

Mjerenje zaustavne moći za ione vodika MeV-skih energija u dijamantu

Matijević, Matija

Master's thesis / Diplomski rad

2022

Degree Grantor / Ustanova koja je dodijelila akademski / stručni stupanj: **University of Zagreb, Faculty of Science / Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet**

Permanent link / Trajna poveznica: <https://urn.nsk.hr/um:nbn:hr:217:173607>

Rights / Prava: [In copyright/Zaštićeno autorskim pravom.](#)

Download date / Datum preuzimanja: **2024-04-28**



Repository / Repozitorij:

[Repository of the Faculty of Science - University of Zagreb](#)



SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET
FIZIČKI ODSJEK

Matija Matijević

MJERENJE ZAUSTAVNE MOĆI ZA IONE
VODIKA MEV-SKİH ENERGIJA U DIJAMANTU

Diplomski rad

Zagreb, 2022.

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET
FIZIČKI ODSJEK

INTEGRIRANI PREDDIPLOMSKI I DIPLOMSKI SVEUČILIŠNI STUDIJ
FIZIKA; SMJER ISTRAŽIVAČKI

Matija Matijević

Diplomski rad

**Mjerenje zaušavne moći za ione
vodika MeV-skih energija u dijamantu**

Voditelj diplomskog rada: dr. sc. Zdravko Siketić

Ocjena diplomskog rada: _____

Povjerenstvo: 1. _____

2. _____

3. _____

Datum polaganja: _____

Zagreb, 2022.

Želio bih se zahvaliti mentoru dr. sc. Zdravku Siketiću na prenesenom znanju i pomoći prilikom izrade ovog rada. Također, želio bih se zahvaliti svim zaposlenicima Laboratorija za interakciju ionskih snopova na IRB-u, posebice Andreu Crnjcu i Mauriciu Rodriguezu Ramosu.

Naposlijetku, hvala mami i tati na neprestanoj podršci kroz studij i život.

Sažetak

Dijamant je poluvodički materijal širokog zabranjenog pojasa i izvrsnih mehaničkih svojstava. Posljednjih godina raste zanimanje za umjetno proizvedenim dijamantima visoke čistoće koji se primjenjuju kao čestični detektori u fizici visokih energija, što u radioterapiji kao dozimetri, a potencijalno i u kvantnim računalima u kojima se istražuje primjena NV (engl. nitrogen vacancy) centara pri izradi kvantnih bitova (engl. qubits). Upravo iz tih razloga veliki se naporovi ulažu u detaljnu karakterizaciju svojstava dijamanta poput: električne otpornosti, širina zabranjenog pojasa (engl. band gap), mobilnosti nosioca naboja, zaustavne moći, itd. U ovom radu je mjerena zaustavna moć za protonske snopove energija u rasponu od 1.6 do 6 MeV-a koji prolaze kroz tanki kristal sintetičkog dijamanta, realiziran kao samoprdržavajuća membrana mikrometarske debljine. Najprije, kako bi se moglo precizno odrediti zaustavnu moć, bilo je potrebno odrediti debljinu same membrane te su za to korištena dvije različite metode: indirektno mjeranjem apsorpcije x-zraka u membrani tzv. PIXE (engl. particle-induced x-ray emission) metodom i direktno iz snimaka ruba membrane dobivenih pretražnom elektronskom mikroskopijom (engl. scanning electron microscopy, SEM). Nakon toga je izmjerena gubitak energije protonskog snopa pri prolasku kroz membranu tzv. STIM (engl. scanning transmission ion microscopy) metodom te je iz dobivenih mjeranja određena zaustavna moć protona MeV-skih energija u dijamantu. Dobiveni rezultati uspoređeni su s vrijednostima zaustavne moći dobivene u Monte Carlo simulacijama unutar SRIM (engl. Stopping and Range of Ions in Matter) programskog paketa i eksperimentalnim rezultatima drugih autora. Naposlijetku, određen je energijski rasap u dijamantu te su rezultati također uspoređeni s vrijednostima dobivenim pomoću SRIM programskog paketa.

Ključne riječi: dijamantna membrana, zaustavna moć, energijski rasap, SRIM, PIXE, SEM, STIM

Stopping power measurement for hydrogen ions with MeV energies in diamond

Abstract

Diamond is a semiconductor material with a wide band gap and excellent mechanical properties. In the last few years interest for high purity synthetic diamonds is growing due to its various applications ranging from high energy physics (particle detectors), radiotherapy (dosimeters) to quantum computing in which nitrogen vacancy (NV) centers in diamond are being researched as a possible way of creating qubits. For these reasons extensive efforts are being made to characterize the properties of synthetic diamond such as: electrical resistivity, band gap width, mobility of free charge carriers, stopping power, etc. In this work, stopping power for proton beams of energies ranging from 1.6 to 6 MeV pass through a thin crystal of synthetic diamond which is made as a self-supporting membrane of micrometer thickness. Firstly, in order to properly calculate the stopping power, the thickness of the membrane needed to be measured for which two different methods were used: indirectly by measuring the absorption of x-rays in the membrane via the so-called PIXE (particle induced x-ray emission) method and directly from pictures of the membrane's edge obtained with scanning electron microscopy (SEM). After the membrane thickness was calculated, the energy loss inside the membrane was measured using the so-called STIM (scanning transmission ion microscopy) technique from which the stopping power for MeV protons in diamond was calculated. The stopping power for diamond was calculated and cross referenced with stopping power data obtained by Monte Carlo simulations from SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) and experimental data from other authors. Finally, energy straggling was calculated and cross referenced with values obtained via the SRIM program.

Keywords: diamond membrane, stopping power, energy straggling, SRIM, PIXE, SEM, STIM

Sadržaj

1 Uvod	1
2 Interakcija ionskog snopa s materijalom	3
2.1 Bethe-Bloch formula	3
2.2 Energijski rasap	10
2.3 SRIM	14
3 Eksperimentalni postav	17
3.1 Akceleratorski sustav	17
3.2 Ionska mikroproba	18
3.3 Dijamantna membrana	19
3.4 Postupak mjerena zaustavne moći i energijskog rasapa	22
4 Rezultati i diskusija	24
4.1 Određivanje debljine dijamantne membrane	24
4.2 Mjerenje zaustavne moći i energijskog rasapa	27
5 Zaključak	30
Dodaci	32
A Tablica eksperimentalnih vrijednosti	32
Literatura	33

1 Uvod

Dijamant je izrazito zanimljiv materijal u okviru znanosti materijala zbog svojih jedinstvenih svojstava te se posljednjih godina raste interes za umjetno proizvedenim dijamantima visoke čistoće. Usporedbom sintetičkog dijamanta s poluvodičkim materijalima poput silicija, detektori temeljeni na sintetičkom dijamantu pokazuju nekoliko prednosti pri detekciji ionizirajućeg zračenja. Uz iznimno dobru otpornost na zračenje [1], visoka električna otpornost ($>10^{14} \Omega\text{m}$) i široki zabranjeni pojas (5.5 eV) rezultiraju niskom razinom šuma i malom strujom curenja (engl. leakage current) [2]. Također, velika mobilnost nosioca naboja omogućuje da dijamantni detektori imaju izvrsnu vremensku razlučivost [3]. Upravo se zbog tih svojstava sintetički dijamanti kao detektori upotrebljavaju u fizici visokih energija pri detekciji neutrona [4], protona, elektrona i fotona [5]. Uz primjene u fizici visokih energija, dijamantni detektori se primjenjuju i kao dozimetri u radioterapiji, primjerice u tzv. hadronskoj terapiji gdje se tumori liječe snopom protona ili ugljikovih iona [6]. Također, jedna od mogućih primjena sintetičkog dijamanta je u kvantnim računalima i senzorima, gdje se koriste tzv. NV (engl. nitrogen vacancy) centri u dijamantu. Ti centri nastaju tako što se pri implantaciji dušikovih atoma na intersticijska mesta u dijamantnoj rešetci izbjijaju atomi ugljika iz rešetke te nastaju tzv. praznine ili vakancije u dijamantu koje se onda kvantno sprežu s implantiranim dušikom. Dobro svojstvo tog centra jest to što ima dugoživući spinski triplet u svom osnovnom stanju koji se može pobuditi i mjeriti pomoću mikrovalova ili optičkog zračenja te kao takav služi kao osnova za konstrukciju kvantnih računala [7].

Sintetički dijamanti se uglavnom proizvode u dva procesa: HPHT (engl. high-pressure high-temperature) i CVD (engl. chemical vapor deposition). HPHT je proces u kojem se u čisti ugljik stavlja maleni komadić dijamanta koji se naziva dijamantno sjeme (engl. diamond seed) te se zatim na ugljik primjenjuje visoka temperatura i tlak kako bi se stvorio sintetički dijamant [8]. Takav proces je vrlo sličan procesu nastajanja prirodnih dijamanata u Zemlji. S druge strane, CVD je zajedničko ime za skup procesa u kojem se dijamant kemijskom reakcijom iz pare nanosi na zagrijani supstrat [9].

Za sve navedene primjene sintetičkog dijamanta potrebno je dobro poznavati tzv. *zaustavnu moć* (engl. stopping power) za dijamant. Preko nje se može saznati ionizacijsku sposobnost dijamanta.

zacijski profil i doseg upadnih iona što je iznimno važno za dijamantne detektore čestica i dozimetre temeljene na njima. Također, kako je i spomenuto, sintetički dijamant ima i potencijalnu ulogu u razvoju kvantnih računala gdje je NV centar temelj za stvaranje tzv. kvantnih bitova (qubitova), a kako bi se moglo precizno definirati dubinu implantacije dušika potrebno je precizno znati doseg dušikovih iona u dijamantu.

Kako na MeV-skim energijama za protone nema puno eksperimentalnih podataka o zaustavnoj moći, cilj ovog rada bio je eksperimentalno izmjeriti zaustavnu moć (engl. stopping power) za protone energija 1.6-6 MeV-a koji upadaju na tanku membranu sintetičkog dijamanta te usporediti dobivene rezultate s vrijednostima koje se dobiva iz numeričkih simulacija u okviru SRIM [10] (engl. Stopping and Range of Ions in Matter) programskog paketa. Također, bitno je naglasiti kako točnost simulacija napravljenih u SRIM-u ovisi o količini eksperimentalnih podataka, jer se parametri u numeričkom modelu prilagođavaju na eksperimentalne vrijednosti pa je stoga dobro imati što više eksperimentalnih podataka za različite kombinacije ion-meta kako bi se povećala točnost tih simulacija.

2 Interakcija ionskog snopa s materijalom

Općenito, pri prolasku nabijene čestice kroz materijal ona međudjeluje s njim kroz nekoliko mehanizama [11, str. 21]:

- neelastično raspršenje na atomskim elektronima,
- elastično raspršenje na jezgrama atoma,
- emisija Čerenkovljevog zračenja,
- nuklearne reakcije,
- zakočno zračenje (njem. bremsstrahlung).

Također, valja napomenuti da se nabijene čestice vrlo često dijele na dvije kategorije:

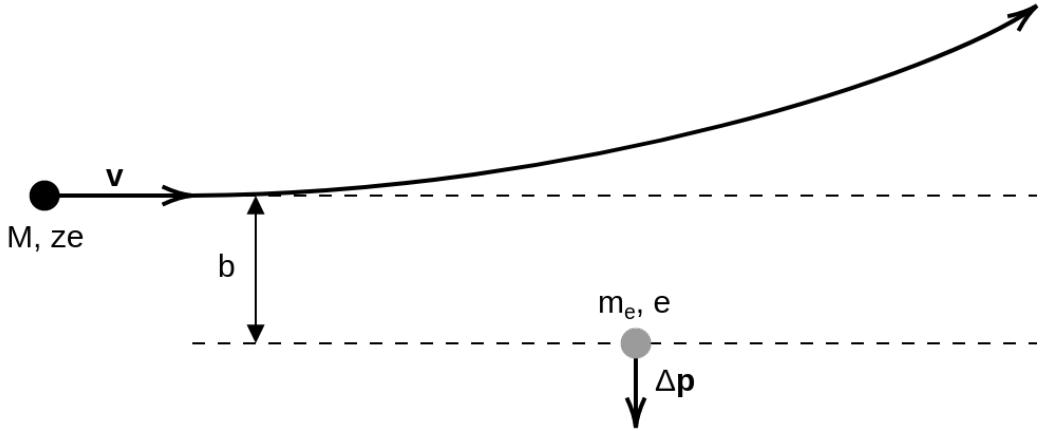
- 1) lake čestice (elektroni i pozitroni),
- 2) teške čestice (mioni, pioni, protoni, ...).

U sklopu ovoga rada bit će analizirana teorija gubitka energije teških čestica MeV-skih energija pri prolasku kroz materijal. Mehanizam koji dominira u gubitku energije za čestice takvih energija je neelastično raspršenje na atomskim elektronima. Pri tom raspršenju energija se prenosi s nabijene čestice na atom što uzrokuje njegovo pobuđenje ili ionizaciju. Količina energije koju čestica izgubi u svakom pojedinom sudaru mala je u odnosu na ukupnu energiju čestice, no zbog velikog broja atoma u materijalu broj sudara toliko je velik da je ukupna energija koju čestica izgubi po jedinici duljine razmjerno velika. Elastično raspršenje na jezgri atoma isto je moguće, no taj efekt je za upadne čestice MeV-skih energija zanemariv.

