

Efek Sudut Divergensi Horizontal Kolimator 3 terhadap Performa Difraktometer Neutron Serbuk DN3

A. Fajar dan H. Mugirahardjo

*Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN
Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang 15314*

ABSTRAK

Efek Sudut Divergensi Horizontal Kolimator 3 terhadap Performa Difraktometer Neutron Serbuk DN3. Telah dilakukan studi efek perubahan sudut divergensi horizontal kolimator 3 terhadap performa difraktometer neutron serbuk DN3. Penurunan daya reaktor dari 22,5 MW menjadi 15 MW kemudian penggantian kolimator 3 dari kolimasi 10' menjadi 6' telah menyebabkan intensitas berkas terukur turun sebesar 49,45%, dan sebesar 16,12% merupakan kontribusi dari penggantian kolimator. Hal ini menyebabkan waktu pengukuran yang lebih lama untuk mendapatkan pola difraksi dengan intensitas yang sama. Namun di sisi lain, penggunaan kolimasi yang lebih kecil ini membuat resolusi peralatan menjadi lebih baik terutama pada sudut hamburan di mana puncak difraksi banyak berkumpul. Kompromi di antara keduanya harus dipertimbangkan dengan baik.

Kata Kunci : difraktometer, intensitas, resolusi, TiO₂, silikon

ABSTRACT

The Effect of Horizontal Divergence Angle of Collimator 3 on the Performance of Neutron Powder Diffractometer DN3. The changing effect of horizontal divergence of collimator 3 on the performance of neutron powder diffractometer DN3 has been studied. The decreasing of reactor power from 22.5 MW to 15 MW and the changing of collimation of collimator 3 from 10' to 6' cause the decreasing of observed neutron beam intensity by 49.45%, and from this value about 16.12% from the changing of collimator. Therefore it needs longer measurement time to obtain the diffraction pattern with same intensity. Otherwise, the resolution become higher particular in the scattering angle where the most of Bragg peak located. The compromise between resolution and intensity has to be considered carefully.

Keywords : diffractometer, intensity, resolution, TiO₂, silicon

1 Pendahuluan

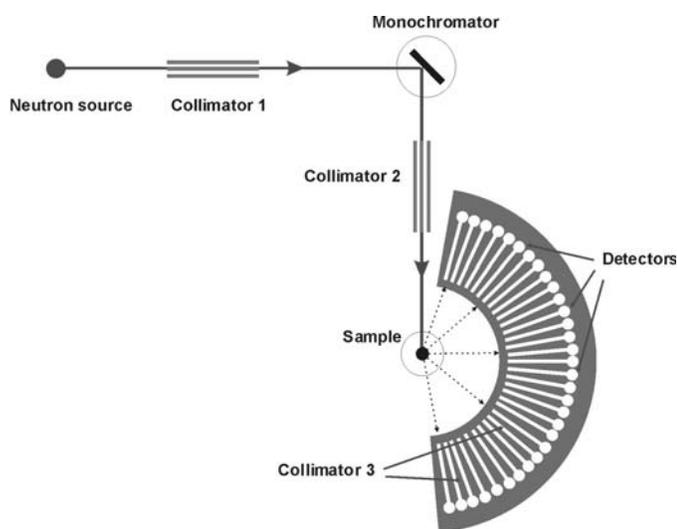
Difraktometer Neutron Serbuk Resolusi Tinggi (DN3) atau *High Resolution Powder Diffractometer* (HRPD) telah diselesaikan di pasang pada tahun 1992 di Bidang Spektrometri Neutron, Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (saat itu bernama Instalasi Spektrometri Neutron, Pusat Penelitian Sains Materi) BATAN. Peralatan DN3 memanfaatkan tabung pemandu neutron NGT-2 yang terbuat dari gelas Borkron berlapis Ni-58 dan berjarak 71 m dari teras reaktor. Pada Gambar 1 diperlihatkan skema peralatan DN3.

