

REAKSI REKOIL INTI DAN PENGARUH RADIASI γ PADA ZEOLIT

Siti Amini

Pusat Elemen Bakar Nuklir - Badan Tenaga Atom Nasional

ABSTRAK

REAKSI REKOIL INTI DAN PENGARUH RADIASI γ PADA ZEOLIT. Tingkah laku penukaran kation Cs dan Ba dalam zeolit dipelajari, yaitu meliputi reaksi rekoil inti atom dalam framework di lokasi terbuka ke lokasi tertutup dan dari lokasi tertutup ke lokasi terbuka. Pada proses reaksi n, γ , kation sasaran dalam reaksi rekoil dari lokasi terbuka ke lokasi tertutup dapat dielusi dengan efisiensi 90%. Adapun dalam reaksi rekoil dari lokasi tertutup ke lokasi terbuka, menunjukkan efisiensi antara 50 -60%. Pengaruh temperatur kalsinasi pada kation penukar juga diamati. Hasilnya diperoleh bahwa tidak ada kerusakan struktur secara signifikan selama kalsinasi sampai temperatur 920K, demikian pula dalam proses radiasi dengan fluks neutron 10^{12} n.cm⁻².s⁻¹ tidak merubah struktur. Sedangkan dalam hal lain, akibat rekoil inti, terdapat perpindahan kation penukar dari lokasi terbuka ke lokasi "tertutup" yang menyebabkan pengurangan sebagian dari daya penukaran kation untuk Cs dan Ba. Karakteristik zeolit diamati dengan menggunakan XRD, IR, SEM dan TG/DTG/DSC. Adapun untuk pengukuran analisis isotopnya digunakan alat spektrometer γ - dan pencacah sintilasi cair.

ABSTRACT

NUCLEAR RECOIL AND EFFECT OF γ RADIATION IN THE ZEOLITE. The cations exchange behavior of Cs and Ba into zeolites has been studied. Studies were made of the atomic recoil from "open to locked in" and "locked in to open" sites of the zeolites frame works. In the n, γ reaction, the recoiled target cations could be eluted with efficiencies of 90% in "open to locked in" sites recoil. That in the "locked in to open" sites recoil, the efficiencies were in the range of 50 - 60%. The effect of calcination temperature on the exchange of cations present was also ascertained. There was no significant damage on the structure of zeolite due to the calcination temperature up to 923 K. Also n- radiation up to flux of 10^{12} n.cm⁻².s⁻¹ did not lead any appreciable change in the structure, however, the displacement of exchangeable cation to "locked in" sites results partial reduced Cs and Ba uptake. The zeolites were characterized by XRD, IR, SEM and TG/DTG/DSC techniques, and the isotopic analysis were measured by γ -spectrometer and liquid scintillation counter.

PENDAHULUAN

Penelitian ini berdasarkan latar belakang bahwa zeolit, senyawa kristal polimer dari aluminosilikat dapat dikembangkan penggunaannya dalam bidang industri nuklir. Penggunaan zeolit alam/buatan sebagai penukar-kation dan penyerap kation yang radioaktif berumur panjang seperti ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, makin populer karena terbukti keampuhannya pada kecelakaan reaktor di TMI (1979) [1] dan di Chernobyl (1985) [2] untuk media dekontaminasi air kolam pendingin reaktor. Juga zeolit alam yaitu clinoptilolite dinilai ekonomis dan efisien digunakan dalam pengolahan air kolam pada SI XEP-BNF (Site of Ion Exchange Effluent Plant - British Nuclear Fuel) di Sellafield, U.K. [3,4].

Kini ada peluang untuk mengembangkan penggunaan zeolit untuk pembuatan dan pemisahan radioisotop, sehingga tingkah lakunya

terhadap reaksi inti dan pengaruh perubahan struktur serta lokasi kation akibat rekoil inti perlu diuji. Radiasi neutron hingga dosis 10^{17} n.cm⁻² tidak akan mempengaruhi perubahan struktur [5], namun akibat panas yang terlokalisasi memungkinkan terjadinya relokasi kation dalam struktur zeolit. Hal ini telah diamati dari perbedaan efisiensi proses elusinya (regenerasi zeolit) dengan ion NH₄⁺ sebelum dan sesudah diiradiasi.

Pada radiasi neutron termal, reaksi penangkapan neutron per inti, melibatkan pelepasan energi ikatan inti - 8 MeV, yang sebagian besar umumnya dipancarkan dalam bentuk foton (sinar γ), tergantung dari besarnya nomor massa inti target. Pada reaksi (n, γ), terbentuk inti baru yang terpelanting (rekoil) dan mempunyai energi kinetik rata-rata sebesar:

$$E_{\text{max, rekoil}} (\text{eV}) = \frac{537 E_{\gamma}^2 \text{ MeV}}{M}$$

E_{γ} adalah total energi foton yang dipancarkan ; M adalah massa inti atom (s.m.a).

