Razvoj metode protonima inducirane emisije gama-zračenja za analizu i trodimenzionalno profiliranje lakih elemenata

Zamboni, Ivana

Doctoral thesis / Disertacija

2015

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/urn:nbn:hr:217:041684

Rights / Prava: In copyright / Zaštićeno autorskim pravom.

Download date / Datum preuzimanja: **2024-03-29**

Repository / Repozitorij:

Repository of the Faculty of Science - University of Zagreb



SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET

Ivana Zamboni

RAZVOJ METODE PROTONIMA INDUCIRANE EMISIJE GAMA-ZRAČENJA ZA ANALIZU I TRODIMENZIONALNO PROFILIRANJE LAKIH ELEMENATA

DOKTORSKI RAD

Zagreb, 2015.



UNIVERSITY OF ZAGREB
FACULTY OF SCIENCE

Ivana Zamboni

DEVELOPMENT OF THE PROTON INDUCED GAMMA-RAY EMISSION TECHNIQUE FOR THE ANALYSIS AND THREE-DIMENSIONAL PROFILING OF LIGHT ELEMENTS

DOCTORAL THESIS

Zagreb, 2015



SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
PRIRODOSLOVNO-MATEMATIČKI FAKULTET

IVANA ZAMBONI

RAZVOJ METODE PROTONIMA INDUCIRANE EMISIJE GAMA-ZRAČENJA ZA ANALIZU I TRODIMENZIONALNO PROFILIRANJE LAKIH ELEMENATA

DOKTORSKI RAD

Mentor:
Dr. sc. Ivančica Bogdanović Radović

Zagreb, 2015.

Zahvaljujem se svojoj mentorici dr. sc. Ivančici Bogdanović Radović na velikoj podršci, pomoći i razumijevanju u svim fazama izrade ovog doktorskog rada. Veliko hvala i voditelju Laboratorija za interakcije ionskih snopova dr. sc. Milku Jakšiću te kolegama dr. sc. Zdravku Siketiću i Andriji Gajskom na neizmjernom doprinosu ovom radu.

Također se zahvaljujem svim bivšim i sadašnjim djelatnicima Laboratorija: Mladenu Bogovcu, Ivi Božičević Mihalić, Domagoju Cosicu, Stjepku Faziniću, Veljku Grilju, Marku Karlušiću, Željku Pastuoviću, Željku Periši, Natku Skukanu, Ivanu Sudiću, Damiru Španji i Tončiju Tadiću, koji su mi pomagali sve ove godine.

Posebno hvala dr. sc. Andrei Čobić na pribavljanju uzorka minerala na kojem je prikazana mogućnost metode razvijene i opisane u ovom radu te na analizi difrakcijom rendgenskoga zračenja na prahu koja je upotpunila ovu disertaciju. Zahvaljujem se i dr. sc. Tončiju Tadiću na izradi programa za izračun energijske razlučivosti ionskog snopa. Također hvala dr. sc. Davorinu Sudcu na posudbi scintilacijskog detektora te kolegama iz Portugala na višebrojnim uspjelim i neuspjelim implantacijama.

Ovaj rad posvećujem svojoj obitelji i svima koji su mi pružili ljubav, pomoć i podršku u najtežim trenutcima.

SADRŽAJ

SADRŽAJ v
Sažetak vii
Abstract ix
1. UVOD 1
2. OSNOVNI PRINCIPI PIGE SPEKTROSKOPIJE 3
2.1. Međudjelovanje iona s materijom 3
2.1.1. Fizikalni model gubitka energije 4
2.1.2. Energijsko rasipanje 9
2.2. Nuklearne reakcije 11
2.2.1. Reakcije složenom jezgrom 12
2.3. Emisija gama-zračenja 14
2.3.1. Kinematički efekti 16
2.3.2. Vjerojatnosti elektromagnetskih prijelaza 17
2.3.3. Izborna pravila za elektromagnetske prijelaze 20
2.4. Međudjelovanje zračenja s materijom 22
2.4.1. Detekcija gama-zračenja 25
2.4.1.1. Scintilacijski detektor 27
2.4.1.2. HPGe detektor 29
2.5. Protonima inducirana emisija gama-zračenja 31
2.5.1. (p,γ) reakcija 31
2.5.2. (p,p'γ) i (p,αγ) reakcije 33
2.5.3. Kulonsko pobuđenje 33
3. MJERENJE DIFERENCIJALNIH UDARNIH PRESJEKA 35
3.1. Eksperimentalni postav 38
3.1.1. Kalibracija ubrzivača čestica 39
3.1.2. Komora za raspršenje 42
3.2. Efikasnost HPGe detektora 44
3.3. Priprema meta 46
3.4. Račun diferencijalnih udarnih presjeka 48

3.5. Diferencijalni udarni presjeci za fluor 50
3.5.1. Usporedba s rezultatima iz literature 54
3.6. Diferencijalni udarni presjeci za natrij 57
3.6.1. Usporedba s rezultatima iz literature 59
3.7. Diferencijalni udarni presjeci za magnezij 65
3.7.1. Usporedba s rezultatima iz literature 68
3.8. Diferencijalni udarni presjeci za aluminij 70
3.8.1. Usporedba s rezultatima iz literature 73
4. REZONANTNO DUBINSKO PROFILIRANJE 77
4.1. Dubinsko profiliranje lakih elemenata 79
4.1.1. Dubinsko profiliranje magnezija 80
4.2. Ekscitacijske krivulje 82
4.3. Primjena: ^{24}Mg implantiran u silicij 84
4.3.1. PIGE mjerenja 85
4.3.2. TOF-ERDA mjerenja 90
4.3.3. Li RBS mjerenja 93
5. TRODIMENZIONALNO PROFILIRANJE NA IONSKOJ MIKROPROBI 95
5.1. Ionska mikroproba 95
5.1.1. Optimizacija postava 96
5.2. Postav sa scintilacijskim detektorom 98
5.2.1. Trodimenzionalno profiliranje ^{24}Mg u mineralu 101
5.3. Postav s HPGe detektorom 102
5.3.1. Trodimenzionalno profiliranje ^{24}Mg u mineralu 103
5.3.2. Analiza fluora u talku 106
6. ZAKLJUČAK 109
DODACI 111
Dodatak A Diferencijalni udarni presjeci za fluor 111
Dodatak B Diferencijalni udarni presjeci za natrij 115
Dodatak C Diferencijalni udarni presjeci za magnezij 117
Dodatak D Diferencijalni udarni presjeci za aluminij 121
LITERATURA 125
ŽIVOTOPIS 131
POPIS RADOVA 133

Sveučilište u Zagrebu
Prirodoslovno-matematički fakultet
Fizički odsjek

Doktorska disertacija

RAZVOJ METODE PROTONIMA INDUCIRANE EMISIJE GAMA-ZRAČENJA ZA ANALIZU I TRODIMENZIONALNO PROFILIRANJE LAKIH ELEMENATA

Ivana Zamboni

Institut Ruđer Bošković

Sažetak

Protonima inducirana emisija gama-zračenja (PIGE) moćna je i nedestruktivna analitička metoda koja koristi međudjelovanje brzih (1-10 MeV) nabijenih čestica s jezgrama atoma u površinskim slojevima uzorka (0-50 μm), u svrhu određivanja sastava pomoću mjerenja karakterističnog gama-zračenja.

U ovom radu izmjereni su diferencijalni udarni presjeci za emisiju gama-zračenja iz reakcija $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ (E_γ=110, 197, 1236 i 1349+1357 keV), $^{23}Na(p,p'\gamma)^{23}Na$ (E_γ=440 i 1636 keV), $^{23}Na(p,\alpha'\gamma)^{20}Ne$ (E_γ=1634 keV), $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ (E_γ=1369 keV), $^{25}Mg(p,p'\gamma)^{25}Mg$ (E_γ=390, 585 i 975 keV), $^{27}Al(p,p'\gamma)^{27}Al$ (E_γ=844 i 1014 keV) i $^{27}Al(p,\alpha'\gamma)\ ^{24}Mg$ (E_γ=1369 keV) za energije protona od 2 do 3 MeV-a s korakom od 15 keV-a. Pouzdani podaci za ovo energijsko područje nedostajali su u bazama podataka te su nova mjerenja bila neophodna za kvantitativnu PIGE analizu budući da se PIGE udarni presjeci ne mogu jednostavno teorijski opisati zbog prisustva mnogo uskih i jakih rezonanci. Dobiveni podaci uspoređeni su s prije izmjerenim udarnim presjecima, za druge kuteve detekcije i energije pobuđenja, te su uključeni u IBANDL i EXFOR baze podataka.

Podrobnije je analizirana mogućnost dubinskog profiliranje magnezija s nanometarskom dubinskom razlučivošću korištenjem uočenih rezonaci na 2.01 i 2.41 MeV-a u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ nuklearnoj reakciji. Rad uključuje i izvedbu eksperimentalnog postava za trodimenzionalno profiliranje korištenjem fokusiranog snopa protona na ionskoj mikroprobi, i to za detekciju gama-zračenja s germanijskim detektorom visoke čistoće (HPGe) i $LaBr_3$:Ce anorganskim scintilacijskim detektorom nove generacije. Optimizirana metoda primijenjena je za dubinsko profiliranje ^{24}Mg implantiranog u silicij te trodimenzionalno profiliranje ^{24}Mg u mineralu sastavljenom od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2). Također, iznesene su prednosti i mane razvijene i opisane metode u usporedbi s drugim metodama analize materijala pomoću ionskih snopova te ostalim metodama pogodnim za dubinsko profiliranje lakih elemenata.

Ključne riječi:	PIGE, diferencijalni udarni presjek, magnezij, rezonanca, dubinsko profiliranje, ionska mikroproba, trodimenzionalno profiliranje, HPGe detektor, $LaBr_3$:Ce scintilacijski detektor
Mjesto pohrane:	Centralna knjižnica Fizike, Bijenička cesta 32
Mentor:	Dr. sc. Ivančica Bogdanović Radović
Ocjenitelji:	Prof. dr. sc. Matko Milin
	Prof. dr. sc. Tamara Nikšić
	Dr. sc. Milko Jakšić

University of Zagreb
Faculty of Science
Department of Physics

Ph. D. Thesis

DEVELOPMENT OF THE PROTON INDUCED GAMMA-RAY EMISSION TECHNIQUE FOR THE ANALYSIS AND THREE-DIMENSIONAL PROFILING OF LIGHT ELEMENTS

Ivana Zamboni

Ruđer Bošković Institute

Abstract

Proton Induced Gamma-ray Emission (PIGE) is a powerful and non-destructive analytical technique that exploits the interactions of rapid (1-10 MeV) charged particles with atomic nuclei in sample surface layers (0-50 μm), in order to determine the composition by detection of characteristic prompt γ-rays.

In this work differential cross sections for γ-ray emission from the reactions $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ ($E\gamma$=110, 197, 1236 and 1349+1357 keV), $^{23}Na(p,p'\gamma)^{23}Na$ (E_γ=440 and 1636 keV), $^{23}Na(p,\alpha'\gamma)^{20}Ne$ (E_γ=1634 keV), $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ (E_γ=1369 keV), $^{25}Mg(p,p'\gamma)^{25}Mg$ (E_γ=390, 585 and 975 keV), $^{27}Al(p,p'\gamma)^{27}Al$ (E_γ=844 and 1014 keV) and $^{27}Al(p,\alpha'\gamma)$ ^{24}Mg (E_γ=1369 keV) were measured, for proton energies from 2 to 3 MeV with 15 keV energy step. Reliable data for differential cross sections for γ-ray emission in this energy region were scarce and new measurements were essential for the quantitative PIGE analysis. Due to the presence of many narrow and strong resonances, there is no common theoretical description of PIGE cross sections. Measured data were compared with the previously measured cross sections, at the different scattering angles and excitation energies, and have been uploaded to IBANDL and EXFOR databases.

Furthermore, potential for depth profiling of magnesium with nanometre resolution using observed resonances at 2.01 and 2.41 MeV energy in $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ nuclear reaction was investigated. The work includes implementation of the experimental set-up for three-dimensional (3D) profiling with the use of focused proton beam at the ion microprobe and two different γ-ray detectors: high purity germanium (HPGe) and new generation of $LaBr_3$:Ce inorganic scintillator detector. Optimized method was applied for depth profiling of ^{24}Mg implanted in silicon and 3D profiling of ^{24}Mg in mineral composed of talc ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) and pyrite (FeS_2). Advantages and disadvantages of the developed and presented technique were discussed in comparison with the other ion beam analysis (IBA) methods and supplementary techniques suitable for depth profiling of light elements.

Keywords: PIGE, differential cross section, magnesium, resonance, depth profiling, 3D profiling, ion microprobe, HPGe detector, $LaBr_3$:Ce scintillator detector

Thesis deposited: Central library for Physics, Bijenička cesta 32

Supervisor: Dr. sc. Ivančica Bogdanović Radović

Reviewers: Prof. dr. sc. Matko Milin

Prof. dr. sc. Tamara Nikšić

Dr. sc. Milko Jakšić

1. UVOD

Bombardiranjem uzorka snopom brzih iona MeV-skih energija dolazi do niza procesa koji su posljedica međudjelovanja upadnih iona s atomima mete. Ako su energije korištenih iona dovoljno visoke, za većinu lakih elemenata u meti postaju vjerojatne nuklearne reakcije, koje ostavljaju jezgru u pobuđenom stanju. Pri vraćanju u niže ili osnovno stanje dolazi do emisije karakterističnog gama-zračenja koje je osnova metode česticama inducirane emisije gama-zračenja (eng. *Particle Induced Gamma-ray Emission – PIGE*). PIGE je moćna i nedestruktivna analitička metoda za određivanje koncentracija lakih elemenata ($Z < 15$) u površinskom području mete (otprilike od 0 do 50 μm). Za pobudu se najčešće koriste protoni pa se metoda naziva i protonima inducirana emisija gama-zračenja (eng. *Proton Induced Gamma-ray Emission – PIGE*). Međutim, za pobudu se također mogu koristiti i teži projektili, kao što su deuterij ili alfa čestice.

PIGE spektroskopija počela se je koristiti još davne 1962. godine i to pojavom poluvodičkih germanijskih detektora visoke razlučivosti (eng. *High Purity Germanium – HPGe*). Primjenjivost ove metode pokazala se je korisnom u mnogim područjima, od analize materijala iz fisijskih reaktora do biomedicine, okoliša, arheologije i kulturne baštine te, u skorije vrijeme, analize materijala za fuzijske reaktore. Danas su osnovni fizički procesi na kojima je bazirana PIGE metoda dobro poznati te je sama metoda analitički dobro poznata. Nažalost, baza podataka za diferencijalne udarne presjeke je još uvijek nepotpuna i nedostaju pouzdana eksperimentalna mjerenja za izotope koji su potencijalno zanimljivi za mjerenje PIGE metodom. Stoga, postoji velika potreba za novim eksperimentalnim podacima, i to za razne energije pobude i kuteve detekcije.

Primjenjivost PIGE metode vrlo brzo je prepoznata i za rezonantno dubinsko profiliranje elemenata, s dubinskom razlučivosti nadmoćnom u odnosu na druge metode analize materijala pomoću ionskih snopova (eng. *Ion Beam Analysis – IBA*). Metoda rezonantnog dubinskog profiliranja koristi prisutnost rezonance u udarnom presjeku za nuklearnu reakciju koja vodi na emisiju gama-zračenja te mjeri njegov intenzitet kao funkciju dubine. To se izvodi preciznim mijenjanjem energije upadnog snopa, pri čemu se rezonanca „pomiče“ sve dublje u uzorak. Potrebno je naglasiti da su samo neke IBA tehnike pogodne za dubinsko profiliranje, a to su spektroskopija elastično izbijenih iona (engl. *Elastic Recoil Detection*

Analyis – ERDA), rutherfordsko raspršenje u stražnje kuteve (engl. *Rutherford Backscattering – RBS*), analiza pomoću čestičnih produkata nuklearnih reakcija (eng. *Nuclear Reaction Analysis – NRA*), te konfokalna metoda česticama inducirane emisije rendgenskoga zračenja (eng. *confocal Particle Induced X-ray Emission – CF PIXE*).

U Laboratoriju za interakcije ionskih snopova na Institutu Ruđer Bošković, PIGE je jedna od metoda koja se je do sad vrlo malo koristila, i to uglavnom u analitičkim primjenama kao komplementarna metoda PIXE mjerenjima. Međutim, potrebno je istaknuti da su 2000. godine Tadić i ostali [Tad00, Tad01] pokazali mogućnost primjene PIGE metode na ionskoj mikroprobi s vanjskim protonskim snopom za određivanje prostorne raspodjele Li i F u elektrolitskom polimerskom gelu koji se koristi u izradi litijevih baterija. Prava motivacija za veće korištenje PIGE metode došla je 2011. godine pokretanjem koordiniranog istraživačkog projekta „Procjena potrebe za nadopunom baze podataka za PIGE tehniku“ od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (eng. *International Atomic Energy Agency – IAEA*).

Nakon uvoda, u drugom poglavlju ove doktorske disertacije opisani su procesi i nuklearne reakcije na kojima se temelji PIGE spektroskopija te detektori gama-zračenja. Treće poglavlje posvećeno je mjerenjima diferencijalnih udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja za nekoliko lakih izotopa (^{19}F, ^{23}Na, ^{24}Mg, ^{25}Mg i ^{27}Al). Precizno poznavanje diferencijalnih udarnih presjeka neophodno je da bi se kvantitativna analiza mogla napraviti bez korištenja standardnih referentnih materijala. Izmjerene vrijednosti udarnih presjeka uspoređene su s već postojećim u bazama podataka i literaturi, a koje su izmjerene za druge kuteve detekcije i energije pobuđenja. Na početku četvrtog poglavlja dan je pregled IBA metoda te ostalih metoda pogodnih za dubinsko profiliranje lakih elemenata. Zatim je opisana metoda rezonantnog dubinskog profiliranja koja je, upotrebom dvije opažene rezonance na energijama pobude od 2.01 i 2.41 MeV u ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg reakciji, primijenjena za dubinsko profiliranje ^{24}Mg implantiranog u silicij. Dobiveni rezultati uspoređeni su s mjerenjima istih uzoraka pomoću drugih IBA metoda. Peto poglavlje prikazuje osmišljavanje i izradu eksperimentalnog postava za trodimenzionalano (3D) profiliranje ^{24}Mg korištenjem snopa protona fokusiranog na mikrometarske dimenzije pomoću ionske mikroprobe. Ispitana je upotreba dva različita detektora gama-zračenja: HPGe detektora i $LaBr_3$:Ce anorganskog scintilacijskog detektora nove generacije. Optimizirana metoda primijenjena je za 3D profiliranje ^{24}Mg u mineralu sastavljenom od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2). Na kraju je u zaključku dan pregled najbitnijih postignuća ostvarenih ovim radom.

2. OSNOVNI PRINCIPI PIGE SPEKTROSKOPIJE

Metoda česticama inducirane emisije gama-zračenja (PIGE) temelji se na nekoliko procesa koji se odvijaju prilikom prolaska iona kroz analizirani uzorak. Oni uključuju:

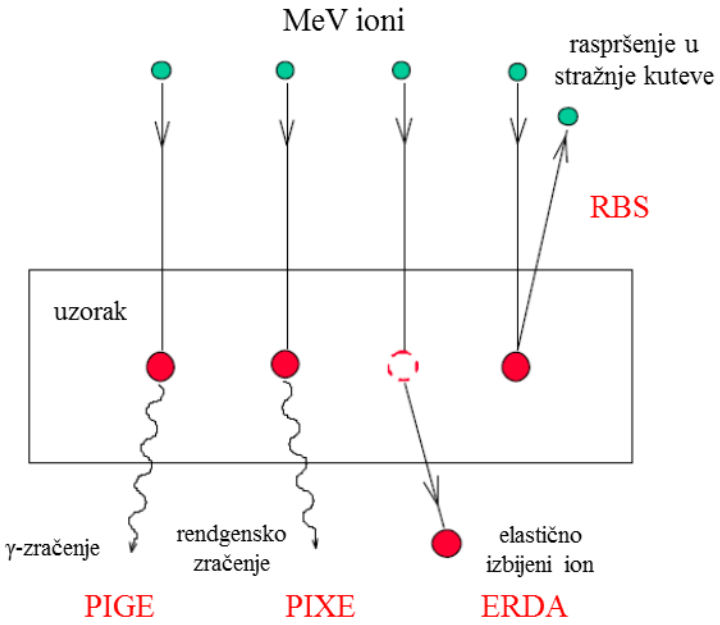
- Međudjelovanje iona s materijom
- Nuklearne reakcije
- Emisiju gama-zračenja
- Međudjelovanje gama-zračenja s materijom

U sljedećim poglavljima dan je teorijski pregled tih procesa. Zatim je opisana detekcija gama-zračenja pomoću scintilacijskog i poluvodičkog detektora te je naposljetku predstavljena metoda protonima inducirane emisije gama-zračenja i relevantne nuklearne reakcije koje omogućuju izotopnu analizu uzorka.

2.1. Međudjelovanje iona s materijom

Prolaskom kroz materijal protoni ili teži ioni energije nekoliko MeV-a predaju dio svoje energije česticama s kojima međudjeluju, njihova kinetička energija se postepeno smanjuje i oni usporavaju. U tom procesu može doći do različitih reakcija na nivou molekule, atoma ili atomske jezgre. Osnovni produkti međudjelovanja uključuju produkte nuklearnih reakcija, kao što su gama-zračenje, čestice proizvedene nuklearnim reakcijama, elektroni iz elektronske konverzije, elektroni i pozitroni iz procesa tvorbe parova te elastično raspršene čestice upadnog snopa i čestice iz mete. Prisutni su još i produkti koji nastaju međudjelovanjem čestica snopa s elektronskim omotačem jezgre, kao što su karakteristično rendgensko zračenje, zakočno zračenje, emisija fotona vidljive svjetlosti te Augerovih elektrona. Isto tako, prisutni su i sekundarni produkti, poput atoma i fragmenata molekula te sekundarnih elektrona, koji nastaju međudjelovanjem osnovnih produkata sa samom metom i ne nose direktnu informaciju o samom elementnom sastavu uzorka.

Detekcija produkata međudjelovanja čestica snopa s metom osnova je velikog broja metoda za analizu materijala pomoću ionskih snopova, od kojih su one relevantne za ovaj rad prikazane na *Slici 2.1.*



Slika 2.1. Prikazano je međudjelovanje iona energije nekoliko MeV-a s uzorkom te neki od produkata tog procesa na čijoj detekciji se temelje pojedine IBA metode.

2.1.1. Fizikalni model gubitka energije

U svakom međudjelovanju s jezgrama i elektronima mete ion gubi dio svoje energije dok se u potpunosti ne zaustavi u meti ili sa smanjenom energijom izađe iz mete. Dva osnovna mehanizma karakteriziraju prolazak iona kroz tvar:

1. gubitak energije zbog neelastičnih raspršenja nabijene čestice sa slobodnim ili vezanim elektronima u atomima tvari (ionizacija, pobuđivanje atoma, disocijacija molekula) – elektronsko kočenje,
2. gubitak energije zbog elastičnih raspršenja na (zasjenjenim) jezgrama atoma tvari – nuklearno kočenje.

Budući da su mase jezgara većine materijala znatno veće od mase upadnih iona (kod ozračavanja lakšim ionima), najveći doprinos gubitku energije dolazi zbog sudara s atomskim

elektronima. Ova međudjelovanja odvijaju se stalno duž putanje nabijenog projektila i ono što se opaža kao konačni gubitak energije je kumulativni rezultat velikog broja događaja. Zato uvodimo fizikalnu veličinu zaustavne moći ili kočenja (engl. *stopping power*):

$$S(E) = -\frac{dE}{dx}. \tag{2.1}$$

Ukupna zaustavna moć je srednji gubitak energije projektila po jedinici puta te je zbroj nuklearnog i elektronskog doprinosa (Braggovo pravilo). Nadalje, zaustavna moć ovisi o:

a) brzini/energiji iona

b) masama iona-projektila i čestice-mete

c) atomskom broju iona i mete

d) elementnom sastavu i gustoći tvari.

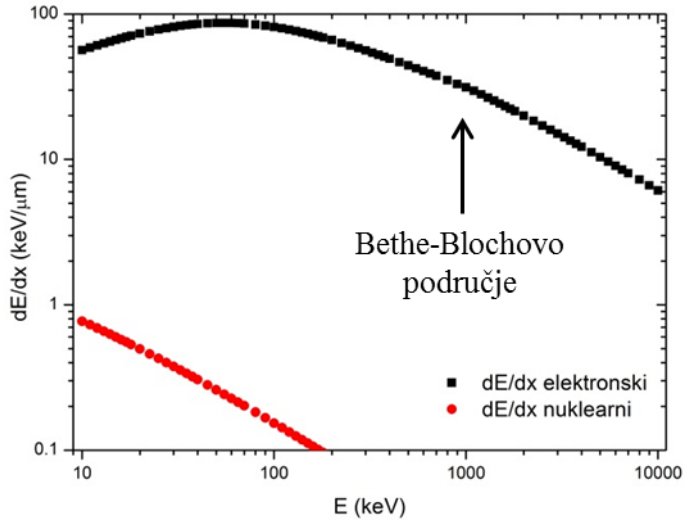
Klasičan opis gubitka energije iona kroz materijal napravio je Bohr davne 1913. godine bazirajući model na pretpostavki da ioni elektrostatski međudjeluju sa slobodnim elektronima atoma mete [Boh13]. U Bohrovom modelu elektron je slobodan i u stanju mirovanja te projektil, zbog svoje znatno veće mase u odnosu na elektron, neznatno skrene od svoje početne putanje. Bohrovi izračuni bili su dobri za slučajeve poput α-čestica ili težih iona, ali, zbog nedostatka kvantnih efekata u modelu, nedovoljno dobri za opis prolaska protona kroz materiju. Kvantnomehaničke ispravke napravili su Bethe [Bet30] i Bloch [Blo33] tako što su uzeli u obzir da su elektroni vezani u elektronskim ljuskama oko jezgre pa proces raspršenja nije više čisto elastičan, već se dio energije potroši na ionizaciju atoma. Tako je dobiven sljedeći izraz poznat kao Bethe-Blochova formula:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{1}{4\pi}\left(\frac{ze^2}{\varepsilon_0}\right)^2 \frac{NZ}{m_e v^2}\left[ln\left(\frac{2m_e v^2}{\langle I\rangle}\right) + \frac{C}{Z}\right], \tag{2.2}$$

gdje je z atomski broj upadnog iona, e elementarni naboj, ε_0 dielektrična konstanta, N koncentracija atoma u meti atomskog broja Z, m_e masa elektrona, a v brzina upadnog iona. Prosječni ionizacijski potencijal $\langle I\rangle$ je usrednjena energija ionizacije I_i po svim podljuskama za koje vrijedi $2m_e v^2 > I_i$, a C je korekcijski član koji opisuje efekte koji dolaze od elektronske ljuske. Za $Z \leq 13$ ionizacijski potencijal ima jednostavnu empirijsku ovisnost o naboju atoma mete $\langle I\rangle = 13Z$, dok je za $Z > 13$ ta ovisnost kompliciranija. Budući da se u Bethe-Blochovoj formuli pojavljuje vrijednost srednje energije ionizacije $\langle I\rangle$, zaustavna moć

bit će drugačija za različita agregatna stanja mete jer o tome ovise elektronska stanja. Također se može definirati i veličina $L = \ln(2m_e v^2/\langle I \rangle)$ koja je poznata pod nazivom zakočni broj (engl. *stopping number*) i sporo se mijenja s energijom iona. Detaljnije o Bethe-Blochovoj formuli i dodatnim korekcijama može se naći u referenci [Leo87].

Modeli koji opisuju zaustavnu moć iona u materijalima baziraju se na semiempirijskim formulama koje su prilagođene eksperimentalnim vrijednostima zaustavnih moći. Najčešće korišten je programski paket SRIM (engl. *The Stopping and Range of Ions in Matter*) [Zie08]. Procijenjena odstupanja vrijednosti zaustavnih moći od poluempirijskih izračuna za područje primjene PIGE metode (lakši ioni energija 1-4 MeV) su manja od 3 %, dok za teže ione ta odstupanja iznose do 10 %.



Slika 2.2. Ovisnost nuklearne i elektronske zaustavne moći o energiji protona u magneziju izračunat korištenjem programa SRIM [Zie08].

Na *Slici 2.2.* vidljivi su nuklearni i elektronski doprinosi zaustavnoj moći protona u magneziju u ovisnosti o energiji protona. Na niskim energijama projektila, gdje su brzine iona puno manje od karakteristične brzine elektrona u atomu (Bohrova brzina) $v_0 = c/137$, dominiraju elastični sudari s jezgrama, tj. nuklearno kočenje. Taj nuklearni dio zaustavne moći može se dosta precizno izračunati ako se uzme u obzir samo elastično međudjelovanje između dvije slobodne čestice (iona i jezgre atoma iz mete). Ovi procesi su značajni samo na niskim energijama, gdje se dešava značajni prijenos impulsa, zbog velikih masa jezgara u odnosu na mase elektrona. Povećanjem brzine iona nuklearno kočenje opada s $1/E$, a neelastični sudari s elektronima, tj. elektronsko kočenje, postaje dominantno. Međutim, kao što se vidi sa *Slike 2.2.*, u slučaju protona nuklearno kočenje je zanemarivo te elektronsko kočenje dominira u

cijelom rasponu energija protona. U rasponu brzina iona $v = \langle 0.1v_0, z^{2/3}v_0 \rangle$ elektronsko kočenje je proporcionalno brzini, tj. raste s $\sqrt{E}$. Taj rast gubitka energije poprima maksimum, tzv. Braggov vrh, u blizini Thomas-Fermijeve brzine elektrona $z^{2/3}v_0$.

Ispod maksimuma krivulje ne vrijedi Bethe-Blochova formula jer dolazi do velikih korekcija zaustavne moći zbog velikog smanjenja broja elektrona u atomu uzorka (efektivni naboj mete se povećava) te zbog velike vjerojatnosti neutralizacije ulaznih iona. To područje može se dobro opisati pomoću Lindhard-Scharfovog modela [Lin53, Lin61] koji se bazira na Thomas-Fermijevom modelu atoma [Sch85].

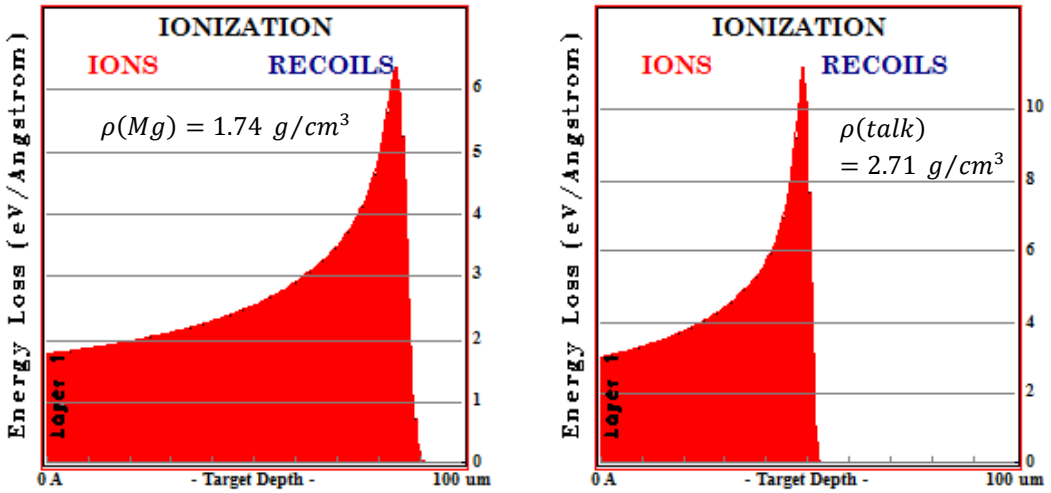
U području iznad maksimuma specifičnog gubitka energije postignuto je ravnotežno stanje naboja i nerelativističke brzine iona su mnogo veće od Thomas-Fermijeve brzine. Eksperimentalno je potvrđeno da formula (2.2) dobro opisuje gubitak energije iona kroz materiju na tim energijama pa je to područje na *Slici 2.2.* označeno kao Bethe-Blochovo područje.

Kod meta koje se sastoje od nekoliko elemenata, zaustavna moć dana je preko Bragg-Kleemannovog pravila [Bra05]:

$$S_{spoj} = \sum_{i-1}^{n} w_i S_i(E), \tag{2.3}$$

gdje su w_i maseni udjeli, a $S_i(E)$ zaustavne moći pojedinih elemenata u meti. Eksperimentalno je utvrđeno da su odstupanja od formule (2.3) općenito manja od 10% za sve vrste projektila i meta [Chu78].

Za prikazanu dubinsku raspodjelu elektronskog kočenja na *Slici 2.3.* uvriježen je naziv Braggova krivulja i iz nje je vidljivo da je maksimalni gubitak energije po jedinici puta upravo na kraju putanje iona. Elektronsko kočenje izraženo je preko gubitka energije ionizacijom za svaki upadni ion po jedinici puta u materijalu, a koriste se mjerne jedinice keV/nm, keV/μm ili eV/Å. Za protone iznos kočenja sporo raste do maksimalne vrijednosti jer se brzina čestice sporo smanjuje s dubinom u materijalu. Pri brzini $v \approx 0.1v_0$ počinje dominirati nuklearno kočenje koje ne doprinosi ionizaciji. Posljedica je smanjenje elektronskog kočenja u blizini dosega iona do nule. Tada brzina projektila postaje mala, ion počinje sakupljati elektrone s mete i na taj način si smanjuje naboj uzrokujući pad zaustavne moći.

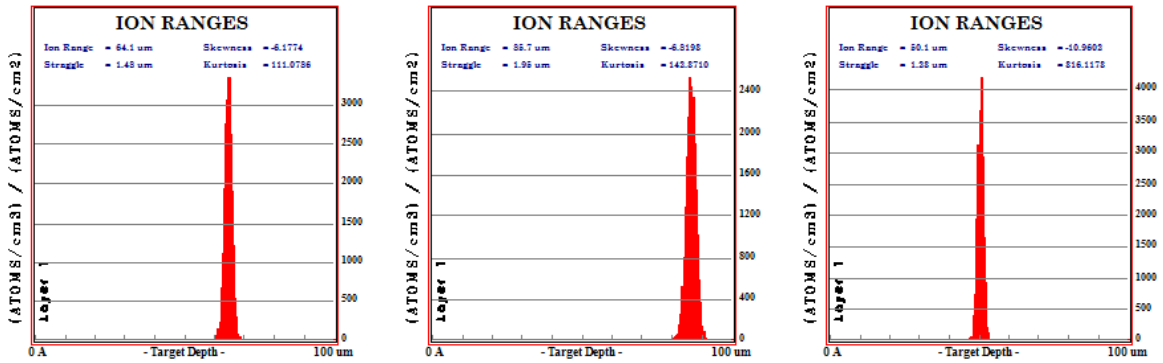


Slika 2.3. Raspodjela elektronskog kočenja (ionizacije) protona energije 2.41 MeV-a u magneziju (*lijevo*) i mineralu talku ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) (*desno*) u ovisnosti o dubini simulirane pomoću SRIM programa [Zie08]. Vidi se da je zaustavna moć veća u materijalu veće gustoće, tj.u talku.

Integracijom izraza za zaustavnu moć dolazi se do veličine zvane doseg iona u materijalu, a to je ukupni put koji ion prijeđe od trenutka ulaska u materijal s energijom E_0 do trenutka zaustavljanja:

$$R = \int_o^{E_0} \frac{dE}{S(E)}. \tag{2.4}$$

Doseg ovisi o vrsti čestica, njihovoj energiji te materijalu kroz koje prolaze. Zbog statističke prirode procesa kočenja, dvije identične čestice istih početnih energija ne moraju nužno doživjeti isti broj raspršenja u materijalu mete te stoga niti imati isti gubitak energije. Stoga će skup identičnih čestica zapravo imati statističku raspodjelu dosega oko neke srednje vrijednosti, kao što se vidi sa *Slike 2.4.* Ta pojava naziva se rasap dosega (eng. *range straggling*) i u prvoj aproksimaciji slijedi Gaussovu raspodjelu. Budući da formula (2.4) ne uzima u obzir višestruka raspršenja uslijed kojih su putanje iona u materijalu „cik-cak“ oblika, tako definiran pravocrtni doseg općenito će biti manji od realnog dosega [Leo87].



Slika 2.4. Raspodjele dosega dobivene SRIM simulacijama [Zie08]: (lijevo) 2.1 MeV protoni u magneziju imaju srednji doseg od 64.1 μm; (*sredina*) 2.41 MeV protoni u magneziju imaju srednji doseg od 85.7 μm; (*desno*) 2.41 MeV protoni u talku (mineralu koji ima veću gustoću od magnezija) imaju srednji doseg od 50.1 μm.

2.1.2. Energijsko rasipanje

Zbog velikog broja pojedinačnih međudjelovanja iona i čestica u meti kočenje je stohastički process. Koliko će energije ion izgubiti prilikom prolaska kroz metu ovisi o broju raspršenja na elektronima i jezgrama, a taj broj kao statistička veličina varira oko srednje vrijednosti. Posljedica toga je da upadni ion dobro definirane energije na određenoj dubini u meti ima određenu raspodjelu energije oko srednje vrijednosti (ulazna energija umanjena za srednji gubitak energije). Širina te raspodjele se naziva energijsko rasipanje (eng. *energy straggling*) i širi se s povećanjem dubine. Za opis energijskog rasipanja potrebno je razmotriti dva slučaja: prolaz kroz tanku i debelu metu.

Za relativno debelu metu broj raspršenja na elektronima je velik i može se smatrati da energijsko rasipanje slijedi Gaussovu raspodjelu [Leo87]:

$$f(x,\Delta E) \propto e^{\frac{-(\Delta E-\overline{\Delta E})^2}{2\sigma^2}}, \tag{2.5}$$

gdje je x debljina mete, ΔE gubitak energije u meti, $\overline{\Delta E}$ srednji gubitak energije u meti, a σ standardna devijacija.

Najjednostavniji opis energijskog rasipanja dao je još Bohr 1915. godine [Boh15], primijenivši isti klasični model koji je u prethodnom poglavlju uveden za opis elektronskog doprinosa zaustavnoj moći. Tako se uz pretpostavku prijenosa energije na elektron u stanju

mirovanja, čija je masa puno manja od mase iona, dobije sljedeći izraz za standardnu devijaciju, tj. Bohrovu vrijednost energijskog rasipanja:

$$\Omega_{Bohr}^2 = 4\pi(ze^2)^2 NZx\,. \tag{2.6}$$

Vidi se da u Bohrovom opisu energijsko rasipanje ne ovisi o energiji ulaznih iona, već samo o njihovoj vrsti z i korijenu elektronske gustoće mete po jedinici površine $\sqrt{NZx}$. Međutim, takva ovisnost o debljini mete vrijedi samo za područja u kojima je srednji gubitak energije iona kroz uzorak $(\overline{\Delta E})$ malen u odnosu na srednji iznos energiju iona u meti $(\bar{E})$. Budući da ta pretpostavka ne vrijedi za jako debele mete u kojima je gubitak energije iona značajan te se energija iona mijenja prolaskom kroz metu, Tschalär je predložio drugačiji izraz za energijsko rasipanje [Tsc70].

Također, kako se energija iona smanjuje i elektronsko kočenje izlazi iz Bethe-Blochovog područja, sve više postaje važna činjenica da su elektroni zapravo vezani u atomima mete. Uzevši to u obzir, Lindhard i Scharff su proširili Bohrovu teoriju i uvели korekcije za projektile niskih i srednjih energija [Lin53]:

$$\begin{aligned} \Omega^2 &= \Omega_{Bohr}^2 \,\frac{1}{2} L(\chi) \quad za \;\; \chi \leq 3, \\ \Omega^2 &= \Omega_{Bohr}^2 \qquad\quad za \;\; \chi \geq 3, \end{aligned} \tag{2.7}$$

gdje je $\chi = v^2/Zv_0^2$ reducirana varijabla energije, a $L(\chi)$ zakočni broj iz Bethe-Blochove formule (2.2). Uslijedile su mnogobrojne dodatne korekcije kako bi se teorijski izračuni što više uskladili s mjerenjima energijskog rasipanja. Više o tome može se naći u referenci [Chu78]. Danas su najvažnije popravke Bohrovog modela one koje su predložili Chu i Yang, a koje uzimaju u obzir da su elektroni vezani u atomima mete [Chu76] i mogućnost da dolazi do fluktuacije naboja projektila (važna za ione sa $Z > 2$) [Yan91].

S druge strane, krivulja energijskog rasipanja jako je asimetrična za tanke mete zbog pojedinačnih raspršenja kod kojih dolazi do velikog prijenosa energije. Modele energijskog rasipanje za taj slučaj izložili su Landau [Lan44] i Vavilov [Vav57], a pregled se može naći u [Leo87]. Budući da je u većini slučajeva energijska razlučivost poluvodičkih detektora, koji se koriste u eksperimentima raspršenja, reda veličine 10 keV, nesimetričnost energijskog rasipanja ne može se uočiti.

2.2. Nuklearne reakcije

Nuklearne reakcije su transformacije atomskih jezgri uslijed njihovog međudjelovanja s drugim jezgrama ili ostalim elementarnim česticama. Svaka od jezgara se u tom procesu, ovisno o mehanizmu same reakcije, može, ali i ne mora, promijeniti. Za svaku nuklearnu reakciju definira se ulazni i izlazni kanal. Pojedinom ulaznom kanalu reakcije odgovara više različitih izlaznih kanala, svaki s određenom vjerojatnošću. Bitan faktor pri određivanju te vjerojatnosti je tzv. *Q*-vrijednost reakcije. Za tipičnu nuklearnu reakciju $a + A \rightarrow B + b$, tj. $A(a,b)B$, Q-vrijednost jednaka je razlici između ukupnih kinetičkih energija čestica u ulaznom i izlaznom kanalu te iznosi:

$$Q = (M_a + M_A - M_B - M_b)c^2, \tag{2.8}$$

gdje su M_a, M_A, M_B i M_b mase projektila *a*, jezgre mete *A*, jezgre koja nastaje u reakciji *B* te emitirane čestice *b*.

Ako je $Q>0$, reakcija je egzoenergijska (egzotermna), tj. u njoj se oslobađa energija. S druge strane, ako je $Q<0$, reakcija je endoenergijska (endotermna), tj. u njoj se energija apsorbira pa je potrebno uložiti odgovarajuću kinetičku energiju da bi se takva reakcija dogodila. Za endoenergijsku reakciju postoji energija praga, tj. minimalna energija koju je potrebno uložiti da bi došlo do nuklearne reakcije.

Nuklearne reakcije su izvanredno složene kvantnomehaničke pojave čiji ishod ovisi o mehanizmu reakcije, međudjelovanju projektila i mete te o unutrašnjoj strukturi jezgri koje sudjeluju u reakciji. Ovisno o tipu reakcije postoje različiti teorijski modeli, a oni najjednostavniji su optički model, model složene jezgre i model direktne interakcije. Osnovna klasifikacija nuklearnih reakcija je sljedeća [Kra88]:

1. Raspršenja – ako su ulazne i izlazne čestice iste, tj. A i B odgovaraju istoj jezgri
    a) elastična – ako su B i b u osnovnim stanjima
    b) neelastična – ako su B ili b u pobuđenim stanjima
2. Reakcije izbacivanja (eng. *knockout*) – ako su a i b iste čestice, a reakcija uzrokuje izbacivanje još jednog nukleona
3. Reakcije prijenosa – između projektila i mete izmjeni se jedan ili više nukleona.

S obzirom na mehanizam reakcije koji je odgovoran za proces, reakcije se mogu podijeliti u dvije osnovne kategorije:

1. direktne reakcije
2. reakcije složenom jezgrom.

Osnovni kriterij takvog razvrstavanja je trajanje reakcije. Kategorija direktnih reakcija obuhvaća reakcije kojima je trajanje istog reda veličine kao i vrijeme proleta projektila preko područja jezgre mete (≈10^{-22} s), dok se u reakcije složenom jezgrom ubrajaju one kojima je trajanje bitno duže (uobičajeno reda veličine 10^{-16}-10^{-18} s, a uočena su i puno duža vremena reda 10^{-14} s). Za svaku od ove dvije kategorije reakcija upotrebljavaju se zasebni modeli i aproksimativni kvantnomehanički postupci. Također, ove dvije kategorije reakcija međusobno se ne isključuju te oba tipa procesa mogu u različitim omjerima doprinositi danoj reakciji. I dok za niže energije upadnog projektila prevladava reakcijski mehanizam složenom jezgrom, za veće energije projektila (>10 MeV) se više pojavljuju direktne reakcije [Kra88].

Često se za lake jezgre umjesto o reakcijama složenom jezgrom govori kao o rezonantnim reakcijama. Oštri i izraziti vrhovi u spektrima ekscitacijskih funkcija u pravilu su potpis postojanja rezonaci složene jezgre jer direktne reakcije nemaju izrazitu ovisnost o energiji projektila. To je posljedica kratkog trajanja direktnih reakcija, odnosno velike širine stanja, a proizlazi iz Heisenbergovog principa neodređenosti: $\Delta E \Delta t \equiv \Gamma \tau \geq \hbar$, gdje je τ srednje vrijeme života stanja, Γ širina stanja, a $\hbar = h/2\pi$ reducirana Planckova konstanta.

Budući da je ovaj rad baziran na pobuđenjima s projektilima niskih energija (nekoliko MeV-a), u sljedećem poglavlju podrobnije će biti opisane reakcije složenom jezgrom, tj. rezonantne reakcije.

2.2.1. Reakcije složenom jezgrom

Reakcija složenom jezgrom odvija se u dva neovisna koraka:

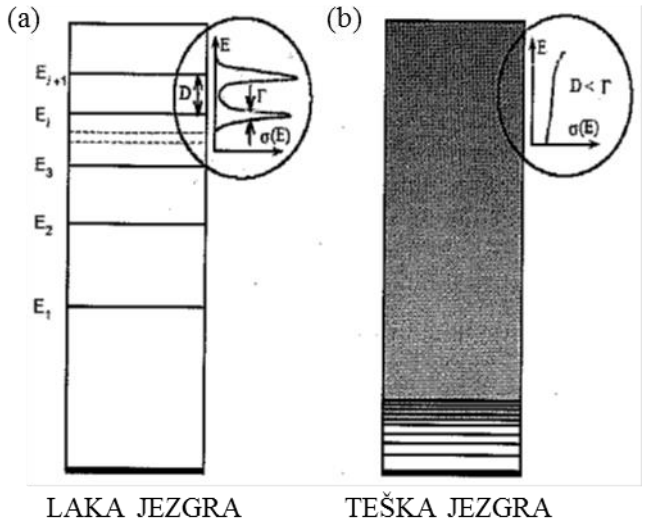
$$a + A \rightarrow C^* \rightarrow B^* + b \tag{2.9}$$

U prvom koraku spajanjem projektila a i jezgre mete A nastaje nova složena jezgra u visokopobuđenom stanju C^*. To međustanje se ne raspada dovoljno dugo vremena da se

energija donekle podjednako podijeli na sve nukleone u jezgri. Kada jedan nukleon ili grupa nukleona unutar jezgre skupi dovoljno energije da se odvoji od ostatka jezgre, slijedi drugi korak, tj. jezgra se raspada.

Preostala pobuđena jezgra B^* može se deekscitirati daljnjim čestičnim raspadom ili beta-raspadom, odnosno gama-raspadom. Zbog dugog vremenskog intervala između nastanka i raspada složene jezgre, a i zbog višestrukih međudjelovanja nukleona unutar jezgre tijekom tog perioda, dolazi do gubitka indentiteta prvotnih jezgri. Tako se za složenu jezgru C^* može reći da se raspada potpuno neovisno o načinu nastanka. Drugim riječima, vjerojatnost određenog izlaznog kanala bit će neovisna o ulaznom kanalu (tzv. Bohrova hipoteza) te će raspad međustanja biti određen samo s energijom pobuđenja.

Zbog slučajnih međudjelovanja među nukleonima, izlazna čestica u reakciji složenom jezgrom ima približno izotropnu kutnu raspodjelu, što se u većini slučajeva slaže s eksperimentima [Kra88]. Međutim, u slučaju teškog projektila dolazi do velikog prijenosa kutne količine gibanja na složenu jezgru, što vodi na pojačanu emisiju izlaznih čestica prema kutevima od 0º i 180º. Taj efekt je zanemariv za lake projektile.



Slika 2.5. Shema energijskih nivoa i odgovarajuća energijska ovisnost udarnog presjeka za: *(a)* lake i *(b)* teške jezgre. Preuzeto iz [Wan09].

Osnovna razlika između lakih i težih jezgara je broj pobuđenih stanja. Budući da broj pobuđenih stanja u složenoj jezgri raste s energijom pobuđenja, za teže jezgre taj je broj jako velik. Također, ta visokopobuđena stanja složene jezgre imaju kraća vremena života pa je njihova širina Γ puno veća od razmaka između pojedinačnih stanja (D), tj. $\Gamma \gg D$. Stoga se

dobiva kontinuum energijskih stanja te više nije moguće razmatrati pojedina stanja, već se statističkim pristupom razmatra gustoća stanja na nekoj energiji pobuđenja. Posljedica toga je relativno monotona ovisnost udarnog presjeka o energiji, kao što se vidi na *Slici 2.5.(b)*.

