بررسی تأثیر ضخامت بر خواص لایههای نازک تیتانیم ایجاد شده توسط فرآیند پراکنش مگنترونی DC

علی امیرعبداللهیان ^۱ و عبداله افشار ^۲ ۱- دانش آموخته کارشناسی ارشد خوردگی و حفاظت مواد، دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم و تحقیقات، تهران، ایران ۲- استاد، دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران مسirabdollahian_ali@yahoo.com (تاریخ دریافت: ۱۳۸۹/۱۲/۱۰، تاریخ پذیرش: ۱۳۹۰/۰۲/۳۱)

چکیدہ

هدف از تحقیق حاضر بررسی تأثیر افزایش ضخامت بر خواص لایه های ناز ک تیتانیم ایجاد شده روی زیرلایه فولاد زنگ نزن AISI 316L با استفاده از فرآیند پراکنش مگنترونی DD است. به این منظور، عملیات رسوب دهی در مدت زمان های مختلف ۵، ۱۰، ۱۵ و ۲۰ دقیقه انجام شد تا لایه هایی با ضخامت های مختلف ایجاد شود. سپس ضخامت لایه های ناز ک تیتانیم با استفاده از دستگاه پروفیل سنج اندازه گیری شد. همچنین مورفولوژی لایه ها توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) بررسی و اندازه میانگین نانوذرات تیتانیم تعیین شد. توپو گرافی لایه های ناز ک تیتانیم نیز با استفاده از میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) بررسی و مقدار زبری میانگین نانوذرات تیتانیم تعیین شد. به علاوه مقاومت به خوردگی ضخیم ترین لایه ناز ک تیتانیم ایجاد شده توسط آزمون پلاریزاسیون پتانسیودینامیک در محلول فیزیولوژیک SBF در دمای ع[°] مورد ارزیابی قرار گرفت و مقادیر پتانسیل خوردگی و دانسیته جریان خوردگی آن تعیین شد. نتایج حاصل از این آزمون ها نشان داد که لایه ناز ک تیتانیم با ضخامت از متراکم ترین و یکنواخت ترین ساختار برخورهار بوده و دارای بیشترین مقادیر اندازه میانگین داد که لایه ناز ک تیتانیم با ضخامت از متراکم ترین و یکنواخت ترین ساختار برخورهار بوده و دارای بیشترین مقادیر اندازه میانگین داد که لایه ناز ک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ از متراکم ترین و یکنواخت ترین ساختار برخوره از بوده و دارای بیشترین مقادیر اندازه میانگین داد که لایه ناز ک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ از متراکم ترین و یکنواخت ترین ساختار برخوره ای دارای بیشترین مقادیر اندازه میانگین ماه AISI 316L باعث افزایش پتانسیل خوردگی آن از ۲۰/۰۹ است. همچنین ایجاد لایه ناز ک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ روی فولاد زنگ نزن می شود که در نتیجه مقاومت به خوردگی آن از ۲۰۱۳ می ۱۳۰۰ به ۲۰۷۰ و کاهش دانسیته جریان خوردگی از ۲۰۱۰ به مواد از ک

واژههای کلیدی:

فولاد زنگ نزن AISI 316L، لایههای نازک تیتانیم، پراکنش مگنترونی DC، ضخامت، مقاومت به خوردگی.

۱- مقدمه

توده یا پوشش در بیومواد، صنایع هوایی، شیمیایی و دیگر کاربردهای صنعتی است [۱ و ۳]. همچنین لایههای نازک تیتانیم برای کاربردهای میکروالکترونیکی در تکنولوژی تجمع در مقیاس بسیار زیاد' (VLSI) و ابزارهای پایهای سیستم

تیتانیم به خاطر خواص جالبش مانند نسبت استحکام به وزن بالا، پایداری حرارتی عالی، مقاومت به خوردگی در شرایط حاد و زیست سازگاری ذاتی، یک کاندید بالقوه برای استفاده به عنوان

میکروالکترومکانیکی^۲ (MEMS) به خدمت گرفته می شوند. به علاوه آنها به عنوان بولومتر^۳ در حسگرهای مادون قرمز، اتصال دهندههای الکتریکی در ساختارهای عایق حرارتی، حسگرهای لبهای ابر رسانا در میکروکالری سنج و آشکارسازهای نوری و در ترانزیستورهای تک الکترونی^۴ استفاده می شوند [۱]. لایه های نازک تیتانیم برای ساخت ابزارهای نیمه رسانا نیز به طور وسیعی به کار برده می شوند [۴].

