



IMOBILISASI LIMBAH AKTIVITAS TINGGI DENGAN GELAS

Aisyah, Herlan Martono
Pusat Teknologi Pengolahan Limbah Radioaktif - BATAN

ABSTRAK

IMOBILISASI LIMBAH AKTIVITAS TINGGI DENGAN GELAS. Limbah cair aktivitas tinggi (LCAT) adalah limbah yang berasal dari ekstraksi siklus I proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas. Limbah ini diimobilisasi dengan gelas borosilikat. Untuk jenis limbah tertentu diperlukan bahan pembentuk gelas yang tertentu pula sehingga diperoleh sifat-sifat gelas-limbah yang memenuhi syarat baik untuk proses maupun untuk penyimpanan. Telah dipelajari pengaruh kandungan limbah terhadap densitas, koefisien muai panjang, titik pelunakan dan laju pelindihan gelas-limbah. Komposisi LCAT ditentukan dengan program Origen 2 dan digunakan secara simulasi. Kandungan limbah dalam gelas-limbah dibuat 19,84; 22,32; 25,27 dan 26,59 %berat. Hasil penelitian menunjukkan bahwa kandungan limbah yang semakin tinggi akan meningkatkan densitas gelas-limbah, sedangkan koefisien muai panjang dan titik pelunakan relatif tidak berubah. Semakin tinggi kandungan limbah berakibat pada laju pelindihan gelas-limbah yang meningkat. Sifat gelas-limbah yang diperoleh dari hasil penelitian ini tidak menunjukkan penyimpangan dari sifat gelas-limbah standar.

ABSTRACT

THE IMMOBILIZATION OF HIGH LEVEL WASTE INTO GLASS. High level liquid waste is generated from the first step extraction in the nuclear fuel reprocessing. The waste is immobilized with boro-silicate glass. A certain composition of glass is needed for a certain type of waste, so that the properties of waste glass would meet the requirement either for further process or for disposal. The effect of waste loading on either density, thermal expansion, softening point and leaching rate has been studied. The composition of the high level liquid waste has been determined by ORIGEN 2 and the result has been used to prepare simulated high level waste. The waste loading in the waste glass has been set to be 19.84; 22.32; 25.27 and 26.59 weight percent. The result shows that increasing the waste loading has resulted in the higher density with no thermal expansion and softening point significant change. The increase in the waste loading increases the leaching rate. The properties of the waste glass in this research have not shown any deviation from the standard waste glass properties.

PENDAHULUAN

Limbah cair aktivitas tinggi (LCAT) ditimbulkan dari ekstraksi siklus I proses daur ulang bahan bakar nuklir bekas (*reprocessing*). Limbah ini banyak mengandung radionuklida hasil belah dan sedikit aktinida. Gelas borosilikat telah digunakan secara industri untuk imobilisasi (pemadatan) limbah aktivitas tinggi oleh negara maju. Imobilisasi limbah aktivitas tinggi dengan gelas disebut vitrifikasi. Gelas borosilikat dipilih karena pembuatannya lebih mudah dibandingkan dengan *synroc* dan *vitromet*, serta lebih tahan korosi dan mempunyai ketahanan fisik yang lebih baik dibandingkan dengan gelas fosfat^[1]. Adanya radiasi gamma yang dipancarkan radionuklida hasil belah dalam gelas-limbah, mengakibatkan suhu yang tinggi ($> 500^{\circ}\text{C}$). Suhu yang tinggi dan waktu yang cukup lama dapat mengakibatkan devitrifikasi.

Adanya devitrifikasi ini akan mengakibatkan ketahanan kimianya menurun, karenanya laju pelindihannya meningkat^[1]. Berdasarkan pertimbangan diatas, maka kandungan limbah dalam gelas-limbah dibatasi antara 20~30% berat. Sedangkan untuk mengurangi panas radiasi yang dipancarkan oleh radionuklida dalam limbah maka kandungan hasil belah dalam gelas-limbah maksimumnya 10%.

Pada penelitian sebelumnya telah dipelajari pengaruh kandungan silika, alumina, dan feri oksida terhadap sifat kimia gelas-limbah. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin tinggi kandungan silika, alumina dan feri oksida dalam gelas-limbah maka harga laju pelindihannya semakin kecil. Juga telah dipelajari pengaruh kandungan limbah terhadap devitrifikasi gelas-limbah. Semakin tinggi kandungan limbah maka devitrifikasi akan lebih mudah terjadi.