S druge strane, niskopobuđena stanja složene jezgre imaju duža vremena života pa je njihova širina puno manja od razmaka među pojedinim stanjima, tj. $\Gamma \ll D$. Stoga se složena jezgra niske energije pobuđenja može nalaziti samo u određenim diskretnim energijskim stanjima. Ako je energija projektila upravo tolika da se poklapa s jednom od diskretnih vrijednosti energije E_R kvazistacionarnog stanja pobuđene jezgre C^*, dobit će se rezonanca. Ta stanja imaju veliku vjerojatnost nastanka, tj. velike udarne presjeke, pa u najjednostavnijoj formi rezonance vode na maksimume u energijskoj ovisnosti udarnog presjeka prikazane na *Slici 2.5.(a)*. Udarni presjek za izoliranu rezonancu energije E_R i širine Γ najjednostavnije se može opisati Breit-Wignerovom formulom [Kra88]:

$$\sigma_{ab}(E) = \frac{\pi}{k^2}\gamma\frac{\Gamma_a\Gamma_b}{(E-E_R)^2+\Gamma^2/4}, \tag{2.10}$$

gdje je k iznos valnog vektora (obrnuto proporcionalan de Broglievoj valnoj duljini λ), γ statistički faktor koji uključuje kvantni broj spina, a Γ_a i Γ_b parcijalne širine za ulazni, odnosno izlazni kanal reakcije. Rezonantni udarni presjeci obično su tabelirani u raznim kompilacijama [End90, Wan09a] ili kao udarni presjeci na energiji rezonance $\sigma(E_R) = \pi\gamma\lambda^2 4\,\Gamma_a\Gamma_b/\Gamma^2$ u barnima ($1b = 10^{-24}\,cm^2$), ili kao snaga rezonance $S = (2J+1)\,\Gamma_a\Gamma_b/\Gamma$, gdje je J kvantni broj spina rezonantnog stanja, u eV jedinicama.

U realnosti su rezonance Breit-Wignerovog tipa rijetke i puno je češći prijelazni slučaj u kojem je $\Gamma \sim D$ te udarni presjek ima jako oscilirajuću strukturu. Za potpunije fizikalno razumijevanje pojava rezonanci potrebna je i fundamentalnija teorija, npr. Wignerova teorija R-matrice [Lan58].

2.3. Emisija gama-zračenja

Elektromagnetsko zračenje koje je rezultat prijelaza među stanjima jezgre, koja se formira prilikom nuklearne reakcije ili raspadom radioaktivne jezgre (alfa i beta-raspadi), zove se gama-zračenje. Emisijom jednog ili više fotona, pobuđene jezgre se vraćaju u niže ili osnovno

stanje i to je dominantan način prijelaza za niskoležeća pobuđena stanja. Osim emisijom gama-zračenja, jezgre se mogu deekscitirati i procesima unutarnje konverzije i tvorbom elektron-pozitron para.

U procesu unutarnje konverzije energija pobude prenosi se na atomski elektron koji se izbacuje iz svoje orbitale. Njegova kinetička energija jednaka je energiji gama-prijelaza umanjenoj za energiju veze elektrona u dotičnoj orbitali. Elektroni koji se emitiraju u procesima unutarnje konverzije imaju diskretne energije i time se razlikuju od kontinuiranog spektra energije elektrona emitiranih u beta-raspadu.

Ako je energija dovoljno visoka (viša od sume masa elektrona i pozitrona, tj. 1.02 MeV), može doći i do tvorbe para, gdje se energija pobude pretvara u par elektron-pozitron. Vjerojatnost ovog procesa je nekoliko redova veličine manja nego za dozvoljenu emisiju fotona. Međutim, postoje prijelazi kod kojih je emisija fotona zabranjena sačuvanjem kutne količine gibanja (npr. $0^+ \rightarrow 0^+$). Kod takvih prijelaza važnu ulogu ima produkcija para elektron-pozitron.

Vjerojatnost raspada (radioaktivnog prijelaza) za bilo koju jezgru ne ovisi ni u jednom trenutku o prisustvu ostalih jezgara. Broj raspada u svakom trenutku proporcionalan je broju jezgara N i opisan je zakonom:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t), \tag{2.11}$$

gdje je λ konstanta raspada, a $N(t)$ broj radioaktivnih jezgara u nekom trenutku t. Jednostavnom integracijom dobiva se:

$$N(t) = N_0 e^{-(\lambda t)}, \tag{2.12}$$

gdje je N_0 broj jezgri u početnom trenutku $t=0$. Konstanta raspada λ je u biti vjerojatnost prijelaza W i ovisi o prirodi smetnje koja uzrokuje raspad, kao i svojstvima početnog i konačnog stanja jezgri sudionika. λ je obrnuto proporcionalna srednjem vremenu života radioaktivnih jezgara $\tau = 1/\lambda$ pa upotrebom načela neodređenosti energije dobivamo sljedeću povezanost parametara raspada:

$$\frac{\Delta E}{\hbar} \equiv \frac{\Gamma}{\hbar} = \frac{1}{\tau} = \frac{ln2}{T_{1/2}} = \lambda \equiv W\,, \tag{2.13}$$

gdje je $T_{1/2}$ vrijeme poluživota, tj. vrijeme za koje aktivnost uzorka padne na polovicu početne vrijednosti).

Vjerojatnost nalaženja pobuđenog stanja na energiji E slijedi Lorentzovu raspodjelu, a širina Γ odgovara punoj širini na pola maksimuma te raspodjele. Budući da pobuđeno stanje može imati više mogućnosti deekscitacije, tj. različita konačna stanja, ukupna vjerojatnost prijelaza za dano početno stanje je suma pojedinačnih vjerojatnosti prijelaza u sva moguća konačna stanja. Analogno tome, ukupna širina stanja je suma parcijalnih širina. Stoga je ukupna radijacijska širina nivoa jezgre Γ dana zbrojem parcijalnih širina koje odgovaraju gore navedenim procesima deekscitacije pobuđene jezgre. Također se može definirati omjer grananja kao parcijalna vjerojatnost prijelaza u određeno konačno stanje prema ukupnoj vjerojatnosti prijelaza iz danog početnog stanja.

Svojstva jezgri koja su bitna za procese deekscitacije su energija nuklearnih stanja (početnih i konačnih), vrijeme života tih stanja te njihov spin i paritet. Svojstva emitiranog gama-zračenja su emitirana energija, prenesena kutna količina gibanja, multipolaritet i vjerojatnost emisije. Formalno se ova svojstva opisuju raznim valnim funkcijama početnih i konačnih stanja jezgre te operatorima koji karakteriziraju elektromagnetske prijelaze.

2.3.1. Kinematički efekti

Razmotrimo raspad jezgre u mirovanju mase M iz početnog stanja E_i u konačno stanje E_f. Zbog zakona sačuvanja energije i impulsa u procesu gama-emisije, brzina odboja jezgre (eng. *recoil*) takva je da je njezina količina gibanja jednaka količini gibanja emitiranog fotona: $p_R = p_\gamma$. Stoga, jezgra mora imati odboj u smjeru suprotnom od smjera emisije fotona. Energija odboja $p_R^2/2M$, iako malena, mora se uzeti u obzir ako se želi povezati energija fotona E_γ s energijama nuklearnih stanja koja sudjeluju u procesu:

$$\Delta E = E_\gamma + \frac{E_\gamma^2}{2Mc^2}, \tag{2.14}$$

gdje je ΔE energija prijelaza. Iz toga slijedi da je energija emitiranog gama-zračenja neznatno manja od energije prijelaza:

$$\Delta E - E_\gamma = (5.37 \times 10^{-4}/A){E_\gamma}^2, \tag{2.15}$$

gdje je A maseni broj emitirajuće jezgre, a E_γ energija u MeV-ima. Za gama-zračenje niskih energija, energija odboja je manja od 1 eV i zanemarivog je efekta. Međutim, gama-zračenje energije 5-10 MeV-a daje odboj reda veličine 100 eV, što može biti dostatno za pomicanje atoma u kristalnoj rešetci te za oštećeje materijala zračenjem.

Ova razmatranja vrijede za jezgru u mirovanju. Ukoliko se jezgra gibala u trenutku emisije zračenja, dolazi do pomaka u frekvenciji emitiranog zračenja pa s time i do pomaka u energiji. Ta pojava naziva se dopplerski pomak. Stoga je energija detektiranog gama-zračenja (E_γ) dopplerski pomaknuta u odnosu na energiju emitiranog gama-zračenja (E'_γ):

$$E_\gamma = E'_\gamma \left[1 + \frac{v}{c} cos\theta\right], \tag{2.16}$$

gdje je θ kut između smjera gibanja jezgre i pozicije detektora, a v brzina jezgre prije emisije gama-zračenja.

Zbog činjenice da su dopplerski efekt i odboj jezgre istovremeno prisutni, energija detektiranog gama-zračenja jednaka je:

$$E_\gamma = E'_\gamma \left[1 + \frac{v}{c} cos\theta + \left(\frac{v}{c}\right)^2 \left(cos^2\theta - \frac{1}{2}\right)\right]. \tag{2.17}$$

Dopplersko širenje većinom je posljedica kratkog vremena života pobuđenih stanja ($< 10^{-15}$ s) jer se tada emisija gama-zračenja događa u letu, tj. prije nego što se jezgra uspori i zaustavi u meti. Doprinosi mu i velik odboj lake jezgre te velika širina rezonance. Dopplerski efekt posebno je značajan u slučaju lakih jezgara mete. Da bi se efekt minimizirao potrebno je detektor postaviti na kut od 90º prema smjeru ulaznog snopa, dok je za kut od 0º efekt najveći. U situacijama kad je dopplersko širenje spektralne linije znatno, otežano je određivanje točnog broja događaja ispod vrha u mjerenom spektru.

2.3.2. Vjerojatnosti elektromagnetskih prijelaza

Električni i magnetski prijelazi događaju se uslijed međudjelovanja elektromagnetskog polja s raspodjelom naboja u jezgri i intrinsičnim magnetizmom jezgre. Elektromagnetsko zračenje, u

analogiji s potencijalom kojeg stvara proizvoljna raspodjela naboja, razvija se po multipolima. Tako vezanje raspodjele naboja na vanjsko elektromagnetsko polje vodi na električne multipolne prijelaze, a međudjelovanje intrinsičnog magnetizma nukleona s elektromagnetskim poljem na magnetske multipolne prijelaze.

Vjerojatnost prijelaza W_{fi} iz početnog stanja i u neko konačno stanje f, po jedinici vremena, dana je Fermijevim zlatnim pravilom u okviru vremenski ovisnog računa smetnji [Won98]:

$$W_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar}|\langle f|H_{int}|i\rangle|^2 \rho(E_f), \tag{2.18}$$

gdje je $|\langle f|H_{int}|i\rangle|$ nuklearni matrični element, H_{int} Hamiltonijan interakcije koji sadrži vezanje nuklearnog i elektromagnetskog polja, a $\rho(E_f)$ gustoća konačnih stanja.

Ključan korak u postupku pronalaženja W_{fi} je kvantizacija i multipolan razvoj elektromagnetskog potencijala radi opisa vezanja na nuklearne stupnjeve slobode [Won98]. Iz vezanja računamo Hamiltonijan smetnje, tj. operatore električnog $O_{\lambda\mu}(E\lambda)$ i magnetskog $O_{\lambda\mu}(M\lambda)$ prijelaza:

$$O_{\lambda\mu}(E\lambda) = -\frac{i(2\lambda+1)!!}{ck^{\lambda+1}(\lambda+1)}\vec{j}(\vec{r})\cdot\vec{\nabla}\times(\vec{r}\times\vec{\nabla})(j_\lambda(kr)Y_{\lambda\mu}(\theta,\phi)) \tag{2.19}$$

$$O_{\lambda\mu}(M\lambda) = -\frac{(2\lambda+1)!!}{ck^{\lambda}(\lambda+1)}\vec{j}(\vec{r})\cdot(\vec{r}\times\vec{\nabla})(j_\lambda(kr)Y_{\lambda\mu}(\theta,\phi)) \tag{2.20}$$

gdje je $j_\lambda(kr)$ sferna Besselova funkcija, a $Y_{\lambda\mu}(\theta,\phi))$ kuglina funkcija. Na taj način definirani operatori prenose λ jedinica kutnog momenta μ ili, jednostavnije rečeno, multipolaritet. Normalizacija je takva da se za k→0 operatori reduciraju na one za statičke momente.

Tipične energije fotona u elektromagnetskim prijelazima su manje od 1-2 MeV-a pa je valni vektor $k = E_\gamma/\hbar c \approx 1/200\ fm^{-1}$. Također, multipolni operatori djeluju na nuklearnu valnu funkciju, a to znači da matrični elementi tih operatora ne mogu imati doprinose u području izvan jezgre, gdje valna funkcija iščezava pa je $r \leq 10\ fm$. Stoga je valna duljina $\lambda = 2\pi/k \approx 100\ fm$ puno veća od dimenzija jezgre pa fotoni nisu osjetljivi na detalje radijalnog dijela valne funkcije. U toj dugovalnoj aproksimaciji argument Besselove funkcije je $kr \ll 1$ pa se električni i magnetski multipolni operatori mogu napisati kao sume jednočestičnih operatora koji djeluju na valne funkcije individualnih nukleona. Sada vjerojatnost multipolnog prijelaza za raspad nepolariziranih jezgri poprima oblik:

$$W_{fi}(\lambda) = \frac{8\pi(\lambda+1)}{\lambda[(2\lambda+1)!!]^2}\frac{k^{2\lambda+1}}{\hbar}B_{fi}(\lambda), \tag{2.21}$$

gdje je $B_{fi}(\lambda)$ reducirana vjerojatnost prijelaza. Iz ovog izraza vidi se da vjerojatnost prijelaza ima jaku ovisnost o energiji prijelaza preko faktora $k^{2\lambda+1}$ te o multipolaritetu prijelaza λ, odnosno odnešenom kutnom momentu l. Također se vidi da zračenje emitirano raspadom nepolariziranih jezgri nema kutne ovisnosti, tj. izotropno je.

Ostaje problem računanja reduciranih matričnih elemenata [Won98]. U jednočestičnom modelu se pretpostavlja da su svi prijelazi posljedica promjene orbite jednog nukleona u potencijalu koji stvaraju svi ostali nukleoni. Također, u prvoj aproksimaciji se pretpostavlja da je jezgra sfernog oblika, konstantne gustoće te polumjera $R = r_0 A^{1/3}\, fm$, gdje je $r_0 \approx 1.2\, fm$. Tada se dobiva Weisskopfova jednočestična procjena reducirane vjerojatnosti električnog prijelaza za λ-ti multipol:

$$B_W(E\lambda) \cong e^2\langle r^\lambda\rangle^2\ \frac{1}{4\pi} = \frac{1}{4\pi}\left(\frac{3}{\lambda+3}\right)^2 (1.2)^{2\lambda} A^{2\lambda/3}\, e^2\, fm^{2\lambda}. \tag{2.22}$$

Procjena za magnetski prijelaz je kompliciranija budući da postoje doprinosi intrisičnog spina oba nukleona te orbitalnog gibanja protona. Primjenom slične procedure onoj za električne prijelaze dobije se Weisskopfova jednočestična procjena reducirane vjerojatnosti magnetskog prijelaza za λ-ti multipol:

$$B_W(M\lambda) = \frac{10}{\pi}\left(\frac{3}{\lambda+3}\right)^2 (1.2)^{2\lambda-2} A^{(2\lambda-2)/3}\, \mu_N^2\, fm^{2\lambda-2}, \tag{2.23}$$

gdje je $\mu_N = e\hbar/2Mc$ nuklearni magneton.

Iz izraza (2.22) i (2.23) vidi se da Weisskopfove procjene, osim o energiji i multipolaritetu, ovise i o masi jezgre A. Električni prijelazi otprilike su za dva reda veličine vjerojatniji od magnetskih za srednje teške i teške jezgre. Također je očito da su vjerojatnosti prijelaza najveće za najniži multipol te da se povećanjem multipola za jedan smanjuje vjerojatnost prijelaza za otprilike 10^{-5}.

Weisskopfove procjene koriste se kao standardi, tj. jedinice, mjerenih reduciranih vjerojatnosti prijelaza. Do značajnih odstupanja mjerenih vrijednosti od Weisskopfovih dolazi ako je u prijelazu sudjelovalo više nukleona (kolektivno pobuđenje), a uočena su odstupanja i za prijelaze koji uključuju samo jedan nukleon [Won98].

2.3.3. Izborna pravila za elektromagnetske prijelaze

Ako za određeni red multipola λ, nuklearni matrični elementi koji određuju vjerojatnost prijelaza iščezavaju, tada je prijelaz zabranjen i ta multipolna komponenta elektromagnetskog polja je odsutna. Za svaki gama-prijelaz ukupni kutni impuls J i paritet π moraju biti sačuvani. Standardna izborna pravila nameću ograničenja na λ:

$$|J_f - J_i| \leq \lambda \leq J_f + J_i \tag{2.24}$$

Proračuni vjerojatnosti W_{fi} navode na jako potisnuće multipola višeg reda, a dozvoljenih izrazom (2.24). Omjer vjerojatnosti za multipolne prijelaze λ i $\lambda+1$ je $\sim (kr)^2$, tj. $\approx 3 \cdot 10^{-5}$ za fotone energije od 1 MeV i promjer jezgre od 1 fm, pa za dozvoljene vrijednosti λ vrijedi:

$$W(E\lambda) \gg W(E(\lambda+1)) \tag{2.25}$$

$$W(M\lambda) \gg W(M(\lambda+1)). \tag{2.26}$$

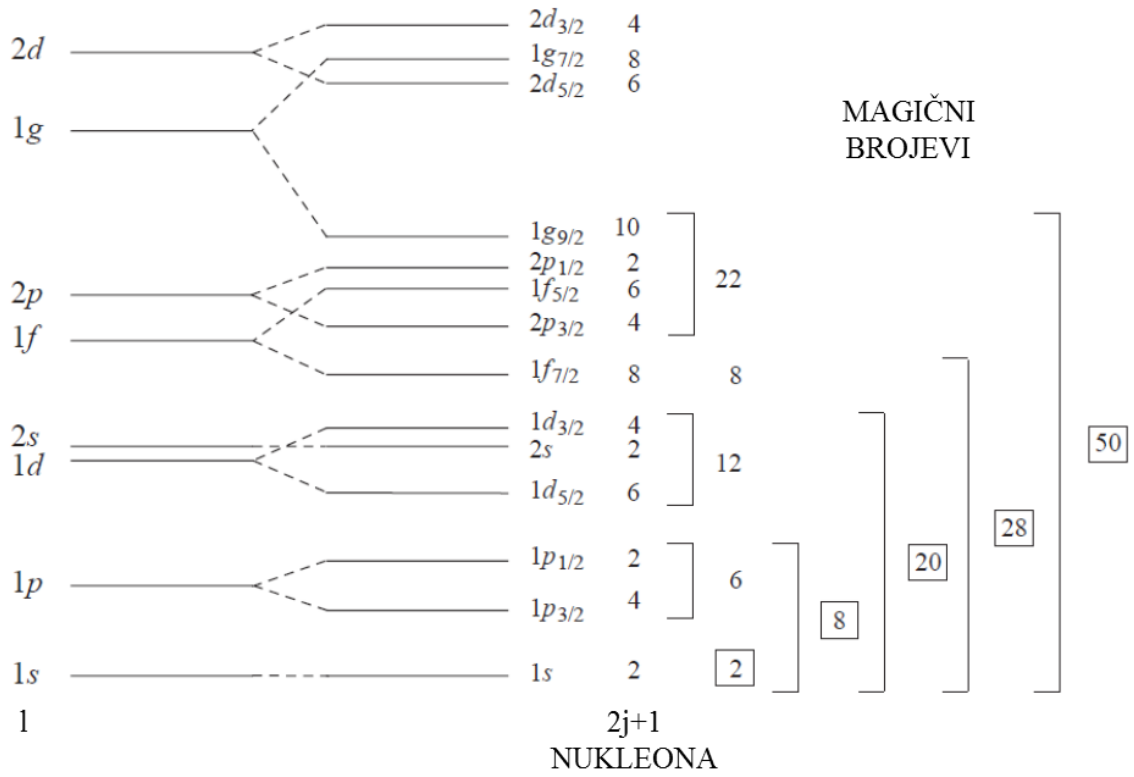
Vidi se da u prijelazu dominira najniži dozvoljen multipol te da su multipoli višeg reda jako potisnuti. Općenito, samo prvih par članova u multipolnom razvoju su od značaja, a viši članovi razvoja iščezavaju. Fizikalno objašnjenje proizlazi iz toga da su prijelazi s nižim λ vjerojatniji, a što proilazi iz računa vjerojatnosti na osnovu realnih fizikalnih modela.

Isto tako u nekom prijelazu nikad nećemo imati električni i magnetski multipol istog reda. Razlog tome su izborna pravila pariteta:

$$E\lambda\colon\ \pi_i\pi_f = (-1)^{\lambda} \quad i \quad M\lambda\colon\ \pi_i\pi_f = (-1)^{\lambda+1} \tag{2.27}$$

Da li će emitirano zračenje biti električnog ili magnetskog karaktera ovisi o relativnom paritetu početnih i konačnih stanja. Ako nema promjene pariteta, tada imamo parne električne i neparne magnetske prijelaze, a ako ima promjene pariteta situacija je obrnuta. Također, izborno pravilo pariteta za električne prijelaze direktno slijedi iz pariteta kuglinih funkcija, dok se za magnetske prijelaze razlikuje zbog prisutnosti diferencijalnog operatora $\vec{\nabla}$ koji je zaslužan za potiskivanje magnetskih naspram električnih prijelaza. Recimo, u slučaju kada najniži multipol pripada električnom prijelazu $E\lambda$, taj će uglavnom prevladati magnetski doprinos $M(\lambda+1)$. U obrnutoj situaciji većinom neće vrijediti suprotno.

Izuzetak izbornim pravilima za kutnu količinu gibanja javlja se kada je $J_i=J_f$ jer ne postoji monopolni prijelaz ($\lambda=0$) u kojem se emitira foton. Klasično gledano, to je zbog toga što je monopolni moment predstavljen električnim nabojem koji ne oscilira u vremenu pa ni ne može proizvesti elektromagnetsko zračenje. Stoga je za prijelaze u kojima je $J_i=J_f$ najniži mogući multipol dipol ($\lambda=1$), ali on je zabranjen za radijativne prijelaze (izborna pravila daju samo $\lambda=0$) pa se takva stanja raspadaju drugim mehanizmima kao što je interna konverzija. Slučaj u kojem su J_i ili J_f jednaki nuli je jednostavan jer je tada moguć samo čisti multipolni prijelaz [Mar09].



Slika 2.6. Shematski prikaz spektra jednočestičnih stanja modela ljusaka. Preuzeto iz [Mar09].

Interesantno je zamijetiti, promatrajući energijska stanja u modelu ljusaka (eng. *shell model*) prikazanu na *Slici 2.6.*, da ne postoje slučajevi da se dvije orbitale unutar iste ljuske razlikuju za jedan u iznosu orbitalnog momenta impulsa *l*. Međutim, poznato je da su niskoležeća stanja jezgri sastavljena iz različitih konfiguracija nukleona unutar iste ljuske tako da ti prijelazi ne mogu biti E1 tipa. Zato su prijelazi među niskoležećim stanjima najčešće E2 tipa. Za stanja s dovoljno energije pobude za prebacivanje nukleona u sljedeću ljusku, što zahtijeva energiju od ≈ 6 MeV za teške jezgre, a još i više za lake jezgre, česti su E1 prijelazi u osnovno stanje.

2.4. Međudjelovanje zračenja s materijom

Prolaskom kroz materijal, dolazi do atenuacije zračenja:

$$I = I_0 e^{-\mu x}, \tag{2.28}$$

gdje je I intenzitet izlaznog zračenja, I_0 intenzitet ulaznog zračenja, μ atenuacijski (apsorpcijski) koeficijent, a x debljina materijala. Linearni koeficijent atenuacije karakteristika je materijala i izražava se u jedinicama cm^{-1} te je povezan s ukupnim udarnim presjekom:

$$\mu = N\sigma_{tot}, \tag{2.29}$$

gdje je N broj atoma po cm^3. Međutim, u primjeni je najčešće maseni atenuacijski koeficijent koji je omjer linearnog atenuacijskog koeficijenta i gustoće materijala te je izražen u jedinicama cm^2/g, dok je debljina materijala tada izražena u jedinicama g/cm^2.

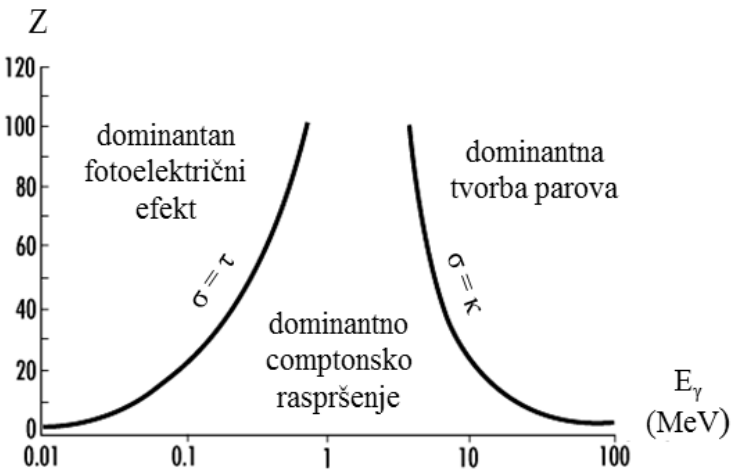
Atenuacijski koeficijent sastoji se od tri doprinosa koja dolaze od najvažnijih procesa odgovornih za atenuaciju gama-zračenja u materiji:

1. fotoelektrični efekt (μ_τ)
2. comptonsko raspršenje (μ_σ)
3. tvorba elektron-pozitron para (μ_κ).

Svi ovi procesi vode do djelomičnog ili potpunog prijenosa energije fotona pa je foton ili u potpunosti apsorbiran u materijalu ili skrenut u odnosu na svoju primarnu putanju. Zbog manjeg udarnog presjeka, gama-zračenje prodire dublje u materijal i snop fotona nije degradiran u energiji već samo atenuiran u intenzitetu budući da gornji procesi potpuno uklanjaju foton iz primarnog snopa.

Vjerojatnost pojavljivanja svakog od gore navedenih procesa ovisi o energiji upadnog fotona i atomskom broju apsorbirajućeg materijala Z (*Slika 2.7.*). Stoga je ukupna vjerojatnost da će foton karakterističnog gama-zračenja imati bilo kakvo međudjelovanje prolaskom kroz materijal dana sumom vjerojatnosti udarnih presjeka za fotoelektrični efekt (τ), comptonsko raspršenje (σ_C) i tvorbu parova (κ):

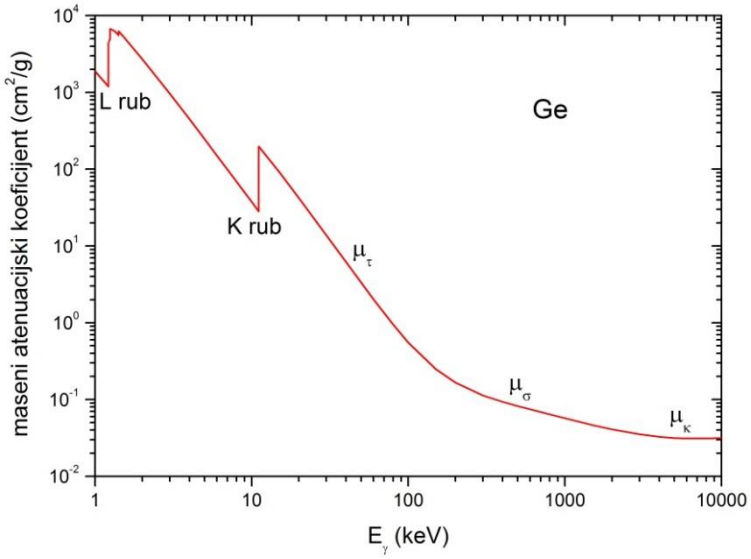
$$\sigma_{tot} = \tau + \sigma_C + \kappa\,. \tag{2.30}$$



Slika 2.7. Ovisnost dominantnog procesa atenuacije gama-zračenja o atomskom broju apsorbirajućeg materijala i energiji gama-zračenja.

U fotoelektričnom efektu foton, čija je energija veća od energije vezanja elektrona u atomu, biva u potpunosti apsorbiran čime izbacuje elektron iz jedne od unutarnjih ljuski. Za energije koje su manje od energije vezanja elektrona, neće doći do apsorpcije fotona pa je i veća vjerojatnost prolaska fotona kroz materijal. Zbog toga se u udarnom presjeku za fotoelektrični efekt u ovisnosti o energiji fotona javljaju karakteristični apsorpcijski rubovi (npr. K-rub na energiji vezanja elektrona u K ljusci), koji se opažaju i na *Slici 2.8*. U procesu dodatno nastaje i šupljina u ljusci iz koje je izbačen elektron. Ta šupljina se brzo popunjava slobodnim elektronom iz medija i/ili vezanim elektronom iz vanjske ljuske. Stoga može doći do emisije karakterističnog rendgenskoga zračenja, a u nekim slučajevima dolazi i do emisije Augerovih elektrona.

Fotoelektrični efekt dominantan je proces gubitka energije gama-zračenja na nižim energijama (do nekoliko stotina keV-a), kao što se vidi na *Slici 2.7.* Efekt je pojačan za materijale s većim atomskim brojem Z te udarni presjek ima ovisnost: $\tau \propto Z^4$ [Leo87], zbog čega dolazi do znatno veće apsorpcije fotona pri prolasku kroz teže materijale (npr. olovo).



Slika 2.8. Ovisnost masenog atenuacijskog koeficijenta o energiji gama-zračenja za germanij. Naznačena su područja dominacije doprinosa od fotoelektričnog efekta (μ_τ), comptonskog raspršenja (μ_σ) i tvorbe parova (μ_κ).

Comptonsko raspršenje je neelastično raspršenje fotona na elektronu pri čemu foton izgubi dio svoje energije te promijeni smjer. Veza između energije upadnog fotona (E_γ) i energije raspršenog fotona (E_γ') dana je s aproksimativnim izrazom:

$$E'_\gamma \approx \frac{E_\gamma}{1 + 2E_\gamma(1 - cos\,\theta)}, \tag{2.31}$$

gje je θ kut raspršenja. Budući da su svi kuteva raspršenja mogući, prijenos energije ima veliki raspon od zanemarivog do velikog gubitka energije fotona. Čak i za ekstremni slučaj $\theta = \pi$, foton će zadržati dio svoje energije. Vjerojatnost za comptonsko raspršenje raste što je veći broj elektrona na raspolaganju za raspršenje pa udarni presjek ima ovisnost: $\sigma_C \propto Z$. S druge strane, vjerojatnost za comptonsko raspršenje opada s energijom fotona te je ključan proces apsorpcije gama-zračenja srednjih energija (100 keV-10 MeV), što se vidi sa *Slike 2.7.* Kutna ovisnost udarnog presjeka za comptonsko raspršenje s uračunatim kvantnomehaničkim efektima dana je s Klein-Nishinom formulom [Leo87].

Proces tvorbe para uključuje pretvorbu fotona u elektron-pozitron par uz prisustvo trećeg tijela (jezgre) zbog zakona sačuvanja momenta. Proces je energetski moguć samo ako je energija fotona jednaka ili veća od dvije mase mirovanja elektrona (1.02 MeV). Višak energije odlazi na kinetičke energije stvorenog para. Udarni presjek za tvorbu parova ima

ovisnost: $\kappa \propto Z^2$ [Leo87] te postaje dominantan tek na energijama fotona iznad 5 MeV-a (*Slika 2.7.*).

2.4.1. Detekcija gama-zračenja

Temelj detekcije gama-zračenja je međudjelovanje gama-zračenja s materijalom detektora. Detekcija bilo koje čestice ili zračenja ovisi o produkciji nabijenih sekundarnih čestica koje se mogu zajedno prikupiti te proizvesti električni signal. Budući da su fotoni neutralne čestice, ne mogu direktno pobuditi niti ionizirati atome. Stoga, oni pri prolasku kroz detektor predaju svoju energiju elektronima, a u slučaju tvorbe parova pozitronima. Te nabijene čestice dalje gube svoju kinetičku energiju raspršivanjem u detektoru te pri tome ioniziraju i pobuđuju atome detektora. Na taj način stvaraju se ionizirani atomi i mnogo nabijenih parova elektron-šupljina, čiji broj direktno ovisi o apsorbiranoj energiji gama-zračenja. Detekcija tih nabijenih čestica, odnosno parova, omogućuje formiranje signala detektora.

Međutim, često dolazi i do dodatnih međudjelovanja gama-zračenja prije nego što ono uđe u sam detektor te stoga energija gama-zračenja nije u potpunosti apsorbirana u detektoru. Kao posljedica toga, uz karakteristične gama-linije koje dolaze zbog deekscitacije jezgri unutar mete koja se analizira, u gama-spektru javljaju se i neke dodatne linije koje je potrebno prepoznati kao pozadinu.

Kad foton uđe u detektor može doći do višestrukih comptonskih raspršenja. Nakon svakog raspršenja foton izgubi dio svoje energije i stvara se slobodni elektron. Postoje dva ishoda ovog procesa: a) foton prolazi kroz niz comptonskih raspršenja dok ne izgubi dovoljno energije da se dogodi fotoelektrična apsorpcija i prvotni foton nestane; b) foton se uslijed raspršenja toliko približi rubu detektora da iz njega izađe. Energija fotona se tijekom ovih procesa predaje elektronima koji gube energiju stvarajući u detektoru parove elektron-šupljina. Ako se sva energija upadnog fotona apsorbira unutar detektora, u gama-spektru se javlja linija potpune apsorpcije, tzv. fotovrh ili vrh pune energije (eng. *photopeak* ili *full-energy peak*). Međutim, u slučaju kada se ne apsorbira cjelokupna energija fotona jer je on uspio izaći iz detektora, u gama-spektru se vidi tzv.comptonski kontinuum. On ima tzv. comptonski rub koji odgovara maksimalnom prijenosu energije fotona na elektron, tj. izravnom sudaru ($\theta = \pi$), pa izraz (2.31) prelazi u:

$$E'_\gamma \approx \frac{E_\gamma}{1+4E_\gamma}\,. \tag{2.32}$$

Iz zakona sačuvanja energije može se aproksimativno odrediti položaj comptonskog ruba u gama-spektru: $E_e = E_\gamma - E'_\gamma \approx E_\gamma\left(1-\left(1+4E_\gamma\right)^{-1}\right)$.

Proces tvorbe para je također od velikog značaja pri tumačenju gama-spektra. Nakon vrlo kratkog vremena, nastali pozitron se uspori na energije bliske energijama atomskih elektrona u materijalu detektora te se anihilira s elektronom iz okoline. Pri tome, kao sekundarni produkti prvotnog međudjelovanja, nastaju dva fotona suprotnih smjerova gibanja i energije 511 keV-a. Ta dva fotona mogu izaći iz detektora bez međudjelovanja ili mogu biti potpuno ili djelomično apsorbirani u detektoru putem fotoelektričnog efekta i comptonskog raspršenja. Ako fotoni uspiju izaći iz detektora bez međudjelovanja, dolazi do pojave tzv. vrha bijega (eng. *escape peak*) u gama-spektru. Ovisno o tome da li je izašao jedan ili oba fotona, pojavljuje se jednostruki ili dvostruki vrh na energiji od $E_\gamma - 511\,\text{keV}$, odnosno $E_\gamma - 1022\,\text{keV}$.

Zanimljiva je i pojava anihilacijskog vrha u gama-spektru na energij od 511 keV. Ona je posljedica anihilacije pozitrona nastalog u samom uzorku budući da neki od stvorenih fotona ne uspiju izaći iz uzorka već se u njemu apsorbiraju tvorbom parova.

Relativni intenziteti gama-vrhova, comptonskog kontinuuma i „escape“ vrhova u spektru ovise o veličini i geometriji detektora. Što je detektor veći, veća je vjerojatnost potpune apsorpcije ulaznog fotona pa je u gama-spektru veći omjer amplitude vrha pune energije na 1332 keV iz ^{60}Co izvora i srednje vrijednosti amplitude comptonskog kontinuuma (eng. *peak/Compton*) te je manji intenzitet „escape“ vrha prema fotovrhu. Budući da fotoelektrična apsorpcija najviše doprinosi gubitku energije gama-zračenja, to igra bitnu ulogu kod određivanja vrste detektora, tj. materijala koji će se koristiti za njegovu izradu.

U sljedećim poglavljima opisat će se principi rada gama-detektora korištenih u ovom radu.

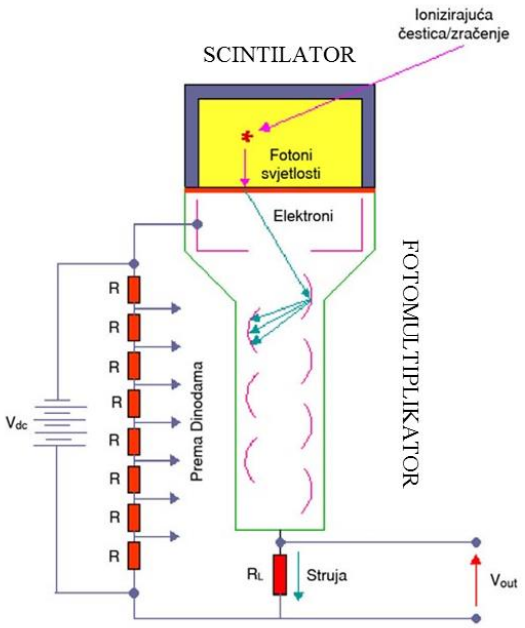
2.4.1.1. Scintilacijski detektor

Princip rada scintilacijskog detektora zasniva se na pretvorbi ionizirajućeg zračenja u vidljivu svjetlost (scintilacije). Budući da je u ovom radu korišten anorganski scintilator, slijedi opis mehanizma pretvorbe ionizirajućeg zračenja u vidljivu svjetlost u anorganskom scintilatoru, koji je karakteristika elektronske strukture kristala. Kao što je opisano u prethodnom poglavlju, pri prolasku kroz detektor upadni fotoni gama-zračenja preko fotoelektričnog efekta i comptonskog raspršenja predaju svoju energiju elektronima, a u slučaju tvorbe parova pozitronima. Za nastale nabijene čestice moguća su dva osnovna procesa: a) ionizacija kristala pobuđenjem elektrona iz valentne vrpce u vodljivu vrpcu, što dovodi do stvaranja slobodnog elektrona i slobodne šupljine; b) prijelaz elektrona u pobuđenu vrpcu koja se nalazi tik ispod vodljive vrpce, što vodi do stvaranja vezanog para elektron-šupljina koji se dalje može kretati kroz kristal. Kod tipičnog anorganskog scintilatora valentna i vodljiva vrpca odvojene su procjepom od 5 eV (i većim), što vodi na emisiju fotona koji nisu u vidljivom području. Stoga se većina kristala dopira s ionima koji unose nove energijske nivoe unutar tog procjepa, tzv. aktivatorima (npr. Tl). Tada slobodna šupljina, ili šupljina iz pobuđenog para, vrlo brzo stiže do atoma aktivatora i ionizira ga jer je energija ionizacije aktivatora manja od energije ionizacije osnovnih atoma kristala. Naknadnim dolaskom elektrona, nastala konfiguracija iz pobuđenog stanja prelazi u osnovno stanje s velikom vjerovatnošću emisije fotona. Pogodnim izborom aktivatora, prijelaz se događa samo u vidljivom području svjetlosti.

U današnjim modernim scintilacijskim detektorima dobiveni svjetlosni puls ne promatra se okom kao u prvim danima njihove primjene. Oni sadrže fotomultiplikatorsku elektronsku cijev (eng. *photomultiplier tube – PMT*) koja je preko svjetlovoda vezana uz scintilacijski kristal te nastalo svjetlo pretvara u električni impuls (*Slika 2.9.*). Električni signal koji nastaje na sloju fotomultiplikatora osjetljivom na svjetlost dalje se pojačava i do 100 milijuna puta, što omogućava detekciju pojedinačnih fotona.

Fotomultiplikator se sastoji od fotokatode, više dinoda te anode. Na fotokatodi se nalazi materijal niskog ionizacijskog potencijala iz kojeg upadni fotoni izbijaju elektrone. Nastali primarni elektroni usmjeravaju se prema množitelju elektrona koji radi na principu sekundarne emisije. Množitelj se sastoji od više dinoda koje su priključene tako da je svaka sljedeća na većem pozitivnom naponu u odnosu na prethodnu. Elektroni se ubrzavaju u električnom polju i kad dođu do dinode imaju dovoljno energije da iz nje izbiju dodatne

elektrone. Taj proces se nastavlja između susjednih parova dinoda. Snop elektrona koji stiže do anode sadrži velik broj elektrona pa se stvara snažan električni impuls koji se može detektirati elektroničkim sklopom.



Slika 2.9. Shematski prikaz scintilacijskog detektora sastavljenog od scintilacijskog kristala i fotomultiplikatora.

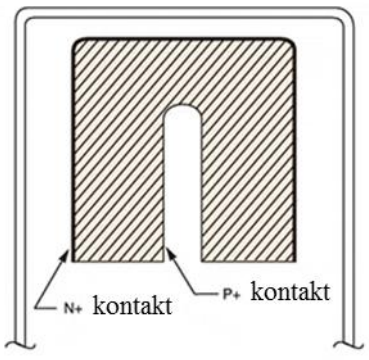
Važna karakteristika scintilacijskih detektora je proporcionalnost dobivene amplitude svjetlosti i energije upadne čestice. Za većinu scintilatora taj je odziv linearan barem na sobnim temperaturama. Budući da je fotomultiplikator također uređaj s linearnim odzivom, amplituda konačnog električnog signala proporcionalna je energiji upadnog zračenja. Nadalje, scintilacijski detektori imaju brz odziv u odnosu na druge vrste detektora [Leo87]. Stoga su pogodni za precizna vremenska mjerenja, kao što je npr. vrijeme proleta čestica. Također, zbog kratkog vremena oporavka scintilatora, smanjeno je mrtvo vrijeme (eng. *dead time*), što omogućava istovremenu detekciju velikog broja događaja.

Scintilacijski detektori mogu se napraviti korištenjem materijala u rasponu od relativno malog do velikog atomskog broja. Stoga su pogodni za detekciju nabijenih čestica, ali i za vrlo prodorno gama-zračenje. Postoje razne vrste scintilacijskih materijala i više o njima se može naći u referenci [Leo87]. Uslijed velike gustoće i visokog atomskog broja, anorganski scintilatori imaju veliku zaustavnu moć te stoga najveću efikasnost fotoelektrične pretvorbe.

Najčeće korišten scintilacijski materijal je NaI(Tl), u kojem je anorganski kristal natrij-jodid dopiran s talijem. Osim velike efikasnosti detekcije upadnog zračenja, NaI(Tl) ima i jako veliku efikasnost pretvorbe ionizacijske energije u svjetlost, tj. prinos svjetlosti (eng. *light output*), pa se općenito koristi kao standard za opisivanje tih karakteristika detektora. Tako pojam relativne efikasnosti predstavlja omjer efikasnosti detekcije gama-zračenja na 1332 keV-a iz ^{60}Co izvora prema efikasnosti standardnog scintilacijskog detektora s NaI(Tl) kristalom veličine 3"×3".

2.4.1.2. HPGe detektor

Pojavom poluvodičkih detektora došlo je do prave revolucije u gama-spektroskopiji. Njihova energijska razlučivost bila je četrdesetak puta bolja od dotad korištenih NaI(Tl) scintilacijskih detektora. Mnoga nuklearna stanja koja do tada nisu bila vidljiva, sada su se mogla lako raspoznati. Takva izrazita razlika u energijskoj razlučivosti proizlazi iz činjenice da je kod poluvodičkih detektora energija potrebna za stvaranje para elektron-šupljina svega oko 3 eV (3.6 eV za Si i 2.9 eV za Ge), dok je za stvaranje fotona svjetlosti u NaI(Tl) potrebno oko 100 eV. Zbog toga poluvodički detektori daju gama-spektre s puno užim vrhovima, što omogućuje razlučivanje bliskih energijskih stanja.



Slika 2.10. Prikaz koaksijalnog tipa HPGe detektora. Preuzeto iz [Can91].

Za detekciju gama-zračenja, danas se najčešće koriste poluvodički germanijski detektori visoke čistoće (engl. *High Purity Germanium*) ili HPGe detektori. Na *Slici 2.10.* prikazan je koaksijalni tip HPGe detektora koji je korišten za mjerenja u ovom radu. On ima diodnu

strukturu i sastoji se od cilindra kristala germanija vrlo visoke čistoće koji na svojoj vanjskoj strani ima n-tip kontakta (difundirani litij debljine 0.5 mm), a na unutarnjoj p-tip kontakta (napareno zlato debljine 40 mg/cm^2). Primjenom reverznog napona stvara se električno polje unutar kristala germanija. Oko spoja n i p-tipa vodiča nastaje tzv. područje osiromašenja u kojem nema mobilnih nosioca naboja već ostaju samo ioni rešetke, s jedne strane pozitivni, a s druge negativni. Što se primijeni veći napon na krajevima diode, nastaje veće područje osiromašenja, koje se uz dovoljno visoku razliku potencijala može protegnuti kroz cijeli volumen detektora. Ionizirajuće zračenje koje dolazi na zonu osiromašenja stvara parove elektron-šupljina, čiji broj je proporcionalan energiji ionizirajućeg zračenja. Pod utjecajem električnog polja elektroni će biti privučeni prema pozitivnoj elektrodi, a šupljine prema negativnoj. Takav tok naboja stvorit će električni impuls koji se može pojačati nabojno osjetljivim predpojačalom i kojem je amplituda proporcionalna energiji upadnog zračenja.

Tipična razlučivost ovog tipa detektora je oko 2 keV-a, što odgovara širini na pola visine vrha (eng. *Full Width at Half Maximum – FWHM*), te ovisi o upadnoj energiji gama-zračenja. Da bi se postigla odlična energijska razlučivost HPGe detektora, kristal se mora neprestano hladiti na temperaturu tekućeg dušika (77 K). Razlog tome je mali energijski procjep germanija (0.7 eV), zbog čega se ti detektori ne mogu koristiti na sobnoj temperaturi jer je i najmanja energija (pa i toplinska) dovoljna za pobudu elektrona i stvaranja signala. Hlađenje smanjuje termalno pobuđenje valentnih elektrona tako da samo gama-zračenje može dati elektronu dovoljnu energiju da prijeđe zabranjeni pojas i dođe do vodljive vrpce. Hlađenje s tekućim dušikom nije uvijek praktično jer se detektor treba ohladiti nekoliko sati prije korištenja te se ne smije zagrijavati tijekom upotrebe. Kad nisu u upotrebi HPGe detektori se smiju držati na sobnoj temperaturi. Predpojačala su najčešće uključena u kriostatski paket jer je uvijek prednost staviti predpojačalo što bliže detektoru, kako bi se minimizirala kapacitivnost. Detektor je oklopljen tankim slojem aluminija (0.5 mm) i debljina tog oklopa definira efikasnost detekcije niskoenergijskog elektromagnetskog zračenja. Efikasnost detekcije zračenja na višim energijama raste s volumenom kristala.

Napredak u poluvodičkoj tehnologiji doveo je do mogućnosti proizvodnje vrlo čistih germanijskih materijala s nečistoćama manjim od 10^{10} atoma/cm^3. Budući da je takve kristale moguće proizvesti s debljinama od nekoliko centimetara, mogu se koristiti kao detektori u kojima dolazi do potpune apsorpcije gama-zračenja od nekoliko MeV-a. Međutim manji atomski broj germanija rezultira s 10-20 puta manjim udarnim presjekom za fotoelektrični efekt od scintilacijskog NaI(Tl) detektora. Direktna posljedica toga je znatno manja

intrinsična efikasnost germanijskog u usporedbi s NaI(Tl) detektorom. Iako je površina ispod vrha u kojem foton ostavlja svu svoju energiju manja, ti vrhovi su i dalje naglašeni u spektru jer je njihova širina vrlo mala zbog znatno bolje energijske razlučivosti.

2.5. Protonima inducirana emisija gama-zračenja

Protonima inducirana emisija gama-zračenja (eng. *Proton Induced Gamma-ray Emission – PIGE*) metoda je koja se zasniva na detekciji gama-zračenja emitiranog iz (p,γ), (p,p'γ) i (p,αγ) nuklearnih reakcija te kulonskim pobuđenjem.

