

УДК 548.732

© 1990

О ВЫХОДЕ ОЖЕ-ЭЛЕКТРОНОВ ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ РЕНТГЕНОВСКИХ ЛУЧЕЙ С КРИСТАЛЛОМ

Э. М. Пашаев, В. Н. Перегудов, Р. М. Имамов

Приведены результаты измерений относительного выхода LVV - и KLL -оже-электронов кремния, подтверждающие важную роль фотоэлектронов в генерации мягких оже-электронов. Получены угловые зависимости выхода K -фото-, LVV -, KLL -оже-электронов из кристалла кремния с аморфной пленкой на поверхности, которые независимо доказывают, что использование мягких оже-электронов в методе СРВ практически дает информацию о структуре кристалла на глубине выхода фотоэлектронов.

Стоячая рентгеновская волна (СРВ), устанавливающаяся в высоко-совершенном монокристалле при дифракции падающего рентгеновского пучка, обладает уникальной чувствительностью к нарушениям периодической структуры кристалла. В первую очередь это связано с резким изменением выхода вторичных излучений при отклонениях от точного условия дифракции.

Информативность вторичных излучений каждого типа имеет свою зависимость от глубины выхода. При определении структурных изменений вблизи поверхности кристалла главную роль играют излучения с малой глубиной выхода, такие как фото- и особенно оже-электроны [1, 2]. Например, K -фотоэлектроны кремния несут информацию с глубин ~ 300 – 1000 Å [3], KLL -оже-электроны кремния — с глубин ~ 50 Å [4]. Выход флуоресцентного излучения дает информацию с глубин более микрона, и поэтому он менее информативен для исследования тончайших приповерхностных слоев.

Что же касается мягких LVV -оже-электронов кремния с малой глубиной выхода (~ 7 Å) [4, 5], то их нельзя считать надежным носителем информации с таких глубин в методе стоячих рентгеновских волн. Причиной является то обстоятельство, что основным механизмом их генерации является возбуждение L -оболочки атомов K -фотоэлектронами [6].

В настоящей работе наряду с расчетами приведены экспериментальные результаты, подтверждающие подавляющий вклад K -фотоэлектронов в генерацию мягких оже-электронов в кремнии. В этом случае глубина, с которой несут информацию мягкие LVV -оже-электроны, будет определяться глубиной, информацию с которой дают K -фотоэлектроны. Прямыми доказательствами данного утверждения могут являться, с одной стороны, экспериментальное определение относительного выхода LVV - и KLL -оже-электронов, с другой — сравнение угловых зависимостей выхода K -фото-, KLL - и LVV -оже-электронов для кристаллов кремния с аморфными пленками различной толщины.

1. Генерация мягких оже-электронов в кремнии

Взаимодействие рентгеновского излучения с атомами кристалла вызывает генерацию фото- и оже-электронов, которые характеризуются существенно различными энергиями и соответственно длинами пробега. Так,

в кремнии при облучении SiK_α -излучением рождаются K -фотоэлектроны с энергией $E_K=6200$ эВ, KLL -оже-электроны с энергией $E_{KLL}=1620$ эВ и LVV -оже-электроны с энергией $E_{LVV}\sim 100$ эВ [7]. Кроме того, с существенно меньшей вероятностью рождаются L -фотоэлектроны с $E_L=7900$ эВ, которых на порядок меньше K -фотоэлектронов, и поэтому в дальнейшем их взаимодействие с кристаллом в расчет брать не будет.

На рис. 1 представлен экспериментальный спектр электронов, полученный с использованием энергоанализатора типа цилиндрического зеркала (ЦЗА) [8] с разрешающей способностью $\sim 3\%$. Этот спектр содержит три ярко выраженные группы электронов: K , KLL и LVV . Ясно, что при однократной ионизации рождается одинаковое количество K -, KLL - и LVV -электронов. Количественное отношение этих групп электронов в экспериментальном спектре определяется дальнейшим взаимодействием электронов с атомами кристалла.

