研究論文

添加剤の予備吸着を利用する銅電析プロセス
による ULSI 微細配線の形成

縄舟秀美*, 栗野まいこ**, 赤松謙祐*, 水本省三*, 内田 衛***, 細田 勉****

*甲南大学理工学部 甲南大学ハイテク・リサーチ・センター (〒658-8501 兵庫県神戸市東灘区岡本 8-9-1)
**甲南大学 大学院自然科学研究科 (〒658-8501 兵庫県神戸市東灘区岡本 8-9-1)
***石原薬品(株) (〒652-0806 兵庫県神戸市兵庫区西柳原町 5-26)
****富士通(株) (〒511-0192 三重県桑名郡多度町御衣野 1500)

Formation of ULSI Copper Minute Wiring by Copper Electro-deposition Process
Using the Pre-adsorption of Additive

Hidemi NAWAFUNE*, Maiko AWANO**, Kensuke AKAMATSU*
Shozo MIZUMOTO*, Ei UCHIDA*** and Tsutomu HOSODA****

*Faculty of Science and Engineering, High Tech. Research Center, Konan University (8-9-1, Okamoto, Higashinada-ku, Kobe-shi, Hyogo 658-8501)
**Graduate School of Science, Konan University (8-9-1, Okamoto, Higashinada-ku, Kobe-shi, Hyogo 658-8501)
***ISHIHARA Chemical Co., Ltd. (5-26, Nishiyanaagihara-cho, Hyogo-ku, Kobe-shi, Hyogo 652-0806)
****Fujitsu Ltd. (1500, Mizono, Tado-cho, Kuwana-gun, Mie 511-0192)

In the basic concept of conventional electroplating, the additive, which determines the properties of the de-posed film, is included in the bath. However, it is difficult to solve the problems related to copper minute wiring as long as one clings to this concept. In this report, ULSI copper minute wiring formation by a new process, which consists of the pre-adsorption of the additive and copper electrodeposition from an acid copper sulfate bath without an additive, will be described. A copper layer of 1μm thickness was deposited from a basic bath on the copper electrode on which the additive had been pre-adsorbed, and the cathodic polarization in the basic bath which does not contain an additive was then measured. The continuance of the efficacy of the additiveafter the copper electrodeposition was confirmed. The copper electrodeposition was done using an insoluble anode in the basic bath without an additive after the silicon wafer which formed the copper seed had pre-adsorbed the additive. In the method utilizing pre-adsorption,, a minute hole can be filled with copper without causing voids and seams due to the effect of the pre-adsorbed additive.

Key Words : LSI Wiring, Copper Electrodeposition, Pre-adsorption of Additive, Storage Theory, Insoluble Anode

1. 緒 言

シリコン半導体デバイスの多層配線には、従来より RIE (Re-active Ion Etching)法によるアルミニウム合金配線が用いられてきた。しかし、ULSI の高集積化・高性能化にともない配線は微細化・多層化してきた。このような配線の微細化にともなう配線断面積の減少および配線抵抗の増大は、配線抵抗と配線容量の積で表される配線遅延の増大に繋がる。また、配線断面積の減少にともなう電流密度の増大は、発熱量の増大に繋がり、エレクトロマイグレーション(EM)を生じやすくする。このような観点から、湿式法による比抵抗の小さい銅配線技術が注目されるようになってきた。現在、主に検討されている電気銅めっき法は、生産性に優れ、電析銅膜がスパッタ膜に比べて結晶子が大きくジャイアントグレインが形成されることから、EM 耐性においても有利である。しかし、現行の電気銅めっきプロセスによる ULSI 銅微細配線の形成において、特に、銅微細配線中へのマイクロボイド

の形成および銅アノードの使用にともなうアノードスライムの発生は、極めて重大な問題であり、銅微細配線への電気銅めっきプロセスの適用限界を決定する要因にもなりうる¹⁾。
銅微細配線中へのマイクロボイドの形成には、添加剤であるポリエチレングリコールの関与が示唆されている。ポリエチレングリコールは、銅電析反応の反応中間体である Cu⁺イオンを捕捉しポリカチオンを形成する。これが銅電極表面に特異吸着した塩化物イオンとの静電的相互作用により、特にウエハ表面に強固に単分子吸着し、ウエハ表面における銅析出を抑制する^{2)~4)}。このように吸着したポリエチレングリコールは、銅電析過程において銅皮膜中に一部取り込まれ、原子レベルから 10 nm 程度のマイクロボイドを形成する。これらが室温経時における銅の一次再結晶過程において、粒界(三重点)に拡散凝集し直径 70 nm にも達する大きなボイドを形成するに至る^{5)~7)}。半導体デバイスのデザインルールでは、2003 年には 180 nm 幅のトレンチが必要になることから、このようなボイドの形成による、配線抵抗の増大および

