

# 流体物理洗浄(3) ジェット洗浄、ブラシ洗浄、その他

*Physical Fluid Cleaning (3) Jet, Brush, and other topics*

静岡大学 学術院 工学領域 准教授 真田 俊之

Sanada Toshiyuki (Associate Professor)

College of Engineering, Academic Institute, Shizuoka University

北海道大学 大学院工学研究院 機械宇宙工学専攻 教授 渡部 正夫

Watanabe Masao (Professor)

Division of Mechanical and Space Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University

## 1. はじめに

3度目となる流体物理洗浄の紹介は、前回の超音波に引き続き、幅広く使用されている洗浄手法であるジェット洗浄やブラシ洗浄について、現在理解されているメカニズムを紹介する。このようなシンプルな現象でさえ、未解決な物理がふんだんに含まれていることを強調したい。その後、微細な孔やパターンの中などの洗浄で問題になる、細孔内への液体侵入について私見を述べたい。

微細な液滴群であるスプレーは、工業上幅広い分野で使用されている。しかしジェット洗浄を行うには一工夫が必要である。その工夫や、液滴を衝突させることによって発生する高い圧力や速い流れはどのように形成されるのかを紹介する。

一方、接触式のブラシ洗浄はどうやって不純物を除去しているのだろうか。ブラシの種類にもよるが、まだ完全には理解されていない。半導体デバイス製品から洗車まで幅広く使用されているPVAブラシの洗浄メカニズムについて現在提案されているモデルを述べると共に、研究者によって行われてきた議論を紹介する。

最後に、表面を濡らしたい場合、表面張力は低い方が良いのか、それとも高い方が良いのであろうか。どうやって液体は細孔へと侵入しているのであろうか。表面張力という分かりにくい物理量と、洗浄で重要となる濡れについて議論したい。

## 2. ジェット洗浄

ジェットとは英語のJetのことで、広辞苑では、「孔口から流体が連続的に噴出する形態。また、その噴出物。噴流。」となっている。第一回で紹介したように、気体の噴流のみでは洗浄効果は低い。そのため、物理的作用が必要な洗浄物では、液滴などを衝突させることによって高い圧力や局所的な高速な流れを発生させ洗浄を可能としている。このような気体と液体を混合させ高速で噴射し洗浄する技術を2流体ジェットと呼ぶが、この2流体にすることのメリットや周囲気体の影響などについては他にもレビュー記事を執筆しているのでそちらを参考にしていきたい<sup>1-2)</sup>。簡単に述べれば、簡単に圧縮できる気体を用いて高速な流れを作り、密度が気体の1,000倍近い液体を加速させて被洗浄物へと衝突させるのである。今回は高い圧力や高速な流れが発生する理由について紹介する。

前回の記事において、非圧縮性流体のベルヌーイの定理と呼ばれる式を紹介した。ベルヌーイの式は、速度と圧力の関係を示した式であり、

$$p + \frac{1}{2}\rho V^2 = \text{const}$$

と示された。ここで、 $p$ は圧力、 $V$ は速度、 $\rho$ は密度である。この式によれば、流れが遅くなる地点では圧力が高くなる。一方で、流体の流れを急にせき止めた場合には、流体が圧縮され、その際の圧力上昇 $\Delta p$ は次式で示される。

$$\Delta p = \rho C \Delta V$$

ここで、 $C$ は音速、 $\Delta V$ は速度の変化である。この圧力

の急激な上昇は密度や音速の大きな液体で顕著に観察され、流体が水の場合には水撃 (Water hammer) と呼ばれている。水道などで急激に蛇口を閉めるとカーンという音がすることがあるが、これはこの水撃現象と関係しており、バルブ等を破壊する恐れがあり注意が必要である。

