

ANALISA GEOMETRI HAMBURAN SUDUT KECIL PARTIKEL LEMPENGAN DAN SILINDER DENGAN METODE TRANSFORMASI TAK LANGSUNG

Krisna Lumbanraja

*Puslitbang Teknologi Isotop dan Radiasi - BATAN, Jakarta

ABSTRAK

ANALISA GEOMETRI HAMBURAN SUDUT KECIL PARTIKEL LEMPENGAN DAN SILINDER DENGAN METODE TRANSFORMASI TAK LANGSUNG. Telah dilakukan analisa geometri hasil pengolahan data hamburan sudut kecil partikel simetri lempengan dan silinder dengan metode transformasi tak langsung. Dipaparkan teori hamburan sudut kecil oleh partikel simetri lempengan dan silinder yang memberikan fungsi hamburan penampang lintang dalam ruang resiprokal, dan fungsi distribusi jarak penampang lintang dalam ruang riil. Dibahas pula keunggulan teknik pengolahan data hamburan sudut kecil partikel silinder dan lempengan dengan metode transformasi tak langsung dibanding dengan metode konvensional yaitu metode transformasi langsung. Disajikan hasil pengolahan data hamburan penampang lintang partikel silinder dari hasil pengolahan data hamburan partikel silindernya. Parameter yang dihitung dari dua set data yaitu masing-masing data hamburan oleh partikel lempengan dan data hamburan oleh partikel silinder masing-masing dari partikel lempengan dan silinder adalah: nilai hamburan penampang lintang pada sudut nol, $I_l(0) = 0,53640$, dan $I_c(0) = 151,51$, jari-jari girasi penampang lintang $R_l = 11,461 \text{ \AA}$ dan $R_c = 13,908 \text{ \AA}$ serta diameter maksimum penampang lintang $D_l(\text{max}) = 40 \text{ \AA}$ dan $D_c(\text{max}) = 40 \text{ \AA}$

ABSTRACT

GEOMETRICAL ANALYSIS OF SMALL ANGLE SCATTERING FROM LAMELLAR AND CYLINDRICAL PARTICLES BY INDIRECT TRANSFORMATION METHOD. The data treatment results of the small angle scattering from lamellar and cylindrical particles by indirect transformation method has been geometrically analyzed. Presented the theory of small angle scattering from lamellar and cylindrical particles that gives the cross section scattering function in the reciprocal space and the distance distribution function in the real space. Also discussed the features of the indirect transformation method compare to the conventional method that is the direct transformation method. Presented the data treatment results of the cylindrical particles cross section scattering from the data treatment results of the cylindrical particles scattering. The calculation of the parameters from the two of data sets give values of cross section intensity at zero angle $I_l(0) = 0,53640$, dan $I_c(0) = 151,51$, cross sections of radius of gyration $R_l = 11,461 \text{ \AA}$ and $R_c = 13,908 \text{ \AA}$ and the maximum diameter of the cross sections $D_l(\text{max}) = 40 \text{ \AA}$ and $D_c(\text{max}) = 40 \text{ \AA}$ of lamellar and cylindrical particles, respectively.

PENDAHULUAN

Dalam hamburan sudut kecil penghitungan detil struktural yang dihitung secara langsung hanya pada sejumlah kecil kasus, yaitu yang mempunyai simetri berbeda. Dalam banyak kasus, detil struktural harus disimpulkan secara tidak langsung, apakah dari bentuk fungsi hamburan dalam ruang resiprokal atau dari fungsi distribusi jarak dalam ruang riil.

Makalah ini membahas tentang penentuan struktur dari eksperimen hamburan sudut kecil yang terbatas pada larutan encer monodispers.

Perhitungan detil struktural dari kontribusi hamburan penampang lintang akan menarik bila fungsi distribusi jarak menyatakan struktur lempengan atau silinder. Atau dengan kata lain fungsi hamburan penampang lintang dan fungsi distribusi jarak penampang lintang adalah hal khusus yang menarik dalam mengamati partikel silinder atau lempengan oleh teknik hamburan sudut kecil dengan resolusi tinggi.

