

不同蒙特卡罗软件模拟中子深度剖面 分析差异对比

徐 僂 张庆贤 何庆驹 吴 涛 张 罡 石 丛 孙 坤 肖云龙
(成都理工大学 核技术与自动化工程学院 成都 610059)

摘要 中子深度剖面分析(Neutron depth profiling, NDP)技术在半导体生产、离子注入研究、材料科学等领域有广泛应用。为了探究 NDP 能谱分析中模拟软件的一致性与可靠性, 本文对比了 SRIM、MCNP、FLUKA 和 GEANT4 等软件模拟 NDP 的结果; 对比分析了 4 款模拟软件模拟的 α 粒子能谱, 并以美国国家标准与技术研究院(National Institute of Standards and Technology, NIST)标准物质 SRM2137 实测谱为标准对模拟谱进行评价。结果表明: 4 款模拟软件所模拟的 α 能谱在 $2\mu\text{m}$ 厚晶体硅层内峰位能量一致性较好; MCNP 模拟的半高宽和峰位结果优于 FLUKA 和 GEANT4 的模拟结果。

关键词 中子深度剖面分析, FLUKA, GEANT4, MCNP, SRIM, SRM2137

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.090203

Comparison of different Monte Carlo simulation software for simulating neutron depth profiling

XU Su ZHANG Qingxian HE Qingju WU Tao ZHANG Gang SHI Cong SUN Kun XIAO Yunlong
(College of Nuclear Technology and Automation of Engineering, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China)

Abstract [Background] Neutron depth profiling (NDP) method is widely used in semi-conductor production, ion implantation research, material science and other fields. [Purpose] This study aims to explore the reliability of simulation software in NDP energy spectrum analysis, and compare the results of simulating NDP by SRIM, MCNP, FLUKA, and GEANT4. [Methods] First of all, the differences of four software in simulation for alpha spectrum are discussed. Then, the experimental alpha spectrum of National Institute of Standards and Technology (NIST) standard is used to evaluate the simulation results of MCNP, FLUKA and GEANT4 in NDP analysis. [Results] The simulation results of alpha spectrum show that the peak position of alpha spectrum is close to each other when the thickness of silicon is less than $2\mu\text{m}$. [Conclusions] Three software, i.e., MCNP, FLUKA and GEANT4, could be used to simulate the alpha spectrum in NDP analysis whilst the MCNP achieves better accurate full width at half maximum (FWHM) and the peak position of alpha spectrum.

Key words Neutron depth profiling, FLUKA, GEANT4, MCNP, SRIM, SRM2137

国家自然科学基金(No.41774190)、四川省科技计划项目(No.2015GZ0272)、四川省教育厅科技项目(No.17ZA0033)资助

第一作者: 徐僂, 男, 1994 年出生, 2016 年毕业于成都理工大学工程技术学院, 现为硕士研究生, 研究领域为核技术及其应用研究

通信作者: 张庆贤, E-mail: shinecore@163.com

收稿日期: 2018-01-23, 修回日期: 2018-04-17

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.41774190), Sichuan Science and Technology Project (No.2015GZ0272), Sichuan Education Department Science and Technology Project (No.17ZA0033)

First author: XU Su, male, born in 1994, graduated from Chengdu University of Technology in 2016, master student, focusing on nuclear technology and its application

Corresponding author: ZHANG Qingxian, E-mail: shinecore@163.com

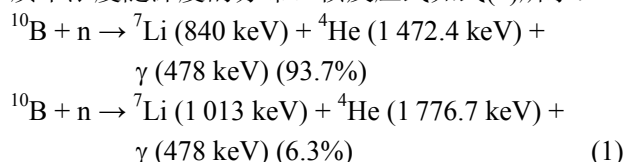
Received date: 2018-01-23, revised date: 2018-04-17