それでは、この一次元の水撃理論によって発生する圧力を見積もってみよう。また流れをせき止めて発生するベルヌーイの定理から導かれる圧力とも比較してみる。V = 10 m/s 程度の水の流れを考える。水の密度は 1,000 kg/m<sup>3</sup> 程度、音速は 1500 m/s 程度となる。ベルヌーイの定理から導かれる圧力は  $1/2 \times 1,000 \times 10^2 = 5 \times 10^4$  Pa 程度と、1 気圧が 101.3 kPa  $\approx 10^5$  Pa であることを考えるとそれほど大きな値では無い。一方、水撃圧力は、 $1,000 \times 1,500 \times 10 = 1.5 \times 10^7$  Pa と 150 気圧程度となる。非常に大きな値である。さらに高速な場合、例えば数 100 m/s 程度になると、水撃圧力はさらに大きくなってしまい、材料の降伏応力と同程度の値となってしまう。これが、液滴衝突によって発生するエロージョン (前回のキャビテーションエロージョンも同じ) の原因となる。このように、液体の流れを急激にせき止めると非常に高い圧力が発生する。なお、液滴が衝突した際に発生する圧力は、液滴が曲率を持つため、さらに複雑となり、局所的にはこの水撃圧力よりも高い圧力が発生し、水撃圧程度では破壊されない材料でさえも、エロージョンが観察されることが知られている<sup>3)</sup>。

液滴などを高速で衝突させ、局所的に高圧を発生させると、表面が振動し、その振動の加速度による慣性力が付着力を上まわれれば、表面の粒子を除去することができる。これは Hopping や Trampling と呼ばれる粒子除去モデルとして知られている。実際にレーザーを使って局所的にかつ短時間で対象物を熱膨張させ、その作用によって不純物が除去できることが観察されている<sup>4)</sup>。

一方、第一回で紹介したように、流体の流れを使用して微粒子を除去する場合には粒子を回転させる Rolling が主たるメカニズムである。液滴が衝突した際には高速な横方向流れが観察されることが知られているが、何故だろうか。場合によっては、衝突速度の数倍にもなる高速な流れを発生させることができる。その理由の一つとして液滴の曲率が挙げられる。簡単な 2 次関数 (放物線) を使って説明する<sup>5)</sup>。

図 1 にモデル図を示す。原点で対称な放物線が  $x = 0$  の壁面へと衝突することを考える。この時、壁は剛体壁 (変形しない) とする。t = 0 で衝突したと仮定し、その後の時刻の放物線を求めると、次式で示される。

$$y = \frac{x^2}{L} - Vt$$

ここで、L は液滴径程度の大きさで、長さの次元を持つ量、V は衝突速度である。液滴が衝突して圧縮されると考えると、 $y < 0$  の領域の面積が圧縮されることになる。そのとき、接触点 ( $X_e, Y_e$ ) の座標を考える。この接触点の x 座標の値は液滴が衝突後どのように変化するかを見るため、 $X_e$  を求めると

$$X_e = \sqrt{VtL}$$

となる。この接触点の速度は時間微分となるため

$$V_e = \frac{dX_e}{dt} = \sqrt{\frac{VL}{4t}}$$

と表される。すなわち、横方向速度  $V_e$  は、衝突時  $t = 0$  では無限大となって発散してしまう (数学的には特異点と呼ばれる)。実際には無限大の速度は無いので、 $t = 0$  を除いて考えれば良い。速度は時間と共に放物線的に減少するものの、初期の段階では非常に高速となる。実際に、数値解析や実験の観察結果においても、衝突速度の数倍に達することが観察されており<sup>6)</sup>、条件によっては液中の音速を大きく超える。

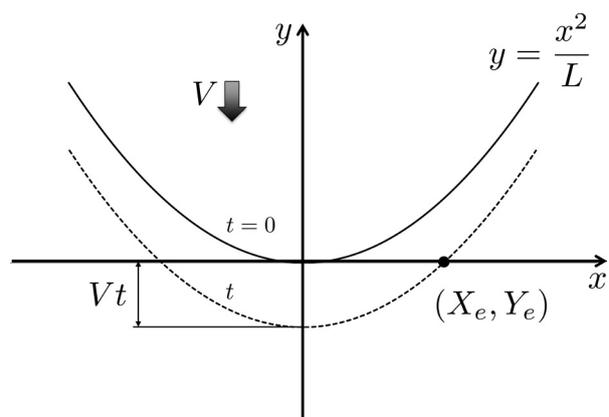


図 1 放物線を持つ曲率の衝突

以上のように曲率を持った液滴を高速で衝突させると、単純には予想できないような様々な物理現象があり、このような現象が洗淨に絡んでいるのである。なお、今回は接触線の詳細物理については割愛したが、固体と液体および気体の三相界面は非常に深い物理があり、