EM 耐性の劣化は必至である。

銅微細配線の形成において、銅アノード使用時のアノードスライムの発生および不溶性アノード使用時の添加剤の分解も、大きな問題である。現行の電気銅めっきプロセスでは、一般に銅アノードが使用され、多量のアノードスライムを発生する。特に微細銅配線において、アノードスライムを発生する銅アノードの使用は、システムおよびメンテナンスの観点からも好ましくない。一方、各種不溶性アノードの適用も検討されている。しかし、現行の浴系において不溶性アノードを適用した場合、アノードにおける有機添加剤の酸化分解および界面活性剤の短分子化が生じ、一定性状の電析銅皮膜が得られなくなる。また、添加剤の管理をより複雑に難しくする。従来より、添加剤の濃度管理に関しては、サイクリックボルタン法による一部添加剤の間接測定、定期的な活性炭処理などによる添加剤および添加剤の分解生成物の除去および再調整が行われているが、このような管理方式が、高度のクリーンルーム内での銅微細配線に適合しないことは言うまでもない。

従来の電気めっきの概念では、電析皮膜の性状を制御する添加剤は浴中に含まれている。しかし、この概念に固着するかぎり、上述の添加剤およびアノードスライムに関連する問題を解決することは難しい。本研究では、1970 年代に議論された記憶説^{9)~10)}に基づく添加剤の予備吸着、および添加剤を含まない酸性硫酸銅浴からの不溶性アノードを使用する銅電析のプロセスにより ULSI 銅微細配線を形成する方法について検討した。

2. 実験方法

2. 1 カソード分極曲線に及ぼす添加剤の影響

酸性硫酸銅浴の基本組成、電析条件、および検討した添加剤を表 1 に示す。北斗電工(株)製電気化学測定システム HZ-3000 を使用し、電位走査法により電位走査速度 10 mV/s においてカソード分極曲線を測定した。テフロン樹脂製のホルダーに埋め込んだ直径 2 mm の白金円板電極に、測定のつど基本浴から厚さ 3 μm の銅電析を行ったものを作用極とした。対極には白金線、参照電極には銀-塩化銀電極(3.3 mol/L KCl)を使用した。本論文における電極電位の値は、

Table 1 Composition and condition of basic copper sulfate bath and pre-adsorption solution of additive.

Basic bath	
CuSO ₄ ・5 H ₂ O	0.4 mol/L
H ₂ SO ₄	0.5 mol/L
Bath temperature	25°C
Current density	1.0 A/dm ²
Anode	Ti/Pt
Pre-adsorption solution of additive	
Polyethylene glycol 4000 (PEG)	0.1 g/L
Cl ⁻ [HCl]	50 mg/L
Bis (3-sulfopropyl) disulfide (SPS)	1 mg/L
Janus green B (JGB)	2 mg/L
CuSO ₄ ・5 H ₂ O	0.4 mol/L

この参照電極を基準とした値である。カソード分極曲線の測定に際し、試料溶液にあらかじめ 15 min 窒素通気し、溶存酸素を除去した。銅電析に及ぼす添加剤の作用機構については、下記の 3 種類の方法によりカソード分極曲線を測定し、その作用機構を検討した。

- 1) 添加剤を個別または併用添加した酸性硫酸銅浴における銅電極のカソード分極曲線を測定し、銅電析に及ぼす浴中の添加剤の作用機構を確認
- 2) 添加剤を個別または併用添加した硫酸銅水溶液に、作用極を浸漬し、充分水洗後、表 1 に示した基本浴におけるカソード分極曲線を測定し、添加剤の予備吸着の効果を確認
- 3) 添加剤を予備吸着した作用極を充分水洗後、表 1 に示した基本浴において 1 μm の銅電析後、基本浴におけるカソード分極曲線を測定し、銅電析後の添加剤の作用効果の継続を確認

