

クリーンルーム有機物汚染用 QCM センサの表面改質による感度の向上

田中 勲 (技術研究所) 鈴木 令 (技術研究所) 梶間 智明 (技術研究所)

Enhancing the sensitivity of Quartz Crystal Microbalance (QCM) sensor for monitoring gaseous organic contaminants in clean rooms by use of its surface modification

by Isao Tanaka, Suzuki Satoru and Tomoaki Kajima

Abstract

The use of Quartz Crystal Microbalance (QCM) sensors for on-site monitoring of gaseous organic contaminants in industrial clean rooms recently has been studied. With the goal of increasing the selectivity and sensitivity of these sensors, we modified the surface of a QCM sensor by depositing silicon on the electrodes and using microfabrication to increase the surface area. The results of adsorption/desorption tests indicate that sensitivity to Dibutyl phthalate (DBP), a major organic contaminant, was increased by a factor of more than two. The effective upper limit of the concentration of DBP on the surface also was increased by a factor of 2.4. In addition, the desorption rate constant for DBP was smaller and the adsorption rate of DBP larger, as shown by a molecular simulation of the adsorption/desorption phenomena. These properties are due to the increased surface area, as well as the greater adsorption of DBP by the silicon surface.

概要

クリーンルームの分子汚染対策用モニタリング方法として、昨今、水晶天秤(QCM)センサの利用が検討されている。本検討では QCM センサのクリーンルームガス状有機汚染物への選択的検出性ならびに感度向上を目的として、電極表面へのシリコン蒸着、および表面積増大のための表面微細加工による表面改質を検討した。その結果、クリーンルームの代表的な有機汚染物質である DBP(Dibutyl phthalate)の検出感度を表面改質前に比較して特異的に2倍以上に向上させることが可能であった。表面改質シリコン膜センサは、有効最大吸着表面濃度が増大し、改質前センサの2.4倍の値を示した。さらにDBPの脱着速度定数は小さく、吸着速度定数は大きな値であり、これらは吸脱着現象の分子シミュレーションによって支持される結果であった。したがって、シリコン膜センサの高感度化は表面積増加の効果ならびにシリコン表面とDBPとの吸着性の強さに起因するものと考えられる。

§ 1. はじめに

半導体や液晶デバイスをはじめとした最先端電子機器生産・開発用クリーンルームでは、空気環境中のガス状化学物質濃度の低減、すなわち、分子汚染対策が不可欠とされている^{1,2)}。代表的な汚染物質には、溶剤・可塑剤などの有機物質、環状シロキサン類、酸性ガスや塩基性ガス、リン、ホウ素、各種金属類等があり、これらは表-1に示すような様々な影響をもたらす。

分子汚染物質は外気や生産用薬品を起源とするものに加えて、クリーンルームを構成する各種建材や設備部材から空気環境中へのアウトガスとして発生するものも多い。このため、その発生抑制や室内濃度の低減が必要とされ、アウトガスの少ない材料の選定・使用やケミカルフィルタ等の除去システムの利用が行われている。これらの対策を行う上で最も重要で基本的な作業として汚染物質の種類と濃度を解析する測定分析作業が挙げられる。従来、分子状汚染物質の測定は室内

空気や対象部材からのアウトガスを適切な吸着・吸収剤で捕集し、実験室に持ち帰った後、分析機器で精密分析する方法で行われている。しかし、一連の作業の完了までには数日から1週間程度を要することも多い。このため、リアルタイムで良品率を管理する必要のある生産現場からはオンサイトで連続的なデータが得られる分子状汚染物質モニタリング技術の展開が強く要求されている。

汚染物質のひとつである凝縮性有機物質のモニタリング用として、QCM センサの適用がこれまでに検討され、生産環境中での実用性の検証例等が報告されている³⁻⁹⁾。

§ 2. QCM センサの特徴と本検討の目的

QCM(水晶振動子マイクロバランス: Quartz Crystal Microbalance)センサは、写真-1に示すような微小なデバイスであり、水晶の円形薄片が電極で挟まれた構造である。電極表面に気中や水中からの物質が付着することによって、Sauerbrey 式(1)にしたがって水晶の共振周波数が変化する¹⁰⁾。

$$\Delta F = - \frac{2 \times F_0^2}{A \sqrt{\mu \times \rho}} \Delta m \quad (1)$$

