

OPTIMASI KONSENTRASI AKTIVATOR TULIUM DALAM PEMBUATAN FOSFOR $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$

Abubakar Ramain, Dyah Dwi Kusumawati, Hefi Yuliaty, Suyati
Pusat Standardisasi dan Penelitian Keselamatan Radiasi - Badan Tenaga Atom Nasional

ABSTRAK

OPTIMASI KONSENTRASI AKTIVATOR TULIUM DALAM PEMBUATAN FOSFOR $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$. Telah dilakukan penelitian untuk mengoptimalkan konsentrasi aktivator tulium dalam pembuatan fosfor $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$, untuk memperoleh kepekaan yang tinggi dan pemudaran yang kecil. Dari hasil penelitian diperoleh kepekaan yang tertinggi 30,8 nC/mGy untuk fosfor $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ dengan konsentrasi aktivator tulium 0,4% M, yang mempunyai kurva pancar dengan puncak terendah $T_1: 100^\circ\text{C}$ dan tertinggi $T_2: 190^\circ\text{C}$, sedangkan pemudarannya yang terendah 5,1% dalam 1 bulan.

ABSTRACT

OPTIMIZATION CONCENTRATION OF THULIUM ACTIVATOR IN FABRICATION OF $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ PHOSPHOR. Optimization concentration of thulium activator in fabrication of $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ phosphor has been conducted, to obtain the highest sensitivity and the lowest fading of $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$. The experimental showed that: the highest sensitivity is 30.8 nC/mGy for $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ phosphor with optimum activator thulium concentration of 0.4 M, its glow curve with lowest peak of $T_1=100^\circ\text{C}$ and the highest peak of $T_2=190^\circ\text{C}$, and fading is lowest of 5.1% after one month.

PENDAHULUAN

Dengan berkembangnya program penggunaan tenaga atom di Indonesia, pemantauan tingkat radiasi lingkungan dan perorangan merupakan suatu tugas yang harus dilaksanakan, baik di sekitar instalasi atom maupun di rumah sakit atau di mana saja zat radioaktif dimanfaatkan untuk kesejahteraan umat manusia. Pada saat ini, pemantauan radiasi lingkungan dan perorangan dilakukan dengan menggunakan dosimeter yang diimpor.

Untuk memenuhi kebutuhan tersebut dengan mengurangi ketergantungan pada luar negeri, maka dilakukan penelitian pembuatan kalsium sulfat dengan aktivator tulium, dengan harapan pada suatu waktu dapat mandiri.

TINJAUAN PUSTAKA

Kalsium sulfat adalah suatu bahan termoluminisensi yang sangat peka digunakan sebagai dosimeter. Telah banyak dilakukan penelitian untuk membuat dosimeter kalsium sulfat dengan berbagai aktivator. Dengan aktivator Mn, dosimeter yang dihasilkan menunjukkan kepekaan yang tinggi dan mempunyai kurva pancar tunggal pada temperatur 90°C . Oleh sebab itu, kemampuannya untuk menyimpan informasi dosis kecil, pemudarannya 60% sesudah

penyinaran 10 hari dan 85% sesudah 3 hari [1]. Hal ini menyebabkan $\text{CaSO}_4:\text{Mn}$ tidak disukai sebagai dosimeter mengingat penggunaannya di lapangan tidak menguntungkan. Kalsium sulfat dengan aktivator dysprosium dan tulium mampu menyimpan informasi dosis dalam waktu yang lama [2]. NAMBI dkk. [3] telah memperlihatkan bahwa Dy dan Tm dalam CaSO_4 sangat berdaya guna, dan telah diketahui pula, konsentrasi lebih kurang 0,1% M menghasilkan daya guna TL yang maksimum. Sudah umum diketahui bahwa ion trivalen tanah jarang Dy^{3+} dan Tm^{3+} dapat menggantikan ion Ca^{2+} secara substitusi, dan jari-jari ion Dy^{3+} dan Tm^{3+} sangat dekat dengan jari-jari Ca^{2+} . Penemuan ini sesuai dengan YAMASHITA [4], SCHMIDT [5] dan AYYANGAR dkk. [6] yang memberikan informasi tentang konsentrasi Dy atau Tm optimum pada rentang konsentrasi antara 0,1% M sampai 0,5% M.