فرآيندهاي رسوبدهي فيزيكي بخاربه خصوص پراكنش به طور گستردهای برای تهیه لایه های ناز ک تیتانیم استفاده می شوند [1]. در پراکنش مرسوم (دوقطبی) هدف پراکنش توسط يونهاي شتاب گرفته از يک تخليه گاز، بمباران مي شود و ذرات پراکنش شده روی زیرلایه رسوب داده شده و یک پوشش ايجاد مىشود. درحالي كه يراكنش مگنترونى يك فر آيند پراکنش تقویت شده توسط میدان مغناطیسی است که میزان يونيزاسيون گاز توسط مسير الکتروني مارپيچي به شدت بهبود مي يابد. توسط ميدان مغناطيسي، تخليه تابشي به يک ناحيه نزديك هدف محدود مي شود كه بازدهي پراكنش را در حدود ۱۰۰ برابر نسبت به پراکنش مرسوم افزایش میدهد. همچنین اجازه عملکرد سیستم در فشارهای پایین را نیز میدهد. ایجاد پوشش،ها توسط پراکنش مگنترونی، برخی مزایای خاص دیگر مانند تجهيزات با قيمت يايين، سرعت هاي رسوب دهي بالا، پوششهایی با دانسیته بالا و چسبندگی خوب بین پوشش و زیرلایه را فراتر از فرآیندهای دیگر ارائه میدهد [۵].

لایه های نازک تیتانیم ایجاد شده در شرایط فشار پایه مرسوم (بیش از torr ^{- (۱۹)} ممکن است شامل ناخالصی هایی در شکل اکسید، نیترید و کاربید باشد که آنها را کمتر در خور کاربردهایی با حساسیت بالا مانند میکروالکترونیک ها و حسگرها قرار می دهد. بنابراین، این شرایط می تواند برای کاربردهای محافظتی مورد ملاحظه قرار گیرد. در کاربردهای محافظتی مانند مقاومت به خوردگی یا پوشش های بیومواد، ضخامت لایه ها تأثیر زیادی بر خواص ساختاری، سطحی و استحکام چسبندگی آنها به زیرلایه دارد [۶].

تحقیقات انجام شده در زمینه بیومواد در محیط بافت طبیعی نشان میدهد که در فصول مشتر ک استخوان/بیومواد، زیست سازگاری ماده عامل تعیین کننده موفقیت ماده کاشتنی^۵، هم در قبول آن توسط ارگانیسم و هم در عملکرد مناسب آن است [۲]. پس بیومواد باید از یک سو خواص فیزیکی، شیمیایی و مکانیکی مناسب را تأمین کرده و از سوی دیگر زیست سازگار باشند [۷].

بنابراین به منظور بهرهبرداری از خواص سطحی تیتانیم (مقاومت به خوردگی و زیست سازگاری) در حین حفظ خواص مغزی فولاد زنگ نیزن (استحکام و سختی) و کاهش قیمت ماده کاشتنی، ایجاد لایه نازک تیتانیم با ضخامت مناسب روی فولاد زنگ نزن AISI 316L توصیه شده است [۲، ۷ و ۸]. در این تحقیق عملیات رسوبدهی لایههای نازک تیتانیم در مدت زمانهای مختلف ۵، ۱۰، ۱۵ و ۲۰ دقیقه انجام شد و تأثیر ضخامت بر خواص لایهها مورد بررسی قرار گرفت.

۲- مواد و روش تحقيق

در این تحقیق از ورق فولاد زنگ نزن AISI 316L با ضخامت ۱mm به عنوان زیرلایه استفاده شد. ترکیب شیمیایی این آلیاژ با استفاده از آزمون کوانتومتری تعیین و در جدول (۱) آورده شده ۱ست.

