

Auger 効果에 關한 考察

信一專門大學 放射線科

李 原 鎮

A Study on Auger Effect

Won Jin Lee

Dept. of Radiotechnology, Shin Il Junior College,
Dae-gu City, Korea

I. 緒 論

X-線 光子에 의하여 한 原子의 K準位로부터 한 電子가 射出되면 같은 原子의 L準位에 있는 한 電子가 K準位로 옮겨가면서 $K\alpha$ X-線 光子를 放出할 可能性이 있다. 이 때의 遷移는 그 原子의 螢光 스펙트럼을 생기게 하며, K準位로부터 射出된 電子는 光電子이다.

1925年 Auger 는 아르곤(Ar) 原子로부터 射出되는 光電子를 cloud chamber 로 調査하던 중 K光電子의 飛跡이 보다 적은 電子의 飛跡을 隨伴하고 있는 경우를 여러번 觀測하였다. 이 짧은 飛跡은 하나의 L準位の 電子가 K準位로 갈 때 우선 $K\alpha$ X-線 光子가 形成되고 그 다음 이 光子가 이미 이온화된 L準位에서 또 한 개의 電子를 내쫓아 L準位를 2중으로 이온화시키는 現象으로서, 이것은 $K\alpha$ 光子가 같은 原子의 이온화 L準位로부터 光電子를 射出시키는 內部轉換(internal conversion)의 한 종류이다. 또 原子의 外部로는 전혀 輻射線이 나오지 않기 때문에 이것은 無輻射遷移라 하고, 이 效果를 Auger 效果¹⁾ (Auger effect)라 하며, 이 遷移에서 射出되는 電子를 Auger 電子라 부른다.

그후 約 25年間 이에 대한 實驗的 研究는 거의 中斷된 상태로 오다가, 1950년부터 새로운 β -ray spe-

ctrometer 가 考案되고 實驗技術이 改良됨에 따라 Auger 電子의 實驗的 研究가 再活되어 現在 表面科學分野에서 각광을 받고 있다.

本 論文에서는 Auger 電子의 發生過程에 대한 基礎理論과 스펙트럼 分析에 관한 一般理論을 記述하고, 그 發生過程에서 特性 X-線과의 差異를 考察하고자 한다.

II. Auger 效果

1. Auger 電子의 發生過程

한 中性原子가 어떤 原因(빛, 열, 강한 電場 혹은 磁場, 二次電子 等の 作用)에 의해서 그의 內部軌道에 電子空位(vacancy)가 생기므로써 原子의 이온화 現象이 發生될 때 그 空位가 上部軌道の 電子에 의해 메꾸어짐과 동시에 X-線이나 또는 外殼에 있는 電子 하나가 放出한다. 즉, K殼(K shell)에 空位가 생겼을 때 이 K殼의 空位는 다른 外殼電子(L, M, N, O, P, ……殼의 電子)에 의하여 채워질 것이다. 이때 L_1 殼의 電子는 K殼으로 遷移하면서 그 에너지 차이만큼 外部로 $h\nu$ 의 X-線을 放出하기도 하고 L_2 殼, M_1 殼 혹은 그 上部軌道の 電子가 이 에너지를 吸收하여 그 電子軌道を 벗어나 自由電子(free electron)가 된다. 이들 現象중 前者를 特性 X-線이라 하고 後者를 Auger

效果(Auger 遷移過程)라 한다.

Fig.1은 Auger 遷移過程을 나타낸 것이다. Fig.1에서 2p 電子 중의 하나가 遷移해서 1s 空位를 채워줌과 동시에 2p 準位에 있는 다른 電子가 放出한다.

