

PEMANFAATAN ABU LAYANG SEBAGAI BAHAN PEMBENTUK GELAS PADA VITRIFIKASI LIMBAH CAIR TINGKAT TINGGI

Aisyah

Pusat Teknologi Limbah Radioaktif - BATAN
Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang 15310

ABSTRAK

PEMANFAATAN ABU LAYANG SEBAGAI BAHAN PEMBENTUK GELAS PADA VITRIFIKASI LIMBAH CAIR TINGKAT TINGGI. Limbah cair tingkat tinggi (LCTT) adalah limbah yang ditimbulkan dari proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas. Limbah ini banyak mengandung hasil belah dan sedikit aktinida. Limbah ini divitrifikasi menggunakan gelas borosilikat. Faktor penting yang mempengaruhi karakteristik gelas limbah antara lain komposisi kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas. Abu layang merupakan abu batubara yang memiliki kandungan antara lain SiO_2 , Al_2O_3 , CaO dan Fe_2O_3 yang mirip dengan komposisi bahan pembentuk gelas untuk vitrifikasi LCTT, sehingga dapat digunakan sebagai bahan pembentuk gelas pada vitrifikasi LCTT. Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pemanfaatan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas pada vitrifikasi LCTT. Dipelajari beberapa gelas limbah seperti gelas limbah A, B, C yang memiliki kandungan limbah 23,21; 36,75; 50,133 % berat dan gelas limbah D yang menggunakan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas tanpa penambahan oksida SiO_2 . Sebagai standar digunakan gelas limbah milik JAEA. Karakteristik gelas limbah yang dipelajari adalah densitas, laju pelindihan dan devitrifikasi. Semakin tinggi kandungan limbah maka densitas dan laju pelindihan semakin tinggi. Densitas tertinggi adalah pada gelas limbah C yang memiliki kandungan limbah paling tinggi, sedangkan laju pelindihan tertinggi adalah pada gelas limbah D yang merupakan gelas limbah dengan bahan pembentuk gelas adalah abu layang tanpa penambahan SiO_2 . Devitrifikasi gelas limbah terjadi pada gelas limbah A pada pemanasan 700°C dalam waktu 5 jam dengan terbentuknya kristal yang didominasi oleh SiO_2 . Hasil penelitian menyimpulkan bahwa abu layang dapat dimanfaatkan sebagai bahan pembentuk gelas untuk vitrifikasi LCTT dengan penambahan SiO_2 agar diperoleh karakteristik gelas limbah yang memenuhi persyaratan.

Kata kunci: Limbah cair tingkat tinggi, vitrifikasi, bahan pembentuk gelas, abu layang.

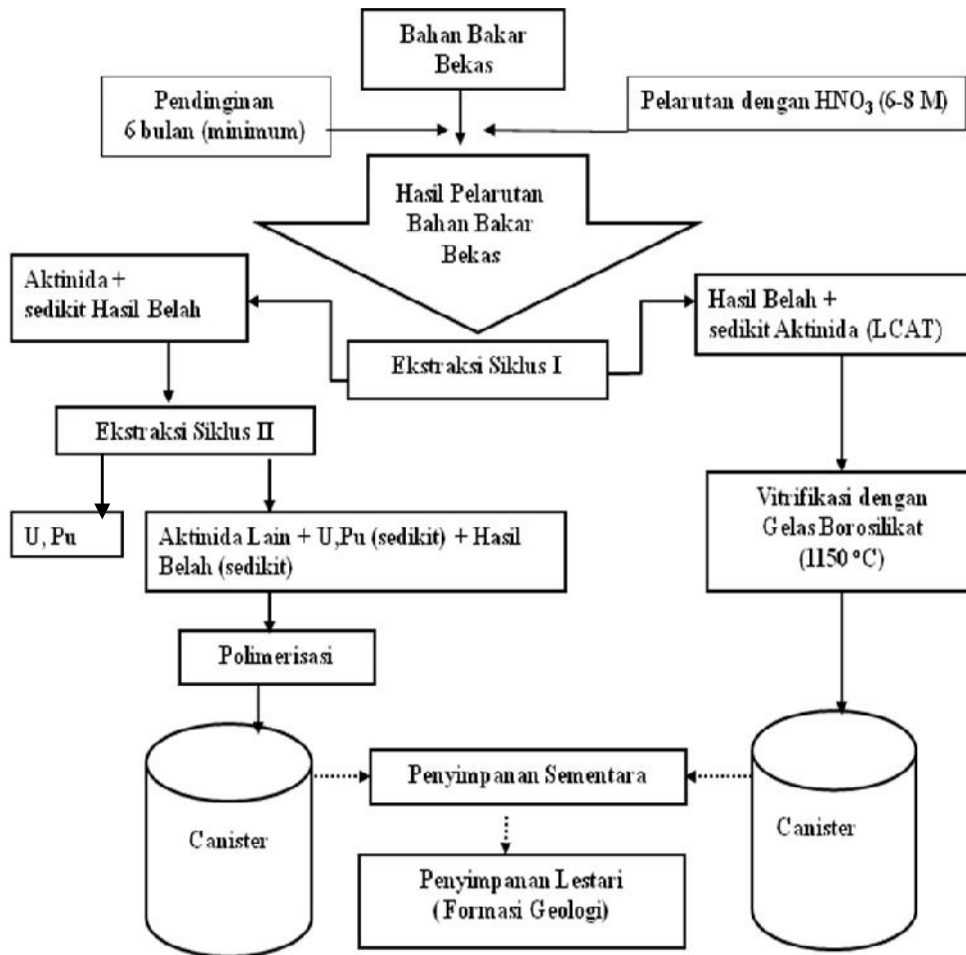
ABSTRACT

UTILIZATION OF FLY ASH AS A GLASS FRITS ON HIGH LEVEL LIQUID WASTE VITRIFICATION. *High level liquid waste (HLLW) is a waste generated from reprocessing of spent nuclear fuel. This waste contains many fission products and a few actinides. The waste is vitrification with borosilicate glass. The important factors influencing the characteristics of the waste-glass among others waste content and glass frits composition. Fly ash is the ash generated from coal firing. The ash composed of SiO_2 , Al_2O_3 , CaO and Fe_2O_3 , which is similar to that of glass frits. It was assumed that fly ash is possible to be used as substitute for glass frits. The aims of this research was to study the utilization of glass frits for HLLW vitrification. Some waste-glass were studied, namely waste-glasses A, B, C that contain waste loading of 23.21; 36.75 and 50.133 wt % respectively, and waste-glass D that was vitrified with fly ash without addition of SiO_2 oxide. A standard glass from JAEA was used as reference. The characteristics to be observed were density, leaching rate and devitrification. The higher the density and waste loading of the waste-glass, made the leaching rate higher. The waste-glass with the highest density was the waste-glass C; while the highest leaching rate was the waste-glass D. Devitrification occurred on the waste glass A under temperature of 700°C for 5 hours heating. The devitrification was identified by the formation of crystal dominated by SiO_2 . It was concluded that the fly ash can be used as glass frits on vitrification of HLLW with addition of SiO_2 for improvement of waste-glass characteristics, in order to meet the requirement.*

Keywords: High-level liquid waste, vitrification, glass frits, fly ash.