В интересующем нас диапазоне энергий преобладающим типом неупругого взаимодействия электронов с кристаллом является ионизация атомов, имеющая пороговый характер. Поэтому мягкие оже-электроны испытывают преимущественно упругое взаимодействие, а KLL - и K -электроны наряду с упругими столкновениями в существенной степени ионизируют атомы кристалла, рождая при этом мягкие LVV -оже-электроны.

Для определения вклада K -фотоэлектронов в генерацию LVV -оже-электронов необходимо знать функцию распределения фотоэлектронов $N_K(r, v)$, которая может быть получена из решения кинетического уравнения

$$v\nabla N_K = n_0 \int [v' N_K(r, v') d\sigma(v' \rightarrow v) - v N_K(r, v) d\sigma(v \rightarrow v')] + S. \quad (1)$$

Здесь n_0 — плотность атомов в кристалле; S — число фотоэлектронов, образующихся в единице объема за единицу времени под воздействием рентгеновских лучей. Первый член в квадратных скобках определяет увеличение, а второй — уменьшение числа электронов в элементе объема фазового пространства $d^3r d^3v$ за счет упругих и неупругих столкновений с атомами кристалла. Атомное сечение взаимодействия $d\sigma(v_1 \rightarrow v_2)$ определяется скоростями электрона v_1 и v_2 до и после столкновения соответственно. Это сечение содержит упругое и неупругое слагаемые, $d\sigma = d\sigma^{(el)} + d\sigma^{(in)}$. В рассматриваемом нами диапазоне энергий можно считать, что из всех неупругих процессов наиболее вероятным является ионизация. Неупругими потерями на возбуждение плазменных колебаний можно пренебречь. Потери энергии фотоэлектроном на ионизацию K -, L -оболочек и возбуждение валентных электронов в кремнии приведены на рис. 2.

Решение уравнения (1) показывает, что основная часть энергии K -фотоэлектронов в кремнии ($E_K=6.2$ кэВ) расходуется на ионизацию L -оболочки и возбуждение валентных электронов. Потери на ионизацию K -оболочки составляют 3% от общей величины энергий и ими можно пренебречь. Около половины энергии расходуется на ионизацию L -оболочки. Поэтому в данной работе основное внимание было сосредоточено на процессе ионизации L -оболочки, так как этот процесс сопровождается генерацией LVV -оже-электронов. Расчеты, относящиеся к образованию

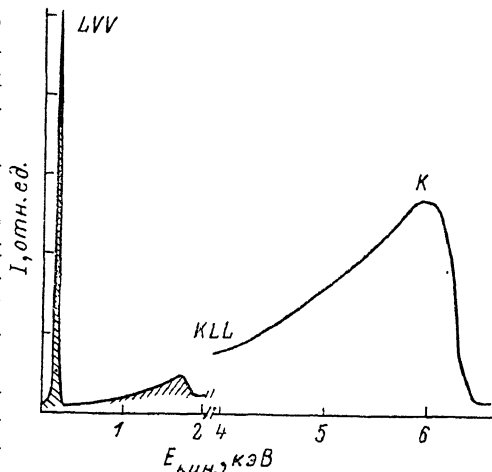


Рис. 1. Спектр электронов Si под действием SiK_α -излучения.

LVV-оже-электронов, показали, что каждый *K*-фотоэлектрон при условии полного торможения генерирует в кристалле кремния около 20 *LVV*-оже-электронов [6]. Однако из кристалла могут выйти только те *LVV*-электроны, которые образовались в приповерхностном слое толщиной $\sim 7 \text{ \AA}$. Поэтому представляют интерес только те *LVV*-оже-электроны, которые генерируются *K*-фотоэлектронами в этом приповерхностном слое. Используя решение уравнения (1) для распределения *K*-фотоэлектронов по глубине и скорости $N_K(z, v)$, можно рассчитать количество *LVV*-оже-электронов, выходящих с поверхности кристалла в расчете на один *K*-фотоэлектрон. Выход *LVV*-оже-электронов $Y_{LVV}^{(K)}$ зависит от энергии *K*-фотоэлектронов, производящих ионизацию *L*-оболочки. Следует отметить, что *L*-оболочка ионизуется и *KLL*-оже-электронами, однако в гораздо меньшей степени. Выход *LVV*-оже-электронов на один *KLL*-оже-электрон