Setelah dipasangnya peralatan ini, telah dilakukan serangkaian *On Job Training* dari tahun 1992-1996 dalam

rangka mengoptimalkan kinerja peralatan dan mempelajari analisis data difraksi dari beberapa material fungsional seperti superkonduktor, magnetik, material konduktor. Peningkatan kinerja peralatan yang signifikan adalah ketika dilakukan penggantian monokromator PG(004) dengan kristal tunggal *hot-pressed* Germanium Ge(331) pada tahun 1994 berdasarkan rekomendasi dari kerjasama bilateral antara BATAN dan STA Jepang [1]. Setelah ini, peralatan DN3 merupakan peralatan yang paling sibuk digunakan untuk penelitian struktur bahan. Sejumlah publikasi nasional dan internasional telah dihasilkan menggunakan peralatan ini [2-7].

Pada tahun 2001 komputer IBM-PS/2 DN3 dengan sistem operasi AIX mengalami kerusakan total sehingga

sistem kendali yang menggunakan kode RIGAKU dan sistem pencacah yang memanfaatkan sistem CAMAC tidak dapat difungsikan sama sekali. Sampai dengan tahun ini juga, terdapat 2 hal yang berpengaruh terhadap kinerja peralatan DN3. Pertama adalah penurunan daya operasi reaktor RSG-GAS dari 22,5 MW menjadi 15 MW pada tahun 1997. Hal ini menyebabkan fluks neutron yang sampai di posisi cuplikan turun. Yang kedua adalah penggantian kolimator 3 dari 10' menjadi 6' pada tahun 2000. Meskipun dengan penggantian ini resolusi peralatan meningkat tetapi intensitas berkas yang diterima detektor utama berkurang. Berbagai usaha perbaikan telah dilakukan untuk memfungsikan kembali peralatan ini, sehingga mulai tahun 2006 peralatan DN3 telah dapat digunakan kembali untuk penelitian struktur bahan [8,9].



Gambar 1: Skema peralatan DN3

Dalam makalah ini akan dilakukan perbandingan kinerja peralatan DN3 sebelum dan setelah penurunan daya reaktor dan penggantian kolimator 3 dengan melihat perubahan intensitas dan resolusi peralatan secara kuantitatif. Hal ini dilakukan sebagai bahan pertimbangan untuk meningkatkan kinerja peralatan DN3 pada waktu mendatang

2 Teori

Resolusi dari peralatan difraktometer neutron termal dengan panjang gelombang monokromatis tertentu tergantung pada divergensi horizontal dari berkas neutron dan sudut hamburan pada posisi monokromator dan cuplikan. Untuk peralatan DN3, kolimasi pertama α_1 berupa tabung pemandu neutron dan mozaik monokromator, β , semua nilainya sudah tertentu, maka resolusi peralatan tergantung

pada modifikasi sudut monokromator $2\theta_M$, kolimasi kolimator 2, α_2 , yang berada di antara monokromator dan cuplikan dan kolimasi kolimator 3, α_3 , yang berada di depan detektor utama setelah cuplikan. Resolusi dapat digambarkan dengan persamaan yang diturunkan oleh Cagliotti [10],

$$[FWHM]^2 = U \cdot \tan^2 \theta_s + V \cdot \tan \theta_s + W \quad (1)$$

dimana FWHM adalah lebar puncak pada setengah tinggi maksimum, prefaktor U , V dan W merupakan fungsi kompleks dari divergensi horizontal berkas dan sudut monokromator θ_M , sebagai berikut,

$$U = \frac{4(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \beta^2 + \alpha_2^2 \beta^2)}{\tan^2 \theta_M (\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2)}$$

$$V = \frac{-4\alpha_2^2 (\alpha_1^2 + 2\beta^2)}{\tan \theta_M (\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2)} \quad (2)$$

$$W = \frac{\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + 4\beta^2 (\alpha_2^2 + \alpha_3^2)}{\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2}$$

di sini diberikan juga intensitas garis terintegrasi sebagai referensi

$$L = \frac{\alpha_1 \alpha_2 \alpha_3 \beta}{(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2)^{1/2}} \quad (3)$$