このような方法により、銅電析に及ぼす浴中の添加剤の影響、および予備吸着した添加剤の作用機構を調べた。また、添加剤の吸着の優劣および吸着時間の影響についても、カソード分極曲線から検討した。

2. 2 電析銅皮膜中の添加剤成分の深さ方向分析およびホール内の銅の充填状態の観察

ホールおよびトレンチを形成していないシリコンウエハ(バリア層：TaN 25 nm、銅シード層：100 nm)を 20×20 mm に切断したものを、表 1 に示した添加剤を含む硫酸銅水溶液に 5 min 浸漬し、充分水洗後、添加剤を含まない基本浴において不溶性アノード(白金めっきしたチタン板)を使用して 1 μm の銅電析を行った。電解槽には 500 mL ビーカを使用し、かく拌は特に行わなかった。電析銅皮膜の深さ方向における添加剤成分の二次イオン質量分析(SIMS)を行った。測定装置には、CAMECA 社製 ims-4 f を使用し、一次イオン種として Cs⁺、一次イオンエネルギー14.5 KeV、一次イオン電流 60 nA、ラスター領域 180×180 μm、分析領域直径 30 μm の条件下において、C, N, O, ³²S, ³⁴S, Cl および Cu について測定した。

種々の直径のホールを有するシリコンウエハ(バリア層：TaN 25 nm、銅シード層：100 nm)を 20×20 mm に切断したものに、上述の方法により添加剤を吸着し、充分水洗後、添加剤を含まない基本浴において不溶性アノードを使用して 1 μm の銅電析を行った。集束イオンビーム(FIB)装置を使用し、Ga イオンにより特定ホール部位をミリングすることによりホール断面を作製し、走査型イオンビーム顕微鏡(SIM)により、銅の充填状態を観察した。

2. 3 添加剤の予備吸着法により作製した電析銅皮膜の物性

ホールおよびトレンチを形成していないシリコンウエハ(バリア層：TaN 25 nm、銅シード層：100 nm)を 20×40 mm に切断したものを、表 1 に示した添加剤をすべて含む硫酸銅水溶液に 5 min 浸漬し、充分水洗後、添加剤を含まない基本浴において不溶性アノードを使用して 5 μm の銅電析を行い、この電析銅皮膜の物性を測定した。また、SPS と JGB を硫酸銅水溶液から予備吸着後、次いで Cl⁻ と PEG を

硫酸銅水溶液から予備吸着させた試料についても、同様に銅電析を行い電析銅皮膜の物性を測定した。電析直後の銅皮膜、および 1 h の沸騰水処理後の銅皮膜の結晶構造は、X 線回折法により測定した。測定装置には、理学電機(株)製 RAD-II c を使用し、標準 Si 粉末を内部標準を用いて、得られた複数の回折面(111), (200), (220)および(311)面について積分幅で表した回折線の広がりから、Wilson の積分幅法により結晶子の大きさを求めた。また、電析銅皮膜の比抵抗は、三菱化学(株)製低抵抗率計 Loresta MCP-T 600 を用い、四探針法により測定した。

3. 結果と考察

3. 1 カソード分極曲線に及ぼす添加剤の影響

銅電極のカソード分極曲線に及ぼすめっき浴中に存在する添加剤の影響を調べた¹⁾。Cl⁻ 共存下における PEG は、広い電位領域において銅の析出を抑制する。この銅析出の抑制効果は、以下の機構に基づくことが明らかにされている。PEG は、銅電析反応の反応中間体である Cu⁺ イオンを捕捉しポリカチオンを形成する。これが銅電極表面に特異吸着した Cl⁻ との静電的相互作用により、特にウエハ表面に強固に吸着し、ウエハ表面の銅析出を抑制する^{2)~4)}。一方、SPS と JGB は、特に貴な電位領域において銅析出を促進する。これらの銅析出に対する作用機構の異なる添加剤を組み合わせることにより、ウエハ表面における銅析出の抑制、ホールやトレンチ内部における銅析出の促進により、銅の微細な埋め込み配線が可能になる。ウエハ表面において銅析出が優先する anti-conformal な析出では、ホールやトレンチ内部にボイドが生じる。また、ウエハ表面とホールやトレンチ内の銅の析出速度が等しい conformal な析出では、ホールやトレンチ内部にシームが生じる。

