

Urania

Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir

Beranda jurnal: <https://ejournal.brin.go.id/urania>



PENGOLAHAN LIMBAH RADIOAKTIF CAIR AKTIVITAS TINGGI MELALUI VITRIFIKASI GELAS BOROSILIKAT

Wati¹, Jaka Rachmadetin¹, Yuli Purwanto¹, Dwi Luhur Ibnu Saputra¹,
Ratiko¹, Aisyah¹, Pungky Ayu Artiani¹

¹Pusat Riset Teknologi Bahan Nuklir Dan Limbah Radioaktif – BRIN
Kawasan Sains dan Teknologi B.J Habibie Gd. 720, Serpong, Tangerang Selatan, Banten 15314
e-mail: wati003@brin.go.id

(Naskah diterima: 09–09–2024, Naskah direvisi: 19–11–2024, Naskah disetujui: 21–11–2024)

ABSTRAK.

PENGOLAHAN LIMBAH RADIOAKTIF CAIR AKTIVITAS TINGGI MELALUI VITRIFIKASI GELAS BOROSILIKAT. Limbah radioaktif cair aktivitas tinggi (LRCAT) di Indonesia saat ini berasal dari proses produksi radioisotop Mo⁹⁹. Sampai saat ini belum dilakukan pengolahan limbah uranium dari produksi radioisotop ⁹⁹Mo. Limbah uranium masih tersimpan dalam *hot cell* menunggu kesiapan metode dan teknologi serta fasilitas pengolahan. Beberapa negara telah menerapkan proses vitrifikasi untuk mengolah LRCAT. Beberapa jenis gelas telah dikembangkan untuk vitrifikasi LRCAT yaitu gelas alumina silikat, gelas fosfat, gelas borosilikat dan gelas keramik. Gelas borosilikat adalah jenis gelas yang paling ideal untuk digunakan karena proses pembuatannya lebih sederhana dan hasil vitrifikasinya memiliki ketahanan kimia dan ketahanan fisika serta kandungan limbah yang tinggi. Tujuan penelitian untuk mengetahui komposisi bahan pembentuk gelas borosilikat yang sesuai untuk imobilisasi LRCAT dari produksi radioisotop Mo⁹⁹ melalui proses vitrifikasi sehingga diperoleh komposisi gelas-limbah yang memenuhi persyaratan. Persyaratan pemilihan matriks untuk vitrifikasi LRCAT antara lain proses pembuatan yang mudah dan praktis, kandungan limbahnya tinggi, memiliki ketahanan kimia, kestabilan terhadap radiasi, dan kestabilan panas yang tinggi serta integritas fisik yang baik dan stabil dalam jangka panjang. Proses vitrifikasi menggunakan bahan pembentuk gelas borosilikat dengan dua komposisi yang berbeda. Proses vitrifikasi dilakukan pada temperatur 1150 °C selama 2,5 jam kemudian dilakukan pendinginan hingga temperatur kamar. Karakterisasi gelas-limbah dilakukan dengan uji pelindian dan difraktometer sinar-X (XRD). Gelas-limbah dengan bahan pembentuk gelas GF-1 dengan berbagai kandungan limbah tidak dapat dilelehkan pada temperatur 1150 °C. Proses vitrifikasinya tidak berhasil dan tidak terjadi lelehan gelas-limbah. Bahan pembentuk gelas GF-1 tidak dapat digunakan untuk vitrifikasi LRCAT dan tidak dilakukan uji pelindian. Hal ini berkaitan dengan penggunaannya dalam skala industri, yaitu jika temperatur pelelehan lebih tinggi dari 1150 °C maka laju korosi *refractory* (bata tahan api) sangat tinggi sehingga umur *melter* lebih pendek. Hal ini akan lebih banyak menimbulkan limbah radioaktif padat (limbah sekunder). Selain itu, temperatur pelelehan yang tinggi akan menimbulkan gas yang lebih banyak sehingga penanganan gasnya lebih kompleks. Sedangkan untuk bahan pembentuk gelas GF-2 dapat dilelehkan pada temperatur 1150 °C. Hasil uji pelindian dari semua komposisi gelas-limbah GF-2 yang dibuat diperoleh berkisar antara $0,79 \times 10^{-4}$ gram.cm⁻².hari⁻¹ sampai dengan $2,25 \times 10^{-4}$ gram.cm⁻².hari⁻¹ Persyaratan laju pelindian untuk gelas borosilikat standar PNC Jepang adalah $2,30 \times 10^{-5}$ gram.cm⁻².hari⁻¹ sedangkan berdasarkan *Pacific Northwest National Laboratory* (PNNL) adalah $10^{-4} - 10^{-7}$ gram.cm⁻².hari⁻¹. Berdasarkan hasil karakterisasi ketahanan kimia (uji lindi), integritas fisik dan besarnya kandungan limbah maka komposisi gelas-limbah GF-2 dengan kandungan limbah 20 % berat memberikan karakteristik paling optimum.

Kata kunci: vitrifikasi, limbah cair aktivitas tinggi, gelas borosilikat.

ABSTRACT

PROCESSING OF HIGH ACTIVITY LIQUID RADIOACTIVE WASTE THROUGH BOROSILICATE GLASS VITRIFICATION. High-level liquid radioactive waste in Indonesia is presently generated from the ^{99}Mo radioisotope production process. Until present, the treatment of the waste has not been carried out and it is still stored in the hot cell awaiting for the establishment of the methods, technology and processing facilities. Several countries have implemented a vitrification process to process LRCAT. Several types of glass have been developed for LRCAT vitrification, namely alumina silicate glass, phosphate glass, borosilicate glass and ceramic glass. Borosilicate glass is the most ideal type of glass to use. This is because the process of making borosilicate glass is simpler and the results of vitrification of borosilicate waste-glass have chemical resistance and physical resistance as well as high waste content. The objective of this research is to determine the composition of borosilicate glass-forming materials through a vitrification process suitable for immobilization of high-level waste from ^{99}Mo production that meets the requirements of the final waste form. Several requirements in choosing a matrix for LRCAT vitrification are: easy and practical manufacturing process, high waste content, high chemical resistance, high radiation stability, high heat stability, good physical integrity and long-term stability. The vitrification process uses borosilicate glass forming materials with two different compositions. The vitrification process was carried out at a temperature of 1150 °C for 2.5 hours then cooled to room temperature. Glass characterization is carried out by leaching test and X-ray diffractometer (XRD). Waste glass with GF-1 glass forming material with various waste contents cannot be melted at a temperature of 1150 °C. The vitrification process was unsuccessful and no melting of the waste-glass occurred. The glass forming material GF-1 cannot be used for LRCAT vitrification and no further research was carried out. This is related to its use on an industrial scale, if the melting temperature is higher than 1150 °C, then the refractory corrosion rate is very high so the melter life is shorter. This will generate more solid radioactive waste (secondary waste). In addition, high melting temperature will produce more gas so that gas handling is more complex. Meanwhile, glass material with GF-2 glass forming material can be melted at a temperature of 1150 °C. GF-1 waste-glass were not leached test because the vitrification process was unsuccessful and no melting of the waste-glass occurred. The leaching test results of all GF-2 glass-waste compositions that were made ranged from $0.79 \times 10^{-4} \text{ gram.cm}^{-2}.\text{day}^{-1}$ to $2.25 \times 10^{-4} \text{ gram.cm}^{-2}.\text{day}^{-1}$. The leach rate requirement for PNC Japan standard borosilicate glass is $2.30 \times 10^{-5} \text{ gram.cm}^{-2}.\text{day}^{-1}$ and based on Pacific Northwest National Laboratory (PNNL) is $10^{-4} - 10^{-7} \text{ gram.cm}^{-2}.\text{day}^{-1}$. Based on the results of chemical resistance characterization (leachate test) and physical integrity, the composition of GF-2 glass-waste with a waste content of 20% by weight provides the most optimal characteristics.

Keywords: vitrification, high activity liquid radioactive waste, borosilicate glass

PENDAHULUAN

Limbah radioaktif cair aktivitas tinggi (LRCAT) umumnya ditimbulkan dari proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas (BBNB) [1]–[3]. Proses olah ulang bertujuan untuk mengambil sisa uranium yang tidak terbakar dan plutonium yang terjadi dalam BBNB. Pada proses olah ulang dilakukan pemisahan uranium, plutonium dan unsur aktinida yang lain dari hasil belah. Hasil pemisahan adalah larutan yang mengandung U, Pu, unsur aktinida lain dan sedikit hasil belah yang akan diproses lebih lanjut untuk memungut U dan Pu. Sedangkan limbahnya adalah larutan yang banyak mengandung hasil belah dan sedikit aktinida serta mempunyai keasaman yang tinggi antara 6 – 8 M merupakan LRCAT [4].

