

PENGAJIAN IMOBILISASI LIMBAH RADIOAKTIF AKTIVITAS TINGGI DAN ALFA UMUR PANJANG MENGGUNAKAN MATRIKS SYNROC

Gunandjar

Pusat Teknologi Limbah Radioaktif - BATAN
Kawasan Puspptek Serpong, Tangerang Selatan, Banten 15310
Telepon : 021-7563142, Faks ; 021-7560927, E-mail: gunand-m@batan.go.id

ABSTRAK

PENGAJIAN TEKNOLOGI IMOBILISASI LIMBAH RADIOAKTIF AKTIVITAS TINGGI DAN ALFA UMUR PANJANG MENGGUNAKAN MATRIKS SYNROC. Pengkajian teknologi immobilisasi limbah cair radioaktif aktivitas tinggi (LCAT) dan limbah alfa umur panjang menggunakan bahan matriks synroc dilakukan untuk menyiapkan penyimpanan akhir di fasilitas penyimpanan lestari tanah dalam. Synroc adalah bentuk limbah kristalin yang tersusun dari gabungan fase-fase titanat yang stabil dan dipilih karena kestabilan geokimia dan kemampuan kolektif untuk immobilisasi semua unsur radioaktif dalam limbah radioaktif aktivitas tinggi. Pengembangan komposisi synroc untuk immobilisasi limbah tergantung pada kandungan radionuklida, untuk LCAT tipe purex yang mengandung aktinida dikembangkan synroc kaya zirconolite, $\text{CaZrTi}_2\text{O}_7$, untuk limbah uranium dan plutonium dikembangkan synroc kaya pyrochlore, CaATi_2O_7 dengan penambahan unsur-unsur absorber neutron (Hf dan Gd) untuk mencegah kritikalitas, dan untuk limbah yang mengandung Tc, Cs, dan Sr (dari produk proses pemanasan LAT) dikembangkan synroc kaya fase hollandite/pirovskite, $\text{Ba}(\text{Al,Ti})_2\text{Ti}_6\text{O}_{16}$ / CaTiO_3 . Laju pelindihan untuk unsur-unsur dalam synroc adalah jauh lebih kecil dari pada tipe gelas borosilikat limbah. Bahan matriks synroc untuk immobilisasi LCAT lebih baik daripada menggunakan matriks gelas borosilikat, dan juga lebih baik untuk imobilisasi limbah alfa umur panjang daripada menggunakan aspal dan plastik polimer. Di Indonesia, adaptasi teknologi immobilisasi LCAT dengan bahan synroc akan dilakukan untuk immobilisasi LCAT yang ditimbulkan dari uji pasca-iradiasi elemen bakar nuklir dan produksi radioisotop ^{99}Mo , dan untuk limbah alfa umur panjang yang mengandung uranium.

Kata kunci : immobilisasi limbah radioaktif, limbah radioaktif aktivitas tinggi, limbah alfa umur panjang, pengelolaan limbah radioaktif, synroc

ABSTRACT

ASSESSMENT OF IMMOBILIZATION TECHNOLOGY FOR HIGH LEVEL RADIOACTIVE WASTE AND LONG LIFE ALPHA WASTE USING SYNROC MATRIX. The assessment of immobilization technology using synroc matrix material for high level liquid radioactive wastes (HLLW) and long life alpha waste was carried out for ready to final storage in the deep geologic disposal facility. Synroc is a crystalline wasteform comprising a stable assemblage of titanate phases chosen for their geochemical stability and collective ability to immobilize all the radioactive elements present in high level radioactive wastes (HLW). Development of synroc for waste immobilisation depend on the containing of radionuclides. For the HLW purex type containing of actinides was developed zirconolite, $\text{CaZrTi}_2\text{O}_7$ rich synroc, for the waste containing of uranium and plutonium was developed pyrochlore, CaATi_2O_7 rich synroc with neutron absorbers (Hf and Gd) were needed to suppress criticality potential, whereas for the waste containing of Tc, Cs, and Sr (from the heat producing of HLW) was developed hollandite/pirovskite, $\text{Ba}(\text{Al,Ti})_2\text{Ti}_6\text{O}_{16}$ / CaTiO_3 rich synroc. Leach-rates for elements in synroc are very smaller than from a typical borosilicate glass. Synroc matrix material is better than borosilicate glass matrix for immobilization of HLLW, and also synroc is better than bitumen and plastic-polymer matrix materials for immobilization of long life alpha waste. In Indonesia, adaptation of HLLW immobilization technology using synroc matrix materials will be carried out for immobilization of HLLW generated from post irradiation examination of nuclear fuel element and ^{99}Mo radioisotope production, and for long life alpha waste containing uranium.

Keywords : high level radio- active waste, immobilisation of radioactive waste, long life alpha radioactive waste, radioactive waste management, synroc.

PENDAHULUAN

Pengembangan teknologi pengolahan limbah radioaktif menjadi kemasan limbah yang siap disimpan telah dilakukan oleh negara-negara maju di bidang nuklir, melalui proses imobilisasi limbah radioaktif yaitu teknologi sementasi, vitrifikasi, polimerisasi, bitumenasi, *superhigh temperature method (SIITM)*, dan *synroc*. Di Indonesia, Pusat Teknologi Limbah Radioaktif – BATAN telah menerapkan dengan mantap teknologi sementasi untuk imobilisasi limbah radioaktif aktivitas rendah (LAR) dan limbah radioaktif aktivitas sedang (LAS) umur pendek ($T_{1/2} \leq 30$ tahun). Untuk pengelolaan limbah aktivitas tinggi (LAT) umur panjang khususnya untuk limbah cair aktivitas tinggi (LCAT) dan limbah cair aktivitas rendah dan sedang (LCAR dan LCAS) pemancar alfa umur panjang yang ditimbulkan dari proses pemanfaatan tenaga nuklir, maka perlu disiapkan teknologi imobilisasi limbah menjadi kemasan limbah yang mampu bertahan selama waktu penyimpanan yang panjang di dalam fasilitas penyimpanan akhir yaitu di fasilitas penyimpanan lestari tanah dalam (*Deep Geological Disposal Facility*)

Di negara-negara yang menerapkan strategi daur bahan bakar nuklir tertutup, LCAT ditimbulkan dari proses olah ulang (*reprocessing*) bahan bakar nuklir bekas. Dalam proses olah-ulang, uranium (sisa) dan plutonium (yang dihasilkan) dipisahkan dan digunakan untuk pembuatan perangkat bahan bakar nuklir baru. Dari proses olah-ulang tersebut ditimbulkan LCAT yang banyak mengandung radionuklida hasil fisi dan sejumlah kecil transuranium (TRU) yaitu radionuklida aktinida umur panjang.