2.1 Bethe-Bloch formula

Neelastično raspršenje na elektronima u atomu odvija se s određenom vjerojatnošću, odnosno po prirodi je statističko te će zbog toga broj tih raspršenja, a samim time i ukupna energija koju čestica izgubi, u jedinici duljine varirati. No, kako se po nekoj makroskopskoj jedinici duljine dogodi razmjerno mnogo neelastičnih raspršenja, može se prepostaviti da će te varijacije biti malene te ima smisla definirati prosječni gubitak energije po jedinici duljine koji se još naziva i *zaustavna moć*. Za analizu zaustavne moći dovoljno je razmotriti pojednostavljeni slučaj u kojem atomski elektron na kojem se prije raspršenja miruje te se može smatrati slobodnim. Na slici 2.1 prikazana je shema raspršenja teške čestice na atomskom elektronu.

Ako teška čestica mase $M \gg m_e$ i naboja Ze prolazi brzinom v kroz neki materijal



Slika 2.1: Shematski prikaz raspršenja teške čestice na atomskom elektronu. Preuzeto iz [12, str. 60].

i naleti na neki atomski elektron, koji miruje u laboratorijskom sustavu na udaljenosti b od njezine putanje, čestica će se raspršiti na elektronu. Kako je masa čestice puno veća od mase elektrona, nema značajnije promjene u smjeru gibanja čestice kroz materijal, odnosno prijenos impulsa je malen. U tom slučaju, čestica djeluje silom na mirujući elektron što uzrokuje izmjenu impulsa između čestice i elektrona koja se može izračunati iz:

$$\Delta p = \int_{-\infty}^{\infty} F(t) dt. \quad (2.1)$$

$F(t)$ je u ovom slučaju coulombska sila koja iznosi:

$$F(t) = k_e \frac{ze^2}{|\mathbf{r}(t)|^3} \mathbf{r}(t). \quad (2.2)$$

gdje je $\mathbf{r}(t)$ vektor relativnog položaja elektrona u odnosu na tešku česticu, a k_e je tzv. coulombska konstanta. Dalje u izvodu koristit će se tzv. elektrostatske jedinice u kojima je $k_e = 1$. Uvrštavanjem jedn. (2.2) u jedn. (2.1) dobiva se:

$$\Delta p = ze^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\mathbf{r}(t)}{|\mathbf{r}(t)|^3} dt. \quad (2.3)$$

Vektor $\mathbf{r}(t)$ može se rastaviti na komponentu okomitu brzini čestice i komponentu paralelnu brzini čestice:

$$\mathbf{r}(t) = b\hat{\mathbf{r}}_{\perp} + vt\hat{\mathbf{r}}_{\parallel}. \quad (2.4)$$

S vektorom $\mathbf{r}(t)$ definiranim u jedn. (2.4) izmjena impulsa Δp u jedn. (2.3) može se

rastaviti na komponente:

$$\Delta p_{\perp} = ze^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{b}{(b^2 + v^2 t^2)^{3/2}} dt, \quad (2.5)$$

$$\Delta p_{\parallel} = ze^2 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{vt}{(b^2 + v^2 t^2)^{3/2}} dt. \quad (2.6)$$

Rješenja integrala u jedn. (2.5) i (2.6) glase:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{b}{(b^2 + v^2 t^2)^{3/2}} dt = \frac{2}{bv}, \quad (2.7)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{vt}{(b^2 + v^2 t^2)^{3/2}} dt = 0. \quad (2.8)$$

iz čega slijedi da je prijenos impulsa:

$$\Delta p = \frac{2ze^2}{bv}. \quad (2.9)$$

Stoga je kinetička energija koju elektron primi tijekom interakcije:

$$T = \frac{\Delta p^2}{2m_e} = \frac{2z^2 e^4}{m_e v^2 b^2}. \quad (2.10)$$

Sada, ako je n_e gustoća elektrona tada će ukupna energija dE koju teška čestica izgubi u volumenu dV biti:

$$-dE = T \cdot n_e dV, \quad n_e = \rho N_A \frac{Z}{A}, \quad (2.11)$$

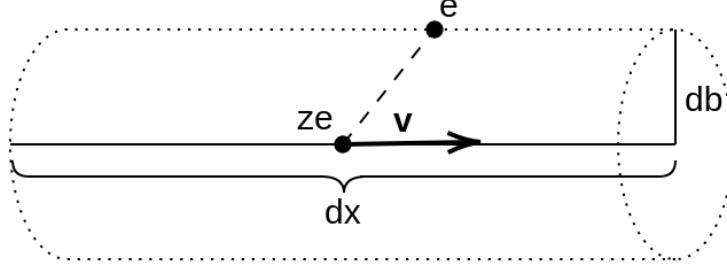
gdje je ρ gustoća materijala, $N_A = 6.022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ Avogadrova konstanta, Z njegov atomski broj, a A njegov maseni broj. Volumen dV , prikazan na slici 2.2, može se izraziti kao:

$$dV = 2\pi b db dx. \quad (2.12)$$

Uvrštavanjem jedn. (2.10) i (2.12) u jedn. (2.11), dobiva se:

$$-dE = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e v^2} n_e \frac{db}{b} dx. \quad (2.13)$$

Kako bi se izračunala zaustavna moć, odnosno izgubljena energija po jedinici duljine, potrebno je integrirati jedn. (2.13) po parametru raspršenja b na intervalu $[b_{\min}, b_{\max}]$ na kojima pretpostavke napravljene na početku izvoda ispravno opisuju raspršenje



Slika 2.2: Shema volumnog elementa dV . Preuzeto iz [11, str. 22].

teške čestice na atomskom elektronu. Zaustavna moć je stoga dana jednadžbom:

$$-\frac{dE}{dx} := S(E) = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e v^2} n_e \int_{b_{\min}}^{b_{\max}} \frac{db}{b} = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e v^2} n_e \ln\left(\frac{b_{\max}}{b_{\min}}\right). \quad (2.14)$$

Sada je potrebno odrediti što predstavljaju b_{\min} i b_{\max} . Iz jedn. (2.10) može se vidjeti da je energija koju elektron primi pri raspršenju obrnuto proporcionalna parametru raspršenja b te će stoga b_{\min} predstavljati slučaj kada elektron primi maksimalnu količinu energije pri raspršenju, odnosno:

$$T_{\max} = \frac{2z^2 e^4}{m_e v^2 b_{\min}^2}. \quad (2.15)$$

Taj prijenos energije odgovarat će slučaju kada u sustavu u kojem teška čestica miruje elektron direktno naleti na česticu te promijeni smjer. Nakon sudara će elektron u sustavu u kojem teška čestica miruje imati ukupnu energiju i impuls:

$$\begin{aligned} E'_{\max} &= \gamma m_e c^2, \\ p'_{\max} &= \gamma \beta m_e c, \\ \gamma &= \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}}, \quad \beta = \frac{v}{c}. \end{aligned}$$

Prelaskom laboratorijski sustav maksimalni prijenos energije bit će:

$$T_{\max} = \gamma(E'_{\max} + \beta c p'_{\max}) - m_e c^2 = 2\gamma^2 \beta^2 m_e c^2. \quad (2.16)$$

Također, valja napomenuti da jedn. (2.16) nije egzaktna već postoji korekcija u nazivniku oblika:

$$T_{\max} = \frac{2\gamma^2 \beta^2 m_e c^2}{1 + 2\frac{m_e}{M} \sqrt{1 + \gamma^2 \beta^2} + \frac{m_e^2}{M^2}}, \quad (2.17)$$

koja se uz pretpostavku $m_e \ll M$ reducira u oblik koji je dan u jedn. (2.16). Iz jednačavanjem jedn. (2.15) i (2.16) dobiva se:

$$\frac{2z^2e^4}{m_e v^2 b_{\min}^2} = 2\gamma^2 \beta^2 m_e c^2,$$

iz čega slijedi da je b_{\min} :

$$b_{\min} = \frac{ze^2}{\gamma \beta^2 m_e c^2}, \quad (2.18)$$

gdje su svi slučajevi u kojima se pojavljuje v zamijenjeni s βc .

Kako bi se odredio b_{\max} , potrebno je razmotriti vezanje elektrona u atomu. Vezanje se može karakterizirati prosječnom frekvencijom $\langle \omega \rangle$, odnosno periodom $\tau = 2\pi / \langle \omega \rangle$. Teška čestica pri svom prolasku stvara vremenski ovisno elektromagnetsko polje na vremenskoj skali [13, str. 627]:

$$\Delta t \approx \frac{b}{\gamma v}. \quad (2.19)$$

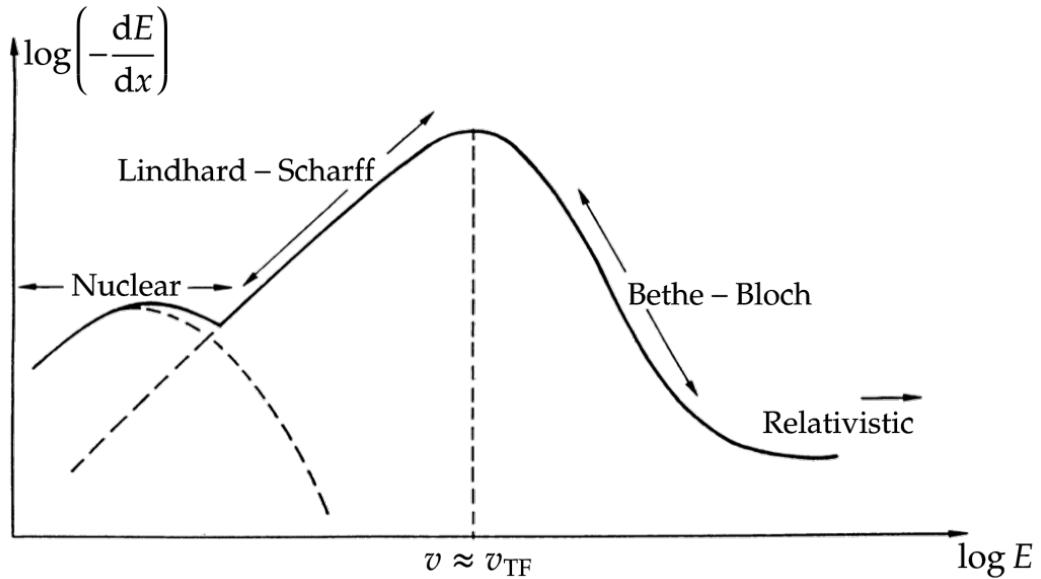
Ako je to karakteristično vrijeme Δt dugo u usporedbi s periodom τ onda će se atom ponašati adijabatski, odnosno polako će se širiti i skupljati tijekom trajanja interakcije. U tom je slučaju dominantan proces u kojem upadna čestica gubi energiju elastično raspršenje na atomskim jezgrama u materijalu, kao što je prikazano na slici 2.3. S druge strane, ako je Δt dovoljno kratak, odnosno kraći od perioda τ , tada se atomski elektron može aproksimirati kao slobodni elektron. Granična vrijednost je $\Delta t / \tau \approx 1$ iznad koje neće biti značajnije interakcije između teške čestice i atomskih elektrona. Stoga maksimalni parametar raspršenja b_{\max} glasi:

$$b_{\max} \approx \gamma v \tau = \frac{2\pi \gamma v}{\langle \omega \rangle}. \quad (2.20)$$

Naposlijetu, uvrštavanjem jedn. (2.18) i (2.19) u jedn. (2.14) dobiva se:

$$S(E) = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e c^2 \beta^2} n_e \ln \left(\frac{\gamma^2 \beta^2 m_e c^2}{\eta \hbar \langle \omega \rangle} \right), \quad \eta = \frac{ze^2}{hv}. \quad (2.21)$$

Parametar η se može shvatiti kao karakterizacija raspršenja: $\eta \gg 1$ predstavlja klasičnu granicu, dok $\eta \sim 1$ predstavlja kvantnu granicu. Jedn. (2.21) je u osnovi Bohrova klasična formula za zaustavnu moć koja je dobra za alfa čestice i teške jezgre, dok se za čestice lakše od alfa čestice mora uzeti u obzir i kvantne efekte.



Slika 2.3: Log-log graf ovisnosti zaustavne moći o energiji upadne čestice. Preuzeto iz: [15, str. 30].