PENDAHULUAN

Dalam Undang-Undang No.10 Tahun 1997 tentang ketenaganukliran ditetapkan bahwa klasifikasi limbah radioaktif dibagi atas 3 jenis, yaitu Limbah tingkat rendah (*Low Level Waste*), limbah tingkat sedang (*Intermediate Level Waste*) dan limbah tingkat tinggi (*High Level Waste*) [1]. Pada sistem daur bahan bakar terbuka yang dimaksud Limbah Tingkat Tinggi (LTT) adalah bahan bakar bekas reaktor, sedangkan pada sistem daur tertutup, bahan bakar bekas dari reaktor setelah proses penyimpanan sementara akan mengalami proses olah ulang. Proses olah ulang bahan bakar bekas bertujuan untuk memungut sisa uranium yang tidak terbakar dan plutonium yang terbentuk selama proses pembakaran bahan bakar nuklir. Dalam proses olah ulang inilah akan ditimbulkan Limbah Cair Tingkat Tinggi (LCTT) dengan proses pengeloaan seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1 [2-4].



Gambar 1. Pengelolaan LCTT [1,3].

Pada Gambar 1 tampak bahan bakar setelah keluar dari reaktor dapat mengalami pendinginan (peluruhan) selama 6 bulan dalam kolam penyimpanan. Setelah pendinginan, bahan bakar dilarutkan kedalam larutan asam nitrat (HNO₃) dan hasil pelarutan diekstraksi untuk memisahkan aktinida yaitu uranium (U), plutonium (Pu) dan hasil belah lainnya. Proses ini disebut ekstraksi siklus pertama. Dari hasil proses ekstraksi ini akan diperoleh larutan yang banyak mengandung hasil belah dan sedikit aktinida, larutan ini yang disebut LCTT. Limbah cair tingkat

tinggi ini memerlukan pendinginan sekitar 4 tahun sebelum dilakukan imobilisasi dengan gelas borosilikat menjadi gelas-limbah. Proses imobilisasi LCTT dengan gelas disebut vitrifikasi. Lelehan gelas-limbah dimasukkan ke dalam *canister* pada suhu 1100 °C. *Canister* yang telah terisi gelas-limbah disimpan dalam penyimpanan sementara (*interim storage*) selama 30~50 tahun, kemudian dapat dilakukan disposal pada formasi geologi [5,6].

Saat ini Indonesia memilih daur terbuka, sehingga terdapat limbah tingkat tinggi yang berupa bahan bakar bekas. Namun demikian dalam beberapa kegiatannya Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) dan juga PT Industri Nuklir Indonesia (PT. INUKI) menimbulkan limbah radioaktif yang komposisinya mirip dengan LCTT dari proses olah ulang bahan bakar bekas, seperti limbah dari pengujian bahan bakar paska iradiasi ataupun limbah dari produksi radioisotop Mo-99 [7,8]. Oleh karena itu diperlukan penguasaan teknologi pengelolaan limbah tingkat tinggi baik yang berupa bahan bakar bekas maupun LCTT yang berasal dari proses olah ulang bahan bakar bekas.

Limbah cair tingkat tinggi disamping memiliki panas radiasi yang cukup tinggi, juga mengandung aktinida yang berumur paro panjang. Oleh karena itu LCTT memerlukan pengelolaan dengan tingkat keselamatan yang cukup tinggi termasuk dalam hal pemilihan bahan matriks untuk imobilisasi beserta teknologi imobilisasinya. Beberapa hal yang perlu diperhatikan dalam memilih bahan matriks untuk imobilisasi LCTT adalah proses pembuatan yang mudah, praktis, kandungan limbah (*waste loading*) yang ekonomis, serta hasil imobilisasi memiliki karakteristik yang baik seperti ketahanan kimia yaitu laju pelindihan yang rendah, sifat fisika yang sesuai, kestabilan terhadap radiasi, kestabilan terhadap panas yaitu tidak mudah terjadi devitrifikasi dan keutuhan fisik (*physical integrity*) [9].

Terdapat beberapa bahan matriks untuk imobilisasi LCTT seperti gelas, *synrock* dan *vitromet*. Berdasarkan pertimbangan teknik pembuatan, stabilitas dalam jangka panjang, besarnya kandungan limbah, serta berdasarkan standar *International Atomic Energy Agency* (IAEA) dan pengalaman beberapa negara maju seperti Perancis, Jepang, Inggris maka pengolahan LCTT dilakukan melalui vitrifikasi dengan gelas borosilikat [10,11].

Banyak faktor yang mempengaruhi karakteristik gelas limbah dalam proses vitrifikasi seperti komposisi limbah, komposisi bahan pembentuk gelas maupun kondisi operasi vitrifikasi dimana masing-masing unsur memiliki peran dalam karakteristik gelas limbah yang dihasilkan. Umumnya gelas borosilikat dengan kandungan SiO₂ di atas 40% mempunyai kualitas yang memenuhi syarat hasil vitrifikasi.

Abu layang (*Fly ash*) merupakan limbah abu dari Pembangkit Listrik Tenaga Uap (PLTU) yang berbahan bakar batubara. Abu layang memiliki komposisi kimia yang mirip dengan bahan pembentuk gelas seperti SiO₂, Al₂O₃, CaO maupun Fe₂O₃ sehingga abu layang memungkinkan untuk dimanfaatkan sebagai bahan pembentuk gelas pada imobilisasi LCTT dengan gelas borosilikat [11].