ここで、 ΔF : 周波数の変化量、 F_0 : センサの基本周波数、 A : 電極面積、 μ : 水晶のせん断応力、 ρ : 水晶の密度、 Δm : 質量変化量

その変化量からナノグラムオーダーの重量変化を検知することが可能であり、センサ周辺の物質の濃度変化を継続して把握できる。また、他の分析機器よりも比較的安価で取り扱いが簡易な点にも特徴がある。ただし、気中では、湿度変動や塵埃等による外乱の可能性もあり、クリーンルーム以外の一般大気中での測定ではデータの解析に考慮が必要である。また、目的とする成分をいかに選択的に付着させ検出するかがセンサ開発の鍵といえる。

例えば、一般に電極には金が使用されているが、その他の金属を使用したり、特定分子を結合させたりする例もあり、外部物質とその表面との反応現象を利用

表-1 汚染物質と発生源、および悪影響の例

汚染物質	主な発生源	
	下線はクリーンルーム構成部材	
酸性ガス (HF, HCl, Cl ₂ , NO _x , SO _x 他)	プロセス薬品、製造装置、外気、排気ガス	
塩基性ガス (NH ₃ , RNH ₂ , R ₂ NH他)	プロセス薬品、人体、 <u>コンクリート</u> 、 <u>塗料</u> 、 <u>塗床材</u> 、 <u>接着剤</u> 、 <u>外気</u> 、 <u>加湿器防錆剤</u>	
凝縮性有機物質 (DBP, DOP, BHT, Siloxane他)	プロセス薬品、 <u>塗料</u> 、 <u>シーリング材</u> 、 <u>接着剤</u> 、 <u>シート</u> 、 <u>パネル</u> 、 <u>フィルタ</u> 、 <u>ケーブル</u> 、 <u>パッキン</u> 、 <u>ウエハ収納容器</u> 、 <u>外気</u>	
ドーパント (B, P)	<u>フィルタ</u> 、 <u>ケーブル</u> 、 <u>外気</u> 、 <u>プロセス薬品</u>	
金属 Na, K, Ca, Mg, Fe, Ni, Cu, Zn, Cr 他	製造装置、プロセス薬品、外気	
高揮発性有機物質 (沸点: 50-100°C, 全炭化水素)	プロセス薬品、 <u>塗料</u> 、 <u>シーリング材</u> 、 <u>接着剤</u> 、 <u>シート</u> 、 <u>パネル</u> 、 <u>フィルタ</u> 、 <u>ケーブル</u> 、 <u>パッキン</u> 、 <u>ウエハ収納容器</u> 、 <u>外気</u>	
		不良現象の例
		メタル配線腐食、ボロン汚染誘導、ヘイズの発生
		化学増幅型レジストの解像度不良、ステップのレンズの曇りによる露光不良
		酸化膜信頼性劣化、CVD成膜異常、レンズ・ミラー汚染
		MOSトランジスタのしきい値電圧シフト、ノンドープ高抵抗Poly Siの抵抗低下
		接合リーク電流増加、酸化膜耐圧劣化、MOSトランジスタ不安定性、ビット不良
		酸化膜信頼性劣化、CVD成膜異常、レンズ・ミラー汚染

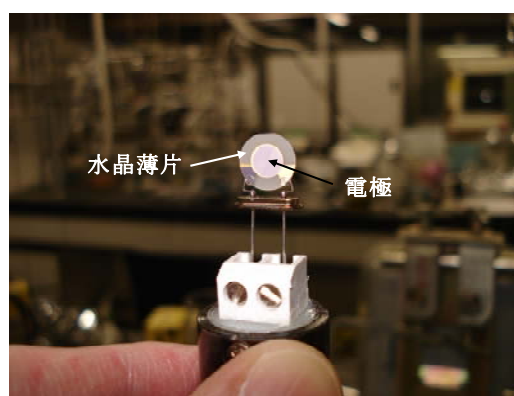


写真-1 QCM センサの外観

することで、環境中有機塩素化合物濃度のモニタリングや酵素反応・生体分子相互作用解析ツールへの応用も行われている¹¹⁻¹³⁾。

一方、クリーンルーム汚染物質の凝縮性有機物質はシリコンウエハに吸着して悪影響をもたらすことが多い。したがって、電極表面をシリコンで改質することによって、有機汚染物質を特異的かつ高感度に検出することが可能になると予想された。