Bethe i Bloch su prvi napravili izvod zaustavne moći koristeći argumente kvantne mehanike te su proširili domenu jedn. (2.21) kako bi obuhvaćala i protone i lake čestice. U čast njima formula za zaustavnu moć se naziva i *Bethe-Bloch formula* te glasi [11, str. 24]:

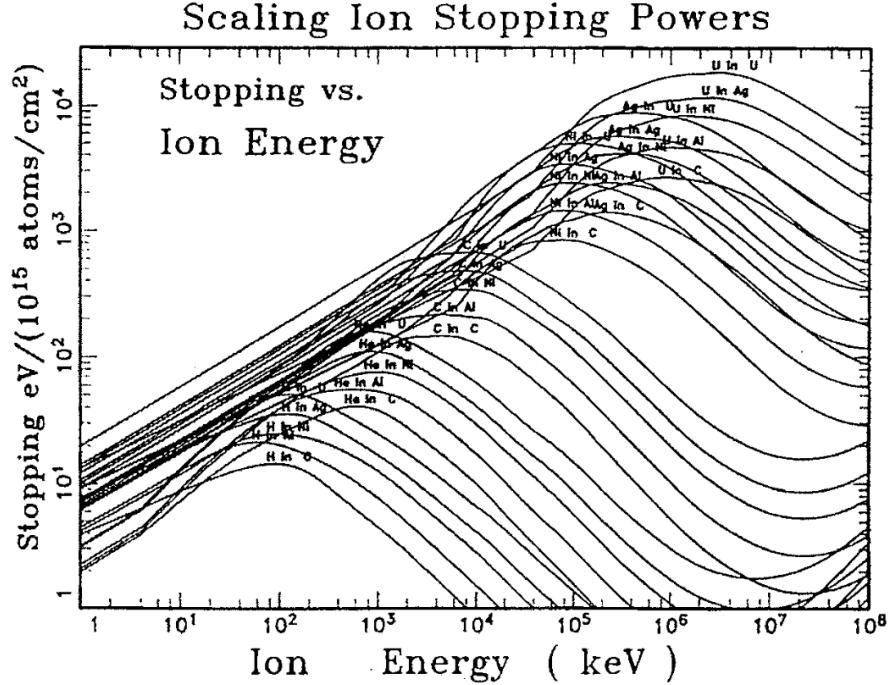
$$S(E) = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e c^2 \beta^2} n_e \left[\ln\left(\frac{2\gamma^2 \beta^2 m_e c^2}{I}\right) - \beta^2 \right], \quad (2.22)$$

gdje je $I = \hbar\langle\omega\rangle$ tzv. *srednji ionizacijski potencijal* koji predstavlja glavni parametar u Bethe-Bloch formuli koji ovisi o vrsti materijala, odnosno o atomskom broju Z . Graf na slici 2.4 prikazuje ovisnost zaustavne moći o energiji upadnog snopa za različite kombinacije snopa i mete.

Funkcionalnu ovistnost $I(Z)$ je vrlo teško odrediti analitički, no iz podataka do bivenih mjerjenjem zaustavne moći moguće je napraviti semi-empirijski model prilagodbom na eksperimentalne rezultate. Jedan od tih modela glasi [11, str. 25]:

$$I [\text{eV}] = \begin{cases} 12Z + 7, & Z < 13 \\ 9.76Z + 58.8Z^{-0.19}, & Z \geq 13 \end{cases}. \quad (2.23)$$

Model prikazan u jedn. (2.23) nije u potpunosti egzaktan jer zanemaruje efekte „zatvaranja“ valentne atomske ljske što se manifestira u odstupanjima u izmjerenim vrijednostima srednjeg ionizacijskog potencijala za pojedine elemente od onih koje



Slika 2.4: Graf zaustavne moći u ovisnosti o energiji upadnog snopa za različite kombinacije snopa i mete. Preuzeto iz [14, str. 1-2].

su predviđene tim modelom [16]. Iz tog razloga su Sternheimer i sur. [17] napravili iscrpu tablicu srednjih ionizacijskih parametara i mnogih drugih parametara bitnih pri proučavanju Bethe-Bloch modela zaustavne moći za razne elemente i spojeve. Valja napomenuti kako na nižim energijama, odnosno kada je $\Delta t > \tau$, aproksimacije koje su upotrijebljene na početku izvoda više nisu valjane, te Bethe-Bloch model postaje neispravan. Čestice s tako niskim brzinama počinju „hvataći“ elektrone, odnosno imaju efektivno manji (zasjenjeni) naboj, a sami elektroni se više ne mogu aproksimirati kao slobodni, već se mora uzeti u obzir i njihovo vezanje u atomu. Lindhard i Schäff [18] su uz pomoć vrlo jednostavne aproksimacije uspjeli modelirati ponašanje čestica na niskim energijama te su pokazali da zaustavna moć u tom slučaju postaje ovisna o brzini, $dE/dx \propto \log(1/v)$, za razliku od Bethe-Bloch modela u kojem je zaustavna moć bila obrnuto proporcionalna energiji, odnosno $\log(v^2)$. Granica razgraničenja tih dvaju modela, kao što je prikazano na slici 2.3, je tzv. *Thomas-Fermi brzina* v_{TF} koja je definirana kao [15, str. 31]:

$$v_{TF} = v_0 Z^{2/3}, \quad (2.24)$$

gdje je $v_0 = 2.2 \cdot 10^6$ m/s. Spuštanjem na još niže energije, interakcijom dominiraju zasjenjeni elektrostatski potencijali.

2.2 Energijski rasap

Kako je i prethodno spomenuto, raspršenje nabijene čestice na atomskom elektronu je ustvari slučajan događaj te će stoga energija koju nabijena čestica izgubi po jedinici duljine varirati oko te srednje vrijednosti za svaku pojedinu česticu. Uključivanjem tih varijacija odnosno tzv. *energijskog rasapa* (engl. energy straggling) stvara se potpuna slika interakcije nabijene čestice s materijom. Sam izračun distribucije gubitka energije za danu debljinu materijala nije jednostavan te se tipično dijeli na nekoliko slučajeva, ovisno o postotku početne energije koju čestica izgubi pri prolasku [15, str. 33-37]:

- 1) tanki materijali: $\Delta E/E < 1\%$
- 2) debeli materijali: $1\% \leq \Delta E/E \leq 20\%$
- 3) vrlo debeli materijali: $\Delta E/E > 20\%$

U ovom će se radu razmatrati samo drugi slučaj koji predstavlja situaciju kada je broj raspršenja u materijalu velik, no ukupni gubitak energije je i dalje relativno malen u usporedbi s početnom energijom čestice. U tom slučaju korisno je upotrijebiti tzv. *centralni granični teorem* (engl. central limit theorem) koji kaže da normalizirana suma N nezavisnih slučajnih varijabli koje prate istu distribuciju vjerojatnosti teži k normalnoj (Gaussovoj) distribuciji kada $N \rightarrow \infty$ [19, str. 3]:

$$f(\Delta x, \Delta E) \propto \exp\left(-\frac{(\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2}{2\Omega^2}\right), \quad (2.25)$$

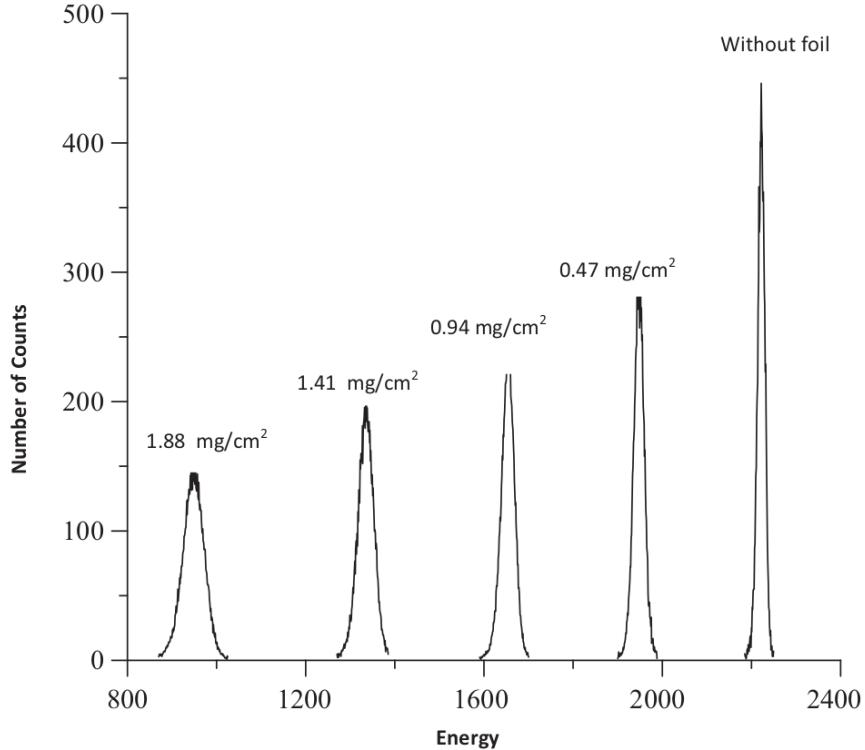
gdje je Δx debljina uzorka, ΔE gubitak energije u materijalu, $\langle \Delta E \rangle$ prosječan gubitak energije u materijalu, a Ω standardna devijacija.

Idealno, energijski rasap bio bi jedini doprinos širini konačne energetske distribucije, no u stvarnosti već sami detektori čestica nemaju beskonačno malu razlučivost pa je stoga potrebno definirati tzv. *ukupnu razlučivost* Ω_{tot} koja uzima u obzir sve efekte koji doprinose energetskoj razlučivosti eksperimentalnog postava: konačnu razlučivost detektora, energijski rasap, energijsku definiciju snopa, itd. Svi ti različiti efekti doprinose ukupnoj razlučivosti eksperimentalnog postava kao [21, str. 21]:

$$\Omega_{\text{tot}}^2 = \Omega_{\text{det}}^2 + \Omega_{\text{str}}^2 + \Omega_{\text{beam}}^2 + \dots, \quad (2.26)$$

gdje je Ω_{det} razlučivost detektora, Ω_{str} energijski rasap, a Ω_{beam} energijsku definiciju

snopa. Na slici 2.5 se može vidjeti širenje energetske distribucije pri prolasku iona kisika kroz mete različite debljine. Također, jasno se vidi da i kada snop ne prolazi kroz metu postoji neka širina u energetskoj distribuciji što upućuje na konačnu rezoluciju detektora.



Slika 2.5: Energetski spektri iona kisika energije 30 MeV nakon prolaska kroz membrane PET polimera različitih debljina. Preuzeto iz [22].

Ako se za slučajnu varijablu uzme T , odnosno gubitak energije pri jednom raspršenju, te ako se pretpostavi da je taj gubitak malen u usporedbi sa širinom konačne distribucije gubitka energije, odnosno $\Omega \gg T_{\max}$ gdje je T_{\max} maksimalni prijenos energije pri raspršenju, tada će ukupni gubitak energije biti suma nezavisnih slučajnih varijabli T . Kako sve slučajne varijable T imaju istu distribuciju vjerojatnosti, zbog prepostavke o malenom gubitu energije u svakom pojedinom raspršenju, tada je moguće primijeniti centralni granični teorem (pod pretpostavkom da je broj raspršenja N dovoljno velik) iz kojeg slijedi da je distribucija gubitka energije biti Gaussova distribucija kao u jedn. (2.25). Prolazeći kroz materijal čestica s njim interagira na razne načine. Ako se svaki pojedini proces označi s indeksom i tada će za i -ti proces gubitak

energije biti T_i . Stoga će ukupni gubitak energije ΔE u materijalu debljine Δx biti:

$$\Delta E = \sum_i N_i T_i, \quad (2.27)$$

gdje je N_i broj događaja i -tog tipa. Koristeći jedn. (2.27) dobiva se da je prosječni gubitak energije:

$$\langle \Delta E \rangle = \sum_i \langle N_i \rangle T_i. \quad (2.28)$$

Uzimanjem razlike jedn. (2.27) i (2.28) dobiva se:

$$\Delta E - \langle \Delta E \rangle = \sum_i (N_i - \langle N_i \rangle) T_i. \quad (2.29)$$

Varijanca će stoga biti:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = \overline{(\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2} = \sum_{i,j} \overline{(N_i - \langle N_i \rangle)(N_j - \langle N_j \rangle)} T_i T_j. \quad (2.30)$$

Iz jedn. (2.30) se vidi da varijanca ima dvije vrste članova, one u kojima je $i = j$ i one u kojima je $i \neq j$, odnosno:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = \sum_i \overline{(N_i - \langle N_i \rangle)^2} T_i^2 + \sum_{i,j \neq i} \overline{(N_i - \langle N_i \rangle)(N_j - \langle N_j \rangle)} T_i T_j. \quad (2.31)$$

Različiti procesi međusobno nezavisni događaji pa se članove $i \neq j$ može zapisati kao:

$$\sum_{i,j \neq i} \overline{(N_i - \langle N_i \rangle)(N_j - \langle N_j \rangle)} T_i T_j = \sum_i \overline{(N_i - \langle N_i \rangle)} T_i \times \sum_{j \neq i} \overline{(N_j - \langle N_j \rangle)} T_j.$$

Međutim, kako je $\overline{(N_i - \langle N_i \rangle)} = 0$ tada slijedi da samo članovi $i = j$ u jedn. (2.31) ne iščezavaju. Nadalje, ako se pretpostavi da su vjerojatnosti odvijanja pojedinog procesa određene Poissonovom distribucijom jedn. (2.31) postaje [12, str. 34]:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = \sum_i \langle N_i \rangle T_i^2 = n_e \Delta x \sum_i T_i^2 \sigma_i, \quad (2.32)$$

gdje je n_e gustoća elektrona u materijalu, a σ_i udarni presjek za i -ti proces. U

jedn. (2.32) je moguće „prijeći” sa sume na integral:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = n_e \Delta x \int T^2 d\sigma, \quad (2.33)$$

gdje je sada $d\sigma$ diferencijalni udarni presjek. Valja napomenuti da je jedn. (2.32) ispravna pod pretpostavkom da su pojedini procesi zaista nezavisni jedan od drugog što je slučaj u medijima koji su rijetki, primjerice plinu. No, u slučaju gustih medija, primjerice krutina i tekućina, pretpostavka o nezavisnosti pojedinih procesa nije sasvim ispravna te stoga postoje i razni korelacijski efekti koje je potrebno uzeti u obzir.

