

## NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법으로 성장한 산화막의 특성평가

김 영 조

충남산업대학교 전자공학과  
(1997년 5월 6일 접수)

### Characterizations of Oxide Film Grown by NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> Oxidation Method

Young-Cho Kim

Department of Electronics Eng., Chungnam Sanup University, Hongsung 350-800, Korea  
(Received May 6, 1997)

**요 약** - O<sub>2</sub> 기체에 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 기체를 첨가하여 실리콘 표면에 산화막을 형성하는 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법에 의한 산화 공정시 반응식영판 외부에 방출하는 기체는 N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> 및 H<sub>2</sub>O이며 극소량의 CO<sub>2</sub>, NO 및 NO<sub>2</sub>가 검출되었다. 두 종류의 산화제(O<sub>2</sub> 및 H<sub>2</sub>O)가 산화에 기여하며 성장률은 NH<sub>3</sub> 및 O<sub>2</sub>의 부분압과 온도에 의해 결정되며, 그 기울기는 건식 및 습식 산화법의 중간에 평행하게 위치함을 확인하였다. Auger Electron Spectroscopy(AES) 측정결과 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막은 정확한 SiO<sub>2</sub>의 화학량론을 가지며 SiO<sub>2</sub>/Si 계면에 발생하는 결함을 억제하며 고정전하의 발생을 최소화함을 알 수 있었다. NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막(470Å)의 항복전압을 57.5 Volt이며, C-V특성곡선을 측정된 결과 플랫밴드 전압은 0.29 Volt이며 곡선의 형태는 이상곡선과 일치하였다.

**Abstract** - In the oxidation process of the NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxidation method, adding NH<sub>3</sub> gas to O<sub>2</sub> gas, the detected outlet gases in the reaction quartz chamber are N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O and in addition, a very small quantity of CO<sub>2</sub>, NO and NO<sub>2</sub> are detected. Two kinds of species (O<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O) contribute to oxidation, so the growth rate is determined by oxidation temperature and by also partial pressure of the NH<sub>3</sub> and O<sub>2</sub> gases. The slope of growth rate is identified to be medial and in parallel between that of the dry and wet oxidation. Auger electron spectroscopy (AES) indicates that NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxide film has a certain stoichiometry of SiO<sub>2</sub>, this oxidation method restrains the generation of defects in the SiO<sub>2</sub>/Si interface, minimizing fixed charges. The breakdown voltage of NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxide film (470Å) is 57.5 volts, and the profile of the C-V curve including flat band voltage (0.29 volts) agree with the ideal curve.

### 1. 서 론

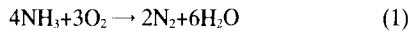
MOS(metal oxide silicon)는 산화막 내부에 존재하는 유동전하(mobile oxide charge, Q<sub>m</sub>), 산화막 포획전하(oxide trapped charge, Q<sub>ot</sub>), 고정전하(fixed oxide charge, Q<sub>f</sub>), 그리고 실리콘 기판과 산화막의 계면에 존재하는 계면 포획전하(interface trapped charge, Q<sub>it</sub>) 등이 존재하며 이들 전하는 전기적 특성을 저하시키는 것으로 알려져 있다[1-2]. 특히 계면 포획전하는 열산화막 성장시 SiO<sub>2</sub>/Si 계면에 필연적으로 발생하는 구조적 결함에 기인하기 때문에 근본적인 제거는 불가능하다. 따라서 산화막의 내부 및 계면의 특성을 개선하기 위한 많은 방

법들(enhanced oxidation method)이 제안되어 왔다[3-8].

대표적인 개선된 산화방법(enhanced oxidation method)은 HCl 첨가산화법(HCl added dry O<sub>2</sub> oxidation) [9-10]으로 산화막 내부 및 계면의 전하를 감소시키는 것으로 알려져 있다. 이 산화법은 3개의 과정으로 이해되고 있다. 즉, 산화막 표면으로부터 실리콘 기판으로 O<sub>2</sub> 분자가 확산하여 기판의 실리콘과 반응하여 SiO<sub>2</sub>를 형성하는 과정, 실리콘기판의 실리콘 원자를 고온에서 식각하는 과정, 식각된 실리콘 원자가 산화막 표면으로 확산하면서 확산해 들어오는 O<sub>2</sub> 분자와 결합하여 산화막 내부 및 표면에서 산화를 진행하는 과정이다. 산화막의 특성 개선은 나트륨 이온의 감소와 더불어 산화막의