本報では、QCM センサのクリーンルームガス状有機汚染物への選択的検出性ならびに感度向上を目的として、一般に使用されている金電極表面にシリコンを蒸着し、さらに微細加工することによる表面改質を行った。それらへの凝縮性有機物質の吸脱着特性について、分子シミュレーションならびに実験検討を行った。なお、凝縮性有機物質としては代表的な汚染物質である可塑剤 DBP (Dibutyl phthalate) を対象とした。以下に得られた知見¹⁴⁻¹⁶⁾を報告する。

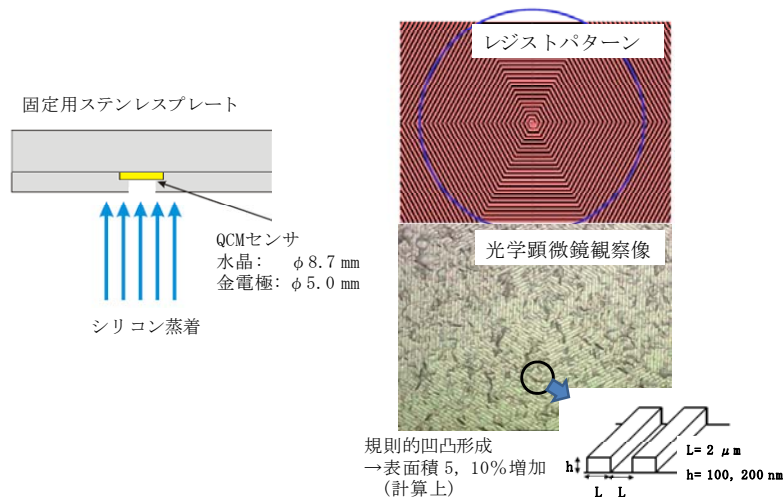


図-1 シリコン蒸着用モールドの概略図(左)と露光処理用レジストパターンと加工後の電極表面の光学顕微鏡像(右)

§ 3. 実験

3.1 表面改質方法

3.1.1 使用材料

改質に使用した QCM センサは株式会社多摩デバイス製で、水晶薄片直径 8.7 mm、電極(金)直径 5.0 mm、基本周波数 9 MHz の製品を使用した。周波数変化量と電極表面への吸着量の関係は $2.7(\text{ng}/\text{cm}^2)/\text{Hz}$ である。

3.1.2 シリコン蒸着・微細加工

検出感度の向上を目的として、センサ中央の電極両表面に以下の方法と条件によってシリコン膜を形成した。図-1 に使用した治具の概念図を示す。

①スパッタ法

到達真空度： 1×10^{-6} Torr
 使用ガス：アルゴン
 ターゲット：6 インチ Si
 ガス圧： 1×10^{-4} Torr
 膜厚：2.5 nm

②電子ビーム蒸着法

到達真空度： 5×10^{-7} Torr
 蒸着源：クラッシュブル Si
 膜厚：3.5 nm

③電子ビーム蒸着+露光処理

規則的な凹凸をシリコン膜上に形成することを目的と

したもので、電子ビーム蒸着法により厚さ 200 または 300 nm のシリコン膜を蒸着した後、レジストを塗布し線幅 $2 \mu\text{m}$ のパターンを露光形成した。レジストパターンをもとにシリコン膜を 100 または 200 nm エッチング加工し、各溝の側面により計算上表面積を約 5% および 10% 増加させた。

3.2 分子シミュレーションによる吸脱着性評価

分子動力学計算用プログラム(富士通 Material Explorer V.5)を使用し、「シリコン膜」と一般的電極材である「金」の表面を対象として、代表的な汚染物質である可塑剤 DBP の吸脱着性を比較した。シリコン膜は実環境での使用条件を考慮し、自然酸化膜が表面に積層する構造とした。計算条件は、NTV アンサンブル、温度 298 K で 200,000 steps (1 step = 0.1 fs) とし、内部エネルギーが平衡状態となるまで実施した。ポテンシャルは、プログラムに付属のライブラリーを一部改良して使用した。可塑剤 DBP 分子は、分子モデリングシステム(富士通 Scigress Explorer V.1)を使用し、半経験的分子軌道計算を行い、構造を最適化した。

3.3 センサ表面への吸脱着実験

3.3.1 DBP の吸脱着性

図-2 に装置の概略図を示す。活性炭で空気中の分子状汚染物質濃度を低減した清浄空気(1.0 L/分)と、一定濃度の汚染物質 DBP を含んだ空気(0.6 L/分)とを QCM センサ表面に流通させ強制的に暴露し、時間の経過に伴う DBP の吸脱着による周波数変化量を記録した。QCM センサは、直径 2 cm、高さ 3 cm の円筒形容器内の