Pada proses daur ulang bahan bakar bekas, komposisi limbah aktivitas tinggi yang ditimbulkan akan berbeda-beda tergantung banyak faktor, antara lain jenis reaktor, jumlah pengayaan uranium, lama pendinginan dan lain sebagainya. Untuk jenis limbah aktivitas tinggi yang tertentu memerlukan bahan pembentuk gelas yang tertentu pula sehingga akan diperoleh sifat-sifat gelas-limbah yang memenuhi syarat baik untuk proses maupun untuk penyimpanan.

Kandungan limbah dalam gelas-limbah dapat berpengaruh terhadap sifat gelas-limbah, karena adanya perbedaan komposisi. Adanya perubahan komposisi ini dapat dideteksi melalui perubahan densitas, kekuatan mekanik dan laju pelindahannya. Sifat-sifat gelas-limbah ini perlu dipelajari karena sifat-sifat ini diperlukan dalam mendesain tungku, wadah, sistem pengangkutan, penyimpanan sementara dan kualitas gelas-limbah.

Dalam penelitian ini dipelajari pengaruh kandungan limbah terhadap sifat-sifat gelas-limbah seperti densitas, koefisien muai panjang, titik pelunakan dan laju pelindihan. Limbah cair aktivitas tinggi yang dipelajari adalah limbah simulasi dengan kandungan limbah sebesar 19,84; 22,32; 25,27 dan 26,59 % berat, sedangkan bahan pembentuk gelas terdiri dari $\text{SiO}_2 = 62,3$; $\text{B}_2\text{O}_3 = 19$; $\text{Al}_2\text{O}_3 = 6,7$; $\text{LiO}_2 = 4,0$; $\text{CaO} = 4,0$ dan $\text{ZnO} = 4,0$ % berat. Komposisi LCAT ditentukan dengan program *ORIGEN 2* untuk jenis reaktor PWR dengan fraksi bakar 45.000 MWd/MtU, pengayaan uranium 4,5 %, tenaga spesifik 38 MW/MtU dan lama pendinginan 4 tahun. Limbah simulasi dibuat dengan penggantian beberapa unsur dengan unsur lain dalam satu golongan, yaitu Tc diganti dengan Mn, aktinida (U, Pu, Np, Am, Cm) diganti dengan Ce dan Pm diganti dengan Nd. Sifat gelas-limbah yang dipelajari adalah densitas, koefisien muai panjang, titik pelunakan dan laju pelindihan.

TATA KERJA

Bahan

Bahan yang digunakan berupa serbuk oksida-oksida dengan kemurnian tinggi seperti terlihat pada **Tabel 1**. Sebagai acuan (standar) dipakai gelas-limbah milik *Power Reactor and Nuclear Fuel*

Development Corporation (PNC) Jepang yang mempunyai sifat sebagai berikut ^[2] :

1. Densitas rerata = 2,74 g.cm⁻³
2. Koefisien muai panjang = $83 \times 10^{-7} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ pada suhu (30-300°C)
3. Titik transformasi = 501°C
4. Konduktivitas panas = $0,87 \text{ kkal.m}^{-2}.\text{jam}^{-1}.\text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ (pada 100 °C)
5. Titik pelunakan = 614 °C
6. Tahanan listrik = 4,8 ohm . cm (pada 1150 °C)
7. Kekentalan = 40 poise pada (1150 °C)
8. Laju pelindihan = $2,3 \times 10^{-5} \text{ g.cm}^{-2}.\text{hari}^{-1}$ (statik, 100 °C, 24 jam)
9. Panas jenis = 0,21 kal.g⁻¹. °C⁻¹ (pada 1150 °C)
10. Kekuatan mekanik = 57 MPa.

Metode

Bahan pembentuk gelas dan limbah simulasi dicampur sampai homogen dan dipanaskan dalam tungku pada suhu 1150°C selama 2,5 jam sambil dilakukan pengadukan secara berkala. *Annealing* dilakukan selama 2 jam pada suhu 510°C dan selanjutnya dilakukan pendinginan dengan laju 16,7°C per jam.

