

SORPSI STRONSIUM OLEH BENTONIT SUKABUMI SEBAGAI BAHAN *BUFFER* SISTEM PENYIMPANAN LIMBAH RADIOAKTIF

Budi Setiawan

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

ABSTRAK

SORPSI STRONSIUM OLEH BENTONIT SUKABUMI SEBAGAI BAHAN *BUFFER* SISTEM PENYIMPANAN LIMBAH RADIOAKTIF. Sorpsi stronsium oleh bentonit dari Sukabumi sebagai bahan penyangga pada sistem penyimpanan limbah radioaktif telah dilakukan. Kegiatan ini adalah dalam rangka menyiapkan aspek pendukung dari penyiapan disposasi limbah radioaktif di Indonesia di masa depan yaitu pengayaan *databank* bahan lokal yang cocok sebagai bahan penyangga. Bentonit lokal dari Sukabumi digunakan sebagai sampel bahan penyangga. Tujuan penelitian ini adalah memperoleh data karakteristik sorpsi spesifik ion stronsium oleh bentonit dari Sukabumi. Penelitian ini dilakukan secara batch menggunakan radionuklida (Sr-90) sebagai perunut, dimana penentuan koefisien distribusi dari stronsium pada sistem padat-cair sebagai suatu fungsi waktu kontak, pengaruh garam latar, konsentrasi ion Sr dan pengaruh dari kation-kation tambahan dalam larutan juga dipelajari. Ratio padat : cairnya adalah 10^{-2} g/ml, dengan konsentrasi awal SrCl_2 berkisar antara 10^{-8} – 10^{-4} M dan konsentrasi NaCl adalah 0,1 – 1,0 M. Sedangkan konsentrasi ion tambahan adalah 10^{-8} , 10^{-6} dan 10^{-4} M. Hasilnya menunjukkan bahwa sorpsi Sr oleh bentonit pada awalnya cepat kemudian menjadi lambat setelah waktu kontak 15 hari. Nilai Kd menurun dengan bertambahnya konsentrasi garam latar dan meningkatnya konsentrasi Sr di larutan, demikian pula dengan keberadaan ion-ion tambahan di larutan dapat menurunkan nilai Kd Sr ke sampel bentonit mengikuti urutan $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Na}^+$. Keberadaan kation pengganggu seperti garam latar dan ion-ion tambahan diharapkan dalam kuantitas yang minimum untuk meminimalisir migrasi radiostronsium ke lingkungan.

Kata kunci : stronsium, bentonit, sorpsi, Kd.

ABSTRACT

SORPTION OF STRONTIUM BY USING BENTONITE FROM SUKABUMI AS BUFFER MATERIAL ON THE RADWASTE DISPOSAL SYSTEM. Sorption of strontium by using bentonite from Sukabumi as buffer material on the radwaste disposal system have been done. The activity in the frame to prepare supporting aspect of radwaste disposal preparation in Indonesia future e.i. *databank* enrichment of local material suitable as buffer material. Local bentonite from Sukabumi was used as sample of buffer material. Objective of experiment is to find out specific sorption characteristic data of strontium ion onto Sukabumi's bentonite. The experiments were done on batch method by using Sr-90 as tracer, where determination of distribution coefficient of Sr on solid-liquid system as function of contact time, effect of background salt, concentration of Sr and effect of complementary ions in solution also were studied. Solid:liquid ratio was 10^{-2} g/ml, initial concentrations of Sr were 10^{-8} to 10^{-4} M and concentration of NaCl were 0.1 and 1.0 M. The result showed that sorption of Sr by bentonite was initially fast however later become slow after 15 days contact time. Coefficient distribution values were decreased with increasing in concentration of background salt and Sr concentration in solution, and also with the existence of complementary ions in solution could decreased Kd values of Sr onto bentonite sample follow the order $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Na}^+$. The Presence of interfering cation such as background salt or complementary ions in solution must be present in minimum quantities to minimize radiostrontium migration into environment.

Keywords : strontium, bentonite, sorption, Kd.