نمونه ها توسط دستگاه برش در ابعاد ۲۰۰×۲۰ بریده شدند و سپس عملیات سنباده زنی با ورق های حاوی ذرات SiC انجام شد تا سطوحی کاملاً صاف و بدون شیار بدست آید. پس از عملیات سنباده زنی، نمونه ها در محلول استن خالص به مدت ۱۵ دقیقه با استفاده از یک دستگاه آلتر اسونیک Struers مدل استفاده از یک دستگاه آلتر اسونیک Struers مدل مدل Metason 60 T کاملاً شسته شده تا هیچ اثری از محلول چربی گیری روی نمونه ها باقی نماند. پس از عملیات شستشو، نمونه ها تحت جریان هوای گرم، خشک شده و بلافاصله در یک دسیکاتور قرار داده شدند.

www.SID.ir

				-	, , ,		-9 1		
Fe	Ni	Mo	Cr	S	Р	Mn	Si	С	عنصر
باقيمانده	۱۰/۳	7/70	19/9	•/••٣	•/•٣۴	١/٢	•/44	•/•٣	درصد وزنى

جدول (۱): تركيب شيميايي فولاد زنگ نزن AISI 316L مورد استفاده به عنوان زيرلايه.

به منظور ایجاد لایههای نازک تیتانیم از یک دستگاه PVD-DC Magnetron Sputtering این دستگاه از یک هدف تیتانیم با درجه خلوص ٪۹۹/۹۹ استفاده گردید. همچنین گاز آرگون به عنوان گاز کاری به کار برده شد. خلوص گاز ٪۹۹/۹۹۹ و جریان آن در طول فرآیند پراکنش ثابت بود. با توجه به قابلیت ها و شرایط بهینه دستگاه، فشار پایه torr ⁹-۱۰×۲، فشار گاز آرگون torr ^۲-۱۰×۲/۲ و توان کاتدی ۱۰۰ در نظر گرفته شد. فاصله هدف - ریرلایه (۳/۲ cm) نیز ثابت بود. همچنین مدت زمان رسوب دهی ۵، ۱۰، ۵۱ و ۲۰ دقیقه تعین شد.

پیش از عملیات رسوبدهی، هدف تیتانیم به منظور تمیز کاری و زدودن آلودگیها و اکسیدهای سطحیاش تحت عملیات پیش- پراکنش قرار گرفت. به این منظور محفظه رسوب تا فـشاریایـه torr ⁻⁻ ۱۰^{-۶} خـلا شـده و هـدف در فـشار گـاز آر گون ۲/۴×۱۰^{-۱}torr و توان کاتدی ۱۰۰ پراکنش شد. پیش-پراکنش به مدت ۱۵ دقیقه یعنی تا زمانی که تابش پلاسماي معرف تيتانيم (رنگ آبي تيره) ظاهر شد، انجام گرفت. ضخامت لایه های نازک تیتانیم با استفاده از یک دستگاه پروفیل سنج Dektak 3 مدل 2.13 اندازه گیری شـد. بـرای تعیین ضخامت، ابتدا روکش نمونههای روکش دار جدا شده تا یک پله به ارتفاع اختلاف سطح لایه از زیرلایه به وجود آید. در این آزمون طول روبش ۱۲۰۰ μm و سرعت روبش پایین (۳۰ ثانیه) در نظر گرفته شد و دادههای مربوط به ۱۲۰۰ نقطه ثبت گردید. همچنین مورفولوژی سطح لایهها توسط یک دستگاه ميكروسكوپ الكتروني روبشي گسيل ميداني (FESEM) Hitachi مدل S-4160 بررسی شد. در این آزمون، ولتاژ کاری ۱۵ kV در نظر گرفته شد.

توپو گرافی سطح لایه های ناز ک تیتانیم نیز با استفاده از یک

دستگاه میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) مدلAFV میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) مدلAFV با مد تماسی ⁶ بررسی شد. در این آزمون محدوده آنالیز با مد تماسی ⁶ بررسی شد. در این آزمون محدوده آنالیز AISI 316L و سرعت اسکن Hz در نظر گرفته شد. (نمونه شاهد) و ضخیم ترین لایه نازک تیتانیم ایجاد شده توسط آزمون پلاریزاسیون مورد ارزیابی قرار گرفت. این آزمون در یک سل الکتروشیمیایی استاندارد G&G شامل سه الکترود کاری (نمونه)، کمکی (پلاتین) و مرجع (کالومل اشباع شده) و حاوی محلول بدن شبیه سازی شده ^۷ (SBF) انجام شد. تر کیب شیمیایی محلول SBF مورد استفاده در آزمون پلاریزاسیون در جدول (۲) آورده شده است.