Metode transformasi tak langsung yang merupakan metode pengolahan data hamburan sudut kecil yang dikembangkan oleh Otto Glatter (ITP-81) mengijinkan perhitungan fungsi distribusi jarak penampang lintang dari data

eksperimental dengan mengoperasikan langkah-langkah yang mencakup *smoothing* (penghalusan), *desmearing* (pembersihan), dan transformasi ke dalam ruang riil tanpa keharusan melakukan ekstrapolasi atau manipulasi di antaranya.

Luaran (*output*) dari ITP-81 adalah fungsi hamburan $I(h)$, fungsi distribusi jarak $p(r)$, jari-jari girasi R_g dan intensitas pada sudut nol $I(0)$. Fungsi $p(r)$ bermanfaat untuk menganalisa geometri penampang lintang bagian dalam, menghitung jari-jari girasi R_g yaitu lebih mudah dan lebih akurat daripada dengan metode pengolahan data konvensional.

Pada makalah ini akan ditunjukkan analisa geometri partikel menggunakan pengolahan data metode ITP. Secara khusus akan diaplikasikan pengolahan data cuplikan struktur silinder dan lempengan. Namun sebelum itu akan disajikan lebih dulu teori hamburan partikel simetri silinder dan lempengan dan keunggulan metode ITP.

Tujuan makalah ini adalah memahami penggunaan ITP untuk pengolahan data hamburan sudut kecil larutan encer monodispers dalam menganalisa geometri partikel yang mempunyai simetri silinder dan lempengan.

TEORI

Perhitungan kontribusi hamburan penampang lintang harus mengasumsikan bahwa partikel-partikel adalah homogen sepanjang bidang dasar (lempengan) atau sepanjang sumbu silinder (silinder), dengan demikian kerapatan panjang hamburan dapat ditulis untuk lempengan (indeks t) sebagai

$$\rho(\bar{r}) = \rho_0 \rho_t(x), \quad (1a)$$

ρ_0 adalah sebuah konstanta, x adalah jarak normal dari pusat bidang dalam lempengan; atau untuk silinder (indeks c) sebagai

$$\rho(\bar{r}) = \rho_0 \rho_c(\bar{r}_c), \quad (1b)$$

\bar{r}_c adalah sebuah vektor dalam bidang penampang lintang tegak lurus sumbu silinder. Dengan asumsi ini intensitas hamburan dapat ditulis masing-masing sebagai sebuah perkalian:

$$I(h) = (2\pi A / h^2) I_t(h) \quad (2a)$$

atau

$$I(h) = (\pi L / h) I_c(h) \quad (2b)$$

A adalah luas lempengan dan L adalah panjang silinder. $I_t(h)$ dan $I_c(h)$ adalah fungsi hamburan penampang lintang [1]. Persamaan-persamaan (2a), (2b) menjadi eksak hanya bila

nilai A dan L adalah tak berhingga besarnya, namun persamaan-persamaan masih dapat digunakan sebagai sebuah pendekatan bila dimensi keseluruhan D dari partikel-partikel adalah lebih besar dari dimensi maksimum D_i atau D_c dari penampang lintang.

Fungsi-fungsi korelasi penampang lintangnya $\gamma_t(r)$ dan $\gamma_c(r)$ didefinisikan sebagai rata-rata ruang dari kuadrat konvolusi dari kerapatan panjang hamburan:

$$\gamma_t(r) = \rho_t(x) * \rho_t(-x) \quad (3a)$$

dan

$$\gamma_c(r) = \langle \rho_c(\bar{r}_c) * \rho_c(-\bar{r}_c) \rangle \quad (3b)$$

Simbol $*$ menyatakan operasi matematik yang disebut konvolusi dan simbol $\langle \rangle$ berarti rata-rata terhadap seluruh arah dalam bidang penampang lintang. Fungsi-fungsi distribusi jaraknya dapat didefinisikan sebagai

$$p_t(r) = \gamma_t(r) \quad (4a)$$

dan

$$p_c(r) = r \gamma_c(r). \quad (4b)$$

Hubungan antara fungsi hamburan penampang lintang dan fungsi distribusi jarak diberikan oleh transformasi cosinus dan Hankel [2]:

$$I_t(h) = 2 \int_0^\infty p_t(r) \cos(hr) dr \quad (5a)$$

dan

$$I_c(h) = 2\pi \int_0^\infty p_c(r) \wp_0(hr) dr \quad (5b)$$

masing-masing untuk lempengan dan silinder.