Minimum dari fungsi persamaan (1) di atas terjadi pada saat

$$\tan \theta_s = -\frac{V}{2U} = \frac{4\alpha_2^2 (\alpha_1^2 + 2\beta^2)}{8(\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \beta^2 + \alpha_2^2 \beta^2)} \tan \theta_M \quad (4)$$

yakni ketika sudut hamburan cuplikan dekat dengan sudut *take-off* monokromator. Cara lain untuk menyatakan resolusi dari difraktometer neutron dua sumbu adalah menggunakan persamaan $\Delta d/d$ yang dituliskan,

$$\frac{\Delta d}{d} = \cot \theta \Delta \theta \quad (5)$$

Persamaan ini diperoleh dengan mendiferensialkan persamaan Bragg, $2d \sin \theta = \lambda$ di mana λ adalah konstanta. Dalam hal ini, θ adalah sudut Bragg, yakni setengah dari sudut hamburan, dan $\Delta \theta$ adalah *FWHM* dari puncak Bragg pada sudut 2θ . Misalnya puncak Bragg pada sudut $2\theta = 56,685^\circ$ memiliki $FWHM = 0,264^\circ$, maka $\Delta d/d = \cot(56,685/2) \cdot (0,264 \times \pi/180) = 8,542 \times 10^{-3}$.

3 Bahan dan Tata Kerja

Cuplikan yang digunakan dalam eksperimen ini adalah serbuk *Standard Reference Material* (SRM) Si (640b) yang dikeluarkan oleh National Bureau of Standards (NBS), U.S. Department of Commerce dan TiO_2 rod yang

diperoleh dari ANSTO. Cuplikan serbuk silikon dimasukkan ke dalam wadah vanadium dan diletakkan pada goniometer cuplikan. Pengukuran pola difraksi dilakukan menggunakan peralatan difraktometer neutron serbuk resolusi tinggi (DN3) yang terdapat di PTBIN-BATAN dengan panjang gelombang monokromator neutron termal 1,8223 Å. Data difraksi dikumpulkan pada sudut 2 antara 2,5° hingga 157,5° dengan langkah 0,05° pada suhu ruang.

Kurva resolusi peralatan digambarkan sebagai perubahan FWHM puncak difraksi Bragg terhadap sudut hamburan. Nilai FWHM dan posisi sudut hamburan dari puncak Bragg diestimasi dari pola difraksi cuplikan dengan memanfaatkan prosedur fitting Gaussian yang terdapat pada perangkat lunak IGOR Pro dengan formulasi sebagai berikut,

$$y = y_0 + A \exp \left[- \left(\frac{x - x_0}{width} \right)^2 \right] \quad (6)$$

Sedangkan nilai $\Delta d/d$ ditentukan dengan menggunakan persamaan (5) memanfaatkan nilai *FWHM* ($\Delta\theta$) yang diperoleh dari hasil *fitting*. Data difraksi neutron yang diperoleh juga dianalisis dengan metode Rietveld menggunakan program RIETAN 2000 [11] untuk memperoleh data refinement parameter struktur cuplikan. Kualitas refinement ditunjukkan oleh faktor reliabilitas sebagai berikut [12]:

$$R_{wp} = \left\{ \frac{\sum w_i (y_i(obs) - y_i(calc))^2}{\sum w_i (y_i(obs))^2} \right\}^{1/2} \quad (7)$$

... (R-weighted pattern)

$$R_e = \left\{ \frac{N - P}{\sum w_i (y_i(obs))^2} \right\}^{1/2} \quad (8)$$

... (R-expected)

$$R_p = \frac{\sum |y_i(obs) - y_i(calc)|}{\sum y_i(obs)} \quad (9)$$

... (R-pattern)

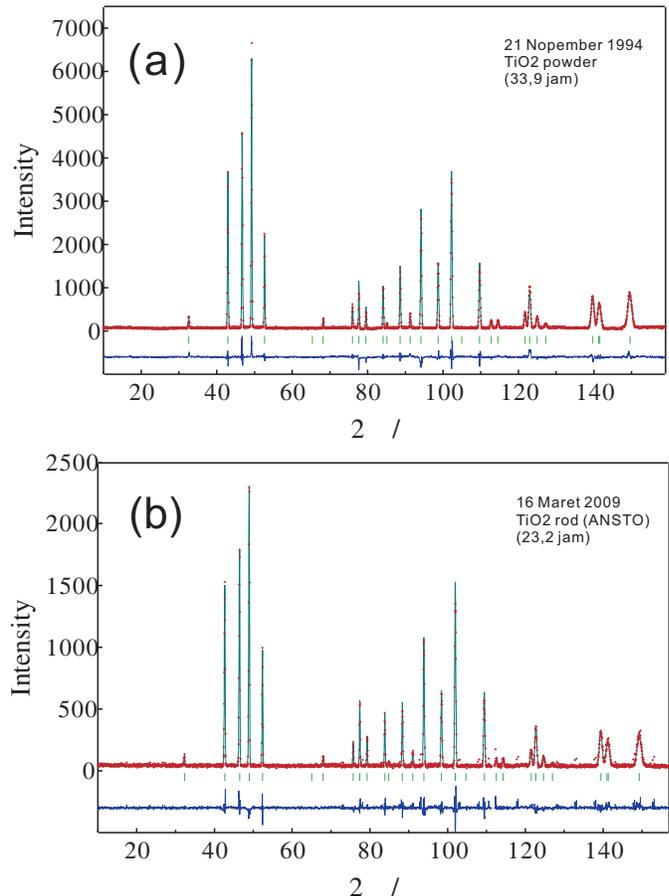
$$s = \left\{ \frac{\sum w_i (y_i(obs) - y_i(calc))^2}{N - P} \right\}^{1/2} \quad (10)$$