Reakcije tipa (p,γ), (p,p'γ) i (p,αγ) intenzivne su samo ako je energija protona dovoljno velika da se svlada kulonska barijera jezgre koja je za pobudu protonima dana aproksimativnim izrazom:

$$V_C = \frac{Ze^2}{r+R} \approx 1.2\frac{Z}{1^{1/3}+A^{1/3}}\ MeV, \tag{2.33}$$

gdje su Z i A atomski, odnosno maseni, broj jezgre koja ulazi u reakciju, a r i R polumjer protona, odnosno jezgre. Uz pretpostavku sfernog oblika i konstantne gustoće, polumjer je jednak: $R = r_0 A^{1/3}\ fm$, gdje je $r_0 \approx 1.2\ fm$. Budući da su visine kulonske barijere relativno male samo za lake elemente (do 5 MeV-a za Z < 15), ove reakcije se koriste pretežno za analizu lakih izotopa. Međutim, te reakcije se odvijaju i na energijama manjim od kulonske barijere zbog kvantnomehaničke vjerojatnosti za prodiranje kroz barijeru, ali tada sa znatno manjim intenzitetom.

Za tumačenje dobivenog gama-spektra nastalog pobuđenjem protonima potrebno je obratiti pažnju na pojedine tipove reakcija koje su opisane u sljedećim poglavljima.

2.5.1. (p,γ) reakcija

U (p,γ) reakciji proton biva uhvaćen u jezgri pri čemu se stvara složena jezgra s vrlo visokom energijom pobuđenja. Pobuđena jezgra prelazi u osnovno stanje uz emisiju gama-zračenja.

Preinakom izraza (2.9) za reakciju složenom jezgrom (u ovom slučaju je $a \equiv p, B \equiv C \; i \; b \equiv \gamma$) dobiva se:

$$p + A \rightarrow C^* \rightarrow C + \gamma. \tag{2.34}$$

Složena jezgra formira se u stanju visoke pobude budući da proton, osim svoje kinetičke energije, složenoj jezgri donosi i svoju energiju vezanja (~ 8 MeV). Energija pobude složene jezgre dana je izrazom:

$$E_C^* = \mathrm{Q} + E_p \left(\frac{M_A}{m_p + M_A} \right), \tag{2.35}$$

gdje je E_p upadna energija protona, M_A masa jezgre A, a m_p masa protona. Pomoću izraza (2.8) dobije se da je Q-vrijednost za (p,γ) reakcije uvijek pozitivna pa one nemaju energiju praga.

Za reakcije u kojima sudjeluju lake jezgre izolirana kvantna stanja dosegnu se ako energija projektila nije previsoka. Rezonance u udarnom presjeku opažaju se ukoliko energija pobude dana izrazom (2.35) točno odgovara nekom energijskom nivou u novonastaloj složenoj jezgri: $E_R = E_C^*$. Budući da se u gama-spektru uočavaju samo prijelazi iz nisko pobuđenih stanja u osnovno stanje, udarni presjek je rezonantnog Breit-Wignerovog tipa [Kra88] i dan je izrazom (2.10).

Kao što je već izloženo u poglavlju 2.2.1., s povećanjem energije projektila gustoća pobuđenih stanja se znatno povećava pa dolazi do preklapanja rezonanci i stvaranja kontinuuma u udarnom presjeku.

U (p,γ) reakciji ukupna količina gibanja protona predana je složenoj jezgri mase M_C koja se giba s brzinom:

$$v_C = \frac{p}{M_C} = \frac{\sqrt{2 m_p E_p}}{M_c} \tag{2.36}$$

Pomoću izraza (2.17) može se izračunati utjecaj dopplerskog efekta i odboja jezgre. Dobije se da je maksimalna energija gama-zračenja u prednjim, a minimalna u stražnjim kutevima, te da je emitirano gama-zračenje dobro definirane energije, što se vidi po oštrim gama-linijama u spektru.

2.5.2. (p,p'γ) i (p,αγ) reakcije

I ove reakcije se mogu tumačiti preko modela složene jezgre. Preinakom izraza (2.9) za (p,p'γ) reakciju (u tom slučaju je $B \equiv A\ i\ b \equiv p'$) dobiva se:

$$p + A \rightarrow C^* \rightarrow A^* + p' \rightarrow A + p' + \gamma, \tag{2.37}$$

dok se za (p,αγ) reakciju (u tom slučaju je $b \equiv \alpha$) dobiva:

$$p + A \rightarrow C^* \rightarrow B^* + \alpha \rightarrow B + \alpha + \gamma, \tag{2.38}$$

Za (p,p'γ) neelastično raspršenje se iz izraza (2.8) vidi da je Q-vrijednost uvijek negativna pa postoji energija praga za tu reakciju koja je jednaka:

$$E_{prag} = -\mathrm{Q}\ \frac{m_p + M_A}{M_A} \tag{2.39}$$

Udarni presjek (p,p'γ) i (p,αγ) reakcija za niske energije protona također je rezonantnog Breit-Wignerovog tipa [Kra88]. Razlika u odnosu na (p,γ) reakcije je u tome što su pobuđene jezgre B^* emitirane u svim kutevima s danom kutnom raspodjelom pa je rezultirajući gama-spektar proširen. To širenje gama-linija osobito je znatno u (p,αγ) reakciji, gdje dolazi do pobude kratkoživućih stanja i gama-zračenje je emitirano u letu, tj. prije nego se jezgra usporila i zaustavila u meti.

2.5.3. Kulonsko pobuđenje

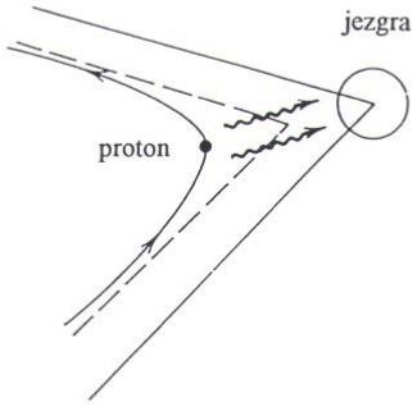
Kod srednje teških i teških jezgri kulonska barijera toliko je visoka da se proton ne može dovoljno približiti jezgri da bi nuklearne sile počele djelovati. Međutim, i u tom slučaju dolazi do pobuđenja niskoležećih stanja putem mehanizma kulonskog pobuđenja [Ste63]. Reakcija za neelastično kulonsko raspršenja načelno se može prikazati kao reakcija složenom jezgrom koja se odvija u dva koraka:

$$p + A \rightarrow A^* + p' \rightarrow A + p' + \gamma, \tag{2.40}$$

Ova reakcija je, zbog negativne Q-vrijednosti za određeno pobuđeno stanje, karakterizirana s energijom praga koja je dana izrazom (2.39). Ta Q-vrijednost za određeno pobuđeno stanje (Q_{ex}) povezana je s Q-vrijednosti za osnovno stanje (Q_0) izrazom:

$$Q_{ex} = Q_0 - E_{ex}\,, \tag{2.41}$$

gdje je E_{ex} energija pobuđenog stanja.



Slika 2.11. Prikaz neelastičnog kulonskog raspršenja u kojem proton izmijeni energiju s jezgrom kroz mehanizam kulonskog pobuđenja. Emitirani, odnosno apsorbirani, virtualni fotoni označeni su s valovitim linijama. Preuzeto iz [Kra88].

Međutim, budući da proton ne prodire u jezgru, u biti ni ne dolazi do stvaranja složene jezgre, odnosno formiranja diskretnih energijskih stanja. Stoga, reakcije putem mehanizma kulonske pobude nemaju rezonantne karakteristike, već se intenzitet reakcije monotono povećava s energijom. Opažene gama-linije dolaze od niskoenergijskih prijelaza (< 500 keV) na osnovno stanje i uglavnom je najviše zastupljen E2 prijelaz [Kra88]. Ova reakcija je pogotovo intenzivna kod deformiranih jezgri te je intenzitet veći što je prvo pobuđeno stanje niže energije. No, vraćanje tako pobuđenih nivoa u osnovno stanje putem gama-emisije je malo vjerojatan proces pa se oni uglavnom deekscitiraju procesom interne konverzije. Ove reakcije su dovoljno intenzivne za elementnu analizu od vanadija do zlata [Dec78].

3. MJERENJE DIFERENCIJALNIH UDARNIH PRESJEKA

PIGE metoda prvenstveno se koristi za elementnu analizu lakih elementa ($Z < 15$) i izvrsno se nadopunjava na metodu protonima inducirane emisije rendgenskoga zračenja (eng. *Proton Induced X-ray Emission – PIXE*). PIXE metoda koristi se za detekciju elemenata atomskog broja $Z > 10$. Međutim, karakteristično rendgensko zračenje lakih elemenata (kao što su Na, Mg, Al i Si) niske je energije (< 2 keV) te se značajno atenuira pri prolasku kroz uzorak i sve druge materijale koji se nalaze na putu između mjesta gdje je nastalo i aktivnog sloja detektora. Zbog toga, PIXE daje informaciju o koncentraciji lakih elemenata samo iz površinskog područja uzorka (prvih nekoliko μm), što može rezultirati netočnom procjenom koncentracija [Cal10]. Za razliku od rendgenskoga zračenja, gama-zračenje za te lake elemente energija je iznad 100 keV-a pa se informacija o njihovoj koncentraciji dobiva iz dubine uzorka koja ovisi isključivo o dosegu upadnog iona u materijalu i vjerojatnosti za nuklearnu reakciju, tj. iz znatno većeg volumena uzorka.

Za razliku od PIXE metode koja se bazira na detekciji rendgenskoga zračenja zbog vraćanja elektrona u elektronskom omotaču atoma u osnovno stanje, PIGE detektira gama-zračenje koje je posljedica prijelaza jezgre iz višeg pobuđenog u niže pobuđeno stanje te je vezano za točno određenu jezgru i tako omogućava izotopnu analizu. Upotrebom različitih projektila i energija mijenja se osjetljivost PIGE metode za detekciju različitih izotopa, zbog čega je metoda složenija za primjenu od PIXE metode. Tipične osjetljivosti PIGE spektroskopije za detekciju lakih elemenata u različitim uzorcima mogu se naći u referenci [Ver07]. Uz detektor dobre energijske razlučivosti, neophodno je i precizno poznavanje niskopobuđenih stanja jezgri (izotopa) koje su prisutne u analiziranom uzorku, a te veličine su dobro poznate i tabelirane u raznim kompilacijama [End90, Fir96].

Međutim, za kvantitativnu PIGE analizu potrebno je i precizno poznavanje gubitka energije protonskog snopa u uzorku, kao i udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja. Ako je poznata matrica uzorka (elementi koji su najzastupljeniji u uzorku), zaustavna moć može se izračunati pomoću simulacijskog programa SRIM [Zie08]. No, udarni presjeci ne daju se jednostavno teorijski opisati budući da su krivulje pobude (ekscitacijske krivulje) za PIGE složene, s mnogo uskih i jakih rezonanci. Stoga se za izračunavanje koncentracija lakih elemenata u uzorku uobičajeno koriste standardi (uzorci poznatog sastava) koji trebaju imati

matricu što sličniju matrici analiziranog uzorka. Također, za preciznu elementnu analizu tankih uzoraka (npr. aerosola) ključan je odabir odgovarajuće energije pobude budući da bi PIGE udarni presjeci trebali biti konstantni u području gubitka energije snopa u uzorku [Cal10].

S druge strane, precizno poznavanje diferencijalnih udarnih presjeka omogućilo bi kvantitativnu analizu bez korištenja standardnih referentnih materijala. Veliki broj udarnih presjeka već je dostupan u bazama podataka IBANDL [IBA] i EXFOR [EXF]. Međutim, prethodna analiza tih podataka ukazala je na brojna neslaganja, kako samih podataka, tako i navedenih neodređenosti mjerenja. Također, diferencijalni udarni presjeci izmjereni su za samo neke nuklearne reakcije, određeni raspon energija i kuteve detekcije. Budući da gama-zračenje nije nužno izotropno (izotropna kutna raspodjela zajamčena je samo za gama-prijelaze početnog stanja spina 1/2 [Dev57]), neophodna su mjerenja na kutu detekcije koji se koristi u određenom eksperimentalnom postavu.

Stoga je 2011. godine od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (IAEA) pokrenut koordinirani istraživački projekt „Procjena potrebe za nadopunom baze podataka za PIGE tehniku“ [CRP11, CRP12, CRP14, Dim15]. Osnovni ciljevi ovog projekta su:

a) određivanje najvažnijih nuklearnih reakcija za PIGE analizu, tj. onih koje se najviše koriste, a čiji udarni presjeci nisu dobro poznati

b) pretraživanje postojećih baze podataka IBANDL [IBA] i EXFOR [EXF] te literature u svrhu pronalaženja i objedinjavanja svih do sada dobivenih eksperimentalnih podataka od interesa za bitne nuklearne reakcije

c) usporedba podataka različitih autora te izvedba novih mjerenja u slučaju da nedostaju podaci ili ako u postojećim podacima postoje velika neslaganja te je teško odrediti koje su vrijednosti pouzdane za PIGE analizu

d) uključivanje izmjerenih podataka u postojeće baze podataka.

Pod izmjerene podatke od interesa podrazumjevaju se, uz vrijednosti diferencijalnih udarnih presjeka koji se mjere na tankim metama, i vrijednosti za intenzitete gama-zračenja na debelim metama (eng. *thick target yield*). Njihovo poznavanje bilo je neophodno za računanje parametara rezonance i kvantitativnu analizu uz korištenje standardnih referentnih materijala. Međutim, pomoću programa za kvantitativnu PIGE analizu bez korištenja standarda ERYA

(eng. *Emitted Radiation Yield Analysis*) intenziteti gama-zračenja na debelim metama mogu se izračunati integracijom diferencijalnih udarnih presjeka [Mat04a, Mat05].

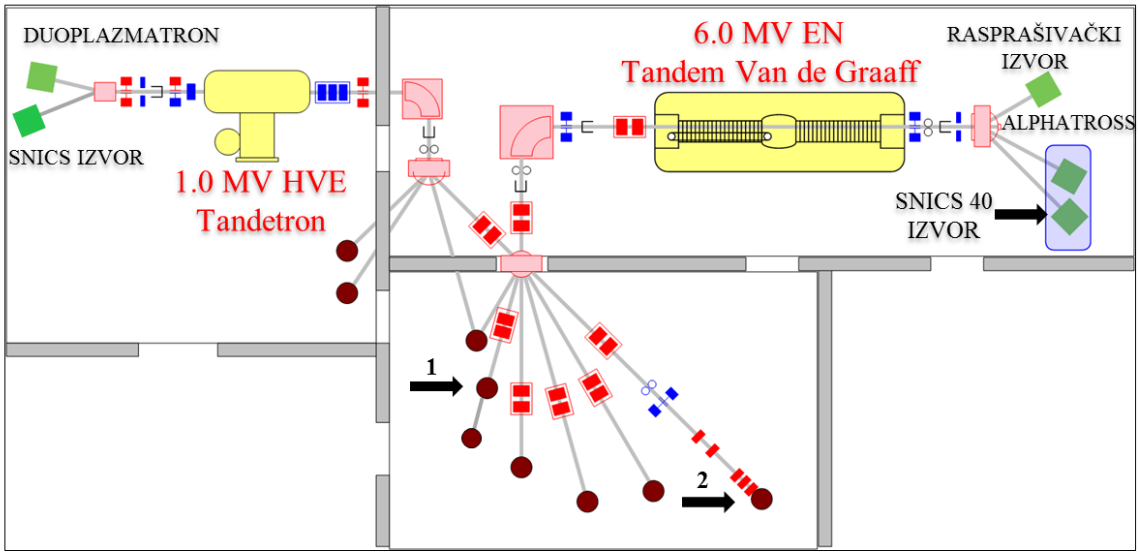
Budući da je u projekt uključeno devet laboratorija koji se bave IBA tehnikama, dogovorena je istovjetna procedura mjerenja radi dobivanja usaglašenih izmjerenih vrijednosti (opisana u poglavlju 3.4.). Također, radi provjere mogućih odstupanja uslijed korištenja različitih eksperimentalnih postava, dogovoreno je da svi sudionici izmjere diferencijalni udarni presjek za emisiju gama-zračenja iz reakcije $^{27}Al(p,p'\gamma)^{27}Al$ (E_γ=844 keV) za energije protona od 2.5 do 3 MeV-a. Zbog toga što je ta gama-linija izotropna, moguća neslaganja će ukazivati na pogreške u energijskoj kalibraciji akceleratora i određivanju efikasnosti detekcije, nestabilnost korištene mete i drugo. Također, radi prirode samih ekscitacijskih funkcija, koje pokazuju nagle promjene udarnih presjeka s energijom upadnih iona, sva mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka potrebno je provoditi sa što je moguće manjim korakom u energiji.

Konačna namjera je da se svi prikupljeni podaci za određeni gama-prijelaz procijene tako da se svakom setu podataka na temelju kritičke analize pridoda neka statistička težina. Zatim se podaci parametriziraju unutar nekog nuklearnog modela (baziranog na teoriji S i R-matrica) te se dodatno analiziraju uočena neslaganja između teorijskih proračuna i eksperimentalnih podataka. Procedura je ista kao za evaluaciju udarnih presjeka za ne-rutherfordsko elastično raspršenje u stražnje kuteve [Gur07, Gur10]. Na kraju se pomoću SigmaCalc 2.0 programa [Sig2.0] mogu dobiti teorijski evaluirani diferencijalni udarni presjeci za određeni kut detekcije gama-zračenja, a taj program je uključen i u IBANDL bazu podataka [IBA]. Svi podaci uključeni u bazu podataka te dobiveni pomoću SigmaCalc 2.0 programa su u R33 formatu [Vic91].

U ovom poglavlju prikazani su diferencijalni udarni presjeci za emisiju gama-zračenja iz reakcija $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ (E_γ=110, 197, 1236 i 1349+1357 keV), $^{23}Na(p,p'\gamma)^{23}Na$ (E_γ=440 i 1636 keV), $^{23}Na(p,\alpha'\gamma)^{20}Ne$ (E_γ=1634 keV), $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ (E_γ=1369 keV), $^{25}Mg(p,p'\gamma)^{25}Mg$ (E_γ=390, 585 i 975 keV), $^{27}Al(p,p'\gamma)^{27}Al$ (E_γ=844 i 1014 keV) i $^{27}Al(p,\alpha'\gamma)\ ^{24}Mg$ (E_γ=1369 keV) za pobudu protonima u energijskom području od 2 do 3 MeV-a s korakom od 15 keV-a. Ovo energijsko područje nedostaje u bazama podataka i novi eksperimentalni podaci su neophodni za kvantitativnu PIGE analizu tih elemenata. Sva mjerenja su izvedena na Institutu Ruđer Bošković u Laboratoriju za interakcije ionskih snopova Zavoda za eksperimentalnu fiziku, opisanog u sljedećem poglavlju.

3.1. Eksperimentalni postav

U IBA eksperimentima koriste se brzi ioni u MeV-skom području energija, a da bi se postigle takve energije iona potreban je ubrzivač čestica. Akceleratorski centar Instituta Ruđer Bošković opremljen je s dva elektrostatska ubrzivača tandem tipa: 6.0 MV Tandem Van de Graaff i 1.0 MV HVE Tandetron (*Slika 3.1.*).



Slika 3.1. Shematski prikaz ubrzivačkog sustava Instituta Ruđer Bošković. S crnim strelicama označene su komore za raspršenje korištene u ovom radu: *(1)* PIXE/PIGE/RBS komora u kojoj su mjereni diferencijalni udarni presjeci i rađeno rezonantno dubinsko profiliranje; *(2)* ionska mikroproba.

Sustav za ubrzavanje čestica može se podijeliti na tri osnovna dijela: izvor negativnih iona; sustav za ubrzanje, vođenje i fokusiranje snopa; te analitičke komore sa sustavom za prikupljanje i analizu podataka. Za PIGE mjerenja opisana u ovom rada korišten je protonski snop iz raspršivačkog izvora SNICS 40 (eng. *Source of Negative Ions by Cesium Sputtering*) i ubrzan s 6.0 MV Tandem Van de Graaff ubrzivačem te komore naznačene na *Slici 3.1.* Ubrzavanje negativnih iona iz ionskog izvora postiže se privlačenjem visokim pozitivnim naponom na terminalu, nakon čega negativni ioni prolaskom kroz rijedak plin (engl. *stripper*) gube svoje elektrone, postaju pozitivni ioni različitih ionizacija te se dodatno ubrzavaju kao posljedica odbijanja od napona na terminalu.

Nakon izlaska iz ubrzivača čestica, snop se zakreće u analizatorskom magnetu za 90° i tako se definira energija i naboj iona. Zatim se snop pomoću dipolnih magneta usmjerava prema jednoj od eksperimentalnih linija, dok kvadrupolni magneti duž linija omogućavaju fokusiranje snopa. Detaljnije informacije o principu rada ionskih izvora i Tandem Van de Graaff ubrzivača te o optičkim elementima ovog sustava mogu se naći u referencama [Pas09, Sku10].

3.1.1. Kalibracija ubrzivača čestica

Radi velikih i naglih promjena udarnih presjeka s energijom protonskog snopa i pojava uskih rezonanci, prije samih mjerenja udarnih presjeka bilo je neophodno napraviti preciznu energijsku kalibraciju 6 MV Tandem Van de Graaff ubrzivača. Tu treba istaknuti da je širina pukotina za definiciju snopa (kolimatora) na analizatorskom magnetu veoma bitna za energijsku razlučivost snopa. Stoga su pukotine na ulazu i izlazu iz analizatorskog magneta tijekom energijske kalibracije ubrzivača i mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka bile u istom položaju i zatvorene najviše moguće, a da još uvijek propuštaju dovoljno protonskog snopa da bi se mjerenja mogla napraviti u razumnom vremenu.

Kalibracija energije protonskog snopa napravljena je na debeloj čistoj aluminijskoj, odnosno litijevoj meti, koristeći reakcije [Mar66, Whi85]:

a) ^{27}Al(p,γ)^{28}Si (E_γ=1779 keV) – uska rezonanca (< 0.1 keV) na $E_R = (991.88 \pm 0.04)\ keV$

b) ^{7}Li(p,n)^{7}Be - prag za emisiju neutrona na $E_{prag} = (1880.44 \pm 0.02)\ keV$.

Pri tome se je posebno pazilo da na metama nema prljavštine ili sloja oksida jer bi to unosilo dodatnu pogrešku u određivanje energije. Za precizno određivanje energije ubrzanih čestica koristilo se je očitanje iznosa magnetskog polja u kojem se čestice zakreću i koje je mjereno s Hallovom probom u centru analizatorskog magneta. Energija E (u MeV-ima) i magnetsko polje B (u jedinici T) vezani su preko izraza:

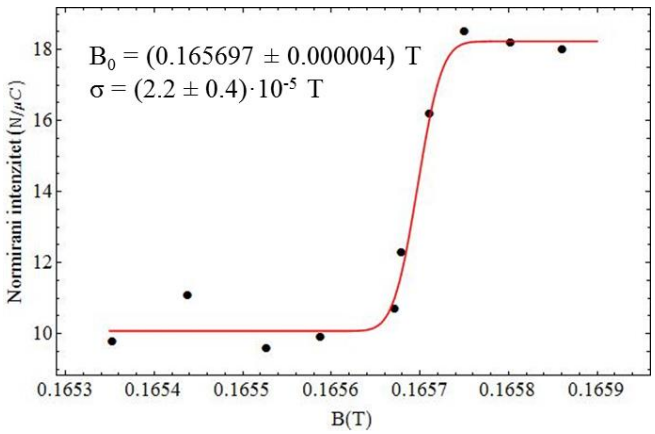
$$B = \frac{K}{n}\sqrt{AE\left(1 + \frac{E}{2Auc^2}\right)} + C, \tag{3.1}$$

gdje je *K* konstanta proporcionalnosti, *n* ionizacija snopa, *A* maseni broj čestica snopa, *u* atomska jedinica mase (uc^2=931.502 MeV), a *C* pomak Hallove probe. Za protone je *n=1* i $A = 1.007825032\,u - m_e = 1.007277\,u$.

Za ukupni udarni presjek protonskog uhvata na Al može se pretpostaviti Gaussova ovisnost o energiji *E* upadnih protona $\propto e^{-(E-E_0)^2/2\sigma^2}$, gdje je E_0 srednja energija rezonance, a σ standardna derivacija. Međutim, za dovoljno debeo uzorak razumno je pretpostaviti da će se reakcija uhvata, zbog gubitka energije protona u dubljim slojevima mete, odvijati s udarnim presjekom pri energiji manjoj od E_0. Drugim riječima, učinkovitosti rezonantnog pobuđenja doprinosit će udarni presjeci s kontinuiranog intervala energija, sve do najviše vrijednosti *E*. Stoga su izmjereni intenziteti gama-zračenja (Y_γ) u ovisnosti o magnetskom polju prilagođeni na integral Gaussove raspodjele, tzv. funkciju greške (eng. *error function – Erf*):

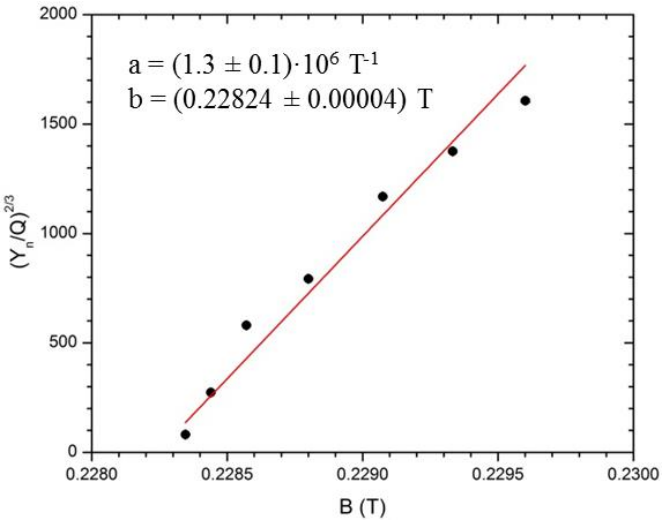
$$Y_\gamma(B) = A_1 + \frac{A_2 - A_1}{2}\left(1 + Erf\left(\frac{B - B_0}{\sigma\sqrt{2}}\right)\right), \tag{3.2}$$

gdje su A_1 i A_2 iznosi minimalnog, odnosno maksimalnog, intenziteta gama-zračenja (*Slika 3.2.*). Prilagodbom je dobivena vrijednost magnetskog polja na polovici visine krivulje pobude B_0 = (0.165697 ± 0.000004) T .



Slika 3.2. Prikazana ovisnost normiranog intenziteta gama-zračenja na 1.779 MeV-a o magnetskom polju prilagođena je na funkciju greške.

Kako bi se odredio prag za emisiju neutrona u reakciji ^{7}Li(p,n)^{7}Be, normirani intenzitet neutrona $(Y_n/Q)^{2/3}$ u ovisnosti o magnetskom polju *B* prilagođen je na pravac $y = a \cdot (x - b)$ (*Slika 3.3.*). Bitan parametar prilagodbe je odsječak na x-osi koji predstavlja magnetsko polje praga emisije neutrona: B_{prag} = (0.22824 ± 0.00004) T .



Slika 3.3. Prikazana ovisnost (intenziteta neutrona)$^{2/3}$ o magnetskom polju prilagođena je na pravac.

Zahtjev da vrijednosti B_0 i B_{prag} odgovaraju vrijednostima energije protona iz literature za nastanak rezonance u udarnom presjeku za gama-zračenje, odnosno praga za emisiju neutrona, omogućava pretvorbu vrijednosti magnetskog polja u energijsku skalu. Koristeći izraz (3.1) izračunate su sljedeće vrijednosti konstanti K i C: $K = 0.165799\,\mathrm{T}/MeV^{1/2}/u^{1/2}$, $C = -0.000073$ T. Budući da je kalibracija rađena sa samo dvije točke, nije bilo moguće odrediti pogreške konstanti K i C.

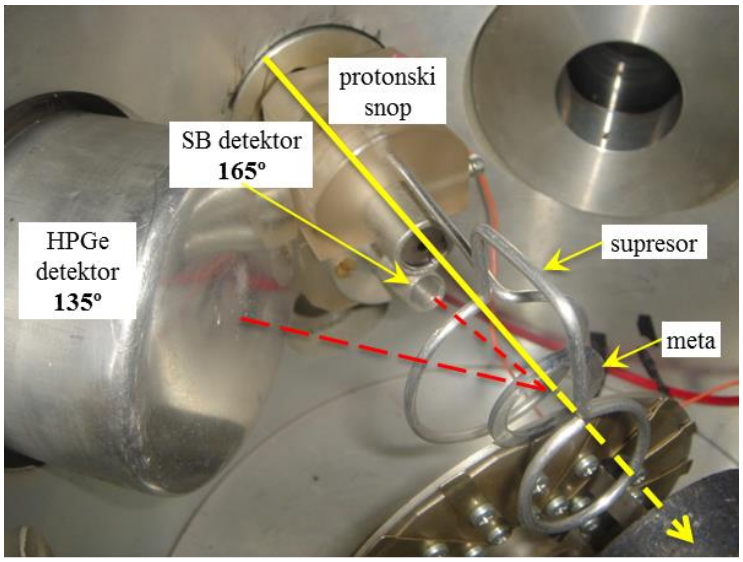
Iz ^{27}Al(p,γ)^{28}Si mjerenja može se procijeniti širina snopa (ΔE) na temelju širine magnetskog polja (ΔB) na toj rezonanci, i to tako da se iz vrijednosti standardne derivacije izračuna širina $FWHM = 2\sqrt{2ln2}\sigma \approx 2.355\,\sigma$. To vrijedi samo za rezonance koje su puno uže od širine snopa, a to je u ovom slučaju ispunjeno. Ako se zanemari relativistički član u izrazu (3.1), onda vrijedi:

$$\frac{\Delta E}{E} = 2\,\frac{\Delta B}{B}. \tag{3.3}$$

Tako se dobilo da je širina snopa (FWHM) na energiji protona od 991.9 keV-a: $\Delta E \approx 0.6\,keV$ Iz toga se dobiva da je za postavljen minimalan otvor pukotina na izlazu i ulazu u analizatorski magnet energijska razlučivost snopa oko 0.06%.

3.1.2. Komora za raspršenje

Diferencijalni udarni presjeci mjereni su u PIXE/PIGE/RBS analitičkoj komori koja se nalazi na eksperimentalnoj liniji na -15º nakon otklonskog magneta (*Slika 3.1.*). U centru komore smješten je kružni nosač meta. Veličina protonskog snopa na meti bila je 4 mm u promjeru, a definirana je setom pukotina od tantala ispred samog ulaza u komoru. Na *Slici 3.4.* može se vidjeti unutrašnjost komore te raspored korištenih detektora.



Slika 3.4. Fotografija komore za raspršenje s pripadnim detektorima: HPGe detektor na 135º i čestični SB detektor na 165º u odnosu na smjer upadnog protonskog snopa.

Gama-zračenje detektirano je s HPGe detektorom koaksijalnog tipa koji ima kristal promjera 52 mm i dužine 51 mm pa je ukupan volumen detektora 108 cm^3. Relativna efikasnost korištenog detektora je 20 %, a energijska razlučivost je oko 2 keV-a za detekciju gama-zračenja na 1332 keV-a iz ^{60}Co izvora. HPGe detektor postavljen je na kut od 135° budući da se takva geometrija koristi u više IBA laboratorija u svijetu te će time i primjenjivost izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka biti veća. Udaljenost između detektora i mete bila je 6.6 cm.

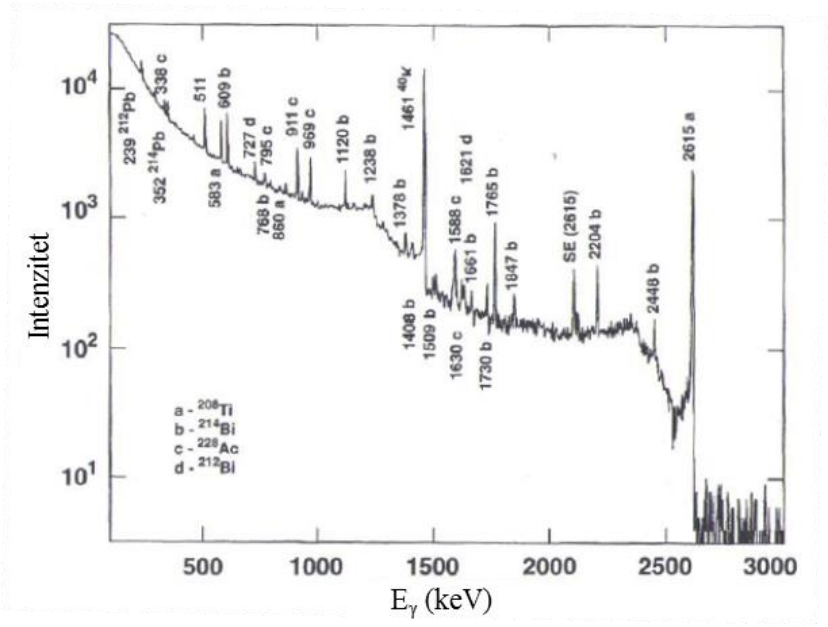
Najčešći problem spektroskopskih IBA metoda je točno određivanje ukupnog naboja snopa koji prođe kroz metu. Pogreške u izmjeri naboja najčešće dolaze zbog bijega sekundarnih elektrona iz Faradayeve čaše ili same mete (ukoliko je ona spojena s Faradayevom čašom),

gubitka dijela struje u lošoj izolaciji kablova, postojanju dodatnih struja u kablovima zbog uzemljenja instrumenata na različitim točkama, mrtvog vremena detektora i sustava za sakupljanje podataka i tome slično. Da bi se izbjegao taj problem koji unosi dodatnu nepreciznost u samo mjerenje udarnih presjeka, na mete je bio naparen nanometarski tanak sloj zlata (~ 3.5 nm) radi normalizacije na vrh zlata u RBS spektru (pretpostavlja se da su udarni presjeci rutherfordski za raspršenje protona na zlatu u promatranom energijskom području). Tako su se u svakom mjerenju uz PIGE spektar sakupljali i RBS spektri.

Za detekciju unatrag raspršenih protona korišten je silicijski detektor s površinskom barijerom (eng. *silicon surface barrier – SB*) postavljen na 165°. Prostorni kut čestičnog detektora određen je RBS metodom s 1.8 MeV-skim protonima na nekoliko jednoelementnih metalnih meta (Ni, Sn, Ta i Au). U tom slučaju mjerio se je naboj s mete koja je bila na potencijalu od -400 V, što je dovoljno da ne dođe do bijega sekundarnih elektrona. Koristeći izmjerene vrijednosti naboja i pretpostavljajući da su udarni presjeci s korištenih meta rutherfordski, određene su vrijednosti prostornih kuteva tako što su se izmjereni spektri prilagođavali pomoću SIMNRA simulacijskog programa [May97]. Konačno se je za srednju vrijednost prostornog kuta čestičnog detektora dobilo: $\Omega = 7.5 \pm 0.2\ msr$.

Svaki od detektora bio je spojen na standardni elektronički lanac. Proizveden nabojni signal iz detektora pretvoren je uz pomoć predpojačala u naponski puls koji je dalje vođen u pojačalo. Pojačalo je bilo spojeno na analogno-digitalni pretvarač (eng. *Analog-to-Digital Converter – ADC*) koji pretvara analogne signale u digitalne, a koji se uz pomoć programa za prikupljanje podataka spremaju na osobno računalo. Za skupljanje podataka korišten je višeparametarski sustav sa SPECTOR programskim sučeljem [Bog02]. Taj program upravlja elektronikom, vrši prikupljanje podataka na tvrdi disk, prikazuje podatke za vrijeme rada, te ima određeni niz mogućnosti za kasniju analizu podataka.

Na početku su izvedena probna mjerenja koja su bila neophodna za optimizaciju eksperimentalnog postava, tj. određivanje optimalne udaljenosti detektora od mete; određivanje optimalne struje protonskog snopa dovoljno visoke za brzo prikupljanje podataka, ali opet ne previsoke da ne bi došlo do oštećenja mete te promjene njenog elementnog sastava; smanjenje pozadinskog gama-zračenja koja dolazi od kozmičkog zračenja (*Slika 3.5.*) te akceleratorskog sustava, budući da su neke komponente linije i sama eksperimentalna komora napravljene od aluminija. Zatim je određena efikasnost HPGe detektora u danoj geometriji, što je opisano u sljedećem poglavlju.



Slika 3.5. Tipičan gama-spektar pozadinskog zračenja s naznačenim porijeklom najintenzivnijih vrhova i izmjeren s HPGe detektorom. Preuzeto iz [Wan09].

3.2. Efikasnost HPGe detektora

Apsolutna efikasnost detekcije umnožak je prostornog kuta gama-detektora i njegove efikasnosti detekcije gama-zračenja određene energije. Za njeno mjerenje korišteni su baždareni gama-izvori (^{60}Co, ^{133}Ba, ^{137}Cs i ^{152}Eu) koji su postavljeni točno na poziciju mete u eksperimentalnom postavu za mjerenje diferencijalnih udarnih presjeka. Broj jezgara izvora smanjuje se eksponencijalno u vremenu i računa se pomoću formule (2.12) pa je ovisnost efikasnosti o energiji jednaka:

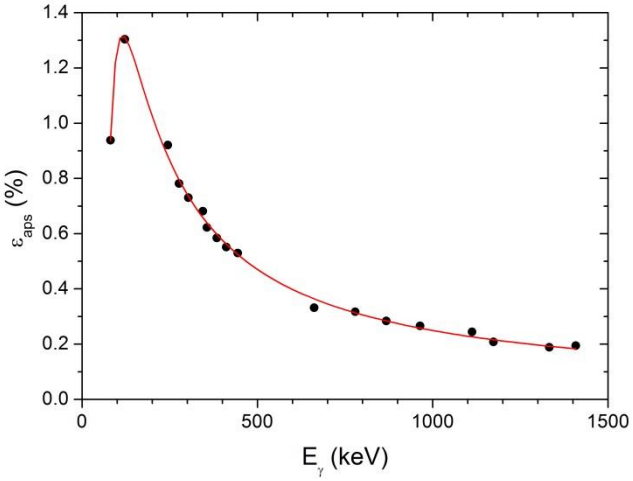
$$\varepsilon(E_\gamma) = \frac{N_\gamma}{N_i} = \frac{N_\gamma}{t_l p A_0 e^{-\Delta t \ln 2 / T_{1/2}}}, \tag{3.4}$$

gdje je N_γ broj događaja u fotovrhu (opaženi događaji), N_i broj fotona koje emitira izvor (očekivani događaji), t_l vrijeme trajanja mjerenja, p omjer grananja za energiju E_γ, A_0 aktivnost na dan kalibracije, Δt vrijeme koje je prošlo od kalibracije izvora do mjerenja, a $T_{1/2}$ vrijeme poluživota izvora. Sistematska greška kalibracije izvora iznosi 5%.

Izmjerena efikasnost prikazana je na *Slici 3.6.* te je prilagođena s funkcijom:

$$\varepsilon_{aps}(E_\gamma) = a + \frac{b}{E_\gamma} + \frac{c}{E_\gamma^2} + \frac{d}{E_\gamma^3}, \tag{3.5}$$

gdje su *a*, *b*, *c* i *d* koeficijenti te polinomne prilagodbe.



Slika 3.6. Izmjerena apsolutna efikasnost HPGe detektora kao funkcija energije gama-zračenja za korištenu geometriju mjerenja prikazanu na *Slici 3.4.* Crvena linija je funkcija prilagodbe, tzv. krivulja efikasnosti. Može se uočiti da apsolutna efikasnost jako brzo opada s energijom gama-zračenja.

Pomoću dobivene krivulje efikasnosti izračunate su apsolutne efikasnosti detekcije gama-zračenja na energijama gama-prijelaza koji su mjereni u ovom radu. Te vrijednosti efikasnosti dane su u *Tablici 3.1.* zajedno s pripadnim pogreškama.

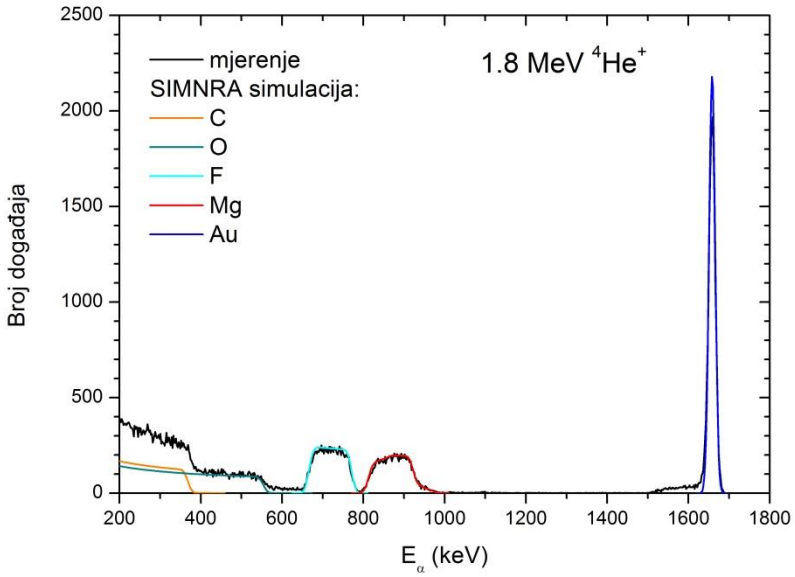
Tablica 3.1. Efikasnosti i pripadne pogreške za svaku od promatranih gama-linija.

meta	**izotop**	**E_γ (keV)**	**ε_{abs} (%)**
MgF_2	^{19}F	**110**	1.3 ± 0.3
		197	1.0 ±0.1
		1236	0.21 ± 0.02
		1349+1357	0.19 ± 0.02
	^{24}Mg	**1369**	0.19 ± 0.02
	^{25}Mg	**390**	0.60 ± 0.04
		585	0.41 ± 0.03
		975	0.26 ± 0.02
NaCl	^{23}Na	**440**	0.54 ± 0.04
		1634+1636	0.16 ± 0.02
Al	^{27}Al	**844**	0.30 ± 0.02
		1014	0.25 ± 0.02
		1369	0.19 ± 0.02

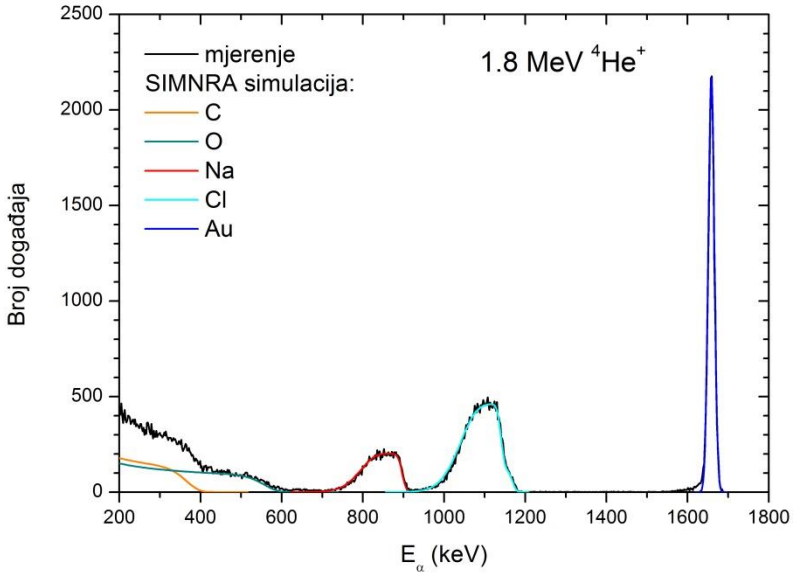
3.3. Priprema meta

Mete korištene za mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka bile su komercijalni Micromatter^{TM} standardi koji sadrže oko 50 μg/cm^2 naparenog materijala (NaCl, MgF_2 i Al) na 6.3 μm debeloj Mylar podlozi (tanki polimerni film). Radi normalizacije, na mete je dodatno naparen tanki sloj zlata (~ 3.5 nm).

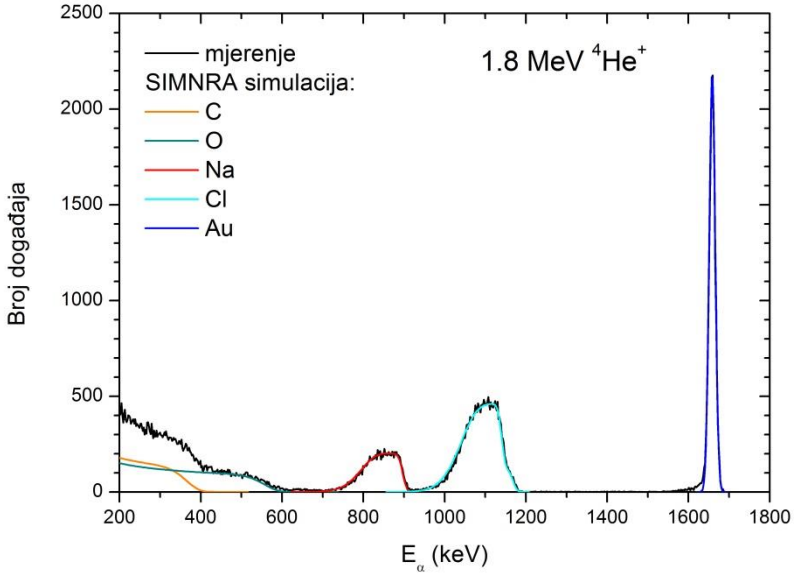
Debljine meta i dodatno naparenog sloja zlata izmjerene su RBS metodom korištenjem snopa alfa-čestica energije 1.8 MeV-a. Pretpostavljajući da su udarni presjeci za elastično raspršenje alfa-čestica u stražnje kuteve rutherfordski na svim elementima, pomoću SIMNRA programa [May97] simulirani su izmjereni RBS spektri (*Slike 3.7. – 3.9.*) te su izračunate debljine meta i sloja zlata.



Slika 3.7. Spektar unatrag elastično raspršenih 1.8 MeV-skih alfa-čestica na meti MgF_2.



Slika 3.8. Spektar unatrag elastično raspršenih 1.8 MeV-skih alfa-čestica na meti NaCl.



Slika 3.9. Spektar unatrag elastično raspršenih 1.8 MeV-skih alfa-čestica na meti Al.

Na temelju toga, izračunat je omjer broja atoma lakog izotopa (^{19}F, ^{23}Na, ^{24}Mg, ^{25}Mg i ^{27}Al) prema broju atoma Au (N_x/N_{Au}), koji je potreban za izračun diferencijalnih udarnih presjeka u slučaju noramalizacije na vrh zlata u RBS spektru. Nepouzdanost mjerenja omjera broja atoma iznosila je oko 2 % za sve slučajeve. Sve te vrijednosti dane su u *Tablici 3.2.*

Tablica 3.2. Navedene su certificirane debljine tankih meta korištenih za mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka te njihove debljine i debljina naknadno naparenog sloja zlata (N_{Au}) izmjerene pomoću RBS metode korištenjem snopa 1.8 MeV-skih alfa-čestica. Za svaki pojedini izotop određen je broj atoma u meti (N_x) te je izračunat omjer broja atoma pojedinog izotopa i atoma zlata (N_x/N_{Au}).

meta	certificirana debljina ± 5 %		izmjerena debljina (10^{15} at/cm^2)	N_{Au} (10^{15} at/cm^2)	**izotop**	N_x (10^{15} at/cm^2)	**N_x/N_{Au}**
	(μg/cm^2)	(10^{15} at/cm^2)					
MgF_2	54.1	1568±78	1563±4	22.2±0.1	**^{19}F**	1049±3	**47±1**
					^{24}Mg	406±2	**18.3±0.4**
					^{25}Mg	51.4±0.2	**2.32±0.05**
NaCl	53.7	1106±55	1132±7	19.9±0.1	**^{23}Na**	566±5	**28.4±0.7**
Al	55	1226±61	1150±2	21.0±0.1	**^{27}Al**	1150±2	**55±1**

3.4. Račun diferencijalnih udarnih presjeka

Apsolutni diferencijalni udarni presjeci $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_\gamma (E_x, \theta)$ na srednjoj energiji protona u meti E_x i kutu detekcije gama-zračenja θ računati su prema:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_\gamma (E_x, \theta) = \frac{Y_\gamma(E_x, \theta)}{N_p N_T \varepsilon_{aps}(E_\gamma) 4\pi} \tag{3.6}$$

gdje je $Y_\gamma(E_x, \theta)$ izbroj gama-događaja na energiji E_x i kutu detekcije θ, N_p broj upadnih protona, N_T broj atoma mete po cm^2 i $\varepsilon_{aps}(E_\gamma)$ apsolutna efikasnost HPGe detektora za odgovarajuću energiju gama-zračenja E_γ. Na energiji snopa na kojoj je elastično raspršenje protona sa zlata rutherfordsko, umnožak N_pN_T može se računati prema:

$$N_p N_T = \frac{Y_{Au}(E_{Au}, \beta) r}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Ruth,Au} (E_{Au}, \beta) \Omega \varepsilon} \tag{3.7}$$

gdje je $Y_{Au}(E_{Au}, \beta)$ izbroj elastično raspršenih protona na Au na srednjoj energiji protona u sloju zlata E_{Au} i kutu čestičnog detektora β, $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Ruth,Au} (E_{Au}, \beta)$ rutherfordski udarni presjek za raspršenje protona na Au na energiji E_{Au} i kutu β, ε intrinsična efikasnost čestičnog detektora (obično ~100 %), Ω prostorni kut čestičnog detektora i $r = N_x/N_{Au}$ omjer analiziranog lakog izotopa (^{19}F, ^{23}Na, ^{24}Mg, ^{25}Mg i ^{27}Al) prema Au.