Strategi Indonesia dalam daur bahan bakar nuklir adalah daur terbuka, yaitu bahan bakar nuklir bekas tidak diproses ulang, sehingga sebagai limbah aktivitas tinggi adalah bahan bakar nuklir bekas itu sendiri dan akan dikirim ke penyimpanan geologi tanah dalam [5]. Meskipun Indonesia menentukan opsi daur bahan bakar terbuka, namun saat ini di Indonesia (Badan Riset Dan Inovasi Nasional) terdapat limbah radioaktif yang memiliki komposisi mirip dengan LRCAT proses olah ulang yaitu LRCAT dari proses produksi radioisotop ^{99}Mo dari PT. Inuki (dulu bernama PT. Batan Teknologi). Isotop ^{99}Mo dibuat dari iradiasi target uranium diperkaya (92,7 % ^{235}U) dalam reaktor.

Limbah yang ditimbulkan dari produksi radioisotop ^{99}Mo tersebut memiliki paparan radiasi yang besar sehingga komposisinya diprediksi menggunakan *computer code* ORIGEN 2 berdasarkan atas pengkayaan uranium dalam target, lama iradiasi, besarnya daya reaktor dan lainnya [6]. Limbah ini diperkirakan banyak mengandung uranium (campuran ^{235}U dan ^{238}U) dan hasil belah seperti ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{85}Kr , ^{106}Ru dan lainnya serta mengandung aktinida seperti ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu dan lainnya [6]–[8].

Sampai saat ini belum dilakukan pengolahan limbah uranium dari produksi radioisotop ^{99}Mo tersebut. Untuk sementara limbah ini masih tersimpan dalam *hot cell* menunggu kesiapan metode dan teknologi serta fasilitas pengolahannya. Oleh karena itu penelitian ini sangat penting dan urgen guna penyelesaian masalah limbah uranium yang ditimbulkan dari produksi radioisotop ^{99}Mo .

Komponen utama LRCAT adalah hasil belah/produk fisi (*fission product*) dan

sedikit aktinida [9], [10]. Meskipun aktinida prosentasinya kecil, tetapi limbah ini tingkat radioaktivitasnya tinggi dan waktu paronya sangat panjang sehingga membutuhkan waktu yang sangat lama untuk meluruh sampai limbah tersebut mencapai tingkat radioaktivitas yang aman. Resiko radiologik penyimpanan jangka panjang berasal dari aktinida umur panjang, produk fisi ^{99}Tc , ^{129}I , ^{90}Sr dan ^{137}Cs [6]–[9]. Oleh karena itu pengolahan LRCAT harus dilakukan dengan baik dan benar agar tidak menimbulkan dampak radiologis bagi manusia dan lingkungan baik untuk generasi saat ini maupun generasi yang akan datang.

Pengolahan LRCAT dilakukan dengan bahan gelas, yang dikenal dengan proses vitrifikasi. Banyak negara seperti Amerika Serikat, Inggris, Jepang, China dan India telah menerapkan proses vitrifikasi untuk mengolah LRCAT [10]–[13]. Beberapa jenis gelas telah dikembangkan untuk vitrifikasi LRCAT antara lain gelas alumina silikat, gelas fosfat, gelas borosilikat dan gelas keramik. Gelas keramik dapat dihasilkan dari lelehan gelas borosilikat dengan pembentukan kristalisasi. Ketahanan mekanik dan stabilitas panas gelas keramik relatif lebih baik daripada gelas borosilikat, tetapi ketahanan kimianya relatif lebih rendah dibandingkan gelas borosilikat. Gelas aluminosilikat sudah tidak dikembangkan lagi karena kandungan limbahnya rendah sekitar 10 % berat dan temperatur pembentukannya tinggi sekitar 1350 °C, sedangkan gelas fosfat bersifat korosif dan mengalami devitrifikasi pada temperatur yang relatif rendah yaitu sekitar 400 °C. Gelas borosilikat adalah jenis gelas yang paling ideal untuk digunakan. Hal ini karena proses pembuatan gelas borosilikat lebih sederhana dan gelas limbah borosilikat hasil vitrifikasi mempunyai ketahanan kimia dan ketahanan fisika serta kandungan limbah (*waste loading*) yang tinggi [14]–[16]. Ada tiga kendala yang dihadapi dalam pengembangan teknologi vitrifikasi yaitu harga bahan kimia yang mahal, proses yang sulit karena melibatkan temperatur tinggi, dan tuntutan karakteristik gelas-limbah hasil vitrifikasi yang harus memenuhi persyaratan [14],[16],[17]. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui komposisi gelas borosilikat yang sesuai untuk imobilisasi LRCAT dari produksi radioisotop ^{99}Mo melalui proses vitrifikasi sehingga diperoleh komposisi gelas-limbah yang memenuhi persyaratan. Proses vitrifikasi dilakukan menggunakan bahan pembentuk

glas borosilikat yang mempunyai dua komposisi berbeda. Proses vitrifikasi dilakukan pada temperatur 1150 °C selama 2,5 jam kemudian dilakukan pendinginan sampai temperatur kamar. Karakterisasi gelas-limbah dilakukan dengan uji pelindian untuk mengetahui ketahanan kimianya dan menggunakan difraktometer sinar-X untuk melihat pola difraksinya. Komposisi gelas-limbah dengan nilai laju pelindian yang rendah merupakan komposisi *glass frit* terpilih).

Adanya kendala harga bahan kimia yang mahal maka diperlukan komposisi bahan kimia yang sesuai dan optimum agar proses vitrifikasi menjadi lebih ekonomis. Oleh karena itu penelitian ini juga bertujuan untuk menentukan komposisi bahan pembentuk gelas (*glass frit*) yang optimum yang dapat digunakan untuk pengolahan LRCAT dan mempunyai temperatur peleburan gelas-limbah \pm 1150 °C. Hasil vitrifikasi harus memiliki ketahanan kimia yang baik agar terhindar dari devitrifikasi yang akan menyebabkan peningkatan lepasnya radionuklida ke lingkungan.

Teori

Pengolahan LRCAT meliputi dua tahap, yaitu reduksi volume dan imobilisasi. Reduksi volume dapat dilakukan dengan evaporasi, sedangkan imobilisasi dilakukan dengan matriks padat yaitu bahan gelas borosilikat. Proses imobilisasi dengan menggunakan matriks gelas sering disebut vitrifikasi. Tujuan vitrifikasi LRCAT adalah untuk mengikat radionuklida dalam bahan matriks gelas borosilikat, sehingga tidak mudah terlindih atau lepas ke lingkungan apabila gelas-limbah hasil vitrifikasi kontak dengan air tanah pada tempat penyimpanan lestari atau *disposal*.

a. Pengolahan Limbah Radioaktif Cair Aktivitas Tinggi Secara Vitrifikasi

Vitrifikasi adalah imobilisasi LRCAT yang dilakukan dengan mencampurkan bahan pembentuk gelas dengan limbah yang dilelehkan pada temperatur tinggi, kemudian didinginkan sehingga terbentuk gelas. Bahan gelas yang digunakan yaitu gelas borosilikat. Gelas borosilikat yang mengandung LRCAT komposisinya ditentukan sehingga temperatur pembuatannya (titik lelehnya) berkisar 1150 °C [18].

Vitrifikasi skala laboratorium dilakukan dengan cara mencampur bahan oksida limbah dan *glass frit* dalam cawan porselin, kemudian dilelehkan dalam *crucible* platina (Pt) pada temperatur 1150 °C selama 2 jam. Lelehan gelas-limbah dipindahkan ke dalam *crucibel* grafit untuk proses *aniling* pada 510 °C dan selanjutnya pendinginan dilakukan dengan laju 16,70 °C/jam [19].

b. Karakteristik Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi

Karakteristik gelas-limbah hasil vitrifikasi meliputi densitas, *thermal expansion* (muai panjang), *transition point* (T_g = titik transformasi), *constriction point* (T_c), titik pelunakan, tahanan listrik, kekentalan, laju pelindihan, devitrifikasi, dan volatilitas ditunjukkan pada Tabel 1 [19].

Penentuan karakteristik gelas-limbah hasil vitrifikasi sangat penting digunakan untuk disain dan operasi *melter*, disain *canister*, transportasi, penyimpanan sementara dan *disposal*. Perubahan salah satu unsur tertentu dapat mengakibatkan perubahan karakteristik gelas limbah yang dihasilkan.