Densitas gelas-limbah ditentukan secara *Archimedes* dengan menggunakan persamaan:

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

dimana:

- ρ : densitas gelas-limbah (g.cm⁻³)
- ρ_a : densitas udara (g.cm⁻³)
- ρ_w : densitas air (g.cm⁻³)
- W_a : massa gelas-limbah di udara (g)
- W_w : massa gelas-limbah di air (g)

Pengukuran koefisien muai panjang dilakukan dengan *dilatometer* dengan skema alat seperti ditunjukkan pada **Gambar 1**. Contoh gelas-limbah yang berbentuk balok dengan ukuran 5x5x(15 -20) mm dipanaskan dari suhu 30 sampai dengan 300°C dengan laju pemanasan 10°C/menit. Koefisien muai panjang (α) gelas-limbah dihitung dengan persamaan:

$$\alpha = \frac{\Delta L}{L_0(300-30)} + 5,61 \times 10^{-7} \quad (2)$$

dimana

- α : koefisien muai panjang contoh (°C⁻¹)
- L_0 : panjang contoh awal (mm)

L : panjang contoh setelah pemanasan (mm)
 $5,61 \times 10^{-7}$: Koefisien muai panjang kuarsa
 (sebagai koreksi)

Titik pelunakan adalah suhu dimana kekentalan gelas-limbah $10^{7,65}$ poise yang diukur dengan alat pengukur titik pelunakan. Alat berupa tungku berbentuk silinder dengan skema alat seperti terlihat pada **Gambar 2**. Contoh berdiameter 0,55 ~ 0,75 mm dan panjang 23,5 cm diletakkan secara tegak dalam tungku. Contoh dipanaskan dengan laju pemanasan 4 °C/menit. Contoh bertambah panjang dengan naiknya suhu. Penambahan panjang contoh akan terdeteksi sebagai pulsa. Jika pulsa yang dihasilkan lebih dari 5 dalam 1 menit, maka percobaan dihentikan. Hal ini sesuai dengan penambahan panjang 1 mm/menit dan kekentalan telah mencapai $10^{7,65}$ poise.

Laju pelindihan dilakukan menurut *Japan Industrial Standard* (JIS), yaitu laju pelindihan dipercepat dalam medium air. Contoh gelas-limbah dengan ukuran 250 ~ 420 μm dimasukkan dalam basket dan dipasang pada soklet untuk direfluks dengan air suling pada suhu 100 °C selama 24 jam dengan skema alat seperti terlihat pada **Gambar 3**. Laju pelindihan dihitung berdasarkan berat contoh yang hilang dengan persamaan:

$$L = \frac{W_0 - W}{S \cdot t} \quad (3)$$

dimana:

- L : laju pelindihan ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{hari}^{-1}$)
- S : luas permukaan contoh ($\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)
- W_0 : berat contoh sebelum dilindih (g)
- W : berat contoh sesudah dilindih (g)
- t : waktu pelindihan (hari)

HASIL DAN BAHASAN

Hasil percobaan dan perhitungan densitas sebagai fungsi kandungan limbah dapat dilihat pada **Gambar 4**. Dari gambar tersebut tampak bahwa dengan bertambahnya kandungan limbah, maka densitas meningkat. Hal ini karena dengan bertambahnya kandungan limbah berarti kandungan oksida-oksida dari unsur-unsur yang lebih berat bertambah, sedangkan oksida pembentuk gelas menjadi berkurang. Bertambahnya oksida dari unsur berat akan

menaikkan densitas gelas-limbah. Jika dibandingkan dengan densitas gelas-limbah standar ($2,74 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$) maka harga densitas gelas-limbah hasil penelitian tidak menunjukkan adanya penyimpangan.

Pengaruh kandungan limbah terhadap koefisien muai panjang dapat dilihat pada **Gambar 5**. Dari data tersebut terlihat bahwa peningkatan harga koefisien muai panjang sangat kecil (orde $10^{-7} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$), sehingga dikatakan bahwa bertambahnya kandungan limbah praktis tidak menaikkan harga koefisien muai panjang. Kenaikan koefisien muai panjang dipengaruhi oleh bertambahnya oksida alkali dan berkurangnya SiO_2 [3]. Sedangkan pada penelitian ini perubahan kandungan oksida alkali dan SiO_2 kecil, karenanya tidak mengakibatkan perubahan koefisien muai panjang. Koefisien muai panjang ini merupakan sifat yang penting untuk mengevaluasi ketahanan gelas-limbah terhadap kejutan panas. Harga koefisien muai panjang ini mendekati harga koefisien muai panjang gelas-limbah standar ($83 \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$).

