

PENGUKURAN RADIOAKTIVITAS ^{32}P DENGAN METODE KALORIMETRI

H. Imas Komala

Pusat Produksi Radioisotop - Badan Tenaga Atom Nasional

ABSTRAK

PENGUKURAN RADIOAKTIVITAS ^{32}P DENGAN METODE KALORIMETRI. Radioaktivitas larutan ^{32}P diukur dengan metode kalorimetri. Untuk mengubah seluruh partikel β yang dipancarkan oleh radioisotop ^{32}P menjadi energi termal, cuplikan ditempatkan dalam pot timbal setebal 5 mm. Dicoba dua cara pengukuran, yang pertama: dengan metode biasa yaitu metode yang menggunakan satu sel dan dikalibrasi dengan mengalirkan sejumlah daya tertentu. Yang kedua, dengan metode nol yaitu mengalirkan sejumlah daya sel lainnya yang tidak berisi cuplikan untuk meniadakan tegangan keluaran (voltage output) dari larutan cuplikan. Pada cara kedua ini tidak diperlukan koreksi terhadap kesalahan hilangnya panas. Sehingga faktor kesalahan pengukurannya lebih kecil daripada cara pertama yaitu $\pm 0,58\%$. Hasil akhir yang diperoleh pada jam 12:00 tanggal 31 Maret 1989, radioaktivitas larutan ^{32}P pada cuplikan A dan B ialah $8,699 \times 10^9$ Bq dan $1,787 \times 10^9$ Bq, dengan faktor kesalahan sekitar $0,58\%$.

ABSTRACT

CALORIMETRIC MEASUREMENT OF THE RADIOACTIVITY OF ^{32}P . Radioactivity of ^{32}P solution was measured calorimetrically. To convert whole decay energy evolved from the ^{32}P contained in a glass vial into thermal power, 5 mm-thick lead pot was used. Two modes of measurements were tested, one was ordinary method to use single cell calibrated by known thermal power through electric heater fixed on the cell, and the other was a null method applying the thermal power on the opposite cell to cancel out the output voltage from the sample solution. In the later case, correction for heat loss was not necessary. The overall uncertainties of the measurement of radioactivity of ^{32}P was estimated to be $\pm 0,58\%$. The final value of the radioactivity at 12:00 31st, March 1989 was $8,699 \times 10^9$ Bq and $1,787 \times 10^9$ Bq for the sample A and B respectively, with an uncertainties of commonly $\pm 0,58\%$.

PENDAHULUAN

Telah digunakan desain baru dari alat kalorimeter jenis sel kembar tipe alir-panas (heat-flow) yang ditemukan oleh T. Genka dkk. [1]. Rancangan ini sangat berguna bagi pengukuran radioaktivitas nuklida pemancar α , β atau sinar γ energi rendah dengan aktifitas tinggi. Alat ini mempunyai kepekaan tinggi yaitu $29 \text{ mV}/^\circ\text{K}$ pada perubahan keluaran $1 \mu\text{V}$ sebanding dengan perbedaan suhu $3,4 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{K}$ [1].

Pengukuran radioaktivitas dengan metode kalorimetri, untuk 1 GBq Tritium, $0,1 \text{ GBq}$ ^{14}C atau ^{35}S dapat diukur dengan tepat. Hanya saja masalah-masalah yang timbul akibat absorpsi diri adalah lolosnya partikel selama pengukuran, kesalahan akibat pengenceran, dan ketergantungan energi pada efisiensi deteksi tidak akan dijumpai. Disamping itu pengukuran keradioaktifan absolut dapat dilakukan bila energi rata-rata per disintegrasi diketahui dengan tepat. Metode ini memiliki ketepatan dan ketelitian yang cukup tinggi untuk teknik analisis radioisotop tak merusak (non-destructive analysis).

Selain juga memiliki beberapa keuntungan dalam aspek-aspek ekonomis, keamanan pengukuran, dan keamanan lingkungan. Salah satu aspek ekonomisnya adalah bahwa seluruh larutan cuplikan dapat diukur bahkan dapat langsung dijual setelah pengukuran selesai.