Tabel 1. Komposisi bahan kimia *glass frits* standar dan karakteristik gelas-limbah standar [19].

Glass Frits Standar		Karakteristik Gelas Limbah Standar	
Oksida	% Berat	Karakteristik	Besaran
SiO ₂	62,3	Densitas	2,73 g.cm ⁻³
B ₂ O ₃	19	Koefisien muai panjang	83 x 10 ⁻⁷ °C ⁻¹ (pada 30 – 300 °C)
Al ₂ O ₃	6,7	Titik transformasi	501 °C
LiO ₂	4,0	Konduktivitas panas	0,87 k.kal.m ⁻² .jam ⁻¹ . °C ⁻¹ (pada 100 °C)
CaO	4,0	Titik pelunakan	614 °C
ZnO	4,0	Tahanan listrik	4,8 ohm.cm (pada 1150 °C)
		Kekentalan	40 poise (pada 1150 °C)
		Laju pelindihan	2,3 x 10 ⁻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

Pengukuran densitas gelas-limbah digunakan untuk perancangan *melter*, *canister*, sistem transportasi dan penyimpanan. Pada umumnya densitas gelas-limbah berkisar antara 2,6 – 3,0 g/cm³. Nilai densitas gelas-limbah tersebut dipengaruhi oleh komposisi dan temperatur. Semakin tinggi persentase berat limbah dalam gelas, maka densitas gelas-limbah semakin besar. Hal ini karena makin bertambahnya persentase unsur-unsur berat dalam gelas-limbah. Untuk perancangan *melter*, *canister*, sistem transportasi, dan penyimpanan digunakan data densitas pada temperatur kamar.

Laju pelindian digunakan untuk menggambarkan kemampuan gelas limbah hasil vitrifikasi terhadap pelarutan air. Penentuan laju pelindian sangat penting untuk mengevaluasi hasil proses vitrifikasi serta untuk mengevaluasi jumlah bahan radioaktif yang terlindi per satuan waktu per satuan luas dari jumlah limbah tertentu yang diimobilisasi. Laju pelindian merupakan salah satu kriteria persyaratan gelas limbah hasil vitrifikasi yang sangat penting karena tujuan akhir imobilisasi limbah adalah memperkecil potensi terlepasnya radionuklida yang ada dalam limbah itu ke lingkungan. Laju pelindian dalam hal ini dapat diasumsikan sebagai korosi, yaitu lepasnya unsur kerangka gelas ditambah laju pelindiannya sendiri, yaitu lepasnya sejumlah unsur limbah dari gelas limbah hasil vitrifikasi.

Metode penentuan laju pelindian yang dilaksanakan pada setiap instalasi nuklir

berbeda-beda. Pada dasarnya untuk mengetahui harga laju pelindian ada dua metoda, yaitu test laju pelindian dipercepat dan test laju pelindian jangka panjang. Test laju pelindian dipercepat digunakan pada penelitian jangka pendek untuk memeriksa cuplikan serta meneliti efek dari beberapa variabel, antara lain untuk membandingkan ketahanan kimia dari berbagai komposisi gelas-limbah, mempelajari pengaruh khusus, misalnya devitrifikasi, efek radiasi alfa, dan lain-lain, serta mempelajari pengaruh temperatur, pH, waktu dan tekanan terhadap laju pelindian. Uji laju pelindian dipercepat menggunakan temperatur yang lebih tinggi untuk mempercepat reaksi pelindian, biasanya dilakukan dengan mengekstrak contoh dalam alat soxhlet. Sedang test laju pelindian jangka panjang dilakukan dengan membuat simulasi kondisi lingkungan pada tempat *disposal* (penyimpanan). Data yang diperoleh digunakan sebagai dasar untuk memperkirakan perilaku gelas-limbah hasil vitrifikasi dalam jangka panjang.

METODOLOGI

a. Menentukan Komposisi Limbah Radioaktif Cair Aktivitas Tinggi :

Konsentrasi radionuklida sebagai fungsi waktu dalam teras reaktor nuklir dapat dinyatakan dengan persamaan 1 yang merupakan persamaan diferensial non homogen orde satu [20].

$$\frac{dx_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \lambda_j \chi_j - \phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k \chi_k - (\lambda_i + \phi \sigma_i + r_i) \chi_i + F_i, \quad i = 1, \dots, N \quad (1)$$

dengan:

χ_i = kerapatan atom nuklida i (atom/cm³)

N = jumlah nuklida (atom)
fraksi disintegrasi radioaktif,

l_{ij} = pembentukan nuklida j menjadi nuklida i (fraksional)

λ_i = konstanta peluruhan radioaktif nuklida i (detik⁻¹)

ϕ = fluks neutron rata-rata (neutron/cm²detik)

f_{ik} = fraksi serapan neutron nuklida k menjadi nuklida i (fraksional)

σ_k = spektrum serapan neutron rerata nuklida k (barn)

r_i = laju *removal* nuklida i secara kontinyu dari sistem (atom/detik)

F_i = laju umpan nuklida i secara kontinyu (atom/detik)

Penelitian ini menggunakan LRCAT dari produksi radioisotop Mo⁹⁹ yang komposisinya diprediksi menggunakan *computer code* ORIGEN 2.1. Parameter input yang digunakan berdasarkan data satu *batch* proses produksi Mo⁹⁹ di PT. Batan Teknologi (INUKI) yang dilakukan dengan target uranium diperkaya (HEU) U₃O₈ seberat 6,094 gram dalam bentuk serbuk yang dilarutkan dalam HNO₃ pekat dengan pengkayaan uranium 92,7% yang diiradiasi dalam reaktor G.A. Siwabessy selama 96 jam pada daya reaktor 15 MW dengan fluks neutron termal sebesar 1,12x10¹⁴ n/cm².detik. Jumlah radionuklida dihitung setelah proses ekstraksi target dan pendinginan selama 1 tahun [8], [21]. Komposisi limbah dapat dilihat pada Tabel 2.

Tabel 2. Hasil perhitungan komposisi LRCAT dari proses produksi Mo^{99} menggunakan *computer code* ORIGIN 2.1 [8],[21].

Oksida	%berat	Oksida	%berat
Na ₂ O	16,48	ZrO ₂	9,55
Rb ₂ O	0,56	Ag ₂ O	0,11
Cs ₂ O	3,91	CdO	0,18
SrO	1,45	SnO	0,15
BaO	2,58	Sb ₂ O ₃	0,04
La ₂ O ₃	2,05	Nd ₂ O ₃	6,77
Y ₂ O ₃	0,85	Pm ₂ O ₃	0,07
Cr ₂ O ₃	1,68	CeO ₂	4,19
MoO ₃	7,19	UO ₂	3,81
Tc ₂ O ₇	1,67	NpO ₂	0,81
Fe ₂ O ₃	9,05	Am ₂ O ₃	0,52
RuO ₂	4,12	PuO ₂	0,14
Rh ₂ O ₃	0,74	Cm ₂ O ₃	0,05
NiO	1,47	Pr ₆ O ₁₁	1,93
PdO	2,20	Sm ₂ O ₃	1,22
P ₂ O ₅	0,95	Gd ₂ O ₃	12,32
SeO ₂	0,11	Eu ₂ O ₃	0,24
TeO ₂	0,84		

Hasil prediksi menggunakan *computer code* ORIGIN 2.1 ada sekitar 35 oksida yang terkandung dalam LRCAT.

Berdasarkan aspek keselamatan, maka pada penelitian ini digunakan LRCAT simulasi dengan kandungan limbah yang mewakili LRCAT yang sesungguhnya. Berdasarkan sifat kimia unsur-unsur di dalam Tabel Periodik maka pembuatan LRCAT simulasi dilakukan pendekatan dengan mengganti unsur-unsur aktif hasil prediksi menggunakan *computer code* ORIGIN 2 seperti yang ditunjukkan dalam Tabel 2 di atas dengan unsur non aktif yang jenisnya sama dan jika tidak ada didekati dengan mengganti unsur lain yang sifat kimianya sama [17]. Dalam hal ini penggantian dengan unsur lain yang mempunyai sifat kimia yang sama tersebut dilakukan dengan unsur yang terdapat dalam satu golongan dengan unsur yang diganti pada Tabel Periodik unsur-unsur. Unsur pengganti mempunyai sifat kimia yang sama dengan unsur yang diganti, karena berada dalam satu golongan. Dalam penelitian ini, maka unsur rubidium (Rb) dan cesium (Cs) diganti dengan natrium (Na); unsur yttrium (Y) diganti dengan lantanum (La); unsur molibdenum (Mo) diganti dengan kromium (Cr); unsur teknesium (Tc) diganti dengan mangan (Mn); unsur rutenium (Ru) diganti dengan besi (Fe); unsur paladium (Pd) diganti dengan nikel (Ni); unsur prometium

(Pm) diganti dengan neodimium (Nd) dan unsur aktinida (U, Np, Am, Pu, Cm, Pr, Sm, Gd, Eu) diganti dengan cerium (Ce).