PENDAHULUAN

Adanya program penyiapan dan introduksi pembangkit listrik tenaga nuklir pertama di Indonesia telah menyebabkan perlunya penyiapan kegiatan lain yang bersifat pokok yaitu studi tentang kebutuhan listrik sebagai energi alternatif yang akan di introduksi di masa depan maupun ilmu-ilmu lain yang berhubungan dengan studi pembangkitan energi. Mengantisipasi dari hasil samping pembangkitan energi seperti limbah yang dikeluarkan dari kegiatan tersebut maka penyiapan program penyiapan tapak untuk fasilitas penyimpanan akhir limbah juga sedang berjalan secara beriringan [1].

Pada program penyiapan tapak untuk fasilitas disposasi limbah radioaktif ini telah diperoleh beberapa calon lokasi yang berpotensi untuk fasilitas tersebut [2]. Metode penyiapan tapak secara umum telah disusun oleh International Atomic Energy Agency (IAEA) sebagai petunjuk bagi para anggotanya dalam rangka mempersiapkan sistem penyimpanan limbah radioaktif di Negara mereka masing-masing. Selain petunjuk dan standar yang telah dibuat oleh IAEA juga dapat dipergunakan metode penyiapan yang dilakukan oleh Negara lain yang dapat dipertimbangkan untuk diadopsi sesuai dengan keperluan masing-masing Negara dengan memenuhi persyaratan keselamatan, teknik dan lingkungan yang direkomendasikan oleh IAEA maupun badan regulasi [3,4].

Penyiapan fasilitas ini dimaksudkan untuk dapat menjamin terjadinya isolasi yang memadai oleh biosfer terhadap keberadaan bahan radioaktif selama kurun waktu tertentu sehingga dalam rentang waktu tersebut bahan radioaktif yang ada di dalam paket limbah telah meluruh ke level yang aman dan tidak lagi membahayakan lingkungan. Untuk maksud tersebut maka suatu fasilitas disposasi limbah radioaktif akan dilengkapi dengan sistem penghalang buatan dan alami yang dikenal sebagai sistem penghalang berlapis (*multibarrier system*). Bahan penyangga sebagai salah satu penghalang buatan dimaksudkan untuk menahan adanya aliran air tanah menuju fasilitas disposasi agar dapat mengurangi kemungkinan adanya kontak antara air tanah dengan paket limbah. Juga untuk menyerap bila terjadi pelepasan radionuklida dari paket limbah oleh air tanah agar kontaminasi radionuklida ke lingkungan dapat diminimalisir melalui mekanisme serapan atau sorpsi [5].

Bahan penyangga yang umum digunakan adalah mineral bentonit sebagai bahan lokal yang murah, mudah didapat serta secara kuantitas berlimpah sehingga penting untuk digali kemanfaatannya secara lebih jauh lagi. Bentonit mempunyai sifat fisis yang mudah menyerap air, mudah mengembang dan bersifat plastis setelah kontak dengan cairan, dimana setiap struktur kristal monmorilonit terdiri dari tiga lapis. Satu lapisan Alumina berbentuk oktahedral dan dua lapisan berbentuk tetrahedral oleh Silikon dan Oksigen. Lapisan ini akan menyatu dengan ujung-ujung kisi tetrahedral Silikon membentuk lapisan dengan lapisan Hidroksil dari oktahedral yang akhirnya akan membentuk lapisan 3 *layer* mineral bentonit [6].

Untuk kegiatan penyiapan fasilitas disposasi ini, data karakter dari suatu tapak sebagai penghalang alami harus diperoleh demikian pula data pendukung lainnya yang diharapkan dapat melengkapi kesempurnaan sistem isolasi lainnya yang merupakan sistem penghalang buatan dari suatu fasilitas disposasi terhadap kemungkinan terjadinya lepasan radionuklida secara tidak terkontrol dari fasilitas disposasi ke lingkungan. Salah satu data pendukung yang diperlukan adalah data keandalan dari sistem penghalang buatan yang ada di fasilitas disposasi melalui data karakteristik sorpsi spesifik radionuklida oleh bahan penghalang atau tertrahedral-oktahedral-tetrahedral seperti ditunjukkan pada Gambar 1 [6]. Air/cairan akan memasuki interlayer yang mengakibatkan kisi antar kisi menjauh dan membesar (*swelling*).