1936年,赫维西和莱维首次使用中子活化分析技术,对氧化钽试样进行了定量分析。随着技术完善,中子活化在灵敏度和准确度方面优势显著^[1]。1972年,Ziegler在中子活化技术的基础上最早提出了中子深度剖面分析(Neutron depth profiling, NDP)技术^[2-3],该技术对半导体生产以及离子注入研究具有重要意义。随后,Biersack等^[4-5]通过对粒子在固体中的输运过程以及离子注入型材料的深入研究,推动了NDP技术的发展。1933年,Bloch提出了 α 粒子在物质中能量衰减计算理论。此后进行了多次修正^[6-7],但对于极低能量($\sim$ eV)依然无法解决。2015年,Nguyen-Truong等^[8]添加极低能修正项和Taborda等^[9]的拟合参数,都能解决极低能量粒子的能量损失情况。目前,蒙特卡罗(Monte Carlo, MC)技术成为构建响应函数的重要方法。窦海峰等^[10]通过仿真软件SRIM构建响应函数,Yang等^[11]通过MC-NDP法模拟了 α 粒子能谱,构建了响应矩阵。

为确定最适合NDP模拟的软件,本文用GEANT4^[12]、FLUKA^[13-14]、MCNP和SRIM软件进行了NDP分析过程的模拟,对比分析了4款软件的一致性。同时与实验能谱进行比较,评价模拟结果的可靠性。

1 基础原理

NDP技术是通过反演热中子束入射含硼或含锂样品产生的带电粒子能谱,得到硼或锂原子在物质中浓度随深度的分布。核反应式如式(1)所示:



式(1)中的 α 粒子在物质中的电离能量损失可由Bethe-Bloch公式进行估算,计算公式如式(2)所示:

$$\left(-\frac{dE}{dX} \right)_{\text{ion}} = \frac{4\pi e^4 NZ}{m_0 v^2} \left[\ln \left(\frac{2m_0 v^2}{I} \right) + \ln \frac{1}{1-\beta^2} - \beta^2 - \frac{c}{z} \right] \quad (2)$$

式中: N 为原子密度; Z 为靶物质原子序数; v 为入射带电粒子的速度; m_0 为电子静止质量; $\ln(1-\beta^2)$ 、 β^2 为相对修正项($\beta=v/c$); c 为光速; c/z 为壳修正项,对于重带电粒子无需考虑壳修正。

目前,基于MC法的粒子模拟成为NDP分析的重要方法,而SRIM、FLUKA、MCNP和GEANT4是较常用软件。FLUKA软件的能量损失模块中,

不仅包括了Bethe-Bloch公式,还引入Barkas的Z3与Bloch的Z4效应修正、Mott的卢瑟福散射修正及Ziegler的壳层和其它低能修正等^[14]。GEANT4中Bethe-Bloch公式被用于能量大于8 MeV的 α 粒子,当粒子能量在1 keV~10 MeV时,GEANT4使用Ziegler给出的三个参数式^[15-16]。当粒子能量低于1 keV时,自由电子气体模型被用于计算能量损失。本课题所使用的GEANT4物理模型库为QGSP-BIC-HP,该物理模型能准确描述低能中子在物质中的反应过程。MCNP在输运带电粒子时,加入了NCIA算法以及PHYS卡^[17]。SRIM计算带电粒子在单元素中能量损失时,使用Bragg定律^[18]。但计算带电粒子在混合物(化合物)中的能量损失时,使用CAB(Core-and-bond)法^[18]对Bragg定律进行了修正。

2 几何模型建立

SRIM、MCNP、GEANT4和FLUKA的几何模型如图1所示,模拟样品中硼分布特征同美国国家标准与技术研究院(National Institute of Standards and Technology, NIST)标准物质SRM2137相同。探测器为钝化离子注入平面硅探测器(Passivated Implanted Planar Silicon detector, PIPS),半径0.92 cm,厚度20 μm ,探测器距离样品6 cm。中子源为半径0.5 cm的面源,定义源粒子以直线出射,并以角度45°入射到探测器上表面。