항복전압 증가 및 계면 포획전하의 감소를 전제로 할 때, HCl 첨가산화법은 염소(Cl)가 첨가됨으로써 계터링 효과를 발생한다고 알려져 있으며 실제 OSF(oxidation-induced stacking faults)의 감소가 보고되었다[10]. 그러나, 이 산화법의 중요한 단점은 실리콘 기판을 식각하기 위해 최근의 VLSI(very large scale integrated circuits) 제조공정에서 기피하고 있는 고온공정을 전제로 한다는 점이다. 또다른 개선된 산화법은 HF 첨가산화법[11]으로, 이 산화법은 O<sub>2</sub>+HF 혼합기체에 의해 산화막을 형성할 때 HF에 의해 작은 기포(micropore)가 발생되기 때문에 HCl 첨가산화법과 달리 저온공정임에도 불구하고 산화막의 전하를 감소시키는 문제를 효과적으로 해결하지 못하고 있다.

이와 같은 문제점을 해결하기 위해 산화막의 내부 및 계면에 존재하는 전하를 감소시키는 동시에 저온공정이 가능한 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법에 대한 연구가 진행되어 왔다 [12-13]. O<sub>2</sub> 기체에 NH<sub>3</sub> 기체를 첨가하여 열산화막을 형성하는 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법은 다음 반응식에서 보이는 바와 같이 두 종류의 산화제 즉, O<sub>2</sub> 및 H<sub>2</sub>O를 사용하기 때문에 건식 및 습식산화의 상호보완적 관계로 규명된다 [13-15].



이 반응식에서 보는 바와 같이 NH<sub>3</sub> 기체의 첨가에 의해 발생하는 H<sub>2</sub>O도 산화제로 작용함을 알 수 있다. Fig. 1은 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화메카니즘을 설명하기 위한 개략도이다. O<sub>2</sub> 및 NH<sub>3</sub>의 혼합기체는 미리 설정한 온도로 가열된 웨이퍼 표면에 도달하여 두 종류의 산화제인 O<sub>2</sub> 및 H<sub>2</sub>O를 발생하여 시료에 공급된다. 이 두 종류의 산화제는 SiO<sub>2</sub> 박막을 가로질러 확산하여 건식 및 습식산화[16]의 메카니즘으로 SiO<sub>2</sub> 내부 및 SiO<sub>2</sub>/Si 계면에서 산화가 진행된다. 즉, 산화제 O<sub>2</sub>에 의해 Si+O<sub>2</sub> → SiO<sub>2</sub>로 설명되는

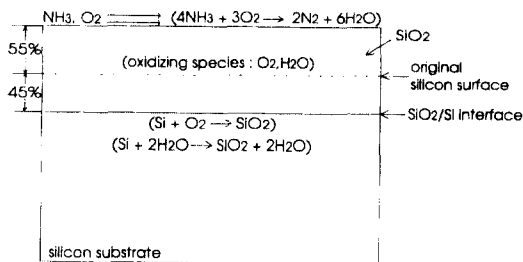


Fig. 1. Schematic diagram showing the mechanism of NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxidation.

건식산화와 산화제 H<sub>2</sub>O에 의해 Si+2H<sub>2</sub>O → SiO<sub>2</sub>+2H<sub>2</sub>로 설명되는 습식산화가 동시에 이루어진다. 따라서 산화 속도도 이 두 화학식의 상호보완적 기여에 의해 결정되며 이는 두 산화제의 몰비에 의해 좌우된다. 즉, 산화속도는 산화온도 뿐만 아니라 O<sub>2</sub>에 첨가되는 NH<sub>3</sub>의 부분압 혹은 NH<sub>3</sub>의 유량에 의해 결정된다[13-15].

본 연구에서는 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법으로 산화막을 성장시키는 과정에서 반응관의 외부에서 검출한 기체의 성분을 조사하였으며 산화막의 성장률을 측정하여 산화제 H<sub>2</sub>O 및 O<sub>2</sub>의 상호보완적 작용을 확인하고, SIMS(secondary ion mass spectrometry), AES, C-V 특성곡선 및 항복전압 측정 등으로 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막의 특성을 평가하였다.