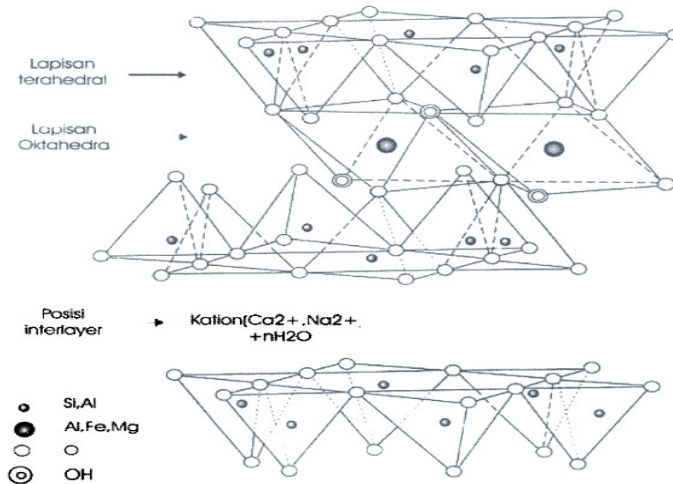
Mineral bentonit sangat baik untuk sorpsi ion-ion logam karena mempunyai ukuran partikel yang sangat kecil dan mempunyai kapasitas penukaran ion yang baik dimana akan terjadi penukaran ion-ion logam dengan ion-ion Ca atau Na dari bentonit jenis Ca maupun Na [7].

Sedangkan radionuklida stronsium (Sr-90) adalah radionuklida yang mempunyai waktu paro yang cukup panjang (~29 tahun) dan merupakan salah satu radionuklida yang dominan pada inventori limbah radioaktif level rendah-sedang sehingga dapat digunakan sebagai acuan untuk memperkirakan keselamatan fasilitas disposasi untuk limbah radioaktif level rendah-sedang [8].

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk memperoleh data karakteristik sorpsi spesifik ion stronsium sebagai model limbah radioaktif level rendah-sedang oleh bentonit dari Sukabumi sebagai bahan penyangga sistem disposasi limbah radioaktif.

Sebagai indikator sorpsi ion stronsium ke sampel bentonit, maka parameter koefisien distribusi (Kd) dapat digunakan walaupun parameter ini hanya valid pada kondisi tertentu yang diberikan

selama percobaan seperti konsentrasi awal ion logam, pH atau kondisi sistem larutan dan padatnya. Sehingga dalam penelitian ini kondisi tertentu pada sistem disposal telah dipertimbangkan dengan tanpa variasi pH dan penggunaan bahan bentonit sebagaimana diperoleh dari alam.



Gambar 1. Struktur kristal pada bentonit [6].

TATA KERJA

Bahan

Larutan yang digunakan dalam percobaan ini adalah SrCl₂·6H₂O, NaCl, KCl, MgCl₂ dan CaCl₂ yang berasal dari *Merck*, sedangkan perunut Sr-90 terlarut dalam 0,1 M HCl berasal dari *Eckert & Ziegler isotope products*. Seluruh pelarut disiapkan dengan menggunakan air demineral. Sampel bentonit diperoleh dari salah satu perusahaan pertambangan di daerah Bogor CV. Sumber Wahana Sejati berupa bongkahan, kemudian dibawa ke laboratorium di preparasi lebih lanjut: dibersihkan dari kotoran, dikeringkan dalam oven, digerus dan diayak sehingga diperoleh ukuran butir 100 mesh.

Peralatan

Stronsium adalah pemancar beta murni sehingga untuk mengukur aktivitasnya telah digunakan alat *liquid scintillation counter* (LSC) merk *PerkinElmer Tri-Carb 2910 TR*. Sedangkan pemisahan fase padat dan cair pada percobaan telah digunakan alat sentrifugasi merk *Heraeus Labofuge 400 centrifuge*. Alat plastic dan gelas lainnya adalah peralatan standar seperti pada laboratorium kimia lainnya.