Energi rekoil dari peristiwa transformasi inti sangat bervariasi, tergantung dari jenis reaksi [6]. Pengaruh reaksi (n, γ) pada zeolit, diterapkan untuk memenuhi sasaran pemisahan radioisotop Cs atau Ba yang merupakan kation yang terdapat diantara hasil belah elemen bakar nuklir. Tentunya kebergantungan terhadap jenis dan sifat kation, komposisi kation dalam zeolit, adanya hidrasi atau temperatur kalsinasi perlu dipertimbangkan.

BAHAN DAN PERALATAN

Bahan

Beberapa zeolit (L, ZSM5, BETA), larutan isonormal CS^+ , Ba^{2+} dan NH_4Cl jenuh serta isotop ^{137}Cs dan ^{133}Ba .

Peralatan

Otoklaf 'Digestion Bomb', oven dan sentrifuga, untuk pembuatan zeolit. Botol-botol plastik dan mineralogical roller, tabung gelas borosilikat dan kontainer-Al. XRD merk Philips PW1710; merk Perkin Elmer 1710; SEM merk Cambridge S-600; TGA, Mettler-TG50; Spektrometer serapan/emisi atom merk S-11 (untuk analisis kation non-radioaktif), sintilasi cair (LSC, merk 1900 CA Tri-Carb) dan HPGe detektor γ -spektrometer γ yang dilengkapi detektor Hp Ge (MCA-Canberra 35 plus).

TATA KERJA

Zeolit-L disuplai dari Laporte Industries, Widnes, U.K., ZSM5 dan BETA dibuat secara hidrotermal sesuai cara terdahulu. XRD, IR, dan TGA untuk karakterisasinya.

Zeolit buatan yang sudah dikalsinasi pada temperatur 823 K, dimuati ion Cs atau Ba secara penukaran kation, kemudian diiradiasi dengan fluks neutron $10^{12} \text{ n.cm}^{-2} \text{ det}^{-1}$, dan setengah bagian zeolit ditimbang, dielusi dengan NH_4Cl jenuh. Efek rekoil dari ^{134}Cs atau ^{131}Ba pada lokasi terbuka, dapat dianalisis dengan spektrometer- γ , dan dihitung efisiensi elusinya (%E) dengan persamaan berikut:

$$\% E = \left(1 - \frac{C_{\text{elusi}}}{C_{\text{non}}}\right) \times 100\%$$

C_{elusi} dan C_{non} masing masing adalah cacahan zeolit bermuatan isotop yang dapat dielusi serta cacahan zeolit bermuatan isotop yang tidak

dielusi. Dari %E didapat data rekoil nuklida dari lokasi terbuka ke lokasi tertutup. Sedangkan sisanya adalah %L dimana nuklida terdapat pada lokasi tertutup di dalam struktur zeolit tersebut.

Dengan cara sama, zeolit yang bermuat Cs atau Ba dikalsinasi terlebih dahulu pada temperatur dari 523, 723, 823, hingga 923 K, kemudian diiradiasi dan dielusi. Didapat data rekoil nuklida dari lokasi tertutup ke terbuka. Sebagai tambahan, zeolit yang bermuatan isotop ^{137}Cs ataupun ^{133}Ba , dikalsinasi pada berbagai temperatur dari 523, 723, 823, hingga 923 K, kemudian diamati kapasitas penukaran kationnya (CEC). Komposisi zeolit serta kapasitas penukaran kation (CEC) ditentukan dengan cara standar [13-14]. Parameter dosis radiasi neutron dari 0 - $9,8 \cdot 10^{17} \text{ n.cm}^{-2}$ dan radiasi γ dari 0 - 10 MGy terhadap adanya kemungkinan perubahan pada kapasitas penukar kation, diamati.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisis komposisi dan karakterisasi zeolit