添加剤を個別または併用添加した硫酸銅水溶液に、作用極を 5 min 浸漬し、充分水洗後、表 1 に示した基本浴におけ

るカソード分極曲線を測定し、添加剤の予備吸着の効果を調べた。また、添加剤を予備吸着した作用極を充分水洗後、表 1 に示した基本浴から 1 μm の銅電析を行ったのち、基本浴におけるカソード分極曲線を測定し、銅電析後の添加剤の作用効果の継続の有無を調べた。作用極に予備吸着した PEG (Cl⁻ 共存下) は、浴中に添加した場合に比較して、抑制の度合いは小さいが銅析出を抑制する。また、作用極に予備吸着した SPS と JGB は、貴な電位領域において銅析出を促進する。作用極にこれらの添加剤を予備吸着後、基本浴から 1 μm の銅電析を行った作用極においても、予備吸着した PEG (Cl⁻ 共存下) および SPS と JGB は、銅電析に及ぼすそれぞれの効果を持続する¹⁾。

作用極を 2 種類の添加剤の予備吸着溶液に逐次 5 min ずつ浸漬し、充分水洗後、基本浴におけるカソード分極曲線を測定し、添加剤の吸着の優劣を調べた結果を図 1 に示す。2 種類の添加剤の予備吸着溶液に、作用極を逐次浸漬した場合、初めに吸着した添加剤よりも、2 番目に吸着した添加剤の効果が顕著に現れる。しかし、曲線(4)に示したように初めに銅析出を抑制する PEG (Cl⁻ 共存下) を吸着し、次いで銅析出を促進する SPS と JGB を吸着させた場合においても、銅析出の抑制効果が認められた。これは、Cl⁻ 共存下における PEG の吸着力が極めて強いことを示唆している。

作用極を SPS と JGB を含む予備吸着溶液に 5 min 浸漬し、充分水洗後、PEG と Cl⁻ を含む予備吸着溶液に浸漬時間を 5 s~5 min と変化させ PEG と Cl⁻ を吸着後、再び充分水洗後、カソード分極曲線を測定した結果を図 2 に示す。吸着時間 5 s においても、銅析出の抑制効果が顕著に認められた。

以上の結果より、銅の埋め込み配線において、ホールやトレンチにボトムアップ型の銅析出を行うためには、各種添加剤を一括して吸着させる方法よりも、初めに銅析出を促進す

Fig. 1 Effect of pre-adsorption order of additive on cathodic polarization of copper electrode.

Fig. 2 Effect of pre-adsorption time of PEG+Cl⁻ in the pre-adsorption bath on cathodic polarization of copper electrode.

Fig. 3 SIMS depth profiles of copper deposited using the pre-adsorption method.

る SPS と JGB をウエハ全面、特にホールやトレンチの内部にまで充分吸着させ、次いで銅析出を抑制する PEG を Cl^- 共存下においてウエハ表面に選択的に吸着させる、二段階吸着法が有利である。また、ウエハ表面に析出した銅を CMP (Chemical Mechanical Polishing) により除去する銅ダマシンプロセスでは、二段階吸着法によりウエハ表面に PEG を選択的に吸着させることにより、配線内部における PEG の吸着に由来するマイクロボイドの形成を避けることにも繋がる。

銅配線中における微量の Cl^- の存在は、現時点では議論の対象とはなっていないが、その存在は好ましいものではないことが予想される。 Cl^- が存在しない場合においても、 Cl^- 共存下における PEG と同様の局所的な銅析出の抑制挙動を示す物質の検討が必要であり、カチオン系界面活性剤もその候補の一つである¹¹⁾。