Percobaan

Percobaan sorpsi ini menggunakan cara statis atau satu (*batch*) pada suasana suhu kamar. Sampel bentonit dan larutan yang mengandung stronsium dikontakkan dalam vial PE 20 ml, dengan ratio padat-cair 10⁻² g/ml selanjutnya campuran di label dengan Sr-90. Konsentrasi awal stronsium yang digunakan adalah 10⁻⁸ sampai 10⁻⁴ M. Sampel disiapkan dengan cara melarutkan SrCl₂·6H₂O 10⁻³ M secara berseri sehingga diperoleh konsentrasi yang diinginkan. Seluruh sampel kemudian diaduk perlahan dengan menggunakan alat *roller* geologi, secara periodik *aliquot* diambil dari sampel *vial* dan dipisahkan fase padat-cairnya secara pemusingan dan kemudian diukur aktivitasnya dengan alat LSC. Hasil dari pengukuran aktivitas Sr di larutan dapat dihitung nilai koefisien distribusi (Kd) stronsium. *Blank sample* digunakan sebagai koreksi dari adanya sorpsi stronsium oleh sampel bentonit. Penentuan koefisien distribusi (Kd) dari stronsium pada sistem padat-cair sebagai suatu fungsi waktu kontak, pengaruh garam latar, konsentrasi ion Sr dan pengaruh dari kation-kation tambahan dalam larutan juga dipelajari.

Untuk percobaan pengaruh waktu kontak konsentrasi Sr yang digunakan adalah 10^{-8} M. Setelah dicampur, secara periodik larutan sampel diambil, dipisahkan fase padat-cairnya dan beningannya diperiksa dengan alat LSC.

Pengaruh kekuatan ionik di larutan dapat dipelajari dari penambahan larutan NaCl 0,1 dan 1,0 M ke larutan, sedangkan untuk mempelajari pengaruh konsentrasi ion Sr pemberian larutan Sr dengan rentang konsentrasi awal $10^{-8} - 10^{-4}$ M. Penambahan ion koeksistensi dilakukan dengan pemberian ion-ion Na^+ , K^+ , Ca^{2+} dan Mg^{2+} ke dalam larutan dengan konsentrasi 10^{-8} , 10^{-6} dan 10^{-4} M. Selanjutnya prosedur penentuan K_d Sr ke bentonit sama dengan prosedur sebelumnya.

Evaluasi

Sorpsi ion logam didefinisikan sebagai [8],

$$K_d = \frac{A_0 - A_f}{A_f} \quad (1)$$

Dimana K_d , A_0 dan A_f masing-masing adalah koefisien distribusi, aktivitas awal dan akhir dari Sr-90. Konsentrasi stronsium di larutan dan padatan setelah reaksi sorpsi dari hasil pengukuran aktivitas menjadi,

$$[C]_{eq} = \frac{A_f}{A_0} [C]_0, \text{ mol/ml} \quad (2)$$

$$Q_{ads} = ([C]_0 - [C]_{eq}) \frac{V}{M}, \text{ mol/g} \quad (3)$$

Sehingga [9],

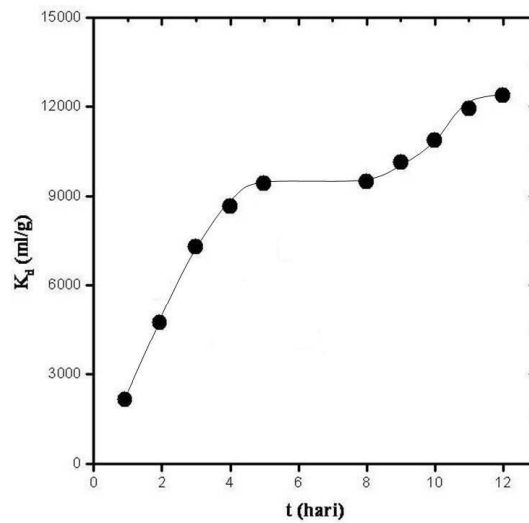
$$K_d = \frac{A_0 - A_f}{A_f} \times \frac{V}{m}, \text{ ml/g} \quad (4)$$

dimana V dan m masing-masing adalah total volume di dalam vial PE 20 ml, dan berat sampel. Semua aktivitas ini dilakukan pada laboratorium kimia Bidang Teknologi Penyimpanan Lestari-Pusat Teknologi Limbah Radioaktif - BATAN, Serpong pada tahun 2012.

