 の測定値を採用した。FC-72 の沸点である 56°C 以下の範囲で、FC-72 と FC-75 の溶解度曲線は一致した。FC-75 は C-F 結合を基軸とした化合物 $\text{C}_8\text{F}_{16}\text{O}$ であり、溶解度パラメータ値 δ (FC-75) = 4.4 が

Fig. 3. GC/MS RTIC chromatograph of FC-72 as received.

Table II. Components of FC-72 as received.

	Molecular weight	Percent	Structure	
①	238	0.39	C_4F_{10}	Decafluorobutane
②	288	5.04	C_5F_{12}	Dodecafluoropentane
③	338	94.05	C_6F_{14}	Tetradecafluorohexane
④	288	0.30	C_5F_{12}	2-trifluoromethyl-1,1,1,2,3,3,3,4,4,4-nonafluorobutane
⑤	338	0.07	C_6F_{14}	2-trifluoromethyl-1,1,1,2,3,3,3,4,4,5,5,5-undecafluoropentane
⑥	338	0.15	C_6F_{14}	3-trifluoromethyl-1,1,1,2,3,3,3,4,4,5,5,5-undecafluoropentane

Fig. 4. Solubility of water in Fluorinert.

FC-72 の値 δ (FC-72) = 5.8 と近接していることから、FC-72 と同程度の水分溶解特性を有すると考えられる。

3・2 FC-72 中での水分、酸素の挙動

Fig. 5 に示す大気 / FC-72 の系において、大気、FC-72 中の水分の経時変化を測定した。Fig. 6 に、大気中の相対湿度と FC-72 中の水分飽和度（水分溶解量 / 飽和水分溶解量）の関係を示す。大気、FC-72 中を水分飽和度 100% 付近に調整した状態で大気中にシリカゲル乾燥剤を共存させた場合（Case I）、大気中の相対湿度は直ちに低下し、それに伴い FC-72 中の水分は大気中に移行し、FC-72 中の水分飽和度は徐々に低下した。逆に大気、FC-72 中を水分飽和度 0% 付近に調整した状態で大気中に水を共存させた場合（Case II）、大気中の相対湿度は直ちに

Fig. 5. Measurement scheme of in-situ water behavior.

Fig. 6. Water behavior in FC-72 and air.

Fig. 7. Oxygen behavior in FC-72 and air.

に上昇し、それに伴い大気中の水分は FC-72 中に溶け込み、水分飽和度は徐々に上昇した。ここでは、FC-72 の水分調整時間の都合上、Case I は水分飽和度約 80%、Case II は水分飽和度約 10% をもって初期状態とした。

また、Fig. 5 と同様の大気 / FC-72 の系において、大気、FC-72 中の酸素の経時変化を測定した。Fig. 7 に、大気中と FC-72 中の酸素飽和度（酸素溶解量 / 飽和酸素溶解量）の関係を示す。大気、FC-72 中を酸素飽和度 100% 付近に調整した状態で大気中に窒素ガスを送り込んだ場合（Case I）、大気中の酸素飽和度は直ちに低下し、それに伴い FC-72 中の酸素は大気中に移行し、FC-72 中の酸素飽和度は徐々に低下した。逆に大気、FC-72 中を酸素飽和度 0% 付近に調整した状態で大気中に酸素ガスを送り込んだ場合（Case II）、大気中の酸素飽和度は直

Fig. 8. Water adsorption behavior in FC-72.

Fig. 9. Equilibrium water adsorption isotherms on Au electrode in FC-72.