Strategi pengelolaan LCAT dari proses olah-ulang bahan bakar nuklir bekas dalam gelas borosilikat, yang diikuti dengan penyimpanan lestari tanah dalam ternyata masih menghadapi masalah karena hasil penelitian para ahli geokimia bahwa limbah gelas borosilikat (hasil imobilisasi LCAT dengan vitrifikasi) ternyata kurang stabil bila disimpan di dalam tanah akibat adanya pemanasan gamma (*gamma heating*) dari limbah yang masih dapat menimbulkan suhu lebih dari 100 °C. Selain itu tidak dapat dijamin untuk menghindari kontak air tanah dengan gelas, walaupun serangkaian lapisan tambahan

seperti wadah limbah dari logam dan pembungkus luar (*overpack*) dari tanah liat telah digunakan di dalam fasilitas penyimpanan lestari tanah dalam^[1]. Dengan alasan tersebut maka pengembangan teknologi imobilisasi LCAT terus dilakukan untuk mencari teknologi yang lebih baik. Salah satu teknologi yang telah dikembangkan adalah metode *Synroc* (metode proses pembentukan *synroc*). Metode ini telah dikembangkan di Australia, Inggris, dan Jepang dalam rangka kerja sama dengan Australia^[2]. *Synroc* adalah suatu bahan imobilisasi limbah bentuk kristalin yang terdiri atas gabungan fase-fase kristal titanat yang stabil. *Synroc* ini dipilih karena kestabilan geokimia dan kemampuan kolektif untuk imobilisasi (mengungkung) semua unsur-unsur radioaktif dalam LCAT.^[3] Selanjutnya imobilisasi dengan matriks *synroc* dikembangkan untuk limbah radioaktif cair aktivitas sedang (LCAS) pemancar α (alfa) umur panjang yang mengandung uranium (U), thorium (Th) dan TRU, limbah cair transuranium (LCTRU). Berdasar pertimbangan keselamatan, kemasan blok limbah hasil imobilisasi dari limbah-limbah tersebut dimasukkan dalam kelompok yang penyimpanan akhirnya dilakukan di fasilitas penyimpanan lestari tanah dalam.^[2,4]

Negara-negara yang mempunyai strategi daur bahan bakar nuklir terbuka seperti Indonesia tidak ada kegiatan proses olah-ulang bahan bakar nuklir bekas, maka LAT adalah bahan bakar nuklir bekas itu sendiri. Di Indonesia, LCAT ditimbulkan dari pengujian bahan bakar pasca iradiasi di Instalasi Radiometalurgi (IRM) dan dari produksi radioisotop ⁹⁹Mo yang dibuat dari iradiasi uranium diperkaya ²³⁵U di Instalasi Produksi Radioisotop (IPR). Mengingat pentingnya masalah tersebut, maka dalam makalah ini dikaji teknologi imobilisasi limbah radioaktif dengan bahan matriks *synroc* dan adaptasi teknologinya sebagai alternatif untuk imobilisasi LCAT dari IPR dan IRM, selain itu juga untuk imobilisasi limbah alfa umur panjang yang mengandung uranium yang ditimbulkan dari dekomisioning fasilitas pemurnian asam fosfat PT.Petrokimia Gresik (PAF-PKG) dan limbah yang ditimbulkan dari proses penyiapan bahan bakar nuklir di Indonesia untuk PLTN yang akan datang.

METODE

Pengkajian dilakukan dengan metode mempelajari dan melakukan analisis data dan informasi yang diperoleh dari berbagai studi pustaka dengan permasalahan imobilisasi limbah radioaktif. Pengkajian diawali dengan mempelajari proses solidifikasi limbah radioaktif dan pengembangan imobilisasi limbah dengan bahan matriks *synroc* yang merupakan teknologi imobilisasi yang paling mutakhir untuk LCAT dan limbah radioaktif alfa umur panjang. Pengkajian kemudian difokuskan pada evaluasi data proses imobilisasi, laju pelindihan, dan pengaruh radiasi terhadap blok limbah hasil imobilisasi menggunakan bahan matriks *synroc*, serta perbandingannya dengan bahan matriks gelas borosilikat untuk LCAT, dan dengan matriks aspal atau plastik polimer untuk imobilisasi limbah radioaktif alfa umur panjang. Selanjutnya dilakukan pengkajian adaptasi teknologi imobilisasi dengan bahan matriks *synroc* untuk LCAT (dari IPR dan IRM) dan limbah *sludge* radioaktif alfa umur panjang yang mengandung uranium yang ditimbulkan dari dekomisioning fasilitas PAF-PKG.

Tempat dan waktu

Pengkajian ini dilakukan di Pusat Teknologi Limbah Radioaktif –BATAN, Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang, Banten pada tahun 2011, sebagai upaya untuk mempersiapkan proses pengolahan LCAT dan limbah *sludge* radioaktif alfa umur panjang yang mengandung uranium yang ditimbulkan dari dekomisioning fasilitas PAF-PKG.

HASIL STUDI DAN PEMBAHASAN

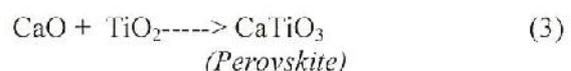
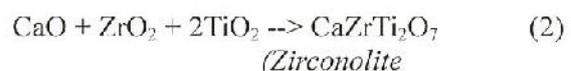
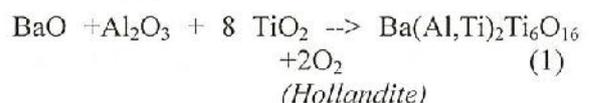
Imobilisasi Limbah Radioaktif dan Pengembangan Bahan Matriks *Synroc*

Imobilisasi limbah radioaktif melalui proses pemadatan (solidifikasi) bertujuan agar radionuklida terfiksasi, terkungkung, dan tertahan di dalam matriks bahan pematat sehingga radionuklida tersebut tidak mudah lepas oleh rembesan air yang menembus ke dalam hasil solidifikasi dan radiasinya tertahan. Penggunaan bahan matriks untuk solidifikasi limbah radioaktif sesuai dengan jenis limbah, serta sistem penyimpanan akhir ditunjukkan dalam Tabel 1. Solidifikasi limbah alfa

berumur panjang dapat digunakan bahan matriks plastik (polimer) atau aspal (bitumen). Solidifikasi LCAT umur panjang menggunakan bahan matriks gelas borosilikat. Ketiga jenis bahan matriks tersebut telah digunakan secara komersial di negara-negara maju di bidang nuklir. Pengembangan terakhir kedua jenis limbah tersebut digunakan bahan matriks *synroc*.

Pengembangan bahan matriks *synroc* pertama kali dikemukakan sebagai alternatif pengganti gelas borosilikat untuk imobilisasi LCAT, dengan ide dasar memasukkan radionuklida hasil belah dan aktinida ke dalam kisi-kisi kristal mineral sintesis yang telah diketahui mempunyai umur yang sangat panjang (beberapa juta tahun) di alam. Sebagai ilustrasi ditemukan *chemical zoning* dari mineral *zirconite* alam dalam umur 40 juta tahun yang ditemukan di Adamello Itali Utara, kristal tersebut mengandung : 2,7 – 17,1 % berat ThO₂ dan 0,7 – 6,0 % berat UO₂ dan telah dihitung dosis peluruhan α adalah 0,2 – 1,0 x 10¹⁶ α /mg yang ekuivalen dengan umur suatu *synroc* yang disimpan selama 10⁵ sampai 10⁶ tahun.^[1]

Pada tahun 1978, RINGWOOD^[5] menemukan *synroc* yang merupakan gabungan mineral titanat yang jauh lebih tahan terhadap air dibanding dengan gelas borosilikat. Proses imobilisasi limbah dalam *synroc* dilakukan dengan cara mencampurkan limbah hasil belah atau aktinida dalam larutan asam nitrat dengan prekursor oksida (*precursor oxide*), kemudian campuran tersebut dikeringkan, dikalsinasi, dan dipres-panas dibawah kondisi reduksi pada suhu sekitar 1200 °C untuk membentuk suatu keramik multi-fase yang padat^[6]. Komposisi prekursor oksida untuk *synroc* standar (dalam % berat) adalah: Al₂O₃ (5,4); BaO (5,6); CaO (11,0); TiO₂ (71,4), dan ZrO₂ (6,6). Pembentukan fase-fase utama mineral *synroc* terjadi pada suhu tinggi sekitar 1200 °C dengan reaksi sebagai berikut.