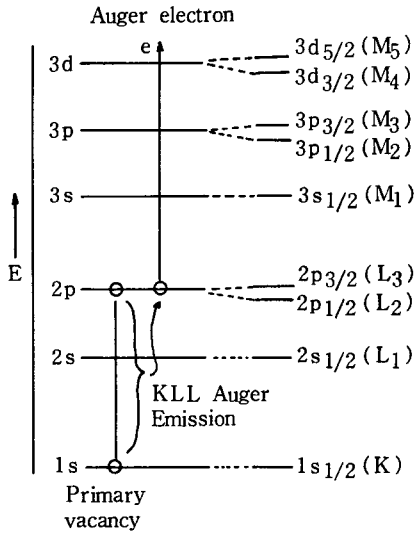


Fig.1. Auger 遷移過程

Auger 電子의 發生過程을 나타내는데 KLL, LMM 및 MNN 等の 記號를 사용한다. KLL은 一次空位(primary vacancy)가 K殼에 생기고 L殼電子의 하나가 遷移해서 그 一次空位를 채우고 L殼의 제 2 電子가 放出되는 것을 나타낸다. 一次空位가 채워지는 方法은 遷移過程에 따라서 무수히 많고 또 內殼에 一次空位를 만드는 方法도 X-線이나 電子衝擊과 電子의 內部轉換이나 捕獲過程 等 여러가지가 있다.

光이온化(photo-ionization)와 電子衝擊에 의한 Auger 過程은 각각 空位를 만드는 過程과 空位가 메꾸어짐에 따라 일어나는 放出過程을 區分해서 다음과 같이 記述할 수 있다.

- 光이온化; $A + h\nu_1 \rightarrow A^{*+} + e_2^-$
 $A^{*+} \begin{cases} A^* + h\nu_2 \text{ (特性 X線)} \\ A^{++} + e_3^- \text{ (Auger 電子)} \end{cases}$
- 電子衝擊; $A + e_1^- \rightarrow A^{*+} + e_1^- + e_2^-$
 $A^{*+} \begin{cases} A^* + h\nu_2 \text{ (特性 X線)} \\ A^{++} + e_3^- \text{ (Auger 電子)} \end{cases}$

여기서 A^* 및 A^{++} 는 각각 單一 및 二重 이온화된 原子를 나타내고, A^* 는 原子의 여기상태(excited state)를 나타낸다.

2. Auger 電子의 에너지

Auger 過程에서 이루어지는 두 개의 最終空位들의 狀態는 coupling scheme에 강하게 의존한다. 多電子系의 Hamiltonian은

$$H = H_0 + H_c + H_{so} \dots\dots\dots(1)$$

으로 주어진다.²⁾ 여기서

$$\left. \begin{aligned} H_0 &= \sum_i \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \frac{Ze^2}{r_i} \right] \\ H_c &= \sum_{i,j} \frac{e^2}{r_{ij}} \\ H_{so} &= \sum_i \xi(r_i) (\vec{l}_i \cdot \vec{s}_i) \end{aligned} \right\} \dots\dots(2)$$

으로 주어지며, H_0 는 pure hydrogenic Hamiltonian, H_c 는 電子雙의 coulomb interaction, H_{so} 는 spin-orbit interaction이다.

Coupling scheme에 따라서 H_c 와 H_{so} 사이에는 다음의 關係가 成立된다.

$$\left. \begin{aligned} H_c &\gg H_{so}; \text{ L-S coupling} \\ H_c &\ll H_{so}; \text{ J-J coupling} \\ H_c &\approx H_{so}; \text{ intermediate coupling} \end{aligned} \right\} \dots\dots(3)$$

따라서 Auger 電子의 에너지 公式는 coupling scheme에 의존하게 된다.

Auger 電子의 에너지는 一般的으로 에너지 保存法則에 의해서 求할 수 있는데 그 因子로는 核과 電子의 數이다. 系(system)의 初期狀態에서 原子가 단순히 이온化되고 모든 電子들은 安定狀態에 있다. 그러나 最終狀態에서 原子는 二重으로 이온化되거나 電子는 運動 에너지를 $V_0 X_p Y_q$ 만큼 지니고 自由狀態를 갖는다.