Telah diketemukan beberapa pengukuran ^{32}P secara kalorimetri, misalnya penentuan besaran laju disintegrasi. Zumwalt dkk. (1948) [2], mengukur laju disintegrasi dengan Kalorimeter Nitrogen Cair dengan ketepatan pengukuran sebesar $\pm 1,2\%$. Bayly [3] mengukur laju disintegrasi 12 mCi ^{32}P dengan faktor kesalahan $\pm 0,7\%$ menggunakan Mikrokolorimeter Kembar (1949), namun kondisi peralatannya masih perlu perbaikan lebih lanjut.

Makalah ini mengemukakan cara sederhana yang sesuai bagi pengukuran radioaktivitas larutan ^{32}P aktivitas tinggi tanpa mengabaikan ketelitian, dengan menggunakan kalorimeter jenis sel kembar tipe alir-panas.

Setiap kumpulan memiliki tahanan listrik $100,0 \pm 0,1$ Ohm. Energi termal dari sel-sel mengalir disekeliling alumuniumnya (berat ± 15 kg) yang dibungkus dengan karet setebal 30 mm. Besi setebal 1,6 mm dilapiskan pada karet busa untuk melindungi penyekat (mantel) alumunium dari tembusan (penetrasi) panas yang terlokalisasi melalui penyekat (isolator). *Amplifier chopper* memiliki kepekaan yang tinggi (skala penuhnya dari $\pm 1 \mu V$ sampai $500 \mu V$, dalam 9 selang), dan berada dalam bak yang sama sehingga merupakan karakteristik dari alat ini. *Amplifier* lain dengan kepekaan yang lebih rendah (skala penuhnya $\pm 10 \mu V$ sampai $5000 \mu V$, dalam 8 selang) juga dipasang, tetapi di luar bak. Seperti terlihat pada gambar 2, bahwa larutan cuplikan radioaktif disimpan dalam salah satu sel, sedang dalam sel lainnya diletakkan *dummy* (bahan yang sama dengan cuplikan, dimaksudkan untuk menjaga keseimbangan kapasitas panas di kedua sel). Keluaran dari kedua set *thermomodule* dihubungkan oleh polaritas yang ditimbulkan oleh fluktuasi suhu lingkungan. Sehingga, hanya sinyal keluaran netto dari cuplikan yang masuk dalam *amplifier*.

Nuklida ^{32}P

^{32}P meluruh dengan memancarkan β murni yang menjadi isotop stabil ^{32}S dengan waktu paruh $14,282 \pm 0,005$ hari, energi maksimum $1710,3 \pm 0,6$ MeV, dan energi rata-rata spektrum β adalah 695 keV. Dalam hal ini, nuklida ^{32}P memancarkan energi rata-rata $1,18$ keV per disintegrasi sebagai *bremsstrahlung* dalam. Maka energi rata-rata total perdisintegrasi adalah $696,18$ KeV [4].

Partikel β memiliki energi kinetik $1,7$ MeV yang dapat dengan mudah menembus dinding vial gelas dan sel. Tetapi vial yang dimasukkan ke dalam pot timbal dengan ketebalan cukup, dapat menyerap energi kinetik partikel β dan diubahnya menjadi energi termal. Pot timbal setebal 5 mm, tinggi 64 mm dan diameter luar 36 mm digunakan sebagai penyerap partikel β .