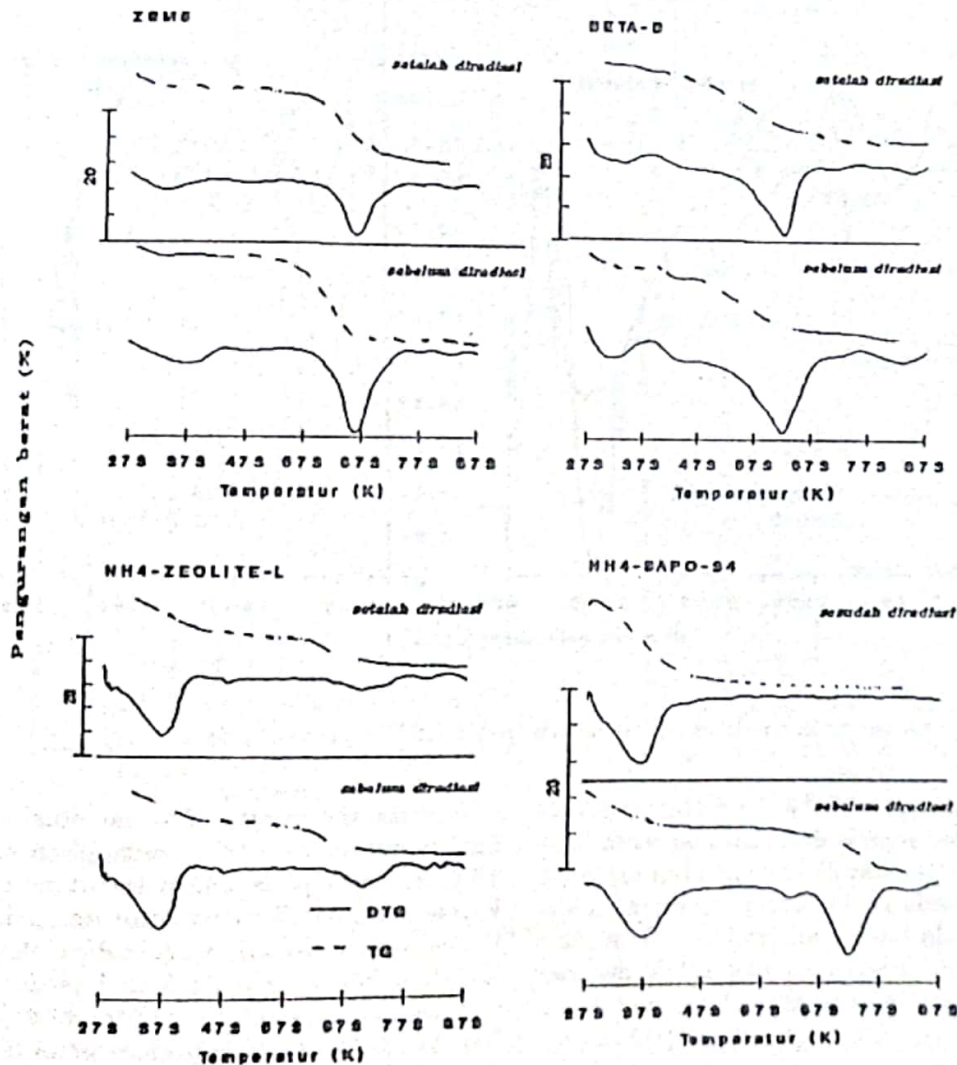
Hasil analisis komposisi zeolit dan Cs- dan Ba- zeolit, dapat dilihat pada Tabel 1.

Struktur zeolit serta kemungkinan terdapatnya kation di lokasi tertentu di dalam strukturnya dapat dilihat pada Gambar dan Tabel.