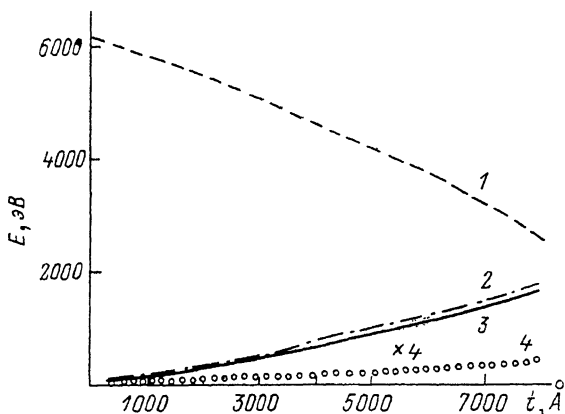


Рис. 2. Энергетические потери *K*-фотоэлектронов на ионизацию *K*-, *L*- и *V*-оболочек кремния.

1 — изменение энергий *K*-фотоэлектронов с толщиной t ,
2, 3, 4 — потери энергии на ионизацию *L*-, *V*- и *K*-оболочек соответственно.

обозначим $Y_{LVV}^{(KLL)}$. Расчеты показывают, что для *K*-фотоэлектронов с $E_K = 6.2 \text{ кэВ}$ величина $Y_{LVV}^{(K)} \approx 7$, а для *KLL*-оже-электронов с $E_{KLL} = 1.6 \text{ кэВ}$ величина $Y_{LVV}^{(KLL)} \approx 3$. Таким образом, полный выход *LVV*-оже-электронов пропорционален сумме

$$Y_{LVV} \sim Y_{LVV}^{(K)} + Y_{LVV}^{(KLL)} + Y_{LVV}^{(X)},$$

где $Y_{LVV}^{(X)}$ — выход *LVV*-оже-электронов под действием только рентгеновского излучения. Для оценки реального относительного выхода *LVV*- и *KLL*-оже-электронов необходимо также знать выход *KLL*-оже-электронов Y_{KLL} , который пропорционален сумме выходов под действием падающего рентгеновского излучения $Y_{KLL}^{(X)}$ и от *K*-фотоэлектронов $Y_{KLL}^{(K)}$. В результате для относительного выхода *LVV*- и *KLL*-оже-электронов получим

$$\frac{Y_{LVV}}{Y_{KLL}} = \frac{\bar{\lambda}_{LVV}}{\bar{\lambda}_{KLL}} \frac{(Y_{LVV}^{(K)} + Y_{LVV}^{(KLL)} + Y_{LVV}^{(X)})}{(Y_{KLL}^{(X)} + Y_{KLL}^{(K)})}. \quad (2)$$

В уравнении (2) следует использовать средние глубины выхода оже-электронов $\bar{\lambda}_{LVV}$ и $\bar{\lambda}_{KLL}$. Это связано с тем обстоятельством, что для определения относительного выхода *LVV*- и *KLL*-оже-электронов были использованы широкие энергетические интервалы спектра электронов (рис. 1).

Для определения $\bar{\lambda}_{LVV}$ и $\bar{\lambda}_{KLL}$ была использована методика измерения выхода оже-электронов в зависимости от угла падения рентгеновского

лучка в скользящей геометрии, описанная в [3] для K -фотоэлектронов. Таким образом, были получены значения $\bar{\lambda}_{LVV} \approx 23$, $\bar{\lambda}_{KLL} \approx 160 \text{ \AA}$, из которых следует, что отношение $\bar{\lambda}_{LVV}/\bar{\lambda}_{KLL} \approx 1/7$.