ちに上昇し、それに伴い大気中の酸素はFC-72中に溶け込み、酸素飽和度は徐々に上昇した。

大気/FC-72からなる系の水分および酸素は、平衡状態に達するまで、本試験条件では数10分～数10時間を要するが、気相/液相間を移行することがわかった。さらに、平衡状態の大気中とFC-72中のセンサが同じ出力値を示したことは、センサ表面の水分および酸素の吸着状態が大気中とFC-72中とで類似していると考えられる。

Fig. 8に示すように、脱水したFC-72中に水分センサとQCM（金電極）を近接して設置した後、過剰水分（5 ml）を混入させ、FC-72中の水分移行に伴い変化する金属表面の水分吸着挙動について調べた。水分吸着量はQCMの周波数変化として測定した。Fig. 8の測定結果に基づき、FC-72中の水分量と金属表面の吸着水分量の関係をFig. 9に示す。吸着水分量は水分飽和度が50%付近から増大しており、これは大気中の水分吸着挙動⁹⁾と極めて類似した結果となった。

3・3 銅の腐食の経時変化

Fig. 10に、受入れFC-72（水分8 wt ppm）中で、銅の腐食の温度依存性（50～100℃）を示す。腐食は85℃以下に比べ100℃で急激に促進した。Fig. 11に、各試料のカソード還元による還元電位-時間曲線を示す。50, 70, 85, 100℃いずれの温度の試料でも、Cu₂Oのプラトー（-0.4V付近）が現れ、さらに100℃の試料ではCuOのプラトー（-0.6V付近）も認められた。 μ -XRDによっても同様に100℃の試料からCuOが検出された。さらにAESにより、100℃の試料の表面にCu, O, 最表面ではFが検出された。検出されたFは、XPSの結果CF₂

Fig. 10. Temperature dependence of copper corrosion in FC-72.

Fig. 11. Reduction potential-time curve of copper specimen after immersion.

Fig. 12. Oxygen dependence of copper corrosion in FC-72.

Fig. 13. Water dependence of copper corrosion in FC-72.

の状態で存在しており、CuF₂は検出されなかった。

Fig.12に、100℃のFC-72中で、銅の腐食の溶存酸素依存性（酸素曝気、空気曝気、窒素脱気、真空脱気）を示す。受入れ状態のFC-72は空気曝気と同程度の酸素を

Fig. 14. Corrosion Products on copper after 2000-h immersion (100°C).

Fig. 15. Water dependence of copper corrosion in FC-72.

Fig. 16. Copper corrosion in FC-72 and air.

Fig. 17. Copper corrosion in Fluorinert.

含んでいる。なお、FC-72中の水分は、曝気および脱気処理に伴い除去されて1～2 wt ppmとなった。酸素曝気～窒素脱気の酸素濃度範囲では、いずれの条件でも銅の腐食量は同程度であり、酸素濃度が腐食量に及ぼす影響は小さい。真空脱気により溶存酸素を除去した場合、腐食量は自然酸化膜程度の数 nm であり、腐食は進行していないと考えられる。

Fig. 13に、空気飽和100℃のFC-72中で、銅の腐食の水分依存性を示す。水分を除去した場合（水分量0.5～6.5 wt ppm）に比べて、水分量が8 wt ppmでは腐食の促進が認められる。Fig. 14に、水分量が8 wt ppmと4 wt ppmの場合の腐食生成物表面のSEM写真を示す。いずれの水分量の腐食生成物も Cu_2O と CuO により構成されている。水分量4 wt ppmの場合は緻密な皮膜が形成されており、腐食速度は酸化皮膜中のイオン拡散により律速され、水分量8 wt ppmの場合は表面に多孔質で保護性の低い皮膜が形成されており、腐食速度は界面反応により律速されると考えられる。また、Fig. 15に、100℃、70℃のFC-72中で、銅の腐食の水分依存性を示す。いずれの環境温度でも水分の増加に伴い腐食量は増加しているが、100℃では水分量0 wt ppm、つまり水分を完全に除去した場合でも、 $0.04\mu\text{m}/2000\text{-h}$ 程度の腐食が進行すると推定される。