多くの研究者が熱心に研究を続けている<sup>7)</sup>。

これまで説明したように、二流体ジェットでは高速な液滴衝突が重要となる。一方で、気体と液体を混合して噴射するノズルは様々な目的のために開発されており、二流体ノズルと呼ばれるものであってもそれが洗浄に適しているとは限らない。特に二流体用のノズルは、微細な液滴を発生させ、液滴の表面積を増加させることを目的にしたものが多い。そのため状況に応じてノズルは自作する必要がある。このような場合には混相用のノズル、例えば溶射技術などを参考にすれば良いだろう<sup>8)</sup>。気相の加速だけでなく、液相の加速区間も十分に考慮する必要がある点が重要である。すなわち液体と気体には相対速度が存在する。このことは数値解析によってノズル設計を行う際にも重要である<sup>9)</sup>。

### 3. ブラシ洗浄

筆者の経験ではブラシ洗浄は大きく2種類に分けられる。1つは歯ブラシのようにナイロン系樹脂を使用したもので、他方は水を十分に染み込ませたスポンジ状のものである。この2種類の特長について、ある展示会にて洗浄用スポンジを販売しているメーカーより聞いた言葉が的を射しており、ここで紹介したい。その説明とは、ナイロンは「ほうき」、スポンジは「雑巾」というものである。

ナイロン系の樹脂での洗浄は、ほうきとしての機能が重要となる。不純物を掃いて取り除くのである。そのため、どの程度の弾性を持っているかが重要となり、たわみを持たせた後にどの程度の時間で元に戻り、その際にどの程度の力を発生させるかが詳細に調査されている<sup>10)</sup>。また歯磨きなどで使用される場合には、歯磨き粉などとの相性や歯磨きの方法が重要となるようである。このようなほうきにおいては、対象物に応じて工夫が必要だが、洗浄のメカニズムとしては樹脂などに蓄えられた弾性エネルギーを開放する際に、その樹脂が高速で動き、粒子を除去すると言えよう。そのため、ブラシが変形してしまい、へたってしまったら交換時期となる。

一方、スポンジによる洗浄は、十分に水を保有しているため弾性を持つ固体と粘性を持つ液体とが混在し表面をこする。この固液混相状態が洗浄メカニズムの理解を難しくしている。本稿では、この点について議論してみたい。スポンジをこすることによって一部脱落させ、

研磨剤のように扱うメラミン系のスポンジも存在するが、今回は除外して検討する。

雑巾のようなスポンジによる洗浄も複数の研究者によって調査されてきた。しかし、その文献を見る限りとても混乱しているように思う。例えばCMPと呼ばれる半導体製造プロセスの工程後の洗浄のモデルにおける提案を見てみると、主として2つのメカニズムが提案され、同一の著者であっても、時期によって主張が異なったり、その2つのメカニズムが同時に発生しているという説明が多い。この洗浄工程ではPVAブラシと呼ばれる高分子が使用されるが、そのPVAブラシで提案されている2つの洗浄メカニズムを見てみよう。

一つは第一回で紹介したせん断流れによって粒子がRollingを行うというものである。この洗浄メカニズムを主張している論文では、図2に示すように、スポンジと洗浄対象物とは接しておらず、その間の流体に速度勾配が存在し、その速度勾配によって除去されるというものである。このような速度勾配は固体表面間では十分に考えられる(軸受けは、おおよそこのような速度分布と考えられている)。しかしこの仮定には、筆者は疑問を感じる。多孔質体とも見なせ、複数の孔が開いているスポンジにおいて、表面は滑り無し境界条件(速度がゼロ)とは限らない。そのため、このような速度勾配がそもそも発生しているかは自明ではなく、また信頼できる観察結果も報告されていない。