Berdasarkan sifat fisika (titik didih) unsur-unsur di dalam Tabel Periodik maka unsur yang berada dalam satu golongan, semakin ke bawah akan mempunyai titik didih yang lebih besar, namun perubahan titik didih campuran secara keseluruhan tidak tinggi karena unsur yang diganti jenis dan jumlahnya sedikit. Komposisi LRCAT simulasi yang digunakan dalam penelitian dapat dilihat pada Tabel 3.

b. Menentukan Komposisi Bahan Pembentuk Gelas (*Glass Frit*):

Ada dua komposisi bahan pembentuk gelas (*glass frit*) yang digunakan dalam penelitian ini yaitu GF-1 dan GF-2. Komposisi GF-1 dalam prosen berat adalah : SiO₂ 56,70 ; B₂O₃ 19,30 ; Na₂O 3,00 ; K₂O 6,00 ; ZnO 7,50 ; CaO 3,00 dan TiO₂ 4,50 % berat. Komposisi untuk GF-2 adalah : SiO₂ 58,00 ; B₂O₃ 21,80 ; CaO 7,80 ; Na₂O 9,67 dan Al₂O₃ 2,73 %berat.

Dalam percobaan ini kandungan limbah ditentukan sebesar : 10, 20, 30 dan 40 %berat. Gelas-limbah dengan kandungan limbah 10 %berat dibuat dengan cara mencampur 90 %berat *glass frit* dan 10 %berat LRCAT simulasi (yang terdiri dari berbagai unsur limbah) sehingga total komposisi keduanya adalah 100 %berat. Gelas-limbah dengan kandungan limbah 20 %berat dibuat dengan cara mencampur 80 %berat *glass frit* dan 20 %berat LRCAT simulasi (limbah) sehingga total komposisi keduanya adalah 100 %berat. Demikian seterusnya untuk komposisi gelas-limbah dengan kandungan limbah 30 dan 40% berat dilakukan dengan cara yang sama.

Pada proses temperatur tinggi, cesium (Cs¹³⁷) merupakan unsur yang paling mudah menguap. Penguapan Cs¹³⁷ pada 800 °C selama 4 jam adalah 80 % [22]. Data penguapan digunakan untuk menentukan besarnya radionuklida yang terlepas melalui penguapan. Pelepasan radionuklida melalui penguapan dapat terjadi bila temperatur gelas-limbah tinggi. Semakin tinggi temperatur, kekentalan gelas limbah semakin rendah, sehingga kecenderungan lepasnya radionuklida Cs¹³⁷ melalui penguapan semakin besar. Dalam penentuan komposisi gelas-limbah dengan bahan pembentuk gelas GF-1, penambahan TiO₂ digunakan untuk mengurangi penguapan Cs¹³⁷ sehingga akan

membentuk Cs_2TiO_3 . Adanya TiO_2 akan mengurangi pelepasan Cs^{137} pada saat proses peleburan gelas-limbah. Komposisi

glas-limbah untuk GF-1 dan GF-2 dapat dilihat pada Tabel 4 dan 5.

Tabel 3. Komposisi LRCAT simulasi yang digunakan dalam percobaan [17]

No.	Oksida Limbah Hasil Prediksi Origen 2.1	%berat	Oksida Pengganti	%berat
1	Na_2O	16,48		
2	Rb_2O	0,56	Na_2O	20,95
3	Cs_2O	3,91		
4	SrO	1,45	SrO	1,45
5	BaO	2,58	BaO	2,58
6	La_2O_3	2,05		
7	Y_2O_3	0,85	La_2O_3	2,90
8	Cr_2O_3	1,68		
9	MoO_3	7,19	Cr_2O_3	8,87
10	Tc_2O_7	1,67	MnO_2	1,67
11	Fe_2O_3	9,05		
12	RuO_2	4,12	Fe_2O_3	13,17
13	Rh_2O_3	0,74	Rh_2O_3	0,74
14	NiO	1,47		
15	PdO	2,20	NiO	3,67
16	P_2O_5	0,95	P_2O_5	0,95
17	SeO_2	0,11	SeO_2	0,11
18	TeO_2	0,84	TeO_2	0,84
19	ZrO_2	9,55	ZrO_2	9,55
20	Ag_2O	0,11	Ag_2O	0,11
21	CdO	0,18	CdO	0,18
22	SnO	0,15	SnO	0,15
23	Sb_2O_3	0,04	Sb_2O_3	0,04
24	Nd_2O_3	6,77		
25	Pm_2O_3	0,07	Nd_2O_3	6,84
26	CeO_2	4,19		
27	UO_2	3,81		
28	NpO_2	0,81		
29	Am_2O_3	0,52		
30	PuO_2	0,14		
31	Cm_2O_3	0,05	CeO_2	25,23
32	Pr_6O_{11}	1,93		
33	Sm_2O_3	1,22		
34	Gd_2O_3	12,32		
35	Eu_2O_3	0,24		
Total		100%		100%

Unsur Na menurunkan temperatur pembentukan dan kekentalan gelas limbah, tetapi menaikkan laju pelindian. Oksida Na_2O adalah salah satu penyusun *glass frit*. Oksida Na_2O juga ada dalam LRCAT. Dalam penentuan komposisi gelas-limbah dengan bahan pembentuk gelas GF-2, jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* dan Na_2O dari LRCAT ditentukan sebesar 10 %berat. Jika jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* dan LRCAT jumlahnya melebihi 10 %berat maka kelebihan dari oksida Na_2O tersebut diganti dengan CaO . Dalam hal ini oksida Na_2O dari

glass frit jumlahnya dikurangi menyesuaikan dengan besarnya oksida Na_2O yang ada dalam LRCAT sehingga total keduanya tidak melebihi 10 % berat. Kelebihan oksida Na_2O tersebut diganti dengan CaO .

Berdasarkan data yang terdapat pada Tabel 5, *glass frit* GF-2 dengan kandungan limbah 10 %berat, jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* sebesar 8,70 %berat dan jumlah oksida Na_2O dalam LRCAT sebesar 2,09 %berat sehingga total keduanya sebesar 10,79 %berat. Karena jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* dan LRCAT jumlahnya melebihi

10 %berat maka jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* dikurangi sebesar 0,79 %berat. Jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* yang semula sebesar 8,70 %berat dikurangi

sebesar 0,79 %berat sehingga menjadi sebesar 7,91 %berat. Kelebihan sebesar 0,79 %berat tersebut diganti dengan CaO dan ditambahkan ke dalam gelas-limbah tersebut.

Tabel 4. Komposisi gelas-limbah untuk GF-1.

Nomor	Oksida	Komposisi (% berat)				
		100%	90%	80%	70%	60%
Glass Frit GF-1		100%	90%	80%	70%	60%
1	SiO_2	56,70	51,03	45,36	39,69	34,02
2	B_2O_3	19,30	17,37	15,52	13,58	11,67
3	Na_2O	3,00	2,70	2,40	2,10	1,80
4	K_2O	6,00	5,40	4,80	4,20	3,60
5	ZnO	7,50	6,75	6,00	5,25	4,50
6	CaO	3,00	2,70	2,40	2,10	1,80
7	TiO_2	4,50	4,05	3,60	3,15	2,70
LRCAT Simulasi		100%	10%	20%	30%	40%
1	Na_2O	20,95	2,09	4,18	6,27	8,36
2	SrO	1,45	0,14	0,28	0,42	0,56
3	BaO	2,58	0,26	0,52	0,78	1,04
4	La_2O_3	2,90	0,29	0,58	0,87	1,16
5	Cr_2O_3	8,87	0,89	1,78	2,67	3,56
6	MnO_2	1,67	0,17	0,34	0,51	0,68
7	Fe_2O_3	13,17	1,32	2,64	3,96	5,28
8	Rh_2O_3	0,74	0,07	0,14	0,21	0,28
9	NiO	3,67	0,37	0,74	1,11	1,48
10	P_2O_5	0,95	0,10	0,20	0,30	0,40
11	SeO_2	0,11	0,01	0,02	0,03	0,04
12	TeO_2	0,84	0,08	0,16	0,24	0,32
13	ZrO_2	9,55	0,96	1,92	2,88	3,84
14	Ag_2O	0,11	0,01	0,02	0,03	0,04
15	CdO	0,18	0,02	0,04	0,06	0,08
16	SnO	0,15	0,01	0,02	0,03	0,04
17	Sb_2O_3	0,04	-	-	-	-
18	Nd_2O_3	6,84	0,69	1,38	2,07	2,76
19	CeO_2	25,23	2,52	5,04	7,56	10,08