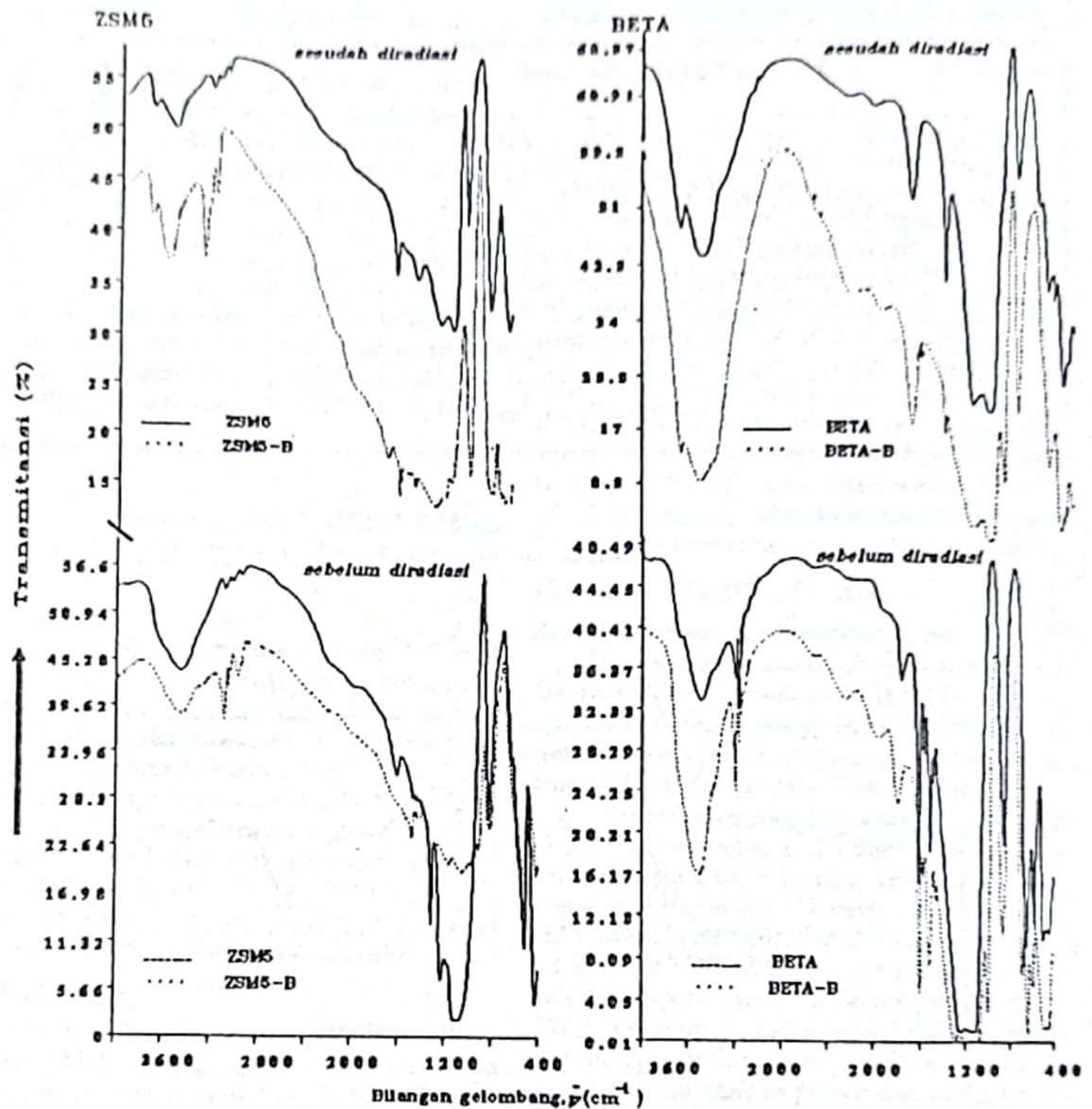
Karakterisasi menggunakan TGA, IR, XRD, dan SEM (Gambar 1, 2, 3 dan 4) memberikan informasi yang lebih lengkap tentang struktur dan gugus-gugus spesifik yang terkait, tingkat kekristalan serta bentuk mikrostrukturnya. Pada kurva termogram (Gambar 1) tampak puncak dekomposisi zeolit pada temperatur 673 - 773K, sebelum diiradiasi tidak jauh berbeda dengan yang sudah diiradiasi. Puncak tersebut menunjukkan adanya proses deammoniasi pada zeolit bersilikat tinggi (ZSM5 = 25 dan BETA = 10) lebih lemah daripada zeolit-L yang bersilikat relatif rendah (= 3). Pada pemeriksaan menggunakan spektra infra merah (Gambar 2), dapat diamati bahwa pengaruh iradiasi mengakibatkan terbentuknya gugus OH yang diamati pada bilangan gelombang 3730, 3655, dan 3350 cm^{-1} yang bervibrasi dalam struktur zeolit yang mana serapan tersebut tidak teramati pada cuplikan sebelum diiradiasi. Adapun penambahan intensitas vibrasi infra merah, terutama pada daerah $1300 - 1200 \text{ cm}^{-1}$ menggambarkan adanya vibrasi gugus tetrahedral TO_4 disebabkan adanya penyusunan kristal dalam struktur zeolit. Sedangkan dari segi derajat kristalinitasnya, struktur zeolit tetap stabil dalam kondisi