Radioaktivitas A dapat dihitung dari daya termal P dibagi dengan energi rata-rata spektrum β

$$A = P/\bar{E} \tag{1}$$

Bila 1 MeV = $1,602 \times 10^{-13}$ J, daya termal yang berasal dari 37 MBq (1 mCi) ^{32}P dapat dihitung sebagai berikut :

$$P = 3,7 \times 10^7 \times 1,602 \times 10^{-13} \times 696,18 \times 10^{-3} \\ = 4126,5 \times 10^{-9} \text{ J/det.} = 4,127 \mu W$$

Berdasarkan hukum Newton bagi pendinginan, persamaan berikut dapat diterapkan pada kalorimeter *heat-flow* [5].

$$T_c - T_e = [P/k] 1 - e^{-kt/c} \tag{2}$$

k = koefisien penghantar (transfer) panas (dari termomodul)

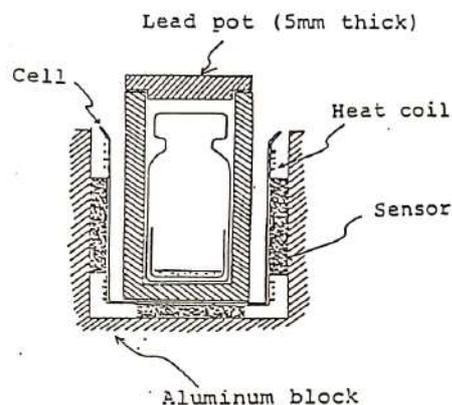
p = daya yang terjadi dalam sel

c = kapasitas panas total (sel beserta cuplikan)

Bila t tak terhingga, maka persamaan (2) menjadi :

$$P = k (T_c - T_e) \tag{3}$$

Dengan demikian pengukuran daya termal terbebas dari faktor kapasitas panas, sehingga penggunaan wadah dengan kapasitas panas yang besar seperti pot timbal secara prinsip dapat diterima. Dan gambar 4. menunjukkan larutan cuplikan dalam vial gelas yang berada dalam pot timbal dan dimasukkan ke dalam sel kalorimeter.



Gambar 4. Larutan cuplikan dalam vial gelas dan pot timbal berada di dalam sel kalorimeter

BAHAN DAN TATA KERJA

Penyiapan larutan cuplikan ^{32}P [6]

Bahan sasaran (target) berupa belerang yang dimurnikan secara sublimasi sebanyak empat kali. Irradiasi dilakukan dalam reaktor JMTR (Japan Material Test Reactor) dengan fluks neutron termal pada $2,1 \times 10^{14} n \text{ cm}^{-2} \text{ det}^{-1}$ selama satu periode (21 hari). ^{32}P diperoleh dari hasil reaksi inti $^{32}S (n,p) ^{32}P$ pada daerah fluks neutron cepat (60 mb). Radionuklida lain yang merupakan pengotor adalah ^{33}P , sebagai hasil samping dari $^{33}S (n,p) ^{33}P$ yang juga dengan neutron cepat (65 mb). Sedang waktu paruhnya adalah $25,34$ hari.

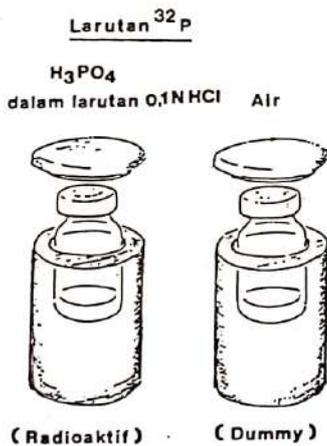
Hasil irradiasi yang diperoleh disublimasi (3 mmHg, 500 °C, 70 menit) dan ditambahkan HCl ($0,1$ N, 70 ml), kemudian dipanaskan (100 °C, 60 menit). Selanjutnya ditambahkan lagi HCl ($0,1$ N, 70 ml) dan dipanaskan (100 °C, 30 menit). Setelah dingin dimurnikan dengan kolom penukar ion.

Larutan tersebut kemudian diuapkan lalu ditambahkan 10 ml larutan HCl 0,1 N dan diatur keasamannya.