Pengaruh kandungan limbah terhadap titik pelunakan ditunjukkan pada **Gambar 6**. Data tersebut menunjukkan bahwa titik pelunakan relatif tidak berubah dengan kenaikan kandungan limbah. Harga titik pelunakan juga dipengaruhi oleh jumlah kandungan SiO_2 . Dalam penelitian ini perbedaan jumlah kandungan SiO_2 kecil sehingga pengaruhnya tidak nyata terhadap harga titik pelunakan. Harga titik pelunakan ini relatif sama dengan harga titik pelunakan gelas - limbah standar (614 °C). Titik pelunakan menunjukkan suhu terendah dimana gelas masih dapat dibengkokkan dengan tangan.

Pengaruh kandungan limbah terhadap laju pelindihan gelas-limbah dapat dilihat pada **Gambar 7**. Dari gambar tersebut tampak bahwa terjadi kenaikan laju pelindihan dengan bertambahnya kandungan limbah. Hal ini karena dengan bertambahnya nuklida dalam limbah maka kerangka gelas menjadi penuh, sehingga nuklida mudah terlindi keluar. Harga laju pelindihan gelas-limbah hasil penelitian lebih kecil dari harga laju pelindihan gelas-limbah standar ($2,3 \times 10^{-5} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{hari}^{-1}$). Hasil penelitian di PNC Jepang menunjukkan bahwa untuk jenis gelas-limbah yang sama, fluktuasi harga laju pelindihan cukup besar. Hal ini karena harga

laju pelindihan dipengaruhi oleh banyak faktor. Yang perlu diperhatikan adalah semakin kecil harga laju pelindihan menunjukkan bahwa gelas - limbah mempunyai kualitas yang cukup baik. Laju pelindihan merupakan hal yang penting, mengingat tujuan akhir dari imobilisasi limbah adalah untuk memperkecil potensi terlepasnya radionuklida yang ada dalam limbah ke lingkungan.

SIMPULAN

Dari hasil penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa jumlah kandungan limbah dalam gelas-limbah berpengaruh terhadap beberapa sifat gelas-limbah. Kandungan limbah yang semakin tinggi akan meningkatkan densitas gelas-limbah. Sedangkan harga koefisien muai panjang dan titik pelunakan relatif tidak berubah. Laju pelindihan gelas-limbah dipengaruhi oleh kandungan limbah. Semakin tinggi kandungan limbah maka laju pelindihan akan meningkat. Semakin kecil harga laju pelindihan maka gelas-limbah yang dihasilkan mempunyai kualitas yang semakin baik. Data hasil penelitian tidak menunjukkan penyimpangan terhadap data standar. Hal ini karena jumlah kandungan limbah yang dipelajari masih dalam batas yang disarankan yaitu 20%~30%.

PUSTAKA

- [1]. IAEA., *Technical Report Series No. 187, Characteristic of Solidified High Level Waste Products*, Vienna, 1979.
- [2]. *PNC's Guide Books*, Jepang, 1980.
- [3]. HLAVAC, J.A., *The Technology of Glass and Ceramics*, Elsevier Scientific Publishing Company, New York, 1983.
- [4]. LAUDE, F., et al., *Convinement of Radioactivity in Glasses*, International Symposium on Management of Radioactive Waste from the Nuclear Fuel Cycle, Vienna, 1976.

- [5]. MENDEL, J.E., *The Fixation of High Level Waste in Glasses*, PNL Richland, PNL SA-129, Washington, 1985.
- [6]. ASM., *Hand Book, Material Characterization*, Vol. 10, 9th ed., USA, 1992.
- [7]. HERLAN MARTONO, *Gelas Sebagai Perangkap Limbah Radioaktif Beraktivitas Tinggi*, Thesis Magister, Universitas Indonesia, Jakarta, 1992.
- [8]. AISYAH, HERLAN, M., *Penentuan Devitrifikasi Gelas-Limbah Secara Mikroskopik*, Prosiding Pertemuan Dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan Dan Teknologi Nuklir, Yogyakarta, 1992.
- [9]. AISYAH, HERLAN, M., *Pengaruh Kandungan Silika, Alumina dan Feri Oksida Terhadap Sifat Kimia Gelas-Limbah*, Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan Dan Teknologi Nuklir, Yogyakarta, 1997 (belum terbit).