さて、PVAブラシの研究では摩擦力を測定して、その摩擦力からどのような接触状態になっているかを予測する研究が多い。固体と表面との間に液膜があり、一定の速度勾配が形成される条件になると摩擦はどうなるのであろうか。固体間が液体で満たされて相対運動する状態を流体潤滑と呼ぶが、このような状態での摩擦係数は0.001から0.01程度と言われている。一方でPVAブラシの表面との摩擦係数は、様々な研究者が測定しており液体のpHに依存するが、0.1から1.0程度である<sup>11-13)</sup>。これは流体潤滑とは言いがたい。そのため、単純なせん断流れによって粒子が除去されているモデルは、現実とは異なると予想する。

なお、ロールブラシを回転させるためのトルクは測定しやすい物理量である。その際に、どの程度の粒子が除去可能かを見積もるため、トルクと粒子除去の関連も検討されている<sup>14)</sup>。しかしその解析手法は、一定の速度

勾配を持つ液膜が存在すると仮定し、この速度勾配によって散逸するエネルギーとブラシを回転させるためのトルクによる仕事が釣り合うとの仮定によって、液膜厚さを見積もる解析となる。しかしながら、そもそもブラシを回転させるための仕事は、液膜内での粘性散逸のみとは限らず、ブラシを回転させるための仕事と表面摩擦による仕事の組み合わせであるため、その仮定から間違っており、結果が正しい保証は無い。

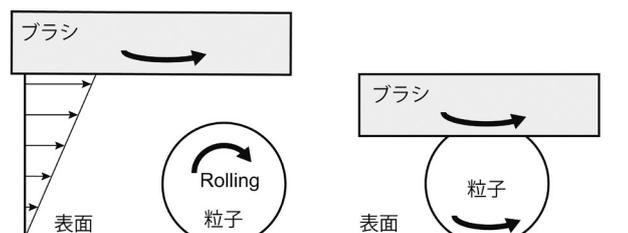


図2 PVAブラシの洗淨モデル 左: rolling、右: full-contact<sup>15)</sup>

もう一つのモデル洗淨モデルは、付着である。図2に示すようにブラシが接触する際に、表面に存在する不純物がブラシと付着し、取り除かれるというメカニズムである。雑巾等で表面を掃除すれば、雑巾が汚れるため、まず予想するメカニズムである。しかし、微小なスケールの不純物の除去を考えると、それほど現象は単純では無い。

例えば、ブラシ洗淨のモデルに関する Northeastern University のグループの論文では<sup>15)</sup>、様々な理論を用いて表面に存在する微粒子除去メカニズムを検討している。前述した rolling による作用では、微粒子を除去することは困難で、直接接触 (full-contact) によるモーメントを評価している。直接接触で得られるモーメントは、除去に必要な値に比べ  $10^{15}$  倍以上も大きなオーダーであり、このメカニズムであれば 100% 除去可能である。しかし現実には 100% 除去することは困難であり、このような付着力が発生していれば、洗淨後ブラシに接触した粒子は取り除くことが出来ないだろう。しかし、実際のプロセスでは、PVA ブラシは繰り返し使用され、洗淨時には粒子を表面から取り除き、その後クロスコンタミネーション防止のため、ブラシから粒子を取り除く必要があるため、それほど単純では無いことが予想される。

一般的に摩擦は、真実接触面積と呼ばれるマイクロスケールで実際に表面と接している面積に強く関連しており、見かけの接触面積とは大きく異なる。ここで一般的な固体において、真実接触面積は荷重に比例し、みか

けの接触面積の 1% 程度、1 つの真実接触点の大きさは  $10\mu\text{m}$  程度かそれ以下と言われている<sup>16)</sup>。接触しているように見えても、マイクロスケールで見れば接触している箇所は非常に限られている。そのため、PVA ブラシの場合を考えてもブラシと表面の微小パーティクルが直接接触する確率は極めて低いことが予想される。以上のように接触と言っても未だに未解明な点は多い。

なお、筆者らの研究によって、ブラシと表面の摩擦は、特にロール型ブラシを使用する際に対象物濡れ性に依存することや、ブラシの粘弾性とノジュール(表面の突起物)によって局所的に摩擦力を増加させることができることなどを示した。詳細は文献を参照されたい<sup>17-18)</sup>。今後、よりマイクロな領域での研究を続ける予定である。