여기서 中性原子의 에너지를 E_n 이라고 가정하면 V_0 殼에서 이온화된 原子의 에너지는 $-E_n + V_0$ 이고 X_p 와 Y_q 殼에서 이온화된 原子의 에너지는 $-E_n + X_p + Y_q(X_p)$ 이다. 여기서 X_p 와 Y_q 는 中性原子 X_p 와 Y_q 軌道內의 結合에너지이다. 또 $Y_q(X_p)$ 는 X_p 軌道の 空位로 인한 Y_q 殼의 結合 에너지이다. 初期狀態의 系의 에너지는 最終狀態의 에너지와 같으므로

$$\begin{aligned} -E_n + V_0 &= -E_n + X_p + Y_q(X_p) + V_0 X_p Y_q \\ V_0 X_p Y_q &= V_0 - X_p - Y_q(X_p) \end{aligned} \dots\dots(4)$$

가 된다.

J-J coupling에서 $KL_p L_q$ Auger 電子의 에너지 式은

$$KL_p L_q = K - L_p - L_q(L_p) \dots\dots\dots(5)$$

으로 주어진다.³⁾ 여기서 K와 L_p 는 電子의 結合에너지로서 X-線의 放出로 정확히 測定할 수 있으나 L_q

(L_p)는 測定이 곤란하여 原子番號(Z)의 線型的 增加 函數로 표시하였다. 즉,

$$\Delta Z = \frac{L_q(L_p) - (L_q)_z}{(L_q)_{z+1} - (L_q)_z} \dots\dots\dots (6)$$

$$\therefore, KL_pL_q = (K - L_p)_z - (L_q)_{z+\Delta Z} \dots\dots\dots (7)$$

로 주어진다. 여기서 $0 < Z < 1$ 이고 $(L_q)_{z+\Delta Z}$ 는 L_p 殼內에 생긴 空位에 의해서 야기되는 電子結合에너지의 增加를 나타낸다. $Z=80$ 근방에서 ΔZ 의 값은

$$L_1; \Delta Z = 0.54$$

$$L_2; \Delta Z = 0.55$$

$$L_3; \Delta Z = 0.76$$

임이 알려졌다.²⁾

L-S 및 intermediate coupling에서 KLL Auger 電子의 에너지는

$$(KL_pL_q, {}^{2S+1}L_J) = K - (L_pL_q, {}^{2S+1}L_J) \dots\dots (9)$$

으로 주어진다.⁴⁾ 여기서 L, S 및 J는 最終狀態의 量子數이다.

輕元素領域($10 \leq Z \leq 25$)에서 coupling은 L-S가 支配的이고, 相對論的 效果가 중요한 역할을 하는 重元素領域에서는 J-J coupling으로 잘 얻어진다.

2. Auger 電子의 에너지

K-Auger 電子들은 一般的으로 KX_pY_q 형을 가지는데 X와 Y는 K殼밖의 電子殼을 뜻하고 p와 q는 副殼(subshell)을 표시한다. 副殼의 구별이 필요 없을 때는 KLL, KLM, LMM, LMN 등으로 나타낸다. L- 및 M-Auger 電子에 대해서도 마찬가지이다. 특히 L- 및 M-Auger 遷移중에서 $L_1L_pY_q$ 및 $M_1M_pY_q$ 형과 같이 同一한 電子殼 內의 相異한 副殼들 相互間의 空位를 채워주고 여기서 發生된 能量을 上位殼의 電子가 吸收하여 放出하는 現象을 Coster-Kronig 遷移⁵⁾라 부르는데 一般的으로 元素週期律表의 제한된 領域에 있는 元素들에서만 가능하다.