Srednja energija protona u meti jednaka je:

$$E_x = E_0 - (\Delta E_{Au} + \Delta E_x/2), \tag{3.8}$$

gdje je E_0 upadna energija protona, ΔE_{Au} gubitak energije protona u sloju zlata, a $\Delta E_x/2$ gubitak energije protona na polovici debljine mete. Slično tome, srednja energija protona u naparenom sloju zlata jednaka je:

$$E_{Au} = E_0 - \Delta E_{Au}/2, \tag{3.9}$$

gdje je $\Delta E_{Au}/2$ gubitak energije protona na polovici debljine sloja zlata. Te srednje energije protona izračunate su pomoću SIMNRA programa [May97] koristeći SRIM 2003 zaustavne moći [Zie08].

Analiza RBS spektara rađena je programom SPECTOR [Bog02]. Zbog neravne površine tankog sloja zlata, vrh koji dolazi od raspršenja protona sa zlata u stražnje kuteve nema Gaussov oblik pa bi prilagodba na Gaussovu raspodjelu uvela preveliku grešku u određivanje intenziteta vrha. Stoga je umjesto površine Gaussijana uzeta ukupna suma (izbroj) ispod vrha te je pretpostavljena pogreška od korijena tog izbroja koja je u svim slučajevima bila unutar 1 %.

Prilagodba gama-vrhova također je rađena s programom SPECTOR [Bog02], ali se je u tom slučaju moralo voditi računa i o oduzimanju pozadinskog šuma na kojem leže gama-vrhovi i koji povećava pogrešku izmjere. Za tu svrhu korištena je mogućnost programa u kojem se može označiti širina vrha te odrediti broj događaja prethodno oduzevši pozadinu ispod vrha. Pozadina se određuje linearnom prilagodbom na po šest kanala (taj broj se može proizvoljno odabrati) sa svake strane vrha. Naravno, treba jako paziti da linearna prilagodba ne obuhvati dio nekog drugog susjednog vrha. Ukupna pogreška tako određenog broja događaja (ΔN) je korijen zbroja broja događaja u vrhu (N) i broja događaja pozadine (N_{BG}): $\Delta N = \sqrt{N + N_{BG}}$.

Rutherfordski udarni presjeci za elastično raspršenje protona na zlatu izračunati su SIMNRA programom [May97], a nepreciznost njihovog određivanja procijenjena je na 1 % za sve slučajeve.

U poglavlju 3.1.2. opisano je određivanje prostornog kuta čestičnog detektora pri čemu se dobila nepreciznost od 2 %.

U poglavlju 3.2. opisano je mjerenje efikasnosti gama-detektora te su u *Tablici 3.1.* dane efikasnosti i pripadne pogreške za detekciju gama-zračenja iz promatranih elektromagnetskih prijelaza.

Mjerenje debljine meta, tj. određivanje omjera broja atoma lakog izotopa (^{19}F, ^{23}Na, ^{24}Mg, ^{25}Mg i ^{27}Al) prema broju atoma Au, opisano je u poglavlju 3.3. te su u *Tablici 3.2.* dane vrijednosti svih omjera N_x/N_{Au} s pripadnim pogreškama.

Pomoću svih tih vrijednosti i pripadnih pogrešaka može se izračunati ukupna nepreciznost izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka koja je jednaka:

$$\Delta\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_\gamma = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_\gamma \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta Y_\gamma}{Y_\gamma}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\varepsilon_{aps}(E_\gamma)}{\varepsilon_{aps}(E_\gamma)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta Y_{Au}}{Y_{Au}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Ruth,Au}}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Ruth,Au}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\Omega}{\Omega}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\frac{N_x}{N_{Au}}}{\frac{N_x}{N_{Au}}}\right)^2} \quad (3.10)$$

U sljedećim poglavljima predstavljena su nova mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja za izotope ^{19}F, ^{23}Na, ^{24}Mg, ^{25}Mg i ^{27}Al. Izmjerene vrijednosti zatim su uspoređene s vrijednostima udarnih presjeka koje su prije samih mjerenja postojale u bazama podataka [IBA, EXF] i literaturi te s onim naknadno izmjerenim od strane drugih sudionika IAEA projekta i naknadno uključenih u IBANDL bazu podataka.

3.5. Diferencijalni udarni presjeci za fluor

Primjenjivost PIGE tehnike za određivanje koncentracije fluora već je mnogo puta pokazana, i to na širokom rasponu uzoraka: elektrolitima u baterijama [Tad00, Tad01], ljudskim i životinjskim kostima [Sas01], geološkim uzorcima [Nol03], atmosferskim aerosolima [Cal98, Mat06, Cal10] i tankim filmovima [Fer12].

Prije samih mjerenja pretraga dostupne literature i postojećih baza podataka [IBA, EXF] pokazala je da već postoje objavljeni podaci za diferencijalne udarne presjeke za emisiju gama-zračenja za F. Međutim, ti podaci su ili dosta davno izmjereni i nije moguće rekonstruirati eksperimentalne uvjete zbog različite procedure mjerenja [Ran58, Gra84,

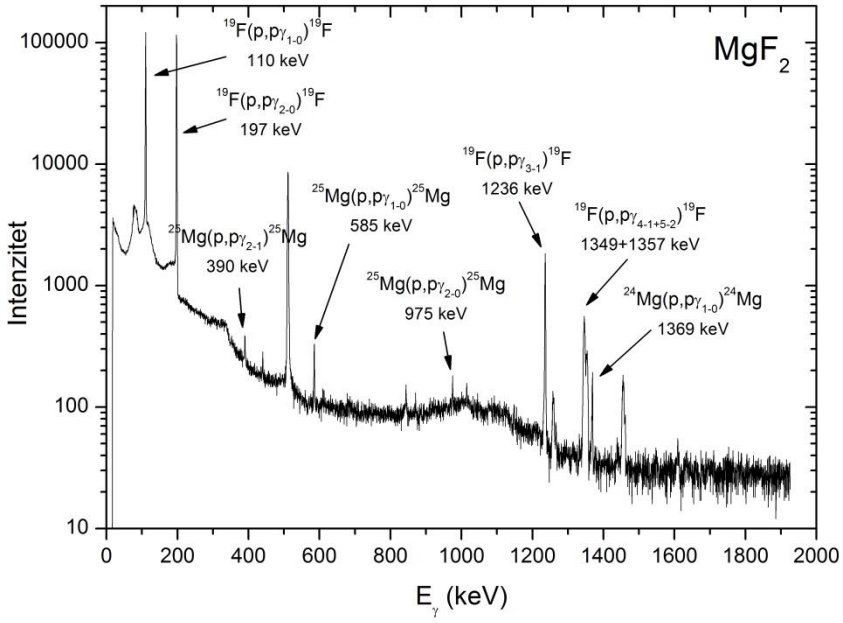
Bon88] ili relativno nedavno izmjereni [Jes00, Cac06], ali za druge kuteve detekcije i energije pobuđenja.

Diferencijalni udarni presjeci izmjereni su za raspon energija protona od 1.95 do 3.05 MeV s korakom od 15 keV-a. U *Tablici 3.3.* dan je popis nuklearnih reakcija za koje su mjereni udarni presjeci za F. Samo za emisiju gama-zračenja na 110 keV-a može se očekivati izotropna kutna raspodjela budući da početno stanje prijelaza ima spin 1/2 [Dev57].

Tablica 3.3. Popis nuklearnih reakcija, gama-energija te spina i pariteta početnih stanja gama-prijelaza za koje su mjereni diferencijalni udarni presjeci na fluoru.

Reakcija	**Eγ (keV)**	**Početno stanje, Jπ**
$^{19}F(p,p\gamma_{1\text{-}0})^{19}F$	110	1/2+
$^{19}F(p,p\gamma_{2\text{-}0})^{19}F$	197	5/2+
$^{19}F(p,p\gamma_{3\text{-}1})^{19}F$	1236	5/2-
$^{19}F(p,p\gamma_{4\text{-}1+5\text{-}2})^{19}F$	1349+1357	3/2-

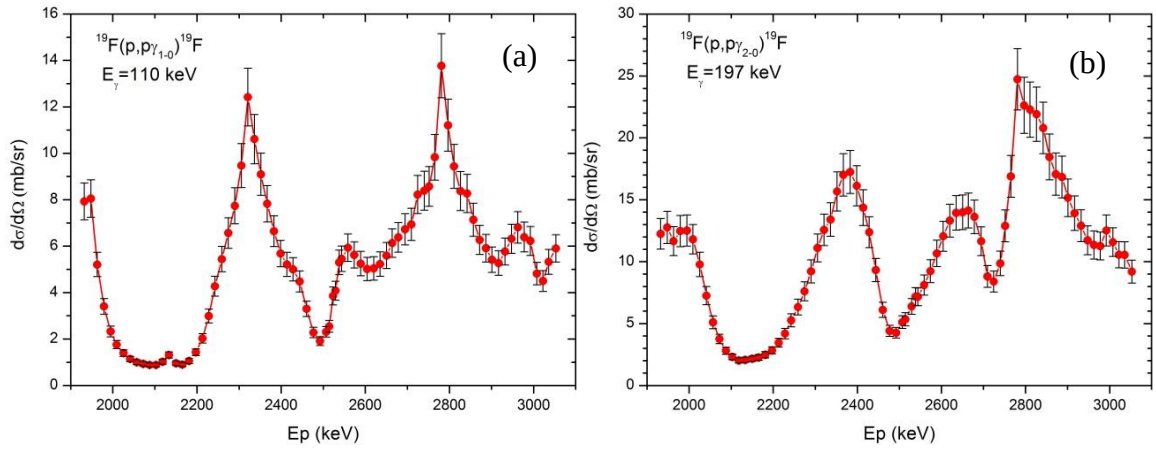
Primjer gama-spektra snimljenog za MgF_2 metu, s naznačenim karakterističnim gama-linijama i pripadnim nuklearnim reakcijama, prikazan je na *Slici 3.10.* Budući da gama-linije na 1349 i 1357 keV-a nije bilo moguće potpuno razlučiti, gledani su udarni presjeci za zbrojenu liniju.



Slika 3.10. Gama-spektar dobiven s MgF_2 mete pobuđene s protonima energije 2710 keV-a.

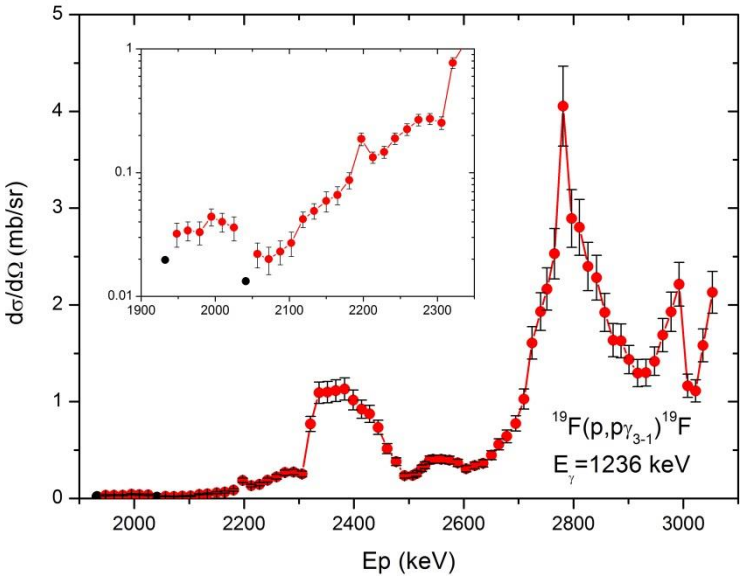
Nepouzdanosti određivanja intenziteta pojedinih linija bile su različite. Iznosile su do 1 % za niskoenergijske gama-linije na 110 i 197 keV-a za cijelo energijsko područje pobude protonima te manje od 4 % za gama-linije viših energija za energije protona iznad 2.2 MeV-a. Međutim, zbog veoma malog omjera fotovrha prema pozadinskom šumu za energije protona ispod 2.2 MeV-a, nepouzdanosti određivanja intenziteta gama-linija bile su velike, ali u svim slučajevima ispod 22 % za gama-liniju na 1236 keV-a te ispod 36 % za 1349+1357 keV-a gama-linije. Na kraju se za ukupnu nepouzdanost mjerenih udarnih presjeka dobilo 10 % za gama-linije na niskim energijama od 110 i 197 keV-a te 10-24 % za gama-liniju na 1236 keV-a i 10-38 % za 1349+1357 keV-a gama-linije.

Mjereni diferencijalni udarni presjeci prikazani su na sljedećim slikama. Podaci su dostupni u IBANDL bazi podataka [IBA] te su objavljeni u znanstvenom radu [Zam15]. Također, u Dodatku A mogu se naći tablice s izmjerenim vrijednostima udarnih presjeka na fluoru i pripadnim pogreškama.

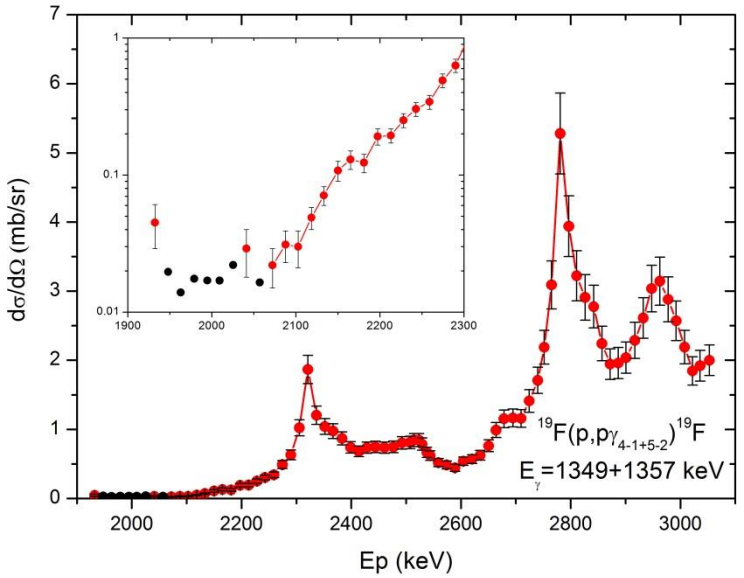


Slika 3.11. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 110 keV i *(b)* 197 keV iz ^{19}F(p,p'γ)^{19}F reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

Kao što je prije spomenuto, prinos gama-linija na 1236 keV-a i 1349+1357 keV-a bio je slab za $E_p < 2.2\ MeV$, tj. u području izvan rezonanci. Stoga je za pojedine energije protona bilo moguće dati samo procjenu gornje vrijednosti udarnog presjeka preko MDL (eng. *minimum detection limit*) vrijednosti koja se definira kao $3\times\sqrt{(\text{pozadina unutar } 6\ \sigma)}$. Na umetnutim grafovima na *Slici 3.12.* i *Slici 3.13.* MDL vrijednosti prikazane su umjesto pravih vrijednosti udarnih presjeka.



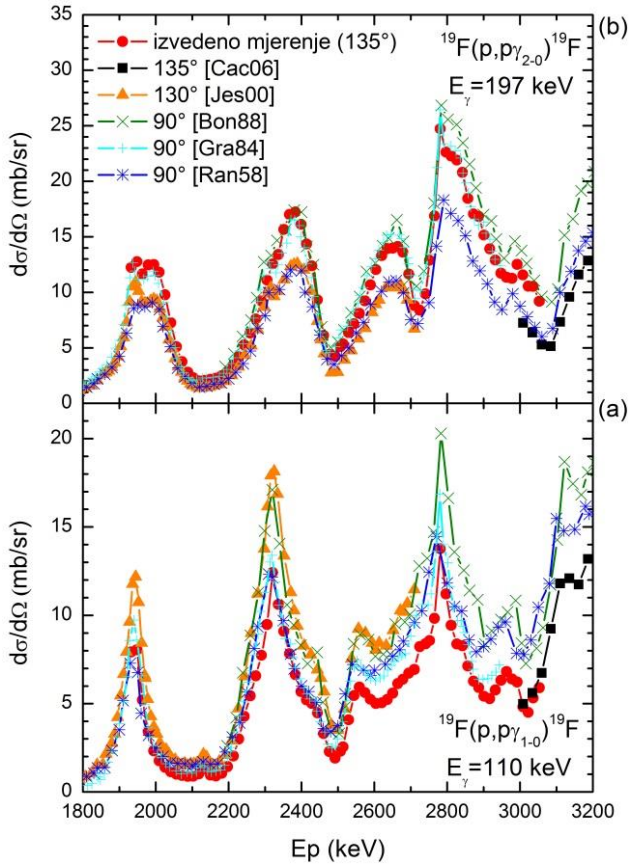
Slika 3.12. Diferencijalni udarni presjek za produkciju gama-zračenja na 1236 keV-a iz ^{19}F(p,p'γ)^{19}F reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º (crvene točke). Za pojedine energije protona prikazane su MDL vrijednosti (crne točke). Na umetnutom grafu prikazano je niskoenergijsko područje u logaritamskoj skali.



Slika 3.13. Diferencijalni udarni presjek za produkciju gama-zračenja na 1349+1357 keV-a iz ^{19}F(p,p'γ)^{19}F reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º (crvene točke). Za pojedine energije protona prikazane su MDL vrijednosti (crne točke). Na umetnutom grafu prikazano je niskoenergijsko područje u logaritamskoj skali.

3.5.1. Usporedba s rezultatima iz literature

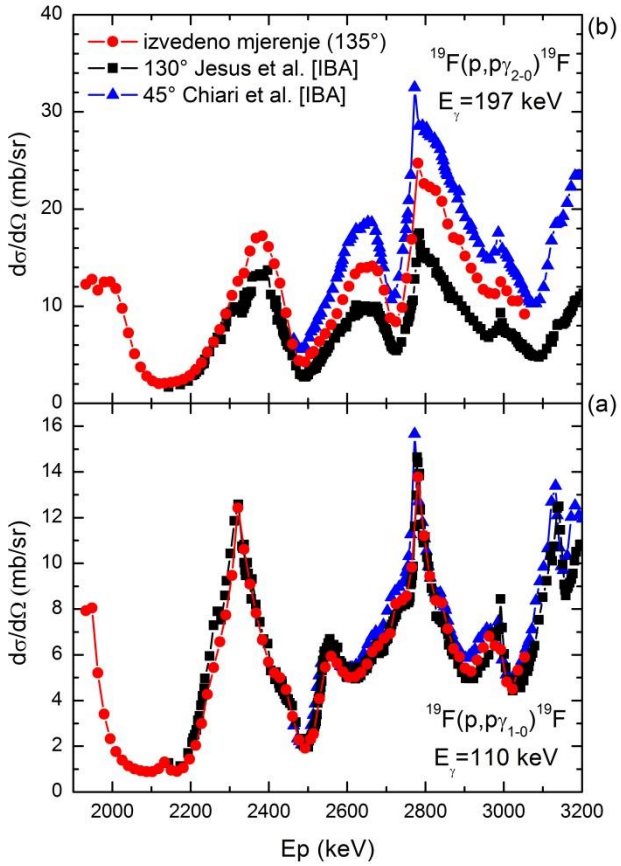
Uz pretpostavku izotropne kutne raspodjele gama-zračenja, podaci za ukupne udarne presjeke od Ranken et al. [Ran58] i Jesus et al. [Jes00] podijeljeni su s faktorom 4π da bi se mogli usporediti s izmjerenim vrijednostima diferencijalnih udarnih presjeka.



Slika 3.14. Usporedba izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 110 keV-a i *(b)* 197 keV-a iz ^{19}F(p,p'γ)^{19}F reakcije s podacima iz literature koji su bili dostupni prije mjerenja.

Sa *Slike 3.14.* vidi se da izvedena mjerenja općenito oblikom odgovaraju podacima iz literature, tj. da imaju sličnu rezonantnu strukturu. Za gama-liniju na 110 keV-a (*Slika 3.14a*) pogotovo je dobro slaganje s podacima od Ranken et al. [Ran58] i Grambole et al. [Gra84] sve do 2.5 MeV-a energije protona, dok su za više energije mjerenja iz ovog rada 20% niža. Ipak, postignuto je dobro preklapanje s podacima od Caciolli et al. [Cac06] (na žalost preklop u energiji između dva mjerenja je mali) za koje je korištena slična procedura mjerenja i eksperimentalni uvjeti. Za gama-liniju na 197 keV-a (*Slika 3.14b*) također je postignuto

veoma dobro slaganje s podacima od Grambole et al. [Gra84] na cijelom mjerenom području, a s podacima od Boni et al. [Bon88] do otprilike 2.8 MeV-a energije protona. S druge strane, podaci od Caciolli et al. [Cac06] su oko 40 % niži od vrijednosti izmjerenih u ovom radu. Budući da se radi o mjerenjima na istom kutu detekcije, vjerojatno je uzrok tom odstupanju neka sistematska greška u mjerenjima Caciolli et al.

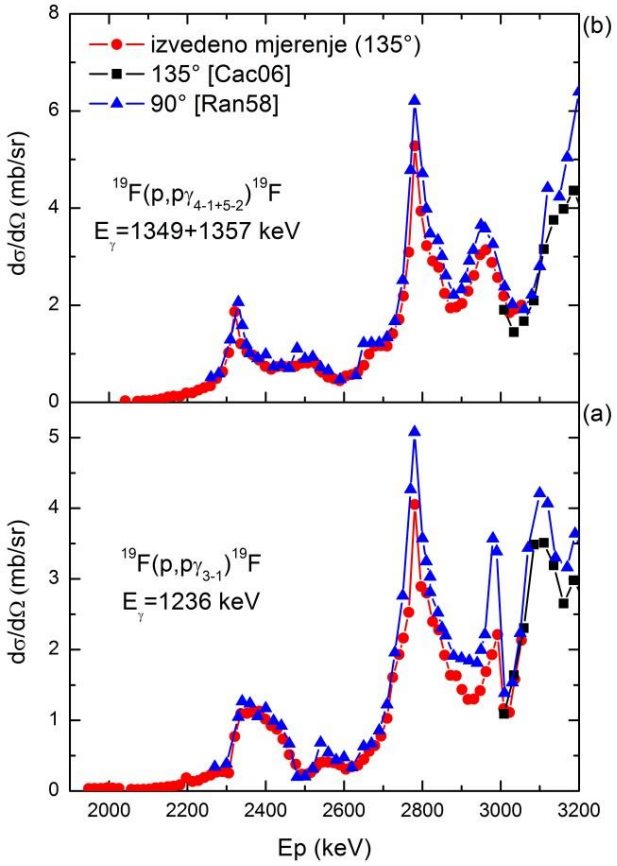


Slika 3.15. Usporedba izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 110 keV-a i *(b)* 197 keV-a iz ^{19}F(p,p'γ)^{19}F reakcije s podacima naknadno dostupnim u IBANDL bazi podataka [IBA].

Unutar IAEA projekta još su dvije grupe izvele mjerenja PIGE diferencijalnih udarnih presjeka za F. Na *Slici 3.15.* prikazana je usporedba s tim podacima koji još nisu objavljeni, ali su dostupni u bazi podataka [IBA]. Za gama-liniju na 110 keV-a (*Slika 3.15a*) vidljivo je odlično slaganje za cijelo izmjereno energijsko područje, a to je bilo i očekivano budući da se radi o izotropnoj linije te su sva mjerenja provedena na temelju iste procedure. Međutim, sa *Slike 3.15b* vidi se da izvedeno mjerenje u ovom radu za gama-liniju na 197 keV-a odstupa od mjerenja drugih grupa, pogotovo za energije protona iznad 2.5 MeV-a. U tom području je otprilike 25 % niže od vrijednosti od Chiari et al. [IBA] te otprilike isto toliko više u odnosu

na vrijednosti od Jesus et al. [IBA]. Treba primjetiti da se, unatoč tome što ova gama-linija nije nužno izotropna, očekivalo dobro slaganje ovih udarnih presjeka budući da su izmjereni na skoro istim kutevima. Međutim, udarni presjeci se, iako ne u iznosima, slažu u obliku. U svakom slučaju razlog uočenog neslaganja treba dodatno istražiti.

Usporedbom vrijednosti udarnih presjeka na *Slici 3.16.*, vidi se da izvedena mjerenja, unutar navedenih neodređenosti (10-15 %), dobro slažu s podacima iz literature za obje gama-linije na energijama 1236 keV-a i 1349+1357 keV-a. Trenutno niti jedna grupa unutar IAEA projekta nije objavila nova mjerenja udarnih presjeka za ove gama-prijelaze.



Slika 3.16. Usporedba izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 1236 keV-a i *(b)* 1349+1357 keV-a iz $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ reakcije s podacima iz literature koji su bili dostupni prije mjerenja.

3.6. Diferencijalni udarni presjeci za natrij

PIGE tehnika pokazala se važna za određivanje koncentracije natrija u aerosolima [Mat06, Cal10, Cal14] zbog prije spomenutih problema u analizi s PIXE metodom. Međutim, najpoznatija primjena ove metode je za analizu predmeta kulturne baštine, gdje se, između ostalog, PIGE koristi za određivanje i profiliranje koncentracije Na u antičkim rimskim staklima [Cli08, Šmi13]. Također se koristi za utvrđivanje prisutnosti lapis lazuri (skupocjenog plavog pigmenta na bazi lazurita) u slojevima boje slika na platnu i drvetu [Gra04] budući da PIXE analiza nije moguća jer pigmenti s težim elementima (kao što je olovno bjelilo) snažno upijaju niskoenergijsko rendgensko zračenje.

Prije samih mjerenja pretraga dostupne literature i baza podataka [IBA, EXF] pokazala je da postoje dva objavljena rada s mjerenjima udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja na Na. Od toga je samo jedan rad s podacima za diferencijalne udarne presjeke [Cac08], dok je drugi s podacima za ukupne udarne presjeke [Mat04]. Ti podaci su relativno nedavno izmjereni i za slične kuteve detekcije, ali za drugo energijsko područje.

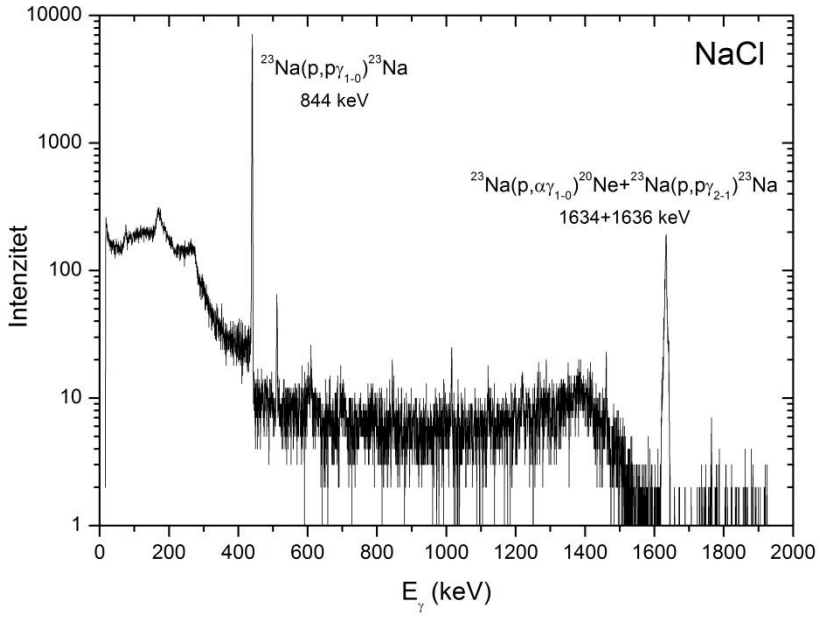
Diferencijalni udarni presjeci za Na izmjereni su za raspon energije protona od 1.9 do 3.05 MeV-a s korakom od 15 keV-a. Iz *Tablici 3.4.*, u kojoj je dan popis nuklearnih reakcija za koje su mjereni diferencijalni udarni presjeci za Na, vidi se da se za niti jedan prijelaz ne može očekivati izotropna kutna raspodjela gama-zračenja [Dev57].

Tablica 3.4. Popis nuklearnih reakcija, gama-energija te spina i pariteta početnih stanja gama-prijelaza za koje su mjereni diferencijalni udarni presjeci na natriju.

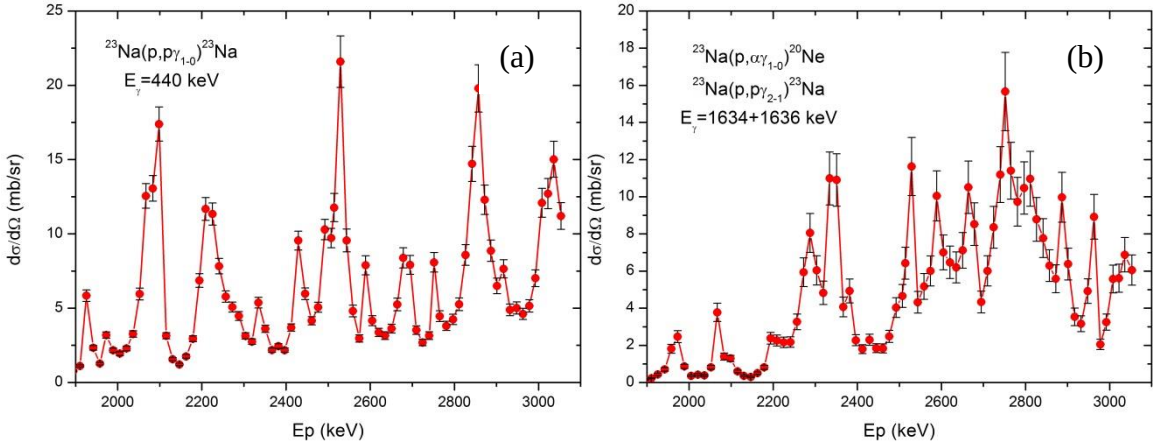
Reakcija	**Eγ (keV)**	**Početno stanje, Jπ**
$^{23}Na(p,p\gamma_{1\text{-}0})^{23}Na$	440	5/2+
$^{23}Na(p,\alpha\gamma_{1\text{-}0})^{20}Ne$	1634	2+
$^{23}Na(p,p\gamma_{2\text{-}1})^{23}Na$	1636	7/2+

Primjer gama-spektra snimljenog za NaCl metu, s naznačenim karakterističnim gama-linijama i pripadnim nuklearnim reakcijama, prikazan je na *Slici 3.17*. Budući da gama-linije na 1634 i 1636 keV-a nije bilo moguće potpuno razlučiti, njihovi intenziteti su zbrojeni. Dodatno je gama-linija na 1634 keV-a dopplerski proširena zbog pobude kratkoživućih stanja i velike brzine odboja lake jezgre, što znatno otežava određivanje broja događaja u fotovrhu.

Nepouzdanosti određivanja intenziteta bile su do 1 % za gama-liniju na 440 keV-a te 1-5 % za gama-linije na 1634+1636 keV-a, za sve energije pobude protonima. Na kraju se za ukupnu nepouzdanost mjerenih udarnih presjeka dobilo 8 % za gama-liniju na 440 keV-a i 13 % za gama-linije na 1634+1636 keV-a.



Slika 3.17. Gama-spektar dobiven s NaCl mete pobuđene s protonima energije 2857 keV.



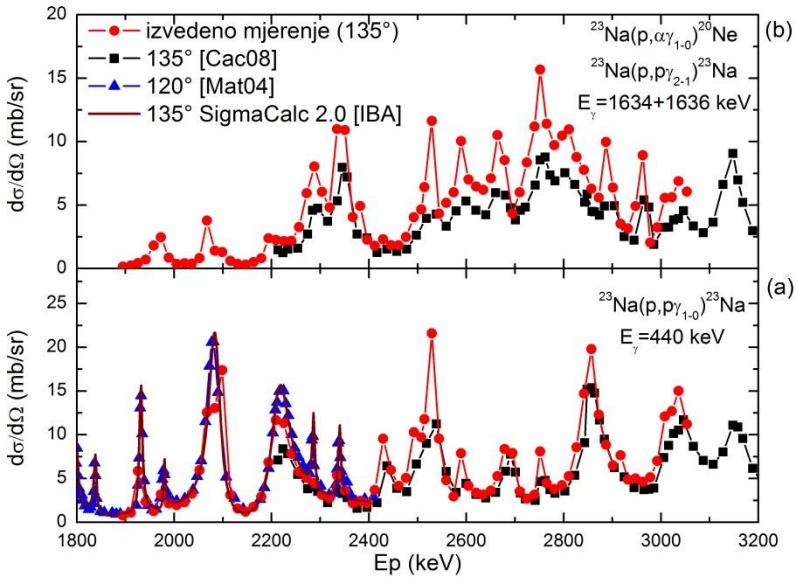
Slika 3.18. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 440 keV iz ^{23}Na(p,p'γ)^{23}Na reakcije i *(b)* 1634+1636 keV iz reakcija ^{23}Na(p,αγ)^{20}Ne i ^{23}Na(p,p'γ)^{23}Na u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

Mjereni diferencijalni udarni presjeci prikazani su na *Slici 3.18*. Podaci su dostupni u IBANDL bazi podataka [IBA] te su, kao dio zajedničke publikacije [Chi15], u postupku

objavljivanja. Također, u Dodatku B mogu se naći tablice s izmjerenim vrijednostima udarnih presjeka na natriju i pripadnim pogreškama.

3.6.1. Usporedba s rezultatima iz literature

Podaci za ukupan udarne presjeke od Mateus et al. [Mat04] podijeljeni su s faktorom 4π da bi se mogli usporediti s izmjerenim vrijednostima diferencijalnih udarnih presjeka. Taj postupak je ispravan budući da su ti podaci izmjereni kao diferencijalni udarni presjeci na kutu od 120º, ali su objavljeni kao ukupni udarni presjeci pod pretpostavkom izotropne kutne raspodjele gama-zračenja na 440 keV-a.



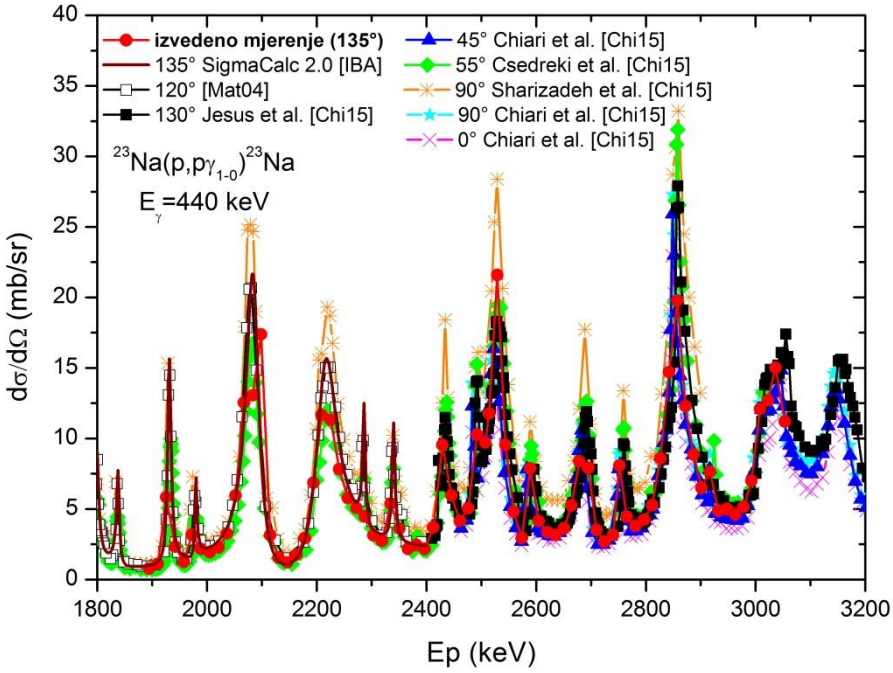
Slika 3.19. Usporedba izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 440 keV-a i *(b)* 1634+1636 keV-a s podacima iz literature koji su bili dostupni prije mjerenja te s evaluiranim diferencijalnim udarnim presjekom [Gur14, IBA].

Na *Slici 3.19a* prikazani su izmjereni diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 440 keV-a zajedno s podacima iz literature [Mat04, Cac08] i evaluiranim diferencijalnim udarnim presjekom [Gur14, IBA]. Na energijama protona ispod 2.4 MeV izmjereni podaci imaju oko 20 % niže vrijednosti u usporedbi s podacima od Mateus et al. [Mat04] i evaluiranim podacima [Gur14, IBA] (koji su u biti izračunati samo na temelju podataka od Mateus et al.). Podaci od Caciolli et al. [Cac08] imaju sistematski 15-30 % niže

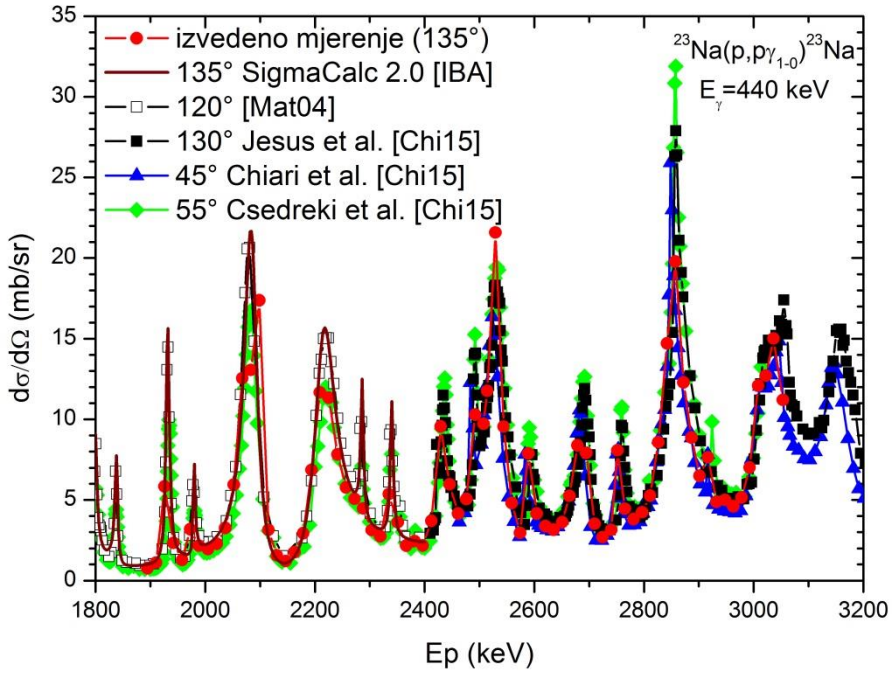
vrijednosti te je zbog većeg koraka u energiji očigledno da su propustili finu rezonantnu strukturu udarnih presjeka. Slično odstupanje podataka od Caciolli et al. [Cac08] vidi se i na *Slici 3.19b*, gdje su prikazani izmjereni diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1634+1636 keV-a. U tom slučaju odstupanja idu čak do 50 % i budući da se radi o mjerenjima na istom kutu detekcije, vjerojatno je uzrok tim odstupanjima neka sistematska greška u njihovim podacima.

Unutar IAEA projekta izvedeno je dosta novih mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka za Na i to na više kuteva detekcije gama-zračenja te za obje promatrane gama-linije. Također, treba napomenuti da u sljedeće usporedbe neće biti uključeni podaci od Caciolli et al. [Cac08] zbog prije uočenog sistematskog odstupanja.

Na *Slici 3.20.* prikazana je usporedba diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 440 keV-a s tim podacima koji još nisu objavljeni, ali su dostupni u bazi podataka [IBA] te su, kao dio zajedničke publikacije [Chi15], u postupku objavljivanja. Također su za usporedbu dodani podaci iz Mateus et al. [Mat04] i evaluirani diferencijalni udarni presjeci [Gur14]. Za početak, vidi se da se svi udarni presjeci slažu, ako već ne u iznosima, onda u obliku, te da je dobro prikazana fina rezonantna struktura. Na energijama protona ispod 2.4 MeV-a izmjereni podaci dobro se slažu s vrijednostima od Csedreki et al. [Chi15], ali, kao što je već uočeno, imaju oko 20 % niže vrijednosti u usporedbi s podacima od Mateus et al. [Mat04] i evaluiranim podacima [Gur14] (koji se temelje samo na podacima od Mateus et al.). Budući da se radi o mjerenjima na sličnim kutevima, anizotropija kutne raspodjele gama-zračenja ne može biti jedini uzrok tom sistematskom neslaganju. U području energija od 2.5 do 3 MeV-a podaci izmjereni na sličnim kutevima (oni izmjereni unutar ovog rada te oni od Chiari et al., Csedreki et al. i Jesus et al. [Chi15]) imaju usporedive vrijednosti te je srednje odstupanje diferencijalnih udarnih presjeka unutar ±10 %, što je unutar navedene eksperimentalne neodređenosti. Radi bolje preglednosti ti su podaci izdvojeni na *Slici 3.21*. S druge strane, može se uočiti da podaci od Sharizadeh et al. [Chi15] mjereni na kutu od 90º imaju oko 30-40 % više vrijednosti u odnosu na druge izmjerene udarne presjeke. Također, zbog većeg koraka u energiji protona, podaci izmjereni unutar ovog rada i oni od Sharizadeh et al. dobro ne prikazuju snažnu rezonancu na 2858 keV. Iz istog razloga, rezonanca na 2924 ± 3 keV je vidljiva samo u podacima od Chiari et al. i Csedreki et al.

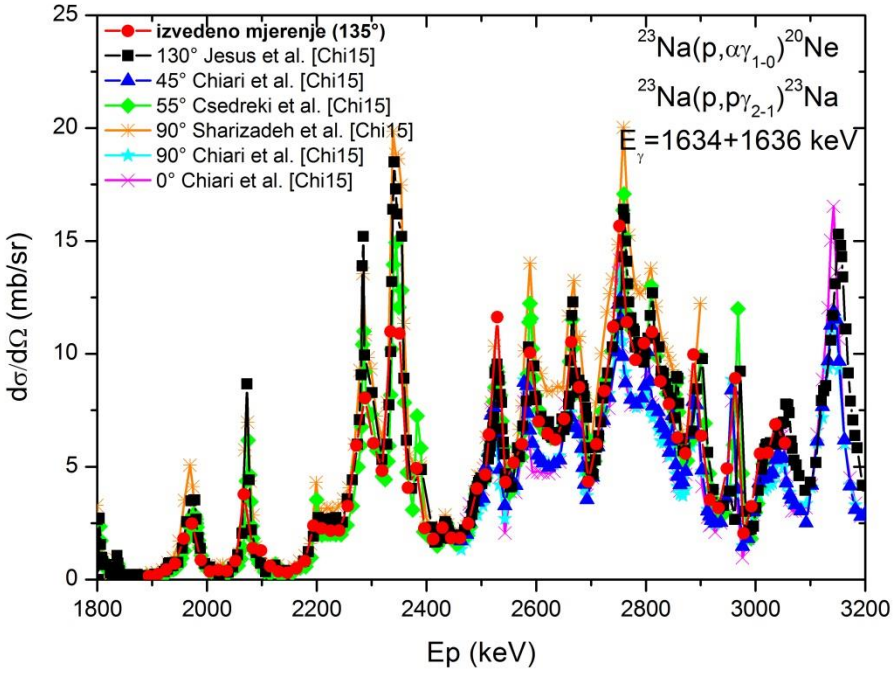


Slika 3.20. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 440 keV-a iz ^{23}Na(p,p'γ)^{23}Na reakcije s podacima naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA] i uključenih u zajedničku publikaciju [Chi15] te evaluiranim diferencijalnim udarnim presjekom [Gur14].

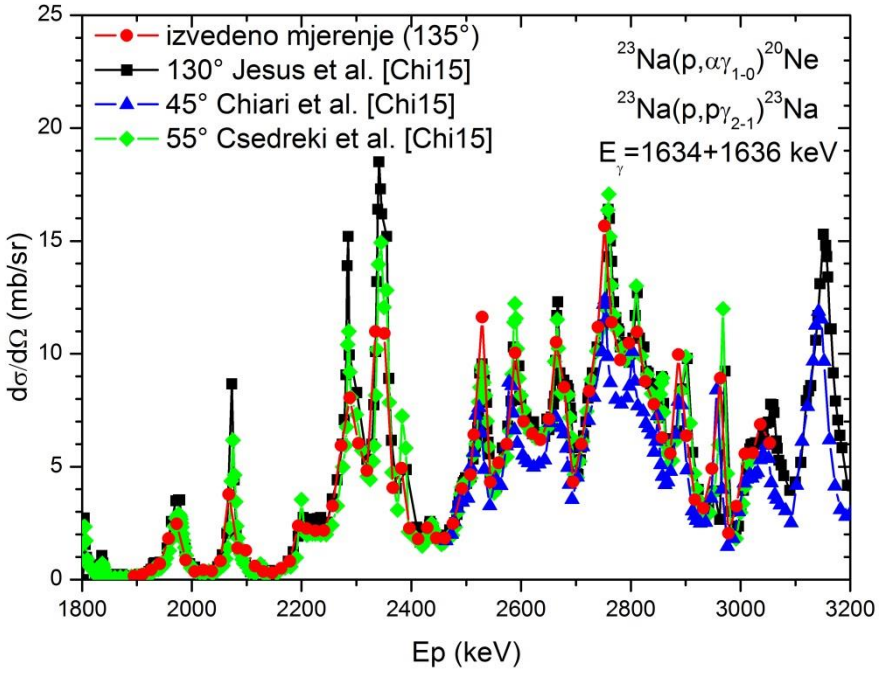


Slika 3.21. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 440 keV-a iz ^{23}Na(p,p'γ)^{23}Na reakcije s podacima naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA] i uključenih u zajedničku publikaciju [Chi15] te evaluiranim diferencijalnim udarnim presjekom [Gur14] mjerenih na sličanom kutu.

Na *Slici 3.22.* prikazana je usporedba diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 1634+1636 keV-a s novouključenim podacima [Chi15]. Na energijama protona ispod 2.4 MeV-a izmjereni podaci u ovom radu imaju niže vrijednosti u odnosu na druge mjerene udarne presjeke i to posebice u području rezonanci. Najvjerojatnije je tome razlog to što su mjereni s većim energijskim korakom pa nije bilo moguće prikazati same vrhove uskih rezonanci. U području energija od 2.5 do 3 MeV-a postignuto je dobro slaganje podataka izmjerenih unutar ovog rada s onim od Csedreki et al. i Jesus et al. Međutim, podaci od Chiari et al. imaju sistematski 20-25 % niže vrijednosti i to na sva tri kuta detekcije gama-zračenja (0º, 45º i 90 º), dok podaci od Sharizadeh et al. (mjereni na kutu od 90º) imaju sistematski 20-25 % više vrijednosti. Opet su, radi bolje preglednosti, na *Slici 3.23.* izdvojeni podaci mjereni na sličnim kutevima.



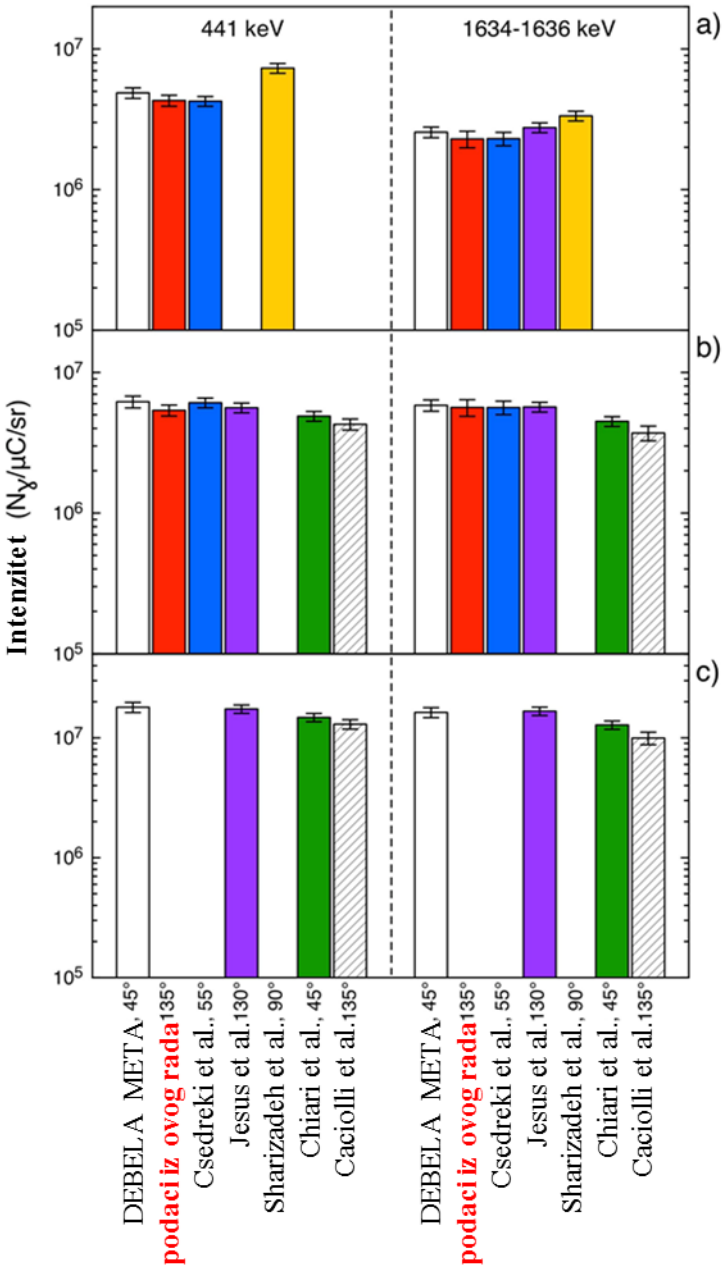
Slika 3.22. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 1634+1363 keV-a iz reakcija ^{23}Na(p,αγ)^{20}Ne i ^{23}Na(p,p'γ)^{23}Na s podacima naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA] i uključenih u zajedničku publikaciju [Chi15].