4 Hasil dan Pembahasan

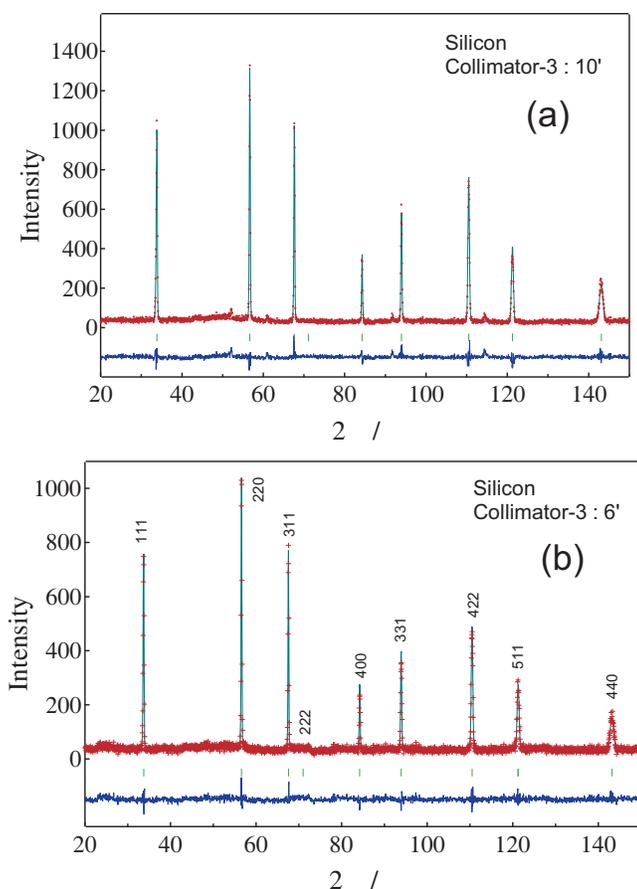
Pada gambar 2 dan 3 masing-masing diperlihatkan pola difraksi neutron cuplikan silikon standar dan TiO₂ menggunakan kolimator 3 yang berbeda yakni dengan kolimasi 10' (a) dan kolimasi 6' (b). Pada kedua gambar tersebut

juga ditampilkan hasil refinement dengan menggunakan perangkat lunak RIETAN2000.

Perbandingan yang menyolok dari kedua pola difraksi dengan kolimasi 6' dan 10' adalah pada intensitasnya. Pola difraksi yang diperoleh dari DN3 menggunakan kolimator 3 dengan kolimasi lebih kecil 6' memiliki intensitas yang lebih rendah. Selain itu, faktor lain yang mempengaruhi turunnya intensitas ini adalah turunnya daya reaktor RSG Siwabessy dari 22,5 MW menjadi 15 MW dan lamanya waktu pengukuran setiap cuplikan. Untuk membandingkan data ini secara kuantitatif perhatian akan difokuskan pada puncak difraksi (111) dari cuplikan TiO₂ yang berada pada sudut hamburan sekitar 48,94 derajat seperti dirangkumkan dalam Tabel 2.



Gambar 2: Pola difraksi neutron dan hasil refinement Rietveld untuk cuplikan TiO₂ pada suhu ruang menggunakan kolimator 3 dengan kolimasi (a) 10' dan (b) 6'. Titik-titik merupakan data pengukuran dan garis melalui titik-titik tersebut adalah hasil dari refinement. Posisi puncak Bragg dari TiO₂ ditunjukkan sebagai garis vertikal pendek. Pada bagian bawah diperlihatkan perbedaan antara data pengukuran dan pola hasil perhitungan.