Karakteristik kurva pancar $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ atau $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ bergantung pada rinci persiapan dan komposisi bahan dasar. Banyak peneliti telah memperoleh fosfor dengan intensitas TL pada temperatur rendah 100°C , hanya beberapa persen dari integrasi TL yang dipersiapkan secara maksimum. Kurva pancar fosfor $\text{CaSO}_4:$

Dy atau $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Tm}$, yang dipersiapkan secara optimum pada temperatur 65°C dan 105°C intensitas TL kurang 5% dari integrasi TL, tetapi ada juga peneliti lain [7] memperoleh intensitas TL pada temperatur 100°C lebih besar dari 5%. Menurut pengamatan MEYDAHL [8] pemudaran intensitas TL pada temperatur puncak yang rendah lebih besar. Puncak utama untuk keperluan dosimetri diperoleh beberapa peneliti di sekitar 200°C - 210°C . LAKSMANAN dkk [9] telah mempelajari pengaruh pemanasan dari 300°C - 700°C terhadap kristal sesudah dicuci dengan air destilasi dan menyimpulkan bahwa dengan pemanasan 600°C selama satu jam dihasilkan kepekaan yang optimum. Di samping itu, SCHMIDT dkk [5] memperoleh kepekaan yang optimum pada suhu pemanasan 700°C selama satu jam dan hasil penelitian ABUBAKAR RAMAIN dkk [10] diperoleh kepekaan optimum pada temperatur pemanasan 700°C selama satu jam; sama dengan hasil penelitian SCHMIDT dkk.

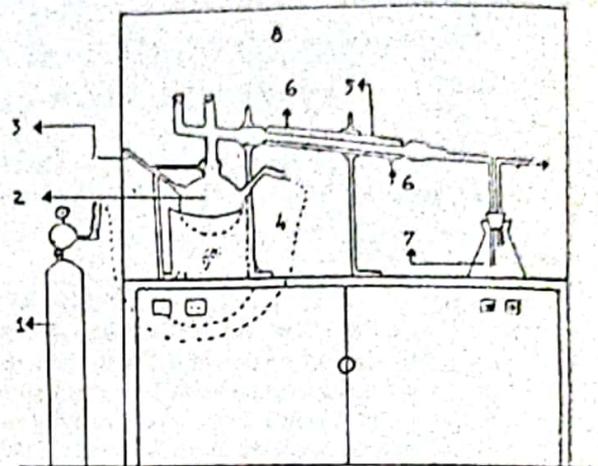
BAHAN, PERALATAN DAN TATAKERJA

Pembuatan Fosfor

Untuk membuat fosfor $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Tm}$ dengan variasi konsentrasi Tm: 0,05%M, 0,08%M, 0,1%M, 0,2%M, 0,3%M, 0,4%M, 0,5%M, 0,6%M, dan 0,7%M, maka dilakukan penimbangan serbuk $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ dan Tm_2O_3 (Merck Analytical Grade).

Tiap-tiap campuran kalsium sulfat dengan konsentrasi aktivator tulium yang tertentu dimasukkan ke dalam pelarut H_2SO_4 pekat dengan volume 75 ml, diaduk secara merata. Larutan ini dituang ke dalam labu gelas didih yang mempunyai tiga cerobong, yang pertama dihubungkan ke tabung gas N_2 , yang kedua ke tabung gelas destilasi dan gelas Erlenmeyer, sedangkan yang ketiga tempat termometer untuk mengukur temperatur. Tabung gelas destilasi dihubungkan ke gelas labu Erlenmeyer berisi larutan NaOH. Seluruh sistem merupakan sistem tertutup (Gambar 1).

Labu gelas didih dipanaskan perlahan-lahan dengan gradien temperatur 260°C - 300°C dengan menggunakan Heating Mantle sehingga larutan kalsium sulfat tulium menguap perlahan-lahan. Uap asam sulfat dimampatkan oleh anion gas N_2 dengan tekanan skala 20 sehingga mengalir melalui tabung destilasi. Tabung destilasi didinginkan dengan aliran air melalui selubung saluran asam sulfat. Uap asam sulfat



Gambar 1. Skema sistem tertutup pembuatan kristal

Keterangan gambar:

- | | |
|----------------------------|--------------------|
| 1. Tabung gas N_2 | 6. Aliran air |
| 2. Labu didih | 7. Labu Erlenmeyer |
| 3. Termometer | 8. Fumehood |
| 4. Aliran gas N_2 | 9. Alat pemanas |
| 5. Labu destilasi | |

dialirkan ke labu gelas yang berisi larutan NaOH yang mampu menetralisasi asam:



Proses ini berlangsung beberapa jam hingga kering. Kristal $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Tm}$ dikeluarkan dari labu dan dicuci hingga pH-nya netral. Kemudian dikeringkan di oven pada temperatur 110°C selama 2 jam. Kristal yang sudah kering digerus dan diayak dengan ukuran $75\ \mu\text{m}$ dan $180\ \mu\text{m}$. Untuk memperoleh kepekaan optimum fosfor $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Tm}$ dipanaskan kembali pada temperatur 700°C selama 2 jam [12].

Peralatan

Untuk mengukur intensitas TL yang dipancarkan oleh fosfor $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Tm}$ digunakan TL-Reader Harshaw 2000 A dan 2000 B, tegangan tabung fotoganda diatur 625 volt sehingga kepekaannya 142 nC/10 detik. Sinyal TL diintegrasikan selama 40 detik sampai temperatur 325°C dengan pengaturan $T_1 = 100^\circ\text{C}$ dan $T_2 = 325^\circ\text{C}$. Laju pemanasan $7^\circ\text{C}/\text{detik}$. Intensitas TL yang dipancarkan fosfor CaSO_4 dicatat oleh piccoammeter TL-Reader 2000 B dalam satuan nC dan μC serta dapat pula dicatat kurva pancarnya menggunakan XY plotter Houston model 2000. Semua pengukuran dilakukan dengan gas

N₂ untuk memperkecil sinyal dari TL yang berasal dari radiasi bukan pengion. Jumlah massa fosfor untuk setiap pengukuran 5 mg.

Kepekaan

Diselidiki optimasi konsentrasi aktivator Tm dalam campuran CaSO₄ · 2H₂O dengan aktivator Tm₂O₃ untuk memperoleh kepekaan yang maksimum. Variasi konsentrasi aktivator Tm adalah 0,05%M, 0,08%M, 0,1%M, 0,2%M, 0,3%M, 0,4%M, 0,5%M, 0,6%M, 0,7%M seperti yang sudah dilakukan oleh PROKIC, M. [11] sebelumnya.

Fosfor CaSO₄: Tm yang diproduksi berbentuk serbuk dengan variasi konsentrasi aktivator, masing-masing dipanaskan 400°C selama satu jam dan seterusnya disinari dengan dosis 50 mGy dengan menggunakan sumber kalibrasi Cs-137. Intensitas TL dibaca setiap massa 5 mg dengan TLD-Reader dalam satuan nC.

Pemudaran

Dipersiapkan dosimeter CaSO₄: Tm dengan konsentrasi aktivator TM: 0,05%M, 0,08%M, 0,1%M, 0,2%M, 0,3%M, 0,4%M, 0,5%M, 0,6%M, dan 0,7%M, masing-masing dipanaskan 400°C selama 1 jam. Kemudian, dimasukkan ke dalam kapsul dan disinari dengan radiasi dengan dosis 50 mGy. Kemudian, intensitasnya diukur dengan menggunakan TL-Reader. Setelah itu, disimpan selama satu bulan dengan kondisi temperatur kamar 30°C dan kelembaban nisbi 60%.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada Tabel 1 dapat dilihat intensitas TL fosfor CaSO₄: Tm dengan variasi konsentrasi aktivator Tm mulai 0,05%M sampai dengan 0,7%M, ternyata terdapat jangkauan kepekaan maksimum, masing-masing untuk konsentrasi 0,08%M kepekaan 26,5 nC/mGy-5mg, 0,1%M

Tabel 1. Intensitas TL CaSO₄: Tm dengan variasi aktivator Tm. Disinari dengan dosis 50 mGy dengan sumber Cs-137