Выражение (2) для относительного выхода LVV - и KLL -оже-электронов может быть упрощено, если учесть, что ионизация K -оболочки кремния K -фотоэлектронами на порядок слабее ионизации рентгеновскими лучами ($Y_{KLL}^{(K)} \ll Y_{KLL}^{(X)}$), а ионизация L -оболочки кремния K -фотоэлектронами и KLL -оже-электронами на порядок сильнее ионизации рентгеновским излучением ($Y_{LVV}^{(X)} \ll Y_{LVV}^{(K)} + Y_{LVV}^{(KLL)}$). Учитывая это обстоятельство, формулу (2) можно приближенно представить в виде

$$\frac{Y_{LVV}}{Y_{KLL}} \approx \frac{\bar{\lambda}_{LVV}}{\bar{\lambda}_{KLL}} (Y_{LVV}^{(K)} + Y_{LVV}^{(KLL)}). \quad (2')$$

Из этой формулы следует, что при облучении кристалла кремния CuK_α -излучением реальный относительный выход LVV - и KLL -оже-электронов на порядок превышает отношение их глубин выхода, так как $Y_{LVV}^{(K)} + Y_{LVV}^{(KLL)} \approx 10$.

Экспериментальное значение относительного выхода LVV - и KLL -оже-электронов можно получить непосредственно из рис. 1. Для этого необходимо анализировать отношение площадей пиков, соответствующих LVV - и KLL -оже-электронам. Экспериментальное значение отношения площадей составляет $(Y_{LVV}/Y_{KLL})_{\text{экр}} \approx 1.3$. Теоретическая оценка относительного выхода $(Y_{LVV}/Y_{KLL})_{\text{теор}} \approx 1.4$. В отсутствие генерации мягких оже-электронов K -фото- и KLL -оже-электронами относительный выход LVV - и KLL -оже-электронов был бы равен отношению их глубин выхода (т. е. $\sim 1/7$). Сравнение теоретических оценок с экспериментальными результатами показывает, что ионизация L -оболочки кремния K -фото- и KLL -оже-электронами является основным механизмом генерации мягких LVV -оже-электронов.

Таким образом, приведенные выше результаты доказывают, что фотоионизация играет существенную роль только в образовании K -фотоэлектронов и KLL -оже-электронов. Однако в образовании мягких LVV -оже-электронов роль фотоионизации резко снижается и на первый план выходят фотоэлектроны и KLL -оже-электроны. Этот эффект является одной из разновидностей конверсии между группами электронов, образующихся в кристалле под воздействием рентгеновских лучей. Здесь мы имеем дело с конверсией из групп K -фото- и KLL -оже-электронов в группу LVV -оже-электронов. Эта конверсия на порядок увеличивает выход LVV -относительно KLL -оже-электронов.

2. Угловые зависимости выхода фото- и оже-электронов

Угловые зависимости выхода фото- и оже-электронов, как отмечалось выше, резко меняются при отклонении от точного угла Брэгга и обладают высокой чувствительностью к толщине нарушенного слоя на поверхности кристалла. Наличие аморфной пленки на поверхности кристалла приводит к уменьшению интерференционного вклада в кривую выхода вторичных излучений. При этом если вторичное излучение, образующееся под воздействием СРВ, имеет глубину выхода меньше толщины аморфной пленки, то кривая выхода по форме полностью повторяет кривую рентгеновского отражения [9]. Однако в кристалле может возникать вторичное излучение, которое генерируется в основном не СРВ непосредственно, а другими вторичными излучениями, образующимися за счет СРВ. Характерным примером такого излучения являются мягкие LVV -оже-электроны в кремнии, образующиеся в основном фото- и KLL -оже-электронами.