Gambar 3: Pola difraksi neutron dan hasil refinement Rietveld untuk cuplikan Si pada suhu ruang menggunakan kolimator 3 dengan kolimasi (a) 10' dan (b) 6'.

Dari nilai normalisasi intensitas terhadap waktu terlihat bahwa dua faktor yakni turunnya daya reaktor dan penggunaan kolimasi yang lebih kecil menyebabkan intensitas neutron yang diterima oleh detektor utama turun sebesar 49,45. Kemudian penurunan intensitas yang disebabkan oleh penggantian kolimator dari 10' menjadi 6' adalah sebesar 16,12 dengan asumsi bahwa perubahan daya reaktor berbanding lurus dengan perubahan intensitas cacahan terukur. Selain penurunan intensitas, nilai rasio peak to background juga mengalami penurunan.

Kualitas data yang diperoleh diperlihatkan dari hasil refinement metode Rietveld seperti diperlihatkan pada tabel 2 untuk cuplikan TiO_2 dan pada tabel 3 untuk cuplikan silikon. Secara umum parameter struktur seperti parameter kisi dan posisi atom hasil refinement yang diperoleh tidak jauh berbeda. Dari harga s yang menunjukkan kualitas refinement dapat diketahui bahwa pengukuran pola difraksi menggunakan kolimasi 6' memperlihatkan hasil yang lebih baik, yang ditunjukkan dengan nilai s yang lebih kecil meskipun semuanya masih masuk ke dalam kategori yang dapat diterima [12].

Tabel 1: Perbandingan kuantitatif untuk puncak difraksi Bragg bidang refleksi (111) untuk cuplikan TiO_2 , $2\theta = 48.944^\circ$ dengan luas *beam narrower* 1,5 x 4,5 cm

Kolimator 3	10'	6'
peak (counts)	6656	2302
Background (counts)	84	46
Waktu (jam)	33,90	23,20
Daya reaktor (MW)	22,50	15
Peak/waktu (counts/jam)	196,34 (130,89(15MW))	99,25
BG/waktu (counts/jam)	2,48	1,98
Rasio Peak to BG	79,17	50,13

Tabel 2: Parameter hasil refinement cuplikan TiO_2 menggunakan RIETAN2000

	Kolimator 3 : 10'	Kolimator 3 : 6'
Space group	$P42/mnm$	$P42/mnm$
a (Å)	4,59493(12)	4,59497(7)
c (Å)	2,96080(8)	2,96061(6)
$\alpha = \beta = \gamma$	90	90
V (Å ³)	62,5126(28)	62,5095(18)
Rwp (%)	12,82	15,46
Rp (%)	9,44	11,27
Re (%)	7,90	11,57
s	1,6226	1,3363
Ti, 2a	(0,0,0)	
Occ. Fac.	1	1
Beq	0,365(42)	0,410(56)
O, 4f	(x,x,0)	
x	0,30310 (13)	0,30541(18)
Occ.Fac.	1	1
Beq	0,064 (23)	0,345(31)

Hal ini karena resolusi pengukuran lebih baik menggunakan kolimasi yang lebih kecil sebagaimana akan dijelaskan di bawah, sehingga informasi yang diperoleh dari pola difraksi menjadi lebih baik. Adapun nilai Rwp yang lebih kecil untuk kolimasi 10' hal ini dipahami dari persamaan (7). Semakin tinggi nilai background pola difraksi maka akan semakin kecil pula nilai Rwp yang diperoleh.