Pada pengembangan *synroc* terbentuk turunan fase utama dengan unsur-unsur yang terkandung dalam limbah, yaitu: *pyrochlore* (CaATi_2O_7 , A = Gd, Hf, Pu, dan U) yang merupakan turunan *zirconolite* dengan penambahan unsur penyerap neutron (Hf dan Gd) untuk mencegah terjadinya kritikalitas, *brannerite* (AnTi_2O_6 , An = aktinida), dan *freudenbergite* ($\text{Na}_2\text{Fe}_2\text{Ti}_6\text{O}_{16}$). Fase-fase penyusun *synroc* dan radionuklida yang masuk ke dalam kisi-kisi berbagai fase mineral yang ada ditunjukkan dalam Tabel 2.

Pengembangan selanjutnya dilakukan dengan modifikasi *synroc-C* menjadi beberapa turunan *synroc*, yaitu dengan mengubah komposisi *synroc* yang disesuaikan dengan kandungan radionuklida dalam limbah. Solidifikasi limbah yang mengandung aktinida, digunakan *synroc* kaya *zirconolite* (80 % berat *zirconolite*). Solidifikasi limbah U dan Pu digunakan *synroc* kaya *pyrochlore*. Solidifikasi limbah Tc, Cs, dan Sr hasil pemanasan LCAT digunakan *synroc* kaya fase *hollandite/ perovskite* [5].

Diagram alir proses pengolahan limbah cair radioaktif dengan *synroc* ditunjukkan pada Gambar 1. Prekursor non-radioaktif *synroc* dibuat di luar *hot-cell* menggunakan metode

kimia yang dikembangkan oleh Dosch [6]. Hasil *slurry* dikeringkan pada 130 °C dalam drum pengering berputar menjadi serbuk bebas alir, kemudian dimasukkan sebagai *moving bed* ke dalam vertikal kiln untuk dikalsinasi pada 750 °C dalam kontrol media reduksi dengan Ar-44 % H_2 . Serbuk yang tidak menguap dituang ke dalam wadah baja tahan karat dan dimasukkan 2 % logam Ti untuk mempermudah pengendalian proses redoks selama pres-panas. Wadah (*container*) kemudian divakumkan dan ditutup. Sedang unsur yang menguap seperti Cs akan diolah dengan sitem pengolahan gas buang. Campuran *synroc* dari serbuk prekursor dan limbah (~ 25 % densitas teoritis) dikonversi menjadi keramik *monolit* yang sangat kompak dengan pres-panas pada 1150 – 1200 °C, dan tekanan 500 – 1000 bar. Proses untuk tahap ini adalah pres-panas isostatik (*hot isostatic pressing = HIP*) yang digunakan secara luas pada skala komersial. Reduksi volume limbah yang besar menyertai langkah ini dan limbah hasil pres-panas (*synroc monoliths*) dikumpulkan dalam *canister*, selanjutnya disimpan di dalam fasilitas penyimpanan lestari tanah dalam.

Tabel 1. Klasifikasi Limbah Berdasar Umur Paroh Radionuklidanya dan Solidifikasi (Bahan Matriks) Serta Tipe Penyimpanan Akhirnya [4]

No	Karakteristik yang ditinjau	Klasifikasi			
		Limbah berumur pendek	Limbah Berumur Panjang		
			Limbah alfa	Limbah akyivitas Tinggi	
1	Aktivitas awal radionuklida yang berwaktu paroh \leq 30,17 tahun	Rendah atau sedang, aktivitasnya dapat diabaikan setelah 300 tahun.	Rendah atau sedang, aktivitasnya dapat diabaikan setelah 300 tahun.	Sangat tinggi, dapat diabaikan setelah beberapa ratus tahun.	
	Aktivitas awal radio- nuklida yang berwaktu paroh ratusan atau ribuan tahun.	Nol atau sangat rendah, lebih kecil dari batas ambang yang ditetapkan.	Rendah atau sedang,	Rendah atau sedang.	
	Radiasi utama yang dipancarkan	Beta-gamma (β - γ)	Alfa (α)	Beta-gamma selama beberapa ratus tahun, kemudian setelah itu yang utama alfa.	

Tabel 1. Lanjutan

No	Karakteristik yang ditinjau	Limbah berumur pendek	Klasifikasi	
			Limbah alfa	Limbah Berumur Panjang Limbah akyivitas Tinggi
2	Radionuklida yang utama.	Sr-90(28,8 tahun), Cs-137(33 th), Co-60 (5 th), Fe-55(2,5 th).	Np-237 (2x10 ⁶ th), Pu-239 (2,4x10 ⁴ th), Am-241(4x10 ² th), dan Am 243 (8x10 ³ th)	Co-60, Sr,90, Np-137, Pu-239, Am-241, dan Am-243.
3	Bahan Matriks untuk solidifikasi.	Semen , plastik (polimer)	Plastik (polimer), aspal (bitumen)	Gelas (vitrifikasi).
4	Sistem penyimpanan akhir.	Penyimpanan tanah dangkal selama 300 tahun.	Penyimpanan tanah dalam selama jutaan tahun.	Penyimpanan tanah dalam jutaan tahun.