.0_	پلاريراسيو
غلظت (g/l)	تركيب
٨/٠٠	NaCl
• / 4 •	KCl
•/1٨	CaCl ₂
•/٣٥	NaHCO ₃
•/۴٨	Na ₂ HPO ₄ .2H ₂ O
•/1•	MgCl ₂ .6H ₂ O
•/•9	KH ₂ PO ₄
•/1•	MgSO ₄ .7H ₂ O
۱/۰۰	گلو کز

جدول (۲): ترکیب شیمیایی محلول SBF مورد استفاده در آزمون

آزمون پلاریزاسیون توسط یک دستگاه پتانسیواستات EG&G مدل A 273 انجام شد و برای رسم منحنی ها از روش پلاریزاسیون پتانسیودینامیک استفاده گردید. در طول مدت آزمون دمای محلول توسط یک بخاری آکواریم که دارای ترموستات بود، در °1±۳۷ منطبق با دمای بدن، ثابت نگهداشته

شد. همچنین محدوده پتانسیل از ۵۰۰- تا ۲۰۰۰mV+ (نسبت به پتانسیل مدار باز) با سرعت روبش mV/s در نظر گرفته شد. پیش از انجام پلاریزاسیون، هر نمونه به مدت یک ساعت در دمای ۲°۳۲ بدون اعمال جریان در معرض محلول قرار گرفت تا پتانسیل مدار باز آن به حالت تعادل برسد.

۳- نتايج و بحث





شکل (۱): منحنی تغییرات ضخامت لایههای نازک تیتانیم نسبت به مدت زمان رسوبدهی.

همان طوری که مشاهده می شود با افزایش مدت زمان رسوب دهی، مقدار ضخامت لایه های ناز ک تیتانیم افزایش می یابد که این امر می تواند به دلیل افزایش میزان پراکنش هدف تیتانیم باشد، به عبارت دیگر هر چه مدت زمان رسوب دهی افزایش می یابد، مقدار تیتانیم رسوب داده شده روی زیرلایه افزایش یافته و منجر به افزایش ضخامت لایه های ناز ک تیتانیم می شود. شیب منحنی «ضخامت نسبت به مدت زمان رسوب دهی» نشان دهنده سرعت رسوب دهی است و همان طوری که در شکل مشاهده می شود در طول فرآیند رسوب دهی تقریباً

شکل (۲) تصاویر FESEM سطح لایـههای نـازک تیتانیم با ضخامتهای مختلف را نشان میدهد. همان طوری کـه مـشاهده میشود در همه تصاویر ریزساختاری متراکم، بدون تخلخل و با تفکیک کریستالی خوب وجود دارد کـه ایـن تـراکم و تفکیک

كريستالى با افزايش ضخامت لايەھاى نازك تيتانيم، افزايش مىيابد. ھمچنين با افزايش ضخامت لايەھاى نازك تيتانيم، يكنواختى ساختار بيشتر مىشود.



شکل (۲): تصاویر FESEM سطح لایه های ناز ک تیتانیم با ضخامت های الف): ۸۸ m ، ۷۹ س): ۱۹۴/۳ m ، ۲۹۸/۱ و د): ۲۹۸ ۲۹۸

www.SID.ir

تصویر FESEM سطح لایه نازک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ nm (شکل ۲-د) متراکم ترین و یکنواخت ترین ساختار با بالاترین تفکیک کریستالی را نشان میدهد که در آن نانوذرات تیتانیم، مشهود است.

شکل (۳) منحنی تغییرات اندازه میانگین نانوذرات تیتانیم نسبت به ضخامت لایههای نازک تیتانیم را نشان میدهد که از تصاویر FESEM آنها استخراج گردیده است.