Fig. 16に、大気中とFC-72中での銅の腐食を比較した結果を示す。大気試験では、室温で相対湿度50%の空気を、FC試験では室温で水分量2, 7 wt ppmのFC-72を密閉容器に封じ込み、100℃に保持した。100℃での空気の飽和水分量は 589.5 g/m^3 であり、¹⁰⁾25℃で相対湿度50%（絶対湿度 8.7 g/m^3 ）は100℃で相対湿度1.5%に相当する。また、Fig. 4のFC-72の水分溶解度曲線から100℃でのFC-72の飽和水分量は120 wt ppmと推定され、水分量7 wt ppm, 2 wt ppmは、100℃での水分飽和度2%, 6%に相当する。同じ水分飽和度の空気中、FC-72中では、腐食量、腐食速度は同程度であり、互いの腐食挙動は類似している。

Fig. 17に、組成の異なる4種類のフッ化炭素FC-72, FC84, FC43, FC70中での銅の腐食試験（100℃, 2000-h）結果を示す。試験には受入れ状態（室温、相対湿度50%）のフッ化炭素を使用しており、水分飽和度は50%程度であると思われる。FC-72の場合と同様に、腐食生成物は酸化銅のみであった。腐食量は、高沸点のフッ化炭素でわずかに減少する傾向にある。

4 考察

4.1 フッ化炭素の劣化

FC-72はC-F結合を基本構造にもち、結合エネルギーの観点からも分解し難い物質といえる。実用レベルとして受入れFC-72は、主成分である直鎖状飽和化合物 C_6F_{14} 以外に、6%の低級飽和化合物を含んでいる。低級飽和化合物は、高温環境でHF（フッ酸）やPFIB（パーフルオロイソブチレン）を発生する恐れがある。¹¹⁾しかしながら、FC-72の100℃の腐食試験において、銅の腐食生成物は酸化銅のみで CuF_2 は検出されておらず、低級飽和化合物が分解して、HFを生じた痕跡はない。FC-72はそれ自体分解することではなく、経時劣化はないといえる。したがって、腐食挙動は、FC-72の環境温度、水分量、酸素量に依存すると考えられる。

4.2 腐食の影響因子

100℃以下のFC中における銅の腐食生成物は酸化物のみであり、腐食反応は水や酸素による酸化反応が主体

である。酸化反応としては、以下に示すように水が関与する Wet 酸化と、水の関与しない Dry 酸化（高温酸化）の 2 種類が考えられる。

Wet 酸化：

Dry 酸化：

50～100℃の環境では水分の増加に伴い腐食量は増加しているが、このうち 100℃の環境では水分を除去しても腐食は進行している。これより、85℃以下では Cu_2O が形成され Wet 酸化が主体であり、100℃では Wet 酸化に加えて CuO が形成される Dry 酸化も進行していることがわかる。いずれの酸化反応も酸化剤は酸素であり、酸素曝気～窒素脱気の酸素量の範囲で腐食量が同程度であることから、酸素量 25ml/L 以下ではじめて腐食が抑制されている。したがって、酸素量 25ml/L 以上では、酸素の供給で腐食反応が律速されることはない。腐食量は、Wet 酸化により水分量と共に増加する。水分量が 8 wt ppm 以上では、多孔質で保護性が低い腐食生成物が形成され界面反応が律速するため、さらに腐食が促進されることが考えられる。

4・3 FC-72 中での腐食メカニズム

大気/FC-72 からなる系の水分および酸素は、平衡状態に達するまで気相/液相間を移行する。平衡状態では、大気の相対湿度と FC-72 中の水分飽和度は同じ値を示すと考えられる。したがって、大気の相対湿度が高い場合には、平衡状態にある FC-72 中の絶対水分量は微量であるが、水分飽和度という観点から見ると FC-72 中は水分飽和度が高い状態にあるといえる。FC-72 が大気と接する系においては、FC-72 と共に大気環境を制御する必要がある。

FC-72 中の水分は、大気中の水分吸着と同様に、系内に水分を吸着できる表面が存在すれば、水分飽和度（相対湿度）に対応して表面に平衡吸着する。したがって、FC-72 中では、大気中と同様に、水分飽和度の増加に伴い、表面に吸着する水分子層が単分子層から多分子層へと増すことで腐食速度は急激に増加し、凝縮水層が形成される領域で腐食速度は最大となる。さらに水分子層が増して水溶液になると、酸素の補給が低下するため、腐食速度はわずかに減少すると考えられる。