Dalam (5b) \wp_0 adalah fungsi Bessel orde ke nol [3]. Invers transformasinya adalah

$$p_t(r) = (1/\pi) \int_0^\infty I_t(h) \cos(hr) dh \quad (6a)$$

dan

$$p_c(r) = (1/2\pi) \int_0^\infty I_c(h) h r F_0(hr) dh \quad (6b)$$

Jari-jari girasi penampang lintangnya R_t dan R_c dapat diestimasi dalam ruang resiprokal dengan menggunakan pendekatan Guinier [4]

$$I_t(h) \Big|_{h \rightarrow 0} = I_t(0) \exp(-h^2 R_t^2) \quad (7a)$$

dan

$$I_c(h) \Big|_{h \rightarrow 0} = I_c(0) \exp[-(h^2 R_c^2)/2] \quad (7b)$$

Persamaan momennya dalam ruang riil adalah:

$$R_i^2 = \left(\int_0^\infty r^2 p_i(r) dr \right) / \left(2 \int_0^\infty p_i(r) dr \right) \quad (8a)$$

$$R_c^2 = \left(\int_0^\infty r^2 p_c(r) dr \right) / \left(2 \int_0^\infty p_c(r) dr \right) \quad (8b)$$

KEUNGGULAN METODE TRANSFORMASI TAK LANGSUNG (ITP-81)

Pengoperasian langsung fungsi hamburan penampang lintang dan fungsi distribusi jarak penampang lintang dengan metode transformasi tak langsung dapat dihitung langsung dari data hamburan *unsmoothed* dan *smearred* (data hamburan yang masih kasar dan kotor, belum dikoreksi terhadap efek kolimasi dan panjang gelombang). Sedangkan pada metode konvensional hal yang dilakukan adalah berturut-turut penghitungan kurva hamburan $I(h)$ kotor (*desmeared*) dengan teknik *desmearing* (membersihkan) dan *smoothing* (menghaluskan) yang sembarang, kemudian penghitungan fungsi hamburan penampang lintangnya $I_i(h)$ dan $I_c(h)$ dengan menggunakan persamaan (2a) dan (2b), selanjutnya melakukan ekstrapolasi ke sudut nol menggunakan aproksimasi (7a) dan (7b) untuk menghitung jari-jari girasi, dan akhirnya transformasi ke ruang riil atau penghitungan fungsi distribusi jarak penampang lintang $p_i(r)$ atau $p_c(r)$ dengan transformasi langsung (6a) dan (6b).

Kualitas pengoperasian *smoothing* dan *desmearing* menggunakan teknik transformasi tak langsung telah diperlihatkan dalam literatur [5]. Pembahasan saat ini adalah kepada kualitas dari transformasi. Problema umum dari transformasi langsung adalah efek terminasi yaitu seberapa besar sudut hamburan awal dan sudut hamburan akhir yang diperoleh dari eksperimen. Pengaruh efek terminasi ini selanjutnya dapat ditingkatkan oleh sebuah latar belakang yang konstan. Efek terminasi membawa kepada osilasi buatan yang muncul dalam fungsi distribusi jarak dengan teknik transformasi langsung. Osilasi ini dapat membuat interpretasi menjadi sangat sulit atau kadang malah tidak mungkin. Efek terminasi diminimalkan pada teknik transformasi tak langsung [6]. Pengaruh terminasi pada hasil transformasi dengan metode transformasi tak langsung dibatasi hanya pada nilai r yang sangat kecil dan tidak perlu dilakukan ekstrapolasi menuju sudut nol.