Таким образом, сравнение кривых выхода фото- и *LVV*-оже-электронов для кристаллов кремния с аморфной пленкой на поверхности может также служить убедительным доказательством того, что основным механизмом генерации является образование мягких *LVV*-оже-электронов в процессе торможения фотоэлектронов. На рис. 3 приведены кривые

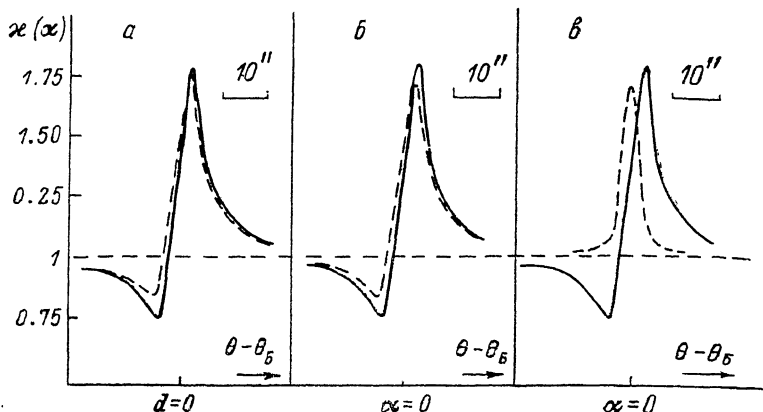


Рис. 3. Угловые зависимости выхода *K*-фото- (*a*), *LVV*- (*б*) и *KLL*-оже-электронов (*в*) из Si с аморфной пленкой толщиной $\sim 20 \text{ \AA}$ (штриховые линии).

Сплошные линии — идеальный кристалл Si.

выхода *K*-фотоэлектронов, *LVV*-оже-электронов и *KLL*-оже-электронов из кристалла кремния с пленкой SiO_2 толщиной $\sim 200 \text{ \AA}$. Измерения проводились на автоматическом спектрометре [10] по двухкристальной бездисперсионной схеме с использованием симметричного ($\beta=1$) монохроматора Si (111). Разделение электронов по энергиям проводилось с помощью энергоанализатора типа цилиндрического зеркала (ЦЗА) с разрешающей способностью не хуже 3% [8]. Методика изучения собственно оже-кривых достаточно подробно описана в [11].

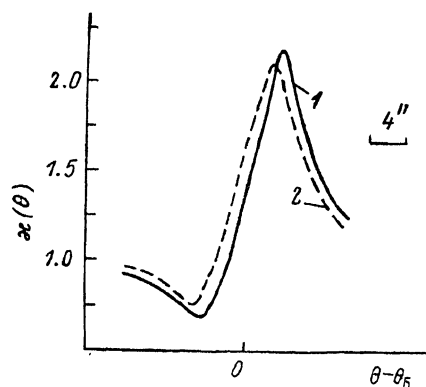


Рис. 4. Угловые зависимости выхода *K*- и *LVV*-электронов (1) и *KLL*-оже-электронов (2) из кристалла Si с естественным окисным слоем на поверхности.

Как и следовало ожидать, кривая *KLL*-электронов имеет форму кривой рентгеновского отражения, поскольку глубина выхода *KLL*-оже-электронов меньше толщины аморфного слоя на поверхности. В то же время кривые *3a* и *3б* практически совпадают, несмотря на существенное различие в глубинах выхода *K*-фото- и *LVV*-оже-электронов. В данном случае различие глубины выхода не играет никакой роли. Форма обеих кривых (*3a* и *3б*) определяется глубиной выхода фотоэлектронов.

На рис. 4 представлены кривые выхода *K*-фото- и *LVV*- и *KLL*-оже-электронов из Si с естественным окисным слоем на поверхности. Здесь измерения проводились с использованием асимметричного монохроматора ($\beta=0.1$). Кривые *K*-фото- и *LVV*-оже-электронов практически полностью совпадают как между собой, так и с расчетными кривыми для идеальных кристаллов. Как видно из этого рисунка, кривая *KLL*-оже-электронов чувствительна к наличию даже естественного окисного слоя, толщина которого оценивается $\sim 20 \div 30 \text{ \AA}$.

Таким образом, можно считать, что роль фото- и *KLL*-оже-электронов в генерации мягких *LVV*-оже-электронов в кремнии надежно установлена.