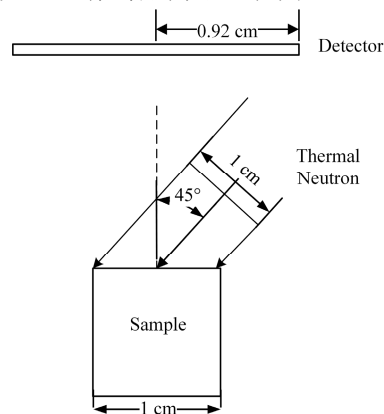


图1 模拟模型示意

Fig.1 Schematic model of simulation

3 实验分析

3.1 α 能谱对比

为比较4款模拟软件模拟 α 粒子能谱的差异,实验模拟了由能量为1.472 MeV构成的 α 粒子束,穿过1 μm 、2 μm 、3 μm 以及4 μm 的硅层的 α 粒子能谱。模拟得到的 α 能谱如图2所示。

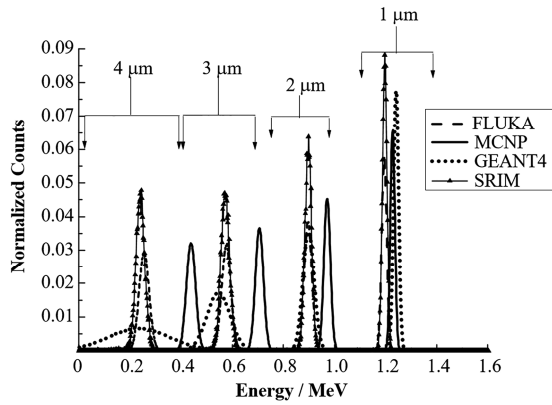


图2 4款模拟软件构建的 α 能谱对比
Fig.2 Comparison of alpha spectra constructed by four simulation softwares

如图2所示, α 粒子在穿透单晶硅后,随着厚度增加,能量降低,能谱被展宽。上述4种方法得

表1 4款模拟软件的原始数据及分析(MeV)
Table 1 Raw data and analysis of 4 simulation software (MeV)

项目 Entry	1 μm		2 μm		3 μm		4 μm	
	PE	FWHM	PE	FWHM	PE	FWHM	PE	FWHM
FLUKA	1.195 0	0.023 5	0.895 6	0.035 1	0.577 9	0.043 3	0.255 9	0.046 2
GEANT4	1.241 8	0.023 5	0.899 8	0.051 6	0.549 9	0.106 4	0.219 6	0.218 3
MCNP	1.227 6	0.020 6	0.971 6	0.029 8	0.705 6	0.037 0	0.438 1	0.042 1
SRIM	1.196 0	0.021 6	0.898 0	0.031 2	0.570 0	0.040 3	0.240 0	0.041 0
μ	1.215 1	0.022 3	0.916 3	0.036 9	0.600 9	0.056 8	0.288 4	0.086 9
σ	0.023 4	0.001 5	0.036 9	0.010 1	0.070 8	0.033 2	0.100 9	0.087 6

由表1可知,上述4款模拟软件在1 μm 厚硅层的 μ_p 为1.2151 MeV, σ_p 为0.0234; μ_f 为0.0223 MeV, σ_f 为0.0015,三者能谱差异较小。在2 μm 厚硅层中, μ_f 为0.0369 MeV, σ_f 为0.0101,半高宽差异开始增大。随着硅层厚度逐渐增大,在4 μm 厚硅层中,模拟能谱的 μ_p 为0.2884 MeV, σ_p 为0.1009; μ_f 为0.0869 MeV, σ_f 为0.0876,三者能谱峰位能量、半高宽出现较大差异。从图2可知,GEANT4模拟谱半高宽远大于FLUKA、MCNP、SRIM的模拟结果;SRIM模拟能谱的峰位能量、半高宽与FLUKA差异较小,但随着厚度增大,差异逐渐增大;同时MCNP在样品中的峰位能量同其它模拟软件差异较大。由于SRIM软件只可用于粒子在物质中的射程、能损、溅射、损伤等模拟,无法模拟NDP的核反应过程,故不将其用于NDP实验谱与模拟谱的对比中。