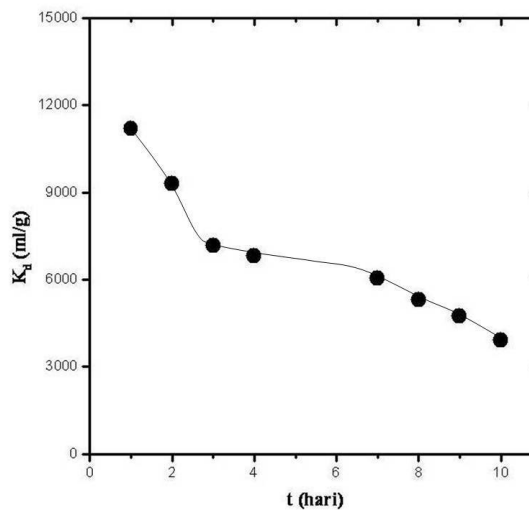
HASIL DAN PEMBAHASAN

Penyerapan ion Sr oleh bentonit dinyatakan dalam plot nilai K_d *versus* waktu kontak, dimana penyerapan terjadi relatif cepat terutama pada 5 hari pertama pengontakan yang ditunjukkan dengan terjadi lonjakan nilai K_d sampai nilai sekitar 9000 ml/g kemudian nilai tersebut melandai sampai hari ke 8 dan kembali meningkat sampai hari ke 12 dengan nilai K_d yang mencapai 12400 ml/g seperti ditunjukkan oleh Gambar 2. Adanya tahapan penyerapan yang lebih dari 2 tahapan menunjukkan bahwa bentonit mempunyai lapisan (*layer*) lebih dari satu. Proses penyerapan oleh bentonit umumnya melalui mekanisme pertukaran ion [10].

Adanya penggantian larutan dalam *vial* dengan larutan baru yang segar telah menyebabkan terbentuknya suatu kondisi kesetimbangan yang baru, dimana sebagian Sr yang ada di bentonit akan "lepas" dan kembali ke larutan atau disebut sebagai desorpsi. Kondisi yang seperti ini menyebabkan terjadinya perubahan nilai K_d akibat proses desorpsi. Perubahan ini dapat ditunjukkan pada Gambar 3, dimana penurunan nilai K_d bersamaan dengan berjalannya waktu kontak antara bentonit dengan larutan segar. Hasilnya terlihat telah terjadinya reaksi dapat balik antara Sr di sampel bentonit dengan adanya perubahan konsentrasi pada larutan segar. Nilai K_d menurun karena sebagian Sr yang terserap di bentonit kembali ke larutan karena adanya perubahan kondisi larutan segar tersebut [9]. Kesetimbangan baru diperoleh setelah pengontakan sampel bentonit dalam *vial* dengan larutan segar selama sekitar 10 hari dan nilai K_d yang baru menjadi 4000 ml/g.