## 2. 실험방법

NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법은 2종류의 산화제를 사용하기 위해 NH<sub>3</sub> 기체의 유입을 필요로 하기 때문에 기존의 건식산화 장치에 추가의 장치가 필요하다. 본 연구에서는 산화속도를 온도 및 NH<sub>3</sub>의 유량으로 정밀하게 제어하기 위해 급속열처리(rapid thermal processing, RTP) 시스템을 사용하였으며 Fig. 2에 시스템의 개략도를 보였다. RTP 시스템은 냉각수를 갖춘 몇 개의 적외선램프를 열원으

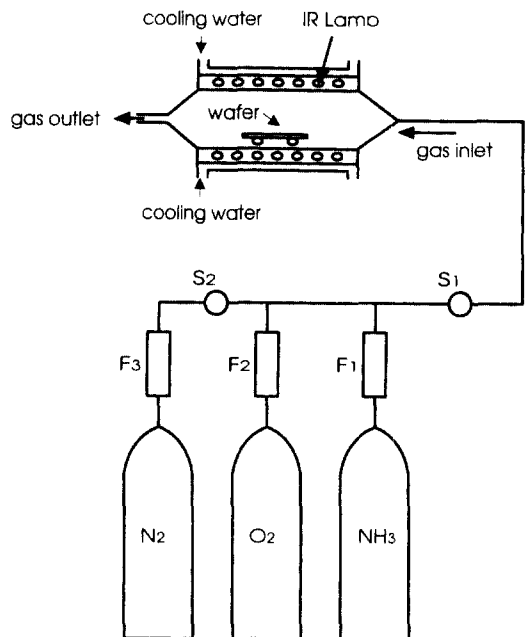


Fig. 2. Experimental apparatus of NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxidation

로 사용하였으며 반응기체인 O<sub>2</sub> 및 NH<sub>3</sub>를 제거하기 위해 N<sub>2</sub> 실린더를 마지막 단계에 설치하였다. 모든 시료는 N<sub>2</sub> 분위기에서 가열되며(F<sub>1</sub> 및 F<sub>2</sub>는 닫히고 F<sub>3</sub>, S<sub>1</sub> 및 S<sub>2</sub>는 열림) RTP 시스템은 1200°C이하에서 ±10°C의 오차로 제어되며 산화온도는 열전쌍(thermocouple)을 이용하여 측정하였다. N<sub>2</sub> 분위기에서 산화온도에 도달한 후 스위치 및 유량계의 조작으로 N<sub>2</sub> 기체가 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 혼합기체로 치환되어(F<sub>3</sub> 및 S<sub>2</sub>는 닫히고 S<sub>1</sub>, F<sub>1</sub> 및 F<sub>2</sub>는 열림) 산화가 시작된다. 산화종료후 NH<sub>3</sub>/N<sub>2</sub> 혼합가스를 반응관에 같은 방법으로 유입시켜 450°C에서 in situ 어닐링하였으며 어닐링이 끝난 후 시료는 N<sub>2</sub> 분위기로 치환한 후 시료를 냉각하였다. 반응식 1에서 예측할 수 있는 바와 같이 산화제로 작용하지 않는 여분의 H<sub>2</sub>O 분자는 차가운 반응관 및 출구 배관에 의해 물방울이 생기며 그 양은 NH<sub>3</sub>의 유량에 비례하며, 실제 실험에서는 출구 배관부에 물방울을 저장하는 별도의 용기를 설치하였다.

Fig. 3은 반응관을 통과한 기체를 검출하여 gas chromatography로 성분을 분석한 결과이다. 산화온도는 900°C 및 1100°C, O<sub>2</sub>의 유량은 1850 cc/min으로 유지한 상태에서 NH<sub>3</sub> 기체의 유량에 따라 검출된 기체의 성분을 체적비율로 나타내었다. 그림에서 보는 바와 같이 O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O 및 불순물인 CO<sub>2</sub> 분자의 체적비는 900°C 및 1000°C에서 일정하지만 화학적으로 불완전한 상태인 NO 및 NO<sub>2</sub> 분자(NO<sub>x</sub>)는 유동적임을 알 수 있다. 비록 ppm 단위의 낮은 양임에도 불구하고 이러한 불완전한 결합은 산화막에 확산하여 산화막의 불완전한 결합(dangling bond)을 만들 수 있으며 전기적 특성을 저하시키게 된다. 따라서 본 연구에서는 Fig. 3에서 보인 안