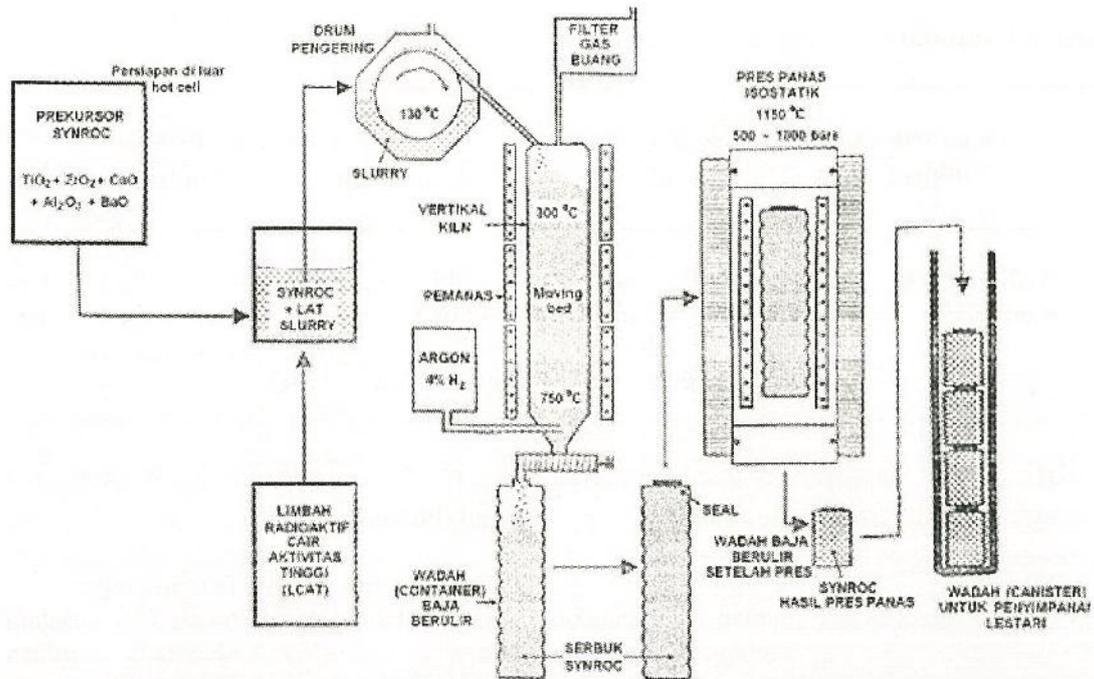
Tabel 2. Fase-Fase Utama dan Turunannya Dalam mineral *Synroc-C* (Standar) dan Radionuklida yang Masuk Dalam Kisi-Kisi Fase Mineral ^[1,5]

Fase mineral	Rumus kimia	Radionuklida dalam kisi fase mineral
<i>Hollandite</i> ,	Ba(Al,Ti) ₂ Ti ₆ O ₁₆	- Cs dan Rb.
<i>Zirconolite</i> ,	CaZrTi ₂ O ₇	- Logam tanah jarang, Aktinida (An).
<i>Perovskite</i> ,	CaTiO ₃	- Sr, Logam tanah jarang, dan Aktinida (An)
<i>Pyrochlore</i> ^{a)}	CaATi ₂ O ₇	- Ca dan A (Gd, Hf, Pu, U)
<i>Brannerite</i> ^{b)}	An Ti ₂ O ₆	- Aktinida (An)
<i>Freudenbergite</i> ^{c)}	Na ₂ Fe ₂ Ti ₆ O ₁₆	- Na, Fe
Titan Oksida	Ti O ₂	- Tc, Pd, Rh, Ru, dll.
Fase paduan	Paduan Logam	

^{a)} Turunan *zirconolite* dengan penggantian Zr oleh A (Gd, Hf, Pu, U).

^{b)} Turunan *perovskite* dengan penggantian Ca oleh An (Aktinida).

^{c)} Turunan *hollandite* dengan penggantian Ba, (Al,Ti) oleh Na dan Fe.

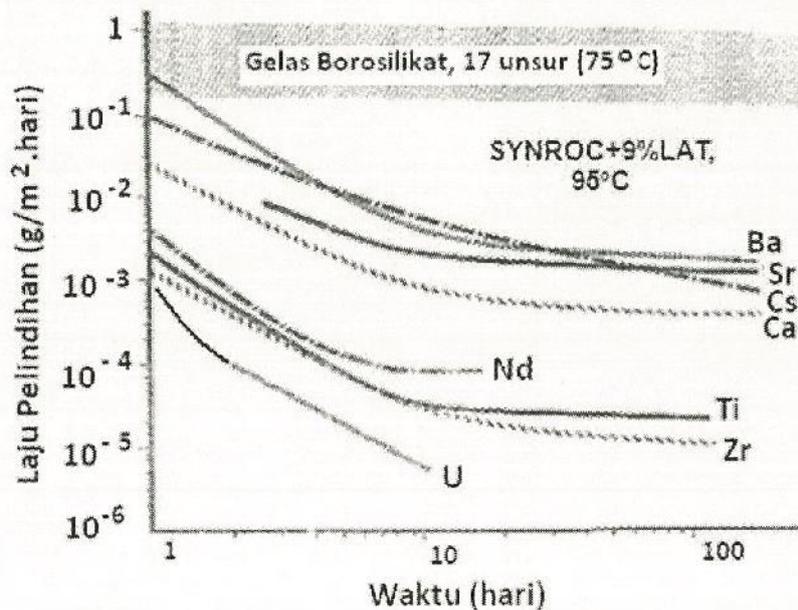


Gambar 1. Diagram Alir Proses Pengolahan Limbah Cair Radioaktif Dengan *Synroc*^[7]

Daya tahan *synroc* limbah terhadap air

Data hasil pengujian pelindihan (daya tahan *synroc* limbah terhadap air) dengan gelas borosilikat sebagai pembanding dapat dilihat pada Gambar 2. Tipe gelas borosilikat hasil immobilisasi LCAT (PNL 76-68) digunakan sebagai pembanding, menunjukkan laju pelindihan 17 unsur pada dasarnya tetap

konstan pada periode waktu yang panjang, pada suhu 75 °C nilainya berkisar pada 0,2 – 1,0 g.m⁻².hari⁻¹. Laju pelindihan untuk berbagai unsur dalam *synroc* menunjukkan suatu rentang nilai yang lebar. Laju pelindihan dengan cepat turun dalam beberapa hari (10-30 hari) pertama, kemudian turun secara *asymptotic* menuju suatu nilai minimum yang menunjukkan kurva yang hampir mendatar.



Gambar 2. Perbandingan Perilaku Pelindihan *Synroc* + 9% LAT Pada 95°C dan Gelas Borosilikat Pada 75°C Dalam Air Murni^[7,8]

Daya tahan *synroc* limbah terhadap air jauh lebih tinggi dibanding dengan gelas borosilikat limbah. Setelah 10-30 hari, pelindihan unsur-unsur valensi satu dan dua (Cs, Ca, Sr, dan Ba) dalam *synroc* adalah 500 sampai 2000 kali lebih kecil daripada gelas borosilikat. Laju pelindihan unsur-unsur multivalen seperti Nd, Zn, Ti, dan U dalam *synroc* adalah sekitar 10.000 kali lebih kecil daripada dalam gelas borosilikat. Laju pelindihan *synroc* limbah pada dasarnya konstan terhadap perubahan tingkat muat limbah dari 9 – 20 % berat LAT^[7,8]. Pada suhu

yang lebih tinggi (300-800 °C) *synroc* menunjukkan ketahanan pelindihan masih sangat baik, tetapi pada gelas borosilikat dengan cepat terjadi kerusakan.^[7]

Selain data penelitian tersebut, ada beberapa data penelitian lain yang mempelajari laju pelindihan untuk studi daya tahan *synroc* terhadap fasa air dari berbagai jenis limbah. Data tersebut saling melengkapi dan saling memperkuat dan rangkumannya ditunjukkan dalam Tabel 3.