Sesuai dengan kandungan limbahnya maka komposisi bahan pembentuk gelas memiliki peran yang penting dalam menghasilkan karakteristik gelas limbah yang sesuai dengan standar. Perubahan komposisi bahan pembentuk gelas akan menghasilkan karakteristik gelas limbah yang berbeda. Unsur Si maupun Al merupakan salah satu komponen penting dalam bahan pembentuk gelas yang merupakan unsur pembentuk kerangka gelas yang jumlahnya dapat mempengaruhi karakteristik gelas limbah. Jadi semakin tinggi kadar Si dalam bahan pembentuk gelas maka akan dihasilkan gelas limbah dengan kualitas yang semakin baik, namun suhu pelelehan gelas limbah semakin tinggi.

Pada penelitian sebelumnya telah dipelajari beberapa topik tentang vitrifikasi LCTT menggunakan gelas borosilikat antara lain persyaratan gelas limbah untuk vitrifikasi, perbandingan gelas keramik dan gelas borosilikat, pengaruh perlakuan panas terhadap devitrifikasi gelas limbah, pengaruh radiasi dan radionuklida hasil belah terhadap sifat fisika dan kimia gelas-limbah, perubahan komposisi bahan pembentuk gelas pada karakteristik gelas limbah [9,11-15]. Terdapat beberapa karakteristik gelas limbah yang perlu dipelajari seperti densitas, koefisien muai panjang, hantaran panas, viskositas, laju pelindihan, titik pelunakan, hantaran listrik, panas jenis, dan kekuatan mekanik.

Karakteristik gelas limbah yang dipelajari dalam penelitian ini adalah densitas, laju pelindihan dan devitrifikasi gelas limbah terkait dengan adanya perubahan kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas. Penentuan karakteristik densitas gelas limbah diperlukan dalam perancangan *melter*, *canister*, beban transportasi dan kekuatan tumpuk pada penyimpanan gelas limbah. Karakteristik laju pelindihan merupakan karakteristik gelas limbah yang menunjukkan

kekuatan gelas limbah dalam mengungkung radionuklida yang ada didalamnya. Seperti diketahui bahwa tujuan akhir pengelolaan limbah adalah menjaga agar radionuklida terikat cukup kuat dalam *monolith* bahan matriks dalam jangka waktu yang sangat lama, sehingga potensi radionuklida terlindih ke lingkungan bisa diminimalkan.

Sebagai acuan adalah gelas limbah standar milik *Japan Atomic Energy Agency* (JAEA) Jepang [6]. Komposisi LCTT ditentukan dengan program *ORIGEN 2*. Pembuatan gelas limbah simulasi dilakukan dengan cara melelehkan campuran bahan pembentuk gelas dan limbah dalam berbagai komposisi pada suhu 1150 °C. Karakterisasi gelas limbah yang dilakukan adalah densitas, laju pelindihan dan devitrifikasi. Densitas dilakukan secara *Archimedes*, laju pelindihan dilakukan dengan alat soklet dan devitrifikasi dilakukan dengan Difraktometer Sinar X (XRD) sedangkan struktur mikro dilakukan dengan *Scanning Electrone Microscope* (SEM) beserta *Energy Dispersive-X-Ray Spectroscopy* (EDS). Karakteristik gelas limbah yang diteliti akan dibandingkan dengan karakteristik gelas limbah standar.

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pemanfaatan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas dalam vitrifikasi LCTT sehingga dapat diperoleh gelas limbah dengan karakteristik yang tidak hanya memenuhi standar namun juga ekonomis dan secara teknis dapat dilakukan vitrifikasi dengan baik. Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Bidang Teknologi Pengolahan Limbah Radioaktif Dekontaminasi dan Dekomisioning di Pusat Teknologi Limbah Radioaktif, Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN), Kawasan Puspiptek Serpong pada Tahun 2013.

Walaupun saat ini Indonesia belum melakukan proses olah ulang, namun topik penelitian ini menjadi penting sebagai acuan dalam mengelola LCTT yang ditimbulkan dari kegiatan produksi radioisotop maupun pengujian bahan bakar paska iradiasi dimana limbah yang ditimbulkan memiliki komposisi yang mirip dengan LCTT yang ditimbulkan dari proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas.

TATA KERJA

Bahan dan Peralatan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah abu layang dari PLTU Suralaya, oksida – oksida SiO₂, B₂O₃, Na₂O, CaO, Al₂O₃, Fe₂O₃, NiO, Cr₂O₃, SrO, Cs₂O, BaO, La₂O₃ dan CeO₂ buatan Merck dengan kemurnian yang tinggi.

Dalam penelitian ini digunakan beberapa peralatan seperti timbangan analitis, tungku pemanas (*Muffle Furnace*), cawan alumina untuk pembuatan gelas limbah, *X-Ray Fluorescent* (XRF), *Scanning Electrone Microscope* (SEM) untuk pengamatan struktur mikro gelas limbah, Difraktometer Sinar X (XRD) untuk pengukuran pola difraksi sinar X dan *software* ORIGEN 2 untuk menentukan komposisi LCTT.

Metode

1. Penentuan Komposisi Abu layang

Abu batu bara jenis abu layang diambil dari Pembangkit Listrik Tenaga Uap (PLTU) Suralaya, Banten dengan komposisi ditentukan dengan XRF milik Pusat Sains & Teknologi Nuklir Terapan (PSTNT) Bandung.

2. Penentuan Komposisi Limbah Cair Tingkat Tinggi

Komposisi LCTT ditentukan dengan menggunakan *software* ORIGEN 2 berdasarkan atas sejarah elemen bahan bakarnya, yaitu jenis reaktor PWR, fraksi bakar 45000 MWD/MTU, pengkayaan uranium 4,5 %, tenaga spesifik 38 MW/MTU dan lama pendinginan sebelum proses vitrifikasi 4 tahun. Dalam penelitian ini digunakan LCTT simulasi yaitu dengan penggantian unsur-unsur radioaktif dengan unsur lain yang terdapat dalam 1 golongan pada tabel periodik dan berdasarkan pengalaman dari negara-negara maju. Dalam hal ini, Tc diganti Mn dan aktinida (U, Np, Pu, Am, Cm) diganti Ce [15,16].