3. 2 電析銅皮膜中の添加剤成分の深さ方向分析およびホール内の銅の充填状態

銅シードを有するシリコンウエハを、表 1 に示した添加剤をすべて含む硫酸銅水溶液に 5 min 浸漬し、充分水洗後、添加剤を含まない基本浴において不溶性アノードを使用して $1\text{ }\mu\text{m}$ の銅電析を行った。この電析銅皮膜の深さ方向における添加剤成分の SIMS 分析を行った結果を図 3 に示す。図の横軸は表面 (0) から深さ方向の距離を示し、 $1.2\text{ }\mu\text{m}$ 付近から存在する各元素のピークは、銅電析後においても銅シード層上に添加剤成分が残存していることを示している。電析銅皮膜中には、添加剤成分の存在は少なく、皮膜表面において多量の添加剤成分が存在している。吸着成分を同定するには至っていないが、添加剤に固有の特定元素種の存在状態と図 1 および図 2 に示した添加剤の吸着挙動とを勘案することにより、銅シード層に一旦吸着した添加剤は、添加剤を含まない基本浴からの銅電析後においても、新たに析出した銅層の表面に存在し、銅電析に対するこれらの作用を継続することが示唆された。

銅シード層を形成したホールを有するシリコンウエハを、

Fig. 4 FIB cross-sectional image of copper in the hole of wafer deposited using the pre-adsorption method.

SPS と JGB を含む予備吸着溶液に 5 min 浸漬後、充分水洗し、次いで PEG と Cl^- を含む予備吸着溶液に 5 s 浸漬した。再び充分水洗後、添加剤を含まない基本浴において不溶性アノードを使用して $1\text{ }\mu\text{m}$ の銅電析を行った。ホール部の FIB 断面の SIM 像を図 4 に示す。直径 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 、アスペクト比 2.5 の微細なホール内部にボイドやシームを形成することなく銅の充填が可能であった。しかし、直径 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 以下のホールについては、本研究の添加剤の予備吸着法のみならず、従来法であるめっき浴中に添加剤が存在する場合においても、微細ホール中に存在する空气に起因すると考えられる巨大ボイドの形成が認められた。このように、ウエハ表面の銅シード層への添加剤の二段階吸着、添加剤を含まない酸性硫酸銅浴における不溶性アノードを用いる銅電析のプロセスにおいても、ULSI 銅微細配線の形成の可能性が示唆された。

本プロセスでは、銅アノードの使用にともなうアノードスライムの発生、および不溶性アノードの使用にともなう添加剤の分解を考慮する必要がなく、高度のクリーンルーム内での操業において、システムおよびメンテナンスの観点からも有利である。

Fig. 5 X-ray diffraction patterns of copper deposited using the conventional and pre-adsorption method.

3. 3 添加剤の予備吸着法により作製した電析銅皮膜の物性

全添加剤 (SPS, JGB, PEG および Cl^-) を含むめっき浴からの電析銅皮膜 (皮膜 a), 全添加剤の予備吸着後, 添加剤を含まない基本浴からの電析銅皮膜 (皮膜 b), および SPS, JGB を吸着後, Cl^- 共存下において PEG を吸着後, 添加剤を含まない基本浴からの電析銅皮膜 (皮膜 c) の X 線回折パターンを図 5 に示す。また, 図 5 より Wilson の積分幅法により求めた結晶子の大きさ, および各銅皮膜の比抵抗を表 2 に示す。いずれの皮膜も (111) 面の配向を示した。電析直後の皮膜 a は, 特に結晶子が小さく, 粒界の数に依存する比抵抗の値も大きい。しかし, 1 h の沸騰水処理において結晶子の増大, および比抵抗の低下が顕著に認められた。一方, 添加剤の予備吸着法により作製した皮膜 b および c は, 電析直後において結晶子の大きさは約 30 nm, 比抵抗約 $1.80 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ の値を示し, 沸騰水処理にともなう結晶子および比抵抗の変化は認められなかった。これらの値は, ULSI 銅微細配線に要求される物性値に充分適合するものであり, 室温経時にともなう物性変化のないことも好ましい現象である。添加剤, 特に有機硫黄化合物を含む浴からの電析銅皮膜では, 室温経時および 100°C 程度の低温度での熱処理において一次再結晶が生じ, 結晶子の増大, 伸びの増大および硬さの低下が生じる^{7), 12), 13)}。このような室温経時および低温度での熱処理にともなう結晶構造の変化は, 銅皮膜中に共析した微量の硫黄が結晶粒界の界面エネルギーに関与し, これが駆動力となり一次再結晶を促進することに起因している。皮膜 b お

Table 2 Crystallite size and specific resistance of copper deposited using the conventional and pre-adsorption method.