Dari Tabel 5, *glass frit* GF-2 dengan kandungan limbah 20 %berat, jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* sebesar 7,74 %berat dan jumlah oksida Na_2O dalam LRCAT sebesar 4,18 %berat sehingga total keduanya sebesar 11,92 %berat. Karena jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* dan LRCAT jumlahnya melebihi 10 %berat maka jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* dikurangi sebesar 1,92 %berat. Jumlah oksida Na_2O dari *glass frit* yang semula sebesar 7,74 %berat dikurangi sebesar 1,92 %berat sehingga menjadi sebesar 5,82 %berat. Kelebihan sebesar 1,92 %berat tersebut diganti dengan CaO dan

ditambahkan ke dalam gelas-limbah tersebut. Demikian seterusnya untuk *glass frit* GF-2 dengan kandungan limbah 30 dan 40 % berat dilakukan dengan cara yang sama. Komposisi *glass frit* GF-2 dengan kandungan oksida Na_2O sebesar 10% dapat dilihat pada Tabel 6.

Oksida Na_2O jumlahnya dibatasi karena jika kandungan oksida Na_2O dalam gelas-limbah lebih besar dari 10 %berat maka akan menyebabkan terjadinya fase pemisah natrium molibdat yang berwarna kuning [23] [18]. Senyawa tersebut akan menurunkan viskositas dan ketahanan kimia gelas limbah [24].

Pengolahan Limbah Radioaktif Cair Aktivitas Tinggi Melalui Vitrifikasi Gelas Borosilikat
(Wati, Jaka Rachmadetin, Yuli Purwanto, Dwi Luhur Ibnu Saputra,
Ratiko, Aisyah, Pungky Ayu Artiani)

Tabel 5. Komposisi gelas-limbah untuk GF-2.

Nomor	Oksida	Komposisi (% berat)				
		100 %	90 %	80 %	70 %	60 %
Glass Frit GF-2		100 %	90 %	80 %	70 %	60 %
1	SiO ₂	58,00	52,20	46,40	40,60	34,80
2	B ₂ O ₃	21,80	19,62	17,44	15,26	13,08
3	Na ₂ O	9,67	8,70	7,74	6,77	5,80
4	CaO	7,80	7,02	6,24	5,46	4,68
5	Al ₂ O ₃	2,73	2,46	2,18	1,91	1,64
LRCAT Simulasi		100 %	10 %	20 %	30 %	40 %
1	Na ₂ O	20,95	2,09	4,18	6,27	8,36
2	SrO	1,45	0,14	0,28	0,42	0,56
3	BaO	2,58	0,26	0,52	0,78	1,04
4	La ₂ O ₃	2,90	0,29	0,58	0,87	1,16
5	Cr ₂ O ₃	8,87	0,89	1,78	2,67	3,56
6	MnO ₂	1,67	0,17	0,34	0,51	0,68
7	Fe ₂ O ₃	13,17	1,32	2,64	3,96	5,28
8	Rh ₂ O ₃	0,74	0,07	0,14	0,21	0,28
9	NiO	3,67	0,37	0,74	1,11	1,48
10	P ₂ O ₅	0,95	0,10	0,20	0,30	0,40
11	SeO ₂	0,11	0,01	0,02	0,03	0,04
12	TeO ₂	0,84	0,08	0,16	0,24	0,32
13	ZrO ₂	9,55	0,96	1,92	2,88	3,84
14	Ag ₂ O	0,11	0,01	0,02	0,03	0,04
15	CdO	0,18	0,02	0,04	0,06	0,08
16	SnO	0,15	0,01	0,02	0,03	0,04
17	Sb ₂ O ₃	0,04	-	-	-	-
18	Nd ₂ O ₃	6,84	0,69	1,38	2,07	2,76
19	CeO ₂	25,23	2,52	5,04	7,56	10,08

Tabel 6. Komposisi *glass frit* GF-2 dengan kandungan oksida Na₂O sebesar 10 %.

Nomor	Oksida	Komposisi (% berat)				
		100%	90%	80%	70%	60%
Glass Frit GF – 2		100%	90%	80%	70%	60%
1	SiO ₂	58,00	52,20	46,40	40,60	34,80
2	B ₂ O ₃	21,80	19,62	17,44	15,26	13,08
3	Na ₂ O	9,67	7,91	5,82	3,73	1,64
4	CaO	7,80	7,02	6,24	5,46	4,68
5	Al ₂ O ₃	2,73	2,46	2,18	1,91	1,64
LRCAT Simulasi		100%	10%	20%	30%	40%
1	Na ₂ O	20,95	2,09	4,18	6,27	8,36
2	SrO	1,45	0,14	0,28	0,42	0,56
3	BaO	2,58	0,26	0,52	0,78	1,04
4	La ₂ O ₃	2,90	0,29	0,58	0,87	1,16
5	Cr ₂ O ₃	8,87	0,89	1,78	2,67	3,56
6	MnO ₂	1,67	0,17	0,34	0,51	0,68
7	Fe ₂ O ₃	13,17	1,32	2,64	3,96	5,28
8	Rh ₂ O ₃	0,74	0,07	0,14	0,21	0,28
9	NiO	3,67	0,37	0,74	1,11	1,48
10	P ₂ O ₅	0,95	0,10	0,20	0,30	0,40
11	SeO ₂	0,11	0,01	0,02	0,03	0,04
12	TeO ₂	0,84	0,08	0,16	0,24	0,32
13	ZrO ₂	9,55	0,96	1,92	2,88	3,84
14	Ag ₂ O	0,11	0,01	0,02	0,03	0,04
15	CdO	0,18	0,02	0,04	0,06	0,08
16	SnO	0,15	0,01	0,02	0,03	0,04
17	Sb ₂ O ₃	0,04	-	-	-	-
18	Nd ₂ O ₃	6,84	0,69	1,38	2,07	2,76
19	CeO ₂	25,23	2,52	5,04	7,56	10,08
	CaO (pengganti Na ₂ O)		0,79	1,92	3,04	4,16

c. Proses Vitrifikasi Gelas-Limbah

Bahan gelas-limbah sesuai hasil perhitungan komposisi gelas-limbah pada Tabel 4 dan 6 ditimbang menggunakan neraca analitis kemudian dicampur dan digerus sehingga homogen dalam *crucible* porselin untuk masing-masing komposisi gelas-limbah yaitu : 10, 20, 30 dan 40 % berat. Campuran bahan-bahan tersebut dilebur pada temperatur 1150 °C selama 2,50 jam dalam *furnace*, kemudian didinginkan sampai temperatur kamar, sehingga terbentuk gelas-limbah [17][24].

d. Karakterisasi Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi dengan Uji Pelindian :

Gelas-limbah hasil vitrifikasi dari setiap sampel dihaluskan dan diambil yang memenuhi ayakan -45+50 mesh kemudian dicuci dengan alkohol untuk menghilangkan butir-butir halus yang menempel pada permukaan butiran gelas-limbah. Butiran gelas-limbah dipanaskan dalam oven pada temperatur 120 °C selama 2 jam untuk menghilangkan air dan alkohol, kemudian ditimbang sebanyak 1 gram dan dimasukkan ke dalam tempat sampel pada *Soxhlet*. Basket kemudian dipasang pada *Soxhlet*. Labu didih volume 1 liter pada *soxhlet* diisi air sebanyak 500 ml kemudian pemanas listrik dihidupkan. Laju kondensasi diatur sehingga sirkulasi di dalam basket dari kosong-penuh-kosong sebanyak 20 sirkulasi per jam. Uji pelindian dengan *Soxhlet* pada temperatur 100 °C, tekanan 1 atm dilakukan selama 24 jam. Setelah dilakukan uji pelindian sampel ditimbang lagi kemudian dihitung berat sampel yang hilang. Luas permukaan butir ditentukan dengan metode *Brunauer-Emmett-Teller* (BET) menggunakan alat *surface areameter*