Karakteristik larutan cuplikan adalah sebagai berikut:

- H₃PO₄ dalam larutan HCl
- Keasaman ~ 0,1 N
- Kandungan logam berat < 10 btj
- Kepadatan total < 1 mg/ml
- Substansi non-volatile < 1 mg/ml
- Bebas pengembalian radioaktivitas spesifik
- Kemurnian radionuklida > 99 % (termasuk terhadap ³³P)

Disiapkan dua buah larutan cuplikan A dan B dengan berat 0,3094 gram dan 0,3048 gram masing-masing dalam vial gelas 50 ml dan dimasukkan ke dalam pot timbal setebal 5 mm. Disiapkan pula *dummy* yang berupa pelarut cuplikan (volume sama dengan cuplikan) dan mendapat perlakuan yang sama seperti pada cuplikan. (gambar 5).



Gambar 5. Larutan cuplikan radioaktif dan *dummy*

Kalibrasi kalorimeter

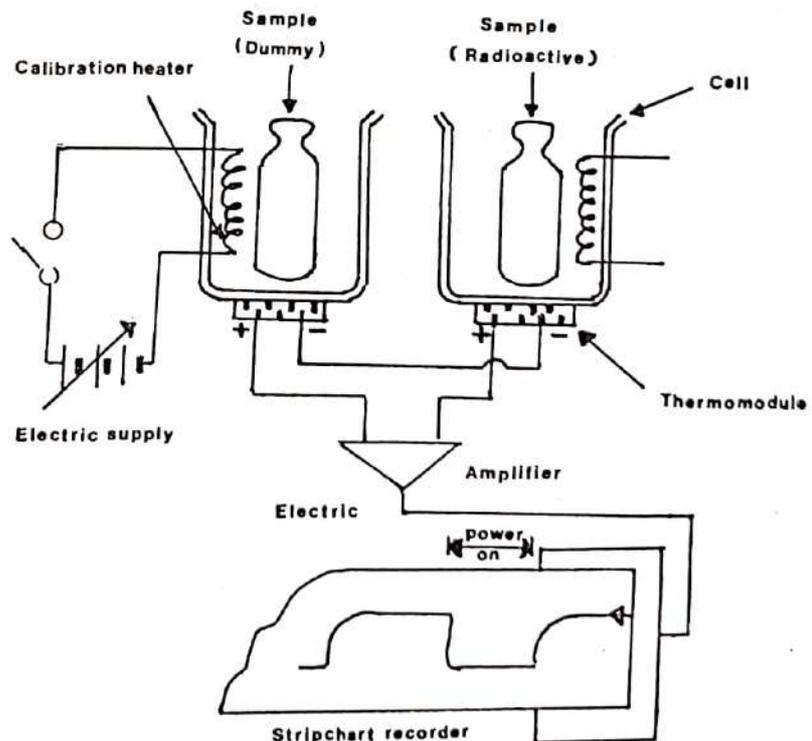
Kalibrasi bagian kiri dan kanan sel kalorimeter dilakukan dengan mengalirkan sejumlah arus listrik melalui kumparan pemanas mangan yang dilingkarkan pada dinding sel. Kedua kumparan (coil) diatur agar setara dengan tahanan listrik sebesar $100 \pm 0,1$ Ohm. Sumber arus berasal dari catu daya (power supply) dengan kestabilan tinggi (koefisien temperatur 30 ppm/°C).

Dari hasil pengamatan didapat besaran faktor koreksi untuk sel kanan dan kiri adalah 6,98 μ W/ μ V dan 7,2 μ W/ μ V Perbedaan kepekaan (sensitivitas) antara keduanya ialah 3,15 %.

Pengukuran Radioaktivitas ³²P

Metode I, radioaktivitas larutan ³²P diukur dengan cara biasa. Dalam hal ini, ditentukan hilangnya panas dari permukaan pot timbal. Tahapan pengerjaan adalah sebagai berikut: pertama, dialirkan sejumlah arus listrik ke dalam sel yang sedang dalam keadaan kosong. Kedua, ke dalam sel yang sama dimasukkan pot timbal, lalu dialiri arus listrik yang sama besar dengan pertama. Tegangan yang keluar pada tahap kedua lebih kecil daripada yang pertama, karena ada sejumlah panas yang lolos dari permukaan pot timbal. Rasio hilangnya panas dihitung dari perbedaan keluaran antar keduanya, yang berasal dari hasil percobaan sebanyak 5 kali dengan *range* penguat (amplifier) sebesar 10-5000 μ V dan diperoleh nilai rata-rata 2,26%. Ketiga, mengukur tegangan yang berasal dari larutan cuplikan. Besaran aktivitas dihitung dan dikoreksi dengan faktor hilangnya panas.