Gambar 2. Sorpsi Sr-90 oleh bentonit terhadap pengaruh waktu kontak

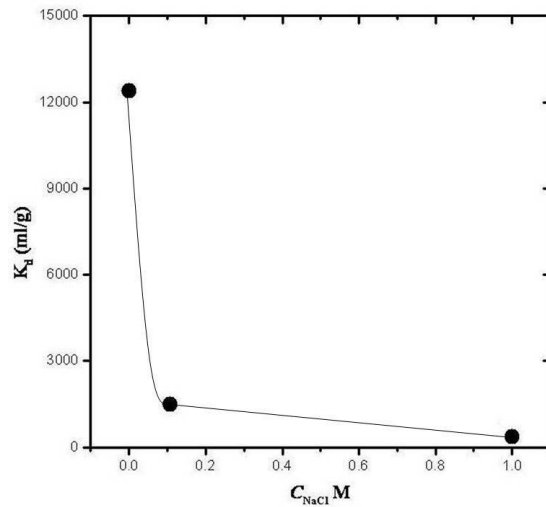


Gambar 3. Desorpsi Sr-90 dari bentonit terhadap pengaruh waktu kontak

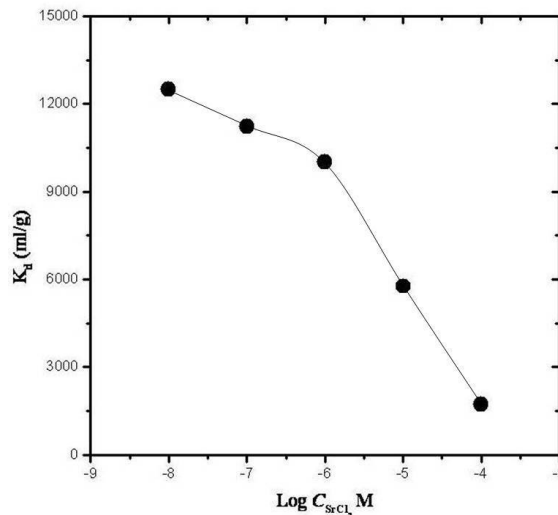
Adanya peningkatan konsentrasi garam latar (NaCl) di larutan akan menurunkan nilai K_d yang diperoleh, lihat Gambar 4. Hal ini diperkirakan karena adanya kompetisi antara ion-ion Na dengan Sr yang ada di larutan ke dalam bentonit. Ion-ion Na di larutan akan segera menetralkan ion-ion negatif yang ada di lapisan luar bentonit sehingga akan menghambat upaya ion-ion Sr yang akan berinteraksi dengan bentonite [11].

Akibatnya ion-ion Sr bila akan melakukan interaksi dengan bentonit harus berkompetisi dengan ion-ion Na yang ada disekeliling sampel bentonit, dan ini akan menyebabkan menurunnya nilai K_d dari Sr oleh bentonit.

Penelitian ini dilakukan dengan cara memvariasi konsentrasi awal $SrCl_2$ di larutan yang kemudian dikontakkan ke bentonit, dimana rentang konsentrasi awal yang diberikan antara 10^{-8} sampai 10^{-4} M $SrCl_2$. Pengontakan antara larutan yang mengandung $SrCl_2$ dengan sampel bentonit dilakukan selama 12 hari dan hasil pengontakan ditunjukkan pada Gambar 5. Terlihat bahwa secara umum nilai K_d akan menurun/berkurang seiring dengan bertambahnya konsentrasi $SrCl_2$ di larutan. Nilai K_d akan menurun tajam bersamaan dengan meningkatnya konsentrasi $SrCl_2$ menuju nilai kejenuhan yang lebih rendah [7].

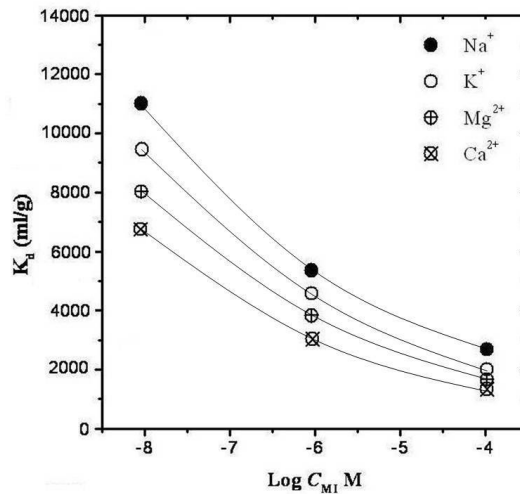


Gambar 4. Pengaruh kekuatan ionik larutan terhadap sorpsi Sr-90 oleh bentonit



Gambar 5. Pengaruh konsentrasi $SrCl_2$ di larutan terhadap sorpsi Sr-90 oleh bentonit

Keberadaan sejumlah konsentrasi ion koeksistensi di larutan dan pengaruhnya terhadap sorpsi Sr-90 oleh bentonite ditunjukkan pada Gambar 6. Adanya ion-ion Na^+ , K^+ , Ca^{2+} dan Mg^{2+} sebagai ion tambahan di larutan dapat menyebabkan berkurangnya nilai K_d radionuklida di bentonit. Nilai K_d Sr-90 menurun secara nyata dari nilai awal sekitar 12400 ml/g menjadi sekitar 1800 ml/g. Ion Ca terlihat mempunyai keefektifitas yang paling besar untuk mengurangi sorpsi ion Sr oleh bentonite, dengan efektifitas ion koeksistensi di larutan dalam mereduksi sorpsi Sr oleh bentonit mengikuti urutan sebagai berikut: $Ca^{2+} > Mg^{2+} > K^+ > Na^+$. Hal ini dapat diterangkan bahwa semakin lebarnya radius ion koeksistensi membuat reduksi sorpsi radiocesium menjadi lebih efektif. Kemudahan untuk melakukan pertukaran ion antara ion koeksistensi dengan ion Sr dapat terjadi karena sebagian ion-ion yang saling dipertukarkan mempunyai golongan yang sama pada daftar susunan berkala [12]. Dengan kata lain semakin tinggi konsentrasi ion koeksistensi terdapat di larutan akan menyebabkan rendahnya nilai K_d Sr-90 oleh bentonite dan dapat menyebabkan terjadinya migrasi Sr-90 di larutan menjadi meningkat.