Waktu kontak dan keasaman larutan (pH) merupakan faktor penting yang mempengaruhi proses pelindian. Pengaruh waktu kontak terhadap laju pelindian gelas-limbah tergantung pada komposisi gelas-limbah itu sendiri. Untuk mengetahui lebih jauh tentang pengaruh waktu kontak terhadap laju pelindian gelas-limbah hasil vitrifikasi dilakukan uji lindi dengan waktu kontak yang bervariasi yaitu : 12, 24, 36, 48, 60 dan 72 jam. Sedangkan untuk mengetahui pengaruh keasaman larutan (pH) terhadap laju pelindian gelas-limbah hasil vitrifikasi tersebut dilakukan uji lindi pada berbagai keasaman larutan pelindi yaitu pada pH 2, 5, 7, 9 dan 12. Air

pelindi untuk pH 2 dan 5 dibuat dengan menambahkan glisin, untuk pH 9 dengan trihidroksi metil aminometana dan pH 12 dengan NaOH [23]

Laju pelindian dari masing-masing sampel dihitung menggunakan persamaan 2 berikut.

$$R = \frac{w_0 - w}{s \cdot t} \quad (2)$$

dengan :

R = laju pelindian ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{jam}^{-1}$)

w_0 = berat sampel sebelum pelindian (g)

w = berat sampel setelah pelindian (g)

t = waktu pelindian selama 24 jam

s = $7,615 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{g}$, yaitu luas permukaan sampel dengan ukuran butir -45+50 mesh yang ditentukan berdasarkan hasil analisis dari ex-KIM-LIPI menggunakan alat *surface areameter*.

e. Karakterisasi Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi dengan XRD :

Dengan menggunakan XRD gelas-limbah hasil vitrifikasi dari bahan pembentuk gelas GF-2 dengan kandungan limbah 20% ditentukan struktur amorf atau kristalnya. Dengan mengetahui pola difraksinya maka akan diketahui apakah masih berada pada struktur amorf atau sudah terbentuk kristal [19], [23].

HASIL DAN PEMBAHASAN

Vitrifikasi adalah imobilisasi LRCAT yang dilakukan dengan mencampur bahan pembentuk gelas (*glass frit*) dengan limbah yang dilelehkan pada temperatur tinggi, kemudian didinginkan sehingga terbentuk gelas dan LRCAT terkungkung di dalamnya. Bahan gelas yang digunakan dalam percobaan ini adalah gelas borosilikat, sedangkan limbahnya berdasarkan aspek keselamatan menggunakan LRCAT simulasi.

Hasil penelitian menunjukkan bahwa gelas-limbah dengan bahan pembentuk gelas GF-1 dengan berbagai kandungan limbah yaitu : 10, 20, 30 dan 40 %berat tidak dapat dilelehkan pada temperatur 1150 °C dan terjadi padatan keras yang berwarna kuning. Oleh karena komposisi dengan bahan pembentuk gelas GF-1 tidak dapat dilelehkan pada temperatur 1150 °C, maka bahan pembentuk gelas ini tidak dapat digunakan dan tidak dilakukan penelitian lebih lanjut. Hal ini berkaitan dengan penggunaannya dalam skala industri yaitu jika temperatur pelelehan

lebih tinggi dari 1150 °C, maka mengakibatkan *refractory* (bata tahan api) laju korosinya sangat tinggi sehingga umur *melter* lebih pendek. Hal ini akan lebih banyak menimbulkan limbah radioaktif padat. Disamping itu temperatur pembuatan yang tinggi akan menimbulkan gas yang lebih banyak sehingga penanganan gasnya lebih kompleks.

Untuk membuat komposisi gelas-limbah dengan titik leleh berkisar 1150 °C dan karakteristik hasil vitrifikasi (gelas-limbah) yang memenuhi standar maka perlu diperhatikan pengaruh unsur-unsur yang ada dalam komposisi gelas-limbah tersebut. Penambahan TiO₂ ke dalam gelas GF-1 yang semula bertujuan untuk mengurangi penguapan Cs¹³⁷ ternyata mengakibatkan kenaikan temperatur pembentukan gelas-limbah. Bahan pembentuk gelas GF-1 tidak dapat dilelehkan pada temperatur 1150 °C. Vitrifikasi tidak berhasil dan tidak terjadi lelehan gelas-limbah. Selain unsur Ti, unsur Fe, Si, Ca, Zr dan Al juga akan menaikkan temperatur pembentukan gelas-limbah [24].

Hasil penelitian untuk bahan pembentuk gelas GF-2 dengan berbagai kandungan limbah, yaitu 10, 20, 30 dan 40 % berat dapat meleleh pada temperatur 1150 °C.

a. Karakterisasi gelas-limbah dengan uji pelindian

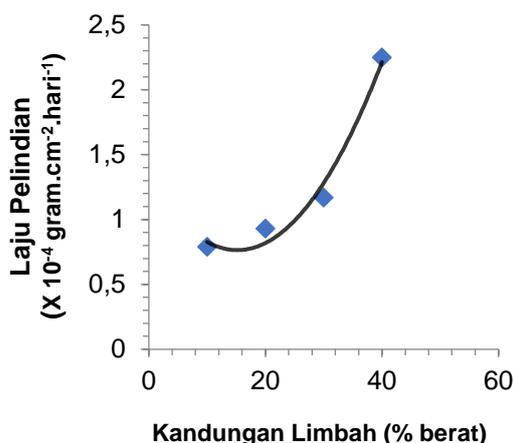
Pada tahapan selanjutnya, untuk mengetahui kualitas gelas limbah yang dihasilkan serta untuk menentukan sejauh mana pengaruh prosentase kandungan limbah terhadap kerusakan gelas limbah maka dilakukan penentuan karakteristik laju pelindian. Laju pelindian merupakan pertimbangan utama karena tujuan akhir dari pembuangan limbah adalah untuk menjaga agar radionuklida tidak ke luar dan menyebar ke lingkungan. Hasil penelitian laju pelindian dari semua komposisi gelas limbah GF-2 hasil vitrifikasi menunjukkan bahwa kenaikan kandungan limbah akan diikuti dengan kenaikan laju pelindian, seperti ditunjukkan pada Gambar 1.

Laju pelindian dari semua komposisi gelas limbah yang dibuat diperoleh berkisar antara $0,79 \times 10^{-4}$ gram.cm⁻².hari⁻¹ sampai dengan $2,25 \times 10^{-4}$ gram.cm⁻².hari⁻¹. Persyaratan laju pelindian untuk gelas borosilikat standar PNC Jepang adalah $2,30 \times 10^{-5}$ gram.cm⁻².hari⁻¹ [19],[24], sedangkan berdasarkan *Pacific Northwest National Laboratory* (PNNL) adalah

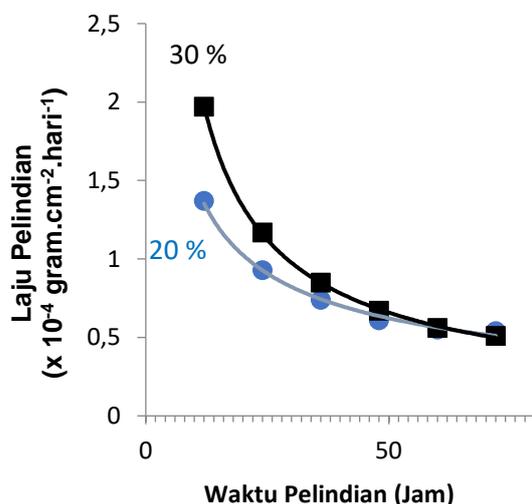
$10^{-4} - 10^{-7}$ gram.cm⁻².hari⁻¹. Persyaratan uji pelindian ini adalah dengan metode statik, yaitu ekstraksi radionuklida oleh air pelindi dalam kondisi air menggenang. Metode statik ini dilakukan dengan membuat simulasi kondisi lingkungan pada tempat *disposal* (penyimpanan) dan memerlukan waktu penelitian yang panjang. Data yang diperoleh digunakan sebagai dasar untuk memperkirakan perilaku gelas-limbah hasil vitrifikasi dalam jangka panjang. Sementara metode uji pelindian yang digunakan dalam penelitian ini adalah metode dinamik, yaitu air pelindi mengalami pergantian secara kontinyu (mengalir). Metode dinamis ini merupakan test laju pelindian dipercepat menggunakan temperatur yang lebih tinggi untuk mempercepat reaksi pelindian sehingga waktu penelitian yang diperlukan lebih singkat. Metode ini dilakukan dengan mengekstrak contoh dalam alat soxhlet pada temperatur tertentu. Test laju pelindian dipercepat digunakan pada penelitian jangka pendek untuk memeriksa cuplikan serta mempelajari efek dari beberapa variabel, yaitu untuk membandingkan ketahanan kimia dari berbagai komposisi gelas-limbah, mempelajari pengaruh pH dan waktu terhadap laju pelindian gelas-limbah seperti yang kita lakukan dalam penelitian ini. Data yang diperoleh digunakan sebagai dasar untuk menentukan kualitas gelas-limbah yang dihasilkan dari proses vitrifikasi yang kita lakukan. Nilai hasil uji pelindian secara dinamik biasanya lebih tinggi dibandingkan dengan nilai uji pelindian secara statis. Pada cara dinamis tidak ada ion-ion atau unsur-unsur yang terkandung dalam air pelindi yang menekan laju pelindian unsur-unsur dalam gelas limbah ke air pelindi. *Driving force* reaksi pelindian nya lebih besar karena air pelindi mengekstrak contoh (sampel) dalam keadaan murni. Nilai uji pelindian secara dinamik lebih konservatif (lebih aman) diterapkan untuk menentukan kualitas gelas-limbah yang dihasilkan dari proses vitrifikasi yang kita lakukan. Berdasarkan hasil karakterisasi ketahanan kimia (uji lindi), integritas fisik dan besarnya kandungan limbah maka komposisi gelas-limbah GF-2 dengan kandungan limbah 20 %berat memberikan karakteristik paling optimum.