#### 4. 微細パターンへの液体侵入

洗淨対象物は平坦とは限らない。このような表面を洗淨する際には、液体と表面の濡れ性や液体自身の表面張力が重要となる。微細パターン内の洗淨を行う際に、洗淨液がパターンに入らない限り効果的な洗淨が期待できないためである。本節ではこのような凹凸を持つ表面において、表面はどのように濡れるのかを検討する。表面張力の説明には力の考え方とエネルギーの考え方があがるが、筆者には界面近傍分子の圧力テンソルの非等方性という力の概念が分かりやすい<sup>19)</sup>。しかし、この表面張力の概念は難解であり、その説明のみで一つの解説になってしまうためここでは省略する。参考のため、表面張力をイメージするのに優れた文献を引用しておく<sup>20-21)</sup>。なお、最近、細管内に液体が侵入している際の現象を説明するにはエネルギーのみでは不十分で、力の概念が必要だという主張の論文も報告されている<sup>22)</sup>。

さて、表面張力と濡れおよび洗淨に関して以下のような説明が一般的である。例えば、なぜフッ素系洗淨剤が精密部品などの微粒子洗淨に用いられるか、という質問であれば、洗淨液の表面張力が小さいからという答えである。表面の微細な隙間に洗淨液が入り込むことが容易であるからである。表面張力が低い方が微細な隙間に洗淨液が入りやすいのだろうか。ここで、力学的視点から表面張力による濡れを考えてみよう。

まず、表面張力が低いほど濡れるとは、どのような場合であろうか。例えば同じ表面エネルギーを持った固体

の場合には、液体の表面張力が低いほど、接触角は小さくなる。例えば図3に示すように、比較的表面エネルギーの小さな高分子の膜の上では、表面張力の大きな水は丸くなり接触角は大きく、表面張力の小さなアルコールは接触角が小さい。先ほどの回答は、このような考え方に依存していると予想する。これは、油污れなどの除去のイメージ図と一致する。例えば図4のような油が水中の表面に存在した際に、界面活性剤を添加したとする。界面活性剤の添加は接触角を徐々に変化させ、最終的に油が離脱する。ローリングアップと呼ばれる現象である。この際には、表面張力を低くすることで水の濡れが促進し、油の除去が可能となる。すなわち表面張力を低くすることで、表面と油の間にその液体が濡れていくのである。



図3 シリコンラバー上の液滴(左:水 右:エタノール)

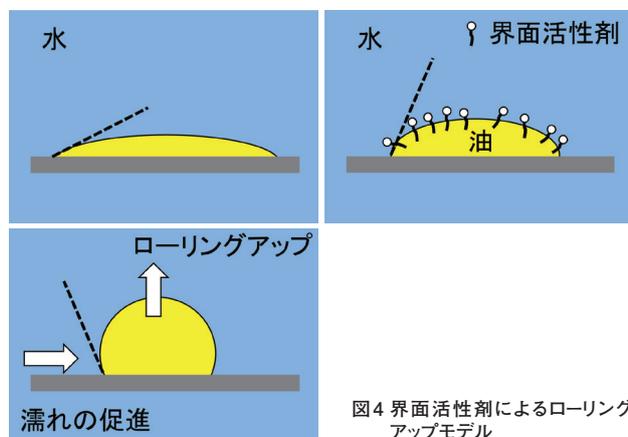


図4 界面活性剤によるローリングアップモデル

一方、凹凸や微細なパターンなどを持った表面の場合どうであろうか? 例えば毛細管現象という微細な管の中を液体が上昇(もしくは下降)する場合を考える。図5に示すように固体表面上の接触角と同様に考え、濡れやすい細管、例えばガラスなどは液体が上昇する。逆に、濡れにくいテフロンなどの細管では下降してしまう。この際の上昇(下降)量  $h$  は、

$$h = \frac{4\sigma \cos\theta}{\rho g d}$$

で示される。ここで  $\sigma$  は表面張力、 $d$  は細管径である。

接触角  $\theta$  で正負が逆転することからも、濡れやすさを接触角によって整理できることが理解できるだろう。この点においても、同じ材料であれば、接触角が重要となる。