Bisa untuk dimensi terbatas pada partikel. Syarat tak berhingga pada nilai A dan L untuk

aplikasi terhadap partikel berukuran terbatas adalah menyulitkan. Dalam pengolahan data dengan ITP yaitu metode transformasi tak langsung syarat itu tidak perlu dipenuhi. Karena transformasi T_1 [Glatter, 1977, persamaan (4)] harus diganti. Daripada menggunakan fungsi hamburan $I(h)$ berikut

$$I(h) = 4\pi \int_0^\infty p(r) \sin(hr) (hr)^{-1} dr \quad (9)$$

Glatter telah menggunakan persamaan (10a) dan (10b). Dengan demikian konstanta A dan L telah dihilangkan dalam persamaan (10)

$$I(h) = 4\pi \int_0^\infty p_i(r) \cos(hr) h^{-2} dr \quad (10a)$$

$$I(h) = 2\pi^2 \int_0^\infty p_c(r) F_0(hr) h^{-1} dr \quad (10b)$$

Ini berarti masalah nilai tak berhingga A dan L melekat pada sistem hamburan dan tidak ada kaitannya dengan teknik transformasi tak langsung ini.

Lebih akurat dalam mengukur jari-jari girasi daripada dengan cara aproksimasi Guinier [6]. Jari-jari girasi penampang lintang R_i atau R_c dapat diestimasi dalam ruang resiprokal dengan menggunakan aproksimasi Guinier (7a) (7b). Penerapan praktis aproksimasi ini bisa menjadi sangat berkurang oleh dimensi terbatas dari masing-masing A dan L . Dalam ITP tidak, karena dengan menggunakan persamaan momen dalam ruang riil (8a) (8b) akan lebih unggul dalam kasus-kasus ini bila distribusi jarak penampang lintang dapat dihitung dengan cukup akurat. Estimasi jari-jari girasi penampang lintang menggunakan aproksimasi Guinier seringkali sangat tidak akurat karena deviasi dari kondisi ideal kurva Gaussian.

Memberikan lebih banyak informasi oleh fungsi distribusi jarak. Fungsi-fungsi distribusi jarak penampang lintang $p_i(r)$ atau $p_c(r)$ yang dihasilkan oleh ITP-81 mengandung lebih banyak informasi daripada parameter integral R_i atau R_c berupa luaran transformasi langsung. Fungsi-fungsi itu menjadi nol pada jarak maksimum D_i atau D_c dan bentuknya mengandung informasi mengenai geometri dan struktur dalam dari penampang lintang. Bila kita asumsikan simetri atau distribusi kerapatan panjang hamburan bersimetri bola, yaitu (11a) (11b), maka dimungkinkan untuk menghitung fungsi-fungsi $\rho_i(r)$ atau $\rho_c(r)$ dari $p_i(r)$ atau $p_c(r)$ melalui teknik konvolusi akar kuadrat.

$$\rho_l(x) = \rho_l(-x) \quad (11a)$$

atau

$$\rho_c(\bar{r}_c) = \rho_c(r) \quad (11b)$$

APLIKASI PENGOLAHAN DATA

Prinsip-prinsip umum dari metode transformasi tak langsung memungkinkan penghitungan fungsi-fungsi penampang lintang (fungsi distribusi jarak dan fungsi hamburan) dengan hanya satu kali operasi matematik dari data eksperimen yang belum di *smooth* dan belum di *desmeared*. Metode ini menghendaki estimasi $D_l(\max)$ atau $D_c(\max)$ yaitu masing-masing untuk batas atas dari dimensi maksimum penampang lintang D_l (ketebalan lempengan) atau D_c (panjang silinder). Estimasi-estimasi ini dapat diperoleh dengan cukup akurat dari fungsi distribusi jarak $p(r)$ partikel tersebut. Fungsi $p(r)$ dapat dihitung dari fungsi hamburan $I(h)$ persamaan (9) menggunakan transformasi integral berikut:

$$p(r) = (2\pi^2)^{-1} \int_0^\infty I(h) h r \sin(hr) dh \quad (12)$$

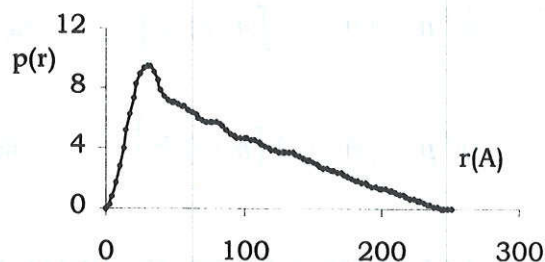
Bila fungsi ini mempunyai sebuah linier, bagian menurun pada nilai r besar maka simetri partikel adalah silinder dengan sebuah penampang lintang konstan. Titik infleksi r_l pada transisi ke dalam daerah linier ini memberikan estimasi yang baik untuk D_c [7].

Satu set data hamburan dari partikel, belum diketahui simetrinya, diolah dengan ITP-81. Luarannya adalah fungsi distribusi jarak $p(r)$ Gambar (1). Karena bentuknya mempunyai sebuah linier, bagian menurun pada nilai r besar, maka disimpulkan partikel penghambur mempunyai simetri silinder. Titik infleksi

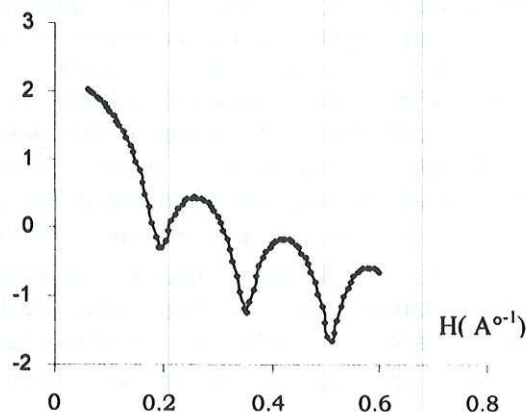
terletak pada $r_l = 42,5 \text{ \AA}$ [8]. Berarti nilai $D_l =$

$r_l = 42,5 \text{ \AA}$. Masukkan nilai $D_l(\max)$ ini ke dalam ITP-81, dengan data hamburan seperti di atas, untuk mengolah hamburan penampang lintang, diperoleh $I_c(h)$ & $p_c(r)$ seperti pada Gambar (2a) dan (2b). Nilai $I_c(0) = 151,51$ dan

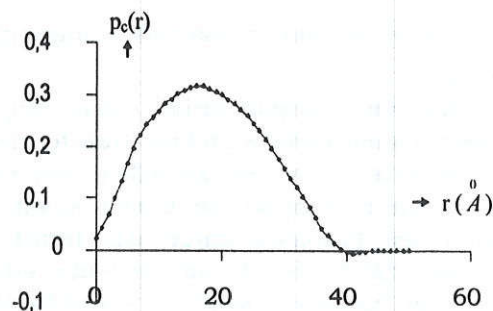
$R_c = 13,908 \text{ \AA}$.



Gambar (1) Fungsi distribusi jarak partikel silinder, $p(r)$.

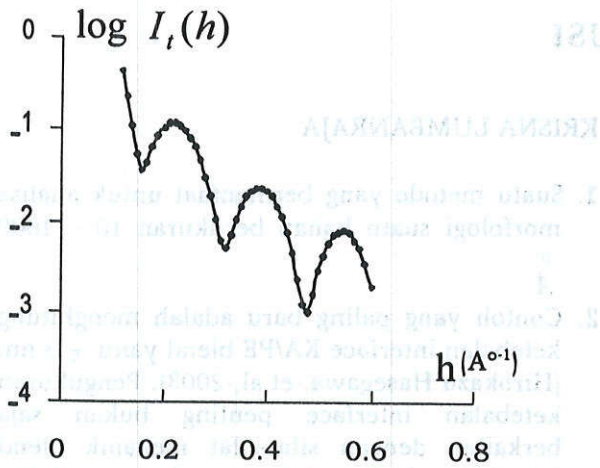


Gambar 2: (a) Fungsi hamburan penampang lintang partikel silinder, $\log I_c(h)$.