Diferencijalni udarni presjek se može zapisati preko parametra raspršenja b kao:

$$d\sigma = 2\pi b db. \quad (2.34)$$

Uvrštavanjem jedn. (2.10) i (2.34) u jedn. (2.33) dobiva se:

$$\begin{aligned} \Omega_{\text{str}}^2 &= n_e \Delta x \int_{b_{\min}}^{b_{\max}} \left(\frac{2z^2 e^4}{m_e v^2 b^2} \right)^2 2\pi b db = \\ &= 8\pi \frac{z^4 e^8}{(m_e v^2)^2} n_e \Delta x \int_{b_{\min}}^{b_{\max}} \frac{db}{b^3} = \\ &= 4\pi \frac{z^4 e^8}{(m_e v^2)^2} n_e \Delta x \left(\frac{1}{b_{\min}^2} - \frac{1}{b_{\max}^2} \right), \end{aligned}$$

Pod integralom u jedn. (2.33) se pojavljuje faktor T^2 koji implicira da će varijancom dominirati procesi s malim parametrom raspršenja b . Stoga je razumno prepostaviti da faktor $1/b_{\max}^2$ predstavlja samo malenu korekciju u gornjem izrazu pa se može zanemariti, odnosno:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = 4\pi \frac{z^4 e^8}{(m_e v^2)^2} n_e \Delta x \frac{1}{b_{\min}^2}. \quad (2.35)$$

Uvrštavanjem jedn. (2.18) u jedn. (2.35), uz aproksimaciju $\gamma \approx 1$, slijedi izraz:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = 4\pi z^2 e^4 n_e \Delta x. \quad (2.36)$$

Jedn. (2.36) je tzv. Bohrova formula za energijski rasap koja vrijedi za nerelativističke

teške čestice, ali ju je moguće poopćiti i na relativističke čestice kao [11, str. 49]:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = \frac{1 - \beta^2/2}{1 - \beta^2} 4\pi z^2 e^4 n_e \Delta x. \quad (2.37)$$

Također, Lindhard i Scharff [18] su uveli korekcije na Bohrovu formulu za slučaj čestica niskih energija:

$$\Omega_{\text{str}}^2 = u(X) \cdot 4\pi z^2 e^4 n_e \Delta x. \quad (2.38)$$

Funkcija $u(X)$ je Lindhard-Scharff korekcijski faktor koji glasi:

$$u(X) = \begin{cases} 0.68X^{1/2} - 0.008X^{3/2}, & X \leq 3 \\ 1, & X > 3 \end{cases}, \quad (2.39)$$

gdje je varijabla X bezdimenzionalna veličina ovisna o atomskom broju materijala Z , početnoj energiji čestice E izraženoj u MeV-ima i njenoj mase M izraženoj u atomskim jedinicama mase [15, str. 35]:

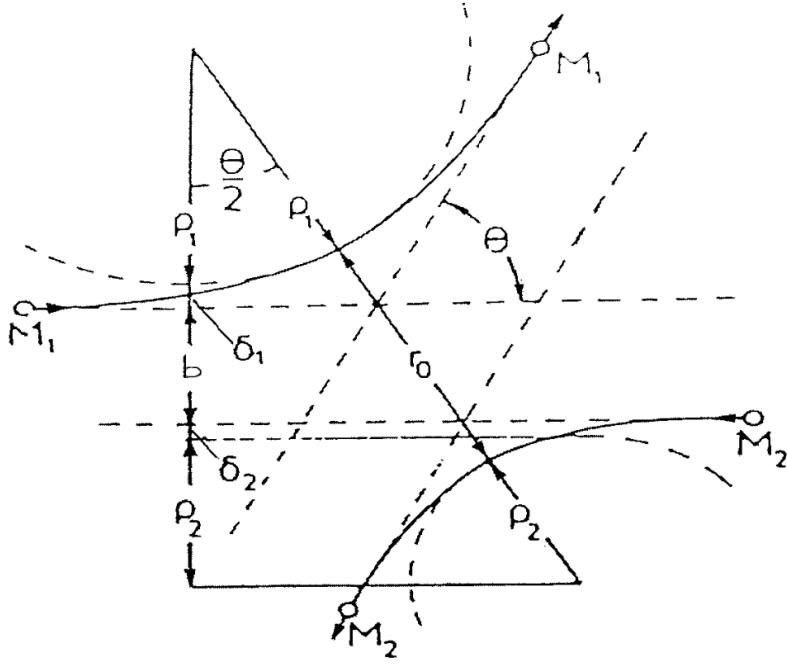
$$X \approx \frac{40}{Z} \frac{E \text{ [MeV]}}{M \text{ [amu]}}. \quad (2.40)$$

2.3 SRIM

Programski paket SRIM u sebi sadrži programe koji računaju zaustavnu moć i doseg (engl. range) iona energije do 2 GeV/amu u različitim materijalima. U srži ovog paketa je program TRIM (engl. Transport of Ions in Matter) koji pomoću Monte Carlo metode računa interakcije između gibajućih iona i meta koji je utemeljen na radu Biersacka i Haggmarka [23]. Program koristi nekoliko fizikalnih aproksimacija koje ubrzavaju izračune, ali da pritom čuvaju preciznost, od kojih su dvije najvažnije:

- a) tzv. čarobna formula (engl. magic formula) za određivanje atom-atom sudara,
- b) koncept srednjeg slobodnog puta (engl. mean free flight path) između sudara.

Na slici 2.6 je prikazano raspršenje čestice mase M_1 energije E na mirujućoj čestici mase M_2 u sustavu centra mase tih čestica. Na skici su također označene veličine koje su bitne pri opisivanju raspršenja: parametar raspršenja b , minimalna udaljenost među česticama r_0 , radijusi zakrivljenosti putanja ρ_1 i ρ_2 te tzv. „korekcijski članovi”



Slika 2.6: Skica putanja raspršenih čestica u sustavu centra mase. Preuzeto iz [14, str. 7-4].

δ_1 i δ_2 . Iz trokuta prikazanog na slici moguće je definirati kut raspršenja θ kao:

$$\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{\rho + b + \delta}{\rho + r_0}, \quad \rho := \rho_1 + \rho_2, \quad \delta := \delta_1 + \delta_2. \quad (2.41)$$

Minimalnu udaljenost među česticama r_0 je moguće izračunati iz relacije [14, str. 7-3]:

$$1 - \frac{V(r_0)}{E_{CM}} - \left(\frac{b}{r_0}\right)^2 = 0, \quad (2.42)$$

gdje je $V(r_0)$ potencijal interakcije među česticama izvrijednjen u r_0 , a $E_{CM} = \frac{E}{1+M_1/M_2}$ je ukupna energija u sustavu centra mase. Radijus zakrivljenosti ρ je također moguće izraziti pomoću $V(r)$ i E_{CM} kao [14, str. 7-4]:

$$\rho := \rho_1 + \rho_2 = -2 \frac{|E_{CM} - V(r_0)|}{\left.\frac{dV(r)}{dr}\right|_{r_0}}. \quad (2.43)$$

Naposljetku, ako se sve udaljenosti definiraju u jedinicama *udaljenosti zasjenjenja* (engl. screening length) a definiranoj kao [14, str. 7-5]:

$$a [\text{\AA}] = \frac{0.4683}{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}, \quad (2.44)$$

tada se jedn. (2.41) može izraziti kao:

$$\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{B + R_C + \Delta}{R_0 + R_C}, \quad (2.45)$$

gdje je $B = b/a$, $R_C = \rho/a$, $\Delta = \delta/a$ i $R_0 = r_0/a$. Jedn. (2.45) se naziva *čarobna formula*, a razlog zašto za epitet „čarobna“ leži u tome što omogućava brzo rješavanje problema raspršenja s velikom preciznošću [23]. Svi parametri u jedn. (2.45) su određeni iz kinematike procesa, no korekcijski parametar Δ ovisi o odabiru interakcijskog potencijala $V(r)$ te ga je stoga potrebno odrediti empirijski prilagodbom čarobne formule na podatke o raspršenju za željeni potencijal.

Druga stvar na kojoj je TRIM program temeljen je koncept *srednjeg slobodnog puta* λ koji je definiran kao prosječna udaljenost između dva raspršenja. Kako udarni presjek σ predstavlja vjerojatnost da se jedno raspršenje dogodi lako se može zaključiti da srednji slobodni put mora biti obrnuto proporcionalan udarnom presjeku:

$$\lambda \propto \frac{1}{n\sigma}, \quad (2.46)$$

gdje je n brojčana gustoća čestica na kojima se odvija raspršenje. Dimenzionalnom analizom izraza (2.46) može se utvrditi da je desna strana proporcionalnosti:

$$\left[\frac{1}{n\sigma} \right] = \frac{1}{L^{-3} \times L^2} = L.$$

Iz toga se može zaključiti da će konstanta proporcionalnosti koja će povezivati lijevu i desnu stranu izraza (2.46) biti bezdimenzionalna. Stoga, najjednostavniji izraz srednjeg slobodnog puta glasi [24, str. 69]:

$$\lambda = \frac{1}{n\sigma}. \quad (2.47)$$

Određivanjem λ iz jedn. (2.47) moguće je odrediti skalu na kojoj raspršenja projektila koja se odvijaju na udaljenosti manjoj od srednjeg slobodnog puta prenose zanemarivu količinu energije na metu.

3 Eksperimentalni postav

Mjerenja napravljena u sklopu ovog diplomskog rada izvedena su u Laboratoriju za interakcije ionskih snopova na Institutu Ruđer Bošković (IRB-u).

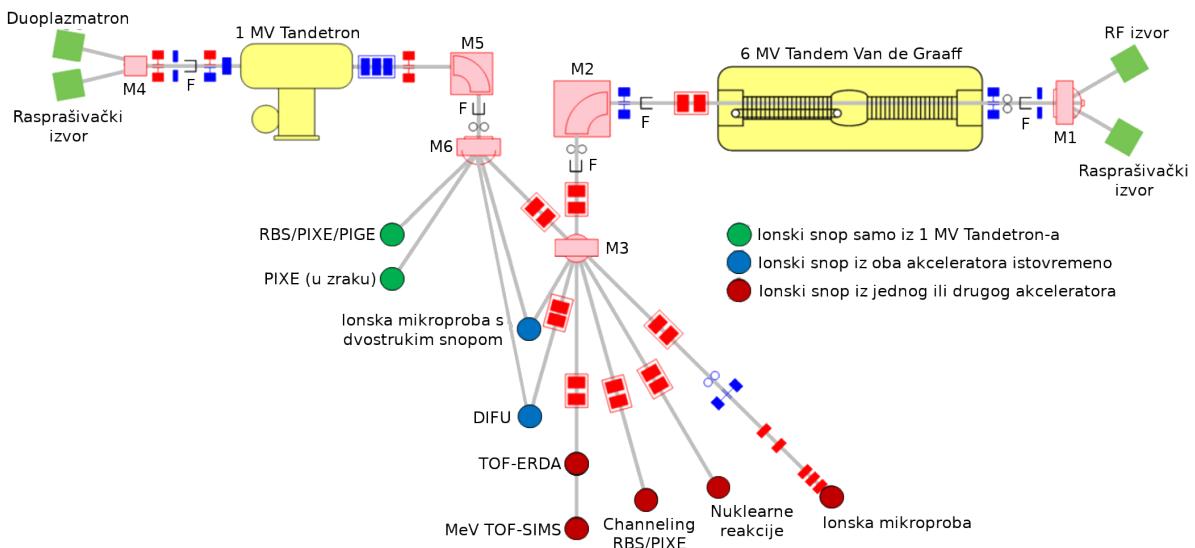
3.1 Akceleratorski sustav

Laboratorij je opremljen s dva elektrostatska akceleratora: 6.0 MV EN Tandem Van de Graaff i 1.0 MV Tandetron akcelerator, koji snopove šalju u 9 eksperimentalnih linija prikazanih na slici 3.1. Tandem Van de Graaff akcelerator opremljen je s tri ionska izvora:

- radiofrekventni izvor s izmjenom naboja Alphatross¹ (za He^-),
- rasprašivački izvor MC-SNICS² (za H^- , Li^- , itd.).

S druge strane, Tandetron akcelerator opremljen je s dva ionska izvora:

- duoplazmatron³ s izmjenom naboja pomoću natrijeve pare (za He^-),
- rasprašivački izvor SNICS⁴ (za H^- , Li^- , itd.).