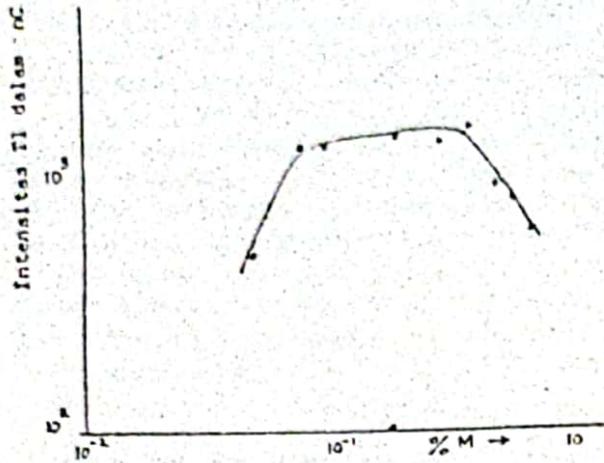
No. Sampel	Intensitas TL (nC) dengan konsentrasi aktivator tulium dalam %M								
	0,05	0,08	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7
1	519,9	1287,2	1324,2	1400,8	1442,7	1455,8	1104,3	657,7	663,3
2	493,9	1356,2	1392,9	1290,7	1412,5	1506,5	902,6	985,9	679,3
3	421,6	1346,2	1292,9	1480,2	1392,7	1684,9	930,6	789,1	607,8
4	520,2	1434,2	1453,6	1340,9	1352,0	1606,3	987,7	743,5	541,7
5	468,4	1246,7	1323,4	1420,5	1403,4	1467,7	913,5	795,4	630,7
6	447,9	1314,9	1359,9	1440,8	1383,0	1497,8	1035,5	850,6	566,1
7	521,1	1316,3	1289,8	1500,6	1392,6	1428,1	867,0	838,6	588,2
8	558,1	1434,3	1302,2	1380	1432,9	1524,9	874,5	838,4	666,7
9	547,0	1285,5	1292,9	1360,7	1363,6	1606	827,6	827,6	571,8
10	-	1217,0	1183,4	1411,4	-	1621,9	1015,7	832,8	655,9
x	496,2	1323,9	1321,4	1402,7	1397,3	1539,9	945,9	823,5	617,2
(nC/5mg)	44,9	71,7	71,6	63,4	29,6	84,6	87,0	44,5	48,8
	9,8	26,5	26,4	28,1	28,9	30,8	18,9	16,5	12,3

Kurva pancar

Sebelum kurva pancar CaSO₄ dibaca, lebih dahulu TL-Reader dikalibrasi dengan TLD-700 Harshaw yang sudah diketahui temperatur kurva puncak -200°C. Untuk memperoleh kurva pancar CaSO₄: Tm, fosfor tersebut disinari dengan dosis 50 mGy menggunakan sumber kalibrasi Cs-137, kemudian diukur kurva pancarnya. Pembuatan kurva pancar dilakukan masing-masing dengan konsentrasi yang bervariasi.

kepekaannya 26,4 nC/mGy-5mg, 0,2%M kepekaannya 28,1 nC/mGy-5mg, 0,3%M kepekaannya 28,9 nC/mGy-5mg, dan untuk 0,4%M kepekaannya 30,8 nC/mGy-5mg.

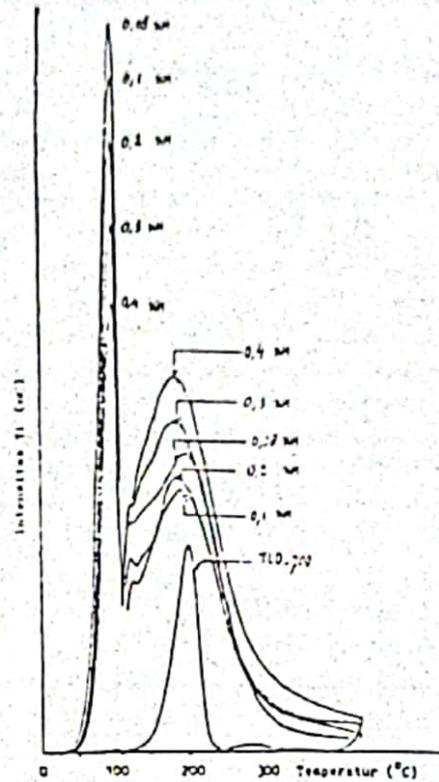
Dalam Gambar 2 diperlihatkan bahwa terdapat jangkauan kepekaan maksimum dari 0,08%M sampai 0,4%M hampir mendekati hasil yang diperoleh oleh AYYANGAR dkk. [6]. Bertambah besar konsentrasi aktivator menyebabkan terjadi peredaman (quenching) aktivator sehingga intensitas TL berkurang.