3. Penentuan Komposisi Gelas-Limbah

Bahan pembentuk gelas (*glass frits*) yang utama adalah abu layang dengan penambahan oksida SiO₂ dan B₂O₃. Komposisi gelas limbah ditentukan berdasarkan variasi kandungan limbah yaitu gelas A, B, dan C, masing-masing dengan kandungan limbah 23,21;

36,747; dan 50,133 % berat serta gelas D merupakan gelas limbah dengan bahan pembentuk gelas hanya abu layang tanpa penambahan oksida SiO₂ lagi. Komposisi gelas limbah A, B, C dan D ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi Gelas Limbah A,B,C dan D

Komposisi	Kandungan Limbah (% berat)			
	A (23,21 %)	B (36,747%)	C (50,133%)	D (<i>Fly ash</i> tanpa penambahan SiO ₂)
<i>Fly ash</i>	15,96	4,788	5,586	65,21
SiO ₂	52,82	43,842	29,487	-
B ₂ O ₃	11,58	14,623	14,794	11,58
Na ₂ O	9,81	9,94	9,93	9,81
P ₂ O ₅	0,15	0,3	0,45	0,15
Fe ₂ O ₃	1,45	2,9	4,35	1,45
Cr ₂ O ₃	0,27	0,54	0,81	0,27
NiO	0,24	0,48	0,72	0,24
Gd ₂ O ₃	1,98	3,96	5,94	1,98
Rb ₂ O	0,09	0,18	0,27	0,09
Cs ₂ O	0,63	1,26	1,89	0,63
SrO	0,23	0,46	0,69	0,23
BaO	0,41	0,82	1,23	0,41
ZrO ₂	1,54	3,08	4,62	1,54
MoO ₃	1,16	2,32	3,48	1,16
MnO ₂	0,27	0,54	0,81	0,27
RuO ₂	0,66	1,32	1,98	0,66
Rh ₂ O ₃	0,12	0,24	0,36	0,12
PdO	0,36	0,72	1,08	0,36
Ag ₂ O	0,02	0,04	0,06	0,02
SnO ₂	0,02	0,04	0,06	0,02
SeO ₂	0,02	0,04	0,06	0,02
TeO ₂	0,14	0,28	0,42	0,14
Y ₂ O ₃	0,14	0,28	0,42	0,14
CeO ₂	3,5	7	10,5	3,5

Sebagai standar digunakan gelas limbah milik JAEA Jepang dengan komposisi dan karakteristik seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2 dan 3.

Tabel 2. Komposisi Gelas Limbah Standar [6]

Bahan Pembentuk Gelas		Limbah	
Oksida	% berat	Oksida	% berat
SiO ₂	43,15	Na ₂ O	9,0
B ₂ O ₃	14,20	Fe ₂ O ₃ + Cr ₂ O ₃ + NiO	1,01
Li ₂ O	3,12	Hasil belah (termasuk aktinida)	18,83
Na ₂ O	1,0	Jumlah	28,84
K ₂ O	2,01		
CaO	2,05		
ZnO	2,10		
Al ₂ O ₃	3,53		

Tabel 3. Karakteristik Gelas Limbah Standar [6]

Karakteristik	Besaran
Densitas	2,74 g cm ⁻³
Koefisien muai panjang	83x10 ⁻⁷ °C ⁻¹ (30-300 °C)
Titik transformasi	501°C
Konduktivitas panas	0,87 K cal m ⁻² jam ⁻¹ °C ⁻¹ (pada 100 °C)
Titik pelunakan	614 °C
Tahanan listrik	4,8 ohm cm (pada 1150 °C)
Kekentalan	40 poise pada (1150 °C)
Laju pelindihan	2,3x10 ⁻⁵ g cm ⁻² hari ⁻¹ (statik, 100 °C, 24 jam)
Panas jenis	0,21 cal g ⁻¹ °C ⁻¹ (pada 1150 °C)
Kekuatan mekanik	57 Mpa

4. Pembuatan Gelas Limbah

Pembuatan gelas-limbah dilakukan dengan memanaskan campuran oksida seperti pada Tabel 1 pada suhu 1150 °C selama 2,5 jam. Pemanasan dilakukan dalam tungku pemanas menggunakan wadah dari *crusible* porselin alumina. Selanjutnya dilakukan pendinginan sampai suhu kamar sehingga terbentuk gelas limbah [9,15,17].

5. Penentuan Densitas Gelas Limbah

Densitas gelas limbah ditentukan secara *Archimedes* dengan cara menimbang potongan gelas limbah di udara dan dalam keadaan tercelup dalam air pada suhu kamar. Densitas gelas limbah dihitung dengan persamaan [15,18,19]:

$$\rho = (W_a \rho_w - W_w \rho_a) / (W_a - W_w) \quad (1)$$

dimana ρ adalah densitas gelas limbah (g cm⁻³), ρ_w adalah densitas air (g cm⁻³), ρ_a adalah densitas udara (g cm⁻³), W_a adalah berat gelas limbah di udara (g) dan W_w adalah berat gelas limbah didalam air (g). Sebagai standar dalam pengukuran densitas digunakan aluminium.

6. Penentuan Laju Pelindihan Gelas Limbah

Laju pelindihan gelas limbah dilakukan menurut *Japan Industrial Standart* (JIS), yaitu laju pelindihan dipercepat dalam medium air. Contoh gelas-limbah dihaluskan dan dimasukkan dalam basket dan dipasang pada *sokhlet* untuk direfluks dengan air suling pada suhu 100 °C selama 24 jam. Laju pelindihan gelas-limbah dengan cara *Soxhlet* pada suhu 100 °C dan 1 atm selama 24 jam ini sama dengan laju pelindihan gelas limbah pada suhu kamar selama 1 tahun. Laju pelindihan dihitung berdasarkan berat contoh yang hilang dengan persamaan [20,21]:

$$L = W / S.t \quad (2)$$

dengan L adalah laju pelindihan (g cm⁻² hari⁻¹), S adalah luas permukaan contoh (cm²), W adalah berat gelas limbah yang terlindih (g), dan t adalah waktu pelindihan (hari).

7. Penentuan *Amorf* dan Devitrifikasi Gelas Limbah

Penentuan struktur *amorf* dan kristalin pada devitrifikasi gelas limbah ditentukan dengan XRD. Terjadinya devitrifikasi secara kualitatif ditentukan terhadap gelas limbah A dengan cara memanaskan gelas limbah A pada suhu 700 °C selama 5 jam. Dari pola difraksi dapat ditentukan apakah bahan berada pada struktur *amorf* atau telah terbentuk kristal. Struktur kristal ditandai dengan munculnya puncak-puncak pada pola difraksi XRD sedangkan pola difraksi struktur *amorf* menunjukkan tidak adanya puncak-puncak [14,18].