Tabel 1. Komposisi zeolit dan jenis struktur dasarnya

Zeolit	Komposisi/unit sel	Si/Al	Struktur dasar dan diameter (pm)/[Ref]
Zeolit-L Cs-L Ba-L	$H_{6,4}K_{2,6}[Al_9Si_{27}O_{72}] 17H_2O$ $Cs_{5,2}HK_{2,7}[Al_{8,9}Si_{27,1}O_{72}] 16H_2O$ $Ba_{1,8}H_3K_2[Al_{8,8}Si_{27,2}O_{72}] 20H_2O$	3 3 3,1	S6R, saluran tunggal; 310/[15]
ZSM5 Cs-ZSM5 Ba-ZSM5	$H_{0,3}Na_3[Al_{3,3}Si_{92,7}O_{192}] 19H_2O$ $Cs_{3,5}Na_{0,1}[Al_{3,6}Si_{92,4}O_{192}] 25H_2O$ $Ba_{1,2}Na_{1,4}[Al_{3,8}Si_{92,2}O_{192}] 28H_2O$	28,1 25,6 24,3	D5R, saluran zigzag; 540-575/[16]
BETA Cs-BETA Ba-BETA	$H_{0,1}Na_{17}[Al_{17,1}Si_{174,9}O_{384}] 85H_2O$ $Cs_{16,2}Na_{1,5}[Al_{17,7}Si_{174,3}O_{384}] 93H_2O$ $Ba_{5,1}H_{0,1}Na_{7,8}[Al_{18,2}Si_{173,8}O_{384}] 28H_2O$	10,2 9,8 9,5	D6R, sangkar tiga dimensi; ukuran bervariasi/[17]



Gambar 1. Termogram zeolit dan zeotip



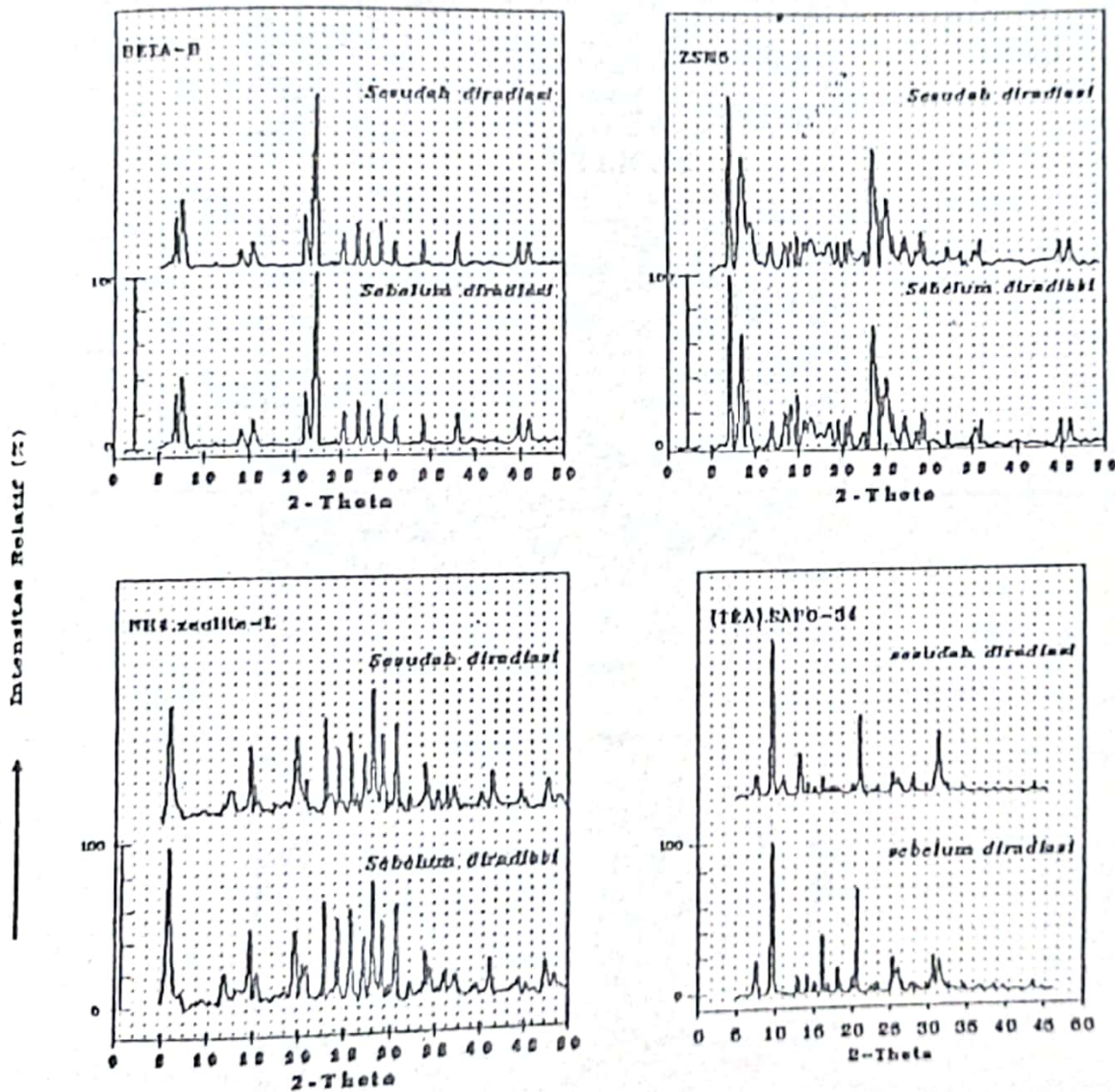
Gambar 2. Spektra infra-merah (pelet KBR) dari zeolit dan zeotip