Gambar 2. Tanggapan fosfor $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ dalam nC sebagai konsentrasi aktivator Tm

Pada Gambar 3 dapat dilihat kurva pancar $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ dengan variasi konsentrasi aktivator Tm dari 0,08%M sampai dengan 0,7%M. Letak puncak pertama dengan temperatur 100°C tetap untuk semua konsentrasi, sedangkan tinggi puncak turun sebagai fungsi pertambahan konsentrasi aktivator.

Puncak kedua untuk konsentrasi 0,08%M sama dengan TLD-700 Harshaw dengan temperatur 200°C , sedangkan untuk konsentrasi 0,1%M 200°C , konsentrasi 0,2%M, 195°C , konsentrasi 0,3%M, 195°C dan konsentrasi 0,4%M, 190°C . Jadi, terjadi pergeseran temperatur puncak kedua menjadi turun, bila konsentrasi aktivator bertambah besar. Kasus ini sama dengan hasil penelitian yang diperoleh LAKSHMANA-M A. Rd., dkk. [13].



Gambar 3. Kurva pancaran $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ dengan variasi konsentrasi aktivator Tm .

Pada Tabel 2 dapat dilihat pemudaran (fading) intensitas TL fosfor CaSO_4 sesudah satu bulan untuk variasi konsentrasi aktivator Tm dari 0,05%M sampai dengan 0,7%M. Ternyata

Tabel 2. Pemudaran Intensitas TL fosfor $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ sesudah satu bulan

Konsentrasi aktivator $\text{Tm}(\% \text{ M})$	Intensitas TL rata-rata mula-mula (nC)	Intensitas TL rata-rata sesudah 1 bulan (nC)	Prosentase penurunan intensitas TL (%)
0,05	634,99	454,09	28,5
0,08	1265,60	1146,50	9,4
0,1	1321,60	1099,60	16,8
0,2	1373,90	1144,90	16,6
0,3	1312,89	1165,60	11,2
0,4	1472,17	1397,68	5,1
0,5	980,99	929,05	5,3
0,6	834,98	788,05	5,6
0,7	648,08	572,96	11,6

untuk konsentrasi 0,4%M diperoleh persentase penurunan intensitas paling kecil sebesar 5,1%.

Berdasarkan pada data kepekaan kurva pancar dan pemudaran intensitas TL, maka dapat ditetapkan optimasi konsentrasi aktivator Tm terbaik adalah 0,4%M, karena mempunyai kepekaan yang tertinggi dan pemudaran intensitas TL yang terendah.

KESIMPULAN

Optimasi konsentrasi aktivator Tm dalam pembuatan fosfor CaSO_4 : Tm dengan kepekaan 30,8 nC/mGy dan pemudaran 5,1%. Kurva pancarnya mempunyai dua puncak, puncak pertama dengan temperatur 100°C dan puncak kedua 190°C.