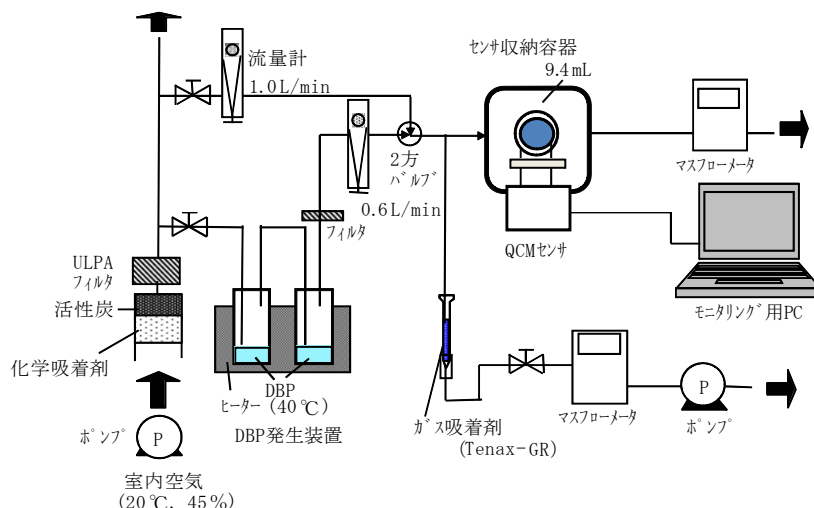


図-2 吸脱着性評価実験装置の模式図

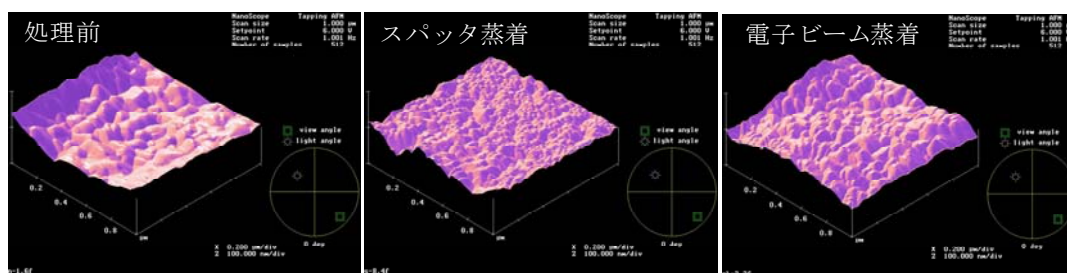


図-3 電極表面の観察像(原子間力顕微鏡)

中央に、容器内に流れ込む空気と直角に設置した。なお、ここでは、流通する空気はセンサの表面に常に均一に流れるものと仮定した。測定においては、初めに清浄空気を流通させ QCM センサの表示値の変動が見られなくなった時点でモニター計の値をゼロにした。その後、DBP を含んだ空気を流した際に表示される周波数値を求め、これと清浄空気との差を周波数変化量とした。気中 DBP 濃度はセンサへの導入空気を固体吸着剤 (TenaxGR) で捕集し、ガスクロマトグラフを使用して求めた。DBP 濃度と周波数変化量の関係から、1 Hz の変化量当たりの DBP の気中濃度を算出し、これを検出感度 [$(\mu\text{g}/\text{m}^3)/\text{Hz}$] とし、本論文ではこの値が小さいほど検出感度が高いと定義した。一連の作業は気温 20°C、湿度 45% の実験室内で実施した。

3.3.2 水の吸脱着性

清浄空気とこれを純水中にバブリングした空気とを比率を変えて混合することで供給する空気の湿度を 3 ~ 45% に調整した。図-2 に示した装置の改良により、種々の湿度の空気を段階的にセンサへ供給し、その際