Metode II, adalah metode nol di mana daya termal yang ditimbulkan oleh cuplikan ditentukan dengan membandingkannya dengan daya termal sumber arus listrik yang dialirkan terhadap sel di sebelahnya, untuk mengimbangi daya termal dari cuplikan tersebut. (Gambar 6).



Gambar 6. Skema diagram sistem pengukuran pada metode II

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil pengukuran radioaktivitas larutan ^{32}P ditunjukkan dalam tabel 1.

Tabel 1. Radioaktivitas cuplikan A & B diukur dengan metode I dan II

Cuplikan A:

Metode	Waktu pengukuran (1989); (10^{10}Bq)	Waktu pembandingan (1989); (10^{10}Bq)	Aktivitas (10^9Bq)
I	16:28,27-3; 1,047	12:00,31-3; 8,697	8,725
	04:00,28-3; 1,029	" ; 8,753	-
II	18:26,27-3; 1,043	" ; 8,699	-
	-	-	-

Cuplikan B:

Metode	Waktu pengukuran (1989); (10^{10}Bq)	Waktu pembandingan (1989); (10^{10}Bq)	Aktivitas (10^9Bq)
I	04:00,30-3; 1,916	12:00,31-3; 1,796	1,797
	04:27,31-3; 1,825	" ; 1,798	-
II	22:30,30-3; 1,836	" ; 1,787	-
	-	-	-

Koreksi bremsstrahlung

Jumlah energi yang hilang akibat peristiwa *bremsstrahlung* sangat kecil, karena sebagian besar foton-foton yang berasal dari *bremsstrahlung* luar tertahan oleh bahan gelas dan pot timbal. Ramthun [7] mengemukakan pendekatan perhitungan energi termal yang hilang sebagai akibat *bremsstrahlung* dalam ialah:

$$P_b = 11,2 \times 10^{-3} \times r^2 \times X \quad (\text{W})$$

r = jarak pengukuran dari permukaan sel kalorimeter, X = paparan radiasi (R/j pada r). Pada percobaan ini hasil paparan radiasi pada jarak 30 cm dari cuplikan B pada jam 10:00 17/3 1989 adalah 0,4 mR/j.

Energi yang hilang pada waktu pembandingan adalah 0,2 μW .

Rasio terhadap besarnya daya yang disebabkan oleh cuplikan B hanya 0,1%. Dan perkiraan ketidakpastian terhadap nilai yang diperoleh ditunjukkan pada tabel 2.

Tabel 2. Besaran ketidakpastian

Sumber ketidak-pastian	Metode I (%)	Metode II (%)
E spektrum beta	0,04	0,040
Kalibraskalorimeter	0,1	0,1
Kelinjeran amplifier	0,5	0,5
Kelinjeran rekorder	0,25	0,25
Koreksi heat-loss	0,5	-
Koreksi bremsstrahlung	0,1	0,1
Ketidakpastian $T_{1/2}$	0,04	0,04
Total ketidakpastian	*0,77	*0,59

Catatan:

Besaran-besaran *0,77 dan *0,59% tersebut tidak merupakan hasil penjumlahan langsung dari angka-angka diatasnya, melainkan melalui pengolahan lebih lanjut dari data-data tersebut.

Maksud dari penampilan angka-angka tersebut adalah untuk menyatakan bahwa nilai ketidakpastian berasal dari parameter-parameter tersebut.