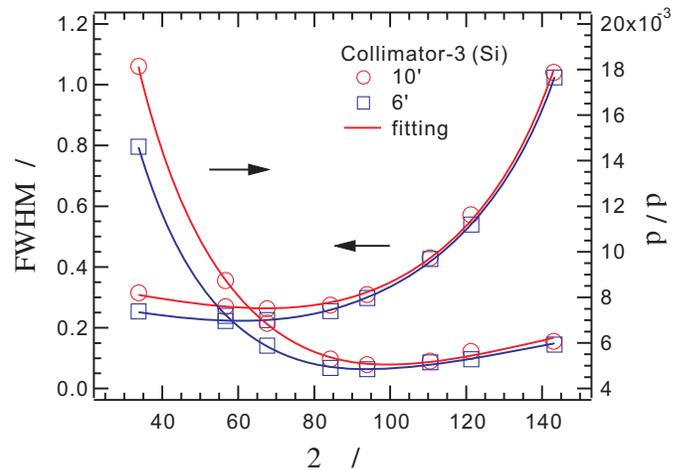
Pada gambar 4 diperlihatkan kurva resolusi peralatan terhadap sudut hamburan yang diperoleh dari pola difraksi neutron cuplikan silikon yang diukur menggunakan sudut divergensi horizontal kolimator 3 yang berbeda yakni 6' dan 10'. Marker bulat dan kotak merupakan data hasil fitting Gaussian, sedangkan garis merupakan hasil fitting

dengan menggunakan persamaan (1) untuk FWHM dan persamaan (5) untuk dengan U, V dan W sebagai parameter.

Tabel 3: Parameter hasil refinement cuplikan Si menggunakan RIETAN2000

	Kolimator 3 : 10'	Kolimator 3 : 6'
Space group	$Fd\bar{3}m$ (A-227-1)	$Fd\bar{3}m$ (A-227-1)
a (Å)	5,43440(32)	5,43054(7)
$\alpha = \beta = \gamma$	90	90
V (Å ³)	160,4928(165)	160,1507(202)
Rwp (%)	16,54	16,86
Rp (%)	12,52	12,81
Re (%)	13,72	14,69
s	1,2058	1,1481
Si, 8a	(0,0,0)	
Occ. Fac.	1	1
Beq	0,588(50)	0,548(66)

Dari gambar 4 terlihat bahwa resolusi peralatan DN3 berada di bawah 0,6° pada sudut hamburan yang lebih kecil dari 120° yang merupakan lingkup sudut hamburan dengan jumlah puncak Bragg terbanyak untuk dua kondisi eksperimen yang berbeda. Untuk kolimator 3 dengan sudut divergensi 10', resolusinya menurun terutama pada sudut hamburan kecil. Resolusi tertinggi yang diperoleh menggunakan kolimator 3 dengan divergensi 6' adalah 0,22° untuk FWHM dan $4,9 \times 10^{-3}$ untuk $\Delta d / d$, sedangkan dengan divergensi 10' diperoleh resolusi 0,26° untuk FWHM dan $5,1 \times 10^{-3}$ untuk $\Delta d / d$. Hasil ini sesuai dengan prediksi dari persamaan (1), bahwa semakin kecil sudut divergensi horizontal kolimator maka akan semakin tinggi resolusinya. Pergantian kolimator 3 dari 10' ke 6' membawa sisi positif yakni resolusi pengukuran semakin baik. Sebaliknya sebagaimana ditunjukkan pada persamaan (3), semakin kecil kolimasi akan menyebabkan intensitas berkas neutron yang diterima detektor akan semakin rendah. Hal ini konsisten dengan perbandingan hasil pengukuran intensitas di atas. Parameter hasil *fitting* kurva resolusi menggunakan persamaan (1) untuk cuplikan silikon diperlihatkan pada Tabel 4.



Gambar 4: Perubahan nilai FWHM dan terhadap sudut hamburan dari pola difraksi cuplikan silikon.

Dari hasil-hasil di atas terlihat bahwa upaya meningkatkan resolusi peralatan menyebabkan intensitas berkas terukur menjadi turun. Kompromi antara antara resolusi yang berbanding terbalik dengan intensitas menjadi penting dalam meningkatkan kinerja peralatan DN3. Dalam kondisi seperti saat ini yang menggunakan kolimasi 6', pengukuran pola difraksi pada cuplikan dengan unsur-unsur yang memiliki panjang hamburan yang cukup besar tidak menjadi permasalahan. Tetapi untuk cuplikan yang terdiri dari atom-atom dengan panjang hamburan tidak begitu kuat akan dibutuhkan waktu pengukuran yang lama untuk memperoleh statistik data yang baik. Terutama pada cuplikan yang mengandung hidrogen. Pada umumnya rasio peak to background cuplikan ini sangat kecil karena hidrogen memberikan efek hamburan inkoheren yang menambah tinggi background pada pola difraksi.