Slika 3.1: Shematski prikaz akceleratorskog sustava u Laboratoriju za interakcije ionskih snopova na IRB-u. Preuzeto s: [25].

Ionski snop željene energije i naboja se postiže tako da se u jednom od ionskih izvora proizvode negativni ioni koji se ubrzavaju do visoko-naponskog terminala unu-

¹<https://www.pelletron.com/products/rf-charge-exchange/>

²<https://www.pelletron.com/products/mc-snics/>

³<https://www.highvolteng.com/media/Leaflets/DIS-4.pdf>

⁴<https://www.pelletron.com/products/snics/>

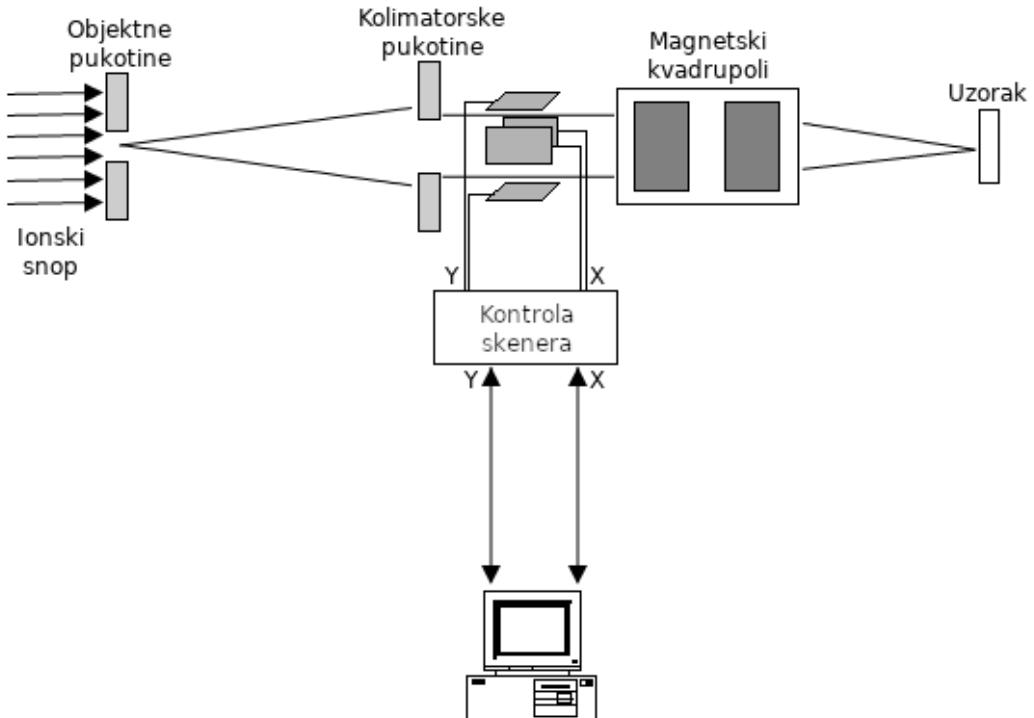
tar akceleratora. Na terminalu se pomoću tzv. *stripper plina* (mješavine plinova N₂ i CO₂ na niskom tlaku) „skidaju” dva ili više elektrona s negativnih iona proizvedenih na izvoru te se ti, sada pozitivni, ioni ubrzavaju od terminala prema drugom kraju akceleratora. Kako prilikom procesa „skidanja” elektrona postoji određena raspodjela vjerojatnosti nastanka pojedinih nabojnih stanja tih iona, ione željenog naboja i energije je potrebno „filtrirati” od ostalih iona u snopu. To se radi pomoću tzv. *analizatorskog magneta* (M2/M5 na slici 3.1) na kojem se pomoću činjenice da za određenu jakost magnetskog polja B na različita nabojna stanja iona q djeluje sila različite jakosti, $F_L = qvB$. Stoga se može naštimavanjem jakosti magnetskog polja zakrenuti samo ione sa željenom tzv. *magnetskom krutosti* (engl. magnetic rigidity), $R = B\rho \sim \sqrt{mE}/q$. Nakon što prođe kroz analizatorski magnet snop se fokusira korištenjem kvadrupolnih magneta te dolazi do tzv. *preklopog magneta* (engl. switching magnet, M3/M6 na slici 3.1) koji snop zakreće u željenu eksperimentalnu liniju. Struja, odnosno naboј u jedinici vremena mjeri se prije ulaska u akcelerator, po izasku iz akceleratora, nakon zakretanja analizatorskim magnetom te naposlijetu u samim eksperimentalnim komorama pomoću tzv. *Faradayeve čašice* (F na slici 3.1).

U ovom radu korišteni su snop protona energija između 1.6 MeV i 2 MeV u koracima od 0.1 MeV koji je bio proizведен na 1.0 MV Tandetron akceleratoru te snop protona energija između 2 MeV i 6 MeV u koracima od 0.2 MeV koji je bio proizведен na 6.0 MV EN Tandem Van de Graaff akceleratoru.

3.2 Ionska mikroproba

Eksperimentalna linija koja je korištena u ovom radu je ionska mikroproba čija je shema prikazana na slici 3.2. Ionski snop prvo prolazi kroz tzv. *objektne pukotine* (engl. object slits) koje sužavaju snop, odnosno smanjuju struju snopa te definiraju veličinu objekta koji se fokusira. Zatim, suženi snop prolazi kroz *kolimatorske pukotine* (engl. collimator slits) koje kolimiraju snop, odnosno zrake snopa čine paralelnima i dodatno sužavaju snop. Snop se zatim može fokusirati do mikrometarskih dimenzija ($1 - 2 \mu\text{m}$) sustavom elektromagnetskih leća (kvadrupola) koji mogu biti konfigurirani u dublet ili triplet. Naposlijetu, konačna dimenzija snopa na meti ovisi o omjeru veličine prozora na objektnim pukotinama i demagnifikaciji na EM lećama.

Ionskom mikroprobom je moguće raditi dvodimenzionalne mape uzorka pomoću



Slika 3.2: Shematski prikaz ionske mikroprobe. Preuzeto s: [26].

tzv. *skenera*, odnosno sustava elektromagneta kojim se skenira snop. Skenirano područje može biti ili kvadrat ili neki proizvoljni oblik maksimalne veličine nešto veće od $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ s tipičnom veličinom mape od 128×128 ili 256×256 piksela. Brzina skeniranja se može podešavati između 10 i 100 ms/piksel. Također, mikroproba može raditi u dva načina: visoka struja ($10 - 1000 \text{ pA}$) i niska struja ($< 1 \text{ pA}$), ovisno o potrebama eksperimenta.

Pri mjerenu zaustavne moći u ovom je radu, zbog lakše promjene energije snopa, korišten samo kolimiran snop. Razlog tomu je to da je fokusirani snop potrebno nanovo fokusirati pri svakoj promjeni energije, a kako za mjerenu zaustavne moći rezolucija ne igra ulogu u konačnom rezultatu to bi samo unijelo nepotrebne komplikacije u proces mjerena.

3.3 Dijamantna membrana

Uzorak koji je ispitivan u ovom radu je tanka membrana sintetičkog dijamanta proizvedena tzv. Ar/O₂ jetkanjem [27]. Membrana je montirana na aluminijsku pločicu (v. sliku 3.3) pomoću tzv. karbonske trake (engl. carbon tape) te je zajedno s njom, također pomoću karbonske trake, montirana na nosač koji zatim je ubačen u ekspe-

perimentalnu komoru ionske mikroprobe.

Debljina membrane prvo je određena PIXE (engl. particle-induced x-ray emission) metodom koja je utemeljena na pobuđivanju elektrona u unutarnjim ljuškama atoma te spektralnoj analizi x-zraka emitiranih pri relaksaciji [21, str. 231-245]. Kako bi se proizvele x-zrake, na pločicu s uzorkom je s donje strane postavljena još jedna aluminijска/silicijska pločica čiji se atomi pobuđuju ozračivanjem ionskim snopom, u ovom slučaju protonima energije 2 MeV-a. te oni pri relaksaciji otpuštaju x-zrake određene valne duljine, odnosno energije, koje se zatim detektiraju pomoći Si(Li) detektora [28, str. 467-517]. Shematski prikaz postava za PIXE metodu je prikazan na slici 3.4.

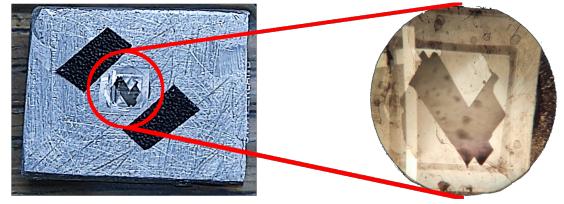
Membrana korištena u eksperimentu ima rupu nepravilnog oblika u sredini (v. sliku 3.3) te će stoga proizvedene x-zrake prolaziti ili kroz membranu ili kroz rupu u membrani. Pri prolasku x-zraka kroz membranu dio njih bit će apsorbiran u njoj te će se intenzitet konačnog snopa x-zraka smanjiti ovisno o debljini membrane. Zakon koji to opisuje je tzv. *Beer-Lambertov zakon* [29]:

$$I(\Delta x) = I_0 e^{-\mu \Delta x} = I_0 e^{-(\mu/\rho) \cdot \rho \Delta x}, \quad (3.1)$$

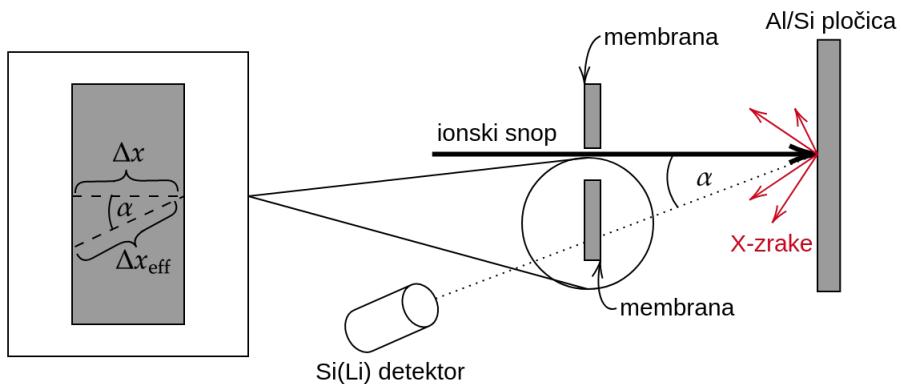
gdje je I_0 početni intenzitet x-zraka, μ je tzv. *apsorpcijski koeficijent*, μ/ρ je *specifični apsorpcijski koeficijent*, ρ je gustoća materijala, a Δx je debljina materijala kroz koji x-zraka prolazi. Shematski prikaz mjerjenja debljine PIXE metodom prikazan je na slici 3.4. Iz slike je jasno vidljivo da debljina membrane kroz koju x-zraka prolazi Δx_{eff} nije stvarna debljina membrane zbog kuta pod kojim je postavljen detektor u odnosu na membranu. Uzimanjem u obzir tog kuta dobiva se da je debljina membrane Δx jednaka:

$$\Delta x = \Delta x_{\text{eff}} \cos \alpha = \cos \alpha \frac{1}{(\mu/\rho) \cdot \rho} \ln \left(\frac{I_0}{I} \right) \quad (3.2)$$

Druga metoda određivanja debljine je bila direktnim mjerjenjem debljine pomoću *pretražne elektronske mikroskopije* (engl. scanning electron microscopy, SEM) koja se

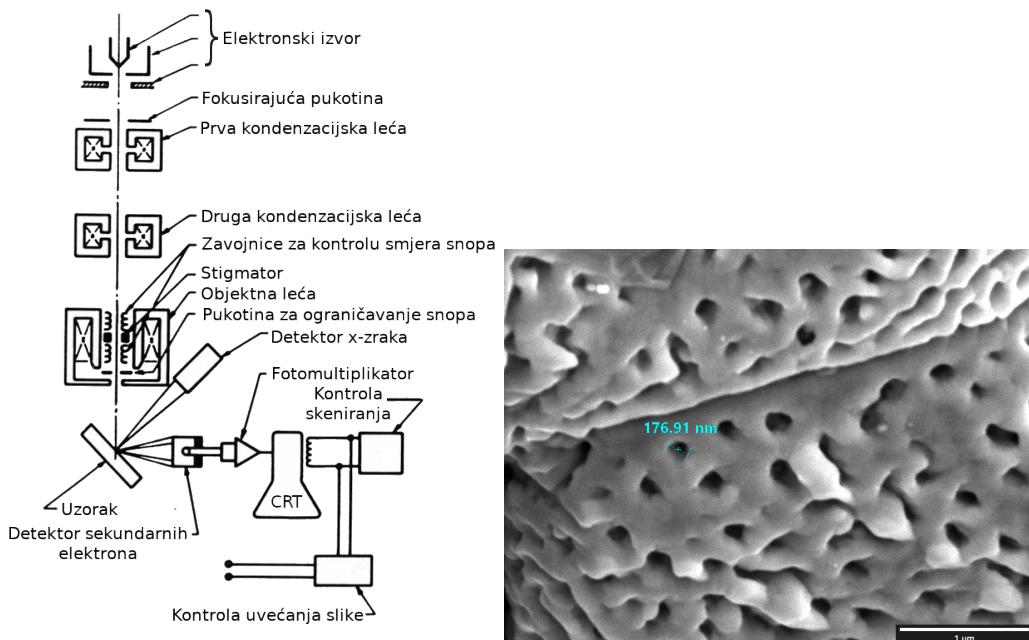


Slika 3.3: Slika uzorka i aluminijске pločice (lijevo) i uvećana slika uzorka (desno).