J-J coupling에서는 KLL群에 6개의 遷移 즉 KL_1L_1 , KL_1L_2 , KL_1L_3 , KL_2L_2 , KL_2L_3 , KL_3L_3 가 있어야 하는데 실제로 KLL群의 Auger 遷移의 數는 6개가 아니고 보통 9개이다.^{6, 7)} L-S coupling에 의해서도 KLL群의 에너지準位는 6개 즉 I- 1S , II- 1P , 3P , III- 1S , 1D , (3P)이다. 여기서 끝의 3P 는 coupling이 순수한 L-S일 때는 parity 保存으로 부터 Auger 遷移率에 기여를 하지 않는다.^{4, 8)} Intermediate coupling에서는 9개의 KLL Auger 準位 즉, $KL_1L_1({}^1S_0)$, $KL_1L_2({}^1P_1)$, $KL_1L_2({}^3P_0)$, $KL_1L_3({}^3P_1)$,

$KL_1L_3({}^3P_2)$, $KL_2L_2({}^1S_0)$, $KL_2L_3({}^1D_2)$, $KL_3L_3({}^3P_0)$, $KL_3L_3({}^3P_2)$ 가 얻어진다. 이 중에서 $KL_1L_2({}^3P_0)$, $KL_1L_3({}^3P_2)$ 및 $KL_3L_3({}^3P_0)$ 는 아주 약하여 Auger-satellite 準位로서 알려져 있다.

Fig.2에 KLL Auger 遷移에너지를 나타냈다.

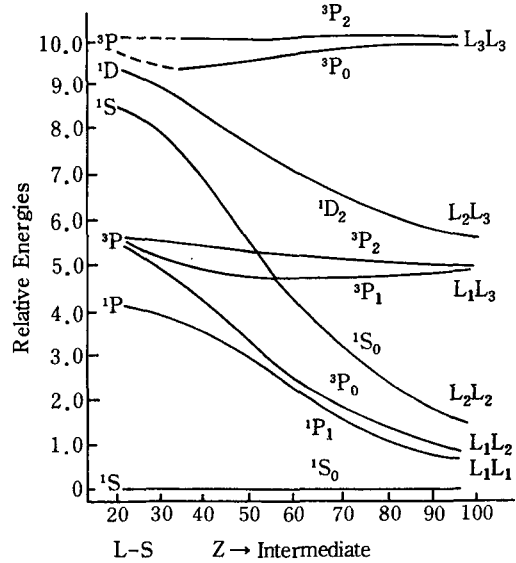


Fig.2. KLL Auger 遷移에너지

III. Auger electron spectroscopy와 그 應用

1. Auger electron spectroscopy

Fig.3은 Graham 등⁹⁾에 의해서 밝혀진 I^{125} 의 KLL 스펙트럼을 나타낸다. Fig.3에서 9개의 Auger peak가 나타나 있어 Asaad와 Burhop¹¹⁾의 intermediate coupling에 의한 豫測結果를 잘 나타내어 주고 있다.

Fig.4는 Erman 등¹⁰⁾이 測定하여 얻어진 Br^{79} 의

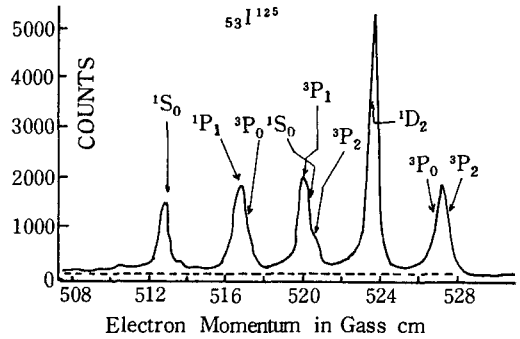


Fig.3. I^{125} 의 KLL Auger spectrum

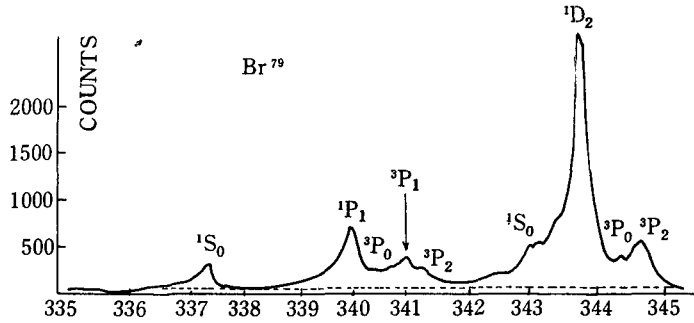


Fig.4. Br⁷⁹의 KLL Auger spectrum

KLL Auger 스펙트럼을 보여준다. 여기서도 9개의 Auger peak가 나타나 있다.