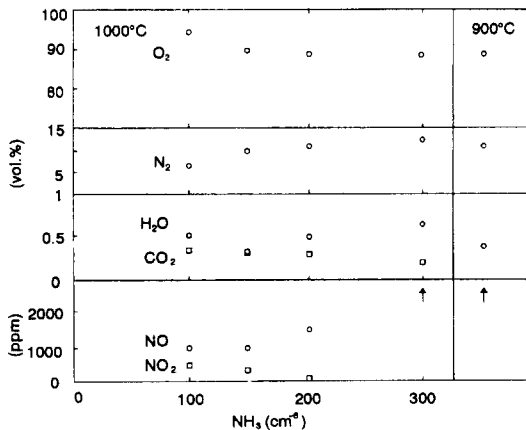


Fig. 3. Components of outlet gas in NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxidation.

정된 상태의 유량을 고려하여 NH<sub>3</sub>의 유량을 1500 cc/min으로, O<sub>2</sub>의 유량을 1850 cc/min으로 하여 혼합기체의 체적비가 NH<sub>3</sub>(7.5%)/O<sub>2</sub>(92.5%)이 되도록 하는 것을 기준으로 하여 소자를 제작하였다.

### 3. 결과 및 고찰

NH<sub>3</sub>(7.5%)/O<sub>2</sub> 분위기에서 각 온도에 대한 산화시간에 따라 성장한 산화막의 성장률을 Fig. 4에 보였다. NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법의 산화막 성장률은 건식 및 습식산화의 중간에 위치하며 또한 그 기울기는 평행함을 알 수 있으며, 이는 건식 및 습식 산화의 상호보완적 메커니즘에 의해 산화가 진행되며 산화제인 O<sub>2</sub> 및 H<sub>2</sub>O가 동시에 SiO<sub>2</sub>/Si 계면에 작용하고 있음을 설명해주고 있다. 또한 건식 및

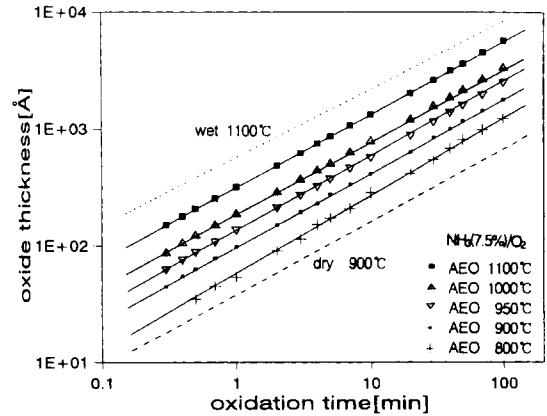


Fig. 4. Oxidation thickness as a function of oxidation time and temperatures with NH<sub>3</sub>(7.5%)/O<sub>2</sub> ambient.

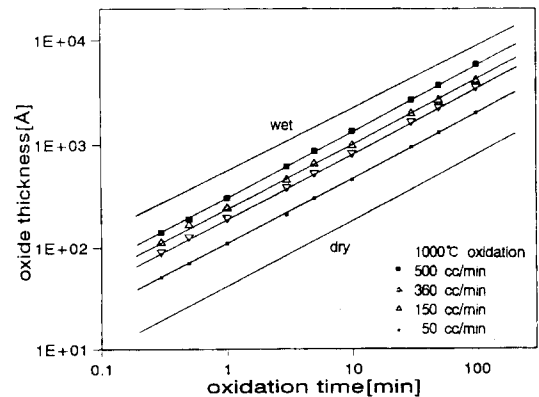


Fig. 5. Oxidation thickness as a function of oxidation time and NH<sub>3</sub> flow rate with oxidation temperature, 1000 °C.