TANYA JAWAB

Faizal Riza

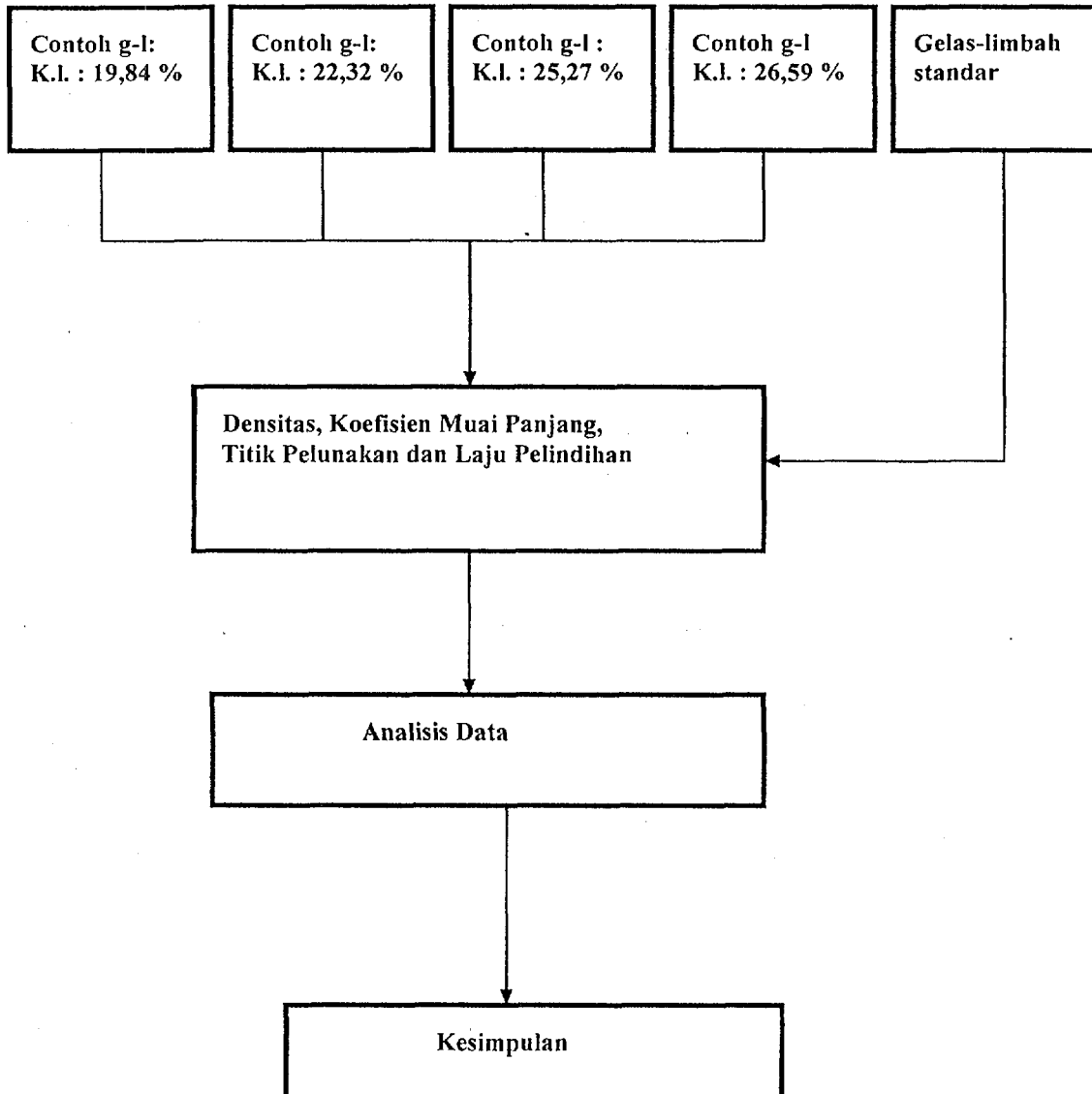
- Apakah gelas limbah yang digunakan mempunyai komposisi yang sama dengan gelas limbah standar ?
- Disamping komposisi apakah ada perbedaan antara gelas limbah yang digunakan dengan gelas limbah standar ?