Tabel 3. Rangkuman Laju Pelindihan Unsur-Unsur Dalam Berbagai Jenis *Synroc* Limbah yang Mengandung Uranium, Aktinida atau TRU Pada Air Bebas Ion dan Waktu Pengujiannya^[7,9,10,11]

Unsur yang terlindih	Laju Pelindihan, (g.m ⁻² .hari ⁻¹)	Media	Waktu pengujian	Jenis <i>synroc</i> limbah
Sr Ba Cs Ca Nd Ti Zr U	1,5 x 10 ⁻³ 2,0 x 10 ⁻³ 8,5 x 10 ⁻⁴ 4,0 x 10 ⁻⁴ 9,0 x 10 ⁻⁵ 3,3 x 10 ⁻⁵ 2,5 x 10 ⁻⁵ 5,0 x 10 ⁻⁶	Air bebas ion, 95 °C	100 hari	<i>Synroc</i> limbah dari LCAT mengandung hasil belah dan aktinida ^[7]
Ba Cs Sr Ti U	2,0 x 10 ⁻² 1,3 x 10 ⁻¹ 1,3 x 10 ⁻¹ 3,0 x 10 ⁻⁵ 9,0 x 10 ⁻⁵	Air bebas ion, 70 °C	7 hari	<i>Synroc</i> limbah dari produksi 99Mo (44%berat limbah simulasi) ^[9]
Np, Pu, Am,Cm.	10 ⁻⁵ - 10 ⁻⁶	Air bebas ion, 70 °C	1000 hari	<i>Synroc-C</i> , limbah TRU ^[10]
Pu, Gd Ti, Zr,Hf	1x 10 ⁻⁶ Takterdeteksi	Air bebas ion, 70 °C	Jangka waktu panjang lebih dari 1 tahun	<i>Synroc-C</i> kaya zirconolite,LCAT mengandung Pu ^[11]

Pada Tabel 3 dapat dilihat bahwa laju pelindihan unsur-unsur dari *synroc* dengan berbagai jenis limbah sangat rendah dan tidak ada perbedaan yang signifikan, terutama pada kondisi *steady state* (yang dicapai pada waktu pelindihan ≥100 hari). Hal ini dapat dilihat bahwa laju pelindihan U (sebagai salah satu unsur aktinida) relatif sama dengan unsur aktinida Pu, Np, Am, dan Cm dari *synroc* limbah yang berbeda yaitu sekitar 10⁻⁵-10⁻⁶ g.m⁻².hari⁻¹. Berdasarkan data tersebut dikaetahui bahwa *synroc* mempunyai

ketahanan yang tinggi terhadap fase air dan lebih baik dari pada gelas borosilikat limbah. Hasil pengujian *synroc* limbah ini menunjukkan bahwa laju pelindihan *synroc* relatif sangat rendah dan memenuhi nilai standar dari IAEA. Pelindihan unsur-unsur multivalen (seperti U atau aktinida yang lain dan Nd) sangat rendah daripada unsur-unsur valensi satu dan dua, oleh karena itu *synroc* limbah akan sangat baik untuk imobilisasi unsur-unsur aktinida pemancar alfa umur panjang.

Daya tahan *synroc* limbah terhadap radiasi

Studi kerusakan akibat radiasi dilakukan dengan studi difraksi terhadap mineral-mineral sejenis *synroc* dengan iradiasi elektron, neutron dan ion-ion berat terhadap cuplikan sintesis dan cuplikan yang ditambah (*doping*) dengan radionuklida pemancar α yaitu ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18$ tahun) dan ^{238}Pu ($T_{1/2} = 87$ tahun). Proses kerusakan terhadap blok *synroc* limbah hanya terjadi karena adanya peluruhan α , dengan kerusakan utama timbul dari atom-atom yang terpelanting (*recoil*), bukan partikel α itu sendiri. *Recoil* atom mempunyai jangkauan yang sangat pendek (~ 20 nm), maka kebanyakan kerusakan terjadi pada fase-fase yang mengandung aktinida pemancar α . Hasil-hasil penelitian pengaruh radiasi α terhadap *synroc* ditunjukkan pada Tabel 4.

Hasil penelitian menunjukkan adanya *doping* ^{244}Cm , laju pelindihan *synroc* meningkat walaupun hanya ~ 10 kali dibanding bila tidak *didoping* dengan ^{244}Cm (menjadi 10^{-4}

$- 10^{-5}$ g.m⁻².hari⁻¹).^[12] Adanya ^{238}Pu dan ^{244}Cm pada fase *zirconolite/pyrochlore* dan pada *synroc-C* menyebabkan terjadinya *swelling* sekitar 4 - 6,9 %volume.^[13,14] Walaupun demikian perbedaan *swelling* pada berbagai fase kristalin tidak menyebabkan *micro-cracking* (peretakan mikro) dalam *synroc-C*. Pada *synroc* kaya natrium (Na), sejumlah fase *freudenbergik* ($\text{Na}_2\text{Fe}_2\text{Ti}_6\text{O}_{16}$) yang signifikan distabilkan oleh adanya natrium.^[15] Kejadian secara alami pada *synroc* fase *zirconolite* dengan paparan radiasi sekitar 3×10^{20} peluruhan α/g telah ditunjukkan dapat menahan unsur-unsur aktinida selama periode waktu sampai $2,5 \times 10^9$ tahun^[13]. Berdasarkan hasil-hasil penelitian tersebut telah difahami perilaku *synroc* akibat radiasi α pada dosis tinggi yang menunjukkan bahwa kerusakan *synroc* relatif sangat rendah. Selain itu, tidak ada tanda adanya proses terjadinya peretakan antar-butiran (*intergranular cracking*) *synroc* pada proses pres-panas.

Tabel 4. Pengaruh Radiasi α Terhadap Kerusakan *Synroc* (Laju Pelindihan dan *Swelling*)^[12,13,14,15,16].

Jenis <i>synroc</i>	Doping unsur pemancar α	Pengaruh radiasi α terhadap <i>synroc</i> (laju pelindihan dan <i>swelling</i>)
<i>Synroc-C</i> standar dan <i>Synroc</i> fase amorf <i>zirconolite</i>	^{244}Cm	Laju pelindihan meningkat 10 kali menjadi 10^{-4} sampai 10^{-5} g.m ⁻² .hari ⁻¹ ^[12]
<i>Synroc</i> kaya <i>zirconolite</i> dan <i>pyrochlore</i>	^{238}Pu	Terjadi <i>swelling</i> $\sim 6\%$ volume ^[13]
<i>Synroc-C</i> dan <i>specimen</i> fase tunggal untuk <i>zirconolite</i> dan <i>perovskite</i> .	^{238}Pu dan ^{244}Cm (11,2% berat $^{238}\text{PuO}_2$ atau 4% berat $^{244}\text{Cm}_2\text{O}_3$ dengan dosis $1,5 \times 10^{19}$ α/g pada 300 °K).	Terjadi <i>swelling</i> 4,0 – 6,9 %vol. Perbedaan <i>swelling</i> pada berbagai fase tidak menyebabkan <i>micro-cracking</i> . Sedang pada <i>synroc</i> kaya Na, <i>micro-cracking</i> baru teramati pada dosis $\sim 10^{18}$ α/g ^[14,15,16] .