그 후 많은 과학자들이 intermediate 영역(Z=35~75)에서 KLL 스펙트럼을測定한 결과, 모두 9개의 Auger peak를 얻었다.

Fig.5는 Koerber 등¹¹⁾이測定한 Ne(z=10)에 대한 KLL Auger 스펙트럼인데, L-S 영역에서豫測되는 6개 KLL Auger peak가 나타나 있다.

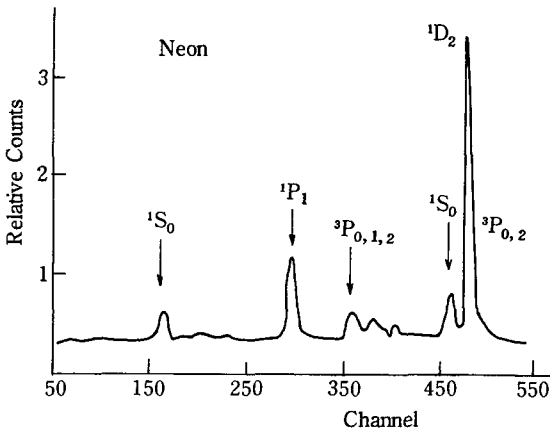


Fig.5. Ne의 KLL Auger spectrum

J-J 영역에서 Bergstrom과 Hill¹³⁾에 의해서 Hg에 대한 KLL 스펙트럼이 측정되었는데 6개의 Auger peak가 나타났으며, 이것은 Asaad¹²⁾에 의한 J-J coupling 計算과 잘 일치하였다.

2. Surface Analysis

1953년에 Lander¹³⁾가 Auger 電子의測定에 의해서 固體表面의成分을決定할 수 있는 방법을 처음으로 제안함으로써 Auger electron spectroscopy는 su-

rface analysis에 實用化 하게 되었다. Surface 應用에서 Auger 電子는 에너지 1~3 keV의 電子流를 固體表面에 衝擊시키므로써 얻어진다. 이 方法으로 얻어진 二次電子 스펙트럼의 一般型은 Fig.6과 같다.¹⁴⁾

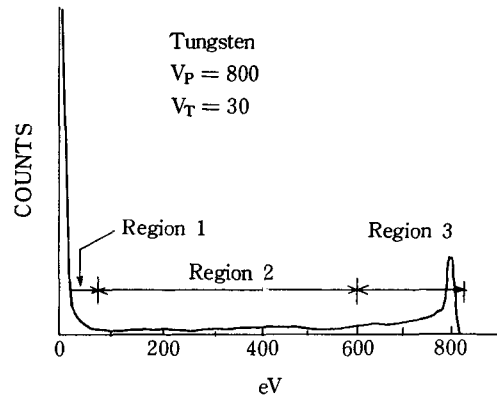


Fig.6. 二次電子 spectrum의 일반형

二次電子 스펙트럼은 一般적으로 3領域으로 나누는데 領域 1은 低에너지의 二次電子 peak들이 포함되어 있는데 이 속에 Auger 電子構造가 파묻혀 있다. 領域 2는 평탄한 부분으로서 二次電子들이 별로 나타나 있지 않고, 領域 3은 一次電子線들의 彈性反跳에 의해서 생기는 彈性 peak가 뚜렷이 나타나 있으며 그 바로 앞에 몇 개의 작은 peak들이 부속되어 있다.