Aisyah

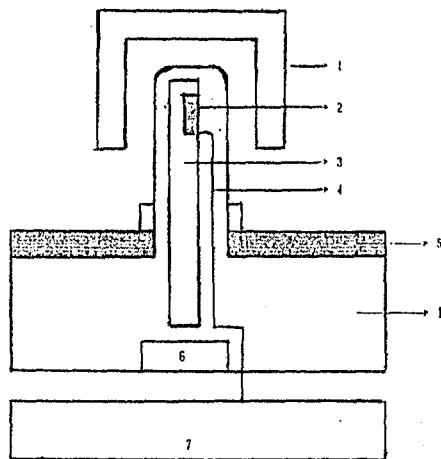
- Bahan pembentuk gelas yang digunakan sama dengan bahan pembentuk gelas standar, sedangkan komposisi limbahnya berlainan tergantung dari jumlah kandungan limbahnya.
- Disamping komposisi tidak ada perbedaan sangat mencolok dengan gelas standar. Perbedaan yang ada masih dalam batas dapat diterima yaitu sifat gelas limbah.

Tabel 1. Komposisi Gelas-Limbah Pada Berbagai Kandungan Limbah

Komposisi Gelas-Limbah (% berat)				
Oksida	Kandungan Limbah			
	19,84 %	22,32 %	25,27 %	26,29 %
SiO ₂	49,93	48,39	46,55	45,72
B ₂ O ₃	15,23	14,76	14,20	13,95
Al ₂ O ₃	5,37	5,20	5,01	4,92
Li ₂ O	3,21	3,11	2,99	2,94
CaO	3,21	3,11	2,99	2,94
ZnO	3,21	3,11	2,99	2,94
Na ₂ O	9,98	10,00	9,99	10,00
P ₂ O ₅	0,11	0,14	0,17	0,19
Fe ₂ O ₃	1,07	1,33	1,65	1,80
Cr ₂ O ₃	0,20	0,25	0,31	0,33
NiO	0,17	0,22	0,27	0,29
Gd ₂ O ₃	1,45	1,82	2,26	2,45
Sb ₂ O ₃	0,01	0,01	0,01	0,01
Rb ₂ O	0,07	0,08	0,10	0,11
Cs ₂ O	0,46	0,57	0,71	0,78
SrO	0,17	0,21	0,26	0,29
BaO	0,30	0,38	0,47	0,51
ZrO ₂	1,13	1,41	1,75	1,90
MoO ₃	0,85	1,06	1,31	1,43
MnO ₂	0,20	0,25	0,31	0,33
RuO ₂	0,49	0,61	0,75	0,82
Rh ₂ O ₃	0,09	0,11	0,13	0,15
PdO	0,26	0,32	0,40	0,44
Ag ₂ O	0,01	0,02	0,02	0,02
CdO	0,02	0,03	0,03	0,03
SnO ₂	0,02	0,02	0,03	0,03
SeO ₂	0,01	0,02	0,02	0,02
TeO ₂	0,12	0,12	0,15	0,17
Y ₂ O ₃	0,10	0,13	0,16	0,17
La ₂ O ₃	0,24	0,30	0,38	0,41
CeO ₂	1,13	1,41	1,76	1,89
Pr ₆ O ₁₁	0,23	0,28	0,35	0,38
Nd ₂ O ₃	0,81	1,00	1,25	1,35
Sm ₂ O ₃	0,14	0,18	0,22	0,24
Eu ₂ O ₃	0,03	0,04	0,05	0,05