Tabel 5. Perbandingan Bahan matriks Aspal, Plastik Polimer, dan *Synroc* Untuk Imobilisasi Limbah Alfa Umur Panjang^[7,18]

Karakteristik Yang Ditinjau	Bahan Solidifikasi		
	Aspal ^[18]	Termoseting Plastik ^[18]	<i>Synroc</i> ^[7]
Kekakuan/kekerasan sesudah pembekuan/pendinginan	Diperlukan penampungan	sebuah Baik	Sangat baik
Penimbunan	Diperlukan	sebuah kontainer	Langsung
Ketahanan kompresi terhadap	Buruk	10 kN/cm ²	Sangat baik
Kemungkinan perubahan bentuk	Ya	tidak	tidak
Ketahanan terhadap kondisi atmosfer	Baik	Baik	Sangat baik
Berat jenis pada 25 °C	0,9 – 1,1 g/cm ³	1,2 g/cm ³	2,5-3,4 g/cm ³
Penanganan	Pemanasan penampungan aspal, uap. Perlu perlindungan terhadap kebakaran	tangki Peralatan konvensional	Press panas pada suhu tinggi 1100-1200 °C
Pemasukan limbah	Proses panas	Proses dingin	Proses dingin
Berat limbah yang dimasukkan	Maksimum 50 % kandungan bahan dalam limbah	Maksimum 70 %	Maksimum 70 %
Ketahanan terhadap mikroorganisme	Tidak terpengaruh	Tidak terpengaruh	(tahan jutaan tahun)
Ketahanan terhadap radiasi	10 ⁸ – 10 ⁹ rad	5 x 10 ⁹ rad	5 x 10 ⁹ rad
Ketahanan terhadap api (dalam 30 menit pada 700 – 900 °C)	Terbakar	Rusak sebagian	(Tahan sampai suhu >1200 °C).

Perbandingan bahan matriks aspal, plastik polimer, dan *synroc*

Imobilisasi limbah alfa umur panjang dengan bahan matriks *synroc* merupakan pengembangan terakhir. Perbandingan bahan matriks aspal, plastik polimer, dan *synroc* untuk imobilisasi limbah alfa umur panjang ditunjukkan pada Tabel 5.

Pada Tabel 5 ditunjukkan bahwa *synroc* lebih banyak mempunyai keunggulan dari pada menggunakan matriks aspal atau plastik polimer. Dengan demikian teknologi imobilisasi dengan matriks *synroc* adalah teknologi terbaik dibanding dengan gelas borosilikat untuk LCAT yang mengandung radionuklida hasil belah dan transuranium, maupun dibanding dengan matriks aspal atau polimer untuk limbah radioaktif alfa umur panjang aktivitas rendah dan sedang, karena

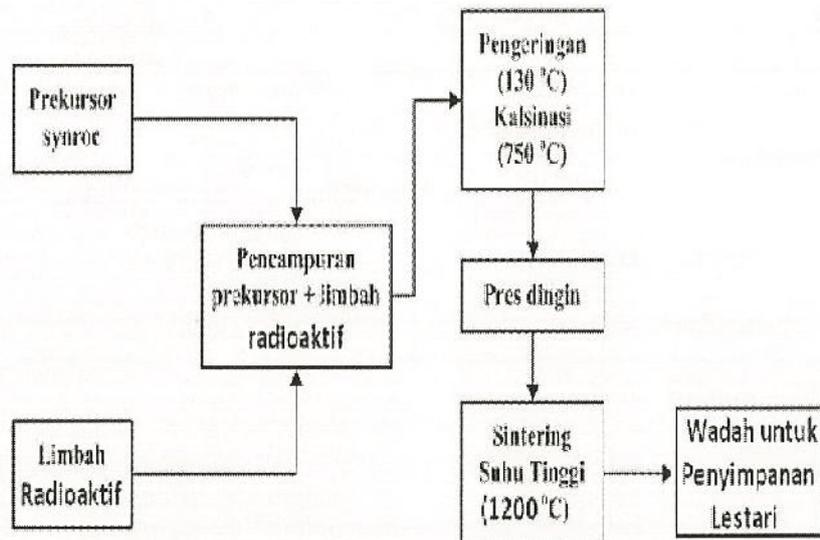
synroc mempunyai kestabilan geokimia dan kemampuan kolektif untuk imobilisasi semua unsur radioaktif, serta ketahanan tinggi terhadap air tanah dalam penyimpanan lestari tanah dalam.

ADAPTASI TEKNOLOGI PROSES IMOBILISASI LCAT DAN LIMBAH ALFA UMUR PANJANG DENGAN BAHAN MATRIKS *SYNROC*

Proses imobilisasi limbah radioaktif dengan matriks *synroc* dapat dilakukan secara proses kontinu seperti pada Gambar . Tetapi, mengingat kondisi peralatan yang tersedia maka adaptasi teknologi imobilisasi dengan matriks *synroc* ini dilakukan melalui penelitian skala laboratorium terlebih dahulu dengan mengembangkan proses solidifikasi melalui proses sintering pada suhu tinggi sebagai pengganti proses pres-panas pada suhu tinggi.

Pengembangan proses solidifikasi dengan matriks *synroc* melalui sintering ditunjukkan

pada Gambar 3.



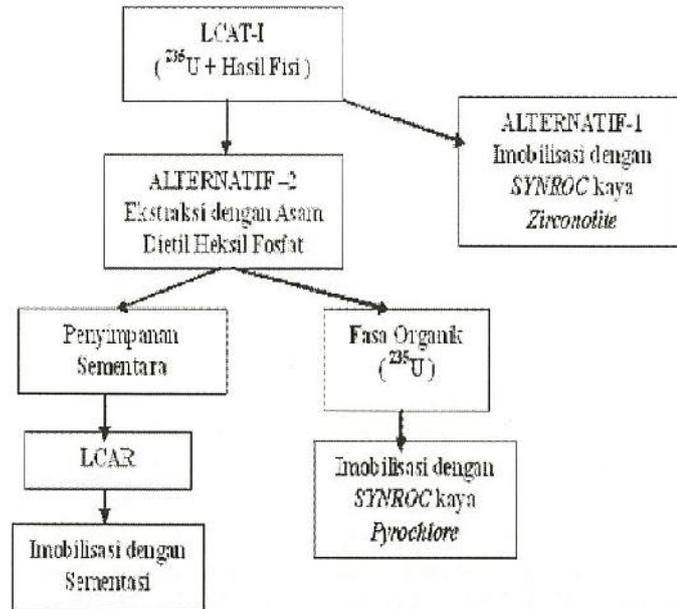
Gambar 3. Diagram Alir Pengembangan Proses Imobilisasi LCAT dan Limbah Alfa Umur Panjang Melalui Proses Sintering Suhu Tinggi

Pada proses imobilisasi dengan *synroc* (Gambar 3), limbah radioaktif (*sludge* atau cair) dicampur dengan campuran prekursor oksida sambil diaduk sehingga terbentuk *slurry*, kemudian dikeringkan pada suhu 130 °C, dilanjutkan proses kalsinasi pada suhu 750 °C, dan kemudian proses pres-dingin dan dilanjutkan dengan sintering pada suhu tinggi 1200 °C. Fase-fase *synroc* seperti ditunjukkan pada reaksi (1), (2), dan (3) maupun fase-fase turunan seperti ditunjukkan pada Tabel 2, terbentuk pada proses sintering. Pada proses sintering juga memberikan energi yang dibutuhkan untuk pertumbuhan butir fase-fase *synroc* yang kemudian dapat menutupi pori-pori *synroc* dan menjadi bentuk suatu keramik monolit multi fase yang padat. Produknya berupa blok *synroc* limbah ditampung dalam wadah (*canister*), kemudian hasil solidifikasi disimpan di fasilitas penyimpanan lestari.