の周波数変化量を測定した。センサは③電子ビーム+露光処理(5%表面積増加)を使用し、供給空気の温度は 25~26°C に調節した。

§ 4. 結果と考察

4.1 シリコン膜の形成状態

図-3 に、①スパッタ法および②電子ビーム蒸着法によりシリコン成膜した電極表面の原子間力顕微鏡写真を成膜前の状態と比較して示す。成膜により表面に微細な凹凸が生じ、シリコンによって表面の改質が行われた様子が観察された。原子間力顕微鏡に装備された画像処理ソフトウェアを使用して成膜前後の表面積を相対的に比較すると成膜後は 1% 程度の増加となった。さらに、③電子ビーム+露光処理による成膜は、規則的な凹凸をシリコン膜上に形成することを目的としたものであるが、図-1 中に示した光学顕微鏡写真ならびに別に実施した走査型電子顕微鏡による観察の結果、2 μm 間隔の規則的な凹凸構造が認められた。

4.2 分子シミュレーションによる吸脱着性評価

図-4にシミュレーションの開始時と20 ps(ピコ秒, 20×10^{-12} 秒)後の結果のスナップショットを示す。シリコン成膜上の可塑剤 DBP 分子は表面との相互作用が強く、表面に留まる様子が観察された。一方、金表面の DBP は容易に脱離し、空間をさまよう様子が見られた。このことからシリコン膜は金に比較して DBP を強く吸着し脱着させにくい特性を有すると考えられる。

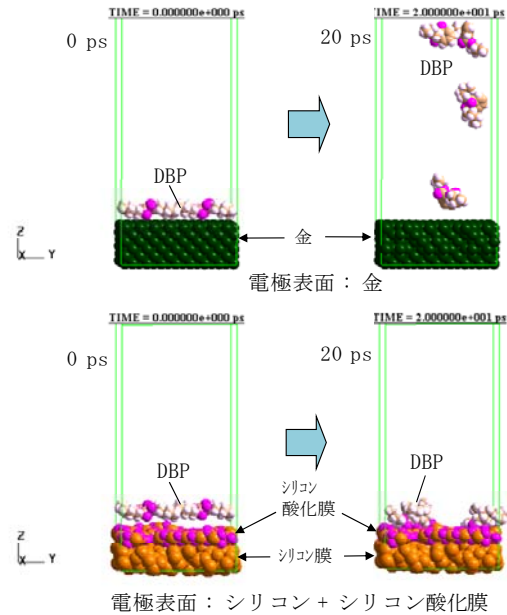


図-4 分子シミュレーションによる電極表面と DBP の吸脱着性評価

4.3 シリコン膜センサ表面への吸脱着特性

4.3.1 DBP の吸脱着性

図-5に時間経過に伴う周波数変化量を示す。DBP を含んだ空気(濃度 $265 \mu\text{g}/\text{m}^3$)との接触により QCM センサ表面に DBP が吸着し周波数が変化した。さらに時間の経過に伴い周波数変化量は大きくなるが、やがて、一定の値に収束する傾向が観察された。周波数変化がほぼ収束する時点の変化量の絶対値を求め、検出感度を算出した。これらをまとめて表-2 に示す。スパッタ蒸着、電子ビーム蒸着 (No. 2, 3) と改質前 (No. 1) の検出感度を比較すると、電子ビーム蒸着は改質前 [$6.5 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Hz}$] に比べて感度の向上 [$5.2 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Hz}$] が見られたが、スパッタ蒸着法 [$7.2 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Hz}$] では見られなかった。シリコン成膜の詳細な機構や表面構造が関与している⁶⁾と予想される。さらに、露光処理法による規則的パターン形成の成膜 (No. 4, 5) において感度向上が顕著であった。露光処理法は前述のように、特に成膜の微細加工によって表面積を増大したものであり、改質前に比較して、5%増加で約2倍 ($6.5 \rightarrow 3.3$)、10%増加で約3倍 ($6.5 \rightarrow 2.2$) に感度が向上した。