شكل (۳): منحنى تغییرات اندازه میانگین نانوذرات تیتانیم نسبت به ضخامت لایههاي نازك تیتانیم.

همان طوری که مشاهده می شود با افزایش ضخامت لایه های نازک تیتانیم، اندازه میانگین نانو ذرات تیتانیم افزایش می یابد. این امر می تواند به این دلیل باشد که وقتی جوانه ها به تراکم مشخصی می رسند با ادامه بر خورد ذرات به سطح، دیگر جوانه جدیدی تشکیل نمی شود بلکه این ذرات به جوانه های قبلی اضافه شده و باعث رشد آنها می گردند [۹].

شکل (۴) تصاویر AFM سطح لایه های ناز ک تیتانیم با ضخامت های مختلف را نشان می دهد. همان طوری که مشاهده می شود در همه تصاویر توزیع پستی و بلندی ها تقریباً یکسان است، به عبارت دیگر توزیع پستی و بلندی ها مستقل از ضخامت لایه های نازک تیتانیم می باشد. شکل (۵) منحنی تغییرات زبری میانگین سطح نسبت به ضخامت لایه های نازک تیتانیم را نشان می دهد که از تصاویر AFM آنها استخراج گردیده است.



شکل (۴): تصاویر AFM (سه بعدی) سطح لایههای ناز ک تیتانیم با ضخامتهای الف): ۸۸ m ب): ۱۹۴/۳ nm د): ۲۹۸ m د): ۲۹۸ nm

69



شکل (۵): منحنی تغییرات زبری میانگین سطح نسبت به ضخامت لایههای ناز ک تیتانیم.

همان طوری که مشاهده می شود با افزایش ضخامت لایه های نازک تیتانیم، مقدار زبری میانگین سطح افزایش می یابد که این امر می تواند به دلیل افزایش بر خورد ذرات باردار و الکترون ها به سطح در طول فرآیند رسوب دهی باشد، به عبارت دیگر هر چه مدت زمان رسوب دهی افزایش می یابد، میزان بر خورد ذرات باردار و الکترون ها به سطح لایه افزایش یافته و منجر به ایجاد پستی و بلندی های بیشتر و بالا رفتن زبری می شود.

جیاچاندران[^] و همکارانش گزارش نمودهاند که خصوصیات توپو گرافی سطح لایههای نازک تیتانیم ایجاد شده تحت شرایط مرسوم به عوامل فشار پایه، فشار گاز آرگون و توان کاتدی بستگی ندارند [1].

شکل (۶) منحنیهای پلاریزاسیون پتانسیودینامیک فولاد زنگ نزن AISI 316L (نمونه شاهد) و لایه نازک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ nm را در محلول SBF نشان میدهد.

با توجه به منحنی ها مشاهده می شود که با ایجاد لایه ناز ک تیتانیم با ضخامت مناسب روی فولاد زنگ نزن، منحنی پلاریزاسیون به سمت چپ و بالا منتقل شده که نشاندهنده افزایش پتانسیل خوردگی، کاهش دانسیته جریان خوردگی و در نتیجه بهبود مقاومت به خوردگی آن است.

در جـدول (۳) مقـادیر پتانـسیل خـوردگی و دانـسیته جریـان خوردگی فولاد زنـگ نـزن AISI 316L (نمونـه شـاهد) و لایـه

نازک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ nm که از منحنی های پلاریزاسیون آنها استخراج گردیده، آورده شده است.





جدول (۳): نتایج حاصل از منحنی های پلاریزاسیون فولاد زنگ نزن AISI 316L و لایه نازک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ nm.

دانسيته جريان	پتانسیل	
خوردگي	خوردگی	نوع نمونه
(nA/cm^2)	(V vs SCE)	
		فولاد زنگ نزن
401/1	-•/٣١٣	AISI 316L
		(نمونه شاهد)
		لايه نازك تيتانيم
193/19	-•/779	با ضخامت
		۲۹۸ nm