Gambar 6. Keberadaan ion-ion tambahan di larutan terhadap sorpsi Sr-90 oleh bentonit

Dari hasil percobaan ini dapat diketahui keandalan dari bentonite yang berasal dari Sukabumi mampu menyerap Sr-90 dengan cukup baik walaupun bila ada gangguan seperti meningkatnya garam latar dan adanya ion-ion logam tambahan dari constituent dari air tanah dapat mempengaruhi kemampuan sorpsi Sr-90 oleh bentonite. Sehingga diharapkan fasilitas disposal limbah radioaktif yang cukup baik bila konsentrasi ion tambahan di air tanah berkuantitas yang minimal agar kemungkinan terjadinya migrasi radionuklida ke lingkungan juga dapat ditekan.

KESIMPULAN

Hasilnya menunjukkan bahwa sorpsi Sr oleh bentonit pada awalnya cepat kemudian menjadi lambat setelah waktu kontak 15 hari. Nilai K_d menurun dengan bertambahnya konsentrasi garam latar dan meningkatnya konsentrasi Sr di larutan, demikian pula dengan keberadaan ion-ion tambahan di larutan dapat menurunkan nilai K_d Sr di sampel bentonit mengikuti urutan $Ca^{2+} > Mg^{2+} > K^+ > Na^+$. Keberadaan kation pengganggu seperti garam latar dan ion-ion tambahan pada suatu fasilitas disposal diharapkan dalam kuantitas yang minimum.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. B.Setiawan dkk.: Penyiapan Tapak Penyimpanan Lestari Limbah Radioaktif di Pulau Jawa dan Sekitarnya, Prosid. Seminar Nasional Teknol. Pengelolaan Limbah VI, PTLR-BATAN, 188-194 (2008).
- [2]. B.Setiawan dkk.: Pemilihan Wilayah Potensial Untuk Disposal Limbah Radioaktif (Area Survey Stage, IAEA 11-G-3.1), Prosid. Seminar Nasional Teknol. Pengelolaan Limbah VIII, PTLR-BATAN, 197-203 (2010).
- [3]. IAEA.: *Siting of Near surface Disposal Facilities*, Safety Series No. 111-G-3.1, IAEA-Vienna (1994).
- [4]. A. Schaller.: *Site Selection of Low And Intermediate Level Radioactive Waste Repository In The Republic of Croatia*, APO - Hazardous Waste Management Agency, Zagreb-Croatia (1996).
- [5]. M. Gascoyne, et.al.: Uranium Series Disequilibrium in Tuff from Yucca Mountain, Nevada as evidence of Pore-fluid Flow Over The Last Million Years, *App.Geochem.* 17(6), 781-792 (2002).
- [6]. RE. Grimm.: *Clay Mineralogy*, 2nd edition, McGraw-Hill Book Company, New York, (1968).
- [7]. S.Staunton, M.Roubaud, Adsorption ^{137}Cs on Montmorillonite and Illite, *Clay & Clay Minerals* Vol.45, No.2, 251-260 (1997).

- [8]. NL.Hakem, I.Al Mahamid, JA.Apps, GJ.Moridis.: Sorption of Cesium and Strontium on Hanford Soil, *J. of Radioanal. And Nuclear Chemistry* Vol 246, No. 2, p. 275-278 (2000).
- [9]. HN., Erten, et.el.: Sorption of Cesium and Strontium on Montmorillonite and Kaolinite, *Radiochim. Acta* 44/45,147-152 (1988).
- [10]. G.Lujaniene, et.al.: Cs and Pu Migration Through Engineered and Natural Barriers, *Lithuanian J. Phys.* 45, 273-280 (2005).
- [11]. DM.Di Toro, et.al.: Effect of Nonreversibility, Particle Concentration and I on Heavy Metal Sorption, *Env. Scie. Technol.* 20, 55-61 (1986).
- [12]. Lyklema, J., Simple Hofmeister Series.: *Chem. Physics Letters* 467, 217-222 (2009).