Tabel 4: Parameter hasil *fitting* kurva resolusi menggunakan persamaan Cagliotti

Parameter	Kolimator 3 : 10'	Kolimator 3 : 6'
U	0,191(7)	0,170(2)
V	-0,26(2)	-0,199(6)
W	0,16(1)	0,108(3)

Seperti terlihat pada tabel 1 nilai peak to background pada saat menggunakan kolimator 3 dengan kolimasi 6' lebih rendah dibandingkan dengan kolimasi 10', sehingga diperlukan waktu yang lebih lama untuk mendapatkan data yang baik. Keterbatasan keberadaan neutron yang berasal dari reaktor menjadi pertimbangan untuk lebih meningkatkan efisiensi pemakaian berkas neutron. Bila daya operasi reaktor sulit untuk dinaikkan karena pertimbangan keberadaan bahan bakar dan lainnya, ada beberapa hal yang bisa dilakukan. Misalnya adalah mempertim-

bangkan kembali untuk menggunakan kolimator 3 dengan kolimasi 10', membukan kolimator 2 dan menggantikannya dengan sistem slit, kemudian mengganti monokromator dengan sistem focussing vertikal maupun horizontal.

5 Kesimpulan

Telah dilakukan studi komparasi kinerja peralatan DN3 sebelum dan setelah dilakukan perbaikan. Turunnya daya operasi reaktor menjadi 15 MW dan penggantian kolimator 3 dari 10' menjadi 6' menyebabkan intensitas berkas neutron terukur turun sekitar 49,45

6 Ucapan Terima Kasih

Penulis (A.F.) mengucapkan terima kasih Prof. Alan Hewat (Neutron Optics, mantan Kepala Grup Difraktometer, ILL) atas diskusi dan masukannya mengenai peralatan DN3. Sebagian penelitian ini dibiayai oleh Proyek Sinergi dan Sinkronisasi Penelitian Bidang Iptek Nuklir Dikti-Batan 2009 "Desain dan Implementasi Bent Silicon Perfect Crystal Sebagai Monokromator Untuk Meningkatkan Intensitas Berkas Neutron".

Daftar Pustaka

- [1] Marsongkohadi, Ridwan dan Gunawan, "Improvements of The High-Resolution Powder Diffractometer (HRPD) at Batan", presented at the Workshop on the Utilization of Research Reactors, Jakarta, November 29 - December 2, 1994
- [2] Mujamilah, Tesis Master, 1999. (and references therein)
- [3] D.F. Chen, C. Gou, K. Sun, Q.W. Yan, P.L. Zhang, B.G. Shen, H.Y. Gong, Z.H. Cheng, Ridwan, Mujamilah, Marsongkohadi, *Physica B*, 241-243 (1998) 640-642
- [4] W. Prasud, Gunawan, E. Sukirman, Parikin, Y. Hamaguchi dan I. Shimono, *Prosiding Seminar Nasional Hasil Penelitian dan Pengembangan Fisika Terapan dan Lingkungan 1995/1996*, (1996) 381-389 (and references therein)
- [5] E. Sukirman, P. Sulisworo, W. Prasud and Wuryanto, "Mechanism of Pb and Sb Role on the 2223 Phase of BSCCO System Superconductor", Presented in the Regional Workshop on the Utilization of Research Reactor, BATAN-JAERI, Bandung October 10-13, 1997
- [6] Ismunandar and B.J. Kennedy, *J. Solid. Chem.*, 126 (1996) 000-000
- [7] A. Ikram and Bharoto, *Physica B*, 311 (2002) 14-22
- [8] A. Fajar, T.H. Priyanto, E. Santoso, H. Mugirahardjo, N. Suparno, A. Purwanto, *Neutron News*, 18 (2007) 13-18
- [9] A. Fajar, H. Mugirahardjo, Bharoto, E. Santoso, Gunawan, *J. Sains. Mat. Ind.*, Edisi Khusus Desember (2008) 271-281
- [10] G. Cagliotti, A. Paoletti, and F.P Ricci, *Nucl. Instrum. Methods*, 35 (1958) 223-228
- [11] F. Izumi, *Rigaku J.*, 17 (2000) 34
- [12] R.A. Young, *The Rietveld Method*, International Union of Crystallography Oxford University, 1996.