以上より、FC-72 中での金属腐食は、大気腐食と同じメカニズムであり、環境温度での水分飽和度と同じ相対湿度での大気腐食と同等の挙動を示す。

4・4 不活性冷媒への本メカニズムの拡張

FC-72 中では、大気中と同じメカニズムで腐食が進行することから、FC-72 以外の不活性冷媒中での腐食挙動も、環境温度、水分量、酸素量に依存し、冷媒の種類には依存しないものと推定される。しかしながら、組成の異なるフロリナートの腐食試験では、沸点が高いフロリナートほど腐食量はわずかに減少する傾向があった。沸

点が高いフロリナートでは、粘度および表面張力が大きくなり、これにより表面への水分の吸着特性が変化すると考えている。したがって、液質が経時的に劣化しない不活性冷媒中の腐食は、液体の物性値による金属材料の腐食性の違いを除けば大気腐食と同等な挙動であることが示唆される。

5 結 論

不活性冷媒として、フロリナート FC-72 中での金属の腐食挙動について調べ、以下の結果を得た。

(1) FC-72 は主成分 C_6H_{14} のほかに数 % の低級飽和化合物を含んでいるが、100℃以下の環境では、これらの不純物は経時的に分解することはない。FC-72 中の金属腐食は、温度、水分量、酸素量に依存する。

(2) 液温 85℃以下の環境では Wet 酸化が主体、100℃の環境ではさらに Dry 酸化が進行する。酸素量を 25 ml/L 以下に低減することで、腐食は急激に抑制される。一方、水分量を 8 wt ppm 以上に増加させると、腐食は急激に促進される。

(3) 大気/FC-72 からなる系の水分および酸素は、平衡状態に達するまで気相/液相間を移行する。さらに FC-72 中の水分は、大気中の水分吸着と同様に、水分飽和度（相対湿度）に対応して表面に平衡吸着する。

(4) FC-72 中での金属腐食は、大気腐食と同じメカニズムであり、環境温度での水分飽和度と同じ相対湿度での大気腐食と同等の挙動を示す。

(5) 組成の異なるフロリナートの腐食試験では、沸点が高いフロリナートほど腐食量はわずかに減少する傾向があった。液質が経時的に劣化しない不活性冷媒中の腐食挙動は、液体の物性値による金属材料の腐食性の違いを除けば、大気腐食と同等な挙動であることが示唆される。

最後に、フロリナートに関する情報を提供していただいた住友スリーエム(株) 化学製品事業部 技術部長 丸岡 国昭氏、本研究全般に対してご協力いただいた元(株)日立製作所 機械研究所 宗本由香氏に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 3M Product Manual: Fluorinert Electronic Liquids.
- 2) L. Headrick, Evaluation Engineering, **23**-7, 52 (1984).
- 3) T. W. Berger, Evaluation Engineering, **9**-11, 4 (1970).
- 4) 清水正之, 電子技術, **28**-14, 144 (1986).
- 5) 岡田定五, 松竹 貢, 美濃知章, 堀 孝正, 日立評論 **68**-8, 51 (1986).
- 6) R. D. Danielson, N. Krajewski and J. Brost, Electronic Packaging & Production, **26**-7, 44 (1986).
- 7) 日本冷凍協会・日本フロンガス協会編, “代替フロン類の熱物性-HFC-134a および HCFC-123”, p.141 (1991) 日本冷凍協会.
- 8) L. H. Lee, Corrosion, **26**, 529 (1970).
- 9) 石川雄一, 尾崎敏範, 日本材料学会腐食部門委員会資料, No. 159, p.61 (1990).
- 10) 国立天文台編, “理科年表”, p.481 (1991) 丸善.
- 11) L. J. Turbini and F. M. Zado, Electronic Packaging & Production, **20**-1, 49 (1980).