Waktu kontak merupakan faktor penting yang mempengaruhi proses pelindian. Pengaruh waktu kontak terhadap laju pelindian gelas-limbah tergantung pada komposisi gelas-limbah itu sendiri. Untuk

mengetahui lebih jauh tentang pengaruh waktu kontak terhadap laju pelindian gelas-limbah hasil vitrifikasi tersebut dilakukan uji lindi dengan waktu kontak yang bervariasi yaitu : 12, 24, 36, 48, 60 dan 72 jam. Pengaruh waktu kontak terhadap laju pelindian ditentukan untuk gelas-limbah dengan *glass frit* GF-2 dengan kandungan limbah 20 dan 30 %berat. Hasil yang diperoleh ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 1. Laju pelindihan gelas-limbah dengan *glass frit* GF-2 dengan berbagai kandungan limbah.



Gambar 2. Laju pelindihan gelas-limbah dengan *glass frit* GF-2 untuk kandungan limbah 20 dan 30 %berat sebagai fungsi waktu pelindian.

Pada dasarnya ada dua persamaan yang menggambarkan hubungan antara banyaknya radionuklida yang terlindi dengan

waktu pelindian, yaitu persamaan linier dan persamaan kuadrat. Bentuk persamaannya dituliskan pada persamaan 3 dan 4 sebagai berikut.

$$Q_i = a_i t + b_i t^{1/2} \quad (3)$$

dengan Q_i adalah banyaknya unsur i yang terlindi (gram.m $^{-2}$.detik), t adalah waktu pelindian (detik), serta a dan b merupakan konstanta yang nilainya tergantung pada kondisi pelindian, misalnya temperatur, pH dan lain-lain.

Persamaan linier menggambarkan suatu bentuk fisik yang mudah korosi, sedangkan persamaan kuadrat menggambarkan bahwa pada proses pelindian tersebut banyaknya unsur yang terlepas mekanismenya dipengaruhi oleh fungsi difusi transfer massa. Bentuk persamaan yang lain adalah :

$$Q_i = c_i t^x \quad (4)$$

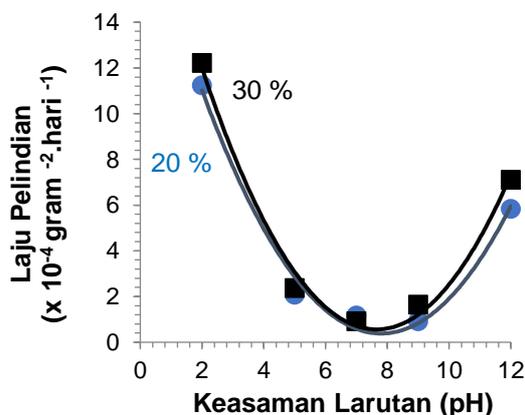
Apabila harga x mendekati 0,5 berarti proses mekanismenya dipengaruhi oleh fungsi difusi transfer massa, sedangkan untuk harga x mendekati 1 menggambarkan mudah korosi [1].

Hasil penelitian tentang pengaruh waktu pelindian terhadap laju pelindihan gelas-limbah dengan *glass frit* GF-2 dengan kandungan limbah 20 dan 30 %berat berturut-turut mengikuti persamaan $y = 5,23 x^{-0,54}$ dan $y = 13,34 x^{-0,76}$. Hal ini menunjukkan bahwa laju pelindian dengan kandungan limbah 20 %berat, harga x mendekati 0,5 berarti proses mekanismenya dipengaruhi oleh fungsi difusi transfer massa. Sedangkan untuk kandungan limbah 30 % berat, harga x mendekati 1 menggambarkan bahwa mudah korosi.

Hasil penelitian yang ditunjukkan pada Gambar 2 juga memperlihatkan bahwa semakin lama waktu pelindian diperoleh laju pelindian yang semakin kecil. Hal ini disebabkan karena laju pelepasan massa radionuklida pada keadaan tergenang (*stagnant*) nilainya tergantung pada difusi transfer massa dari air pelindi. Adanya unsur-unsur dalam air pelindi yang terlarut akan menekan perpindahan unsur-unsur dari gelas limbah, disamping itu semakin lama *driving force* akan semakin kecil karena konsentrasi radionuklida dalam gelas limbah semakin berkurang, sehingga kecepatan difusi akan menurun. Efek daya larut (solubilitas) akan

sangat berpengaruh karena prosesnya dipengaruhi oleh difusi transfer massa. Apabila konsentrasi ion-ion dalam air pelindi mendekati konsentrasi batas kelarutan (*solubility limit*) maka laju pelindian juga akan mengalami penurunan karena *driving force* (tenaga dorong) untuk transfer massa lebih rendah. Laju pelindian setelah 72 jam untuk kandungan limbah 20 maupun 30 % berat dari grafik di atas menunjukkan hampir konstan. Pada kondisi ini laju pelindiannya sudah relatif kecil yaitu berkisar antara 5×10^{-5} gram.cm⁻².hari⁻¹.

Stabilitas gelas borosilikat sangat bergantung pada kondisi atau suasana larutan. Sebagai contoh dikemukakan hasil penelitian tentang pengaruh waktu pelindian terhadap banyaknya fraksi massa radionuklida yang terlepas dari gelas limbah borosilikat. Pada kondisi temperatur 20 °C di dalam larutan *buffer* pH 4, 2 kenaikan laju pelindian unsur Si sebanding dengan waktu, sehingga memenuhi persamaan linier (x mendekati 1). Sedang pada kondisi 100 °C dan 220 °C di dalam air deionisasi dengan pH 7 – 8 kenaikan laju pelindian unsur Si Nampak mengikuti persamaan kuadrat (x mendekati 0,5) [1]. Untuk mengetahui ketahanan kimia gelas-limbah hasil vitrifikasi dengan *glass frit* GF-2 ini maka dilakukan uji pelindian pada berbagai keasaman larutan pelindi yaitu pada pH 2, 5, 7, 9 dan 12. Air pelindi untuk pH 2 dan 5 dibuat dengan menambahkan glisin, untuk pH 9 dengan trihidroksi metil aminometana dan pH 12 dengan NaOH [23]. Hasil penelitian ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Laju pelindian gelas-limbah dengan *glass frit* GF-2 untuk kandungan limbah 20 dan 30 % berat sebagai fungsi keasaman larutan (pH) [26].