8. Pengamatan Struktur Mikro Gelas Limbah Dengan SEM dan EDS

Gelas limbah A yang telah mengalami pemanasan pada suhu 700 °C selama 5 jam ditumbuk halus dan kemudian dilakukan analisis struktur mikro menggunakan SEM. Analisis

EDS dilakukan secara *spot* analisis terhadap posisi kristal yang muncul pada permukaan struktur mikro tersebut. Analisis EDS akan memberikan informasi tentang jenis kristal yang terbentuk.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil analisis XRF dari abu layang PLTU suralaya ditunjukkan pada Tabel 4.

Tabel 4. Komposisi Kimia Abu Layang

Oksida	Kadar (% berat)
SiO ₂	35,44
Al ₂ O ₃	36,54
K ₂ O	1,15
CaO	5,26
MnO ₂	0,20
Na ₂ O	0,43
TiO ₂	0,66
Fe ₂ O ₃	20,32

Pada Tabel 4 tampak bahwa komposisi abu layang didominasi oleh SiO₂, Al₂O₃ dan Fe₂O₃. Unsur yang penting dalam bahan pembentuk gelas adalah SiO₂ dan Al₂O₃, oleh karena itu abu layang ini dapat dimanfaatkan sebagai bahan pembentuk gelas pada vitrifikasi LCTT menggunakan gelas borosilikat. Untuk memperoleh kualitas gelas limbah yang memenuhi standar maka salah satunya adalah dengan mengatur kandungan SiO₂ dalam komposisi bahan pembentuk gelas. Kandungan SiO₂ dalam bahan pembentuk gelas minimal adalah 40 %berat, oleh karena itu diperlukan penambahan SiO₂ dari oksida kimia.

Hasil analisis LCTT menggunakan *software* ORIGEN 2 berdasarkan atas jenis reaktor PWR, fraksi bakar 45000 MWD/MTU, pengkayaan uranium awal 4,5 %, daya spesifik 38 MW/MTU dan lama pendinginan sebelum proses vitrifikasi 4 tahun ditunjukkan pada Tabel 5.

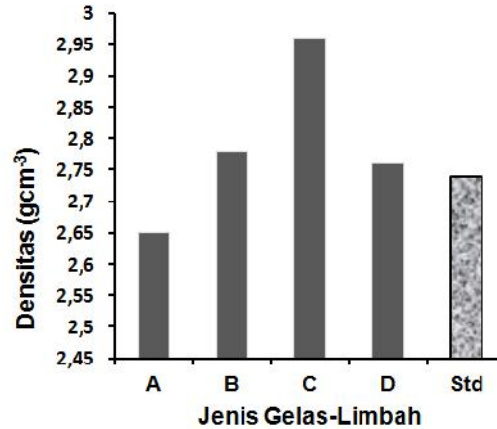
Tabel 5. Komposisi LCTT dari Bahan Bakar Bekas PWR, Fraksi Bakar 45.000 MWD/MTU, Pengkayaan Uranium 4,50%, Daya Spesifik 38 MW/MTU dan Pendinginan 4 Tahun

Oksida	% Berat	Oksida	% Berat	Oksida	% Berat
Na ₂ O	16,48	Ag ₂ O	0,11	RuO ₂	4,12
Fe ₂ O ₃	9,05	CdO	0,18	Rh ₂ O ₃	0,74
NiO	1,47	SnO	0,15	PdO	2,20
Cr ₂ O ₃	1,68	Sb ₂ O ₃	0,04	ZrO ₂	2,56
P ₂ O ₅	0,95	TeO ₂	0,84	UO ₂	3,81
SeO ₂	0,11	Cs ₂ O	3,91	NpO ₂	0,81
Rb ₂ O	0,56	BaO	2,58	Sm ₂ O ₃	1,22
SrO	1,45	La ₂ O ₃	2,05	Eu ₂ O ₃	0,24
Y ₂ O ₃	0,85	CeO ₂	4,19	Gd ₂ O ₃	12,32
ZrO ₂	6,99	Pr ₆ O ₁₁	1,93	PuO ₂	0,14
MoO ₃	7,19	Nd ₂ O ₃	6,77	Am ₂ O ₃	0,52
Tc ₂ O ₇	1,67	Pm ₂ O ₃	0,07	Cm ₂ O ₃	0,05

Pada Tabel 5 terlihat bahwa kandungan limbah didominasi oleh radionuklida hasil belah yang merupakan radionuklida pemancar gamma. Oleh karena itu adanya radiasi gamma yang cukup besar yang dipancarkan oleh radionuklida hasil belah dalam gelas-limbah dapat mengakibatkan suhu gelas limbah yang tinggi (> 500 °C). Suhu yang tinggi dan waktu yang cukup

lama dapat mengakibatkan timbulnya devitrifikasi [14]. Adanya devitrifikasi akan mengakibatkan ketahanan kimianya menurun, karenanya laju pelindihannya akan meningkat.

Hasil pengukuran densitas terhadap jenis gelas limbah yang diteliti yaitu jenis gelas limbah A, B, C, D ditunjukkan pada Gambar 2.



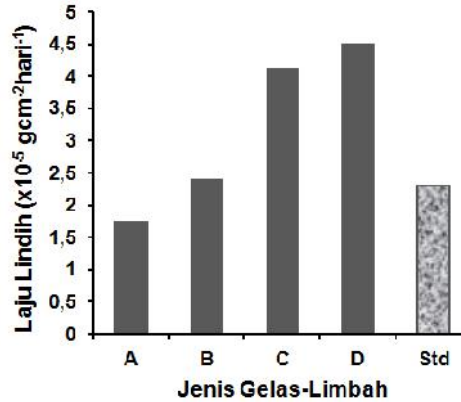
Gambar 2. Pengaruh Jenis Gelas-Limbah Terhadap Densitas Gelas-Limbah