Slika 3.4: Shematski prikaz određivanja debljine membrane PIXE metodom.

koristi fokusiranim elektronskim snopom u svrhu otkrivanja informacija o površinskoj strukturi, kemijskom sastavu, kristalnoj strukturi i orientaciji materijala od kojih je uzorak sastavljen. Shema SEM-a i primjer slike dobivene pomoću njega prikazani su na slici 3.5. Pretražni elektronski mikroskop korišten u ovom radu je Tescan Vega3 LMU [30] koji se nalazi u sklopu Znanstvenog centra izvrsnosti za napredne materijale i senzore na Institutu za Fiziku.



Slika 3.5: Shematski prikaz skenirajućeg elektronskog mikroskopa (lijevo), preuzeto s: [31] i slika napravljena pomoću skenirajućeg elektronskog mikroskopa (desno), preuzeto s: [32].

3.4 Postupak mjerena zaustavne moći i energijskog rasapa

Općenito, energija koju upadna čestica izgubi pri prolasku kroz materijal debeline Δx je:

$$\Delta E = \int_0^{\Delta x} S(E) dx, \quad (3.3)$$

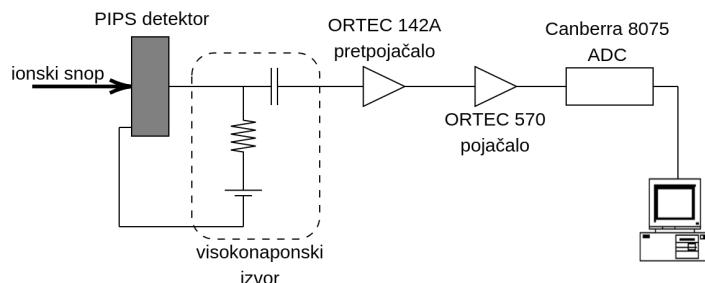
gdje je $S(E)$ zaustavna moć. Ako se pretpostavi da je gubitak energije kroz tanki materijal konstantan, zaustavnu moć se može aproksimirati pomoću:

$$S(E) \approx \frac{\Delta E}{\Delta x}, \quad (3.4)$$

gdje je ΔE u ovom slučaju razlika između početne energije i energije snopa nakon prolaska kroz materijal. Također, energijski rasap može se izračunati iz razlike širina u energetskom spektru snopa prije i nakon prolaska kroz materijal pri čemu se ostali doprinosi koji su definirani u jedn. (2.26) pokrate:

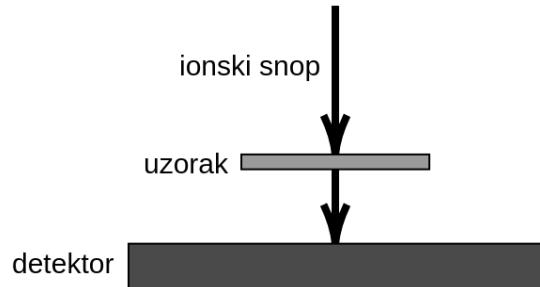
$$\Omega_{\text{str}} = \sqrt{\Omega_{\text{tot}}^2 - \Omega_{\text{tot},0}^2}, \quad (3.5)$$

gdje je Ω_{tot}^2 ukupna širina nakon prolaska kroz materijal, a $\Omega_{\text{tot},0}^2$ je ukupna širina prije prolaska kroz materijal.

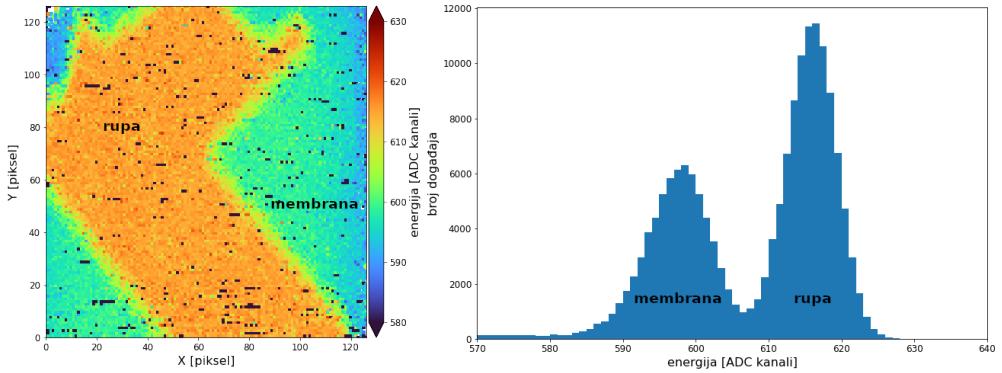


Slika 3.7: Shematski prikaz elektroničkog lanca korištenog u STIM metodi.

Mjerenje zaustavne moći i energijskog rasapa je napravljeno tzv. STIM (engl. scanning transmission ion microscopy) metodom [21, str. 294-296], kojom se mjeri energija iona koji prolaze kroz uzorak (v. sliku 3.6). Shema elektroničkog lanca korištenog u STIM metodi prikazana je na slici 3.7. Zbog specifičnog oblika mem-



Slika 3.6: Shematski prikaz STIM metode.



Slika 3.8: Slika dijamantne membrane napravljena STIM metodom (lijevo) i njen pripadni energijski spektar (desno).

brane korištene u ovom radu, moguće je istovremeno mjeriti i energije iona koji prolaze kroz rupu u membrani (v. sliku 3.8) te je iz razlike tih dviju energija moguće odrediti zaustavnu moć iz jedn. (3.4) uz poznavanje debljine membrane. Mjerenje energije iona vrši se pomoću PIPS⁵ (engl. Passivated Implanted Planar Silicon) detektora na koji je nametnut reverzni napon (engl. reverse bias) od 100 V. Signal iz detektora prolazi kroz *nabojno osjetljivo prepojačalo* (engl. charge sensitive preamplifier) ORTEC 142A⁶ koje integrira naboj iz signala na tzv. povratnom kondenzatoru (engl. feedback capacitor) C_F te proizvodi pulseve napona $\Delta V = Q/C_F$. Paralelno s kondenzatorom C_F stavlja se povratni otpornik R_F koji prazni kondenzator u karakterističnom vremenu $R_F C_F$ koje je namješteno tako da bude znatno duže od vremena punjenja. Takav postav proizvodi karakteristični signal „dugog repa” u kojem je uzlazni dio signala iznimno kratak dok je pad znatno duži (reda nekoliko mikrosekundi). Svrha prepojačala je pojačati signal koji dolazi iz detektora te pripremiti ga za daljnju obradu u *pojačalu za oblikovanje signala* (engl. shaping amplifier) ORTEC 570⁷ u kojemu se signal filtrira, oblikuje u Gaussovou krivulju te se dodatno pojačava. Vrh proizvedene krivulje proporcionalan je naboju proizvedenom u detektoru, odnosno energiji čestice. Oblikovani se signal šalje u ADC (engl. analog to digital converter) Canberra 8075 gdje se on digitalizira tako što se očitava vrh krivulje te se naposlijetu dobiveni digitalni signal prikazuje na računalu.

Također, povezivanjem položaja snopa pri skeniranju i visine pulsa u energijskom spektru dobivenom STIM metodom moguće je napraviti 2D slike uzoraka, kao što je prikazano na slici 3.8, gdje boja predstavlja prosječni položaj u kanalima ADC-a.

⁵<https://www.mirion.com/products/pips-detectors-passivated-implanted-planar-silicon-detectors>

⁶<https://www.ortec-online.com/products/electronics/preamplifiers/142a-b-c>

⁷<https://www.ortec-online.com/products/electronics/amplifiers/570>

4 Rezultati i diskusija

U ovom poglavlju su prikazani rezultati analize podataka dobivenih iz dva skupa mje- renja: određivanje debljine membrane te određivanja zaustavne moći i energijskog rasapa.

4.1 Određivanje debljine dijamantne membrane

Debljina membrane prvo je izmjerena PIXE metodom (v. sliku 3.4). Ozračivanjem uzorka ionskim snopom proizvode se x-zrake dobro definiranih energija:

$$E_{\text{Al}} = 1486.708 \text{ eV},$$

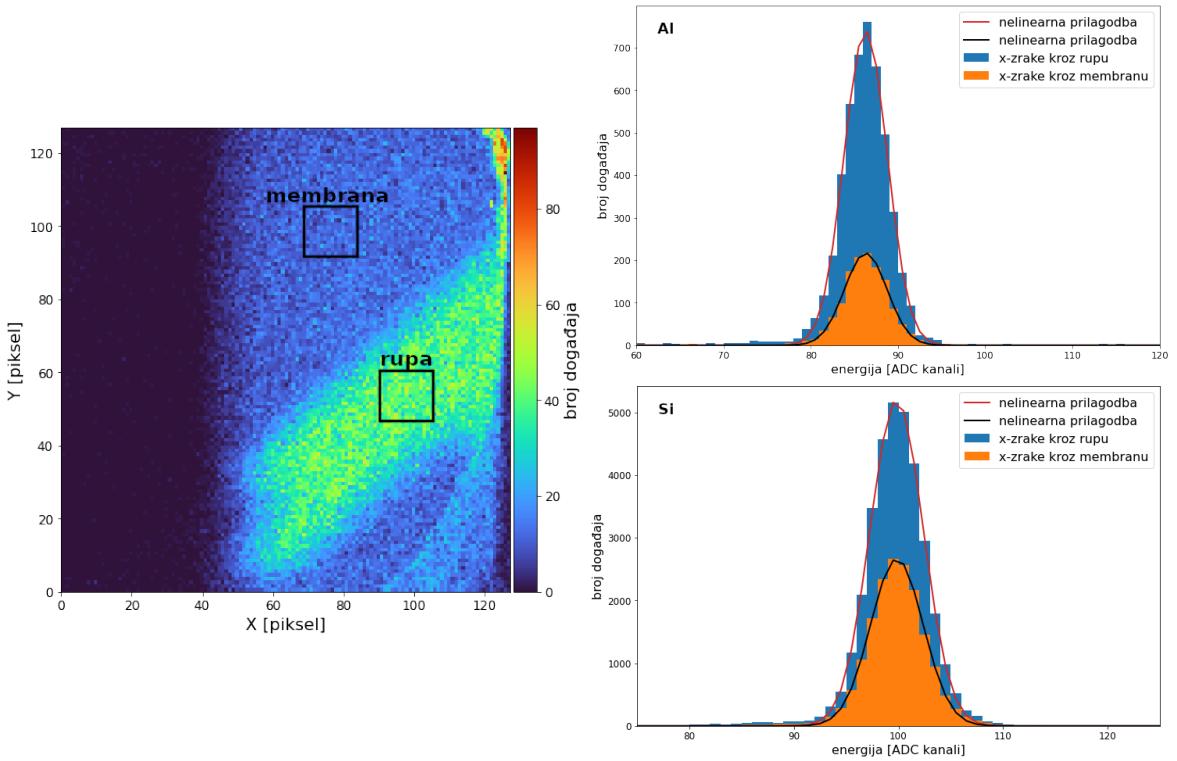
$$E_{\text{Si}} = 1739.985 \text{ eV}.$$

Poznavanjem energije proizvedenih x-zraka moguće je odrediti specifični apsorpcijski koeficijent za dijamant [33]:

$$(\mu/\rho)_{\text{Al}} = 717.8912 \text{ cm}^2/\text{g},$$

$$(\mu/\rho)_{\text{Si}} = 454.4572 \text{ cm}^2/\text{g}.$$

Detekcijom broja x-zraka proizvedenih ozračivanjem Al/Si pločice te povezivanjem te informacije s informacijom o položaju snopa, slično kao i u STIM metodi, moguće je napraviti 2D sliku uzorka što je prikazano na slici 4.1 na kojoj se jasno vidi kontrast između membrane (plavo) i rupe (žuto-zeleno). Na dobivenu sliku može se nanijeti maska koja će izdovojiti samo željeno područje (membrana ili rupa) iz kojeg je onda moguće dobiti spektar poput onog prikazanog na slici 4.1, gdje viši vrh odgovara x-zrakama koje prolaze kroz rupu, dok niži vrh odgovara x-zrakama koje prolaze kroz membranu. Važno je naglasiti kako maske preko rupe i membrane moraju biti iste veličine kako bi ta dva spektra bila usporediva. Izradom nelinearne prilagodbe Gaussove krivulje na spektre moguće je odrediti omjer maksimuma distribucije koji predstavlja omjer intenziteta detektiranih x-zraka kroz membranu i rupu. Upranječivanjem maksimuma prilagodbi spektara dobivenih za maske na različitim