습식산화의 성장률을 결정하는 확산계수(diffusivity)값 [17]을 고려하면 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화의 확산계수는 건식 및 습식산화의 중간값을 취함을 알 수 있다. Fig. 5는 산화온도 1100°C에서 NH<sub>3</sub> 기체의 유량에 대한 산화시간에 따라 성장한 산화막의 성장률을 보인 그림이며, Fig. 4에서 보인 산화시간 및 온도뿐 아니라 NH<sub>3</sub>의 몰비 즉, NH<sub>3</sub>의 유량도 산화속도를 제어할 수 있음을 보여주고 있다. NH<sub>3</sub>의 유량이 30%이상인 경우를 알아보기 위한 별도의 실험에 의하면 성장률 데이터가 불규칙적이었으며, He-Ne laser를 사용하는 ellipsometer 측정결과도 불규칙한 index frequency를 보였다. 이는 Fig. 3에서 보인 불완전한 분자들의 확산(NO<sub>x</sub>분자)에 의한 것으로 판단된다.

NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막의 재료특성을 평가하기 위해 SIMS, AES, RBS(Rutherford backscattering spectrometry), XPS(X-ray photon spectroscopy) 등을 사용하였으며 RBS 및 XPS의 측정결과는 SIMS 및 AES 측정결과와 동일한 결과를 보였다. Fig. 6은 SIMS 측정결과를 보인 것으로 2차이온 검출을 위해 cesium ion gun을 사용하였으며 sputter time은 780초이다. 수평축은 sputter time을 산화막의 두께(depth)로 변환한 것이며 수직축은 SIMS 장치의 2차이온 배율기에 검출된 2차이온의 갯수이다. SiO<sub>2</sub>/Si의 계면에서 알 수 있는 바와 같이 두께는 약 220Å이며 이는 ellipsometer의 측정결과와 일치하였다. 그림에서 보는 바와같이 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막을 형성하는 대부분의 원자는 산소와 실리콘이며, 실리콘 원자의 총수는 산소 원자보다 10배 정도 많으며 질소원자는 실리콘이나 산소에 비해 10<sup>-5</sup> 정도 적은 극소량이 존재함을 알 수 있다. 그러나 극소량의 N원자라 할지라도 산화막 내부 및

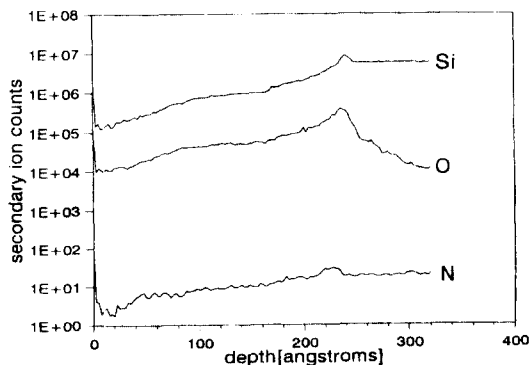


Fig. 6. SIMS depth profile of as-grown NH<sub>3</sub>(7.5%)/O<sub>2</sub> oxide film.

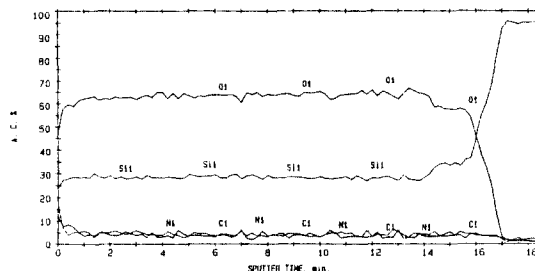


Fig. 7. AES normalized atomic concentration.

SiO<sub>2</sub>/Si 계면에 존재할 경우 MOS 캐패시터의 플랫폼 이동이나 항복전압을 저하시킬 수 있기 때문에 [18-19] in situ로 수행되는 NH<sub>3</sub>/N<sub>2</sub> 저온 어닐링에 의해 제거하였다.