Pada Gambar 2 tampak bahwa dengan bertambahnya kandungan limbah (gelas-limbah A,B,C) maka densitas semakin besar. Sedangkan untuk gelas-limbah D maka densitas menurun. Pada pembuatan gelas limbah, oksida limbah dan bahan pembentuk gelas memiliki perbandingan yang tertentu, sehingga penambahan kandungan limbah akan diikuti dengan penurunan bahan pembentuk gelas. Adanya penambahan kandungan limbah berarti prosentase oksida dari unsur-unsur yang lebih besar massanya meningkat sedangkan prosentase unsur bahan pembentuk gelas yang lebih rendah massanya menurun. Bertambahnya prosentase unsur yang lebih besar massanya akan menaikkan densitasnya (gelas limbah A, B, C). Jika dibandingkan dengan densitas gelas limbah standar (Std) yaitu 2,74 g/cm³ dengan densitas gelas limbah B dan C yaitu gelas limbah dengan kandungan limbah antara 36,74~50,133 %berat yang memiliki densitas berkisar antara 2,78 dan g/cm³, maka densitas gelas limbah standar nampak sedikit lebih kecil. Hal ini karena kandungan limbah pada gelas limbah standar lebih kecil yaitu 28,84 %berat dari pada kandungan limbah pada gelas limbah B dan C, sedangkan gelas limbah A memiliki densitas yang lebih kecil dari gelas limbah standar. Hal ini sejalan dengan kandungan limbah pada gelas limbah A lebih kecil dari kandungan limbah gelas standar. Kandungan limbah yang semakin tinggi akan menghasilkan densitas gelas limbah yang lebih tinggi pula. Berarti gelas limbah akan semakin padat dan kuat. Namun demikian gelas limbah dengan kandungan limbah yang terlalu besar akan menurunkan ketahanan kimia gelas limbah yaitu laju pelindihan akan meningkat dan ini tidak diinginkan. Untuk gelas limbah D yaitu gelas limbah dengan bahan pembentuk gelas hanya dari abu layang tanpa penambahan SiO₂ lagi memiliki densitas yang tidak signifikan berbeda dengan gelas limbah standar. Kandungan limbah pada gelas D adalah 23,21 %berat lebih rendah dari gelas limbah standar yaitu 28,84 % berat. Dengan demikian abu layang dapat digunakan sebagai bahan pembentuk gelas dalam vitrifikasi LCTT dengan gelas borosilikat karena menghasilkan karakteristik densitas gelas-limbah yang sesuai dengan gelas limbah standar. Jika dibandingkan dengan penggunaan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas maka karakteristik densitas yang dihasilkan memenuhi standar, namun dari segi ekonomis maka penggunaan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas tanpa penambahan SiO₂ lagi akan lebih ekonomis karena tanpa penambahan bahan pembentuk gelas dari oksida kimia lainnya yang harganya lebih mahal dari abu layang.

Seperti diketahui bahwa data densitas ini sangat penting untuk diketahui guna perancangan *melter*, *canister* serta strategi penyusunan *canister* yang berisi gelas limbah dalam *storage* maupun disposal. Semakin besar densitas gelas limbah maka gelas limbah mampu menerima beban tumpuk yang lebih besar dan hal ini akan lebih menghemat lahan *storage* maupun disposal. Jika kandungan limbah lebih ditingkatkan lagi maka densitas dapat lebih meningkat lagi yang berarti gelas limbah akan semakin mampu menerima beban tumpuk yang

lebih besar. Namun demikian kandungan limbah yang semakin besar akan menurunkan jumlah oksida pembentuk gelas, salah satunya yaitu menurunkan jumlah SiO₂. Seperti diketahui SiO₂ merupakan salah satu unsur dalam bahan pembentuk gelas yang cukup dominan yang membentuk struktur kerangka gelas yang kuat. Jumlah SiO₂ yang menurun dapat mengakibatkan menurunnya karakteristik gelas limbah karena kerangka SiO₂ tidak cukup menampung radionuklida dalam limbah. Hal ini dapat meningkatkan laju pelindihan. Oleh karena itu untuk mendapatkan karakteristik gelas limbah yang baik maka jumlah kandungan limbah dibatasi yaitu 20-25 %berat. Kandungan limbah yang lebih tinggi lagi akan lebih meningkatkan laju pelindihan dan ini harus dihindari

Pengaruh laju pelindihan terhadap jenis gelas limbah ditunjukkan pada Gambar 3.



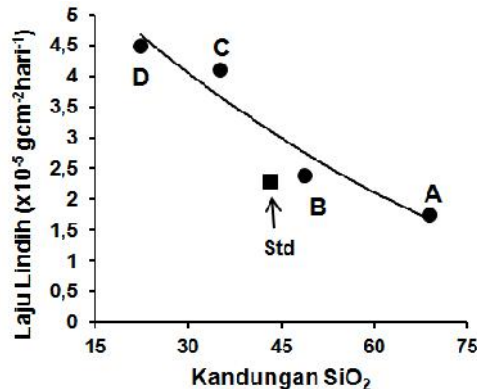
Gambar 3. Pengaruh Jenis Gelas-Limbah Terhadap Laju Pelindihan Gelas-Limbah

Pada Gambar 3 tampak bahwa laju pelindihan semakin meningkat untuk jenis gelas-limbah A, B, dan C. Jika dilihat dari komposisi gelas limbah, maka terjadi peningkatan kandungan limbah A, B, dan C. Bertambahnya kandungan limbah menyebabkan laju pelindihan semakin besar. Kandungan limbah yang besar berarti jumlah radionuklida yang harus ditampung dalam kerangka gelas juga besar, bahkan kerangka gelas akan menjadi penuh dengan radionuklida yang terkandung dalam limbah. Akibatnya, radionuklida mudah terlindih keluar. Gelas limbah dengan laju pelindihan yang besar merupakan gelas limbah dengan kualitas yang tidak baik. Laju pelindihan gelas-limbah B, C dan D lebih besar dari laju pelindihan gelas-limbah standar. Untuk gelas limbah B dan C jumlah kandungan limbah lebih besar dari gelas limbah standar, sehingga jumlah radionuklida yang harus ditampung dalam kerangka gelas B dan C semakin banyak, sehingga potensi pelindihan radionuklida keluar dari gelas limbah semakin besar. Untuk gelas limbah D yaitu gelas limbah dengan bahan pembentuk gelas hanya abu layang memiliki laju pelindihan paling besar yaitu $4,514 \times 10^{-5} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1}$ hampir dua kali laju pelindihan gelas limbah standar. Gelas limbah D memiliki kandungan SiO₂ hanya dari abu layang tanpa adanya penambahan SiO₂ sebagai bahan pembentuk gelas yaitu 22,823 % berat paling kecil dibandingkan dengan gelas limbah A,B,C bahkan jauh lebih kecil dari gelas limbah standar yaitu 43,15 %berat. Dengan demikian untuk vitrifikasi LCTT hanya menggunakan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas mengharuskan penambahan SiO₂ agar diperoleh gelas limbah dengan kualitas yang baik yaitu laju pelindihannya kecil. Yang perlu diperhatikan adalah semakin kecil laju pelindihan menunjukkan bahwa gelas-limbah mempunyai kualitas yang cukup baik. Laju pelindihan merupakan karakteristik yang penting mengingat tujuan akhir dari imobilisasi limbah adalah untuk memperkecil potensi terlepasnya radionuklida yang ada dalam limbah ke lingkungan.