3.2 NDP模拟谱与实验谱对比

实验在真空环境中进行,粒子与探测器之间无屏蔽,探测器距样品6 cm,其余结构如图1所示,

到的 α 粒子能谱有所差异,尤其是在单晶硅厚度达到4 μm 时,差异更为显著。

表1统计了 α 粒子通过4种不同厚度硅层后,峰位能量(Peak Energy, PE)和峰半高宽(Full Width Half Maximum, FWHM)之间的差异,其中半高宽都是由高斯拟合所得。

为比较不同软件构建的 α 能谱之间峰位能量、半高宽的差异,定义数据标准差 σ 如下:

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (d_i - \mu)^2} \quad (3)$$

式中: σ 为峰位能量或半高宽数据标准差; N 为数据个数; d_i 为峰位能量或半高宽的数据; μ 为峰位能量或半高宽的平均值; μ_p 、 σ_p 分别为峰位能量的平均值、标准差; μ_f 、 σ_f 分别为半高宽的平均值、标准差。

SRM2137为边长1 cm的正方体单晶硅,注入的硼粒子分布于其近表面(0.02~0.32 μm),硼粒子浓度随其所在深度的增加,先增大后减小,并在厚度0.185 μm 处达到最大。实验能谱采用NIST的标准物质SRM2137在热中子束流(45°)入射下测量得到的 α 能谱。MCNP、FLUKA与GEANT4的模拟能谱是将能量范围0~1.776 MeV,分成了1024道,模拟条件及材料与实验相同。测量能谱如图3所示。

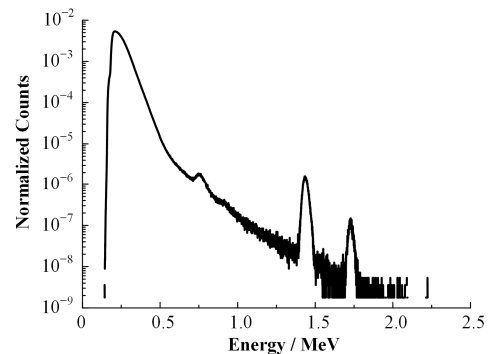


图3 标准物质SRM2137的实测能谱
Fig.3 Experimental spectrum of standard sample SRM2137

从图 3 可知, α 能谱由连续谱和特征峰组成。特征峰包括硼产生的 1.472 MeV 和 1.776 MeV 的两个 α 峰, 同时也可以观察到 1.013 MeV 和 0.84 MeV 的两个 Li^+ 的特征峰。NDP 实验中 Li^+ 计数明显小于 α 粒子计数。为充分反映 SRM2137 中硼的分布特征, 本文只针对 α 粒子特征峰进行分析。

如图 4 和图 5 所示, 模拟谱和实验谱都可以观察到 1.472 MeV 和 1.776 MeV 两个 α 特征峰。当模拟抽样粒子数达到 10^9 时, 1.776 MeV 的 α 粒子计数仍很低, 统计误差较大, 因此, 对 1.472 MeV 处的峰进行误差分析。

表 2 统计了模拟谱与实测谱峰位能量和半高宽之间的差异。为分析模拟能谱与实测谱的峰位能量、半高宽差异, 定义相对变化率如式(4):