	Additive	Crystallite size (nm)		Specific resistance ($\mu\Omega \cdot \text{cm}$)	
		As plated	Heat treated	As plated	Heat treated
Conventional method	SPS, JG, PEG, Cl^-	17	50	2.12	1.89
Pre-adsorption method	SPS, JG, PEG, Cl^-	29	32	1.80	1.80
	SPS, JG $\rightarrow$ PEG, Cl^-	30	29	1.79	1.79

よび皮膜 c において, 低温度での熱処理にともなう結晶構造の変化が認められなかったことは, 図 3 に示した SIMS による深さ方向の分析結果からも明らかのように, 皮膜中の硫黄成分が極めて少量であることに関係しているものと考えられる。

4. 結 論

添加剤の予備吸着, 添加剤を含まない酸性硫酸銅浴からの銅電析のプロセスによる ULSI 銅微細配線の形成について検討し, 以下の結論を得た。

- (1) Cl^- 共存下における PEG は, 銅電極に吸着し銅析出を抑制する。一方, 銅電極に吸着した SPS と JGB は貴な電位領域において銅析出を促進する。銅電極に予備吸着したこれらの添加剤は, 添加剤を含まない基本浴からの銅電析後においても, 銅電析に対するそれぞれの作用効果を持続する。本プロセスでは, 電解液中に添加剤が含まれていないことから不溶性アノードの適用が可能である。
- (2) カソード分極曲線および電析皮膜の SIMS 分析の結果より, 素地である銅シード層表面に予備吸着した添加剤成分が一部残存し, 電析皮膜表面に多量の添加剤成分が存在することが明らかとなった。これらの結果は, 銅シード層に一旦吸着した添加剤が, 添加剤を含まない基本浴からの銅電析後においても, 新たに析出した銅層の表面に存在し, 銅電析に対するこれらの作用を継続することを示唆している。
- (3) ホールやトレンチ内部に優先的に銅析出を行うためには, 作用機構および吸着挙動の異なる各種添加剤を一括して吸着させる方法よりも, 初めに銅析出を促進する SPS と JGB をウエハ全面, 特にホールやトレンチの内部にまで充分吸着させ, 次いで銅析出を抑制する吸着性の強い Cl^- と PEG を主に表層部に選択的に吸着させるため短時間吸着させる方法が有効である。この二段階吸着法の適用は, 配線内部における PEG の吸着に由来するマイクロボイドの形成を避けることにも繋がる。
- (4) 添加剤を予備吸着した銅シード層に, 添加剤を含まない基本浴から電析した銅皮膜は, (111) 面に配向し, 結晶子の大きさ約 30 nm, 比抵抗約 $1.80 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ の値を示した。沸騰水処理にともなう結晶子および比抵抗の変化は認められなかった。

(Received May 2, 2001 ; Accepted October 15, 2001)

文 献

- 1) 縄舟秀美；表面技術, 52, 34 (2001)
- 2) J. Kelly, A. West ; *J. Electrochem. Soc.*, 145, 3472, 3477 (1998)
- 3) 若林信一；METEC 2000 表面技術総合展ガイド, p. 21 (2000)
- 4) 林 克彦, 山川統広, 田中善之助, 近藤和夫；第 14 回エレクトロニクス実装学術講演大会講演論文集, p. 127 (2000)
- 5) 大場隆之；Electronics Journal 22 th Technical Symposium Proceedings, p. 21 (1999)
- 6) P. C. Andricacos ; *J. Electrochem. Soc., Interface*, 8, 32 (1999)
- 7) 縄舟秀美, 北村浩司, 水本省三, 内田 衛, 岡田 隆；表面技術, 51, 1142 (2000)
- 8) J. Schulz-Harder ; Doctoral Thesis, Technische Universitat, Berlin (1971)
- 9) O. Kardos ; *Plating*, 61[4], 316 (1974)
- 10) M. Yokoi, S. Konishi, T. Hayashi ; *DENKI KAGAKU*, 52, 218 (1984)
- 11) 栗野まいこ, 縄舟秀美, 水本省三, 内田 衛, 岡田 隆；表面技術協会第 102 回講演大会要旨集, p. 14 (2000)
- 12) D. S. Stoychev, I. V. Tomov, I. B. Vitanova ; *J. Applied Electorochem.*, 15, 879 (1985)
- 13) S. Surnev, I. V. Tomov ; *J. Applied Electorochem.*, 22, 464 (1992)

~~~~~