Jika dipelajari pengaruh oksida SiO₂ dalam bahan pembentuk gelas terhadap laju pelindihan gelas limbah A,B, C dan D dihasilkan grafik seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.

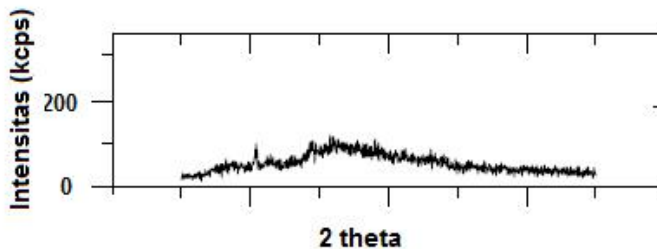
Unsur Si merupakan salah satu unsur dalam bahan pembentuk gelas yang cukup dominan yang membentuk struktur kerangka gelas yang kuat. Gelas limbah A,B,C,D dan gelas limbah standar memiliki kandungan SiO₂ yang berbeda yaitu masing – masing 68,78; 48,634; 35,073; 22,283 dan 43,15 %berat. Pada Gambar 4 terlihat bahwa semakin tinggi kandungan SiO₂ maka laju pelindihan gelas limbah semakin kecil. Semakin tinggi kandungan SiO₂ maka kualitas gelas limbah akan semakin baik karena karakteristik laju pelindihannya semakin kecil. Namun

demikian kandungan SiO_2 yang besar akan menaikkan titik leleh dan viskositas gelas limbah, sehingga proses vitrifikasi memerlukan suhu yang lebih tinggi lagi. Ini akan meningkatkan laju korosi *refractory* (bata tahan api) *melter* sehingga meningkatkan timbulnya limbah radioaktif padat sekunder. Demikian pula untuk bisa menuangkan lelehan gelas limbah dari *melter* ke *canister* perlu pemanasan yang lebih tinggi. Hal ini akan mengakibatkan energi untuk pembentukan gelas limbah menjadi lebih tinggi. Oleh karena itu kandungan SiO_2 dalam gelas limbah yang ideal adalah sekitar 40 %berat. Pada Gambar 4 tampak bahwa laju pelindihan terbesar adalah $4,514 \times 10^{-5} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1}$ dan gelas limbah ini memiliki kandungan SiO_2 terkecil yaitu 22,283 % berat dan ini adalah gelas limbah D yang merupakan gelas limbah dengan kandungan SiO_2 hanya dari abu layang.



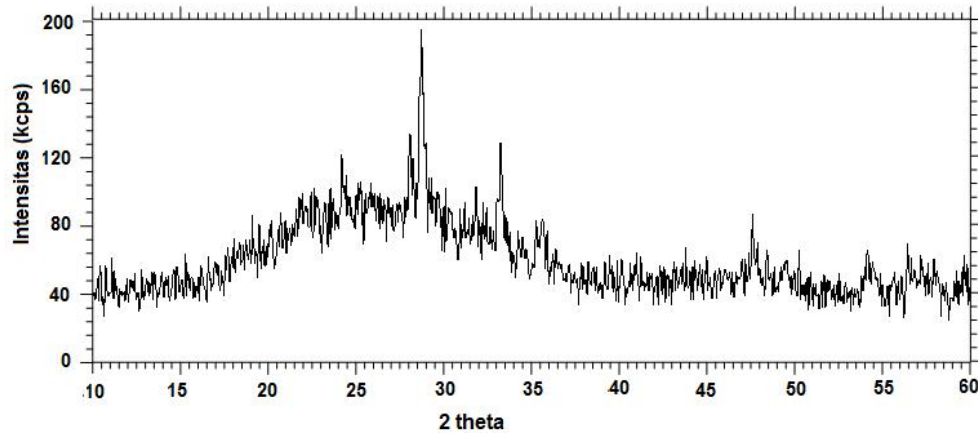
Gambar 4. Pengaruh Kandungan SiO_2 Terhadap Laju Pelindihan Gelas Limbah

Selain densitas dan laju pelindihan, karakteristik gelas limbah lain yang penting untuk dipelajari adalah devitrifikasi gelas limbah. Devitrifikasi merupakan perubahan struktur gelas limbah dari *amorf* menjadi kristalin akibat adanya pengaruh panas. Seperti diketahui bahwa LCTT memiliki kandungan hasil belah yang tinggi sehingga panas akibat peluruhan gamma dari radionuklida hasil belah cukup tinggi yang memungkinkan akan memanaskan gelas sehingga terjadi devitrifikasi. Gelas limbah yang baik harus tahan terhadap kondisi ini. Oleh karena itu untuk meminimalkan terjadinya devitrifikasi maka dalam penyimpanan sementara gelas limbah maka dilengkapi dengan sistem pendingin. Devitrifikasi secara kualitatif dapat diketahui dengan analisis menggunakan Difraktometer Sinar X. Gambar 5 menunjukkan hasil analisis XRD terhadap gelas limbah yang memiliki struktur *amorf*, sedangkan Gambar 6 menunjukkan struktur gelas limbah A yang mengalami devitrifikasi pada suhu 700°C 5 jam.



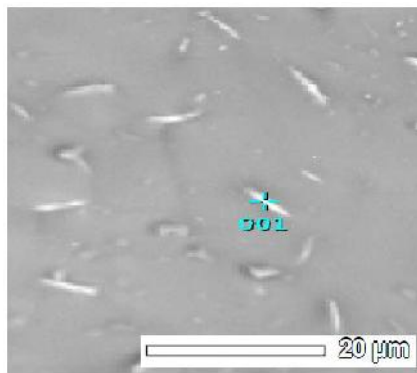
Gambar 5. Struktur gelas-limbah *amorf*

Pada Gambar 5 tampak pola difraksi yang tidak muncul puncak-puncak dan hal ini menunjukkan bahwa struktur gelas limbah adalah *amorf*. Sedangkan pola difraksi pada Gambar 6 menunjukkan adanya puncak-puncak pada sudut 2θ tertentu. Hal ini menunjukkan bahwa struktur *amorf* telah berubah menjadi kristalin. Gambar 6 merupakan pola difraksi XRD dari gelas limbah A dengan kandungan limbah 23,21 %berat yang mengalami pemanasan pada suhu 700°C selama 5 jam.



Gambar 6. Struktur gelas limbah yang mengalami devitrifikasi.