بررسی شکل (۶) و جدول (۳) نشان میدهد که ایجاد لایه ناز ک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ nm روی فولاد زنگ نزن AISI 316L باعث افزایش پتانسیل خوردگی آن از ۳۱/۲۰۰ به ۲۹۷/۲۰ و کاهش دانسیته جریان خوردگی از ۴۵۱/۱ به ۲۹۳/۴ nA/cm میشود که در نتیجه مقاومت به خوردگی آن بهبود مییابد. دانسیته جریان خوردگی پایین لایه نازک تیتانیم ممکن است به لایه نانومتری اکسید تیتانیم (۱۹ ۵۱ - ۱۰) موجود در سطح نسبت داده شود که باعث کاهش حملات خورنده میشود [۵].

www.SID.ir

- [4] H.W. Han and N.E. Lee, "Sputter Deposition Modeling of Ti Thin Film on A Sharp Tip", Thin Solid Films, Vol. 475, pp. 144-149, 2005.
- [5] C.V. Franco, L.C. Fontana, D. Bechi, A.E. Martinelli and J.L.R. Muzart, "an Electrochemical Study of Magnetron-Sputtered Ti- and TiN-Coated Steel" Corrosion Science, Vol. 40, pp. 103-112, 1998.
- [6] Y.L. Jeyachandran, B. Karunagaran, Sa.K. Narayandass and D. Mangalaraj, "The Effect of Thickness on The Properties of Titanium Films Deposited by Dc Magnetron Sputtering", Materials Science & Engineering A, Vol. 458, pp. 361-365, 2007.
- [7] F. Hellal, F. Atmani, B. Malki, H. Sedjal, M. Kerkar and F. Dalard, "Study of Corrosion Behaviour of Ti-coated AISI 316L Stainless Steel in a Simulated Body Fluid Solution", 9th International Symposium of Passivation of Metals and Semiconductors and Properties of Thin Oxide Layers, France, pp. 371-376, 2005.
- [8] C. Fonceca, F. Vaz, M.A. Barbosa, "Electrochemical Behaviour of Titanium Coated Stainless Steel by R.F. Sputtering in Synthetic Sweat Solutions for Electrode Applications", Corrosion Science, Vol. 46, pp. 3005-3018, 2004.
- [9] L. Eckertova, Physics of Thin Films, 2rd ed, Plenum Pub, 1990.
- 1- Very Larg Scale Integration
- 2- MicroElectroMechnical System
- 3- Bolometer
- 4- Single electron transistors
- 5- Implant
- 6- Contact mode
- 7- Simulated Body Fluid
- 8- Jeyachandran

۴- نتیجه گیری

از مجموع مطالعات، آزمایش ها، نتایج و بحث های انجام شده، می توان نتایج زیر را ارائه نمود: ۱- لایه نازک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ از متراکم ترین و یکنواخت ترین ساختار برخوردار بوده و دارای بیشترین مقادیر اندازه میانگین نانوذرات تیتانیم (۹۵ می) و زبری میانگین سطح (۳/۷۶۷ nm) است. ۲- ایجاد لایه نازک تیتانیم با ضخامت ۲۹۸ nm روی فولاد زنگ نزن AISI 316L باعث افزایش پتانسیل خوردگی آن از

۰/۳۱۳ بـ ۷ ۲۷۹۹ و کاهش دانسیته جریان خوردگی از ۴۵۱/۱ بـ ۴۵۱/۴ nA/cm² مـی شود کـه در نتیجه مقاومت بـه خوردگی آن بهبود مییابد.

۵- مراجع

- [1] Y. L. Jeyachandran, B. Karunagaran, Sa. K. Narayandass, D. Mangalaraj, T.E. Jenkins and P.J. Martin, "Properties of Titanium Thin Films Deposited by Dc Magnetron Sputtering", Materials Science & Engineering A, Vol. 431, pp. 277-284, 2006.
- [2] Y. Khelfaoui, M. Kerkar, A. Bali and F. Dalard, "Electrochemical Characterization of a PVD Film of Titanium on AISI 316L Stainless Steel", Surface & Coatings Technology, Vol. 200, pp. 4523-4529, 2006.
- [3] K. A. Whitehead and J. Verran, "The Effect of Surface Properties and Application Method on The Retention of Pseudomonas Aeruginosa on Uncoated and Titanium-Coated Stainless Steel", International Biodeterioration & Biodegradation, Vol. 60, pp. 74-80, 2007.

۷١