$$\Delta = (|x_1 - x_2| / x_2) \times 100\% \quad (4)$$

式中: Δ 为峰位能量或半高宽相对于实验值的变化率; x_1 为模拟谱线峰位能量或半高宽; x_2 为标准物质 SRM2137 实测谱的峰位能量或半高宽。

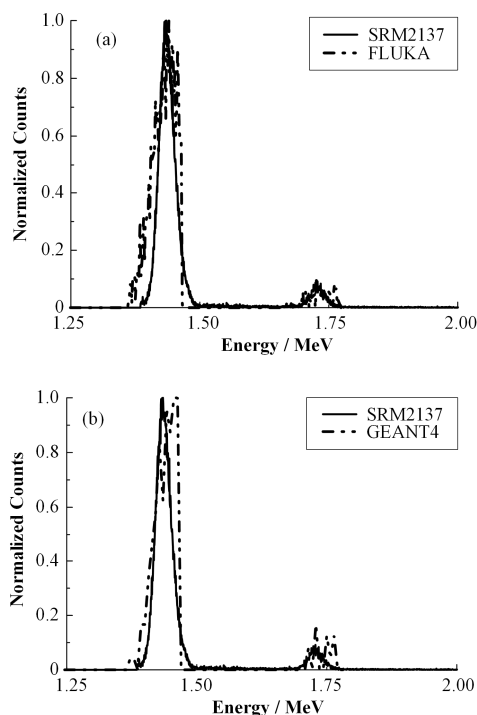


图 4 标准物质 SRM2137 实测谱与 FLUKA (a)、GEANT4 (b) 模拟谱对比
Fig.4 Comparison between experimental spectrum of SRM2137 sample and simulated spectrum of FLUKA (a), GEANT4 (b)

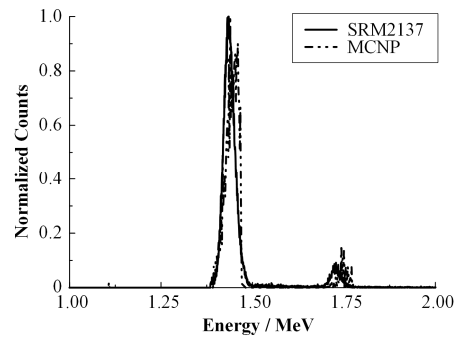


图 5 标准物质 SRM2137 实测谱与 MCNP 模拟谱对比
Fig.5 Comparison between experimental spectrum of SRM2137 sample and simulated spectrum of MCNP

表 2 GEANT4、FLUKA 与 SRM2137 能谱数据相对误差
Table 2 Relative error of GEANT4, FLUKA and SRM2137 experimental spectrum data

方法 Method	PE / MeV	Δ / %	FWHM / MeV	Δ / %
SRM2137	1.435	—	0.035 9	—
GEANT4	1.456	1.46	0.048 4	25.89
FLUKA	1.440	0.35	0.054 7	52.61
MCNP	1.439	0.28	0.040 8	13.64

由表 2 可知, 相对于标准物质 SRM2137 实测谱, FLUKA 峰位能量的 Δ 为 0.35%, 半高宽的 Δ 为 52.61%; GEANT4 峰位能量的 Δ 为 1.46%, 半高宽的 Δ 为 25.89%; MCNP 峰位能量的 Δ 为 0.28%, 半高宽的 Δ 为 13.64%。上述三款模拟软件所得能谱峰位能量同实测谱特征峰能量差距都在 2% 以内, 但 FLUKA、GEANT4 模拟能谱的半高宽明显大于标准物质 SRM2137 实测谱, MCNP 模拟谱半高宽更接近实测谱半高宽。

4 结语

本实验为评价 4 款蒙特卡罗模拟软件模拟 NDP 时的差异, 对比了 SRIM、MCNP、FLUKA、GEANT4 模拟软件所得 α 粒子能谱, 并使用标准物质 SRM2137 的实测谱与 MCNP、GEANT4、FLUKA 的模拟谱进行了对比, 结果表明:

1) 4 款模拟软件所得 α 粒子谱在 2 μm 厚硅层内峰位能量相近。超过 2 μm 时, SRIM 与 FLUKA 模拟谱一致性较好, 与其他两款软件模拟谱的差异随单晶硅厚度的增加而逐渐增大。

2) 在 SRM2137 样品的 NDP 实验谱与模拟谱对比中, 相对于 FLUKA、GEANT4 模拟软件, MCNP 模拟所得 NDP 中 α 粒子能谱与实测谱符合更好。