Slika 3.23. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 1634+1363 keV-a iz reakcija ^{23}Na(p,αγ)^{20}Ne i ^{23}Na(p,p'γ)^{23}Na s podacima naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA] i uključenih u zajedničku publikaciju [Chi15] mjerenih na sličanom kutu.

Radi potvrde valjanosti izmjerenih diferencijalnih presjeka uključenih u zajedničku publikaciju [Chi15], napravljena je njihova integracija te su dobivene vrijednosti intenziteta gama-zračenja na debeloj meti. Za integraciju korišten je C++ kod prikazan u radu [Lag15]. Te su vrijednosti zatim uspoređene s intenzitetom gama-zračenja na debeloj meti ($NaNO_3$ s naparenim tankim slojem zlata radi normalizacije) izmjerenim na kutu od 45º [Chi16].

Na *Slici 3.24.* dane su usporedbe za tri područja energije protona, od kojih su za ovaj rad bitna područja niže energije 1.7-2.5 MeV-a (*Slika 3.24a*) i srednje energije 2.5-3.0 MeV-a (*Slika 3.24b*). Osnovni zaključak koji se može izvesti je da se podaci izmjereni u ovom radu dobro slažu, unutar navedene eksperimentalne neodređenosti, s vrijednostima intenziteta gama-zračenja na debeloj meti unutar oba područja integracije i za obje gama-linije. Odstupanja podataka pojedinih autora od vrijednosti intenziteta gama-zračenja na debeloj meti u skladu je s prije razmatranim odstupanjem njihovih diferencijalnih udarnih presjeka.



Slika 3.24. Usporedba između integriranih udarnih presjeka i izmjerenog intenziteta gama-zračenja na debeloj meti za dvije promatrane gama-linije (440 keV i 1634+1636 keV) te za sljedeća područja energije protona: *(a)* 1.7-2.5 MeV, *(b)* 2.5-3.0 MeV i *(c)* 3.0-4.0 MeV. Preuzeto iz [Chi15].

3.7. Diferencijalni udarni presjeci za magnezij

Primjenjivost PIGE tehnike za određivanje koncentracije magnezija također je dosad pokazana na širokom rasponu uzoraka: od ljekovitog bilja [Nom08] i zeolita [Sal97] do objekata iz kulturnog nasljeđa [Car10, Šmi13].

Pretraga dostupne literature i postojećih baza podataka [IBA, EXF] pokazala je da postoji samo jedno objavljeno mjerenje diferencijalnih udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja za Mg [Bon88]. Ti podaci su dosta davno izmjereni i upitne su vjerodostojnosti zbog različite procedure mjerenja te su također izmjereni za drugi kut detekcije (90º) i za energije protona iznad 2.8 MeV-a. Stoga su bila neophodna nova mjerenja za Mg.

U *Tablici 3.5.* dan je popis nuklearnih reakcija za koje su mjereni udarni presjeci za izotope Mg. Samo za emisiju gama-zračenja na 585 keV-a može se očekivati izotropna kutna raspodjela budući da početno stanje prijelaza ima spin 1/2 [Dev57].

Tablica 3.5. Popis nuklearnih reakcija, gama-energija te spina i pariteta početnih stanja gama-prijelaza za koje su mjereni diferencijalni udarni presjeci na magneziju.

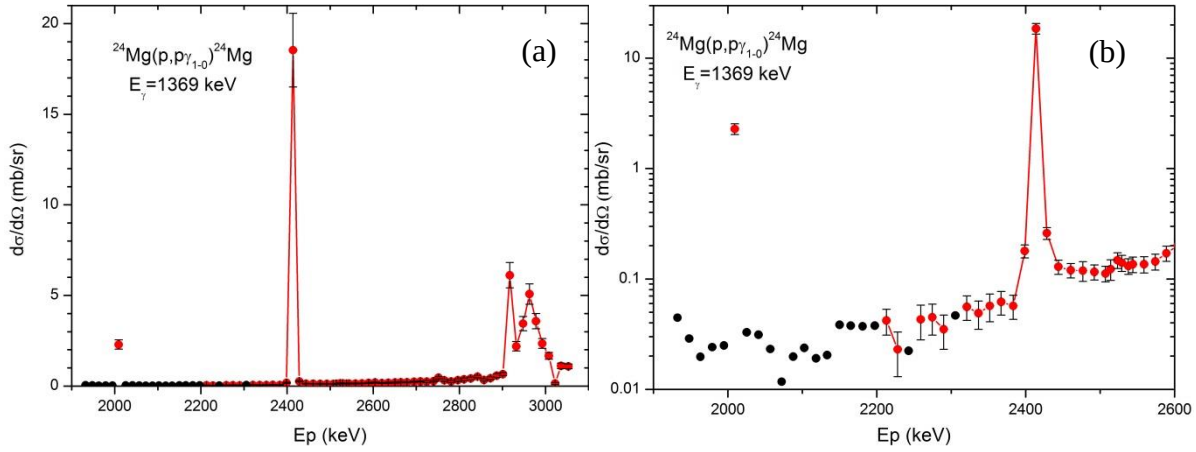
Reakcija	**Eγ (keV)**	**Početno stanje, Jπ**
$^{24}Mg(p,p\gamma_{1\text{-}0})^{24}Mg$	1369	2+
$^{25}Mg(p,p\gamma_{2\text{-}1})^{25}Mg$	390	3/2+
$^{25}Mg(p,p\gamma_{1\text{-}0})^{25}Mg$	585	1/2+
$^{25}Mg(p,p\gamma_{2\text{-}0})^{25}Mg$	975	3/2+

Diferencijalni udarni presjeci i u ovom slučaju izmjereni su za raspon energije protona od 1.95 do 3.05 MeV s korakom od 15 keV-a te na kutu od 135º. Podaci su dostupni u IBANDL bazi podataka [IBA] te su objavljeni u znanstvenom radu [Zam15]. Također, u Dodatku C mogu se naći tablice s izmjerenim vrijednostima udarnih presjeka na izotopima magnezija i pripadnim pogreškama.

Primjer gama-spektra snimljenog za MgF_2 metu, s naznačenim karakterističnim gama-linijama i pripadnim nuklearnim reakcijama na izotopima ^{24}Mg i ^{25}Mg, već je prije prikazan na *Slici 3.10.* Uočeno je da se gama-linija na 585 keV-a iz $^{25}Mg(p,p'\gamma)^{25}Mg$ reakcije preklapa s 583 keV-a gama-linijom iz prirodnog pozadinskog zračenja (^{208}Tl) koja je naznačena na *Slici 3.5.* To preklapanje posebice smeta na dužim mjerenjima i ako je koncentracija

magnezija mala. Nažalost, to je upravo bio slučaj u ovim mjerenjima budući da je korištena meta sastavljena od prirodnog Mg u kojem je udio izotopa ^{25}Mg samo 10 %. U svrhu ispravke, izmjeren je gama-spektar pozadinskog zračenja (bez protonskog snopa) te se je odračunao utjecaj te pozadinske gama-linije.

Zbog veoma malog omjera fotovrha prema pozadinskom šumu, nepouzdanosti određivanja intenziteta gama-linija bile su velike te u nekim slučajevima dosezale i do 41 %. Stoga je ukupna nepouzdanost mjerenih udarnih presjeka bila u širokom rasponu vrijednosti od 8 do 42 %.



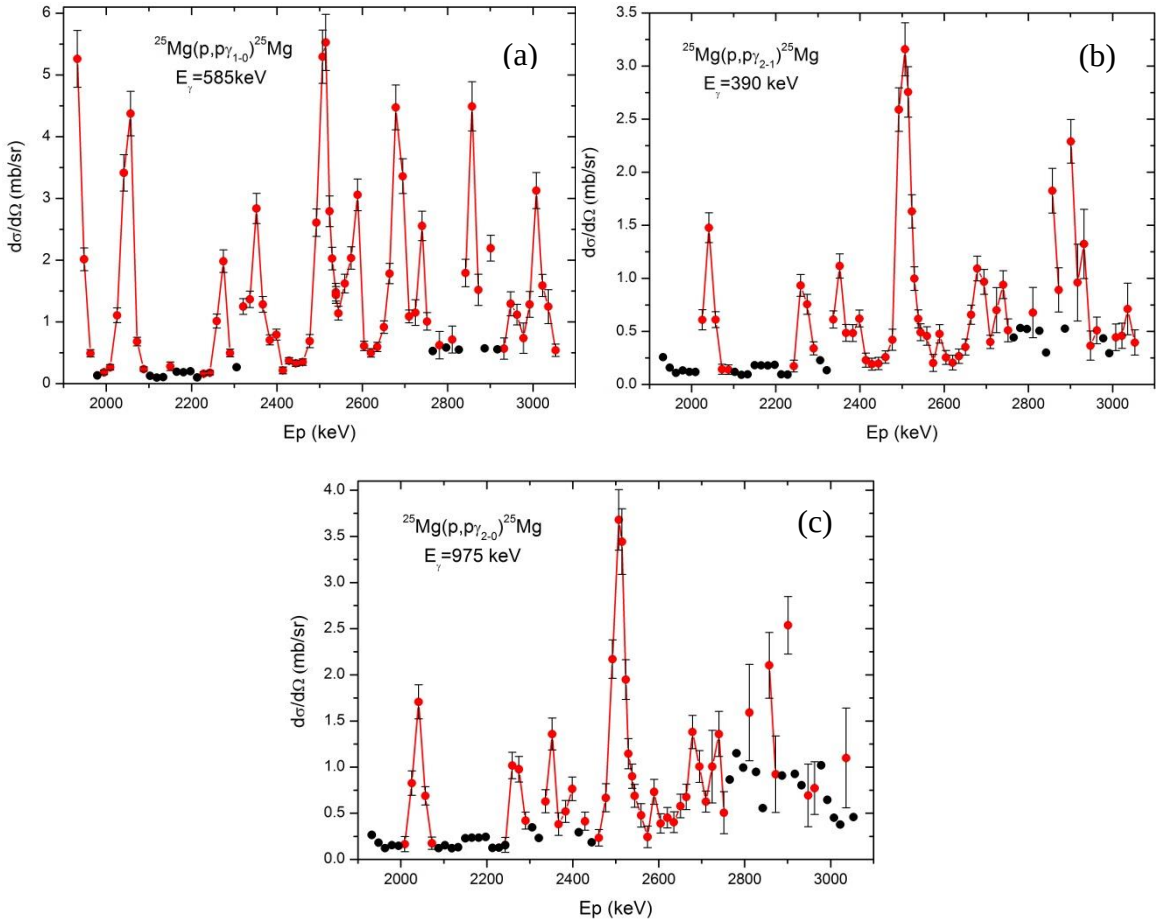
Slika 3.25. (a) Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1369 keV-a iz ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg reakcije u ovisnosti o energiji protona i za kut detekcije od 135º i *(b)* energijsko područje ispod 2.6 MeV-a u logaritamskoj skali (crvene točke). Za pojedine energije protona prikazane su MDL vrijednosti (crne točke).

Prinos gama-linije na 1369 keV-a iz ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg reakcije bio je slab pretežno na cijelom energijskom području, a pogotovo za $E_p < 2.7\ MeV$. Međutim, u tom području, među gotovo zanemarivim vrijednostima udarnog presjeka (< 0.1 mb/sr), ističu se dvije snažne i izolirane rezonance na 2.01 i 2.41 MeV. Te rezonance još su davno pronašli Mooring et al. [Moo51], a Litherland et al. [Lit56] napravili su dodatna mjerenja kutne raspodjele 1369 keV gama-zračenja na tim rezonancama. Udarni presjek u području oko niže rezonance (1.95-2.2 MeV) bio je ispod granice detekcije pa su na *Slici 3.25.* MDL vrijednosti prikazane umjesto pravih vrijednosti udarnih presjeka.

Treba napomenuti da su izmjereni udarni presjeci za te dvije rezonance samo približni jer svaka rezonanca sadrži tek po jednu mjerenu točku (i to vjerojatno ne na samom vrhu rezonance). Razlog tome je mala širina samih rezonanci (> 0.5 keV [End90]), gubitak energije

u meti, razlučivost protonskog snopa te korišten energijski korak od 15 keV. Stoga su u poglavlju 4.2. prikazana mjerenja ekscitacijskih krivulja oko tih rezonanci s daleko finijim korakom u energiji (~1 keV).

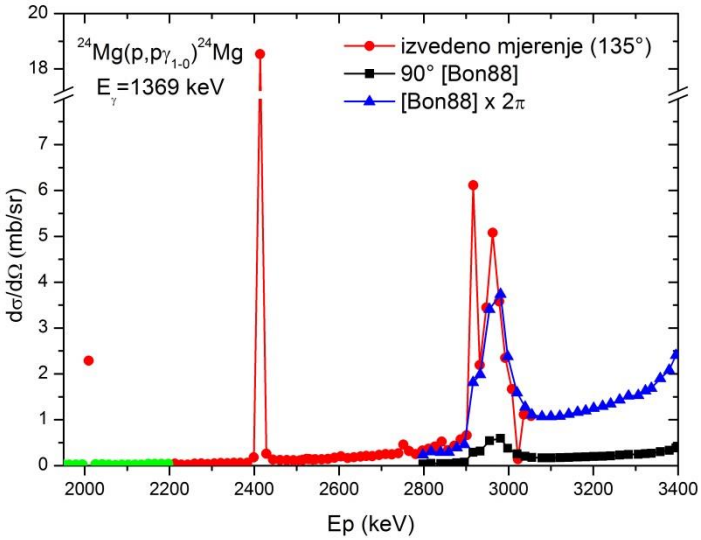
Prinos gama-linija na 390, 585 i 975 keV-a iz ^{25}Mg(p,p'γ)^{25}Mg reakcije bio je slab na cijelom energijskom području, a pogotovo u području izvan rezonanci. Zbog toga je za pojedine energije protona udarni presjek bio ispod granice detekcije. Na *Slici 3.26.* MDL vrijednosti prikazane su umjesto pravih vrijednosti udarnih presjeka. Također je očito da je za preciznija mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka na izotopu ^{25}Mg potrebno koristiti obogaćenu metu.



Slika 3.26. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 390 keV, *(b)* 585 keV i *(c)* 975 keV iz ^{25}Mg(p,p'γ)^{25}Mg reakcije u ovisnosti o energiji protona i za kut detekcije od 135º (crvene točke). Za pojedine energije protona prikazane su MDL vrijednosti (crne točke).

3.7.1. Usporedba s rezultatima iz literature

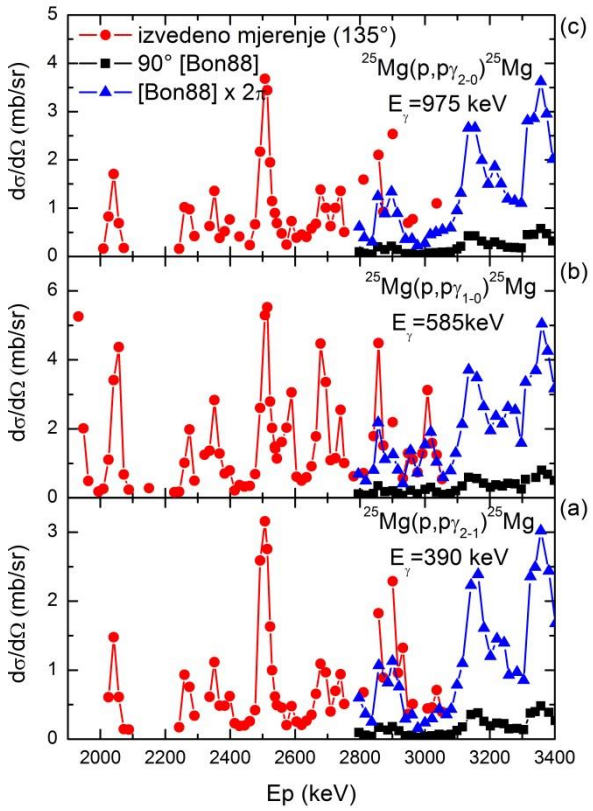
Usporedba diferencijalnih udarnih presjeka izmjerenih u ovom radu s jedinim pronađenim podacima u literaturi od Boni et al. [Bon88] prikazana je na *Slikama 3.27* i *3.28*. Prvo što se uočava na obje slike veliko je odstupanje podataka od Boni et al. [Bon88] u odnosu na podatke izmjerene u ovom radu. Razlog tog odstupanja može biti veća debljina mete koju su koristili ti autori, pogrešna izmjera naboja ili netočno baždarenje efikasnosti gama-detektora. Također je očigledno da je u udarnim presjecima izmjerenim u ovom radu, uslijed manjeg energijskog koraka i korištenja tanje mete, daleko bolje prikazana fina rezonantna struktura udarnih presjeka za oba izotopa Mg.



Slika 3.27. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 1369 keV-a iz ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg reakcije s podacima od Boni et al. [Bon88] koji su jedini bili dostupni prije mjerenja i s istim setom podataka pomnoženim s faktorom 2π. Dodane su i MDL vrijednosti za energije protona 1.95-2.0 MeV-a (zelene točke).

To je naročito vidljivo u ^{24}Mg(p,pγ$_{1-0}$)^{24}Mg reakciji (*Slika 3.27.*), gdje je u ovom radu rezonanca na energiji protona od 2.9 MeV izmjerena na otprilike istom položaju, ali s nekoliko puta većom vrijednosti udarnog presjeka u odnosu na podatke od Boni et al. Također je potrebno istaknuti da je postignuto puno bolje slaganje s podacima od Boni et al. kad su njihove vrijednosti udarnih presjeka pomnožene s faktorom 2π (koji je proizvoljno odabran jer postoji mogućnost da su autori napravili sistematsku grešku u računu diferencijalnih udarnih presjeka). Međutim, i kad su udarni presjeci od Boni et al. uvećani za faktor 2π,

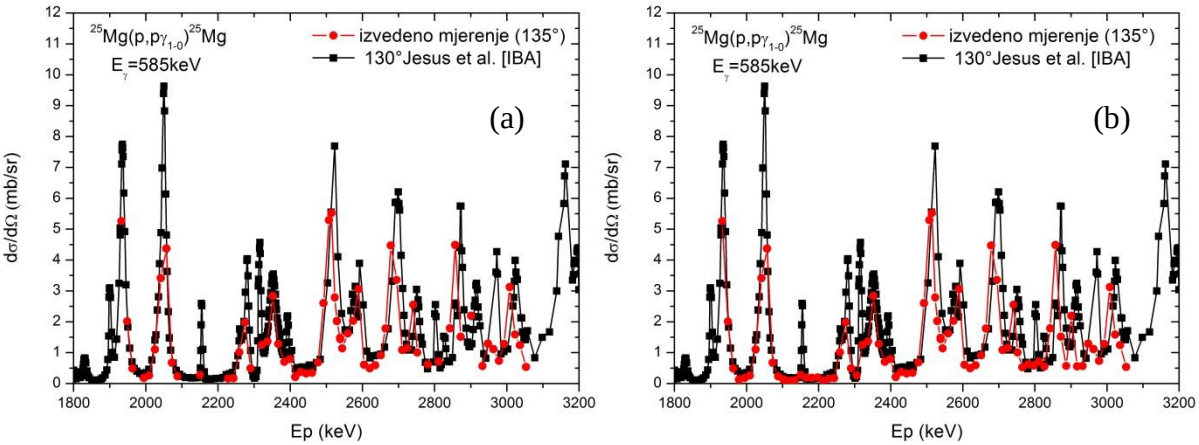
mjerenja iz ovog rada i dalje bolje prikazuju strukturu u udarnom presjeku. Tako su razlučene dvije rezonance na energijama protona od 2.92 i 2.93 MeV-a, dok su Boni et al. uočili samo tu drugu rezonancu uslijed njene velike širine od otprilike 50 keV [End90].



Slika 3.28. Usporedba izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 390 keV, *(b)* 585 keV i *(c)* 975 keV s podacima od Boni et al. [Bon88] koji su jedini bili dostupni prije mjerenja i s istim setom podataka pomnoženim s faktorom 2π.

I za udarne presjeke za produkciju gama-zračenja iz reakcija na izotopu ^{25}Mg također je postignuto puno bolje slaganje s podacima od Boni et al. kad su njihove vrijednosti udarnih presjeka pomnožene s faktorom 2π. Budući da je isti efekt neslaganja uočen za sve promatrane gama-linije (na oba izotopa Mg), odbačena je mogućnost da je razlog neslaganju to što Boni et al. nisu uzeli u obzir izotopnu zastupljenost ^{25}Mg u prirodnom Mg koji je korišten za metu.

Unutar IAEA projekta napravljeno je još samo jedno mjerenja diferencijalnog udarnog presjeka za Mg i to za produkciju gama-zračenja na 585 keV iz ^{25}Mg(p,p'γ)^{25}Mg reakcije za kut detekcije od 130º. Na *Slici 3.15.* prikazana je usporedba s tim podacima od Jesus et al. koji još nisu objavljeni, ali su dostupni u bazi podataka [IBA].



Slika 3.29. (a) Usporedba izmjerenog diferencijalnih udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 585 keV-a s mjerenjem naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA]. *(b)* Dodane su i MDL vrijednosti za pojedine energije protona radi bolje predodžbe slaganja podataka.

Budući da su Jesus et al. [IBA] koristili daleko finiji energijski korak od našeg (5-10 keV-a u području izvan rezonanci i samo 1-2 keV-a na samim rezonancama) i koristili metu obogaćenu s ^{25}Mg (što im je omogućilo daleko bolju statistiku izmjerenih intenziteta gama-zračenja), očigledno je da su daleko bolje prikazali finu rezonantnu strukturu udarnog presjeka. Ono što je važno zaključiti iz ove usporedbe je da su prije iznesene pretpostavke o sistematskim pogreškama u podacima od Boni et al. [Bon88] očito ispravne.

3.8. Diferencijalni udarni presjeci za aluminij

Određivanje koncentracije aluminija pomoću PIGE metode ima, između ostalog, veliku primjenu u analizi atmosferskih aerosola, gdje se može iskoristiti za korekciju koncentracije dobivene s PIXE metodom [Mar08].

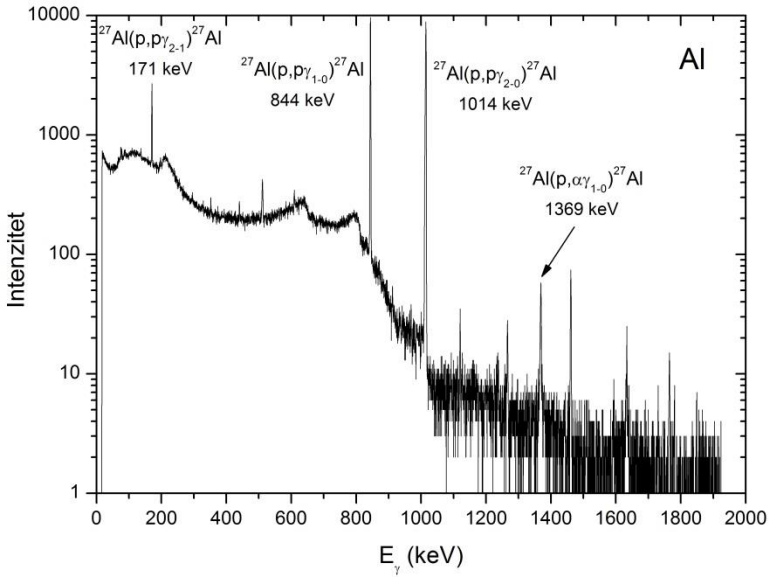
Pretraga dostupne literature i postojećih baza podataka [IBA, EXF] pokazala je da i u ovom slučaju postoji samo jedno objavljeno mjerenje diferencijalnih udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja za Al [Bon88]. Kao što je prije napomenuto za podatke od ovih autora, ta mjerenja su upitne vjerodostojnosti zbog različite procedure mjerenja, a u prošlom poglavlju još su dodatno uočene i sistematske pogrešake u njihovom mjerenju diferencijalnih udarnih presjeka za izotope Mg. Stoga su i za Al bila neophodna nova mjerenja.

Diferencijalni udarni presjeci izmjereni su za raspon energije protona od 1.95 do 3.05 MeV s korakom od 15 keV-a. U *Tablici 3.6.* dan je popis nuklearnih reakcija za koje su mjereni udarni presjeci za Al. Samo za emisiju gama-zračenja na 844 keV-a može se očekivati izotropna kutna raspodjela budući da početno stanje prijelaza ima spin 1/2 [Dev57].

Tablica 3.6. Popis nuklearnih reakcija, gama-energija te spina i pariteta početnih stanja gama-prijelaza za koje su mjereni diferencijalni udarni presjeci na aluminiju.

Reakcija	**Eγ (keV)**	**Početno stanje, Jπ**
$^{27}Al(p,p\gamma_{1\text{-}0})^{27}Al$	844	1/2+
$^{27}Al(p,p\gamma_{2\text{-}0})^{27}Al$	1014	3/2+
$^{27}Al(p,\alpha\gamma_{1\text{-}0})^{24}Mg$	1369	2+

Primjer gama-spektra snimljenog za Al metu, s naznačenim karakterističnim gama-linijama i pripadnim nuklearnim reakcijama, prikazan je na *Slici 3.30*.

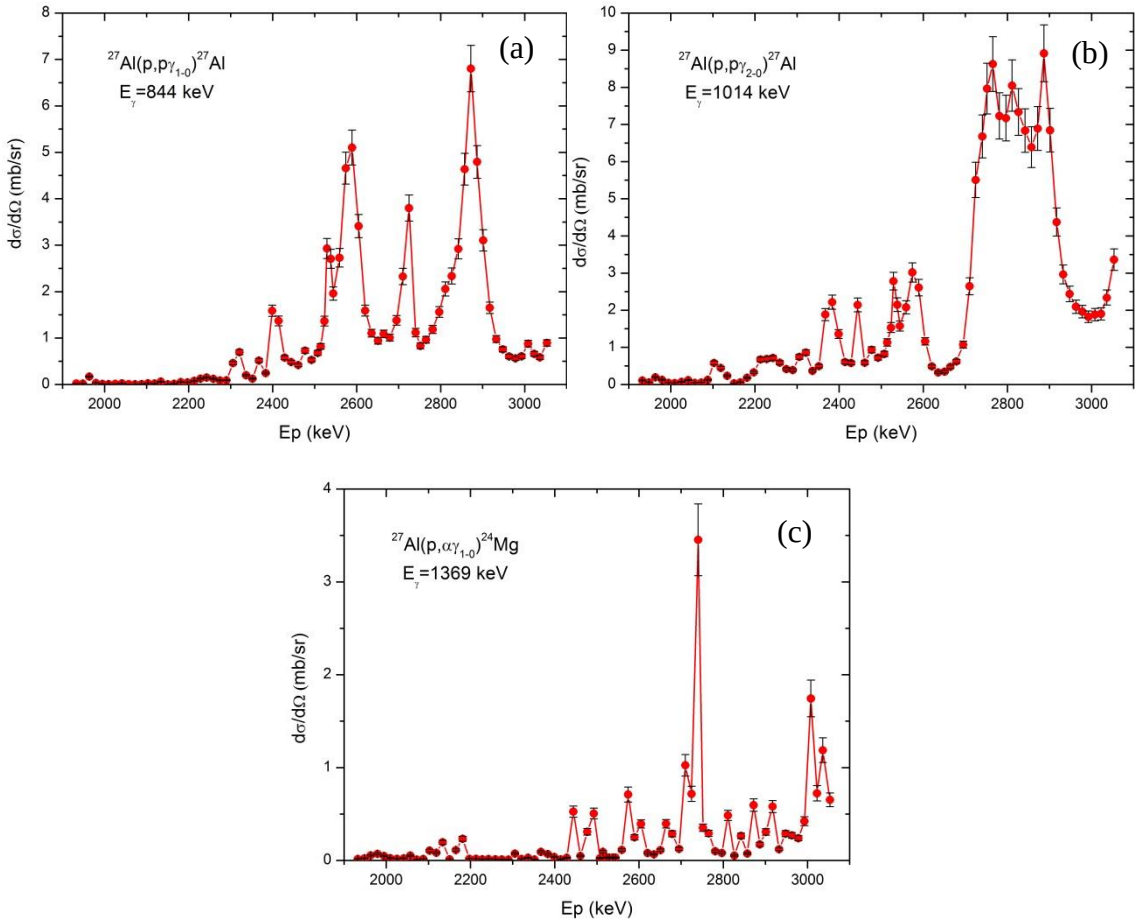


Slika 3.30. Gama-spektar dobiven s Al mete pobuđene s protonima energije 2857 keV.

Nepouzdanosti određivanja intenziteta pojedinih gama-linija bile su jako različite. Općenito su za gama-liniju na 844 keV-a bile 1-4 %, ali su u području malih udarnih presjeka (< 0.1 mb) nepouzdanosti rasle do 30 %. Slično je bilo i za gama-liniju na 1369 keV, gdje su nepouzdanosti išle čak do 36 %. Međutim, za gama-liniju na 1014 keV-a nepouzdanosti su bile unutar 1 % na velikom rasponu energije protona, ali su kako se išlo prema nižim energijama i s time nižim vrijednostima udarnog presjeka narasle do 8 %. Na kraju se za

ukupnu nepouzdanost mjerenih udarnih presjeka dobilo do 10 % za područja većih vrijednosti udarnih presjeka te 12-38 % u području malih udarnih presjeka.

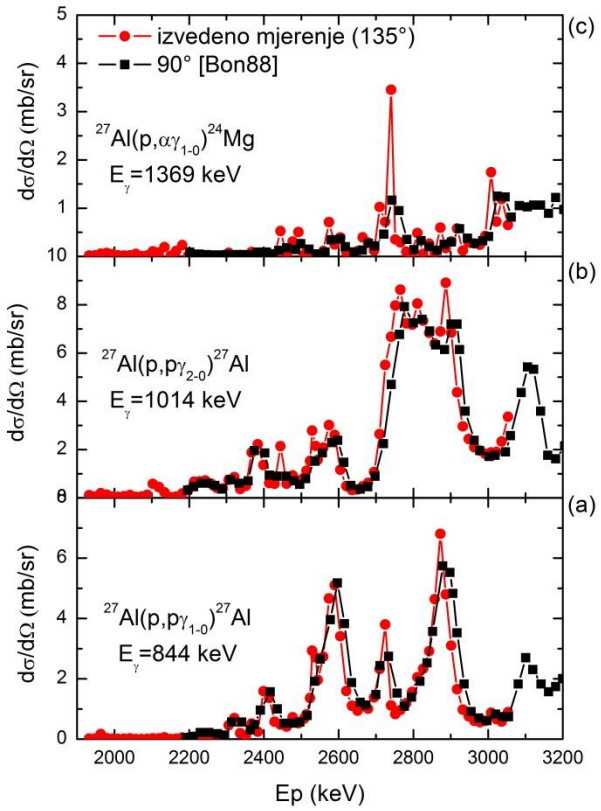
Mjereni diferencijalni udarni presjeci prikazani su na *Slici 3.31*. Podaci su dostupni u IBANDL bazi podataka [IBA], dok će diferencijalni udarni presjeci za izotropnu gama-liniju na 844 keV biti dio zajedničke publikacije [Jes16] koja je u pripremi. Također, u Dodatku D mogu se naći tablice s izmjerenim vrijednostima udarnih presjeka na aluminiju i pripadnim pogreškama.



Slika 3.31. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 844 keV i *(b)* 1014 keV iz ^{27}Al(p,p'γ)^{27}Al reakcije te *(c)* 1369 keV iz ^{27}Al(p,αγ)^{24}Mg reakcije u ovisnosti o energiji protona i za kut detekcije od 135º.

3.8.1. Usporedba s rezultatima iz literature

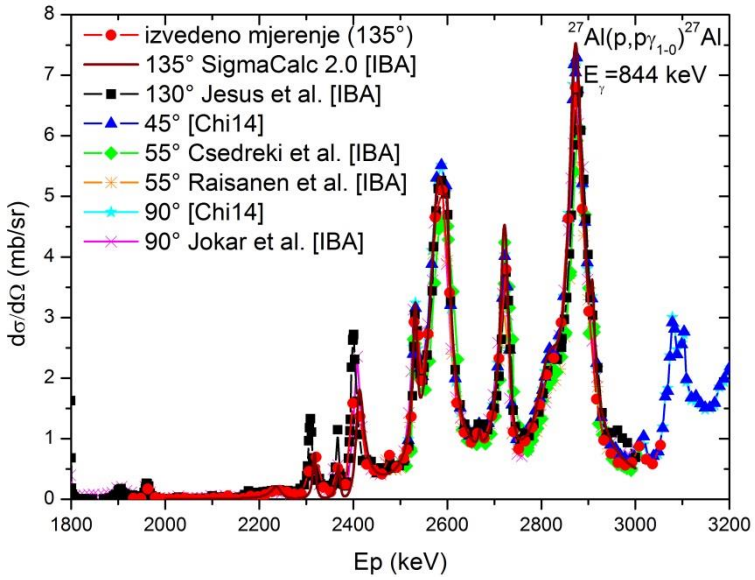
Usporedba diferencijalnih udarnih presjeka izmjerenih u ovom radu s jedinim pronađenim podacima u literaturi od Boni et al. [Bon88] prikazana je na *Slici 3.32.* Općenito se može primijetiti dobro slaganje podataka, unutar navedenih pogrešaka, na cijelom području energije protona. Međutim, očigledno je da je u udarnim presjecima izmjerenim u ovom radu, uslijed manjeg energijskog koraka i korištenja tanje mete, daleko bolje prikazana fina rezonantna struktura udarnih presjeka za sve tri promatrane gama-linije. Također se vidi sistematski pomak podataka od Boni et al. prema višim energijama protona, što ukazuje na moguću pogrešku u energijskoj kalibraciji i/ili na izostanak korekcije srednje energije protona uslijed gubitka energije u meti.



Slika 3.32. Usporedba izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na: *(a)* 844 keV, *(b)* 1014 keV i *(c)* 1369 keV s podacima od Boni et al. [Bon88] koji su jedini bili dostupni prije mjerenja.

Unutar IAEA projekta izvedeno je dosta novih mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka za Al i to na više kuteva detekcije gama-zračenja te posebice za gama-linije na 844 i 1014 keV-a.

Podaci od Chiari et al. za gama-linije na 844 i 1014 keV-a, mjereni na kutevima od 45º i 90º te za energijsko područje 2.5-4.1 MeV, već su objavljeni [Chi14]. Diferencijalni udarni presjeci za izotropnu gama-liniju na 844 keV za energije protona od 2.5 do 3 MeV-a., koji su mjereni od strane svih sudionika IAEA projekta radi provjere mogućih odstupanja uslijed korištenja različitih eksperimentalnih postava, bit će dio zajedničke publikacije [Jes16] koja je u pripremi. U sljedećim usporedbama prikazani su samo podaci koji su već dostupni u bazi podataka [IBA]. Također, na temelju dostupnih podataka A. Gurbich izračunao je evaluirani diferencijalni udarni presjek za gama-liniju na 844 keV-a i područje energije protona od 2.5 do 3 MeV-a [IBA].



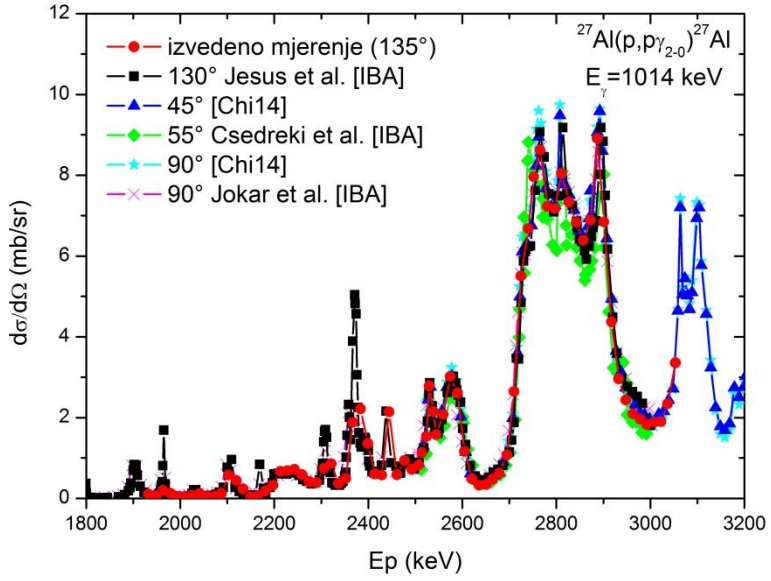
Slika 3.33. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 844 keV-a iz ^{27}Al(p,p'γ)^{27}Al reakcije s podacima od Chiari et al. [Chi14], drugim podacima naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA] koji će biti uključeni u zajedničku publikaciju u pripremi [Jes16] te evaluiranim diferencijalnim udarnim presjekom [IBA].

Na *Slici 3.33.* prikazana je usporedba diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na 844 keV-a sa svim podacima za tu liniju koji su trenutno dostupni u bazi podataka [IBA]. Općenito je dobro slaganje vrijednosti udarnih presjeka za cijelo izmjereno energijsko područje, što je bilo i očekivano budući da se radi o izotropnoj linije te su sva mjerenja temeljena na istoj proceduri. Također, vidi se da je dobro prikazana fina rezonantna struktura udarnog presjeka. Može se opaziti da podaci iz ovog rada imaju oko 10 % niže iznose za energije iznad 2.4 MeV, što je unutar navedenih pogrešaka mjerenja. Međutim, na energijama protona ispod 2.4 MeV-a uočavaju se čak 30 % niži iznosi mjerenih udarnih presjeka i to je

posebice izraženo u području rezonanci. Razlog tome može biti što su podaci u ovom radu mjereni s većim energijskim korakom pa nije bilo moguće prikazati same vrhove uskih rezonanci, kao što je to slučaj s podacima od Jesus et al. [IBA] koji su mjereni s dosta manjim energijskim korakom.

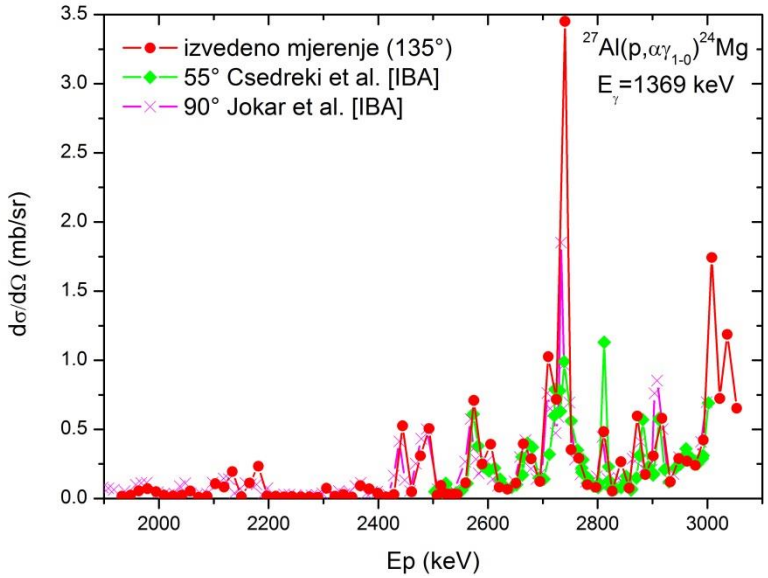
Detaljnijom usporedbom podataka prikazanih na *Slici 3.33.* uočeno je da je glavni uzrok neodređenosti mjerenja udarnih presjeka energijska kalibracija akceleratora te da razlike među energijskim skalama laboratorija uključenih u IAEA projekt idu i do 10 keV-a [Jes16]. Najvjerojatniji razlog tome je što se energijska kalibracija, zbog nedosljednih podataka o energijama uskih rezonanci iznad 2 MeV-a, u većini slučajeva temelji na dvije točke ispod 2 MeV-a (poglavlje 3.1.1.) pa ekstrapolacija na više energije snopa unosi dodatnu pogrešku.

Na *Slici 3.34.* prikazana je usporedba diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na 1014 keV-a s novouključenim podacima od Chiari et al. [Chi14] i drugim podacima naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA]. U ovom slučaju je na energijama protona ispod 2.5 MeV-a još više vidljivo kako podaci od Jesus et al. [IBA], mjereni s dosta manjim energijskim korakom, puno bolje prikazuju finu rezonantnu strukturu udarnog presjeka, koja nije prikazana u podacima mjerenim u ovom radu. Međutim, na energijama protona iznad 2.5 MeV-a slaganje podataka iz ovog rada s drugim naknadno dostupnim mjerenjima je općenito dobro i odstupanja su unutar navedenih pogrešaka mjerenja.



Slika 3.34. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 1014 keV-a iz $^{27}Al(p,p'\gamma)^{27}Al$ reakcije s podacima od Chiari et al. [Chi14] te drugim podacima naknadno dostupnim u bazi podataka [IBA].

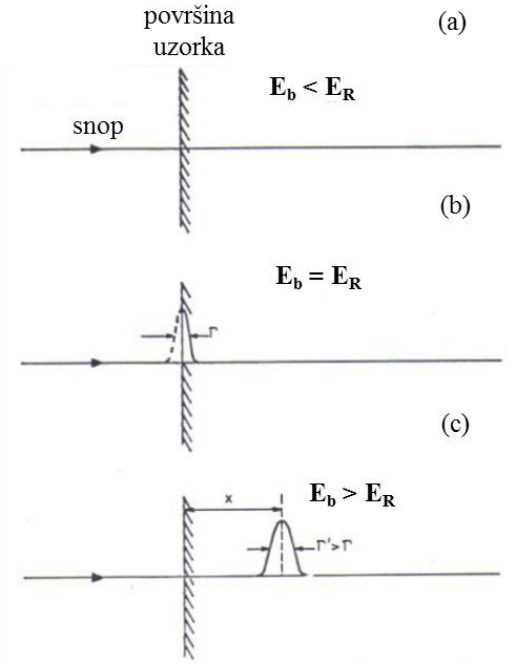
Slika 3.35. pokazuje usporedbu diferencijalnih udarnih presjeka za produkciju gama-zračenja na 1369 keV-a s novouključenim podacima od Csedreki et al. i Jokar et al. [IBA]. Do otprilike 2.7 MeV-a energije protona dobro je slaganje, unutar navedenih pogrešaka mjerenja, vrijednosti izmjerenih u ovom radu s drugim podacima. Međutim, na višim energijama vide se prilična odstupanja i u energijskoj skali protonskog snopa i u vrijednosti izmjerenih udarnih presjeka. Mogući razlog odstupanja je anizotropija gama-zračenja koja može biti različito izražena za pojedine rezonance prisutne u spektru.



Slika 3.35. Usporedba izmjerenog diferencijalnog udarnog presjeka za produkciju gama-zračenja na 1369 keV-a iz $^{27}Al(p,\alpha\gamma)^{24}Mg$ reakcije s podacima od Csedreki et al. i Jokar et al. koji su naknadno dostupni u bazi podataka [IBA].

4. REZONANTNO DUBINSKO PROFILIRANJE

Metoda rezonantnog dubinskog profiliranja koristi prisutnost oštre rezonance u udarnom presjeku za određenu nuklearnu reakciju koja vodi na emisiju gama-zračenja. Preciznim mijenjanjem energije upadnog snopa, i uzimanjem u obzir vrijednosti zaustavne moći u uzorku, rezonanca se „pomiče“ sve dublje u uzorak. Tako se mjerenjem intenziteta gama-zračenja u ovisnosti o energiji upadnog snopa dobiva koncentracijski profil promatranog lakog izotopa kao funkcija dubine (*Slika 4.1.*).



Slika 4.1. Shema prikazuje princip rezonantnog dubinskog profiliranja. *(a)* Ako se uzorak bombardira s česticama koje imaju energiju manju od rezonantne energije ne dolazi do nuklearne reakcije. *(b)* Kad je upadna energija jednaka rezonantnoj energiji analizira se površina uzorka. *(c)* U slučaju da se uzorak bombardira s česticama koje imaju energiju veću od rezonantne energije, gama-zračenje se emitira iz reakcije do koje dolazi na dubini gdje upadne čestice postižu rezonantnu energiju. Ako se intenzitet gama-zračenja mjeri kao funkcija upadne energije čestica, može se dobiti koncentracijski profil uzorka. Preuzeto iz [Tro82].

Većina lakih jezgri ($Z < 30$) ima snažne i oštre rezonance u udarnom presjeku nuklearnih reakcija inducirani lakim ionima niskih energija (< 3 MeV). Nuklearne reakcije, inducirane snopom protona, koje pokazuju rezonantna svojstva te se stoga mogu iskoristiti za dubinsko profiliranje su (p,γ), (p,p'γ) i (p,αγ) reakcije, i već su detaljno razmatrane u poglavlju 2.5.

Glavni doprinosi efikasnosti dubinskog profiliranja mogu se izraziti u jednostavnom izrazu za mjereni intenzitet gama-zračenja [Wan09]:

$$Y \approx \frac{\varepsilon_{aps} w(\theta) I t S}{E_R}, \tag{4.1}$$

gdje je ε_{aps} apsolutna efikasnost detektora (umnožak efikasnosti i prostornog kuta detektora), $w(\theta)$ kutna raspodjela gama-zračenja (gdje je θ kut detektora u odnosu na smjer upadnog snopa), I struja snopa, t vrijeme mjerenja, S snaga rezonance i E_R rezonantna energija. Za dani izotop, omjer S/E_R i količina pozadinskog zračenja daju prednost korištenju projektila niskih energija. Intenzitet gama-zračenja ovisi o kutu θ na sljedeći način:

$$w(\theta) = 1 + a_2 P_2(cos\theta) + a_4 P_4(cos\theta) + članovi\ višeg\ reda\ , \tag{4.2}$$

gdje je $P_i(cos\theta)$ Legendreov polinom reda i, a koeficijenti a_i ovise o tipu gama-prijelaza. Obično je treći član u izrazu (4.2) mali i dobar prosječni intenzitet može se dobiti na kutevima od 55º i 125º za koje je $P_2 \approx 0$ te je kutna raspodjela gama-zračenja izotropna.

Dubinska razlučivost metode ovisi o energijskoj razlučivosti upadnog snopa Ω_b, dopplerskom širenju zbog vibracija atoma mete Ω_D, širini korištene rezonance Γ_R i energijskom rasipanju iona iz snopa prilikom prolaska kroz metu $\Omega_{str}(x)$. Uz Gaussovu aproksimaciju ukupna dubinska razlučivost jednaka je [Wan09]:

$$d(x) = \frac{\Omega_{tot}(x)}{S(x)} \tag{4.3}$$

$$\Omega_{tot}(x) = \sqrt{\Omega_b^2 + \Omega_D^2 + \Gamma_R^2 + \Omega_{str}^2(x)}\ , \tag{4.4}$$

gdje je $S(x)$ zaustavna moć na dubini x. Dopplersko širenje može se izračunati prema izrazu:

$$\Omega_D = 2.355 \sqrt{\frac{2 M_1 E_b k T}{M_2}}\ , \tag{4.5}$$

gdje su M_1 i M_2 mase projektila i mete (u atomskim jedinicama mase), E_b energija snopa, k Boltzmannova konstanta ($k = 8.617 \cdot 10^{-8}\ keV/K$), a T temperatura uzorka (u K). Za 1 MeV-ski protonski snop i sobnu temperaturu uzorka (298.6 K) dobije se $\Omega_D \sim 100$ eV.

Energijsko rasipanje već je detaljno opisano u poglavlju 2.1.2. U ovom radu za računanje energijskog rasipanja korišten je program SIMNRA [May97] i to s uključenim popravkama od Chua [Chu76] i Yanga [Yan91].

4.1. Dubinsko profiliranje lakih elemenata

Dubinsko profiliranje lakih elemenata zanimljivo je i važno područje IBA metoda. Međutim, samo neke IBA tehnike pogodne su za dubinsko profiliranje. Osim rezonantnog dubinskog profiliranja, tj. PIGE dubinskog profiliranja, tu su još spektroskopija elastično izbijenih iona (ERDA), rutherfordsko raspršenje u stražnje kuteve (RBS), analiza pomoću čestičnih produkata nuklearnih reakcija (NRA), te konfokalna metoda česticama inducirane emisije rendgenskoga zračenja (CF PIXE).