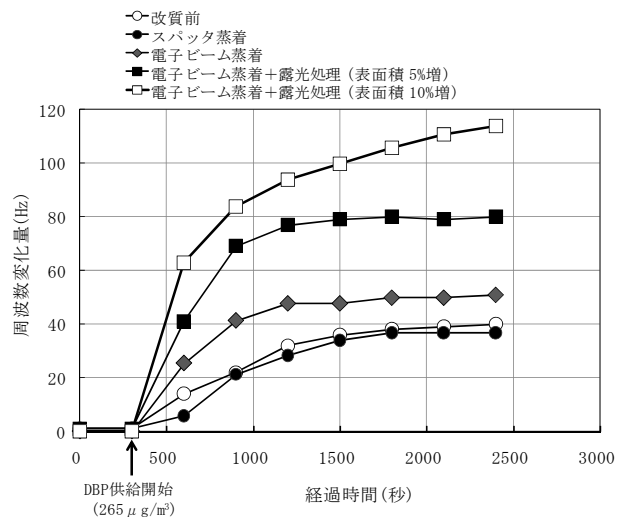


図-5 各センサの周波数変化の様子

4.3.2 水の吸脱着性

図-6に相対湿度と周波数変化量の関係を示す。湿度3~45%の条件では両者の相関性は良く、相対湿度1%でおおむね周波数が1 Hz 変化する結果であった。なお、前項で示した DBP 吸着実験の際の湿度は44~45%で変動は微小であり、一方、周波数変化量は80 Hz と大きかった。したがって、周波数変化量は湿度変動によるものではなく、主に DBP の吸脱着に起因するものと

表-2 各センサの特徴と感度の比較

No.	1	2	3	4	5
シリコン蒸着 電極					
シリコン蒸着法+表面微細加工方法	従来型 (改質前)	スパッタ蒸着	電子ビーム蒸着	電子ビーム蒸着+露光処理 表面積5%増	電子ビーム蒸着+露光処理 表面積10%増
電極最表面成分	金	シリコン自然酸化膜			
検出感度 (DBP $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Hz}$)	6.5	7.2	5.2	3.3	2.2

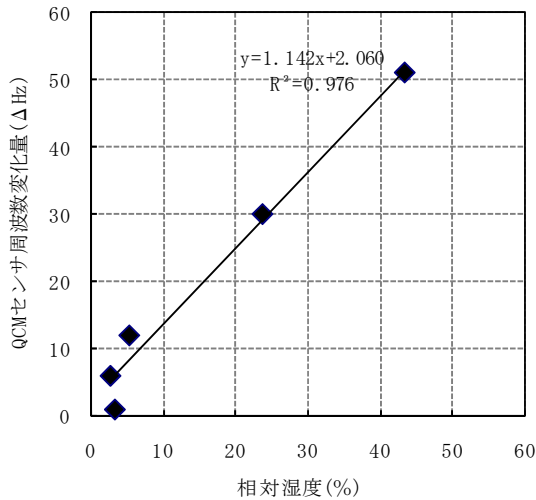


図-6 相対湿度と変化量の関係(センサは電子ビーム蒸着+露光処理 表面積 5%増)