Slika 4.1: Slika dobivena PIXE metodom s označenim veličinama primjenjenih maski (lijevo) te spektri dobiveni iz PIXE slika za aluminijsku i silicijsku pločicu (desno).

položajima u mapi dobiva se:

$$\left(\frac{I_0}{I} \right)_{\text{Al}} = 3.5 \pm 0.3,$$

$$\left(\frac{I_0}{I} \right)_{\text{Si}} = 1.98 \pm 0.06.$$

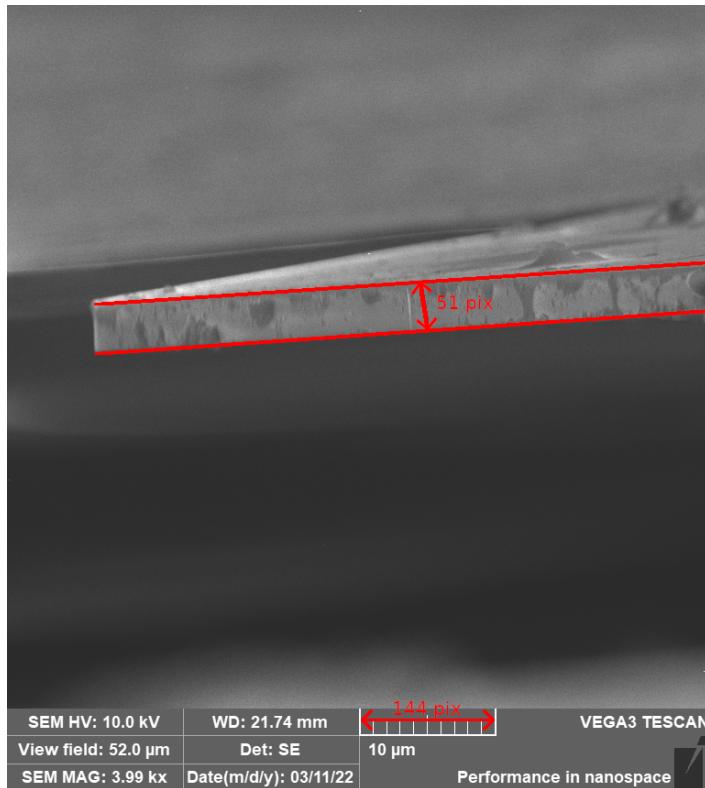
Uvrštavanjem rezultata dobivenih mjeranjem u jedn. (3.2), uz činjenicu da je gustoća dijamanta $\rho = 3.52 \text{ g/cm}^3$, dobiva se debljina:

$$\Delta x_{\text{Al}} = (3.5 \pm 0.3) \mu\text{m},$$

$$\Delta x_{\text{Si}} = (3.0 \pm 0.7) \mu\text{m}.$$

Usporedbom rezultata jasno se vidi da je odstupanje između debljine određene x-zrakama proizvedenim iz aluminijске i silicijske pločice značajno ($\approx 14\%$) što upućuje na to da izmjereni podaci apsorpcije x-zraka nisu najpouzdaniji. Najvjerojatniji razlog tomu je što rezultat uvelike ovisi o točnosti, odnosno ispravnosti, specifičnog apsorpcijskog koeficijenta za dijamant kojega je u ovoj metodi nužno poznavati kako bi se mogla odrediti debljina membrane.

Drugi način određivanja debljine membrane je pomoću SEM-a (v. sliku 3.5), gdje



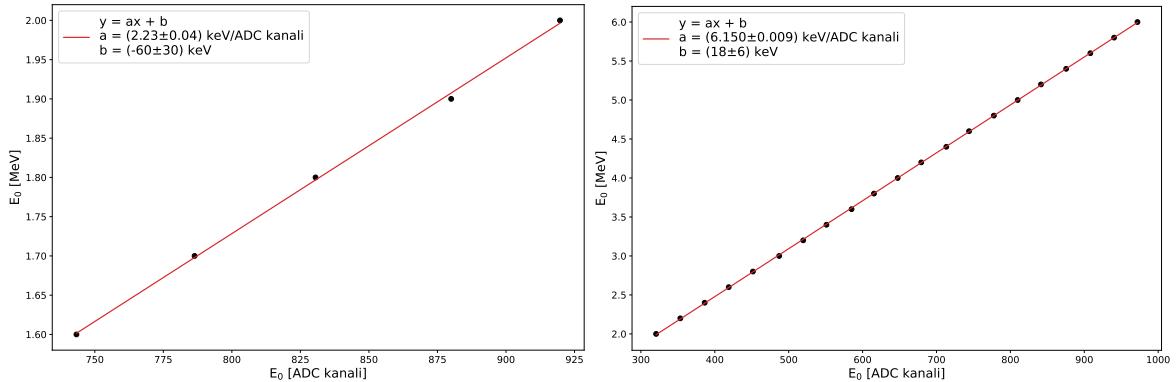
Slika 4.2: Prikaz načina određivanja debljine membrane pomoću SEM-a.

se ona određuje direktno, za razliku od PIXE metode gdje se ona određuje indirektno preko apsorpcije x-zraka. Sveukupno je napravljeno pet slika membrane na kojima je izmjerena debljina membrane kao na slici 4.2 te se u prosjeku dobiva:

$$\Delta x_{\text{SEM}} = (3.5 \pm 0.2) \mu\text{m}.$$

Relativna pogreška prosječne debljine je otprilike 6%, što je bolje nego relativna pogreška za rezultate PIXE metode. Također, kako je ovo mjerjenje direktno, odnosno nije potrebno raditi dodatne pretpostavke poput vrijednosti apsorpcijskog koeficijenta, može se smatrati da je mjerjenje debljine SEM-om pouzdano i točnije od mjerjenja debljine PIXE-om. Iz tog razloga će se u računu zaustavne moći i energijskog rasapa koristiti upravo debljina membrane određena SEM-om.

4.2 Mjerenje zaustavne moći i energijskog rasapa



Slika 4.3: Kalibracija energijske skale za protone 1.6-2.0 MeV-a (lijevo) i protone 2.0-6.0 MeV-a (desno).

Kako je debljina membrane izmjerena, sada se može krenuti na računanje zaustavne moći i energijskog rasapa. Prvo što je potrebno napraviti je kalibrirati energijsku skalu za spektre dobivene STIM metodom. To se radi tako da se pretpostavi da prolaskom kroz rupu snop ne gubi energiju te se sva energija deponira u detektoru te da je ovisnost položaja centroida u kanalima ADC-a. Pomoću toga je moguće povezati položaj centroida u kanalima ADC-a s energijom snopa kao što je prikazano na slici 4.3. Izradom linearne prilagodbe moguće je dobiti faktor konverzije između položaja u kanalima ADC-a i energije, odnosno nagib pravca (a) te sjecište s y-osi (b). Razlog zašto parametar b u obje prilagodbe ne iščezava je zato što položaj ishodišta u kanalima ADC-a ne odgovara „energijskoj nuli“ te zato što PIPS detektor ima tzv. *mrtvi sloj* (engl. dead layer) u kojem snop gubi određeni dio energije koji se ne detektira.

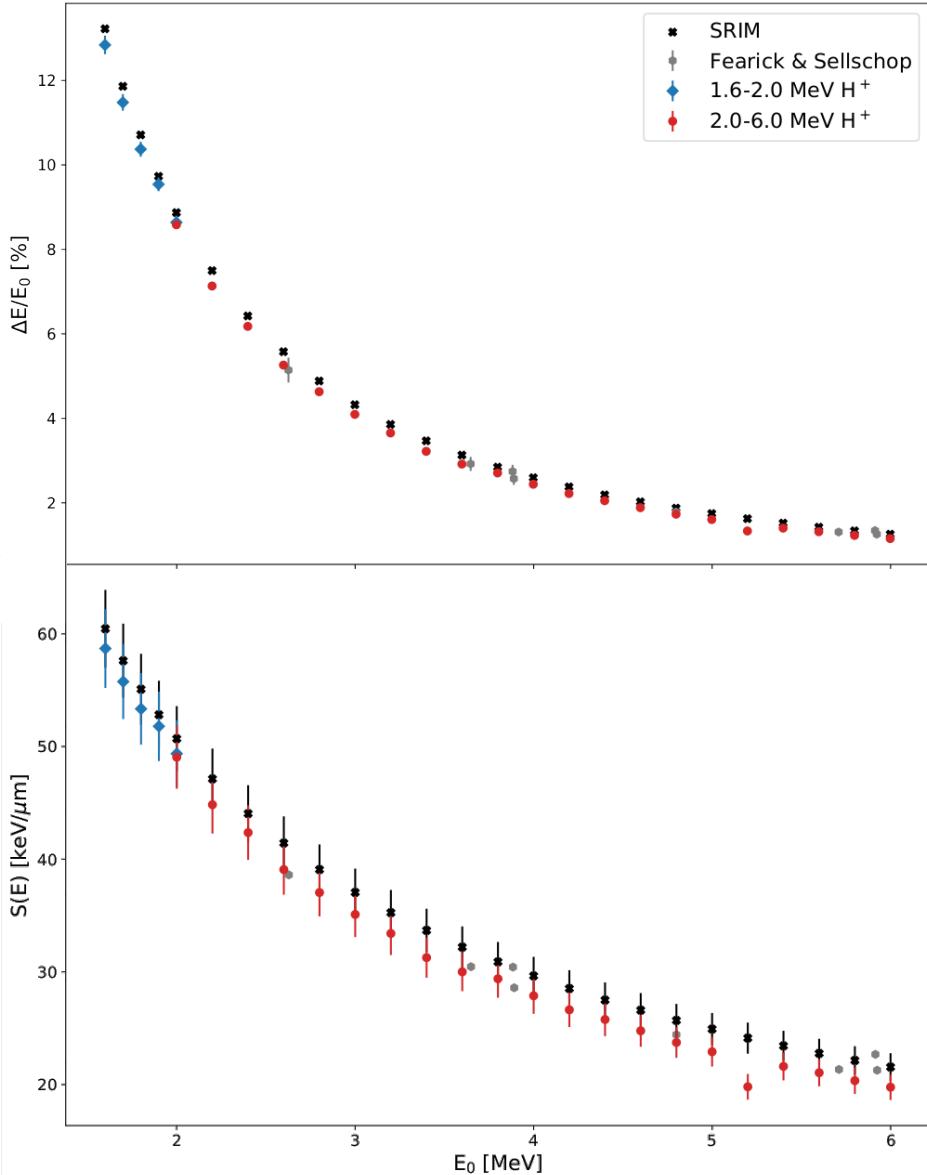
S poznatim faktorom konverzije moguće je izračunati energiju koju snop izgubi pri prolasku kroz membranu kao razliku položaja centroida u energijskom spektru (v. sliku 3.8):

$$\Delta E [\text{keV}] = a \cdot \Delta E [\text{ADC kanali}], \quad (4.1)$$

gdje je a nagib pravca dobivenog linearnom prilagodbom:

$$a = (2.23 \pm 0.04) \text{ keV/ADC kanali}, \quad 1.6 \text{ MeV} \leq E_0 \leq 2.0 \text{ MeV};$$

$$a = (6.150 \pm 0.009) \text{ keV/ADC kanali}, \quad 2.0 \text{ MeV} \leq E_0 \leq 6.0 \text{ MeV}.$$

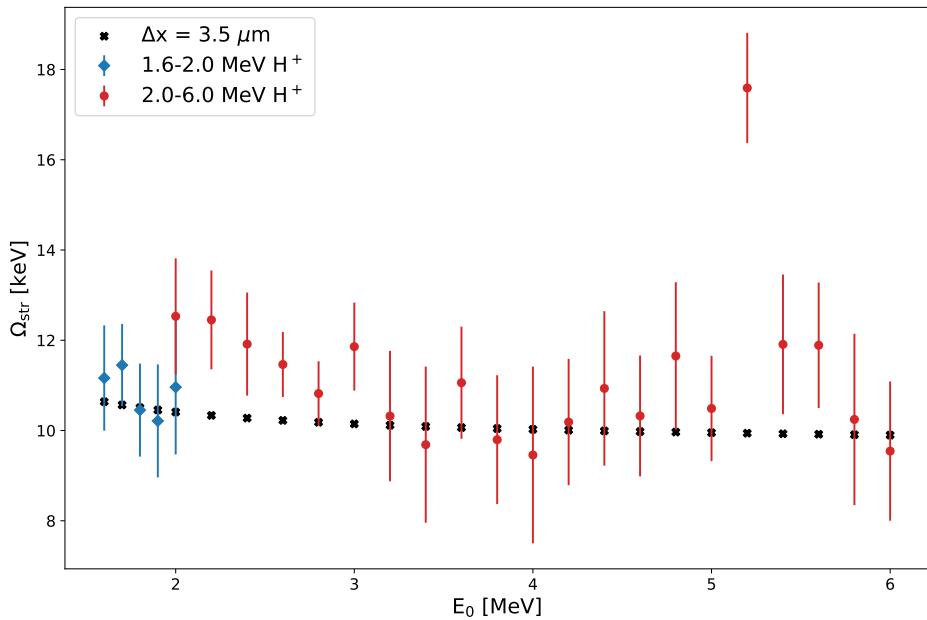


Slika 4.4: Graf ovisnosti gubitka energije u dijamantu u ovisnosti o početnoj energiji protonskog snopa (**gore**) i graf ovisnosti zaustavne moći u dijamantu o početnoj energiji protonskog snopa (**dolje**).