Si 및 O원자의 구성비를 정확히 측정하기 위해 AES 측정을 하였으며 peak-to-peak 이득의 원자농도를 표준화하여(normalization) Fig. 7에 보였다. sputter time은 18.40 min이며 항복전압은 3 kV, 항복전류는 0.1077 μA, sputter 속도는 1.4 nm/min, source는 Ar이며, 산화막의 두께는 224Å으로 ellipsometer의 특정치 220Å과 유사하였다. 각 원소의 구성비를 나타내는 AES 측정결과에서 알 수 있는 바와 같이 산화막 내부에서 Si:O의 구성비가 1:2임을 고려할 때 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법으로 성장한 산화막은 정확한 SiO<sub>2</sub>의 화학량론을 가지며, 불완전한 결합인 NO, 분자에 의해 발생하는 것으로 판단되는 N의 peak는 오염물질(contamination)인 탄소(C)의 양과 비슷한 양이며 이는 실리콘 기판의 것보다도 비교할만한 무시할 수 있는 수준이다. SiO<sub>2</sub>/Si 계면상태의 구성비는 정확히 1:1이며 계면의 변화가 급격한 것으로 보아 계면이 치밀하여 계면전하를 감소시킬 것으로 예상되며 그 결과는 Fig. 9의 C-V 특성곡선에서 확인하였다.

NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막의 전기적 특성을 측정하기 위해 RTP 시스템 및 진공증착기를 이용하여 MOS 캐패시터를 제작하였다. 실리콘 기판은 n-type(저항률~1 Ωcm or 2 Ωcm)이며 Czochralski (100) 웨이퍼를 사용하였다. 웨이퍼는 RCA 세척공정을 거쳤으며 NH<sub>3</sub>(7.5%)/O<sub>2</sub> 분위기 및 1100°C에서 산화공정이 이루어졌으며 in situ 어닐링은 NH<sub>3</sub>(7.5%)/N<sub>2</sub>, 450°C 분위기에서 20분간 행해졌다. 산화막에 증착한 금속층은 금속 마스크로 식각하였다. 이러한 방법으로 제작한 MOS 캐패시터의 항복전압을 측정하기 위해 Fig. 8에 I-V특성을 나타내었다. 산화막의 두께는 470Å이며 금속막의 면적은 0.5×0.5 mm

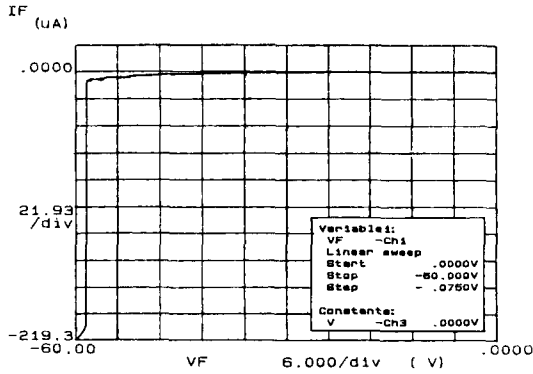


Fig. 8. Breakdown voltage characteristics of MOS capacitor using NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxide film.

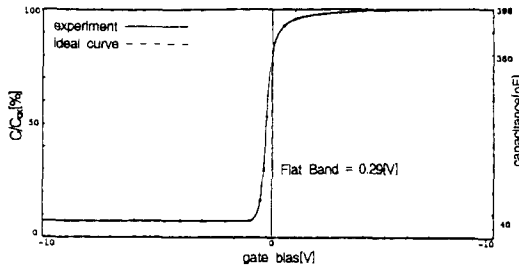


Fig. 9. C-V curve of MOS capacitor using NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> oxide film.

<sup>2</sup>이며 계산에 의한 산화막의 캐패시턴스는 180.7 pF이었다. 실리콘 기판이 n-type이기 때문에 금속 게이트는 음의 전압을 인가하였으며 이때 항복전압은 57.5 V이었다. Fig. 9는 위의 방법으로 제작한 MOS 캐패시터의 C-V 특성곡선을 보인 것으로 직경 0.9 mm의 원형 dot로 금속 패턴을 만들었으며 산화막의 두께는 526Å이며 캐패시턴스의 계산치는 417.4 pF이며 그림에서 보는 바와 같이 실험에서의 최대 캐패시턴스(C<sub>max</sub>=C<sub>ox</sub>)는 389 pF이었다. 이러한 오차는 금속패턴의 측정상 오차인 것으로 판단된다. 측정결과 플랫폼 전압을 포함한 C-V 특성곡선의 측정치는 이론곡선과 일치하며, 이는 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화 및 NH<sub>3</sub>/N<sub>2</sub> 어닐링이 진술한 산화막 내부 및 계면의 전하를 최소화함을 알 수 있다.