dosis radiasi hingga $\approx 10^{17}$ n.cm⁻². Hal ini ditunjukkan oleh garis-garis defraksi kisi pada daerah $2\theta = 20-40$ (Gambar 3). Dari gambar tersebut nampak tidak ada perbedaan pada difraksi antara sebelum dan sesudah iradiasi. Demikian pula bentuk mikrostrukturnya tidak mengalami kerusakan (Gambar 4).

Rekoil inti dari lokasi terbuka ke tertutup

Data rekoil nuklida Cs dan Ba di dalam struktur zeolit, ditunjukkan pada Tabel 2.

Pada umumnya efisiensi elusi/ekstraksi kation mencapai $\approx 90\%$, sedangkan sisanya $\approx 10\%$ terdapat pada lokasi tertutup/terperangkap setelah zeolit mengalami iradiasi. Diduga bahwa rekoil inti dalam zeolit dari lokasi terbuka akan berakhir pada lokasi tertutup, yang bergantung pada jenis zeolit (perbedaan angka banding Si/Al) yang berakibat pada timbulnya perbedaan angka banding volume terbuka/ volume bebas total dalam struktur zeolit [2].



Gambar 3. Pola spektra defraksi sinar-x zeolit dan zeotip

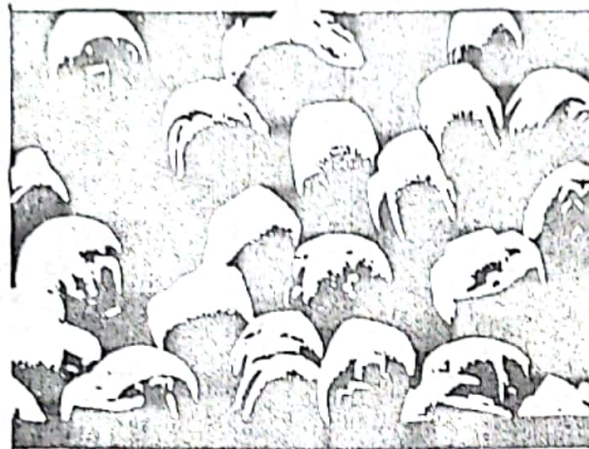
Rekoil inti dari lokasi tertutup ke terbuka

Tabel 3 menunjukkan data rekoil dari Cs⁺ dan Ba²⁺ sebagai fungsi dari temperatur kalsinasi. Dari data tersebut terlihat bahwa persentase kation yang terdapat pada lokasi tertutup bertambah dengan adanya kenaikan tempe-

ratur kalsinasi. Adapun efisiensi elusi/regenerasi nuklida yang terdapat dalam struktur zeolit berkisar antara 50 - 60%. Hal ini diperkuat dengan data pengamatan pengaruh temperatur kalsinasi pada kapasitas penukaran kationnya (Gambar 5 dan 6). Adanya kenaikan temperatur



ZEOLITE - L



ZSM5



BETA

Gambar 4. Scanning elektron mikrograf zeolit yang telah diiradiasi

kalsinasi dapat menurunkan kapasitas penukaran kation, atau jumlah kation di lokasi tertutup/satuan sel akan bertambah. Hal ini terjadi karena pengaruh termal dapat mempercepat perpindahan kation dari dalam keadaan rekoil

hingga mencapai kestabilannya di lokasi tertutup.

Pengaruh radiasi γ dan neutron

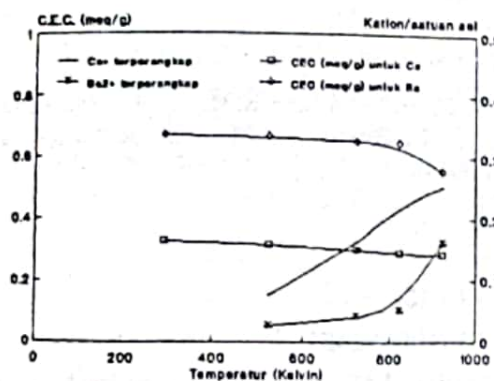
Gambar 7 menunjukkan penurunan kapasitas penukaran kation akibat adanya kenaikan