Auger peak를 사용해서 固體表面의 化學的 成分을決定하기 위해서 Harris¹⁵⁾는 electronic differentiation을 사용하여 background 위로 Auger peak를 뚜렷이 나타나게 하는 方法을 고안했다. Auger 스펙트럼은 보통 二次電子의 에너지 分布에 대한 微分形인 $dN(E)/d(E)$ 을 의미한다. $dN(E)/d(E)$ 分布 스펙트럼에서는

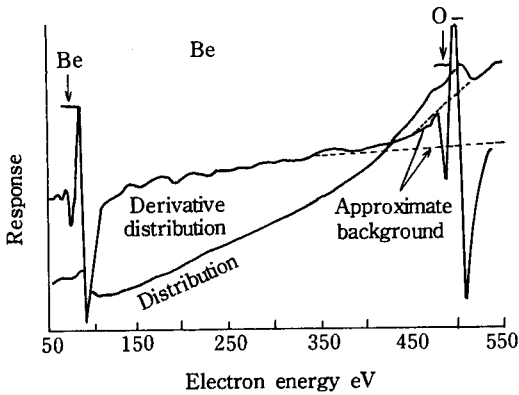


Fig.7. $N(E)$ 와 $\frac{d}{dE} N$ 의 비교

background가 낮아지는 반면에 Auger peak들은 $N(E)$ 분포 스펙트럼에 비해서 뚜렷하게 드러난다. Fig. 7에서 $N(E)$ 와 $dN(E)/dE$ 의 비교를 나타내었다.

IV. 結 論

Auger 효과는 처음 X-線 光電효과와 관련하여 發見되었지만, 內殼으로부터 한 電子를 제거하여 그 原子를 이온화시키는 方法은 어느 것이나 Auger 遷移를 일으킬 수 있다. 이 효과는 약간의 光學 스펙트럼에서 觀察하였으며, 더욱 흥미있는 것은 核崩壞, 즉 K 電子捕獲 다음에 생기는 電子準位の 再整理와 γ 線 放出 다음에 일어나는 內部轉換에서도 觀察하였다.

Auger electron spectroscopy는 電子의 構造의 研究 및 金屬表面의 化學的 分析에 有력한 方法으로 사용하는데 이 方法은 物質을 파괴하지 않고 그 物質의 表面成分을 알 수 있고 固體의 아주 얇은 층(10\AA 정도)의 表面을 調査 研究할 수 있다. 또 가벼운 元素의 表面成分을 調査時 X-線에 의한 方法보다 이 方法이 더 有用하고, surface sensitivity는 surface segregation, surface contamination 및 other surface-connected effect solid에서 廻折 등을 研究하는데 많은 도움을 주고 있다.

參 考 文 獻

1. P.J. Auger, Phys. Radium, 6, 205(1925).
2. W. Mehlhorn, Lectures on "The Auger Effect" given at University of Nebraska, Press (1969).
3. I. Bergstrom and R.D. Arkiv for Fysik 8, 21(1954).
4. W.N. Asaad and E.H.S. Burhop, Proc. Soc. (London) 71, 369(1958).
5. D. Coster and R. Kornig, Physica 2, 13 (1935).
6. K.D. sevier, "Low Energy Electron Spectroscopy" Wiley-Interscience, New York, (1972).
7. I. Bergstrom and C. Nordling, "The Auger Effect" in L-, B- and Y- Spectroscopy ed. by Siegbahn (1966).
8. E.H.S. Burhop and W.H. Asaad, "The Auger Effect" in Advances in Atomic & Molecular Physics ed. by D.R. Bates (1972).
9. R.L. Graham, I. Bergstrom, and F. Brown, Nucl. Phys. 39, 107(1962).
10. P. Eрман, I. Bergstrom, Y.Y. Chu and G.T. Emery, Nucl. Phys. 62, 401(1965).
11. H. Koerber and W. Mehlhorn, Z. Phys., 191, 217(1966).
12. W.N. Asaad, Proc. Roy. Soc. Ser. A249, 555(1959).
13. J.J. Lander, Phys. Rev., 91, 1382(1953).
14. G.A. Harrower, Phys. Rev. 102,340(1956).
15. L.A. Harris, J. Appl. Phys. 39, 1419(1968).