Postoji i mogućnost dubinskog profiliranja s klasičnom PIXE metodom tako da se mijenja kut upada snopa na uzorak, tj. da se uzorak zakreće [Cal04]. Međutim, isto kao kod CF PIXE metode, nije moguće profilirati lake elemente jer postoji problem atenuacije niskoenergijskog rendgenskoga zračenja u uzorku pa PIXE daje informaciju o koncentraciji tih lakih elemenata samo iz površinskog područja uzorka (prvih nekoliko μm). Stoga se metode temeljene na detekciji karakterističnog rendgenskoga zračenja mogu koristiti samo za profiliranje težih elemenata. Također, treba napomenuti da je dubinska razlučivost CF PIXE metode reda desetak μm [Žit10].

RBS metoda također je prikladnija za dubinsko profiliranje težih elemente budući da ima smanjenu osjetljivost za detekciju lakih elemenata koji se nalaze u težoj matrici. NRA tehnika komplementarna je RBS metodi jer je najosjetljivija za detekciju lakih elemenata u teškoj matrici. Međutim, uslijed velikih udarnih presjeka za elastično raspršenje u odnosu na udarne presjeke u nuklearnim reakcijama, neophodno je korištenje filtera ispred detektora da bi se zaustavio elastično raspršeni primarni snop i propustile samo čestice nastale u egzotermnoj nuklearnoj reakciji. To vodi na lošu dubinsku razlučivost zbog energijskog rasipanja u filteru. Korištenje rezonanci u nuklearnim reakcijama donekle poboljšava dubinsku razlučivost.

ERDA metoda u kombinaciji s mjerenjem vremena proleta (engl. *Time of Flight Elastic Recoil Detection Analysis – TOF-ERDA*) moćno je oruđe za dubinsko profiliranje [Sik08, Sik10]. Međutim, to je prvenstveno metoda za dubinsko profiliranje površinskih slojeva materijala jer se dubinska razlučivosti vrlo brzo kvari s dubinom te se može najčešće profilirati samo prvih nekoliko stotina nanometara uzorka. S druge strane, s PIGE metodom moguće je dubinsko profiliranje i dubina od nekoliko μm, tj. sve dok energijsko rasipanje snopa u materijalu potpuno ne pokvari dubinsku razlučivost. U slučaju da se koristi jako uska rezonanca (~ 100 eV) i snop izvrsne energijske razlučivosti, PIGE metoda će imati

nanometarsku dubinsku razlučivost nadmoćnu u odnosu na druge IBA metode [Pal83]. S druge strane, nedostatak PIGE dubinskog profiliranja je činjenica da oštre rezonance u udarnim presjecima nisu dostupne za sve izotope, a naručito su rijetke snažne i uske rezonance s malom vrijednosti udarnog presjeka oko rezonanci.

Uz IBA metode postoje i druge metode za dubinsko profiliranje, a kao najvažniju među njima može se izdvojiti spektroskopija sekundarno izbijenih iona (eng. *Secondary Ion Mass Spectrometry – SIMS*). SIMS ima odličnu osjetljivost detekcije i dubinsku razlučivost od nekoliko nm, ali sama metoda je destruktivna za razliku od PIGE metode i najčeće se koristi za profiliranje površinskih slojeva (do 1 μm dubine).

Stoga je prednost dubinskog rezonantnog profiliranja u tome što je u pravilu nedestruktivna metoda koja istovremeno daje informaciju kako o dubinskom profilu promatrane rezonantne nuklearne reakcije, tako i o intenzitetima drugih nerezonantnih nuklearnih reakcija, tj. elementnom sastavu uzorka. Jedna od najpoznatijih primjena PIGE dubinskog profiliranja s protonskom pobudom je kvantificiranje i profiliranje natrija u antičkim rimskim staklima u kojima je uslijed starenja došlo do korozije površine, tj. nestanka Na s površine [Cli08]. Također je česta primjena profiliranja fluora u kostima i zubima [Gas08].

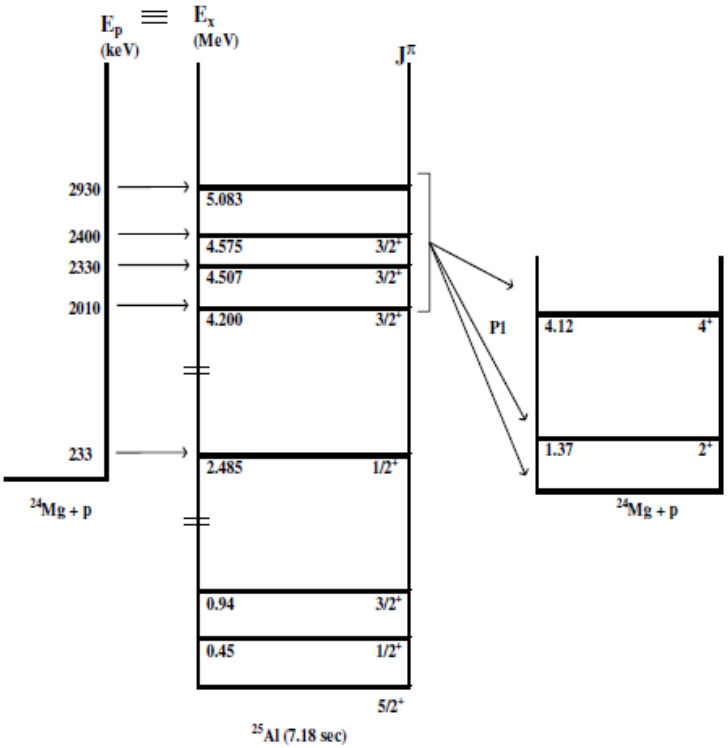
4.1.1. Dubinsko profiliranje magnezija

Kao što je opisano u poglavlju 3.7., prilikom mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja na magneziju uočene su dvije istaknute rezonance na 2.01 i 2.41 MeV u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji (*Slika 3.25.*). Na *Slici 4.2.* dan je prikaz energijskih nivoa kroz koje te rezonance kreću s emisijom gama-zračenja energije 1369 keV-a.

Budući da je opaženo da su rezonance dobro izolirane (s malom vrijednosti udarnog presjeka oko rezonanci), a u literaturi je pronađeno da su prilično uske (>0.5 keV [End90]), zaključeno je da bi mogle biti pogodne za rezonantno dubinsko profiliranje. Tako bi se pružila mogućnost za dubinsko profiliranje magnezija koji je vjerojatno najmanje istražen element među lakim elementima sa $Z > 10$.

Dosad su se za profiliranje Mg koristile rezonance na 1548 keV u $^{26}Mg(p,\gamma)^{27}Al$ reakciji [Ant77] i na 2010 keV u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji [Pal83]. Međutim, u oba slučaja reakcije su samo korištene za ispitivanje dosega iona Mg implantiranih u Si te nije bilo govora o

njihovim karakteristikama i mogućnosti dubinskog profiliranja s tim reakcijama. Tek su Reddy et al. [Red08] uočili potencijal rezonantnog dubinskog profiliranja magnezija u tankim filmovima pomoću rezonance na 2010 keV u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji. Unutar tog rada izmjerena je ekscitacijska krivulja i dobivena širina rezonance od 350 ± 50 eV.

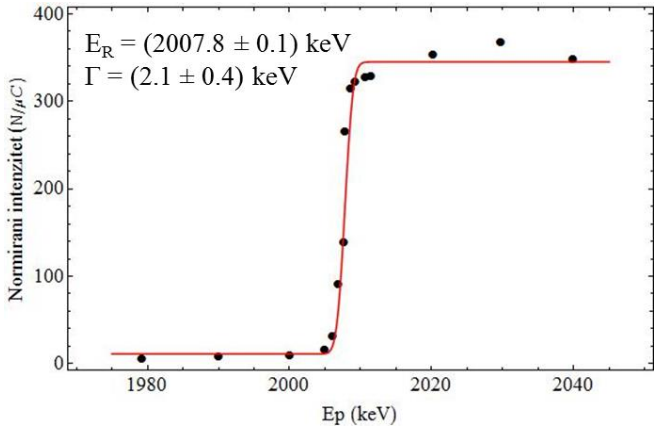


Slika 4.2. Shema energijskih nivoa za rezonance na 2.01 i 2.41 MeV u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji. Preuzeto iz [End90].

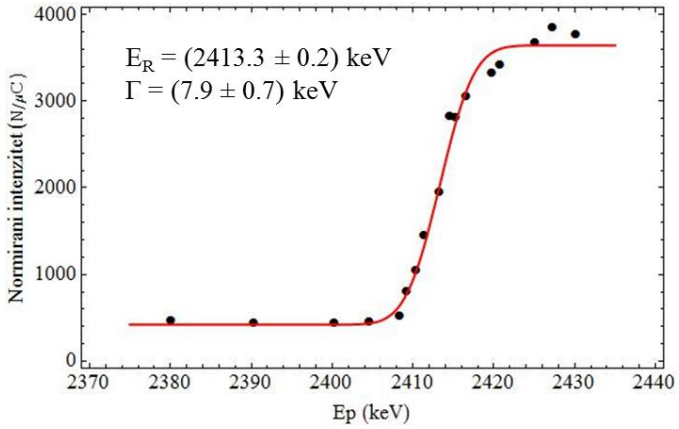
Pretraga literature pokazala je da druga uočena rezonanca na 2.41 MeV u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji dosad nije korištena za dubinsko profiliranje. Činjenica je da ona nije toliko pogodna kao već korištena rezonanca na nižoj energiji koja je potpuno izolirana i omogućava profiliranje do otprilike 20 μm u Mg filmu bez smetnji od druge rezonance na višoj energiji. Također, kao što se vidi sa *Slike 3.25.*, rezonanca na 2.41 MeV ima veću širinu. S druge strane, njena velika prednost je to što je daleko jača u intenzitetu. Naknadno su u radu od Amsel et al. [Ams98] nađene preciznije izmjerene vrijednosti za energije i širine obje rezonance: 2006 keV (Γ<1.3 keV) i 2409 keV ($\Gamma\approx$1.2 keV).

4.2. Ekscitacijske krivulje

Za mjerenja ekscitacijskih krivulja, tj. širine rezonanci u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji, korištena je debela meta prirodnog Mg u kojem je udio izotopa ^{24}Mg 78.99 %. Debela meta korištena je zbog toga što oblik uske rezonance nije moguće eksperimentalno opaziti koristeći tanke mete [Ams83, Ams83a]. Budući da su korištene veće struje snopa (~ 100 nA), sakupljeni intenziteti su ispravljeni za mrtvo vrijeme. Na *Slikama 4.3.* i *4.4.* dane su krivulje pobuđenja rezonanci na 2.01 i 2.41 MeV. Dobivene su istom procedurom kao kod energijske kalibracije ubrzivača čestica (poglavlje 2.1.1.) tako da su se izmjereni normirani intenziteti gama-zračenja u ovisnosti o energije protona prilagodili na funkciju greške koja je dana formulom (3.2). Parametri prilagodbe dani su u *Tablici 4.1.*



Slika 4.3. Ekscitacijska krivulja rezonance na 2006 keV-a u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji i rezultati prilagodbe na Erf funkciju.



Slika 4.4. Ekscitacijska krivulja rezonance na 2409 keV-a u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji i rezultati prilagodbe na Erf funkciju.

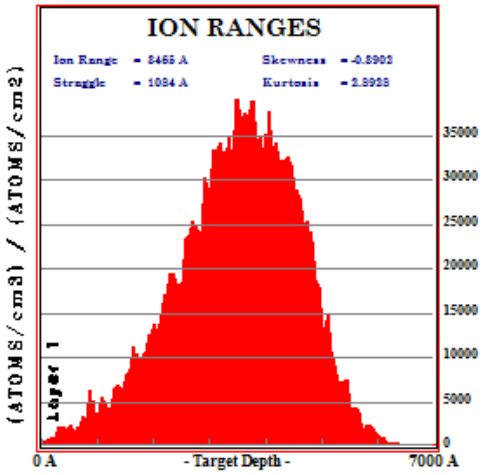
Tablica 4.1. Parametri prilagodbe intenziteta gama-zračenja u ovisnosti o energiji protona na funkciju greške. [a] Vrijednosti energije i širine rezonance iz Amsel et al. [Ams98]; [b] Vrijednost širine rezonance iz Reddy et al. [Red08]; [c] Vrijednosti energije i širine rezonance iz Endt et al. [End90].

E_R (keV)	Γ_R (keV)	E_R (keV)	σ (keV)	Γ (keV)	A_1	A_2
2006[a]	< 1.3[a]	2007.8 ± 0.1	0.9 ± 0.2	2.1 ±0.4	1.4 ± 0.5	345 ± 11
2010[b]	0.35 ± 0.05[b]					
2010[c]	> 0.5[c]					
2409[a]	≈1.2[a]	2413.3 ± 0.2	3.3 ± 0.3	7.9 ± 0.7	421 ± 71	3643 ± 69
2400[c]	> 0.5[c]					

Već na prvi pogled vidi se da je rezonanca na višoj energije znatno jača u odnosu na rezonancu na nižoj energiji protona, ali i puno šira. Treba napomenuti da širine dobivene prilagodbom eksitacijskih funkcija na funkciju greške (Γ u *Tablica 4.1.*) sadrže doprinose iz izraza (4.4). Dopplersko širenje za ^{24}Mg metu, prema izrazu (4.5), iznosi 31 eV za rezonancu na 2006 keV i 34 eV za rezonancu na 2409 keV. Otvor pukotina na analizatorskom magnetu je u ovom slučaju bio malo širi nego za mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka pa je energijska razlučivost snopa lošija u odnosu na vrijednost od 0.06 % postignutu za minimalan otvor pukotina. Stoga se ne može sa sigurnošću reći kolika je bila energijska razlučivost snopa prilikom ovih mjerenja. Napravljen je proračun u kojem je uzet u obzir samo otvor pukotina na izlazu iz analizatorskog magneta [Tad15], ali on nije u potpunosti točan jer do energijskog rasipanja dolazi i uslijed otvora pukotina na ulazu u analizatorski magnet te poslije u samim eksperimentalnim linijama zbog nesavršenosti vakuuma. Taj proračun dao je vrijednost energijske razlučivosti snopa od 0.1 %. Također, u literaturi postoji vidno neslaganje i oko položaja samih rezonanci i oko njenih širina. Stoga nije moguće sa sigurnošću koristiti vrijednosti širina rezonanci za izračun energijske razlučivosti snopa pri danom otvoru pukotina na analizatorskom magnetu. Međutim, kao što će se vidjeti u sljedećem poglavlju ti iznosi nisu neophodni za samo dubinsko profiliranje, već samo za određivanje graničnih mogućnosti dubinske razlučivosti metode. U primjeni rezonantnog dubinskog profiliranja za vrijednosti energija rezonanci uzeti su podaci iz Amsel et al. [Ams98] budući da su one najpreciznije mjerene (*Tablica 4.1.*).

4.3. Primjena: ^{24}Mg implantiran u silicij

Za pokazivanje primjenjivosti PIGE metode za dubinsko profiliranje ^{24}Mg odabrani su uzorci silicija u koje su 180 keV-ski $^{24}Mg^{+}$ ioni implantirani u silicij s dvije doze: $5 \cdot 10^{16}$ atoma/cm^2 (manja doza) i $5 \cdot 10^{17}$ atoma/cm^2 (veća doza). Implantacije su napravljene s 200 keV-skim implanterom na IST/CTN u Lisabonu, Portugal.



Slika 4.5. Raspodjela dosega 180 keV-skih ^{24}Mg iona implantiranih u silicij dobivena SRIM programom [Zie08]. Simulirani srednji doseg ^{24}Mg iona u siliciju je 346.5 nm.

Implantacija 180 keV-skih ^{24}Mg iona u Si simulirana je sa SRIM programom [Zig08] radi dobivanja implantacijskog profila ^{24}Mg (*Slika 4.5.*). Prema simulaciji srednji doseg ^{24}Mg iona u siliciju je 346.5 nm. Kao rezultat simulacije dobiva se datoteka RANGE u kojoj je implantacijska dubina (700 nm) podijeljena na 100 slojeva te je za svaki od njih dana koncentracija ^{24}Mg iona u jedinicama (atom/cm^3)/(atom/cm^2). Kad se te vrijednosti pomnože s implantacijskom dozom dobije se koncentracija ^{24}Mg iona u uobičajenim jedinicama atom/cm^3. Stoga se iz te dubinske koncentracije ^{24}Mg iona može proračunati njihov očekivani atomski udio u siliciju (gustoća Si je oko $5 \cdot 10^{22}$ atoma/cm^3). Tako se za manju implantiranu dozu od $5 \cdot 10^{16}$ atoma/cm^2 dobio atomski udio od 3.5 % ^{24}Mg iona u maksimumu implantacijskog profila, dok je za 10 puta veću dozu taj udio 35 %.

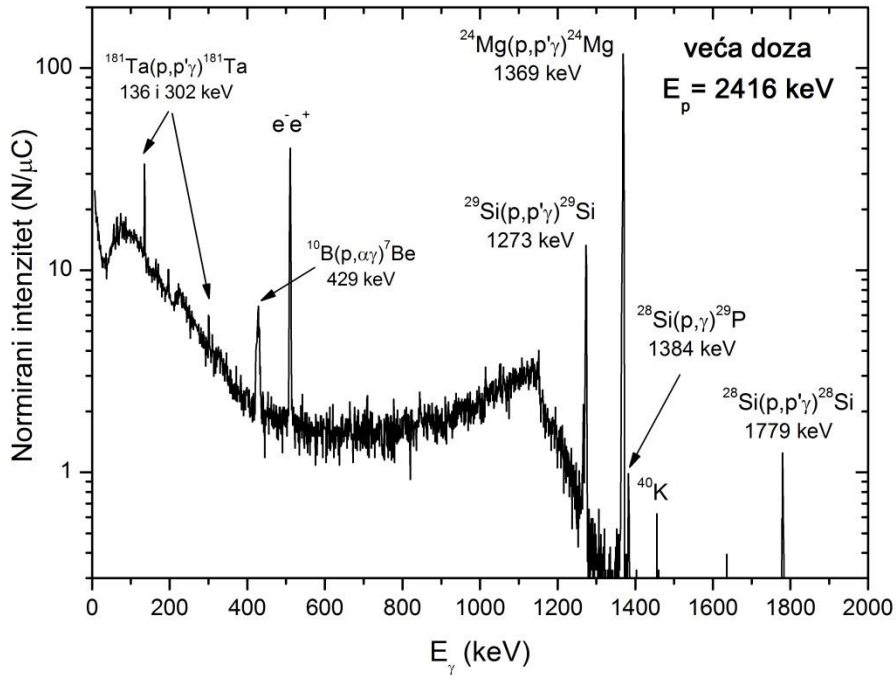
U svrhu dobivanja faktora pretvorbe energijske skale koncentracijskih profila u dubinsku, simulirana dubinska koncentracija ^{24}Mg iona u Si podijeljena je na 8 slojeva, gdje je zadnji sloj čisti Si. Zatim je pomoću SIMNRA programa [May97] koristeći SRIM 2003 zaustavne

moći [Zie08] izračunat gubitak energije upadnog snopa protona u svakom sloju te je tako dobivena srednja vrijednost gubitka energije protona (u jedinicama keV/nm).

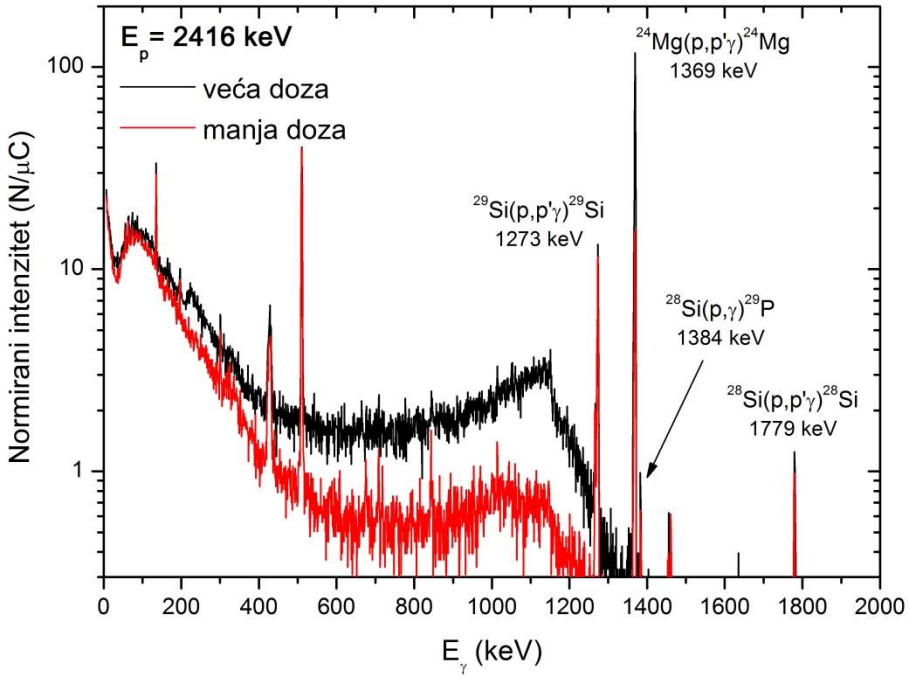
4.3.1. PIGE mjerenja

Dubinsko profiliranje s PIGE metodom izvedeno je u komori za raspršenje u istoj geometriji kao za mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka. Ideja je bila da se pokuša profilirati obje doze implantiranih ^{24}Mg iona korištenjem obje rezonance u udarnom presjeku za ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg reakciju. Prednost korištenja rezonance na 2.01 MeV je to što je prema izmjerenim ekscitacijskim krivuljama uža, a to prema izrazima (4.3) i (4.4) vodi na bolju dubinsku razlučivost. S druge strane, prednost korištenja rezonance na 2.41 MeV je to što ima puno veću snagu pa je prema izrazu (4.1) i daleko efikasnija, odnosna osjetljivija, na manju dozu implantiranog ^{24}Mg.

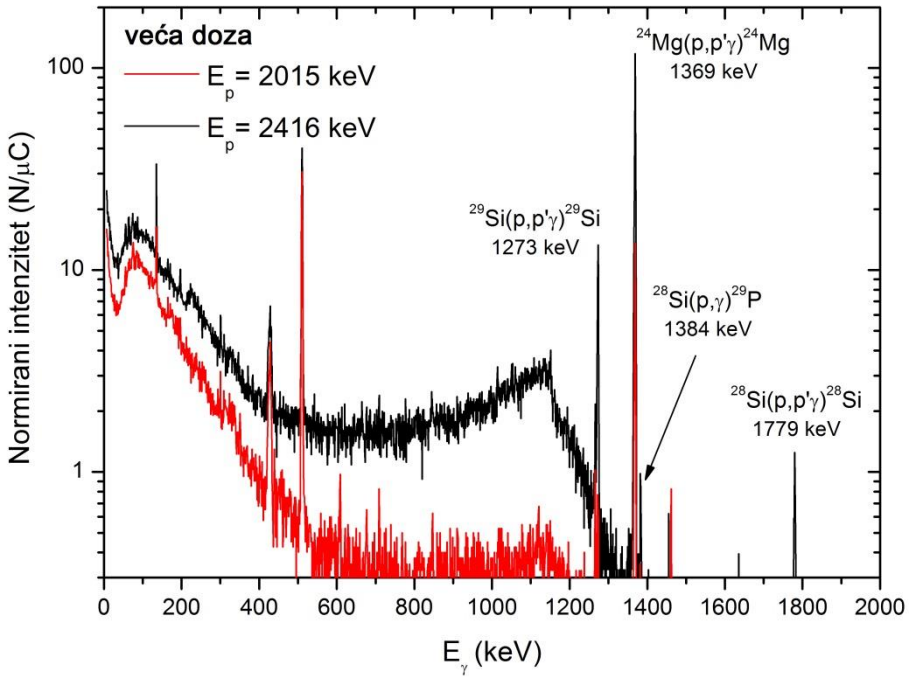
Na *Slici 4.6.* prikazan je gama-spektar Si uzorka implantiranog sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima s većom dozom, a dobiven pobudom protonima energije 2416 keV-a. Označene su gama-linije koje dolaze od izotopa Mg i Si, te od borovih atoma s kojima je dopirana Si pločica i od tantalovih kolimatora koji se nalaze u eksperimentalnoj liniji. Također su označene najintenzivnije gama-linije pozadinskog zračenja: anihilacijska linija na 511 keV-a i linija ^{40}K na 1460.8 keV. *Slika 4.7.* prikazuje usporedbu gama-spektara Si uzoraka implantiranih sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima s većom i manjom dozom, a dobivenih pobudom protonima energije 2416 keV-a. Vidi se da je osnovna razlika među spektrima intenzitet gama-linije na 1369 keV-a iz reakcije ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg uslijed različite koncentracije ^{24}Mg. Uslijed intenzivnijeg vrha pune energije pojavljuje se i intenzivniji comptonski kontinuum na nižoj energiji. Usporedba gama-spektara Si uzoraka implantiranih sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima s većom dozom dobiveni pobudama protonima energije 2015 i 2416 keV-a dana je na *Slici 4.8.* Gama-linija na 1369 keV-a nekoliko je puta intenzivnija za pobudu višom energijom protona budući da je rezonanca na 2.41 MeV nekoliko puta snažnija od one na 2.01 MeV. Također se zbog različite energije pobude vide različiti intenziteti svih gama-linija koje dolaze iz uzorka te je za nižu energiju pobude comptonski kontinuum daleko slabijeg intenziteta.



Slika 4.6. Gama-spektar Si uzorka implantiranog sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima s većom dozom dobiven pobudom protonima energije 2416 keV-a i s naznačenim najintenzivnijim gama-linijama. Osim očekivanih linija od ^{24}Mg i Si, vidi se i linija bora iz Si pločice (p-tip silicija dopiran je s manje od 0.1 % B atoma), te linije Ta koje dolaze od tantalovih kolimatora u eksperimentalnoj liniji.



Slika 4.7. Usporedba gama-spektara Si uzoraka implantiranih sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima s većom i manjom dozom dobiveni pobudom protonima energije 2416 keV-a.

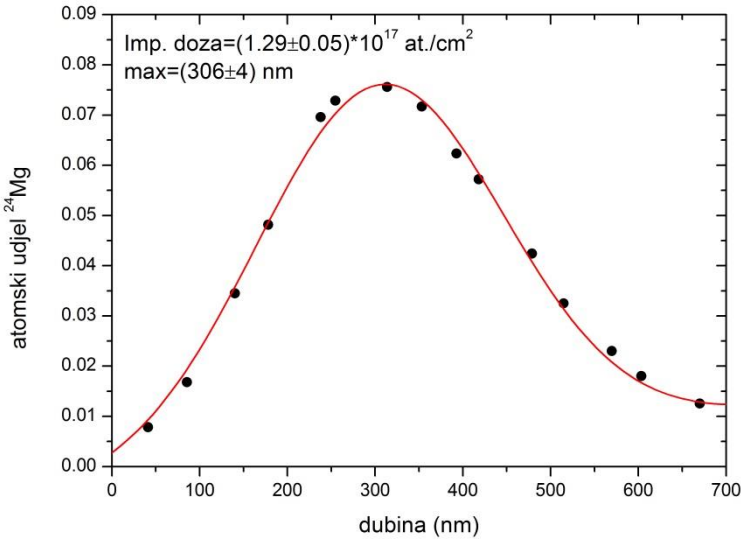


Slika 4.8. Usporedba gama-spektara Si uzoraka implantiranih sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima s većom dozom dobiveni pobudama protonima energije 2015 i 2416 keV-a.

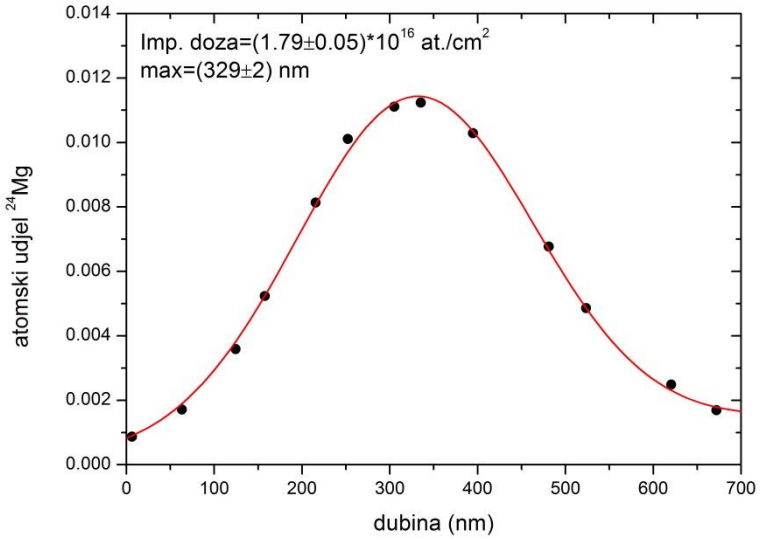
Dubinski profili dobiveni su mjerenjem ovisnosti inteziteta gama-zračenja o energiji upadnog protonskog snopa. Zatim su korištenjem ekscitacijske funkcije (parametra A_2 u *Tablici 4.1.*) intenziteti normirani u svrhu dobivanja atomskog udjela ^{24}Mg u Si. Energijska skala pretvorena je u dubinsku temeljem prije opisanog proračuna gubitka energije u implantiranom profilu i korištenjem energija rezonanci iz Amsel et al. [Ams98] budući da su one najpreciznije izmjerene. Integriranjem dubinskih profila dobivene su ukupne implantacijske doze.

Na *Slikama 4.9.* i *4.10.* prikazani su dubinski profili 180 keV ^{24}Mg implantiranog u Si s većom i manjom dozom, dobiveni rezonantnim dubinskim profiliranjem pomoću rezonance na 2409 keV-a. *Slika 4.11.* prikazuje dubinski profil veće implantacijske doze ^{24}Mg dobiven rezonantnim dubinskim profiliranjem pomoću rezonance na 2006 keV-a. Ta rezonanca na nižoj energije međutim nije bila osjetljiva na manju dozu implantiranog ^{24}Mg u Si. U svim slučajevima može se uočiti kako se dubinski profili ^{24}Mg šire prema dubini zbog energijskog rasipanja snopa protona u uzorku, što kvari dubinsku razlučivost metode. Kod dubinskih profila dobivenih profiliranjem pomoću rezonance na 2409 keV-a asimetrija dubinskih profila je izraženija budući da rezonanca nije u potpunosti izolirana. Stoga je napravljena linearna prilagodba pozadine na kojoj leži dubinski profil, koji je prilagođen na Gaussovu raspodjelu.

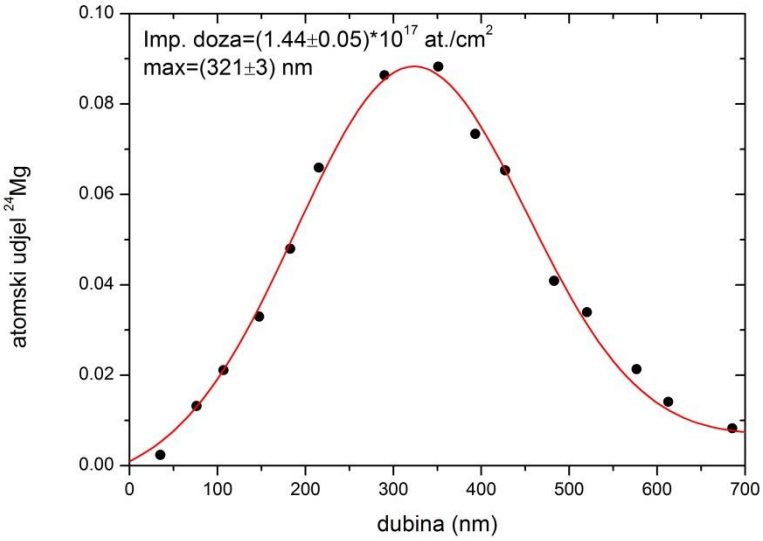
Na slikama su naznačene izračunate implantacijske doze i položaji maksimuma implantacijskog profila dobiveni prilagodbom na Gaussovu raspodjelu. Odmah se može primijetiti da su implantacijske doze 3-4 puta manje u odnosu na one koje su navodno implantirane. Također je implantacijski profil bliže površini u odnosu na simulirani srednji doseg od 346.5 nm. U slučaju dubinskog profiliranja pomoću rezonance na 2409 keV-a dobiven je maksimum implantacijskog profila na (306±4) nm za veću dozu te na (329±2) nm za manju dozu. Dubinsko profiliranje pomoću rezonance na 2006 keV-a daje maksimum implantacijskog profila za veću dozu na (321±3) nm. Najvjerojatniji razlozi zbog kojih su izmjerene manje doze ^{24}Mg iona koje su implantirane bliže površini uzoraka su efekti saturacije doze i erozije površine Si uslijed implantacije velikih doza ^{24}Mg iona. Saturacija doze javlja se zbog toga što se materijal može implantirati samo s nekom konačnom dozom iona (10^{16}-10^{17} at/cm^2 ovisno o vrsti iona koji se implantira i podlozi u koju se implantira). U slučaju implantacije veće doze značajno pada vjerojatnost uhvata iona u podlozi te raste vjerojatnost izbijanja već implantiranih iona i atoma podloge, što vodi na smanjenje implantacijske dubine, tj. pomicanje implantacijskog profila bliže površini [Cza02].



Slika 4.9. Dubinski profil uzorka Si implantiranog sa 180 keV ^{24}Mg s većom dozom dobiven rezonantnim dubinskim profiliranjem pomoću rezonance na 2409 keV-a.



Slika 4.10. Dubinski profil uzorka Si implantiranog sa 180 keV ^{24}Mg s manjom dozom dobiven rezonantnim dubinskim profiliranjem pomoću rezonance na 2409 keV-a.



Slika 4.11. Dubinski profil uzorka Si implantiranog sa 180 keV ^{24}Mg s većom dozom dobiven rezonantnim dubinskim profiliranjem pomoću rezonance na 2006 keV-a.

Na osnovi prikazanih dubinskih profila može se uočiti da je osjetljivost metode rezonantnog dubinskog profiliranja ^{24}Mg u Si s intenzivnijom rezonancom na 2409 keV-a 0.1%, dok je korištenjem slabije rezonance osjetljivost smanjena i iznosi oko 1 %. To je u skladu s očekivanim osjetljivostima za dubinsko profiliranje lakih elementima uz pomoć rezonanci koje vode na emisiju gama-zračenja iz reference [Wan09a].

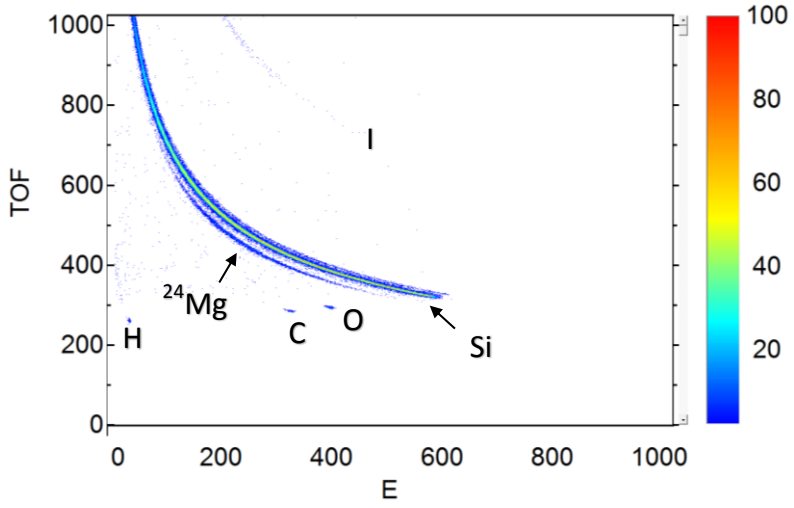
Dubinska razlučivost metode definira se prema izrazu (4.3) kao omjer energijske razlučivosti i zaustavne moći u uzorku koja je izračunata pomoću programa SRIM [Zie08]. Uslijed jako velike izmjerene energijske širine za ekscitacijsku krivulju rezonance na 2409 keV-a (*Slika 4.4.*), za profiliranje pomoću te rezonance dobije se dubinska razlučivost od 235 nm na površini. Međutim, iz samih dubinskih profila vidi se da je razlučivost daleko bolja (< 50 nm) i to u slučaju profiliranja i manje i veće implantacijske doze. Zato se može pretpostaviti da je prilikom mjerenja ekscitacijske krivulje rezonance na 2409 keV-a došlo do promjene ionske optike i ΔE/E omjera, čime se može objasniti prevelika izmjerena širina. Prema izrazu (4.3) dubinska razlučivost za profiliranje s rezonancom na 2006 keV-a iznosi oko 80 nm na površini, iako se iz dubinskog profila razlučivost čini bolja. Stoga se na temelju izmjerenih dubinski profila može zaključiti da obje rezonance imaju usporedivu dubinsku razlučivost, što vodi na usporedivu širinu tih rezonanci, kao što su naveli Amsel et al. [Ams98].

4.3.2. TOF-ERDA mjerenja

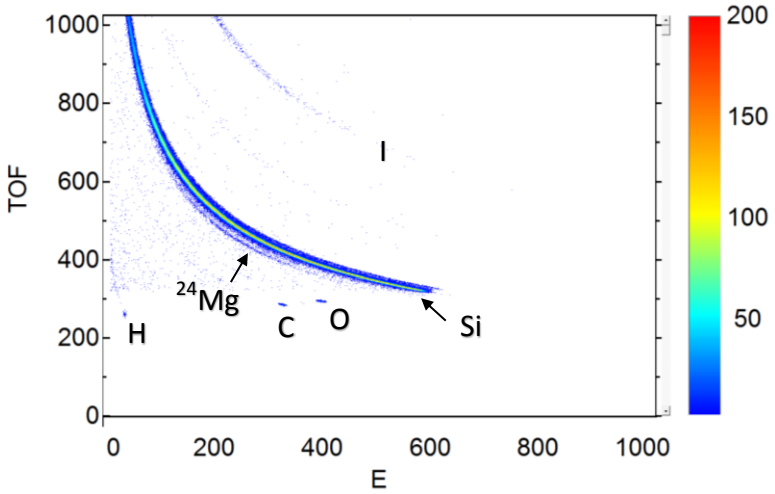
Radi provjere rezultata dobivenih s PIGE dubinskim profiliranjem, napravljena su TOF-ERDA mjerenja s 23 MeV $^{127}I^{6+}$. Kut upada snopa je bio 20° u odnosu na površinu mete, a detektor je smješten na 37.5° u odnosu na smjer snopa. Pomoću programa Potku [Ars14] napravljena je direktna pretvorba spektara u dubinske profile, bez dekonvolucije zbog energijske razlučivosti detektora, energijskog rasipanja i efekta višestrukog raspršenja. Više o TOF-ERDA metodi i korištenom eksperimentalnom postavu može se naći u referencama [Sik08, Sik10].

Slike 4.12. i *4.13.* prikazuju dvodimenzionalne (2D) koincidentne mape kod kojih je na x-osi energija u kanalima, a na y-osi vrijeme proleta u kanalima. Sa slika je vidljivo da su osim po energiji detektirani ioni razdvojeni i po masi. Ujedno se može vidjeti da su uzorci na površini onečišćeni s ugljikom, kisikom i vodikom. Mogući razlozi onečišćenja su ugljikovodici koji se vežu na površinu zbog grijanja uzorka prilikom implantacije, a koji dolaze zbog para ulja iz vakuumskog sistema, te voda koja se uhvati na površinu prilikom manipulacije uzorkom. Kod obrade podataka svaki od elemenata može se posebno izdvojiti i analizirati, pri čemu se energijska skala pretvara u dubinsku te visina spektra u koncentraciju elemenata.

Može se uočiti da na 2D koincidentnoj mapi uzorka implantiranog s manjom dozom (*Slika 4.13.*) veći šum okružuje raspodjelu koncentracije ^{24}Mg po dubini. Iz tog šuma se može procijeniti osjetljivost metode za određivanje ^{24}Mg u Si kao $3\times\sqrt{\text{visina šuma}}$. Tako je procjena za granicu detekcije ^{24}Mg u Si 10^{16} atoma/cm^2, odnosno oko 0.5 %.



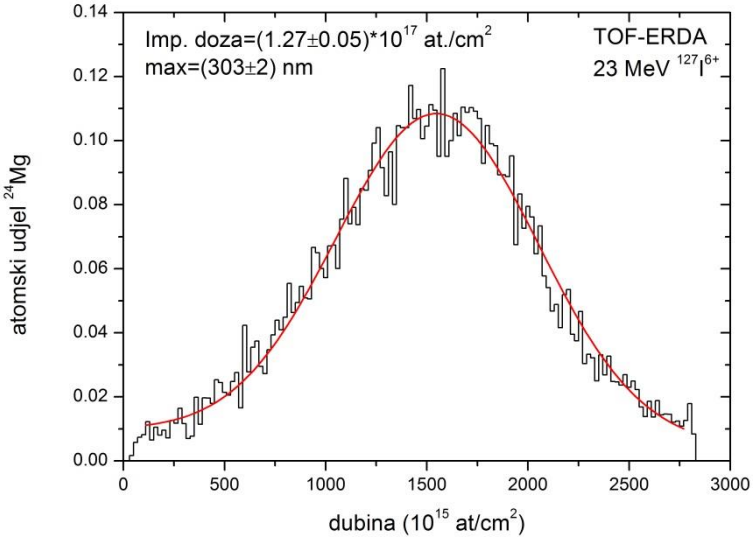
Slika 4.12. 2D koincidenta TOF-ERDA mapa uzorka Si implantiranog sa 180 keV ^{24}Mg s većom dozom. Označeni su izotopi prisutni u analiziranom uzorku.



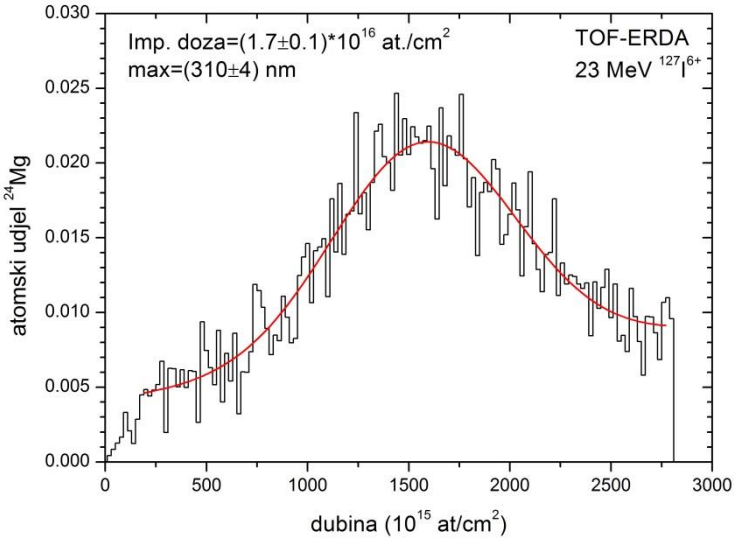
Slika 4.13. 2D koincidenta TOF-ERDA mapa uzorka Si implantiranog sa 180 keV ^{24}Mg s manjom dozom. Označeni su izotopi prisutni u analiziranom uzorku.

Na *Slikama 4.14.* i *4.15.* prikazani su dobiveni dubinski profili te su naznačene izračunate implantacijske doze i položaji maksimuma implantacijskog profila dobiveni prilagodbom na Gaussovu raspodjelu. Pritom je napravljena linearna prilagodba pozadina koja je prisutna zbog šuma koji okružuje ^{24}Mg u 2D koincidentnom spektru. Vidi se da i TOF-ERDA

mjerenja ukazuju na to da su implantirane doze ^{24}Mg iona nekoliko puta manje te da su implantirane bliže površini uzorka. Također se može uočiti da se izračunati iznosi dobro slažu s rezultatima PIGE dubinskog profiliranja. Budući da TOF-ERDA metoda ima lošiju osjetljivost za detekciju ^{24}Mg u Si, razumljivo je malo odstupanje rezultata dobivenih za manju implantacijsku dozu u odnosu na koncentraciju i položaj maksimuma profila dobivenih s PIGE metodom.



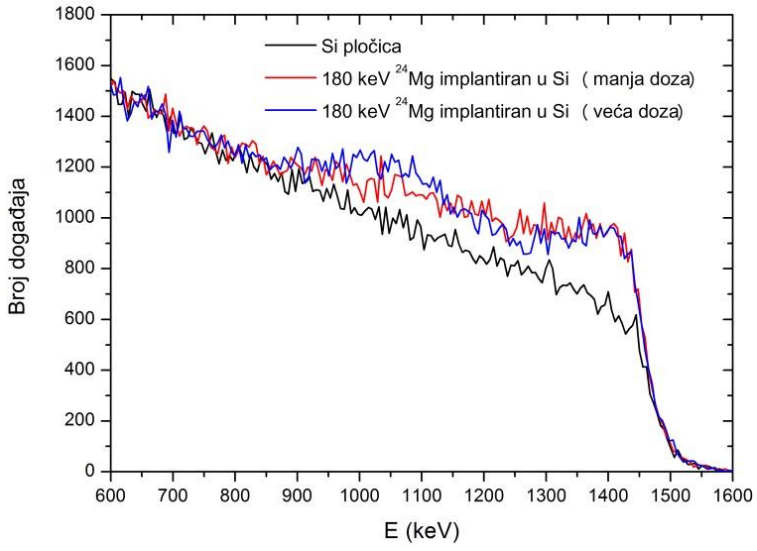
Slika 4.14. Dubinski profil uzorka Si implantiranog sa 180 keV ^{24}Mg s većom dozom dobiven s TOF-ERDA metodom.



Slika 4.15. Dubinski profil uzorka Si implantiranog sa 180 keV ^{24}Mg s manjom dozom dobiven s TOF-ERDA metodom.

4.3.3. Li RBS mjerenja

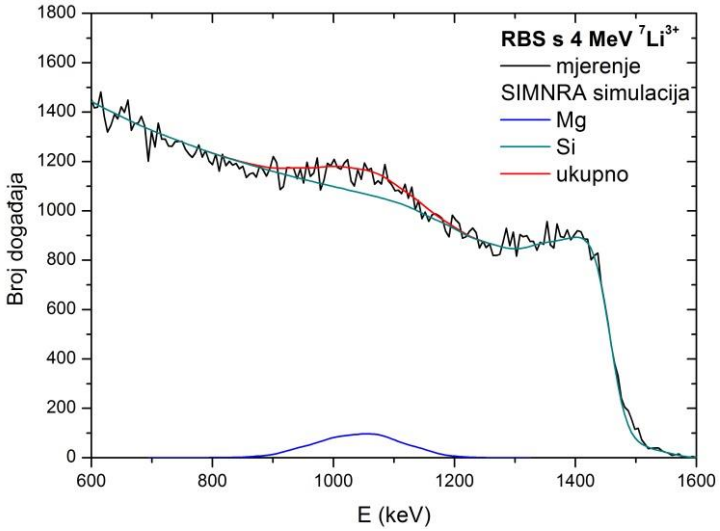
Kod RBS metode prednost korištenja Li kao primarnog snopa u odnosu na protone ili alfa-čestice je veći gubitak energije po jedinici puta što povećava dubinsku razlučljivost. Na *Slici 4.16.* prikazani su RBS spektri dobiveni korištenjem 4 MeV $^{7}Li^{3+}$ iona. Vidi se velika razlika između spektra snimljenog na kristaliničnoj Si pločici te spektara snimljenih na uzorcima u kojima je 180 keV ^{24}Mg implantiran u Si s većom (~10^{17}) i manjom (~10^{16}) dozom. Ta razlika je najvjerojatnije efekt djelomičnog ionskog kanaliranja (eng. *channelling*) koji je prisutan u spektru kristaliničnog Si kao smanjenje broja događaja u visokoenergijskom dijelu spektra (pri površini uzorka) zbog toga što postoji velika šansa da se ioni gibaju duž kristalne osi umjesto da se raspršе na atomima Si u kristalnoj rešetci. S druge strane, spektri uzoraka Si implantiranih s ^{24}Mg pokazuju izostanak efekta ionskog kanaliranja, što je i očekivano budući da se radi o prilično velikim implantacijskim dozama pa je Si tijekom implantacije amorfiziran.



Slika 4.16. RBS spektri dobiveni pomoću snopa 4 MeV $^{7}Li^{3+}$ iona na uzorcima Si implantiranih s dvije različite doze sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima te na pločici kristaliničnog Si.