Tabel 2. Data rekoil ^{134}Cs dan ^{131}Ba dari lokasi terbuka ke tertutup

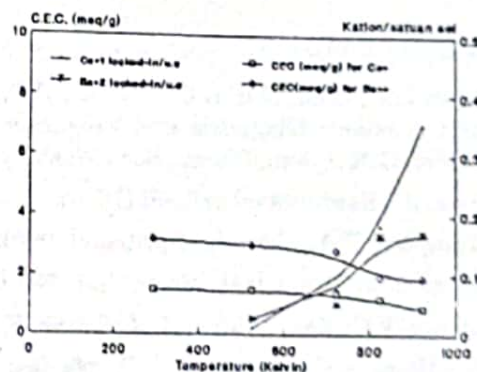
Zeolit	% E (lokasi terbuka)		% L (lokasi tertutup)	
	^{134}Cs	^{131}Ba	^{134}Cs	^{131}Ba
NH4K-L	85,8	93,5	14,2	6,5
ZSM-5	93,6	92,2	6,4	7,8
BETA	89,9	91,1	10,1	8,9

Tabel 3. Data rekoil ^{134}Cs dan ^{131}Ba dari lokasi tertutup ke terbuka

Zeolit Temperatur (K)	% Cs (lokasi tertutup)				% Ba (lokasi tertutup)			
	523	723	823	923	523	723	823	923
NH4K-L	25,8	36,2	48,5	60,1	14,2	21,4	26,2	36,3
ZSM-5	11,3	20,6	23,6	32,4	10,4	18,6	20,2	37,7
BETA	13,5	28,2	35,1	47,7	25,8	31,7	38,6	48,2



Gambar 5. Kation di lokasi tertutup/satuan sel struktur ZSM-5 sebagai fungsi dari temperatur kalsinasi

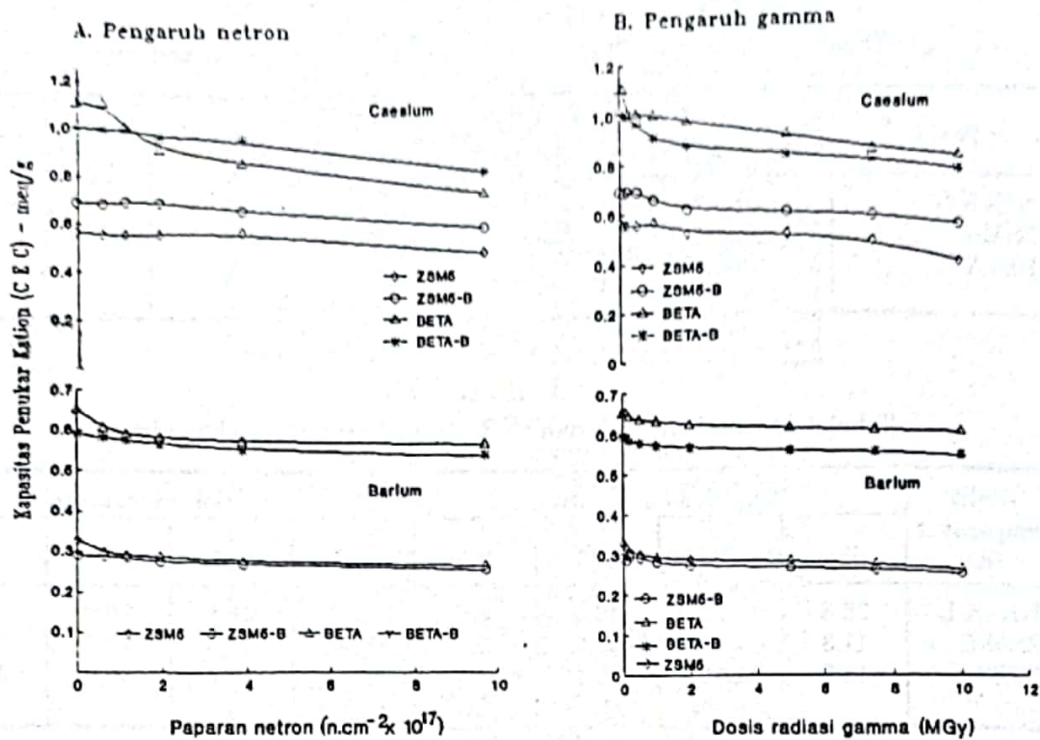


Gambar 6. Kation di lokasi tertutup/satuan sel struktur zeolit BETA sebagai fungsi dari temperatur kalsinasi

dosis iradiasi neutron ataupun iradiasi γ . Kapasitas penukaran kation akan tetap stabil pada ZSM-5 ataupun BETA setelah mengalami iradiasi neutron 2.10^{17} n.cm⁻² serta iradiasi γ lebih besar dari 2 MGy. Selanjutnya sebagian kation tertutup pada struktur zeolit, sedangkan hanya sebagian kation yang berada di lokasi terbuka saja yang dapat mengalami proses penukaran.