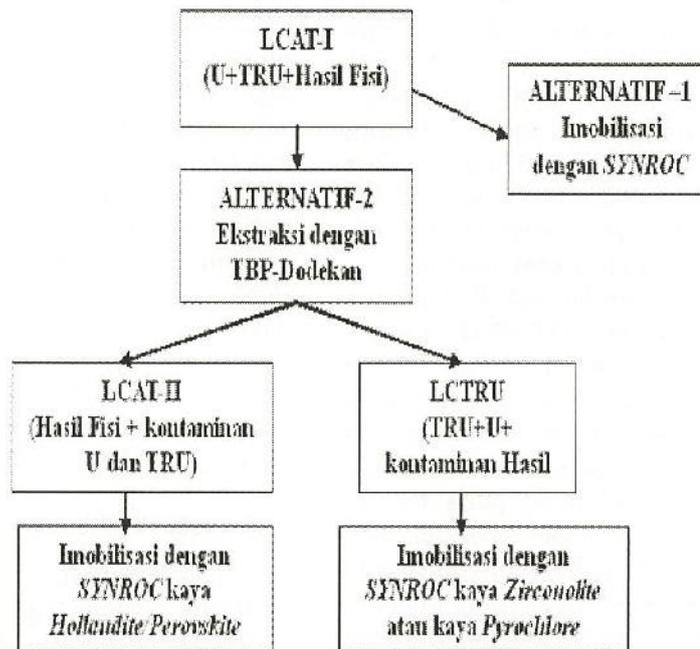
Adaptasi Imobilisasi Limbah Cair Aktivitas Tinggi (LCAT)

Di Indonesia, LCAT ditimbulkan dari kegiatan di IRM dan IPR yang ada di Fasilitas

Penelitian Tenaga Nuklir Kawasan Puspptek Serpong. LCAT dari IRM berupa limbah yang ditimbulkan dari kegiatan uji pasca iradiasi elemen bakar nuklir (pengkayaan 20 % berat ^{235}U) yang mengandung radionuklida hasil fisi dan aktinida, sedang LCAT dari IPR berupa limbah dari kegiatan produksi radioisotop molibdenium (^{99}Mo) melalui jalur iradiasi target uranium (93% ^{235}U) di dalam reaktor. LCAT dari produksi radioisotop ^{99}Mo mengandung unsur-unsur hasil fisi, sisa uranium, dan unsur-unsur aktinida (TRU) minor. Imobilisasi kedua jenis limbah ini telah dipelajari di Pusat Teknologi Limbah Radioaktif-BATAN dengan teknik vitrifikasi^[19,20] dan dengan teknik polimerisasi.^[21] Teknologi imobilisasi dengan matriks *synroc* mempunyai prospek yang lebih baik dan dapat diadopsi dan dikembangkan sebagai alternatif untuk imobilisasi LCAT yang ditimbulkan dari IRM dan IPR. Adaptasi teknologi imobilisasi dengan *synroc* untuk LCAT tersebut dapat dilihat pada Gambar 4 dan Gambar 5 yang masing-masing mempunyai 2 alternatif.



Gambar 4. Adaptasi Teknologi Imobilisasi Dengan *Synroc* Untuk LCAT yang Ditimbulkan Dari Produksi ⁹⁹Mo Di Instalasi Produksi Radioisotop (IPR).



Gambar 5. Adaptasi Teknologi Imobilisasi Dengan *Synroc* Untuk LCAT yang Ditimbulkan Dari Instalasi Radiometalurgi (IRM)

Pada Gambar 4, LCAT dari IPR dapat langsung diimobilisasi dengan *synroc* atau dilakukan ekstraksi dengan Asam dietil heksil fosfat untuk memisahkan ²³⁵U dan hasil fisi, kemudian baru dilakukan imobilisasi dengan *synroc*. Untuk LCAT dari IRM juga dapat langsung diimobilisasi dengan *synroc* atau dilakukan ekstraksi dengan TBP-Dodekan

sehingga diperoleh LCAT-II (mengandung hasil fisi dan kontaminan TRU dan U) dan limbah cair transuranium (LCTRU) yang mengandung TRU, U dan kontaminan hasil fisi, baru kemudian dilakukan imobilisasi dengan *synroc*. Jenis *synroc* untuk limbah dengan kandungan utama uranium dipilih jenis *synroc* kaya *zirconolite* atau *pyrochlore*,

sedangkan untuk limbah dengan kandungan utama hasil fisi dipilih jenis *synroc* kaya *hollandite/perovskite*. Adaptasi teknologi immobilisasi dengan *synroc* untuk kedua jenis LCAT tersebut masih perlu dilakukan penelitian dan pengembangan lebih lanjut dengan proses sesuai diagram alir pada Gambar 3.

Adaptasi Immobilisasi Limbah *Sludge* Mengandung Uranium

Berdasarkan data dan pengembangan penggunaan *synroc* untuk immobilisasi limbah radioaktif tersebut, maka adaptasi teknologi immobilisasi dengan matriks *synroc* akan sangat baik pula untuk immobilisasi limbah *sludge* radioaktif yang mengandung uranium dari dekomisioning fasilitas PAF-PKG. Limbah *sludge* radioaktif hasil proses biooksidasi limbah radioaktif cair organik dari dekomisioning fasilitas PAF-PKG mempunyai aktivitas alfa pada nilai $0,4 \leq \alpha \leq 40,2$ kBq/liter ($\leq 1,08 \times 10^{-6}$ Ci/m³), beta pada harga $1173 \leq \beta \leq 4100$ Bq/liter ($\leq 1,107 \times 10^{-4}$ Ci/m³) dan kadar padatan total 40-50 % berat. Radionuklida dalam limbah tersebut berasal dari batuan fosfat yang mengandung uranium alam (99,27 % U-238, 0,7205 % U-235, dan 0,0056 % U-234) dan unsur-unsur lain termasuk unsur radionuklida anak luruhnya.

Adaptasi proses immobilisasi limbah dari dekomisioning fasilitas PAF-PKG dengan matriks *synroc* masih dalam penelitian dengan proses sintering mengikuti diagram alir pada Gambar 3. Hasil penelitian sementara dengan komposisi prekursor standar diperoleh blok *synroc* limbah hasil immobilisasi pada tingkat muat limbah 30% berat, proses sintering pada suhu 1200 °C selama 3 jam, dengan harga densitas 2,85 g/cm³, kuat tekan 10,98 kN/cm², dan laju pelindihan uranium pada hari pertama adalah $3,26 \cdot 10^{-6}$ g.cm⁻².hari⁻¹ ($=3,26 \cdot 10^{-2}$ g.m⁻².hari⁻¹)^[22] yang relatif masih lebih tinggi daripada hasil penelitian RINGWOOD dkk yang harganya sekitar 10^{-3} g.m⁻².hari⁻¹ (Gambar 2). Kualitas blok *synroc* limbah hasil immobilisasi dengan proses sintering tersebut masih akan dicoba ditingkatkan dengan menaikkan suhu sintering yang lebih tinggi (1300-1400 °C). Adaptasi proses ini akan diterapkan untuk limbah serupa yang ditimbulkan dari proses penyiapan bahan bakar nuklir dari jalur penambangan bijih uranium,

sampai fabrikasi bahan bakar nuklir untuk mendukung beroperasinya PLTN yang akan datang.