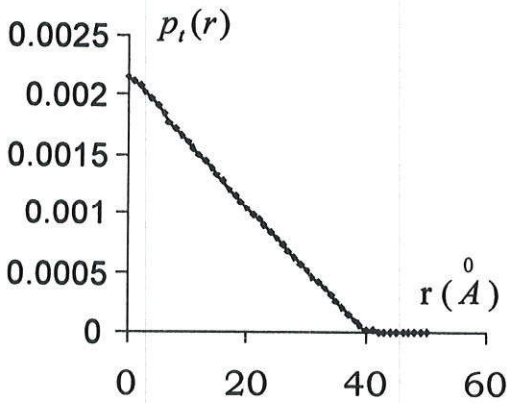


Gambar 2. (b) Fungsi distribusi jarak penampang lintang partikel silinder, $p_c(r)$.

Sebuah set data yang lain adalah data hamburan dari partikel lempengan. Data ini langsung diolah dengan ITP-81 untuk memperoleh intensitas dan fungsi distribusi jarak penampang lintang $I_l(h)$ dan $p_l(r)$. Hasilnya seperti pada Gambar (3a) dan (3b). Nilai $I_l(0) = 0,53640$ dan $R_l = 11,461 \text{ \AA}$.



Gambar 3: (a) Fungsi hamburan penampang lintang partikel lempengan, $\log I_t(h)$.



Gambar 3 (b) Fungsi distribusi jarak penampang lintang partikel lempengan, $p_t(r)$.

KESIMPULAN

1. Secara teori, hamburan sudut kecil oleh partikel simetri silinder dan lempengan dapat memberikan rumusan tentang fungsi hamburan penampang lintang dalam ruang resiprokal dan fungsi distribusi jarak penampang lintang dalam ruang riil.
2. Pengolahan data hamburan sudut kecil dengan metode transformasi tak langsung ITP-81 lebih unggul daripada metode konvensional atau transformasi langsung, secara khusus pada pengolahan data partikel simetri silinder dan lempengan.
3. Melalui ITP-81 dapat dihasilkan fungsi hamburan penampang lintang dan fungsi distribusi jarak penampang lintang partikel lempengan dan silinder, dan dapat dihitung parameter penampang lintang intensitas hamburan pada sudut nol, jari-jari girasi, serta dapat dianalisa geometri partikel simetri lempengan dan silinder.

DAFTAR PUSTAKA

1. POROD, G. *Acta Phys. Austriaca.* 2. 255-292, (1948).
2. FEDOROV, B.A. & ALESHIN, V.G. *Vysokomol. Soedin.* 8, 1506, (1966); *Eng. Trans. Polym. Sci. USSR*, 8, 1657, (1967).
3. WATSON, G. N. A. *Treatise on Theory of Bessel Functions.* 1657, Cambridge Univ. Press. (1966).
4. KRATKY, O. *Prog. Biophys.* 13, 105-173, (1963).
5. GLATTER, O. *J. Appl. Cryst.* 10, 415-421, (1977).
6. GLATTER, O. *J. Appl. Cryst.* 13, 577-584, (1980).
7. GLATTER, O. *Interpretation, Small Angle X-ray Scattering* (Otto Glatter; Kratky, o., eds) Academic Press, (1982), Chapter 5.
8. LUMBANRAJA, K. WARTA AKAB, No. 15, Desember (2003).

DISKUSI

MERI SUHARTINI

1. Apa yang dimaksud hamburan sudut kecil?
2. Pada analisa apa sajakah teknik ini atau metode ini dapat diaplikasikan?

KRISNA LUMBANRAJA

1. Suatu metode yang bermanfaat untuk analisa morfologi suatu bahan berukuran $10 - 1000 \text{ \AA}$
2. Contoh yang paling baru adalah menghitung ketebalan interface KA/PE blend yaitu $\pm 3 \text{ nm}$ (Hirokazu Hasegawa, et.al, 2003). Pengukuran ketebalan interface penting bukan saja berkaitan dengan sifat-sifat mekanik blend tetapi juga baik untuk mengukur miscibility dan compatibility dari blend tersebut.