KESIMPULAN

Radiasi neutron maupun γ pada zeolit terutama yang kaya silikat, tidak menyebabkan pengaruh yang berarti pada perubahan struktur. Oleh karenanya, teknik iradiasi zeolit bermuatan penukar kation dapat memberi peluang untuk pengembangan memperoleh radioisotop secara rekoil inti (Szilard-Chalmers).



Gambar 7. Pengaruh radiasi neutron dan γ pada kapasitas penutar kation zeolit

DAFTAR PUSTAKA

- King, L.J., Campbell, D.O., Collins, E.D., Knauer, J.B., and Wallace, R.M., The three mile island accident: Diagnosis and Prognosis, (ed., Toth, L.M., Burton, H.M., Malinauskas, A.P., Eidam, G.R.), Am. Chem. Soc., Washington, D.C. (1984).
- Dyer, A., Komunikasi pribadi (1990).
- Mumpton, F.A., Komunikasi pribadi (1990).
- Howden, M., Proc. Inst. Mech. Eng., 201 (A1), (1987) 1 - 15.
- Rees, L.V.C., and William, C.J., Trans. Farad. Soc., 61 (1985) 1481.
- Friedlander, G., Kennedy, J.W., Macias, E.S., and Miller, J.M., Nuclear and Radiochemistry, 3rd Ed, Wiley, New York (1981).
- Klotz, R.M., US Pat. 4, 285, 919 (1981).
- Klotz, R.M., US Pat. 4, 269, 813 (1981).
- Howden, M.G., Zeolites, 5 (1985) 334.
- Robert, L.W., Oneonta, N.Y., George, T.K., US Pat. 3308069 (1987).
- Xiang, S., Wang, Q., Wang, J., J. of Chinese Univ., 10 (1989) 677.
- Gabelica, Z., Dewaele, N., Maistriani, L., Nagy, J.B., and Derouane, E.G., Zeolite Synthesis, ACS Symp. Ser. 398, (ed. Occelli, M.O., and Robson, H.R.), Am. Chem. Soc., Washington D.C. (1989).
- Bain, D.C., and Smith, B.F.L., A Handbook of Determinative Methods in Clay Mineralogy, (ed. Wilson, M.J.), Backie and Son LTC., Glasgow, U.K. (1987).
- ASTM, Annual book of American Society for testing and Materials, 15-02 (1987).

15. Meier, W.M., and Olson, D.H., Atlas of Zeolite Structure Types, 2nd-rev. Ed., Butterworth, London 1987.
16. Sato, M., Morikawa, K., and Kurosawa, S., Eur. J. Mineral, 2 (1990) 851.
17. Newsam, J.M., Treacy, J.M.M., Koetsier, T.W., and De Gruyer, C.B., Proc. Roy. Soc. London, Ser. A., 420 (1988) 375.

DISKUSI

Indro Yuwono:

1. Mohon penjelasan tentang tujuan penelitian dengan melihat kaitannya dengan lokasi tertutup ke lokasi terbuka dan sebaliknya.
2. Dalam pembuatan zeolit apakah mungkin dibuat/dirancang agar kation dalam lokasi terbuka lebih besar untuk menaikkan efisiensi.

Siti Amini:

1. Tujuannya adalah untuk produksi radioisotop dimana isotop yang terbentuk diharapkan akan berada pada lokasi terbuka agar dapat didesak keluar dari struktur zeolit. Sedangkan kation yang berada di lokasi tertutup tak dapat dikeluarkan dari struktur zeolit tanpa adanya *treatment* khusus.
2. Mungkin saja, tentunya harus ada data-data karakteristik yang lengkap.

Siti Syofiah:

1. Apakah zeolit sintesis tersebut dibuat sendiri?
2. Apakah dengan radiasi dapat merubah sifat kepolaran dari zeolit?
3. Bagaimana saya bisa memperoleh makalahnya?

Siti Amini:

1. Zeolit - L disuplai oleh Laporte Industries - UK, tapi ZSM5 dan BETA dibuat sendiri.
2. Dari hasil pengamatan IR tidak terbukti adanya perubahan kepolaran maupun struktur zeolit, jika radiasi tidak lebih dari $\approx 10^{17} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.
3. Silakan baca majalah/buku Zeolit atau hubungi saya.