KESIMPULAN

Immobilisasi LCAT dan limbah alfa umur panjang dipilih menggunakan matriks *synroc* karena kestabilan geokimia dan kemampuan kolektif untuk immobilisasi semua unsur radioaktif yang terkandung dalam kedua jenis limbah tersebut. Hasil pengkajian menunjukkan bahwa laju pelindihan *synroc* limbah untuk unsur-unsur valensi satu dan valensi dua (Cs, Ca, Sr, Ba) dalam *synroc* adalah 500 sampai 2000 kali lebih kecil dari pada tipe gelas borosilikat limbah (sebagai pembanding). Laju pelindihan untuk unsur-unsur *multivalent* (Nd, Zr, Ti, dan U) dari *synroc* limbah adalah sekitar 10.000 kali lebih kecil daripada dari gelas borosilikat limbah. Laju pelindihan *synroc* limbah dan pengaruh radiasi terhadap *synroc* relatif sangat rendah. Bahan matriks *synroc* untuk immobilisasi LCAT lebih baik daripada menggunakan matriks gelas borosilikat, dan juga *synroc* lebih baik untuk imobilisasi limbah alfa umur panjang daripada menggunakan aspal dan plastik polimer. Adaptasi teknologi immobilisasi dengan matriks *synroc* untuk LCAT dari produksi radioisotop Mo-99 di IPR dan dari uji paska iradiasi elemen bakar nuklir di IRM, serta limbah *sludge* radioaktif dari dekomisioning fasilitas PAF-PKG yang mengandung uranium sedang dalam penelitian melalui proses sintering suhu tinggi sebagai upaya alternatif (pengganti) immobilisasi melalui pres-panas suhu tinggi 1200 °C.

DAFTAR PUSTAKA

1. Vance, E.R. "Status of Synroc Ceramics for HLW", Proceedings of The 2nd Biannual Int. Workshop on HLRW Management", Dep. of Nuclear Engineering, Fac. of Engeneering, Gadjah Mada Univ., Yogyakarta (1999).
2. Levins, D.M. "ANSTO's Waste Management Action Plan", Third Seminar on RWM, Nuclear Cooperation in Asia, China (1997).
3. Levins, D.M. and Jostsons, A. "R&D in Radioactive Waste Management at ANSTO", The 2nd Seminar on RWM, Regional Cooperation in Asia, Kuala Lumpur- Malaysia (1996).

4. Andra, "Classification Des Dechets Radioactifs", Commissariat A L'Energie Atomique, Agence Nationale Pour La Gestion Des Dechets Radioactifs, France, (1983).
5. Ringwood A.F, et.al, In *Radioactive Waste Form for the Future*, Elsevier, (Eds W.Lutze and R.C.Ewing), North Holland, 233-334, (1988).
6. Dosch, R.G. and Lynch, A.W., *Solution chemistry techniques in Synroc preparation*, Sandia Laboratories, Albuquerque. Publ. SAND80-2375, (1980).
7. Ringwood A.E, Overby, V.M., KESSON, S.E., "Synroc : Leaching Performance and Process Technology," *Proceedings of the International Seminar on Chemistry and Process Engineering for High Level Liquid Waste Solidification*, Julich, (1981).
8. Oversby, V.M. and Ringwood, A.E., "Leach testing of Synroc and glass samples at 85 °C and 200 °C", *Nuclear Chem. Waste Management*, (1980).
9. Vance, E.R. et.al., "Synroc as a Ceramic Wasteform for Deep Geological Disposal", *Int.Conf. on Deep Geological Disposal of Radioactive Waste*, Winnipeg (1996).
10. Levins, D.M. "ANSTO's Waste Management Action Plan", *Third Seminar on RWM, Nuclear Cooperation in Asia, China* (1997).
11. Jostsons, A. et.al., "Surplus plutonium Disposition via Immobilisation in Synroc", *Spectrum '96, International Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management*, Seattle, WA (1996).
12. Jostsons, A. et.al., "Surplus plutonium Disposition via Immobilisation in Synroc", *Spectrum '96, International Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management*, Seattle, WA (1996).
13. Weber, W.J., Wald, J.W. and Matzke, H.J. "Effects of Self-Radiation Damage in Cm-Doped $Gd_2Ti_2O_7$ and $CaZrTi_2O_7$ ", *J. Nuclear Materials*, 138 (1986).
14. Clinard, F.W.Jr. et.al., "Effects of Self-Radiation Damage in Pu and Cm-Doped $Gd_2Ti_2O_7$ and $CaZrTi_2O_7$ ", *J. Nuclear Materials*, 126, (1984).
15. Ewing, R.C. et.al., "Radiation Effects in Nuclear Waste Forms for High Level Radioactive Waste", *Prog..In Nuclear Energy*, 29 (1995). R.C. EWING, et.al., "Radiation Effects in Nuclear Waste Forms for High Level Radioactive Waste", *Prog..In Nuclear Energy*, 29 (1995).
16. Mitamura, H. et.al., "Self-Irradiation Damage of a Curium-Doped Titanate Ceramic Containing Sodium-Rich High Level Nuclear Waste", *J.Am.Ceram. Soc.*, Vol. 73 [11] (1990).
17. Reeve, K.D. et.al., "Reformulation of Synroc for Purex High Level Nuclear Wastes Containing Further Chemical Additions", *Proc. International Ceramic Conference, Austceram 92* (Ed M.J. Bannister), CSIRO, Australia (1992).
18. Lumpkin, G.R. et.al., "Retention of Actinides in Natural Pyrochlores and Zirconolites", *Radiochemica Acta*, Vol. 66/67, (1994).
19. Martono, H. dan Widiatmo, *Perancangan Melter Untuk Pengolahan Limbah Cair Aktivitas Tinggi Secara Vitrifikasi*, Seminar Hasil Penelitian Dan Kegiatan P2PLR, Serpong (2002).
20. Martono, H. dan Aisyah, *Efek Radiasi Terhadap Gelas Limbah Hasil Vitrifikasi*, *Prosiding Pertemuan Dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Iptek Nuklir*, P3TM-BATAN, Yogyakarta, (2002).
21. Aisyah dkk, 2004. *Pengaruh Keasaman dan kandungan Limbah pada Imobilisasi Limbah Transuraniu dari IRM dengan Polimer*, *Seminar Hasil Penelitian Dan Kegiatan P2PLR*, (2004).
22. Gunandjar, *Imobilisasi Limbah Radioaktif Mengandung Uranium Menggunakan Bahan Matriks Synroc Titanat Dengan Proses Sintering Suhu Tinggi*, *Presentasi Dan Pertemuan Ilmiah PD IPTN, PTAPB-BATAN Yogyakarta*, (2011).