視点を変えこの毛管現象について、細管の大きさについて考えてみる。式によれば、管が小さいほど上昇量は大きくなる(図5)。接触角が異なる場合でも、管が小さくなることで上昇量を同じにすることができる。これは検討している系における表面張力の支配度を示しており、微細な管では重力などの作用に比べ表面張力が支配的になることを意味する。

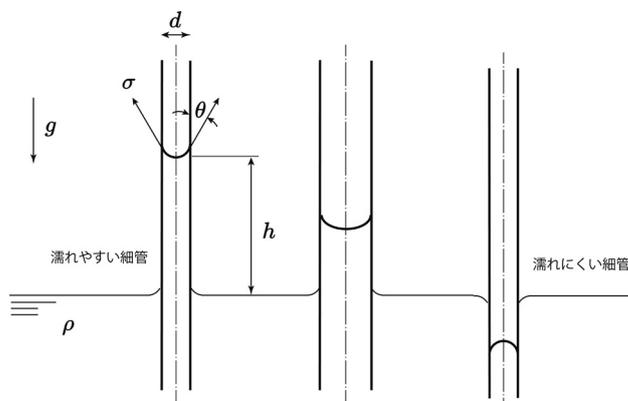


図5 毛細管現象

このような視点から表面張力を考えるとどうであろうか? つまり細管では、通常の管に比べて表面張力が支配的であり、表面張力が(相対的に)大きいから上昇量が大きくなるといえる。例えば、筆者は以下のような質問を頻繁に受ける。近年のパターンの微細化によって洗浄液が細孔に入らなくなる。どうすれば良いか。この回答として言えることは、同じ材料である限り、孔が小さくなることで洗浄液が入らなくなることは無い。むしろ、小さな孔の方が表面張力が(相対的に)大きくなって、入りやすくなるはずである。入らないのは、新規材料等を導入することによって、そもそも接触角が大きな液体と材料の組み合わせであることが多い。これらの効果は微細になればなるほど強調されるため、問題が表面化するのであろう。

細管の先端が封じられている場合はどうであろうか。このような場合には、表面張力と空気の溶解、外部圧力が重要となる。液体が侵入するということは、気体の体積を小さくすることで、気体の液体への溶解や気体排出のための流路が確保されない限り、圧力が上昇してしまうためである。これらに関しては、空気の溶解の

みでの見積もり<sup>23)</sup>や実験による調査<sup>24)</sup>が報告されている。著者らの見積もりによれば、数ミリメートルから数十マイクロメートルまでは表面張力は支配的では無く、侵入のためには外圧が必要となる。すなわち二流体ジェット等の液滴の衝突が必要である。さらにサブマイクロメートルの微細管になれば、表面張力が支配的となり気体が圧縮され高圧に、気体が高圧になればヘンリーの法則によって溶解が促進されるという現象が予測できる。すなわち、管が小さいほど液体侵入は問題では無くなるのである。なおナノスケールの表面では表面ナノバブルなど、まだ物理学の問題としても活発に議論がされている話題もある。また、ナノスケールでは表面張力の作用を大きくすれば(接触角が小さければ)液体は簡単に侵入するが、一方で乾燥時のパターン倒壊の原因となりうる。そのため接触角の制御が重要となる<sup>25)</sup>。

## 6. 流体物理洗浄のまとめと謝辞

3回に渡って流体が絡む物理洗浄について紹介を行った。今回紹介したように、その物理現象は非常に複雑であり、未だに解明されていない事項も多い。そのため技術開発の際には試行錯誤になり易い。一方で、単なる試行錯誤のみによらず、原理原則に従えば、様々な洗浄可能性も見えてくる場合が多い。試行錯誤の際にも、メカニズムを再考することで、検討しなかったパラメータが浮上する可能性もある。ぜひ、再検討していただきたい。なお、この物理洗浄という技術は広範囲で使用されているにも関わらず、その基本概念が体系的に整理されているとは言い難い。他の技術と比べ、論文等も極めて少ない。そのため、これからも体系化に向けて研究を続ける予定である。