Около 90 % от выхода мягких оже-электронов в кремнии генерируется вторичными электронами, которые образуются под воздействием рентгеновского излучения. Фотоэлектроны, обладающие энергией ~ 10 кэВ, в результате многократных неупругих столкновений с атомами кристалла вызывают рождение большого количества *LVV*-оже-электронов в глубине. *KLL*-оже-электроны с энергией ~ 1.6 кэВ играют несколько менее заметную роль в генерации *LVV*-оже-электронов (см. табл. 1 в [6]). На один акт взаимодействия рентгеновского кванта с кристаллом образуется по одному *K*-фото-, *KLL*- и *LVV*-оже-электрону. Дальнейшее взаимодействие *K*-фото- и *KLL*-оже-электронов с атомами кристалла может приводить к размножению *LVV*-оже-электронов до нескольких десятков в пересчете на один рентгеновский квант, если *K*-фото- и *KLL*-оже-электроны всю энергию теряют в кристалле. Однако экспериментально можно проверить лишь те результаты расчетов, которые дают выход *LVV*-оже-электронов с поверхности. Этот выход составляет ~ 10 *LVV*-оже-электронов на один рентгеновский квант и хорошо объясняет соотношение интенсивностей пиков *LVV*- и *KLL*-оже-электронов в спектре (рис. 1). Что же касается кривых выхода фото-, *KLL*- и *LVV*-оже-электронов (рис. 3, 4), то они наглядно подтверждают основную роль фотоэлектронов в генерации мягких *LVV*-оже-электронов. В связи с этим следует критически отнестись к результатам работы [5] по определению смещения атомов Si на поверхности кристалла методом СРВ с использованием *LVV*-оже-электронов.

Авторы выражают благодарность А. М. Афанасьеву за обсуждение полученных результатов.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Афанасьев А. М., Александров П. А., Имамов Р. М. Рентгеновская структурная диагностика в исследовании приповерхностных слоев монокристаллов. М.: Наука, 1986. 96 с.
- [2] Афанасьев А. М., Имамов Р. М. Проблемы кристаллографии. М.: Наука, 1987. С. 98—116; Афанасьев А. М., Коч В. Г. // ЖЭТФ. 1978. Т. 74. № 1. С. 300—313.
- [3] Абдуллаев М. И., Маслов А. В., Пашаев Э. М., Нуриев И. Р. // ДАН Азерб.ССР. 1988. № 12. С. 6.
- [4] Трейси Д. К., Баркстренд Д. М. Новое в исследовании поверхности твердого тела. В. 2. М.: Мир, 1977. С. 83—103.
- [5] Dugbin S. M., Bergman L. E., Batterman B. W., Blakely J. M. // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 56. N 3. P. 236—239.
- [6] Афанасьев А. М., Перегудов В. Н. // ДАН СССР. 1988. Т. 301. № 5. С. 1098—1100.
- [7] Блохин М. А., Швейцер И. Г. Рентгеноспектральный справочник. М.: Наука, 1982. 375 с.; Парилис Э. С. Эффект Оже. Ташкент, 1969. 209 с.
- [8] Александров П. А., Зашквара В. В., Пашаев Э. М. и др. // ПТЭ. 1986. № 1. С. 198—202.
- [9] Круглов М. В., Созонтов Е. А., Шемелев В. Н., Захаров Б. Г. // Кристаллография. 1977. Т. 22. № 4. С. 693—697.
- [10] Пашаев Э. М., Чузо А. Н., Абдуллаев М. И. и др. // Тез. докл. Всес. совещ. по межвузовской комплексной программе «Рентген». Черновцы, 1987. С. 212—213.
- [11] Пашаев Э. М., Абдуллаев М. И. // Кристаллография. 1989. Т. 34. № 1. С. 263—265.

Институт кристаллографии АН СССР
Москва

Поступило в Редакцию
24 июля 1989 г.
В окончательной редакции
16 января 1990 г.