Kao procjena pogreške u gubitku uzeta je propagacija pogreške nagiba pravca a pri kalibraciji energijske skale te pogrešaka u određivanju položaja centroida u energijskim distribucijama kada snop prolazi kroz membranu i rupu. Iz poznatog gubitka energije ΔE moguće je izračunati zaustavnu moć $S(E)$ korištenjem jedn. (3.4) te je za pogrešku uzeta propagacija pogreške u izračunu gubitka energije i pogreška pri određivanju debljine membrane Δx . Također, za rezultate zaustavne moći dobivene iz SRIM-a propagirana je pogreška pri određivanju debljine membrane. Rezultati za gubitak energije i zaustavnu moć i pripadne pogreške prikazani su na slici 4.4. U dodatku A nalaze se eksperimentalne vrijednosti zaustavne moći izmjerene u ovome

radu s pripadnim pogreškama. Uz vrijednosti izmjerene u ovom radu prikazane su i vrijednosti dobivene SRIM simulacijama i vrijednosti koje su izmjerene u radu Fearick i Sellschop [34].

Usporedbom vrijednosti dobivenih u ovom radu i radu [34] vidi se vrlo dobro slaganje, dok se usporedbom tih vrijednosti s rezultatima SRIM simulacija vidi da su eksperimentalne vrijednosti zaustavne moći nešto manje od onih dobivenih u SRIM-u, odnosno odstupanje je $<5\%$. Mogući razlog tomu je da, zbog nedostatka eksperimentalnih vrijednosti zaustavne moći za dijamant, SRIM koristi eksperimentalne vrijednosti za amorfni ugljik, kojih ima puno, te onda uzimanjem u obzir različite gustoće tih dviju alotropskih modifikacija radi konverziju rezultata.



Slika 4.5: Graf ovisnosti energijskog rasapa protonskog snopa u ovisnosti o njegovoj energiji.

Naposlijetu, određen je energijski rasap računanjem razlike u kvadratima širine energijske distribucije snopa koji je prošao kroz membranu i snopa koji je prošao kroz rupu (v. sliku 3.8), kao u jedn. (3.5) te su rezultati prikazani na slici 4.5. Pogreška je procijenjena propagacijom pogreške nagiba pravca a i pogrešaka u određivanju širine energijskih distribucija pri prolasku kroz rupu i membranu. Kao što se može vidjeti na slici, postoje odstupanja eksperimentalnih vrijednosti od onih koje se dobiju iz SRIM simulacija. Mogući razlog tomu je, kao što je i vidljivo iz samih rezultata, da je mjerjenje energijskog rasapa izrazito osjetljivo te i najmanje varijacije u debljini membrane mogu uzrokovati promjenu u širini distribucije.

5 Zaključak

Sintetički dijamant kao materijal ima mnoge primjene, primjerice kao detektori čestica u eksperimentalnoj fizici visokih energija, kao dozimetri u hadronskoj terapiji i potencijalno u kvantnim računalima preko tzv. NV centara koji se proizvode implantacijom dušika u sintetički dijamant. U svim tim primjenama potrebno je precizno poznavati zaustavnu moć u dijamantu što je bio glavni cilj ovoga rada gdje se ona mjerila na tankoj dijamantnoj membrani proizvedenoj Ar/O₂ jetkanjem.

Kako bi se odredila zaustavna moć u dijamantu prvo je precizno određena debljina membrane dvjema metodama: indirektno mjerenjem intenziteta x-zraka PIXE metodom omjerom kojih se može odrediti debljina membrane pomoću jedn. 3.2 i direktno iz slike membrane napravljenih pretražnim elektronskim mikroskopom (SEM-om) kao što je prikazano na slici 4.2. Mjerena PIXE metodom napravljena su pomoću x-zraka proizvedenih iz aluminjske i silicijske pločice:

$$\Delta x_{\text{Al}} = (3.5 \pm 0.3) \mu\text{m},$$

$$\Delta x_{\text{Si}} = (3.0 \pm 0.7) \mu\text{m},$$

te je uočeno značajno odstupanje između rezultata, $\approx 14\%$. Zbog tog odstupanja za debljinu membrane korištena je vrijednost dobivena direktnim mjerenjem debljine iz slike dobivenih SEM-om:

$$\Delta x_{\text{SEM}} = (3.5 \pm 0.2) \mu\text{m}.$$

Mjerenje gubitka energije i zaustavne moći napravljeno je za protonski snop energija 1.6-2.0 MeV-a, u koracima od 0.1 MeV, te za energije od 2.0-6.0 MeV-a, u koracima od 0.2 MeV-a. Za izračun gubitka energije korištena je jedn. (4.1), dok je za zaustavnu moć korištena je jedn. (3.4) te su rezultati prikazani na slici 4.4 i u dodatku A. Uz dobivene eksperimentalne rezultate prikazani su i rezultati dobiveni SRIM simulacijama i rezultati dobiveni u radu Fearick i Sellschop. Usporedbom rezultata zaključeno je da se rezultati dobiveni u ovome radu poklapaju s drugim eksperimentalnim vrijednostima, ali da postoji određeno odstupanje ($< 5\%$) od rezultata dobivenih SRIM simulacijama što je najvjerojatnije posljedica nedostatka eksperimentalnih podataka za dijamant u energijskom području proučavanom u ovom radu koje SRIM koristi kako bi prilagodio vrijednosti parametara simulacijskog modela.

Naposlijetu, izmjerena je energijski rasap snopa računanjem razlike širina energijskih spektara snopa pri prolasku kroz membranu i kroz rupu, kao što je navedeno u jedn. (3.5). Rezultati računa su prikazani na slici 4.5 zajedno s vrijednostima koje su dobivene u SRIM simulacijama. Usporedbom rezultata i simuliranih vrijednosti vidi se da je mjerjenje energijskog rasapa izrazito osjetljivo te da i najmanje varijacije u širini membrane uzrokuju promjene u širini spektra kroz membranu, no ipak se eksperimentalne vrijednosti i preklapaju s vrijednostima iz SRIM-a do na eksperimentalnu grešku.

Dodaci

Dodatak A Tablica eksperimentalnih vrijednosti

	E_0 [MeV]	$S(E)$ [keV/ μ m]	$\sigma(S(E))$ [keV/ μ m]
1 MV Tandetron	1.6	59	4
	1.7	56	3
	1.8	53	3
	1.9	52	3
	2.0	49	3
6 MV Tandem Van de Graaff	2.0	49	3
	2.2	45	3
	2.4	42	2
	2.6	39	2
	2.8	37	2
	3.0	35	2
	3.2	33	2
	3.4	31	2
	3.6	30	2
	3.8	29	2
	4.0	28	2
	4.2	27	2
	4.4	26	1
	4.6	25	1
	4.8	24	1
	5.0	23	1
	5.2	20	1
	5.4	22	1
	5.6	21	1
	5.8	20	1
	6.0	20	1

Tablica A.1: Tablica eksperimentalnih vrijednosti zaustavne moći u ovisnosti o početnoj energiji snopa

Literatura

- [1] Bauer, C. et al. Radiation hardness studies of CVD diamond detectors. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. Vol. 367, (1995), str. 207-211.
- [2] Zain, R. M. et al. Leakage current measurements of a pixelated polycrystalline CVD diamond detector. // JINST. Vol. 8, (2013), str. C01056.
- [3] Isberg, J. et al. High carrier mobility in single-crystal plasma-deposited diamond. // Science. Vol. 297, (2002), str. 1670-1672.
- [4] Weiß, C. et al. A new CVD diamond mosaic-detector for (n, α) cross-section measurements at the n_TOF experiment at CERN. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. Vol. 732, (2013), str. 190-194.
- [5] Griesmayer, E.; Dehning, B. Diamonds for Beam Instrumentation. // Physics Procedia. Vol. 37, (2012), str. 1997-2004.
- [6] Gallin-Martel, M. L. et al. Large area polycrystalline diamond detectors for online hadron therapy beam tagging applications. // 2016 IEEE Nuclear Science Symposium, Medical Imaging Conference and Room-Temperature Semiconductor Detector Workshop (NSS/MIC/RTSD) / IEEE, 2016, str. 1-5.
- [7] Gurudev Dutt, M. V. et al. Quantum Register Based on Individual Electronic and Nuclear Spin Qubits in Diamond. // Science. Vol. 316, (2007), str. 1312-1316.
- [8] HPHT Process On Diamonds: Foundation & Application, (24.10.2006.), Diamond World, <https://www.diamondworld.net/contentview.aspx?item=2162>, 5.4.2022.
- [9] May, P. W. Diamond thin films: a 21st-century material. // Phil. Trans. R. Soc. Lond. A. Vol. 358, (2000), str. 473-495.
- [10] Ziegler, J. F.; Ziegler, M. D.; Biersack, J. P. SRIM – The stopping and range of ions in matter // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. Vol. 268, (2010), str. 1818–1823.

- [11] Leo, W. R. Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-to Approach. 2nd rev. ed. Springer, 1994.
- [12] Sigmund, P. Particle Penetration and Radiation Effects: General Aspects and Stopping of Swift Point Charges. Springer, 2006.
- [13] Jackson, J. D. Classical Electrodynamics. 3rd ed. John Wiley & Sons, 1998.
- [14] Ziegler, J. F.; Biersack, J. P.; Ziegler, M. D. SRIM: The Stopping and Range of Ions in Matter. SRIM Co., 2008.
- [15] Tirira, J.; Serruys, Y.; Patrick, T. Forward Recoil Spectrometry: Applications to Hydrogen Determination in Solids. Plenum Press, 1996.
- [16] Sternheimer, R. M.; Seltzer, S. M.; Berger, M. J. Density effect for the ionization loss of charged particles in various substances. // Phys. Rev. B. Vol. 26, (1982), str. 6067-6076.
- [17] Sternheimer, R. M.; Seltzer, S. M.; Berger, M. J. Density effect for the ionization loss of charged particles in various substances. // At. Data & Nucl. Data Tables. Vol. 30, (1984), str. 261-271.
- [18] Lindhard, J.; Scharff, M. Energy loss in matter by fast particles of low charge. // Dan. Mat. Fys. Medd. Vol. 27, (1953), br. 15.
- [19] Fischer, H. A History of the Central Limit Theorem: From Classical to Modern Probability Theory. Springer, 2010.
- [20] Besenbacher, F.; Andersen, J. U.; Bonderup, E. Straggling in energy loss of energetic hydrogen and helium ions. // Nuclear Instruments and Methods. Vol. 168, (1980), str. 1-15.
- [21] Wang, Y.; Nastasi, M. Handbook of Modern Ion Beam Material Analysis. 2nd ed. Materials Research Society, 2009.
- [22] Rani, B. et al. Precise measurements of energy loss straggling for swift heavy ions in polymers. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. Vol. 387, (2016), str. 34-40.

- [23] Biersack, J. P.; Haggmark, L. G. A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets. // Nuclear Instruments and Methods. Vol. 174, (1980), str. 257-269.
- [24] Ahmed, S. N. Physics and Engineering of Radiation Detection. Elsevier, 2015.
- [25] Accelerators, (21.4.2022.),
<https://www.irb.hr/Zavodi/Zavod-za-eksperimentalnu-fiziku/Laboratorij-za-interakcije-ionskih-snopova/Clanci/Akceleratori>.
- [26] Nuclear microprobe, (22.4.2022.),
<https://www.irb.hr/Zavodi/Zavod-za-eksperimentalnu-fiziku/Laboratorij-za-interakcije-ionskih-snopova/Clanci/Nuclear-microprobe>.
- [27] Pomorski, M.; Caylar, B.; Bergonzo, P. Super-thin single crystal diamond membrane radiation detectors. // Appl. Phys. Lett. Vol. 103, (2013), br. 112106.
- [28] Knoll, G. F. Radiation Detection and Measurement. 4th Ed. Wiley, 2010.
- [29] Mayerhöfer, T. G.; Pahlow, S.; Popp, J. The Bouguer-Beer-Lambert Law: Shining Light on the Obscure. // ChemPhysChem. Vol. 21, (2020), str. 2029-2046.
- [30] Pretražni elektronski mikroskop Tescan Vega3 LMU, (11.5.2022.), https://sestar.irb.hr/instrumenti_show.php?ID=2769&page=95
- [31] Scanning Electron Microscopy, (25.4.2022.), https://serc.carleton.edu/research_education/geochemsheets/techniques/SEM.html.
- [32] TESCAN VEGA, (11.5.2022.),
<https://www.tescan.com/product/sem-for-materials-science-tescan-vega/>
- [33] X-Ray attenuation & absorption calculator, (10.5.2022.), https://web-docs.gsi.de/~stoe_exp/web_programs/x_ray_absorption/index.php
- [34] Fearick, R. W.; Sellscop, J. P. F. Energy loss of light ions in diamond. // Nuclear Instruments and Methods. Vol. 168, (1980), str. 51-55.