最後に、本研究遂行には科研費等の支援を受けたものが多く、また多く知見は、共同研究の成果として得られたものである。特にアクアサイエンス株式会社との2流体ジェットの共同開発、および株式会社荏原製作所とのPVAブラシの洗浄メカニズム解明の共同研究による経験に依存している点が多い。また応用物理学会界面ナノ電子化学研究会での交流によっても様々な知見を得た。ここに記して関係者への謝辞としたい。

## 参考文献

- 1) 真田俊之, 渡部正夫, 関映子, 林田充司. 砥粒化学会誌. 2011, 55(11), 640-643.
- 2) 真田俊之, 渡部正夫. エアロゾル研究. 2014, 29(4), 236-240.
- 3) Kennedy, C.F.; Field, J.E. J. Mater. Sci. 2000, 35(21), 5331-5339.
- 4) Kudryashov, S.I.; Allen, S.D. J. Appl. Phys. 2002, 92(9), 5159-5162.
- 5) Lesser, M. Drop-Surface Interactions CISM International Centre for Mechanical Sciences. Rein, M., ed. Springer Vienna, 2002, 456, 39-102.
- 6) Tatakura, Y.; Fujikawa, T.; Jinbo, Y.; Sanada, T.; Kobayashi, K.; Watanabe, M. ECS J. Solid State Sci. Technol. 2015, 4(9), N117-N123.
- 7) Snoeijer, J.H.; Andreotti, B. Ann. Rev. Fluid Mech. 2013, 45, 269-292.
- 8) 片野田洋, 山本秀樹, 松岡武司, 松尾一泰. 日本機械学会論文編集B編. 2006, 72(714), 271-278.
- 9) Sanada, T.; Mitsuhashi, Y.; Mizutani, H.; Saito, T. Nuclear Engineering and Design. 2010, 240(12), 3974-3983.
- 10) Vanegas Useche, L.V.; Abdel Wahab, M.M.; Parker, G.A. J. Sound Vib. 2007, 307(3-5), 778-801.
- 11) Philipossian, A.; Mustapha, L. J. Electrochem. Soc. 2004, 151(7), G456-G460.
- 12) Dedy, N.; Hong, L. J. Tribol. 2008, 130(2), 021603-021603-5.
- 13) Fujiwara, T.; Sanada, T.; Fukunaga, A.; Hiyama, H. Solid State Phenomena. 2013, 195, 213-216.
- 14) Xu, K.; Vos, R.; Vereecke, G.; Doumen, G.; Fyen, W.; Mertens, P.W.; Heyns, M.M.; Vinckier, C.; Fransae, J.; Kovacs, F. J. Vac. Sci. Technol. B. 2005, 23(5), 2160-2175.
- 15) Busnaina, A.A.; Lin, H.; Moumen, N.; Feng, J.; Taylor, J. IEEE Transactions on Semiconductor Manufacturing. 2002, 15(4), 374-382.
- 16) 松川宏. 摩擦の物理. 岩波書店, 2012, 116p.
- 17) Hara, Y.; Sanada, T.; Fukunaga, A.; Hiyama, H. Solid State Phenomena. 2015, 219, 148-152.
- 18) Hara, Y.; Sanada, T.; Fukunaga, A.; Hiyama, H. ECS J. Solid State Sci. Technol. 2015, 4(5), 141-148.
- 19) 小野周. 表面張力. 共立出版, 1980, 146p.
- 20) Berry, M.V. Phys. Educ. 1971, 6(2), 79-84.
- 21) Marchand, A.; Weijs, J.H.; Snoeijer, J.H.; Andreotti, B. Am. J. Phys. 2011, 79(10), 999-1008.
- 22) Extrand, C.W.; Moon, S.I.; Langmuir. 2012, 28(44), 15629-15633.
- 23) Olim, M. J. Electrochem. Soc. 1997, 144(12), 4331-4335.
- 24) Ota, K.; Tsutsumi, A. ECS Trans. 2007, 11(2), 299-306.
- 25) Ogawa, Y. Solid State Phenomena. 2012, 195, 7-12.