Pretpostavljajući da su udarni presjeci za elastično raspršenje 4 MeV $^{7}Li^{3+}$ iona u stražnje kuteve rutherfordski na svim elementima u uzorku, pomoću SIMNRA programa [May97] simulirani su izmjereni RBS spektri. Implantirani ^{24}Mg vidljiv je uz pomoć ove metode samo u slučaju veće implantacijske doze (*Slika 4.17.*) pa se osjetljivost metode na detekciju ^{24}Mg u Si matrici može procijeniti na 10^{17} atoma/cm^2. Iz RBS mjerenja dosta je teško točno

izračunati točan iznos implantirane doze uslijed slabe osjetljivosti na implantirani ^{24}Mg u Si matrici pa stoga i velike nepreciznosti prilagodbe simuliranog spektra na eksperimentalne podatke (5-10 %). Može se ocijeniti da je implantirana doza ~ $2 \cdot 10^{17}$ atoma/cm^2 te je isto pomaknuta prema površini u odnosu na dubinsku raspodjelu dobivenu SRIM simulacijom [Zie08].



Slika 4.17. RBS spekar dobiven pomoću snopa 4 MeV-skih $^{7}Li^{3+}$ iona na uzorku Si implantiranog sa 180 keV-skim ^{24}Mg ionima (velika doza).

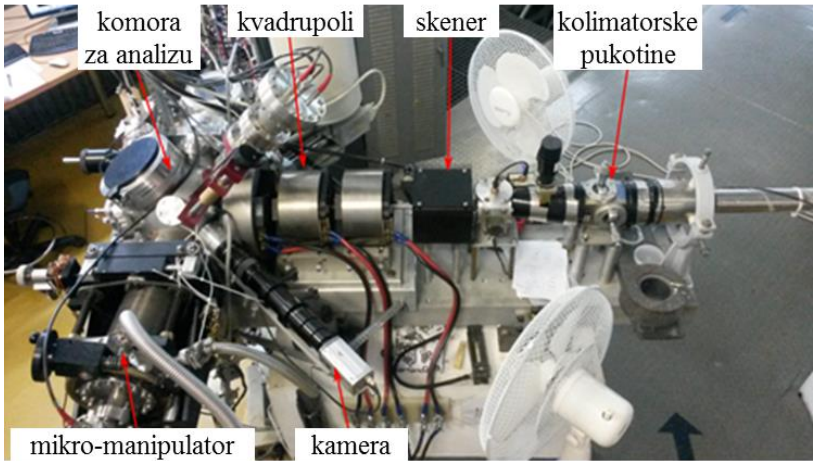
5. TRODIMENZIONALNO PROFILIRANJE NA IONSKOJ MIKROPROBI

U prošlom poglavlju pokazana je mogućnost dubinskog profiliranja ^{24}Mg korištenjem snažne rezonance na 2409 keV u ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg reakciji. Postignuta je osjetljivost od 0.1 % za detekciju izotopa ^{24}Mg koji u prirodnom magneziju ima udjel od 78.99 %. Stoga je uočena prilika da se jakost te rezonance iskoristi tako da se za pobudu koristi snop protona fokusiran na mikrometarske dimenzije pomoću ionske mikroprobe. Tako bi se osim dubinske raspodjele mogla odrediti i prostorna raspodjela promatranog izotopa. Drugim riječima, postiglo bi se trodimenzionalno (3D) profiliranje magnezija. Slično je već pokazano za izotope drugih lakih elemenata [Ter99], ali još nikada nije korišteno za profiliranje magnezija. Ova metoda je posebno zanimljiva za geološke primjene budući da se magnezij nalazi u velikom broju minerala.

5.1. Ionska mikroproba

Ionska mikroproba je uređaj koji se sastoji od sustava magnetskih kvadrupola i pukotina, a služi za fokusiranje i skeniranje ionskog snopa. Magnetski kvadrupol ima svojstvo da fokusira ionski snop u jednoj osi, a defokusira u drugoj. Međutim sustav više kvadrupola, s posebnim konfiguracijama polariteta magnetskih polova, ponaša se kao jedna leća čiji je efekt fokusiranje ionskog snopa u obje osi.

Na *Slici 5.1.* prikazana je ionska mikroproba u Laboratoriju za interakcije ionskih snopova. Za fokusiranje protona korišten je sustav kolimatorskih pukotina i tripletna konfiguracija kvadrupola u kojoj prva dva kvadrupola fokusiraju u istoj, a treći kvadrupol u suprotnoj osi. Skeniranje snopa omogućio je magnetski deflektor koji se kontrolira programom za prikupljanje podataka SPECTOR [Bog02]. Na kraju linije nalazi se komora za raspršenje opremljena s nekoliko detektora za IBA metode. Na desnoj strani komore nalazi se mikro-manipulator na koji se učvršćuje nosač uzorka i koji ima mogućnost pomicanja uzorka u sve tri osi. Tu je i kamera povezana na mikroskop koja služi za kontrolu postavljanja uzorka u žarišnoj ravnini sustava kvadrupolnih leća. Više o ionskoj mikroprobi može se naći u [Jak07].



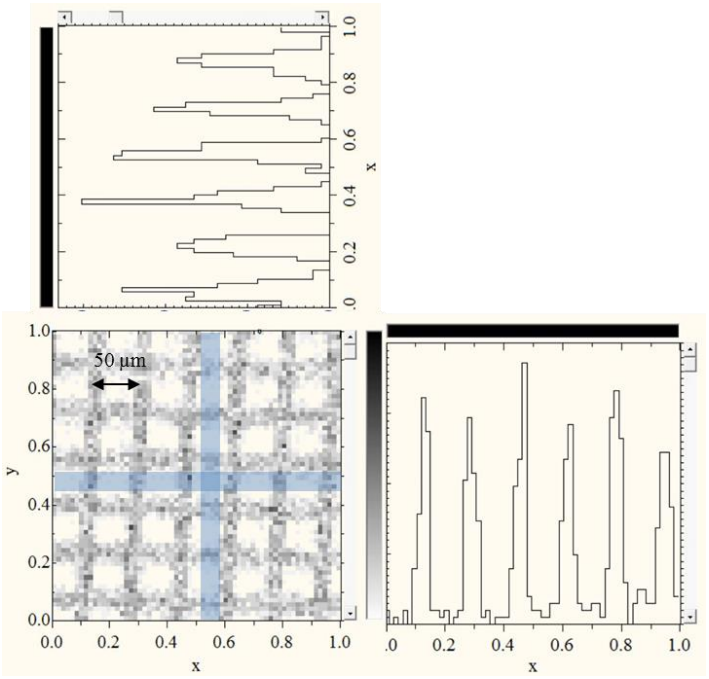
Slika 5.1. Fotografija ionske mikroprobe u Laboratoriju za interakcije ionskih snopova s naznačenim najvažnijim dijelovima.

5.1.1. Optimizacija postava

Za primjenu PIGE metode na mikroprobi bila je potrebna optimizacija eksperimentalnog postava. U izrazu (4.1) mogu se uočiti doprinosi efikasnosti dubinskog profiliranja na koje se može utjecati s promjenom eksperimentalnog postava. To su struja snopa, apsolutna efikasnost detektora, kut na kojem je postavljen detektor (zbog neizotropne kutne raspodjele gama-zračenja) te vrijeme mjerenja. Budući da je za 3D profiliranje magnezija odabrana reakcija iz koje se emitira gama-zračenje na 1369 keV, a to je energija na kojoj je efikasnost detekcije već dosta smanjena, moralo se maksimalno optimizirati svaki od prije navedenih doprinosa.

U standardnim IBA mjerenjima na mikroprobi snop je fokusiran na prostorne dimenzije od 1x1 μm^2 ili manje, s tipičnim strujama do 100 pA. Međutim, zbog malih apsolutnih vrijednosti udarnih presjeka za emisiju karakterističnog gama-zračenja struja snopa na mikroprobi za ovu primjenu treba biti što veća. Nažalost, veće struje na mikroprobi moguće je dobiti samo za jako otvorine pukotine i na ulazu i na izlazu iz analizatorskog magneta što znatno smanjuje energijsku razlučivost snopa. To pak vodi na znatno smanjenje razlučivosti dubinskog profiliranja. Također, dobivanje struje snopa od nekoliko nA u komori mikroprobe zahtijeva da i objektne i kolimatorske pukotine budu jako otvorene. Posljedica toga je nemogućnost optimalnog fokusiranja snopa što vodi na smanjenje lateralne razlučivosti. Na

Slici 5.2. pomoću PIXE metode prikazana je dvodimenzionalna (2D) mapa raspodjele bakra koja je dobivena skeniranjem preko bakrene mrežice koja ima period ponavljanja od 50 μm. Na osnovu toga se može odrediti veličina skeniranog područja, a iz projekcija na x i y osi razlučivost snopa u tim dimenzijama. Tako je za oko 1 nA struje u komori snop fokusiran na otprilike 10-15 μm u x i y osi.



Slika 5.2. 64x64 piksela dvodimenzionalna PIXE Cu mapa s projekcijama na x i y osi. Mapa se dobila skeniranjem snopa preko Cu mrežice s periodom ponavljanja od 50 μm. Na temelju toga se odredila veličina vidnog polja od 300x300 μm^2.

Nadalje, od posebne važnosti bilo je što više približiti gama-detektor uzorku radi povećanja apsolutne efikasnosti detekcije gama-zračenja. Zbog geometrije postojeće komore ionske mikroprobe, detektor nije bilo moguće dovoljno približiti uzorku bez dodatnih nadogradnji. Pronađeno je optimalno rješenje da se izradi aluminijska čaša za detektor koja bi omogućila maksimalno približavanje detektora meti s tim da sam detektor ostane i dalje u zraku. Gama-zračenje od 1369 keV-a kao posljedicu prolaska kroz 5 mm debelo dno čaše, tj. 5 mm aluminija, imat će smanjen intenzitet za manje od 7 %. S druge strane, maksimalno približavanje detektora uzorku ima za posljedicu povećanje prostornog kuta, tj. povećanje apsolutne efikasnosti detekcije.

Zbog same geometrije postojeće komore ionske mikroprobe, tj. nedostatka slobodnih i dovoljno velikih otvora na komori koji se nalaze u horizontalnoj ravnini, HPGe detektor nije

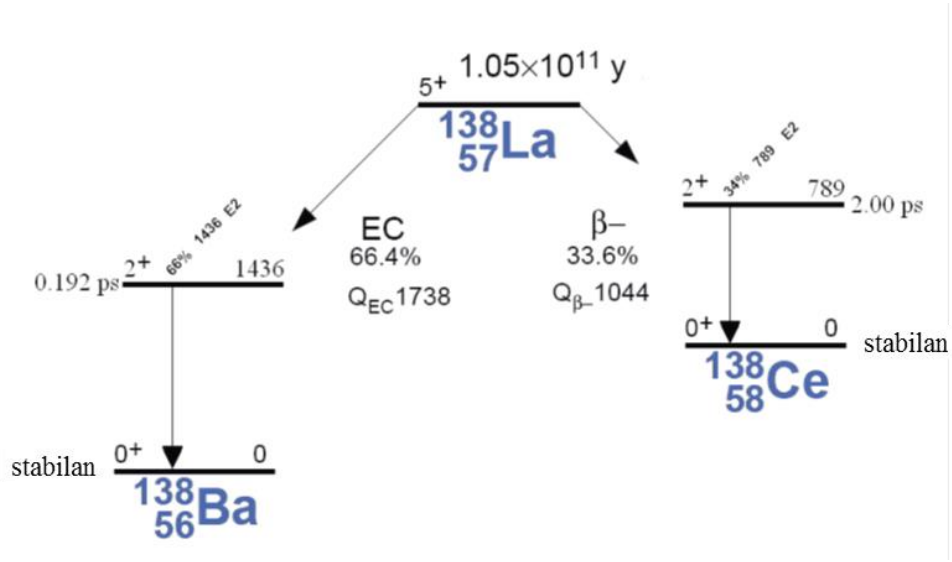
bilo jednostavno dovoljno približiti uzorku. To je, osim upotrebe aluminijske čaše za uvođenje detektora u komoru, zahtijevalo i djelomično rastavljanje same komore. Scintilacijski detektor bilo je daleko lakše uvesti u komoru jer su se zahvaljujući njegovom kompaktnom dizajnu mogli koristiti i otvori pod kutem u odnosu na horizontalnu ravninu komore. Dodatna prednost korištenja scintilacijskog detektora je daleko veća efikasnost za detekciju gama-zračenja u odnosu na HPGe detektor. Međutim, njegova upotreba također povlači i daleko lošiju energijsku razlučivost i probleme s pozadinom o kojima će biti riječi u sljedećem poglavlju.

Optimizirani eksperimentalni postavi na ionskoj mikroprobi za oba detektora te primjena metode za 3D profiliranje magnezija u mineralu bit će prikazani u sljedećim poglavljima.

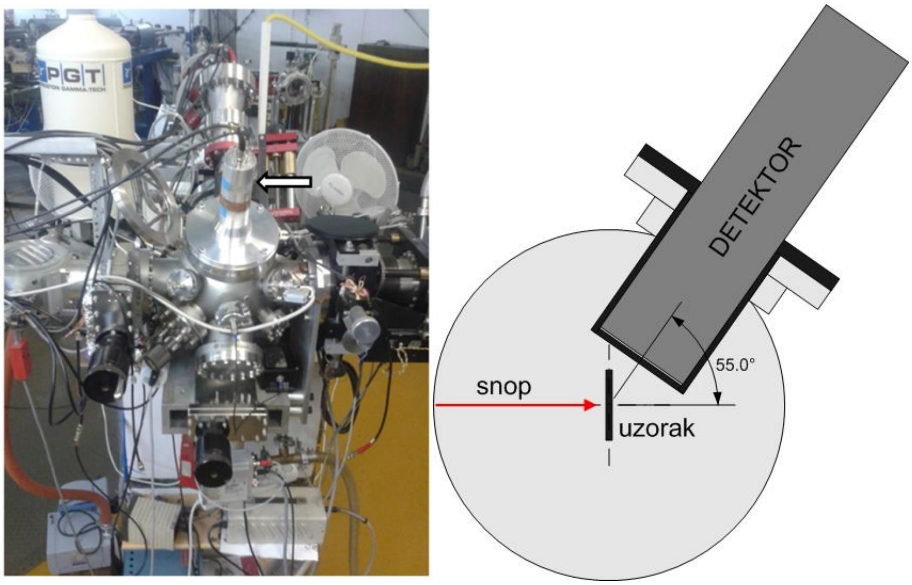
5.2. Postav sa scintilacijskim detektorom

Za mjerenja je korišten scintilacijski detektor s anorganskim kristalom nove generacije $LaBr_3$:Ce, proizvođača Saint-Gobain Crystals pod imenom BrilLanCe^{TM} 380 [B380]. Integrirani detektor ima kristal promjera 3" i dužine 3" (3"×3") koji je spojen na fotomultiplikator promjera 3" i negativnog napona (-950 V) te ima ugrađeno predpojačalo. Kako rendgensko zračenje nižih energija, kao i nabijene čestice, ne bi stvarale šum u detektoru, detektor je oklopljen tankim slojem aluminija. Karakteristike ovog scintilatora su velik prinos svjetlosti (1.6 puta veći nego za NaI(Tl)), izvrsna energijska razlučivost u usporedbi s drugim scintilacijskim materijalima (~ 2.2 % za detekciju gama-zračenja na 1332 keV iz ^{60}Co izvora), brz odziv (10 puta brži od NaI(Tl)) te izvrsna linearnost. Uslijed velike gustoće (5.08 g/cm^3), ovaj detektor ima veliku relativnu efikasnost od 143 %. Nažalost, $LaBr_3$:Ce detektor ima prirodnu radioaktivnost zbog prisutnosti radioizotopa ^{138}La koji je u prirodnom lantanu zastupljen s udjelom od 0.09 %. Kao posljedica raspada prikazanih na *Slici 5.3.*, u gama-spektru dolazi do pojave više pozadinskih vrhova te beta-kontinuuma.

Eksperimentalni postav sa scintilacijskim detektorom na ionskoj mikroprobi prikazan je na *Slici 5.4a.* Aluminijska čaša postavljena je na gornji otvor mikroprobe pod kutem od 55º u odnosu na smjer snopa te je u nju uveden scintilacijski detektor (*Slika 5.4b*).



Slika 5.3. Shematski prikaz raspada ^{138}La koji se elektronskim uhvatom raspada na pobuđeno stanje ^{138}Ba (66.4 %), gdje se pri prijelazu u osnovno stanje emitira gama-zračenje na 1436 keV, i β^- raspadom na pobuđeno stanje ^{138}Ce, gdje se pri prijelazu u osnovno stanje emitira gama-zračenje na 789 keV [Fir96].

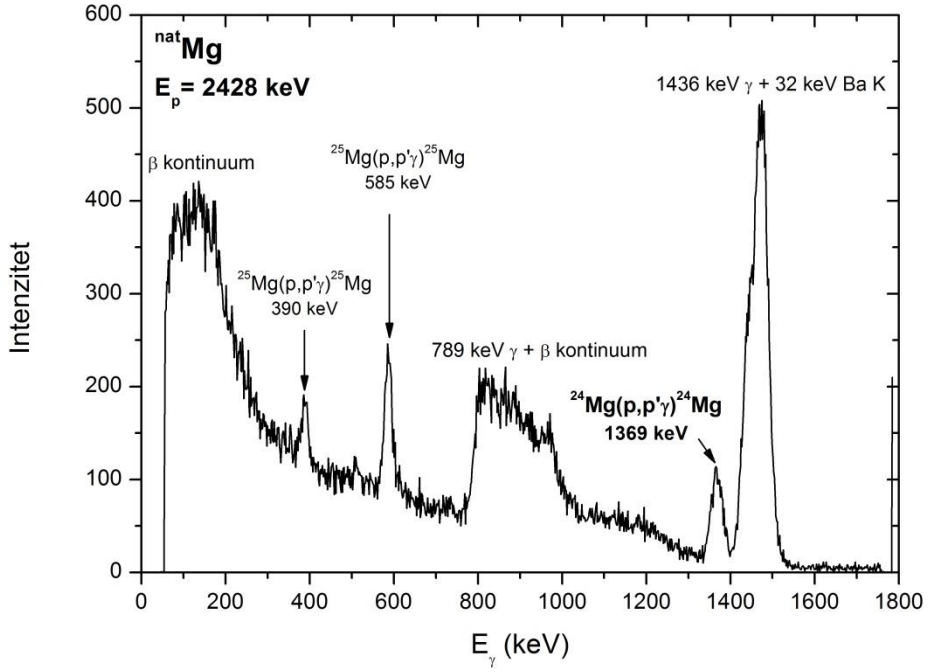


Slika 5.4. (a) Fotografija postava na mikroprobi sa $LaBr_3$:Ce scintilacijskim detektorom (označenim sa strelicom). *(b)* Shematski prikaz unutrašnjosti komore za dani postav. Udaljenost između uzorka i detektora je 3 cm.

Budući da su, kao što je već spomenuto, pukotine prije i poslije analizatorskog magneta bile jako otvorene, napravljena su mjerenja na debeloj meti prirodnog Mg kako bi se iz

ekscitacijske funkcije dobila informacija o energijskoj širini, tj. o razlučivosti dubinskog profiliranja.

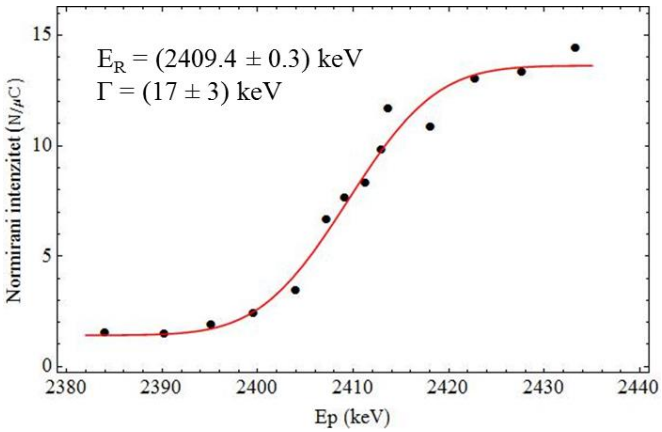
Na *Slici 5.5.* prikazan je gama-spektar prirodnog Mg snimljen s $LaBr_3$:Ce scintilacijskim detektorom s pobudom protonima energije 2428 keV-a. Intrinsična pozadina koja dolazi od detektora prisutna je skoro u cijelom gama-spektru. Na niskim energijama do 255 keV-a vidi se beta-kontinuum od ^{138}La raspada na ^{138}Ce u kojem je gama-zračenje energije 789 keV-a emitirano iz detektorskog materijala. Od 255 do 755 keV-a prisutan je comptonski kontinuum od gama-zračenja na energijama 789 i 1436 keV-a. Gama-zračenje na 789 keV-a emitirano je istovremeno s beta-zračenjem pa zajedno tvore kontinuum koji završava malo iznad energije od 1 MeV-a. Na kraju, vidi se izrazito intenzivna gama-linija na 1436 keV-a koja je pomaknuta na višu energiju zbog istovremenog uhvata Ba K rendgenskoga zračenja energije 32 keV-a koje se emitira uslijed popunjavanja K ljuske elektronskim uhvatom. Proširenje vrha s niskoenergijske strane odgovara pomaku gama-linije na 1436 keV-a zbog istovremenog uhvata Ba L rendgenskoga zračenja energije 5 keV-a koje se emitira uslijed popunjavanja L ljuske elektronskim uhvatom.



Slika 5.5. Gama-spektar snimljen na debeloj meti prirodnog Mg s $LaBr_3$:Ce scintilacijskim detektorom i pobudom protonima energije 2428 keV-a.

Izmjereni su intenziteti gama-zračenja u ovisnosti o energiji protona te je na *Slici 5.6.* prikazana prilagodba na funkciju greške koja je dana formulom (3.2). Prilagodbom je

dobivena energija rezonance od (2409.4 ± 0.3) keV-a što je u skladu s vrijednosti od 2409 keV-a iz Amsel et al. [Ams98].

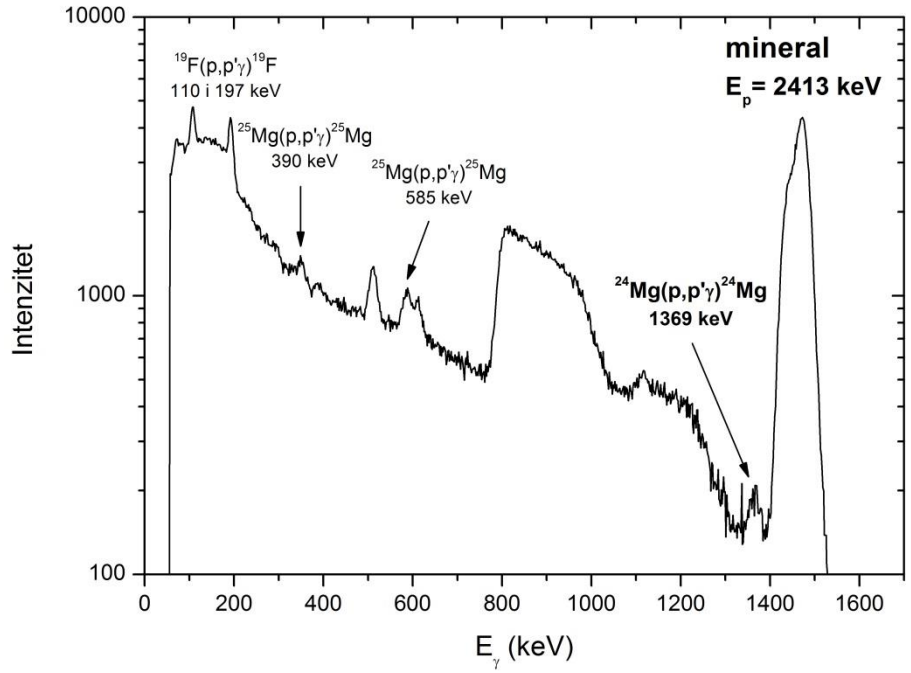


Slika 5.6. Ekscitacijska krivulja rezonance na 2409 keV-a u $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakciji i rezultati prilagodbe na Erf funkciju, izmjerena na mikroprobi s $LaBr_3$:Ce scintilacijskim detektorom.

Koristeći dobivenu energijsku širinu i iznos zaustavne moći koja se za dani uzorak može izračunati pomoću programa SRIM [Zie08], iz izraza (4.3) može se dobiti razlučivost dubinskog profiliranja na mikroprobi pomoću rezonance na 2409 keV-a.

5.2.1. Trodimenzionalno profiliranje ^{24}Mg u mineralu

Primjenjivost PIGE metode za 3D profiliranje ^{24}Mg na ionskoj mikroprobi prikazana je na primjeru analize minerala sastavljenog od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2). Uzorak je iz ležišta magnezita i talka Gemerská Poloma u Slovačkoj [Pet07]. *Slika 5.7.* prikazuje gama-spektar tog minerala snimljen s $LaBr_3$:Ce scintilacijskim detektorom i pobudom protonima energije 2413 keV-a, što odgovara dubini od oko 100 nm. Unatoč dugom vremenu prikupljanja (2000 s) i struji snopa preko 1 nA izbroj od karakterističnog gama-zračenja na 1369 keV-a bio je neusporedivo manji u odnosu na izbroj intrinsičnog zračenja detektora. Stoga, 2D mapa prikupljenih događaja nije pokazivala nikakvu strukturu vezanu za raspodjelu Mg, tj. za raspodjelu talka i pirita u mineralu. Snimljen je i spektar na drugoj dubini (~3 μm ispod površine) s pobudom protonima energije od 2493 keV, ali opet bez dobivanja smislene prostorne raspodjele Mg.

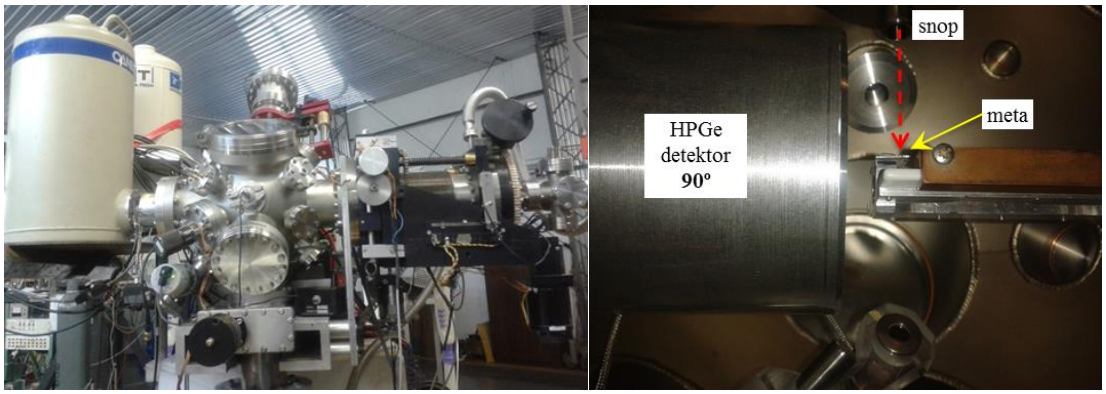


Slika 5.7. Gama-spektar minerala sastavljenog od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2) snimljen s $LaBr_3$:Ce scintilacijskim detektorom i pobudom protonima energije 2413 keV-a.

S obzirom na uočenu slabu osjetljivost ovog postava za 3D profiliranje ^{24}Mg te nemogućnost da se poveća efikasnost detekcije, morala se poboljšati energijska razlučivost (smanjiti šum). Stoga se napravio alternativni postav u kojem se za detekciju gama-zračenja koristio HPGe detektor. Iako je njegova efikasnost detekcije lošija, zbog znatno bolje energijske razlučivosti gama-vrhovi su naglašeni u spektru budući da je njihova širina vrlo mala.

5.3. Postav s HPGe detektorom

Kao što je već rečeno, postav s HPGe detektorom zahtjevao je djelomično rastavljanje komore, tj. micanje predkomore za stavljanje uzoraka u mikroprobu (*Slika 5.8.lijevo*). Na taj način, detektor se približio uzorku na udaljenost od samo 1.5 cm što je znatno povećalo prostorni kut te efikasnost detekcije gama-zračenja.

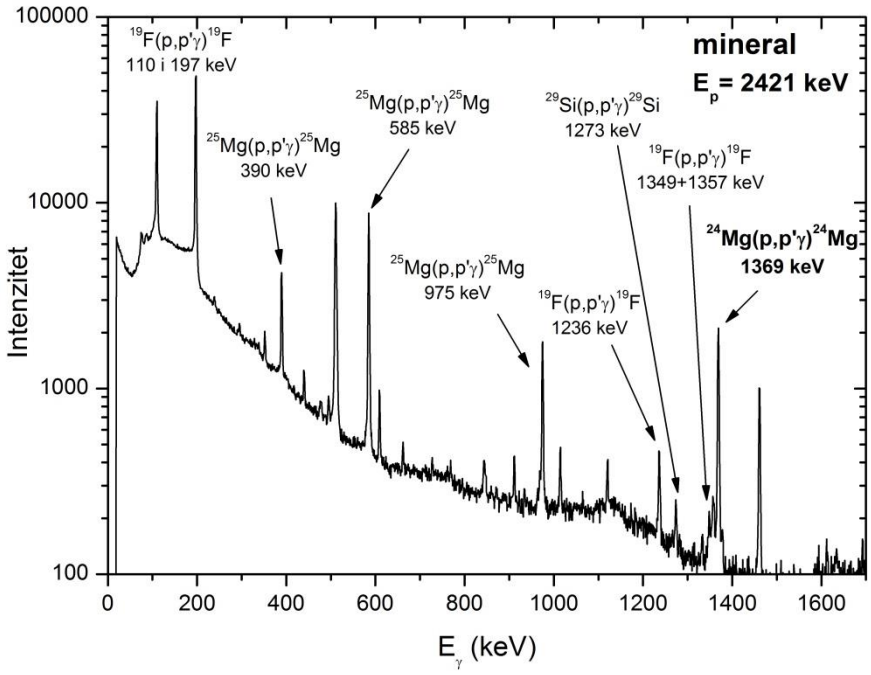


Slika 5.8. (lijevo) Fotografija postava na mikroprobi s HPGe detektorom koji je postavljen na mjesto predkomore za stavljanje uzoraka u mikroprobu. *(desno)* Shematski prikaz unutrašnjosti komore za dani postav. Udaljenost između uzorka i detektora je 1.5 cm.

5.3.1. Trodimenzionalno profiliranje ^{24}Mg u mineralu

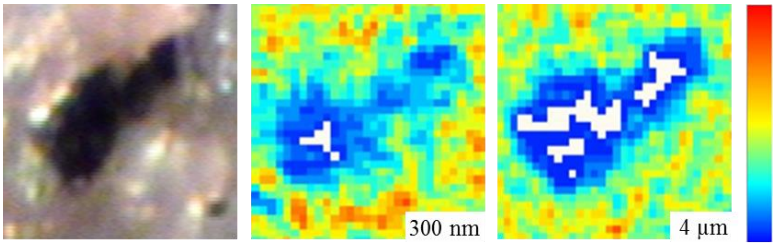
Primjenjivost 3D profiliranja ^{24}Mg na ionskoj mikroprobi, uz upotrebu poluvodičkog detektora gama-zračenja, također je prikazana na mineralu sastavljenom od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2). Na *Slici 5.9.* prikazan je gama-spektar tog minerala snimljen s HPGe detektorom i pobudom protonima energije 2421 keV-a, a što odgovara dubini od oko 300 nm. Sličan spektar dobiven je i s pobudom protonima energije 2530 keV-a, tj. na dubini od oko 4 μm. Spekri su snimani u prosjeku po 10000 s (3 sata) pri struji od 1 nA te je za to vrijeme skupljeno oko 10000 događaja u gama-vrhu na 1369 keV-a.

U gama-spektru na *Slici 5.9.* s lijeve strane vrha ^{24}Mg na 1369 keV-a vide se bliske gama-linije fluora na 1349+1357 keV-a. Zbog dobre razlučivosti HPGe detektora te se gama-linije razdvajaju, dok su u gama-spektru snimljenim sa scintilacijskim detektorom sve upadale u isti vrh.



Slika 5.9. Gama-spektar minerala sastavljenog od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2) snimljen s HPGe detektorom i pobudom protonima energije 2421 keV-a.

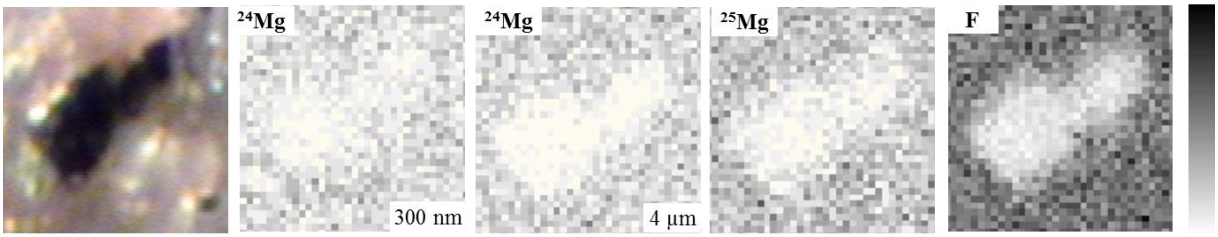
Za razliku od mjerenja sa scintilacijskim detektorom, a zbog bitno nižeg šuma, prilikom mjerenja s HPGe detektorom na 2D mapi raspodjele ^{24}Mg vrlo brzo se počela javljati struktura koja je odgovarala raspodjeli talka i pirita u mineralu. 2D mape snimane su u razlučivosti 64x64 piksela da bi se smanjila statistička nepouzdanost i zbog sporog izbroja događaja. Na *Slici 5.10.* prikazane su 100x100 μm^2 2D mape raspodjele ^{24}Mg na dvije dubine, 300 nm i 4μm ispod površine uzorka.



Slika 5.10. (lijevo) Fotografija površine minerala sastavljenog od matrice talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) sa zrnom pirita (FeS_2) u sredini. *(sredina)* 2D mapa raspodjele ^{24}Mg na dubini od oko 300 nm i *(desno)* 4 μm ispod površine uzorka. Veličina prikazanih vidnih polja je oko 100x100 μm^2. Plava boja prikazuje minimalnu, a crvena maksimalnu koncentraciju ^{24}Mg.

Usporedbe radi, važno je napomenuti da 2D PIXE mapa Mg Kα daje raspodjelu Mg samo za prvih par μm. Proračunom se dobije da s dubine od 4 μm do površine uzorka dolazi samo oko 10 % emitiranog rendgenskoga zračenja Mg energije 1.254 keV. S druge strane, prikazanom metodom se može dobiti koncentracija Mg iz znatno većeg volumena uzorka.

Na *Slici 5.11.* prikazane su 2D mape raspodjele ^{24}Mg na dvije dubine te 2D mape raspodjele ^{25}Mg i F. Informacija o koncentraciji izotopa ^{25}Mg i F dolazi iz cijelog analiziranog volumena uzorka, tj. kao intenzitet gama-zračenja na debeloj meti, pa je ta detektirana koncentracija u biti rezultat integracije po cijeloj dubini do dosega snopa u uzorku (za talk je to ~ 50 μm) u ovisnosti o diferencijalnom udarnom presjeku za promatranu gama-liniju. 2D mape raspodjele ^{25}Mg i F dobivene su iz gama-linija na 585 i 110 keV-a koje imaju izotropnu kutnu raspodjelu.



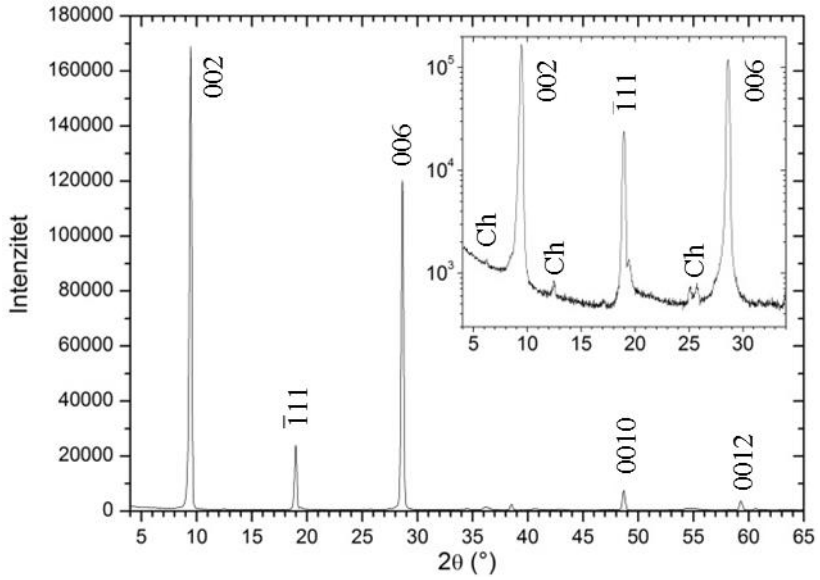
Slika 5.11. Prikazana je fotografija površine minerala sastavljenog od matrice talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) sa zrnom pirita (FeS_2) u sredini. S lijeva na desno prikazane su 2D mape raspodjele ^{24}Mg na dubini od oko 300 nm i 4 μm ispod površine uzorka te mape raspodjele ^{25}Mg i F iz cijelog analiziranog volumena uzorka. Veličina prikazanih vidnih polja je oko 100x100 μm^2. Bijela boja prikazuje minimalnu, a crna maksimalnu koncentraciju izotopa.

Tako se je pokazala mogućnost trodimenzionalnog profiliranja magnezija u mineralu sastavljenom od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2) pomoću HPGe detektora i s pobudom fokusiranim snopom protona različitih energija. Dubinska razlučivost profiliranja ^{24}Mg u talka je ~ 0.5 μm pri površini i budući da se kvari s dubinom zbog energijskog rasipanja, na dubini od 4 μm ispod površine uzorka iznosi oko 1 μm. Prostorna razlučivost prikazane metode je, kao što je prije rečeno, otprilike 10-15 μm i u x i u y smjeru.

5.3.2. Analiza fluora u talku

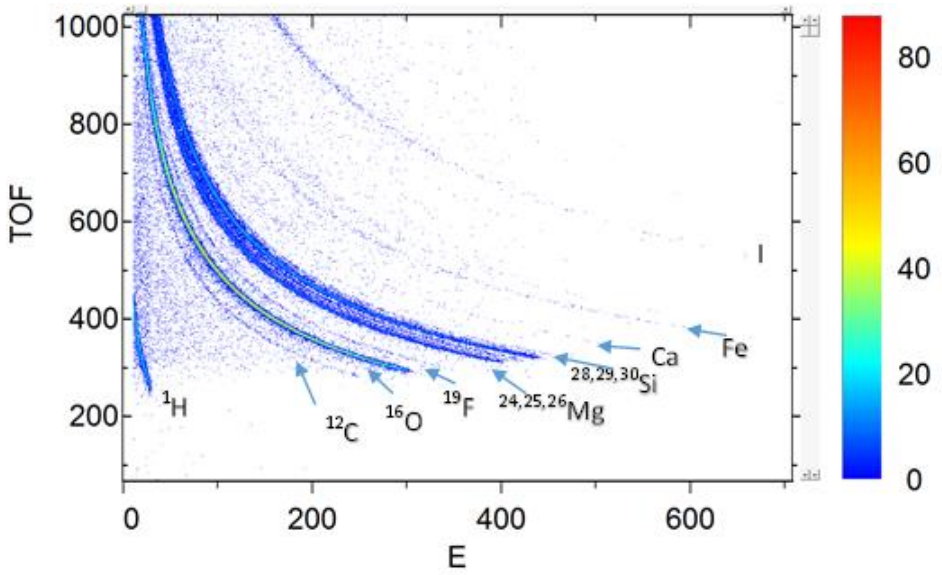
Kao što je već napomenuto, prednost prikazane metode je i u tome što, istovremeno uz 3D profililiranje izotopa pomoću rezonantne nuklearne reakcije, daje informacije i o 2D raspodjeli izotopa iz drugih nerezonantnih nuklearnih reakcija. Tako je u analiziranom uzorku minerala detektiran fluor koji se uobičajeno analizira s PIGE metodom. Uslijed jako intenzivnih gama-zraka na 110 i 197 keV-a analiza fluora je moguća za velik raspon energija pobude protonima. Fluor se nije očekivao u ovom mineralu i očigledno nije primjesa nekog drugog materijala (npr. fluorita) zbog homogene raspodjele koja odgovara raspodjeli Mg u talku. Također, da je primjesa nekog drugog minerala onda bi se vidjeli i drugi elementi (u slučaju da je fluorit vidjela bi se znatna koncentracija Ca). Stoga se pretpostavilo da je najvjerojatnije došlo do smještanja F na mjesto OH skupine kao njezina izomorfna zamjena [Ros68].

Radi provjere napravljena je analiza difrakcijom rendgenskoga zračenja na prahu na Mineraloško-petrografskom zavodu Geološkog odsjeka Prorodoslovno-matematičkog fakulteta Sveučilišta u Zagrebu, budući da je to osnovna metoda fazne analize u istraživanju minerala [Whi96]. Na *Slici 5.12.* prikazan je dobiveni spektar u kojem svi intenzivniji difrakcijski maksimumi pripadaju fazi talka, a oni koji pripadaju ostalim fazama (kloritu) jako su mali.



Slika 5.12. Prikazan je difrakcijski dijagram talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$). Označene su najintenzivnije mrežne ravnine talka te se u umetku vide i difrakcijski maksimumi klorita (Ch).

Dodatno je napravljena i TOF-ERDA analiza. *Slika 5.13.* prikazuje 2D koincidentnu TOF-ERDA mapu talka. Dobivene su sljedeće atomske koncentracije elemenata: H (9.1 ± 0.6) %, C (0.50 ± 0.06) %, O (55 ± 3) %, F (0.69 ± 0.07) %, Mg (15.0 ± 0.9) % Si (19 ± 1) %, Ca (0.09 ± 0.02) %, Fe (0.23 ± 0.03) %. Taj rezultat je u slaganju s kemijskom formulom talka $Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$, a prisutnost malih koncentracija Ca i Fe navedena je i u podacima iz reference [Min01].



Slika 5.13. 2D koincidenti TOF-ERDA spektar talka. Označeni su izotopi prisutni u analiziranom uzorku.

Na temelju svega ovog može se potvrditi početna pretpostavka o izomorfnoj zamjeni fluora s OH skupinom.

6. ZAKLJUČAK

Protonima inducirana emisija gama-zračenja (PIGE) osjetljiva je nuklearna analitička metoda za određivanje koncentracija lakih elemenata, koji se ne mogu detektirati s metodom protonima inducirane emisije rendgenskoga zračenja (PIXE). Prednost ove metode je malena atenuacija nastalog gama-zračenja što omogućava analizu znatno većeg volumena uzorka. Međutim, kvantitativna PIGE analiza bez korištenja standardnih referentnih materijala zahtjeva, između ostalog, dobro poznavanje ekscitacijskih funkcija reakcija koje vode na emisiju gama-zračenja. Veliki broj podataka za udarne presjeke i intenzitete gama-zračenja na debelim metama za (p,γ), (p,p'γ) i (p,αγ) reakcije već je dostupan u bazama podataka IBANDL i EXFOR. Međutim, prethodna analiza tih podataka ukazala je na brojna neslaganja, kako samih podataka, tako i navedenih neodređenosti mjerenja. Također, nedostaju podaci za pojedine nuklearne reakcije, određene raspone energija i kuteve detekcije, a koji su nepohodni za preciznu analizu PIGE metodom.

Glavni doprinos ovog rada je nadopuna postojećih baza podataka s mjerenjima diferencijalnih udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja iz reakcija na izotopima ^{19}F, ^{23}Na, ^{24}Mg, ^{25}Mg i ^{27}Al. Podaci su izmjereni za pobudu protonima energije 2-3 MeV-a i energijskim korakom od 15 keV-a te na kutu od 135°, budući da se takva geometrija najčešće koristi pa će time i primjenjivost izmjerenih diferencijalnih udarnih presjeka biti veća. Dobiveni podaci se u većini slučajeva, unutar navedenih neodređenosti, dobro uklapaju u postojeće baze i odnedavno dostupne podatke izmjerene unutar projekta pokrenutog od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (IAEA). Pogotovo dobro slaganje je postignuto za najintenzivnije gama-linije pojedinih izotopa, kao što je linija fluora na 110 keV-a, linija natrija na 440 keV-a te linija aluminija na 844 keV-a. Budući da se te linije ujedno i najčeće koriste u PIGE analizi tih elemenata, ubuduće će se moći koristiti vrijednosti izmjerene na ovom eksperimentalnom postavu.

Prilikom mjerenja diferencijalnih udarnih presjeka za emisiju gama-zračenja na magneziju uočene su dvije istaknute rezonance na 2006 i 2409 keV-a u ^{24}Mg(p,p'γ)^{24}Mg reakciji koje su zatim primjenjene za rezonantno dubinsko profiliranje magnezija. Pritom je rezonanca na 2409 keV-a po prvi put upotrebljena u tu svrhu. Na primjeru dubinskog profiliranja ^{24}Mg u siliciju upotrebom te snažne rezonance pokazana je osjetljivost metode od 0.1 % atomskog udjela, dok je dubinska razlučivost bila reda veličine 50 nm. Usporedba s drugim metodama

analize materijala pomoću ionskih snopova, kao što je TOF-ERDA i Li RBS, pokazala je da PIGE dubinsko profiliranje pruža znatno bolju osjetljivost za detekciju lakih izotopa.

Stoga je uočena prilika da se jakost te rezonance iskoristi tako da se za pobudu koristi snop protona fokusiran na mikrometarske dimenzije pomoću ionske mikroprobe. Tako se kombinacijom rezonantnog dubinskog profiliranja i skeniranja fokusiranog snopa protona ukazala jedinstvena mogućnost za trodimenzionalno profiliranje magnezija. Na optimiziranom eksperimentalnom postavu na ionskoj mikroprobi pokazana je neusporediva prednost HPGe detektora u multielementnoj PIGE analizi u usporedbi sa anorganskim scintilacijskim detektorom nove generacije $LaBr_3$:Ce. Konačno je na uzorku minerala sastavljenog od talka ($Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$) i pirita (FeS_2) provedeno uspješno trodimenzionalno profiliranje magnezija. Budući da je dubinska razlučivost prikazane metode oko 0.5 μm pri površini, a na dubini od 4 μm ispod površine uzorka iznosi oko 1 μm, metoda je primjenjiva za slučajeve kad nam treba informacija o raspodjeli ^{24}Mg na površini te nekoliko μm ispod površine. Stoga su snimljene prostorne raspodjele ^{24}Mg na na dvije različite dubine od 300nm i 4μm.

Na kraju se može zaključiti da je ovaj rad poticaj za ponovno oživljavanje PIGE metode, koja je zbog složenije primjene u odnosu na PIXE metodu, neopravdano zanemarena zadnjih desetljeća. Također, pokazan je veliki potencijal rezonantnog dubinskog profiliranja, i to čak u uvjetima lošije energijske razlučivosti snopa, kao što je to slučaj na ionskoj mikroprobi.