#### 4. 결 론

O<sub>2</sub> 기체에 NH<sub>3</sub> 기체를 첨가하여 산화막을 형성하는 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화법은 화학반응식 4NH<sub>3</sub>+3O<sub>2</sub> → 2N<sub>2</sub>+6H<sub>2</sub>O에

의한 것으로 산화속도는 기존의 온도 및 시간 뿐만 아니라 NH<sub>3</sub>의 몰비(또는 유량)에 의해서도 제어된다. 반응관을 거친 기체를 추출하여 gas chromatography로 성분을 분석한 결과 O<sub>2</sub> 및 N<sub>2</sub> 분자 외에도 1%미만의 H<sub>2</sub>O와 ppm단위의 NO<sub>x</sub> 분자가 검출되었다. NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막에 의한 산화막 성장률을 온도 및 NH<sub>3</sub>의 유량에 따라 측정한 결과 성장률은 건식 및 습식산화의 중간에 위치하며 기울기는 평행함을 보여 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화 메커니즘은 산화제 O<sub>2</sub> 및 H<sub>2</sub>O의 상호보완적 작용임을 알 수 있었다. SIMS 및 AES 측정결과 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화막은 정확한 SiO<sub>2</sub>의 화학량론을 가지며 계면상태가 치밀하기 때문에 산화막 내부 및 계면 전하를 억제하여 전기적 특성을 개선함을 제작한 MOS 캐패시터의 I-V 곡선 및 C-V 특성곡선으로 확인하였다. 즉, 470Å 두께의 산화막에 대한 항복전압을 57.5 V이었으며 C-V 특성곡선이 이상곡선과 일치하여 NH<sub>3</sub>/O<sub>2</sub> 산화 및 NH<sub>3</sub>/N<sub>2</sub> 어닐링은 산화막 내부 및 계면전하를 최소화함을 확인하였다.

#### 감사의 글

본 연구는 1996학년도 충남산업대학교 학술연구조성비 지원에 의해 연구되었습니다.

#### 참고문헌

1. B. E. Deal, E. L. Mackenna, and P. L. Castro, *J. Electrochem. Soc.* **116**, 997 (1969).
2. M. Y. Naito, H. Homma, and N. Momma, *Solid-State Electronics.* **29**, 885 (1986).
3. F. J. Feigl, D. R. Young, D. J. DiMaria, S. Lai and J. Calise, *J. Appl. Phys.* **52**, 5665 (1981).
4. D. B. Slater, and J. J. Paulos, *J. Electrochem. Soc.* **135**, 3098 (1988).
5. H. Fukuda, M. Yasuda, T. Iwabuchi, and S. Ohno. *IEEE J. Electron Device Lett.* **12**, 587 (1991).
6. W. Ting, H. Hwang, J. Lee, and D. L. Kwong, *J. Appl. Phys. Lett.* **57**, 2808 (1990).
7. D. R. Wolters, and A. T. A. Zegers-van Duijnhoven, *J. Electrochem. Soc.* **139**, 241 (1992).
8. M. Tsuji, N. Itoh, and Y. Nishimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 1123 (1993).
9. H. Shiraki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **14**, 747 (1975).
10. H. Shiraki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **15**, 1 (1976).
11. L. Wei, X. Yuan-sen, and Z. Yang-shu, 173rd Meet. *Electrochem. Soc. on May* **103** (1998).

12. Y. C. Tseng, and K. Shono, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L329 (1989).
13. Y. C. Tseng, and K. Shono, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L222 (1991).
14. Y. C. Kim, and C. J. Kim, *JTC-CSCC* **92**, 214 (1992).
15. Y. C. Kim, and C. J. Kim, *ICEC* **92**, 1199 (1992).
16. M. A. Hopper, R. A. Clarke, and L. Young, *J. Electrochem. Soc.* **122**, 1216 (1975).
17. S. M. Hu, *J. Appl. Phys.* **45**, 1567 (1974).
18. V. Lopes and C. M. Hasenaok, *J. Electrochem. Soc.* **139**, 2909 (1992).
19. E. A. Sprangle, J. M. Andrews, and M. C. Peckera, *J. Electrochem. Soc.* **139**, 2617 (1992).