Analisis struktur mikro menggunakan SEM terhadap gelas limbah A yang mengalami devitrifikasi pada suhu 700 °C selama 5 jam ditunjukkan pada Gambar 7.



Gambar 7. Struktur Mikro Gelas Limbah A yang mengalami Devitrifikasi

Pada Gambar 7 tampak adanya kristal seperti jarum yang tersebar pada permukaan contoh gelas limbah A yang mengalami Devitrifikasi pada suhu 700 °C selama 5 jam. Analisis *spot* menggunakan EDS pada kristal putih menunjukkan bahwa kristal tersebut didominasi oleh oksida SiO₂.

KESIMPULAN

Abu layang dapat dimanfaatkan sebagai bahan pembentuk gelas pada vitrifikasi LCTT menggunakan gelas borosilikat. Untuk mendapatkan karakteristik gelas limbah yang memenuhi standar maka pemanfaatan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas harus ditambahkan lagi oksida SiO₂ dan kandungan limbah dibatasi sekitar 20 - 25 %berat. Penggunaan abu layang sebagai bahan pembentuk gelas disamping dapat menghasilkan gelas limbah yang memenuhi standar, juga proses vitrifikasi menjadi lebih ekonomis karena harga abu layang jauh lebih murah dibandingkan dengan SiO₂ dari bahan kimia.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terimakasih penulis sampaikan kepada Saudara Yuli Purwanto, AMd dan Drs. Sulistiyoso G.S, MT yang telah banyak membantu dalam pelaksanaan penelitian dan karakterisasi hasil penelitian.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. NEGARA REPUBLIK INDONESIA, Pengelolaan Limbah Radioaktif, *Peraturan Pemerintah Republik Indonesia Nomor 27 Tahun 2002*, Jakarta, 2002.
- [2]. IAEA, *Spent Fuel Reprocessing Options*, TECDOC Series No.1587, IAEA, Vienna 2008.
- [3]. IAEA, *Management of Reprocessed Uranium Current Status and Future Prospects*, Tecdoc Series No. 1529, IAEA, Vienna, 2007.
- [4]. AISYAH, "Sensitisasi Pada Bahan Canister Limbah Cair Tingkat Tinggi Yang Diimobilisasi dengan Gelas", *Naskah Presentasi Peneliti Utama*, PTLR-BATAN, Serpong, 20 November 2012.
- [5]. KANWAR RAJ AND KAUSHIK, C.P, "Glass Matrices for Vitrification of Radioactive Waste: an Update on R & D Efforts", *Materials Science and Engineering*, 2: 1-6, 2006.
- [6]. JAEA, *Second Progress Report on Research and Development for the Geological Disposal of HLW in Japan*, JAEA, Japan, 2000.
- [7]. AISYAH, MARTONO, H., "Pengelolaan Limbah Radioaktif Hasil Samping Produksi Radioisotop Molibdenun-99", *Prosiding Seminar Teknologi Pengelolaan Limbah V*, hal. 26-38, PTLR-BATAN, Serpong, 2007.
- [8]. MARTONO, H., AISYAH, WATI, "Pengolahan Limbah Cair Hasil Samping Pengujian Bahan Bakar Paska Iradiasi Dari Instalasi Radiometalurgi", *J. Teknol. Pengelolaan Limbah*, Vol.10(2), hal.1-8, 2007.
- [9]. MARTONO,H., "Persyaratan Gelas-Limbah Untuk Vitrifikasi Skala Industri Dan Penyimpanan", *Jurnal Teknologi Pengelolaan Limbah*, Vol.8(1), hal.8-15, 2005.
- [10]. IAEA, *Spent Fuel and High Level Waste: Chemical Durability and Performance Under Simulated Repository Conditions*, IAEA, Vienna, 2007.
- [11]. MARTONO, H., AISYAH, "Pengaruh Radiasi Terhadap Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi Limbah Aktivitas Tinggi", *Prosiding Seminar Nasional Kimia 2012*, hal. D14-D22 Jurusan Kimia-FMIPA, UNS, Surabaya, 2012.
- [12]. EMEM, W., AND MORIMOTO, S., " Preparation Of Glass-Ceramics Using flyash As A RawMaterial", *Suranaree J. Sci. Technol.* Vol. 13, No. 2, pp. 137-142, 2005.
- [13]. MARTONO, H., "Perbandingan Gelas Keramik dan Gelas Borosilikat untuk Solidifikasi Limbah Aktivitas Tinggi", *Prosiding Seminar Nasional ke 37*, Jaringan Kerja Sama Kimia Indonesia, hal.121--126, Jakarta, 2006.
- [14]. AISYAH DAN MARTONO, H., "Pengaruh Perlakuan Panas Dan Kandungan Limbah Terhadap Perubahan Struktur Gelas Limbah", *Jurnal Teknologi Pengelolaan Limbah*, Volume 13, Number 2, hal. 8-17, 2010.
- [15]. AISYAH, "Perubahan Komposisi Bahan Pembentuk Gelas Pada Karakteristik Gelas Limbah", *Jurnal Teknologi Pengelolaan Limbah*, Volume 15 Nomor 2, hal 1-14, 2012.
- [16]. FARMAN, I., *Nuclear Materials Nuclear Waste Lecture 2: Incorporation of radionuclides in immobilisation matrices*, Department of Earth Sciences Cambridge University, 2011.
- [17]. SHIOTSUKI, M. et al., "Perspectives on Application and Flexibility of LWR Vitrification Technology for High Level Waste Generated from Future Fuel Cycle System", *Proceedings of Waste Management 2006*, February 26 - March 2, Tucson, 2006, Available: http://jolifukyu.tokai-sc.jaea.go.jp/fukyu/mirai-en/2006/8_2.html, diakses pada 08-02-2010.
- [18]. IAEA, *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*, Tecdoc -1537, IAEA, Vienna, 2007.
- [19]. PRADO, M., O., MESSI, N.,B., et.all., "The Effects of Radiation on The Density of an Aluminoborosilicate Glass", *Journal of Non Crystalline Dolid* ,289:175-184, 2001. Available: <http://www.lamav.ufscar.br/artpdf/jncs289.pdf>, diakses pada 15 -01- 2011
- [20]. JIS K0058-1, Leaching Test Methods, JSA, Japan, 2009.
- [21]. WATI DAN HERLAN, M., "Pengaruh Kondisi Penyimpanan dan Air Tanah Terhadap Laju Pelindihan Radionuklida dari Hasil Solidifikasi", *Jurnal Teknologi Pengelolaan Limbah*, Vol.12.No.1, hal. 19-26, 2009.