DODACI

Dodatak A Diferencijalni udarni presjeci za fluor

Tablica A.1. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 110 keV-a iz $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	ΔE (keV)	dσ/dΩ (mb/sr)	Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)	E (keV)	ΔE (keV)	dσ/dΩ (mb/sr)	Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)
1932	1	7.9	0.8	2523	2	3.9	0.4
1948	1	8.1	0.8	2529	2	4.1	0.4
1963	1	5.2	0.5	2538	2	5.3	0.6
1979	1	3.4	0.4	2544	2	5.5	0.6
1995	1	2.3	0.2	2559	2	5.9	0.6
2009	1	1.8	0.2	2574	2	5.6	0.6
2025	1	1.4	0.1	2589	2	5.2	0.5
2041	1	1.1	0.1	2605	2	5.0	0.5
2057	1	1.0	0.1	2620	2	5.0	0.5
2072	1	0.9	0.1	2635	2	5.2	0.5
2088	1	0.88	0.09	2651	2	5.6	0.6
2103	1	0.89	0.09	2664	2	6.1	0.6
2118	1	1.0	0.1	2678	2	6.4	0.7
2133	1	1.3	0.1	2695	2	6.7	0.7
2150	1	1.0	0.1	2710	2	6.9	0.7
2165	1	0.90	0.09	2725	2	8.2	0.9
2181	1	1.1	0.1	2740	2	8.4	0.9
2197	1	1.4	0.2	2752	2	8.6	0.9
2213	1	2.0	0.2	2765	2	10	1
2228	1	3.0	0.3	2781	2	14	1
2243	1	4.3	0.4	2797	2	11	1
2259	1	5.4	0.6	2811	2	9	1
2275	1	6.6	0.7	2826	2	8.4	0.9
2290	1	7.7	0.8	2842	2	8.3	0.9
2306	1	9	1	2857	2	7.1	0.7
2321	1	12	1	2872	2	6.3	0.7
2337	1	11	1	2887	2	5.9	0.6
2352	1	9	1	2901	2	5.4	0.6
2367	1	7.8	0.8	2917	2	5.3	0.6
2383	1	6.6	0.7	2932	2	5.8	0.6
2399	1	5.7	0.6	2948	2	6.3	0.7
2414	1	5.2	0.5	2963	2	6.8	0.7
2428	1	5.0	0.5	2978	2	6.4	0.7
2444	1	4.5	0.5	2992	2	6.2	0.7
2461	1	3.3	0.3	3008	2	4.8	0.5
2477	1	2.3	0.2	3022	2	4.5	0.5

2492	1	1.9	0.2	3036	2	5.3	0.6
2507	2	2.3	0.2	3053	2	5.9	0.6
2514	2	2.5	0.3				

Tablica A.2. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 197 keV-a iz $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1932	1	12	1	2514	2	5.3	0.5
1948	1	13	1	2529	2	6.4	0.6
1963	1	12	1	2538	2	7.2	0.7
1979	1	13	1	2544	2	7.2	0.7
1995	1	13	1	2559	2	8.1	0.8
2009	1	12	1	2574	2	9.2	0.9
2025	1	10	1	2589	2	11	1
2041	1	7.3	0.7	2605	2	12	1
2057	1	5.1	0.5	2620	2	13	1
2072	1	3.7	0.4	2635	2	14	1
2088	1	2.8	0.3	2651	2	14	1
2103	1	2.3	0.2	2664	2	14	1
2118	1	2.0	0.2	2678	2	14	1
2133	1	2.1	0.2	2695	2	12	1
2150	1	2.2	0.2	2710	2	8.8	0.9
2165	1	2.3	0.2	2725	2	8.4	0.8
2181	1	2.5	0.3	2740	2	10	1
2197	1	2.8	0.3	2752	2	13	1
2213	1	3.5	0.3	2765	2	17	2
2228	1	4.2	0.4	2781	2	25	2
2243	1	5.3	0.5	2797	2	23	2
2259	1	6.3	0.6	2811	2	22	2
2275	1	7.6	0.8	2826	2	22	2
2290	1	9.2	0.9	2842	2	21	2
2306	1	11	1	2857	2	18	2
2321	1	13	1	2872	2	17	2
2337	1	13	1	2887	2	17	2
2352	1	16	2	2901	2	15	2
2367	1	17	2	2917	2	14	1
2383	1	17	2	2932	2	13	1
2399	1	16	2	2948	2	12	1
2414	1	14	1	2963	2	11	1
2428	1	12	1	2978	2	11	1
2444	1	9.3	0.9	2992	2	13	1
2461	1	6.1	0.6	3008	2	12	1
2477	1	4.4	0.4	3022	2	11	1

2492	1	4.3	0.4	3036	2	11	1
2507	2	5.1	0.5	3053	2	9.2	0.9

Tablica A.3. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1236 keV-a iz $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1948	1	0.032	0.007	2529	2	0.34	0.04
1963	1	0.034	0.006	2538	2	0.40	0.04
1979	1	0.033	0.007	2538	2	0.40	0.04
1995	1	0.044	0.007	2544	2	0.41	0.04
2009	1	0.04	0.007	2559	2	0.41	0.04
2025	1	0.036	0.008	2574	2	0.40	0.04
2057	1	0.022	0.005	2589	2	0.37	0.04
2072	1	0.02	0.005	2605	2	0.31	0.03
2088	1	0.023	0.005	2620	2	0.34	0.04
2103	1	0.027	0.006	2635	2	0.36	0.04
2118	1	0.042	0.006	2651	2	0.45	0.05
2133	1	0.049	0.007	2664	2	0.56	0.06
2150	1	0.06	0.01	2678	2	0.64	0.07
2165	1	0.07	0.01	2695	2	0.78	0.08
2181	1	0.09	0.01	2710	2	1.0	0.1
2197	1	0.19	0.02	2725	2	1.6	0.2
2213	1	0.13	0.01	2740	2	1.9	0.2
2228	1	0.15	0.02	2752	2	2.2	0.2
2243	1	0.189	0.02	2765	2	2.5	0.3
2259	1	0.22	0.02	2781	2	4.1	0.4
2275	1	0.27	0.03	2797	2	2.9	0.3
2290	1	0.27	0.03	2811	2	2.8	0.3
2306	1	0.25	0.03	2826	2	2.4	0.2
2321	1	0.77	0.08	2842	2	2.3	0.2
2337	1	1.1	0.1	2857	2	1.9	0.2
2352	1	1.1	0.1	2872	2	1.6	0.2
2367	1	1.1	0.1	2887	2	1.6	0.2
2383	1	1.1	0.1	2901	2	1.4	0.1
2399	1	1.0	0.1	2917	2	1.3	0.1
2414	1	0.92	0.09	2932	2	1.3	0.1
2428	1	0.87	0.09	2948	2	1.4	0.1
2444	1	0.74	0.07	2963	2	1.7	0.2
2461	1	0.52	0.05	2978	2	1.9	0.2
2477	1	0.38	0.04	2992	2	2.2	0.2
2492	1	0.24	0.03	3008	2	1.2	0.1
2507	2	0.24	0.03	3022	2	1.1	0.1
2514	2	0.26	0.03	3036	2	1.6	0.2
2523	2	0.31	0.03	3053	2	2.1	0.2

Tablica A.4. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1349+1357 keV-a iz $^{19}F(p,p'\gamma)^{19}F$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1932	1	0.05	0.02	2544	2	0.62	0.07
2041	1	0.03	0.01	2559	2	0.52	0.06
2072	1	0.022	0.007	2574	2	0.49	0.06
2088	1	0.031	0.008	2589	2	0.44	0.05
2103	1	0.03	0.009	2605	2	0.54	0.06
2118	1	0.049	0.009	2620	2	0.57	0.06
2133	1	0.07	0.01	2635	2	0.63	0.07
2150	1	0.11	0.02	2651	2	0.76	0.09
2165	1	0.13	0.02	2664	2	1.0	0.1
2181	1	0.12	0.02	2678	2	1.2	0.1
2197	1	0.19	0.03	2695	2	1.2	0.1
2213	1	0.19	0.02	2710	2	1.2	0.1
2228	1	0.25	0.03	2725	2	1.4	0.2
2243	1	0.30	0.04	2740	2	1.7	0.2
2259	1	0.34	0.04	2752	2	2.2	0.2
2275	1	0.49	0.06	2765	2	3.1	0.3
2290	1	0.63	0.07	2781	2	5.3	0.6
2306	1	1.0	0.1	2797	2	3.9	0.4
2321	1	1.9	0.2	2811	2	3.2	0.4
2337	1	1.2	0.1	2826	2	2.9	0.3
2352	1	1.0	0.1	2842	2	2.8	0.3
2367	1	1.0	0.1	2857	2	2.2	0.2
2383	1	0.9	0.1	2872	2	1.9	0.2
2399	1	0.74	0.08	2887	2	2.0	0.2
2414	1	0.68	0.08	2901	2	2.0	0.2
2428	1	0.74	0.08	2917	2	2.3	0.3
2444	1	0.75	0.08	2932	2	2.6	0.3
2461	1	0.74	0.08	2948	2	3.0	0.3
2477	1	0.75	0.08	2963	2	3.1	0.3
2492	1	0.80	0.09	2978	2	2.9	0.3
2507	2	0.81	0.09	2992	2	2.6	0.3
2514	2	0.8	0.1	3008	2	2.2	0.2
2523	2	0.84	0.09	3022	2	1.8	0.2
2529	2	0.79	0.09	3036	2	1.9	0.2
2538	2	0.67	0.07	3053	2	2.0	0.2

Dodatak B Diferencijalni udarni presjeci za natrij

Tablica B.1. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 440 keV-a iz $^{23}Na(p,p'\gamma)^{23}Na$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1895	1	0.77	0.05	2507	2	9.7	0.6
1911	1	1.11	0.07	2514	2	11.8	0.9
1926	1	5.8	0.4	2529	2	22	2
1942	1	2.3	0.2	2544	2	9.6	0.8
1958	1	1.27	0.09	2559	2	4.8	0.4
1973	1	3.2	0.2	2574	2	3.0	0.2
1989	1	2.2	0.1	2589	2	7.9	0.6
2005	1	1.9	0.1	2605	2	4.2	0.3
2021	1	2.3	0.2	2620	2	3.4	0.3
2036	1	3.3	0.2	2635	2	3.2	0.3
2052	1	6.0	0.4	2651	2	3.6	0.3
2067	1	12.6	0.8	2664	2	5.3	0.4
2083	1	13.1	0.9	2679	2	8.4	0.7
2099	1	17	1	2695	2	7.9	0.6
2115	1	3.1	0.2	2710	2	3.5	0.3
2131	1	1.6	0.1	2725	2	2.7	0.2
2147	1	1.21	0.08	2740	2	3.1	0.3
2163	1	1.8	0.1	2752	2	8.1	0.7
2179	1	2.9	0.2	2765	2	4.5	0.4
2194	1	6.9	0.5	2781	2	3.8	0.3
2209	1	11.7	0.8	2797	2	4.2	0.3
2225	1	11.3	0.7	2811	2	5.3	0.4
2241	1	7.8	0.5	2826	2	8.6	0.7
2257	1	5.8	0.4	2842	2	15	1
2272	1	5.1	0.3	2857	2	20	2
2288	1	4.5	0.3	2872	2	12	1
2304	1	3.1	0.2	2887	2	8.9	0.7
2319	1	2.7	0.2	2901	2	6.5	0.5
2335	1	5.4	0.4	2917	2	7.6	0.6
2351	1	3.6	0.2	2932	2	4.9	0.4
2367	1	2.2	0.1	2948	2	5.0	0.4
2382	1	2.4	0.2	2963	2	4.6	0.4
2397	1	2.2	0.1	2978	2	5.2	0.4
2412	1	3.7	0.2	2992	2	7.0	0.6
2429	1	9.6	0.6	3008	2	12	1
2445	1	6.0	0.4	3022	2	13	1
2461	1	4.2	0.3	3036	2	15	1
2476	1	5.1	0.3	3053	2	11.2	0.9
2492	1	10.3	0.7				

Tablica B.2. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1634+1636 keV-a iz $^{23}Na(p,\alpha'\gamma)^{20}Ne$ i $^{23}Na(p,p'\gamma)^{23}Na$ reakcija u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1895	1	0.15	0.02	2507	2	4.7	0.6
1911	1	0.23	0.03	2514	2	6.4	0.9
1926	1	0.43	0.06	2529	2	12	2
1942	1	0.70	0.09	2544	2	4.3	0.6
1958	1	1.8	0.2	2559	2	5.2	0.7
1973	1	2.5	0.3	2574	2	6.0	0.8
1989	1	0.9	0.1	2589	2	10	1
2005	1	0.36	0.05	2605	2	7.0	0.9
2021	1	0.42	0.06	2620	2	6.5	0.9
2036	1	0.38	0.05	2635	2	6.2	0.8
2052	1	0.8	0.1	2651	2	7	1
2067	1	3.8	0.5	2664	2	11	1
2083	1	1.4	0.2	2679	2	9	1
2099	1	1.3	0.2	2695	2	4.3	0.6
2115	1	0.60	0.08	2710	2	6.0	0.8
2131	1	0.36	0.05	2725	2	8	1
2147	1	0.30	0.04	2740	2	11	2
2163	1	0.50	0.07	2752	2	16	2
2179	1	0.8	0.1	2765	2	11	2
2194	1	2.4	0.3	2781	2	10	1
2209	1	2.3	0.3	2797	2	10	1
2225	1	2.2	0.3	2811	2	11	1
2241	1	2.2	0.3	2826	2	9	1
2257	1	3.3	0.4	2842	2	8	1
2272	1	5.9	0.8	2857	2	6.3	0.8
2288	1	8	1	2872	2	5.6	0.8
2304	1	6.0	0.8	2887	2	10	1
2319	1	4.8	0.6	2901	2	6.4	0.9
2335	1	11	1	2917	2	3.5	0.5
2351	1	11	1	2932	2	3.2	0.4
2367	1	4.1	0.5	2948	2	4.9	0.7
2382	1	4.9	0.6	2963	2	9	1
2397	1	2.3	0.3	2978	2	2.1	0.3
2412	1	1.8	0.2	2992	2	3.3	0.4
2429	1	2.3	0.3	3008	2	5.6	0.7
2445	1	1.8	0.2	3022	2	5.6	0.8
2461	1	1.8	0.2	3036	2	6.9	0.9
2476	1	2.5	0.3	3053	2	6.1	0.8
2492	1	4.0	0.5				

Dodatak C Diferencijalni udarni presjeci za magnezij

Tablica C.1. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1369 keV-a iz $^{24}Mg(p,p'\gamma)^{24}Mg$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
2009	1	2.3	0.3	2635	2	0.18	0.03
2213	1	0.04	0.01	2651	2	0.20	0.03
2228	1	0.02	0.01	2664	2	0.21	0.03
2259	1	0.04	0.02	2678	2	0.21	0.03
2275	1	0.05	0.01	2695	2	0.23	0.03
2290	1	0.04	0.01	2710	2	0.25	0.03
2321	1	0.06	0.01	2725	2	0.25	0.06
2337	1	0.05	0.01	2740	2	0.27	0.04
2352	1	0.06	0.02	2752	2	0.46	0.06
2367	1	0.06	0.02	2765	2	0.32	0.06
2383	1	0.06	0.01	2781	2	0.25	0.06
2399	1	0.18	0.02	2797	2	0.33	0.07
2414	1	19	2	2811	2	0.37	0.07
2428	1	0.26	0.03	2826	2	0.42	0.08
2444	1	0.13	0.02	2842	2	0.52	0.07
2461	1	0.12	0.02	2857	2	0.33	0.05
2477	1	0.12	0.02	2872	2	0.43	0.08
2492	1	0.12	0.02	2887	2	0.6	0.1
2507	2	0.11	0.02	2901	2	0.66	0.08
2514	2	0.12	0.03	2917	2	6.1	0.7
2523	2	0.15	0.02	2932	2	2.2	0.3
2529	2	0.14	0.02	2948	2	3.4	0.4
2538	2	0.13	0.02	2963	2	5.1	0.6
2544	2	0.14	0.02	2978	2	3.6	0.4
2559	2	0.14	0.02	2992	2	2.3	0.3
2574	2	0.14	0.02	3008	2	1.7	0.2
2589	2	0.17	0.03	3022	2	0.1	0.1
2605	2	0.20	0.03	3036	2	1.1	0.2
2620	2	0.16	0.03	3053	2	1.1	0.1

Tablica C.2. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 390 keV-a iz $^{25}Mg(p,p'\gamma)^{25}Mg$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
2025	1	0.61	0.09	2559	2	0.46	0.09
2041	1	1.5	0.1	2574	2	0.20	0.08
2057	1	0.61	0.07	2589	2	0.48	0.09
2072	1	0.14	0.05	2605	2	0.25	0.07
2088	1	0.14	0.05	2620	2	0.21	0.07
2243	1	0.17	0.06	2635	2	0.27	0.07
2259	1	0.9	0.1	2651	2	0.35	0.08
2275	1	0.76	0.09	2664	2	0.66	0.09
2290	1	0.34	0.06	2678	2	1.1	0.1
2337	1	0.61	0.08	2695	2	1.0	0.1
2352	1	1.1	0.1	2710	2	0.40	0.06
2367	1	0.49	0.08	2725	2	0.7	0.2
2383	1	0.48	0.08	2740	2	0.9	0.1
2399	1	0.62	0.08	2752	2	0.5	0.1
2414	1	0.23	0.07	2811	2	0.7	0.2
2428	1	0.19	0.06	2857	2	1.8	0.2
2444	1	0.20	0.06	2872	2	0.9	0.2
2461	1	0.26	0.06	2901	2	2.3	0.2
2477	1	0.4	0.1	2917	2	1.0	0.4
2492	1	2.6	0.2	2932	2	1.3	0.3
2507	2	3.2	0.3	2948	2	0.4	0.1
2514	2	2.8	0.2	2963	2	0.5	0.1
2523	2	1.6	0.2	3008	2	0.4	0.1
2529	2	1.0	0.1	3022	2	0.5	0.1
2538	2	0.62	0.08	3036	2	0.7	0.2
2544	2	0.49	0.08	3053	2	0.4	0.1

Tablica C.3. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 585 keV-a iz $^{25}Mg(p,p'\gamma)^{25}Mg$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1932	1	5.3	0.5	2538	2	1.5	0.1
1948	1	2.0	0.2	2538	2	1.4	0.1
1963	1	0.49	0.06	2544	2	1.1	0.1
1995	1	0.18	0.04	2559	2	1.6	0.2
2009	1	0.27	0.04	2574	2	2.0	0.2
2025	1	1.1	0.1	2589	2	3.1	0.3
2041	1	3.4	0.3	2605	2	0.61	0.08
2057	1	4.4	0.4	2620	2	0.50	0.07
2072	1	0.68	0.07	2635	2	0.60	0.08
2088	1	0.24	0.04	2651	2	0.9	0.1
2150	1	0.28	0.07	2664	2	1.8	0.2
2228	1	0.16	0.03	2678	2	4.5	0.4
2243	1	0.18	0.03	2695	2	3.4	0.3
2259	1	1.0	0.1	2710	2	1.1	0.1
2275	1	2.0	0.2	2725	2	1.2	0.2
2290	1	0.50	0.06	2740	2	2.6	0.2
2321	1	1.3	0.1	2752	2	1.0	0.1
2337	1	1.4	0.1	2781	2	0.6	0.2
2352	1	2.8	0.2	2811	2	0.7	0.2
2367	1	1.3	0.1	2842	2	1.8	0.2
2383	1	0.71	0.08	2857	2	4.5	0.4
2399	1	0.79	0.09	2872	2	1.5	0.3
2414	1	0.21	0.06	2901	2	2.2	0.2
2428	1	0.37	0.05	2932	2	0.6	0.2
2444	1	0.33	0.05	2948	2	1.3	0.2
2461	1	0.35	0.05	2963	2	1.1	0.2
2477	1	0.7	0.1	2978	2	0.7	0.2
2492	1	2.6	0.2	2992	2	1.3	0.2
2507	2	5.3	0.4	3008	2	3.1	0.3
2514	2	5.5	0.5	3022	2	1.6	0.2
2523	2	2.8	0.2	3036	2	1.2	0.3
2529	2	2.0	0.2	3053	2	0.5	0.1

Tablica C.4. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 975 keV-a iz $^{25}Mg(p,p'\gamma)^{25}Mg$ reakcija u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
2009	1	0.17	0.08	2544	2	0.7	0.1
2025	1	0.8	0.1	2559	2	0.5	0.1
2041	1	1.7	0.2	2574	2	0.2	0.1
2057	1	0.7	0.1	2589	2	0.7	0.1
2072	1	0.18	0.07	2605	2	0.4	0.1
2243	1	0.16	0.08	2620	2	0.5	0.1
2259	1	1.0	0.1	2635	2	0.4	0.1
2275	1	1.0	0.1	2651	2	0.6	0.1
2290	1	0.42	0.09	2664	2	0.7	0.1
2337	1	0.6	0.1	2678	2	1.4	0.2
2352	1	1.4	0.2	2695	2	1.0	0.2
2367	1	0.4	0.1	2710	2	0.6	0.1
2383	1	0.5	0.1	2725	2	1.0	0.4
2399	1	0.8	0.1	2740	2	1.4	0.2
2428	1	0.4	0.1	2752	2	0.5	0.2
2461	1	0.23	0.09	2811	2	1.6	0.5
2477	1	0.7	0.2	2857	2	2.1	0.4
2492	1	2.2	0.2	2872	2	0.9	0.4
2507	2	3.7	0.3	2901	2	2.5	0.3
2514	2	3.4	0.4	2948	2	0.7	0.3
2523	2	1.9	0.2	2963	2	0.8	0.3
2529	2	1.1	0.2	3036	2	1.1	0.5
2538	2	0.9	0.1				

Dodatak D Diferencijalni udarni presjeci za aluminij

Tablica D.1. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 844 keV-a iz $^{27}Al(p,p'\gamma)^{27}Al$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1932	1	0.020	0.002	2523	2	1.4	0.1
1948	1	0.018	0.002	2529	2	2.9	0.2
1963	1	0.17	0.01	2538	2	2.7	0.2
1979	1	0.032	0.003	2544	2	2.0	0.1
1995	1	0.012	0.002	2559	2	2.7	0.2
2009	1	0.008	0.002	2574	2	4.7	0.3
2026	1	0.013	0.002	2589	2	5.1	0.4
2041	1	0.024	0.003	2605	2	3.4	0.3
2057	1	0.006	0.001	2620	2	1.6	0.1
2072	1	0.005	0.001	2635	2	1.11	0.08
2088	1	0.008	0.002	2651	2	0.94	0.07
2103	1	0.026	0.003	2664	2	1.09	0.08
2119	1	0.022	0.003	2679	2	1.01	0.08
2134	1	0.060	0.005	2695	2	1.4	0.1
2150	1	0.005	0.002	2710	2	2.3	0.2
2165	1	0.014	0.002	2725	2	3.8	0.3
2181	1	0.052	0.005	2740	2	1.12	0.09
2197	1	0.044	0.004	2752	2	0.83	0.06
2213	1	0.078	0.007	2765	2	0.96	0.07
2228	1	0.13	0.01	2781	2	1.19	0.09
2243	1	0.15	0.01	2797	2	1.6	0.1
2259	1	0.12	0.01	2811	2	2.1	0.2
2275	1	0.087	0.007	2826	2	2.3	0.2
2290	1	0.090	0.008	2842	2	2.9	0.2
2306	1	0.46	0.04	2857	2	4.6	0.3
2321	1	0.70	0.05	2872	2	6.8	0.5
2337	1	0.20	0.02	2887	2	4.8	0.4
2352	1	0.13	0.01	2901	2	3.1	0.2
2367	1	0.52	0.04	2917	2	1.7	0.1
2383	1	0.25	0.02	2932	2	0.98	0.07
2399	1	1.6	0.1	2948	2	0.76	0.06
2414	1	1.4	0.1	2963	2	0.60	0.05
2429	1	0.58	0.04	2978	2	0.56	0.04
2444	1	0.48	0.04	2992	2	0.61	0.05
2461	1	0.42	0.03	3008	2	0.88	0.07
2477	1	0.73	0.06	3022	2	0.66	0.05
2493	1	0.53	0.04	3036	2	0.58	0.05
2507	2	0.68	0.05	2523	2	1.4	0.1
2514	2	0.82	0.06				

Tablica D.2. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1014 keV-a iz $^{27}Al(p,p'\gamma)^{27}Al$ reakcija u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1932	1	0.11	0.01	2523	2	1.5	0.1
1948	1	0.055	0.005	2529	2	2.8	0.2
1963	1	0.19	0.02	2538	2	2.1	0.2
1979	1	0.13	0.01	2544	2	1.6	0.1
1995	1	0.043	0.004	2559	2	2.1	0.2
2009	1	0.037	0.004	2574	2	3.0	0.3
2026	1	0.069	0.007	2589	2	2.6	0.2
2041	1	0.12	0.01	2605	2	1.2	0.1
2057	1	0.042	0.004	2620	2	0.49	0.04
2072	1	0.054	0.005	2635	2	0.33	0.03
2088	1	0.13	0.01	2651	2	0.34	0.03
2103	1	0.58	0.05	2664	2	0.48	0.04
2119	1	0.44	0.04	2679	2	0.62	0.05
2134	1	0.23	0.02	2695	2	1.07	0.09
2150	1	0.030	0.004	2710	2	2.6	0.2
2165	1	0.057	0.006	2725	2	5.5	0.5
2181	1	0.18	0.02	2740	2	6.7	0.6
2197	1	0.33	0.03	2752	2	8.0	0.7
2213	1	0.67	0.06	2765	2	8.6	0.7
2228	1	0.69	0.06	2781	2	7.2	0.6
2243	1	0.72	0.06	2797	2	7.2	0.6
2259	1	0.59	0.05	2811	2	8.0	0.7
2275	1	0.41	0.04	2826	2	7.3	0.6
2290	1	0.39	0.03	2842	2	6.8	0.6
2306	1	0.74	0.06	2857	2	6.4	0.5
2321	1	0.86	0.07	2872	2	6.9	0.6
2337	1	0.37	0.03	2887	2	8.9	0.8
2352	1	0.49	0.04	2901	2	6.8	0.6
2367	1	1.9	0.2	2917	2	4.4	0.4
2383	1	2.2	0.2	2932	2	3.0	0.3
2399	1	1.4	0.1	2948	2	2.4	0.2
2414	1	0.61	0.06	2963	2	2.1	0.2
2429	1	0.58	0.05	2978	2	2.0	0.2
2444	1	2.1	0.2	2992	2	1.8	0.2
2461	1	0.59	0.05	3008	2	1.9	0.2
2477	1	0.93	0.08	3022	2	1.9	0.2
2493	1	0.72	0.06	3036	2	2.3	0.2
2507	2	0.82	0.07	3053	2	3.4	0.3
2514	2	1.1	0.1				

Tablica D.3. Diferencijalni udarni presjeci za produkciju gama-zračenja na 1369 keV-a iz $^{27}Al(p,\alpha'\gamma)^{24}Mg$ reakcije u ovisnosti o energiji protonske pobude i za kut detekcije od 135º.

E (keV)	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**	**E (keV)**	**ΔE (keV)**	**dσ/dΩ (mb/sr)**	**Δ(dσ/dΩ) (mb/sr)**
1932	1	0.016	0.003	2523	2	0.032	0.005
1948	1	0.023	0.004	2529	2	0.031	0.005
1963	1	0.055	0.007	2538	2	0.032	0.005
1979	1	0.071	0.009	2539	2	0.027	0.004
1995	1	0.049	0.007	2544	2	0.030	0.005
2009	1	0.024	0.004	2559	2	0.11	0.01
2026	1	0.018	0.003	2574	2	0.71	0.08
2041	1	0.023	0.004	2589	2	0.25	0.03
2057	1	0.053	0.007	2605	2	0.39	0.04
2072	1	0.009	0.002	2620	2	0.081	0.01
2088	1	0.016	0.003	2635	2	0.07	0.01
2103	1	0.11	0.01	2651	2	0.11	0.01
2119	1	0.08	0.01	2664	2	0.40	0.05
2134	1	0.20	0.02	2679	2	0.29	0.03
2150	1	0.013	0.003	2695	2	0.12	0.02
2165	1	0.11	0.01	2710	2	1.0	0.1
2181	1	0.23	0.03	2725	2	0.72	0.08
2197	1	0.018	0.003	2740	2	3.5	0.4
2213	1	0.017	0.003	2752	2	0.35	0.04
2228	1	0.012	0.003	2765	2	0.29	0.03
2243	1	0.015	0.004	2781	2	0.10	0.01
2259	1	0.012	0.003	2797	2	0.08	0.01
2275	1	0.011	0.003	2811	2	0.48	0.06
2290	1	0.009	0.002	2826	2	0.053	0.008
2306	1	0.074	0.009	2842	2	0.265	0.03
2321	1	0.016	0.003	2857	2	0.075	0.01
2337	1	0.029	0.005	2872	2	0.60	0.07
2352	1	0.010	0.003	2887	2	0.17	0.02
2367	1	0.09	0.01	2901	2	0.31	0.04
2383	1	0.069	0.009	2917	2	0.58	0.07
2399	1	0.038	0.005	2932	2	0.12	0.01
2414	1	0.012	0.005	2948	2	0.29	0.03
2429	1	0.029	0.004	2963	2	0.27	0.03
2444	1	0.53	0.06	2978	2	0.24	0.03
2461	1	0.049	0.007	2992	2	0.42	0.05
2477	1	0.31	0.04	3008	2	1.7	0.2
2493	1	0.51	0.06	3022	2	0.72	0.08
2507	2	0.024	0.005	3036	2	1.2	0.1
2514	2	0.09	0.01	3053	2	0.65	0.07

LITERATURA

[Ams83] G. Amsel, B. Maurel, Nucl. Instrum. Methods 218 (1983)159

[Ams83a] G. Amsel, B. Maurel, Nucl. Instrum. Methods 218 (1983) 183

[Ams98] G. Amsel, E. d'Artemare, G. Battistig, E. Girard, L.G. Gosset, P. Révész, Nucl. Instrum. Meth. B 136-138 (1998) 545

[Ant77] A. Anttila, M. Bister, A. Fontell, K.B. Winterbon, Radiat. Eff. 33 (1977) 13

[Ars14] K. Arstila, J. Julin, M.I. Laitinen, J. Aalto, T. Konub, S. Kärkkäinen, S. Rahkonen, M. Raunio, J. Itkonen, J.-P. Santanen, T. Tuovinen, T. Sajavaara, Nucl. Instrum. Meth. B 331 (2014) 34

[B380] http://www.crystals.saint-gobain.com/BrilLanCe_380_Scintillator.aspx

[Bet30] H.A. Bethe, Ann. Phys. 5 (1930) 325

[Blo33] F. Bloch., Ann. Phys. 16 (1933) 285

[Bog02] M. Bogovac, *Data acquisition for X-ray microprobe*, Computer Manual Series No.17, IAEA, Beč, 2002.

[Boh13] N. Bohr, Phil. Mag. 25 (1913) 10

[Boh15] N. Bohr, Phil. Mag. 30 (1915) 581

[Bon88] C. Boni, E. Cereda, G.M. Braga Marcazzan, V. De Tomasi, Nucl. Instrum. Meth. B 35 (1988) 80

[Bra05] W.H. Bragg, R. Kleeman, Phil. Mag. 10 (1905) S318

[Cac06] A. Caciolli, M. Chiari, A. Climent-Font, M.T. Fernández-Jiménez, G. García López, F. Lucarelli, S. Nava, A. Zucchiatti, Nucl. Instrum. Meth. B 249 (2006) 98

[Cac08] A. Caciolli, G. Calzolai, M. Chiari, A. Climent-Font, G. Garcia, F. Lucarelli, S. Nava, Nucl. Instrum. Meth. B 266 (2008) 1392

[Cal98] F. Calastrini, P. Del Carmine, F. Lucarelli, P.A. Mandò, P. Prati, A. Zucchiatti, Nucl. Instrum. Meth. B 136-138 (1998) 975

[Cal04] T. Calligaro, J.-C. Dran, J. Salomon, Ph. Walter, Nucl. Instrum. Meth. B 226 (2004) 29

[Cal10] G. Calzolai, M. Chiari, F. Lucarelli, S. Nava, S. Portarena, Nucl. Instrum. Meth. B 268 (2010) 1540

[Cal14] G. Calzolai, M. Chiari, F. Lucarelli, S. Nava, F. Taccetti, S. Becagli, D. Frosini, R. Traversi, R. Udisti, Nucl. Instrum. Meth. B 318 (2014) 125

[Can91] Canberra Industries Inc., *Germanium Detectors: User's Manual*, Meriden, 1991.

[Car10] N. Carmona, I. Ortega-Feliu, B. Gómez-Tubío, M.A. Villegas, Mater. Charact. 61 (2010) 257

[Chi14] M. Chiari, B. Melon, L. Salvestrini, M. Fonseca, E. Alves, A.P. Jesus, Nucl. Instrum. Meth. B 332 (2014) 355

[Chi15] Chiari et al., *Measurement of proton induced γ-ray emission cross sections on Na from 1.0 to 4.1 MeV*, poslano u Nucl. Instrum. Meth. B

[Chi16] M. Chiari, G. Ferraccioli, B. Melon, A. Nannini, A. Perego, L. Salvestrini, A. Lagoyannis, K. Preketes-Sigalas, Nucl. Instrum. Meth. B 366 (2016) 77

[Chu78] W.K. Chu, J.W. Mayer, M.A. Nicolet, *Backscattering Spectrometry*, Academic Press, New York, 1978.

[Cli08] A. Climent-Font, A. Muñoz-Martin, M.D. Ynsa, A. Zucchiatti, Nucl. Instrum. Meth. B 266 (2008) 640

[CRP11] D. Abriola, A.P. Jesus, *Summary Report of the 1st RCM on "Development of a Reference Database for Particle-Induced Gamma ray Emission (PIGE) Spectroscopy"*, Beč, 2011., www-nds.iaea.org/publications/indc-nds-0589/

[CRP12] D. Abriola, P. Dimitriou, A.P. Jesus, *Summary Report of the 2nd RCM on "Development of a Reference Database for Particle-Induced Gamma ray Emission (PIGE)* Spectroscopy", Beč, 2012., www-nds.iaea.org/publications/indc-nds-0625/

[CRP14] P. Dimitriou, A.P. Jesus, *Summary Report of the 3rd RCM on "Development of a Reference Database for Particle-Induced Gamma ray Emission (PIGE) Spectroscopy"*, Beč, 2014., www-nds.iaea.org/publications/indc-nds-0664/

[Cza02] A.W. Czanderna, T.E. Madey, C.J. Powell, *Beam effects, surface topography, and depth profiling in surface analysis*, Methods of surface characterization vol. 5, Kluwer Academic Publishers, New York, 2002.

[Dec78] G. Deconninck, *Introduction to Radioanalytical Physics*, Elsevier/North Holland Inc., New York, 1978.

[Dev57] S. Devons, L.J.B. Goldfarb, *Angular Correlations*, Nuclear Reactions III, Encyclopedia of Physics vol. 8/42, Springer, Berlin Heidelberg, 1957.

[Dim15] P. Dimitriou, H.-W. Becker, I. Bogdanović Radović, M. Chiari, A. Goncharov, A.P. Jesus, O. Kakuee, Á.Z. Kiss, A. Lagoyannis, J. Räisänen, D. Strivay, A. Zucchiatti, *Development of a Reference Database for Particle-Induced Gamma-ray Emission* spectroscopy", Nucl. Instrum. Meth. B (2015), http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2015.09.052

[End90] P.M. Endt, Nucl. Phys. A 521 (1990) 1

[EXF] Experimental Nuclear Reaction Data – EXFOR, www-nds.iaea.org/exfor/

[Fer12] F.J. Ferrer, J. Gil-Rostra, A. Terriza, G. Rey, C. Jiménez, J. García-López, F. Yubero, Nucl. Instrum. Meth. B 274 (2012) 65

[Fir96] R.B. Firestone, V.S. Shirley, *Table of Isotopes*, 8th Edition, John Wiley & Sons Inc., 1996.

[Gas08] A.A.-M. Gaschen, M. Döbeli, A. Markwitz, B. Barry, S. Ulrich-Bochsler, U. Krähenbühl, J. Archaeol. Sci. 35 (2008) 535

[Gra84] D. Grambole, C. Bauer, P. Gippner, C. Heiser, W. Rudolph, H.J. Thomas, J. Radioanal. Nucl. Ch. 83 (1984) 107

[Gra04] N. Grassi, A. Migliori, P. A. Mandò, H. Calvo del Castillo, Nucl. Instrum. Meth. B 219-220 (2004) 48

[Gur07] A.F. Gurbich, Nucl. Instrum. Meth. B 261 (2007) 401

[Gur10] A.F. Gurbich, Nucl. Instrum. Meth. B 268 (2010) 1703

[Gur14] A. Gurbich, Nucl. Instrum. Meth. B 331 (2014) 31

[IBA] Ion Beam Analysis Nuclear Data Library – IBANDL, www-nds.iaea.org/ibandl/

[Jak07] M. Jakšić, I. Bogdanović Radović, M. Bogovac, V. Desnica, S. Fazinić, M. Karlušić, Z. Medunić, H. Muto, Ž. Pastuović, Z. Siketić, N. Skukan, T. Tadić, Nucl. Instrum. Meth. B 260 (2007) 114

[Jes00] A.P. Jesus, B. Braizinha, J.P. Ribeiro, Nucl. Instrum. Meth. B 161-163 (2000) 186

[Jes16] A.P. Jesus et al., *Interlaboratory exercise for the measurement of particle induced γ-ray emission cross sections: towards a standardless PIGE technique*, u pripremi

[Kra88] K.S. Krane, *Introductory Nuclear Physics*, John Wiley & Sons Inc., New York, 1988.

[Lag15] A. Lagoyannis, K. Preketes-Sigalas, M. Axiotis, V. Foteinou, S. Harissopulos, M. Kokkoris, P. Misaelides, V. Paneta, N. Patronis, Nucl. Instrum. Meth. B 342 (2015) 271

[Lan44] L. Landau, J. Phys. (USSR) 8 (1994) 201

[Lan58] A.M. Lane, R.G. Thomas, Rev. Mod. Phys. 30 (1958) 257

[Leo87] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1987.

[Lin53] J. Lindhard, M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 27 (1953) 15

[Lin61] J. Lindhard, M. Scharff, Phys. Rev. 124 (1961) 128

[Lit56] A.E. Litherland, E.B. Paul, G.A. Bartholomew, H.E. Gove, Phys. Rev. 102 (1956) 208

[Mar08] F. Marino, G. Calzolai, S. Caporali, E. Castellano, M. Chiari, F. Lucarelli, V. Maggi, S. Nava, M. Sala, R. Udisti, Nucl. Instrum. Meth. B 266 (2008) 2396

[Mar09] B.R. Martin, *Nuclear and Particle Physics: An Introduction*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Inc., New York, 2009.

[Mar66] J.B. Marion, Rev. Mod. Phys. 38 (1966) 660

[Mat04] R. Mateus, A.P. Jesus, J. Cruz, J.P. Ribeiro, Nucl. Instrum. Meth. B 219-220 (2004) 307

[Mat04a] R. Mateus, A.P. Jesus, J.P. Ribeiro, Nucl. Instrum. Meth. B 219-220 (2004) 519

[Mat05] R. Mateus, A.P. Jesus, J.P. Ribeiro, Nucl. Instrum. Meth. B 229 (2005) 302

[Mat06] R. Mateus, M.A. Reis, A.P. Jesus, J.P. Ribeiro, Nucl. Instrum. Meth. B 249 (2006) 784

[Mat08] R. Mateus, M. Fonseca, A.P. Jesus, H. Luís, J.P. Ribeiro, Nucl. Instrum. Meth. B 266 (2008) 1490

[May97] M. Mayer, *SIMNRA User's Guide*, Report IPP 9/113, Max Planck Institut für Plasmaphysik, Garching, 1997.

[Min01] Mineral Data Publishing, Version 1.2., Talc, 2001.

[Moo51] F.P. Mooring, L.J. Koester, Jr., E. Goldberg, D. Saxon, S.G. Kaufmann, Phys. Rev. 84 (1951) 703

[Nol03] K. Noll, M. Döbeli., U. Krähenbühl, D. Grambole, F. Herrmann, C. Koeberl, Meteorit. Planet. Sci. 38 (2003) 759

[Nom08] K. Nomita Devi, H. Nandakumar Sarma, Sanjiv Kumar, Nucl. Instrum. Meth. B 266 (2008) 1605

[Pal83] R. Paltemaa, J. Räisänen, M. Hautala, A. Anttila, Nucl. Instrum. Methods 218 (1983) 785

[Pet07] K. Petrasová1, S.W. Faryad, P. Jeřábek, E. Žáčková, Journal of Geosciences 52 (2007) 125

[Ran58] W.A. Ranken, T.W. Bonner, J.H. McCrary, Phys. Rev. 109 (1958) 1646

[Red08] G.L.N. Reddy, Sanjiv Kumar, S. Vikram Kumar, J.V. Ramana, S. Veena, V.S. Raju, Nucl. Instrum. Meth. B 266 (2008) 3281

[Ros68] M. Ross, W.L. Smith, W.H. Ashton, Am. Mineral. 53 (1968) 751

[Sal97] H. Salah, B. Touchrift, Nucl. Instrum. Meth. B 129 (1997) 261

[Sas01] C.S. Sastri, V. Iyengar, G. Blondiaux, Y. Tessier, H. Petri, P. Hoffmann, N.K. Aras, V. Zaichick, H.M. Ortner, Fresenius J. Anal. Chem. 370 (2001) 924

[Sch85] L. I. Schiff, *Quantum mechanics*, 3rd Edition, MGraw-Hill Inc., New York, 1985.

[Sig2.0] A. Gurbich, SigmaCalc 2.0, sigmacalc.iate.obninsk.ru

[Sik08] Z. Siketić, I. Bogdanović Radović, M. Jakšić, Nucl. Instrum. Meth. B 266 (2008) 1328

[Sik10] Z. Siketić, I. Bogdanović Radović, M. Jakšić, Thin Solid Films 518 (2010) 2617

[Sku10] N. Skukan, *Proizvodnja radioaktivnog nuklearnog snopa ^{7}Be*, diplomski rad, Sveučilište u Zagrebu, 2010.

[Ste63] P.H. Stelson, F.K. McGowan, Ann. Rev. Nucl. Sci. 13 (1963) 163

[Šmi13] Ž. Šmit, F. Tartari, F. Stamati, A. Vevecka Priftaj, J. Istenič, Nucl. Instrum. Meth. B 296 (2013) 7

[Tad00] T. Tadić, M. Jakšić, C. Capiglia, Y. Saito, P. Mustarelli, Nucl. Instrum. Meth. B 161-163 (2000) 614

[Tad01] T. Tadić, M. Jakšić, Z. Medunić, E. Quartarone, P. Mustarelli, Nucl. Instrum. Meth. B 181 (2001) 404

[Tad15] T. Tadić, *Programski kod za proračun minimalne i maksimalne energije traženog iona koja može proći kroz pukotine na izlazu iz analizatorskog magneta*, Zagreb, 2015.

[Ter99] G. Terwagne, F. Bodart, G. Demortier, Nucl. Instrum. Meth. B 158 (1999) 228

[Tro82] P. Trocellier, B. Nens, Ch. Engelmann, Nucl. Instrum. Methods 197 (1982) 15

[Tsc70] C. Tschalär, H.D. Maccabee, Phys. Rev. B 1 (1970) 2863

[Vav57] P.V. Vavilov, Sov. Phys. JETP 5 (1957) 749

[Ver07] H.R. Verma, *Atomic and Nuclear Analytical Methods*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2007.

[Vic91] I.C. Vickridge, *Proposed ASCII format for communication of reaction cross sections in the IBA community*, DSIR Physical Sciences Report 33, Nuclear Sciences Group, 1991.

[Wan09] Y. Wang, M.A. Nastasi, *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*, 2nd Edition, Materials Research Society, Warrendale, 2009.

[Wan09a] Y. Wang, M.A. Nastasi, *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis: Appendices*, 2nd Edition, Materials Research Society, Warrendale, 2009.

[Whi85] R.E. White, P.H. Barker, D.M.J. Lovelock, Metrologia 21 (1985) 193

[Whi96] C. Whinston, *X-Ray Methods*, John Wiley & Sons Inc., Chichester, 1996.

[Won98] S.S.M. Wong, *Introductory Nuclear Physics*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Inc., New York, 1998.

[Zam15] I. Zamboni, Z. Siketić, M. Jakšić, I. Bogdanović Radović, Nucl. Instrum. Meth. B 342 (2015) 266

[Zie08] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, M.D. Ziegler, *SRIM – the Stopping and Range of Ions in Matter*, Ion Implantation Press, Annapolis, 2008. (www.srim.org)

[Žit10] M. Žitnik, N. Grlj, P. Vaupetič, P. Pelicon, K. Bučar, D. Sokaras, A.G. Karydas, B. Kanngießer, J. Anal. At. Spectrom. 25 (2010) 28

ŽIVOTOPIS

Ivana Zamboni rođena je 5. prosinca 1979. godine u Sarajevu, Bosna i Hercegovina. Osnovnu školu završila je u Umagu te je maturirala u Pazinskom kolegiju-klasičnoj gimnaziji u Pazinu. Diplomirala je fiziku 2005. godine na Prirodoslovno-matematičkom fakultetu Sveučilišta u Zagrebu pod mentorstvom prof. dr. sc. Ivice Piceka. Od 2008. godine zaposlena je u Laboratoriju za interakcije ionskih snopova na Institutu Ruđer Bošković, gdje radi i danas. Krajem 2009. godine upisuje poslijediplomski studij Nuklearne fizike na Prirodoslovno-matematičkom fakultetu. Autor je 2 i koautor 13 znanstvenih radova citiranih u Current Contents bazi. Svoj rad predstavila je posterskim izlaganjima na više međunarodnih konferencija. Područje njenog rada su tehnike analize materijala pomoću ionskih snopova s naglaskom na metodi protonima inducirane emisije gama-zračenja.

POPIS RADOVA

1. A.P. Jesus, M. Chiari, D. Bachiller Perea, H.W. Becker, I. Bogdanović Radović, P. Corvisiero, L. Csedreki, J. Cruz, M. Fonseca, A. Goncharov, A. Gurbich, D. Jiménez Rey, V. Joco, A. Jokar, O. Kakuee, Á.Z. Kiss, A. Lagoyannis, H. Luís, A. Maira Vidal, B. Melon, K. Mizohata, A. Muñoz Martin, K. Preketes-Sigalas, J. Raisanen, D. Rogalla, L. Salvestrini, C. Santos, H. Silva, Z. Siketić, D. Strivay, S. Utyenkov, I. Zamboni, A. Zucchiatti, D. Abriola, P. Dimitriou, *Interlaboratory exercise for the measurement of particle induced γ-ray emission cross sections: towards a standardless PIGE technique*, u pripremi
2. M. Chiari, E. Alves, I. Bogdanović Radović, J. Cruz, L. Csedreki, M. Fonseca, D. Galaviz, A. Henriques, M. Jakšić, A.P. Jesus, O. Kakuee, Á.Z. Kiss, A. Lagoyannis, F. Lourenço, H. Luís, J. Machado, B. Melon, C.K. Nuviadenu, L. Salvestrini, N. Sharifzadeh, Z. Siketić, G.Á. Szíki, Z. Szikszai, P. Teubig, P. Velho, I. Zamboni, M. Zarza, *Measurement of proton induced γ-ray emission cross sections on Na from 1.0 to 4.1 MeV*, poslano u Nucl. Instrum. Meth. B
3. K. Uhlir, R. Padilla-Alvarez, A. Migliori, A.G. Karydas, I. Božičević Mihalić, M. Jakšić, I. Zamboni, R. Lehmann, M. Stelter, M. Griesser, N. Schindel, M. Alram, *The mystery of mercury-layers on ancient coins – A multianalytical study on the Sasanian coins under the Reign of Khusro II*, Microchem. J. 125 (2016) 159
4. I. Zamboni, Z. Siketić, M. Jakšić, I. Bogdanović Radović, *Measurements of proton induced γ-ray emission cross sections on MgF_2 target in the energy range 1.95–3.05 MeV*, Nucl. Instrum. Meth. B 342 (2015) 266
5. M.H. Sikora et al., *Measurement of the $^1H(\gamma, p)\pi^0$ reaction using a novel nucleon spin polarimeter*, Phys. Rev. Lett. 112 (2014) 022501
6. M. Thiel et al., *In-medium modifications of the ω meson near the production threshold*, Eur. Phys. J. A 49 (2013) 132
7. I. Zamboni, Ž. Pastuović, M. Jakšić, *Radiation hardness of single crystal CVD diamond detector tested with MeV energy ions*, Diam. Relat. Mater. 31 (2013) 65

8. V. Borjanović, L. Bistričić, L. Mikac, G.E. McGuire, I. Zamboni, M. Jakšić, O. Shenderova, *Poymer nanocomposites with improved resistance to ionizing radiation*, J. Vac. Sci. Technol. B 30 (2012) 041803

9. H. Berghäuser et al., *Determination of the η-transition form factor in the $\gamma p \rightarrow p\eta \rightarrow p\gamma e^+e^-$ reaction*, Phys. Lett. B 701 (2011) 562

10. V.L. Kashevarov et al., *First measurement of the circular beam asymmetry in the $\gamma p \rightarrow \pi^0 \eta p$ reaction*, Phys. Lett. B 693 (2010) 551

11. E. McNicoll et al., *Experimental study of the $\gamma p \rightarrow \eta p$ reaction with the Crystal Ball detector at the Mainz Microtron (MAMI-C)*, Phys. Rev. C 82 (2010) 035208

12. V. Borjanović, L. Bistričić, I. Vlasov, K. Furić, I. Zamboni, M. Jakšić, O. Shenderova, *Influence of proton irradiation on the structure and stability of poly(dimethylsiloxane) and poly(dimethylsiloxane)- nanodiamond composite*, J. Vac. Sci. Technol. B 27 (2009) 2396

13. V.L. Kashevarov, *Photoproduction of $\pi^0\eta$ on protons and the Δ(1700)D33 resonance*, Eur. Phys. J. A 42 (2009) 141

14. S. Prakhov et al., *Measurement of the Slope Parameter α for the $\eta \rightarrow 3\pi^0$ decay with the Crystal Ball detector at the Mainz Microtron (MAMI-C)*, Phys. Rev. C 79 (2009) 035204

15. V. Borjanović, W.G. Lawrence, S. Hens, M. Jakšić, I. Zamboni, C. Edson, I. Vlasov, O. Shenderova, G.E. McGuire, *Effect of proton irradiation on photoluminescent properties of PDMS-nanodiamond composites*, Nanotechnology 19 (2008) 455701

16. A. Candela, E. Carrara, M. D' Incecco, A. Di Giovanni, S. Dusini, C. Gustavino, A. Lindozzi, A. Longhin, S. Mićanović, D. Orlandi, M. Stipčević, E. Tatananni, I. Zamboni, *Glass Resistive Plate Chambers in the OPERA experiment*, Nucl. Instrum. Meth. A 581 (2007) 206

17. R. Acquafredda et al., *First events from the CNGS neutrino beam detected in the OPERA experiment*, New J. Phys. 8 (2006) 303