Hasil akhir pengukuran radioaktivitas ^{32}P

Perbedaan hasil antara metode I dan II untuk kedua cuplikan (A dan B) masih berada di bawah nilai ketidakpastian. Namun demikian yang dengan metode II lebih baik, karena metode ini tidak memerlukan koreksi kehilangan panas (*heat loss*) sehingga nilai ketidakpastiannya lebih kecil. Hasil dari metode II ditetapkan sebagai akhir dari lajur disintegrasi pada jam 12.00 tanggal 31 Maret 1989 adalah 8.699×10^9 dan $1,787 \times 10^9$ disintegrasi per detik untuk cuplikan A dan B dengan nilai ketidakpastian 0,59 %.

KESIMPULAN

Metode pengukuran radioaktivitas untuk nuklida yang memancarkan partikel β menggunakan kalorimeter sel kembar tipe *heat flow*, dapat ditetapkan dengan pot timbal yang ketebalannya cukup untuk menyerap seluruh partikel β tersebut yang kemudian diubah menjadi energi termal. Metode nol memiliki keuntungan dalam menentukan daya, tanpa diperlukan koreksi *heat loss*.

DAFTAR PUSTAKA

1. GENKA, T., KOBAYASHI, K., HAGIWARA, H., A Calorimeter for the Measurement of the Activity of Tritium and other pure Beta Emitters, Appl. Radiat. Isot., vol. 38, 10, pp 845-850, 1987.
2. ZUMWALT, L.R., et al., Science, 1948, pp 107-147.
3. BAYLY, J.G., A Calorimetric Measurement of the Disintegration Rate of a ^{32}P Source, Canadian Journal of Research, vol. 28, Sec. A, 520-529, 1950.
4. BROWNE, E., FIRESTONE, R.B., Table of Radioactive Isotopes, Ed. V, S. Shirley, John Wiley & Sons, 1986.
5. GUNN, S.R., Radiometric Calorimetry, Nucl. Instr. Meth., vol 29, pp 1-24, 1964.
6. IZUMO, M., Private Communication, JAERI, Tokai, Ibaraki-ken, Japan 319 - 11
7. RAMTHUN, H., Microcalorimetry Determination of the Beta-energy of ^{90}Sr - ^{90}Y , Proc. Symp. Standardization of Radionuclides (IAEA, Vienna, 1967) pp 589 - 599

DISKUSI

Aang Hanafiah :

1. Sejauh mana atau berapa batas terendah yang bisa dideteksi oleh kalorimeter ini ?
2. Bagaimana kalau yang diukur merupakan unsur campuran yang mengandung α , β dan γ .

Imas Komala :

1. Sampai orde (mCi) atau (Ci).
2. Untuk campuran radionuklida yang memancarkan partikel α , β , dan γ , tidak dapat diukur radioaktivitasnya.

M. Faruq :

Apakah keuntungan metoda kalorimeter dibanding metoda ionisasi gas dan scintilasi ?

Imas Komala :

Keuntungannya adalah :

Bebas dari absorpsi diri, faktor pengenceran, ketergantungan energi dari efisiensi deteksi, faktor kehilangan perhitungan (counting loss)

Purwadi Kasino P.:

Apakah Th dan uranium dapat ditentukan dengan teknik kalorimetrik, mengingat Th dan Uranium memancarkan α dan β yang tinggi.

Imas Komala:

Th dan U pemancar α dan β , dapat diukur radioaktivitasnya dengan metode kalorimetri.

Radionuklida pemancar sinar γ energi rendah dapat pula diukur radioaktivitasnya dengan metode kalorimetri

Radionuklida pemancar sinar γ energi tinggi tidak dapat diukur dengan metode kalorimetri.

Zurhan :

1. Penelitian di luar negeri dalam abstrak kami tidak terlihat keterangan tersebut. Karena penelitian di luar negeri lancar, di Indonesia banyak kendala. Barangkali dalam makalah lengkap tercantum.

2. Acknowledgment atau coauthor untuk advisor ?

Imas Komala :

1. Di Indonesia belum ada.

2. Acknowledgment lupa tidak dicantumkan.

Supaya penulis disurati untuk melengkapinya.