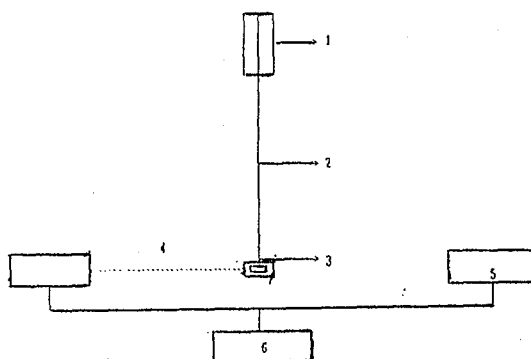


Gambar 1. Skema Metode Penelitian



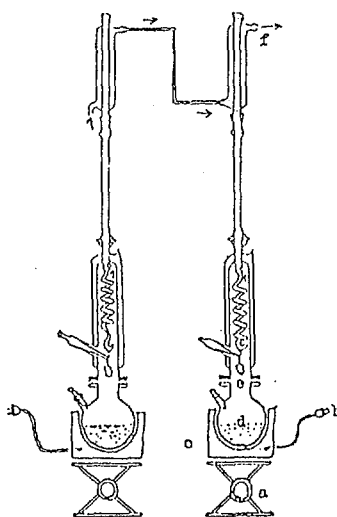
- Keterangan Gambar:
1. Tungku
 2. Contoh gelas-limbah
 3. Kuarsa
 4. Termokopel
 5. Pendingin
 6. Rangkaian Listrik
 7. Rekorder

Gambar 2. Skema Dilatometer



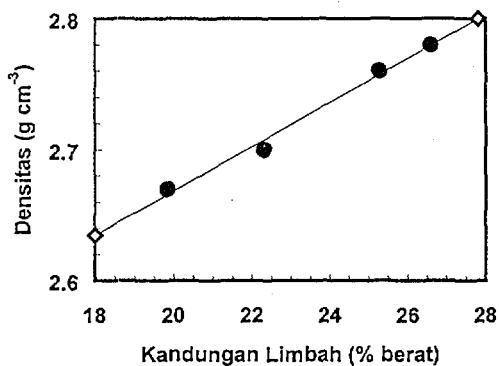
- Keterangan Gambar
1. Pemanas
 2. Contoh gelas-limbah
 3. Aluminium foil
 4. Laser
 5. Detektor
 6. Roda bergigi

Gambar 3. Skema Alat Pengukur Titik Pelunakan

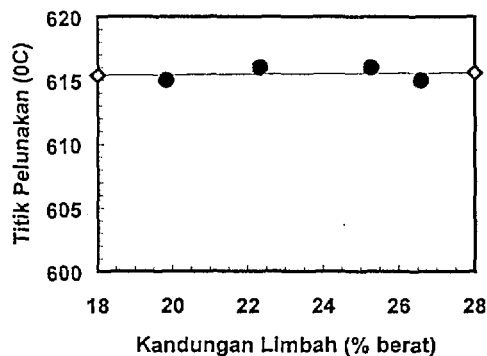


- Keterangan Gambar :
- a. Penyangga
 - b. Saklar
 - c. Mantel Pemanas
 - d. Labu Didih
 - e. Basket untuk contoh
 - f. Pendingin

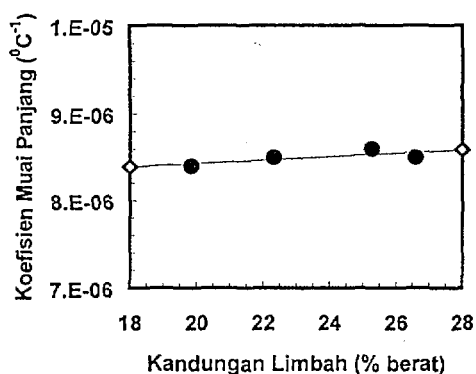
Gambar 4. Alat Uji Pelindihan



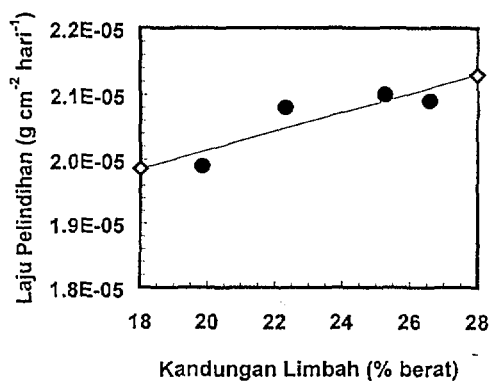
Gambar 4. Pengaruh Kandungan Limbah Terhadap Densitas Gelas-Limbah.



Gambar 6. Pengaruh Kandungan Limbah Terhadap Titik Pelunakan Gelas-Limbah.



Gambar 5. Pengaruh Kandungan Limbah Terhadap Koefisien Muai Panjang Gelas-Limbah.



Gambar 7. Pengaruh Kandungan Limbah Terhadap Laju Pelindihan Gelas-Limbah.