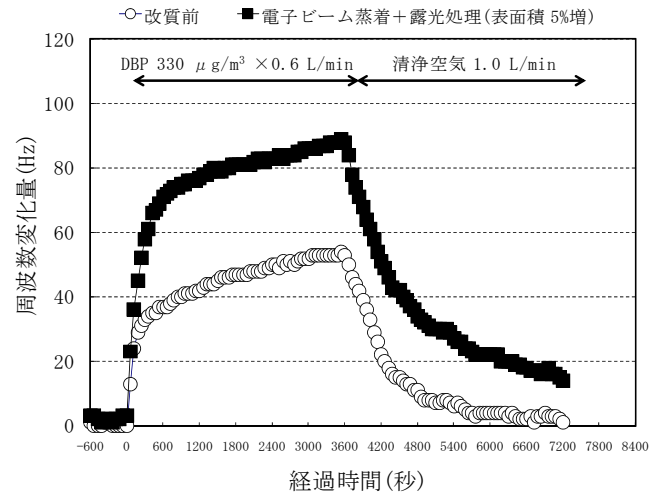


図-7 DBP の吸脱着における周波数変化の様子

判断される。

4.4 DBP の吸脱着特性の考察

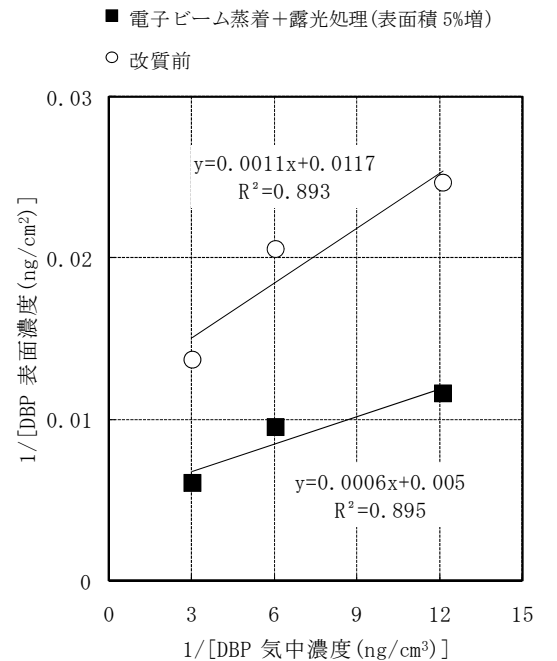
電子ビーム蒸着法+露光処理によるシリコン膜センサ(No. 4、5%表面積増加品)と改質前センサについて、DBP を含んだ空気と清浄空気を供給し、その際の周波数変化データを解析することで、高感度化の特性を考察した。DBP 濃度が $330 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の条件での周波数変化を図-7に示す。なお、清浄空気中のDBP濃度はほぼ $0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。両センサともに、初期に吸着による急激な周波数変化を示した後、シリコン膜センサは改質前センサに比較して、より大きな変化量に収束する傾向を示した。また、その後、清浄空気を供給した際にはDBPの脱着が進行するが、シリコン膜センサは改質前センサに比較して脱着が緩慢な様子が観察された。この特性について既往の方法⁷⁻⁹⁾を用いて以下に解析を行った。

表面の有機物濃度の経時変化は式(2)により表せられる。

$$dS_{\text{DBP}}/dt = (S_e - S_{\text{DBP}}) k_{\text{ad, DBP}} C_{\text{DBP}} - k_{\text{de, DBP}} S_{\text{DBP}} \quad (2)$$

ここで、 t は時間、 S_{DBP} は電極表面のDBP濃度、 C_{DBP} はDBPの気中濃度、 S_e は電極上の有効最大吸着表面濃度、 $k_{\text{ad, DBP}}$ は吸着速度定数、 $k_{\text{de, DBP}}$ は脱着速度定数である。吸着と脱着が定常状態の場合、式(2)の左辺は0になり、これを変形すると式(3)が得られる。

$$1/S_{\text{DBP}} = \{ k_{\text{de, DBP}} / (S_e k_{\text{ad, DBP}}) \} (1/C_{\text{DBP}}) + 1/S_e \quad (3)$$



表面積は電極の見掛けの面積 (0.39cm^2) を使用した。

図-8 DBP の気中濃度とセンサ表面濃度の関係

図-8にDBPの気中濃度と表面吸着濃度の関係を示す。グラフの縦軸切片より求めた有効最大吸着表面濃度はシリコン膜センサが約 $200 \text{ng}/\text{cm}^2$ 、改質前センサが約 $85 \text{ng}/\text{cm}^2$ であり、シリコン膜センサが2.4倍の値であった。

さらに、図-7に示した清浄空気流通時の変化については式(4)が成り立つ。

$$dS_{\text{DBP}}/dt = -k_{\text{de,DBP}} S_{\text{DBP}} \quad (4)$$

これを解くと式(5)が得られる。

$$\ln (S_{\text{DBP}, t} / S_{\text{DBP}, 0}) = -k_{\text{de,DBP}} t \quad (5)$$

ここで、 $S_{\text{DBP}, 0}$ は脱着開始時のDBPの表面濃度、 $S_{\text{DBP}, t}$ は t 秒後の表面濃度である。脱着進行時の表面濃度と時間との関係から脱着速度定数 $k_{\text{de,DBP}}$ を求めると、シリコン膜センサが 1.5×10^{-3} 、改質前センサが 2.0×10^{-3} となり、シリコン膜センサがDBPを脱着しにくいことが認められた。これは、分子シミュレーションからも支持される結果であった。なお、吸着表面濃度が 40 ng/cm^2 までの吸着初期における速度定数を同様に求めて比較すると、シリコン膜センサが 6.3×10^{-2} 、改質前センサが 4.6×10^{-2} となり、シリコン膜センサがDBPを吸着しやすいことも試算された。

以上より、シリコン膜センサの高感度化は、成膜処理による表面積増加効果ならびに、シリコン表面とDBPとの吸着性の強さに起因するものと考えられる。ただし、表面積増加効果に関してはマイクロ・ナノレベルでの構造解析がさらに必要である。その結果に基づいた