DAFTAR PUSTAKA

1. Asorin, J., *Luminescence Dosimetry Theory and Application*, Ed. Tecnico Cientificas Sadecv (1990).
2. Herowith, Y. S., *Thermoluminescence and Thermoluminescent Dosimetry*, Vol. 1, (1984) 39-41.
3. Nambi, et al., *Thermoluminescence of CaSO_4 doped with Rare Earths*, J. Phys. C. 7 (1974) 4403.
4. Yamashita, T., et al., *Calcium sulphate activated by Thullium or Dysprosium for thermoluminescence dosimetry*, Health Phys. 21 (1971) 295.
5. Schmidt, K., et al., *Influence of preparation and annealing on the properties of CaSO_4 : Dy thermoluminescent phosphor*, Proc. 4th. ICLD, Institute Nuclear Physics, Krakoro, (1974) 237.
6. Ayyangar, et al., *Mixed field dosimetry with CaSO_4 : Dy*, Phys, Med. Biol. (1974) 565.
7. Leticia, L. C., *Development of a CaSO_4 : Dy Dosemeter*, Institute de Resquisas Emergíticas Nucleares IPEN-CNEN/SP Brazil.
8. Meydahl, V., *Dosimetry Techniques in TL Dating*, Riso Rep. No. 261, Danish AEC, Riso, Roskilde (1972).
9. Lakshmanan, A. R., et al., *Thermal history and reusebility of CaSO_4 : Dy Teflon Discs*, Phys., Med. Biol., 24 (1979) 999.
10. Abubakar Romain, dkk., *Kalsium sulfat dengan aktivator disprosium*, Proc. Pertemuan Ilmiah Kedokteran dan Biologi Nuklir, 18-19 Juni 1987, 333-348.
11. Prockic, M., *Development of highly sensitive CaSO_4 : Dy/Tm and MgB_4O_7 : Dy/Tm sintered TLD*, Nuclear Instrument Methods (1975) 83, 1978.
12. Kasa, I., *Dependence of thermonluminescence respons of CaSO_4 : Dy and CaSO_4 : Tm on grain size and activator concentration*. J. RPD, vol. 33 No. 1/4 (1990) 299-302.
13. Lakshmanan, A. R., et al., *Grain Size and Dy Concentration Effect in Thermoluminescent CaSO_4 : Dy*, J. RPD vol. 22, No. 3 (1988) 173-177.

DISKUSI

Gunanjar:

1. Apa manfaat yang diperoleh dengan memakai satuan %M, mengapa tidak memakai satuan % berat saja yang mudah dan lazim digunakan?
2. Pada Gambar 3 mohon penjelasan, mengapa digunakan satuan intensitas TL (pada sumbu tegak) padahal aktivitas yang digunakan tulium (Tm)?
3. Bagaimana cara pengukuran suhu pancar (Gambar 3)?
4. Kristal fosfor CaSO_4 : Tm hasil pembuatan tersebut, apakah dianalisis kandungan Tm-nya? Berapa %M, Tm dalam kristal tersebut?

Abubakar:

1. Penggunaan %M dalam pembuatan kristal fosfor secara konvensional telah digunakan, tidak seperti campuran kimia biasa.
2. Pada Gambar 3 di sumbu ordinat digunakan satuan intensitas TL karena agar bisa diketahui dosis radiasi yang diserap, besarnya proporsional besar intensitas TL dengan dosis serap dalam mGy.
3. Suhu puncak kurva pancaran dibaca dengan TL-reader buatan Harshaw.
4. Besar kandungan aktivator Tm dari persiapan pembuatan fosfor sudah ditentukan dengan perhitungan dan pertimbangan.

Suwarno W.:

1. Dapatkah dijelaskan mengapa pada konsentrasi aktivator yang bertambah, intensitas TL menurun kembali?
2. Mengapa pada konsentrasi 0,4%M, prosentase pemudaran paling rendah, juga pada konsentrasi aktivator rendah (0,08%M), sedangkan pada konsentrasi lain lebih tinggi?
3. Dalam makalah dijelaskan bahwa intensitas TL berkurang pada konsentrasi 0,4%M karena Quenching. Apakah Quenching ini tidak disebabkan oleh laju pemanasan yang terlalu tinggi dan bukan oleh tingginya konsentrasi aktivator?

Abubakar:

1. Pembentukan jebakan (trap) elektron bertambah besar konsentrasi aktivator jebakan bertambah besar pula, mencapai kondisi jenuh dan kemudian menurun sehingga pada kondisi akhir bila disinari, dievaluasi menghasilkan TL yang kecil.
2. Distribusi elektron pada jebakan elektron cukup tinggi pada jebakan elektron yang lebih dalam.
3. Laju pemanasan untuk konsentrasi yang lain sama dengan untuk konsentrasi 0,4%M. Jadi, kami ambil kesimpulan tidak disebabkan oleh laju pemanasan, tetapi disebabkan konsentrasi aktivator Tm.

A. Aziz B.:

Satuan konsentrasi Tm disebutkan dengan satuan %M dan dengan satuan ini, saya kira tidak lazim. Jadi, mohon penjelasan mengenai satuan ini dan konsentrasi yang dipakai ini adalah gram/L larutan (molal) atau gram mol/L (molar).

Abubakar:

Seperti pertanyaan saudara Gunanjar, satuan %M dalam pemberatan kristal fosfor secara konvensional sejak tahun 60-an sampai sekarang masih digunakan.