3) 4 μm 厚硅层中存在 GEANT4 能谱半高宽过大、MCNP 能谱峰位偏差较大的问题, 这些问题还有待进一步确认。

致谢 感谢李润东、杨鑫以及钱达志等对本文的大力支持。

参考文献

- 李德红, 苏桐龄. 中子活化分析原理及应用简介[J]. 大学物理, 2005, **24**(6): 56–58.
LI Dehong, SU Tongling. Introduction about principle of neutron activation analysis and its application[J]. College Physics, 2005, **24**(6): 56–58.
- Ziegler J F, Cole G W, Baglin J E E. Technique for determining concentration profiles of boron impurities in substrates[J]. Journal of Applied Physics, 1972, **43**(9): 3809–3815. DOI: 10.1063/1.1661816.
- 杨鑫, 李润东, 刘汉刚, 等. 基于概率迭代的NDP反演方法[J]. 计算物理, 2012, **29**(6): 891–900.
YANG Xin, LI Rundong, LIU Hangang, *et al.* An unfolding method of NDP based on probability iteration[J]. Journal of Computational Physics, 2012, **29**(6): 891–900.
- Datz S, Appleton B R, Moak C D. Atomic collisions in solids[M]. Plenum Press, 1975: 545–547.
- Ryssel H, Glawischnig H. Ion implantation: equipment and techniques[M]. Germany: Springer, 1983.
- Ahlen S P. Theoretical and experimental aspects of the energy loss of relativistic heavily ionizing particles[J]. Reviews of Modern Physics, 1980, **52**(1): 121–175.
- Lindh J, Scharff M, Schiott H E. Range concepts and heavy ion ranges[J]. Matematisk-Fysiske Meddelelser Konglige Danske Videnskabernes Selskab, 1972, **33**(14): 1–39.
- Nguyen-Truong H T. Modified Bethe formula for low-energy electron stopping power without fitting parameters[J]. Ultramicroscopy, 2015, **149**: 26–33. DOI: 10.1016/j.ultramic.2014.11.003.
- Taborda A, Desbrée A, Reis M A. Simple polynomial approximation to modified Bethe formula low-energy electron stopping powers data[J]. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, 2015, **S356**: 172–175. DOI: 10.1016/j.nimb.2015.05.005.
- 窦海峰, 李润东, 冷军, 等. 中子深度分析的能量展宽修正[J]. 核技术, 2011, **34**(9): 689–692.
DOU Haifeng, LI Rundong, LENG Jun, *et al.* The correction of ions energy spread in neutron depth profiling[J]. Nuclear Techniques, 2011, **34**(9): 689–692.
- Yang X, Downing R G, Wang G B, *et al.* A Monte Carlo code to get response spectrum of ions for neutron depth profiling[J]. Journal of Radioanalytical & Nuclear Chemistry, 2014, **301**(1): 213–220. DOI: 10.1007/s10967-014-3126-x.
- Beer F D, Franklyn C. Nuclear instruments and methods in physics research[M]. North-Holland, 1981.
- Böhlen T T, Cerutti F, Chin M P W, *et al.* The FLUKA code: developments and challenges for high energy and medical applications[J]. Nuclear Data Sheets, 2014, **120**(C): 211–214. DOI: 10.1016/j.nds.2014.07.049.
- Ferrari A, Sala P R, Fasso A, *et al.* FLUKA: a multi-particle transport code[M]. Geneva: CERN, European Organization for Nuclear Research, 2005.
- Ziegler J F. The stopping and ranges of ions in matter[J]. Treatise on Heavy-Ion Science, 1977, **268**(11): 93–129.
- Ziegler J F. Comments on ICRU report 49: stopping powers and ranges for protons and alpha particles[J]. Radiation Research, 1999, **152**(2): 219–241.
- Mckinney G. MCNPX user's manual[Z]. Version 2.7.0. 2011.
- Interactions of ions with matter. The stopping and range in compounds[EB/OL]. 2017-04-19[2018-03-21]. <http://www.srim.org/SRIM/Compounds.htm#Collaborators>.