微細構造の制御と調製によって、さらなる高感度化が実現できると予想される。

§ 5. おわりに

QCMセンサのクリーンルームガス状有機汚染物質の選択的検出性ならびに感度の向上を目的として、電極表面へのシリコン蒸着、および表面積増大のための表面微細加工による表面改質を検討した。その結果、表面改質前に比較して、代表的な有機汚染物質であるDBPを特異的に高感度に検出することが可能となった。検出下限は2倍以上に向上し、 $2.2 \mu\text{g/m}^3$ と極めて低濃度のDBPのモニタリングに有効であった。

現在、技術研究所内のクリーンルームをはじめとした各所にセンサを設置しており、表-1に示した各種ガス状有機汚染物質に対する検出感度や安定性を検証し、その効果を確認しつつある。また、高感度化には微細加工後の表面状態が大きく関与することから、その構造解析による更なる感度向上のための方法を検討している。さらに、ケミカルフィルタの寿命予測センサとしての適用検討も予定しており、これらを通して本センサの実用化を進めていく計画である。

<参考文献>

- 1) 服部毅編: “新版シリコンウエーハ表面のクリーン化技術”, リアライズ社, pp. 27-46, 2000.
- 2) 白水好美: “次世代の新材料系メタルのデバイスへの影響と Cu 配線等への化学汚染の影響”, クリーンテクノロジー, Vol. 19, No. 1, pp. 8-11, 2009. ほか。
- 3) 中島啓之, 本田重夫, 島田学, 奥山喜久夫: “QCM によるケミカルエアフィルタの寿命判定手法の検討”, エアロゾル研究, Vol. 20, No. 3, pp. 220-224, 2005.
- 4) 岡村茂: “QCM による半導体クリーンルーム中の多点リアルタイム分子汚染計測”, 空気清浄, Vol. 41, No. 1, pp. 38-47, 2003.
- 5) 島田学, 奥山喜久夫, 本田重夫, 羽深等: “ガス状有機汚染物質の壁面付着量の実時間計測と付着挙動の評価”, 空気清浄, Vol. 40, No. 4, pp. 24-30, 2002.
- 6) S. Okamura, M. Shimada and K. Okuyama: “Adsorption and Desorption of Dibutyl Phthalate on Si Surface measured in Controlled Atmosphere using Quartz Crystal Microbalance Method”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 43, No. 5A, pp. 2661-2666, 2004.
- 7) 羽深等, 川原慎洋: “シリコン表面におけるオクタノール分子の吸着脱離挙動”, クリーンテクノロジー, Vol. 19, No. 2, pp. 34-37, 2009.
- 8) H. Habuka and D. Yamaya: “Physisorption and Desorption of Diethyl Phthalate and Isopropanol on a Silicon Surface”, J. Electrochem. Soc., Vol. 154, No. 12, pp. H1031-H1035, 2007.
- 9) H. Habuka, M. Tawada, T. Takeuchi and M. Aihara: “Gas Velocity Influence on Silicon Surface Organic Contamination Evaluated Using Quartz Crystal Microbalance”, J. Electrochem. Soc., Vol. 152, No. 11, pp. G862-G866, 2005.
- 10) G. A. Sauerbrey: “Verwendung von Schwingquarzen zur Microwagung”, Z. Phys., Vol. 155, pp. 206-222, 1959.
- 11) 野田和俊, 松延邦明, 愛澤秀信, 黒澤茂, 長縄竜一, 田尾博明: “水晶振動子と酸化剤を利用するトリクロロエチレンの簡易測定”, 電気学会論文誌 E, Vol. 125E, No. 2, pp. 50-56, 2005.
- 12) 北折典之, 高橋三男: “化学現象の評価ツールとしての QCM”, 材料技術, Vol. 27, No. 2, pp. 49-53, 2009.
- 13) 岡畑恵雄: “酵素反応を重さで測る”, 現代化学, No. 9, pp. 16-20, 2005.
- 14) 田中勲, 後藤昌秀, 藤田智治, 鈴木令, 梶間智明: “クリーンルーム有機物汚染用 QCM センサーの表面改質による感度の向上”, プレ ISCC2010 空気清浄とコンタミネーションコントロール研究発表会予稿集, pp. 62-64, 2010.
- 15) 田中勲, 後藤昌秀, 藤田智治, 梶間智明, 竹林芳久: “表面改質によるクリーンルーム有機物汚染用 QCM センサの感度向上”, 材料技術, Vol. 28, No. 3, pp. 27-33, 2010.
- 16) 田中勲: “クリーンルーム有機物汚染用 QCM センサ”, クリーンテクノロジー, Vol. 21, No. 1, 2011 (印刷中).