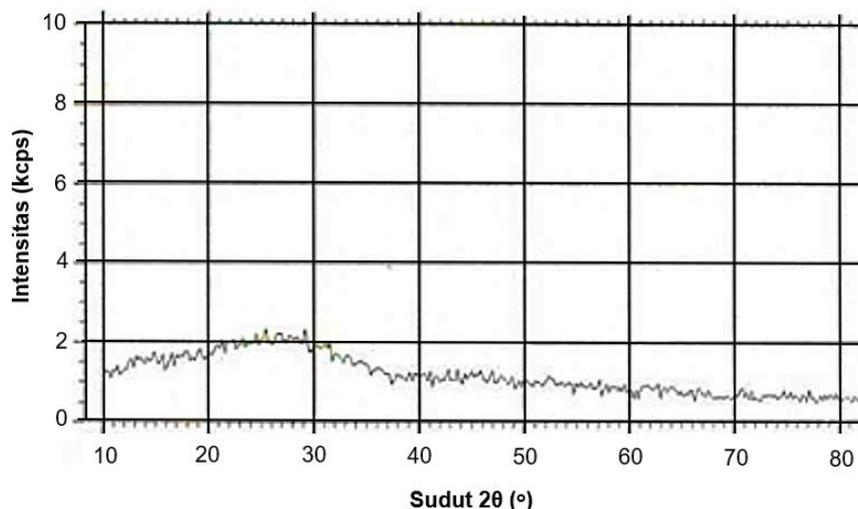
Pada Gambar 3, laju pelindian gelas-limbah dengan *glass frit* dari bahan kimia GF-2 sebagai fungsi keasaman larutan (pH) untuk kandungan limbah 20 maupun 30 % berat menunjukkan bahwa laju pelindian pada suasana netral yaitu antara pH 6 – 9 adalah paling rendah dibandingkan dengan laju pelindian pada suasana asam (pH < 5) maupun laju pelindian pada suasana basa (pH > 9). Laju pelindian pada suasana asam menunjukkan nilai terbesar. Hal ini disebabkan karena pada suasana asam dan basa gelas limbah tersebut disamping terjadi proses pelindian juga mengalami korosi karena adanya ion-ion H⁺ dan OH⁻ dalam larutan [23], [25]. Ion-ion H⁺ dan OH⁻ yang ada dalam larutan akan menyebabkan terjadinya radiolisis terhadap kation-kation pembentuk kerangka gelas. Hal ini menyebabkan tidak hanya limbah saja yang terlindi tetapi juga unsur-unsur pembentuk kerangka gelas seperti unsur Si dan B. Peristiwa ini sering disebut korosi.

b. Karakterisasi Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi dengan XRD :

Dari hasil karakterisasi ketahanan kimia (uji pelindian), integritas fisik dan kandungan limbah maka komposisi gelas-limbah GF-2 dengan kandungan limbah 20 % berat memberikan karakteristik paling optimum. Oleh karena itu analisis menggunakan XRD hanya dilakukan terhadap bahan pembentuk gelas GF-2 dengan kandungan limbah 20% berat. Analisis gelas-limbah hasil vitrifikasi dari bahan pembentuk gelas GF-2 dengan kandungan limbah 20% berat dengan difraktometer sinar-X ditunjukkan pada **Error! Reference source not found.** Pola difraksi pada gambar tersebut tidak menunjukkan adanya puncak yang mengindikasikan struktur gelas adalah amorf dan tidak terdapat fasa kristalin. Struktur amorf ini memiliki kelebihan untuk imobilisasi limbah karena jarak antar molekulnya tidak teratur, sehingga dapat menjadi *host* untuk berbagai macam radionuklida (limbah) yang memiliki ukuran berbeda-beda [26]. Ketidakteraturan struktur gelas ini disebabkan SiO₄ tetrahedral dalam gelas saling mengikat hanya dengan sudut, tidak dengan bidang. Ikatan Si-O-Si dalam gelas mempunyai sudut rata-rata 152°. Struktur acak dalam gelas akan lebih kompleks dengan adanya kation-kation limbah yang terletak dalam rongga dari kerangka silika. Oksida-oksida dalam membentuk struktur gelas terlebih dahulu

membentuk kerangka gelas baru kemudian mengisi rongga-rongga yang terbentuk. Pembentukan kerangka gelas dan pengisian rongga terjadi selama pendinginan. Dimensi

rongga yang terbentuk tergantung pada ukuran kation-kation limbah yang menempatnya.



Gambar 4. Pola difraksi X-Ray gelas-limbah GF-2 dengan kandungan limbah 20 %berat.

KESIMPULAN

Komposisi bahan pembentuk gelas (*glass frit*) GF-1 dengan berbagai kandungan limbah yaitu : 10, 20, 30 dan 40 %berat tidak dapat digunakan untuk vitrifikasi LRCAT karena tidak dapat dilelehkan pada temperatur 1150 °C. Proses vitrifikasinya tidak berhasil dan tidak terjadi lelehan gelas-limbah. Bahan pembentuk gelas GF-1 tidak dapat digunakan untuk imobilisasi LRCAT dan tidak dilakukan penelitian lebih lanjut. Sedangkan untuk komposisi bahan pembentuk gelas (*glass frit*) GF-2 dapat digunakan untuk imobilisasi LRCAT karena mempunyai titik leleh pada temperatur sekitar 1150 °C. Gelas-limbah GF-1 tidak dilakukan uji pelindian karena proses vitrifikasinya tidak berhasil dan tidak terjadi lelehan gelas-limbah. Sedangkan untuk semua komposisi bahan pembentuk gelas (*glass frit*) GF-2 laju pelindiannya diperoleh berkisar antara $0,79 \times 10^{-4}$ gram.cm⁻².hari⁻¹ sampai dengan $2,25 \times 10^{-4}$ gram.cm⁻².hari⁻¹. Persyaratan laju pelindian untuk gelas borosilikat standar PNC Jepang adalah $2,30 \times 10^{-5}$ gram.cm⁻².hari⁻¹ sedangkan berdasarkan *Pacific Northwest National Laboratory* (PNNL) adalah $10^{-4} - 10^{-7}$ gram.cm⁻².hari⁻¹. Berdasarkan hasil karakterisasi ketahanan kimia (uji lindi), integritas fisik dan besarnya kandungan limbah maka komposisi gelas-limbah GF-2 dengan kandungan limbah 20 %berat

memberikan karakteristik paling optimum. Oleh karena itu analisis menggunakan XRD hanya dilakukan terhadap bahan pembentuk gelas GF-2 dengan kandungan limbah 20 %berat. Pola difraksi dari hasil analisis menggunakan XRD terhadap bahan pembentuk gelas GF-2 dengan kandungan limbah 20% berat tidak menunjukkan adanya puncak yang mengindikasikan struktur gelas adalah amorf dan tidak terdapat fasa kristalin.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan banyak terima kasih kepada Bapak Ir. Herlan Martono, M.MSc. untuk dorongan semangat dan bimbingannya sehingga penelitian dan karya tulis ini dapat diselesaikan. Penelitian ini sebagian didanai oleh Lembaga Pengelola Dana Pendidikan (LPDP) melalui skema Riset dan Inovasi Indonesia Maju yang dikelola oleh Badan Riset dan Inovasi Nasional (BRIN) No: B1746/II.7.5/FR/11/2022; B4849/III.2/HK. 04.03/11/2022.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] V. (Austria) International Atomic Energy Agency, *Characteristics of solidified high-level waste products*, no. 1. 1979.
- [2] K. Son *et al.*, "A review of the features, events, and processes and scenario development for Korean risk assessment of a deep geological repository for high-

- level radioactive waste,” *Nucl. Eng. Technol.*, vol. 55, no. 11, pp. 4083–4095, 2023, doi: 10.1016/j.net.2023.07.027.
- [3] X. Tang, S. Zhou, X. Liu, and B. Hu, “Evidence of nuclide migration from high-level radioactive waste glass via geogas,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 211, no. May, 2024, doi: 10.1016/j.apradiso.2024.111399.
- [4] IAEA and International Atomic Energy Agency, “Management of Reprocessed Uranium – Current Status and Future Prospects TECDOC-1529,” *Iaea Nucl. Energy Ser.*, no. February, p. Vienna, 2007.
- [5] D. S. Wisnubroto, H. Zamroni, R. Sumarbagiono, and G. Nurliaty, “Challenges of Implementing The Policy and Strategy for Management of Radioactive Waste and Nuclear Spent Fuel in Indonesia,” *Nucl. Eng. Technol.*, vol. 53, no. 2, pp. 549–561, 2021, doi: 10.1016/j.net.2020.07.005.
- [6] P. A. Aisyah, Artiani and Y. Purwanto, “Karakterisasi limbah dari produksi radioisotop molibdenum-99 characterization of radioisotope molibdenum-99 production waste,” *J. Iptek Nukl. Ganendra*, vol. 99, no. 61, pp. 71–82, 2018.
- [7] Aisyah, P. A. Artiani, and J. Rachmadetin, “Radioactive Fission Waste from Molybdenum-99 Production and Proliferation Risks,” in *6th International Energy Conference (Astechnova 2021), IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science 927*, 2021, p. 012041, doi: 10.1088/1755-1315/927/1/011002.
- [8] Aisyah *et al.*, “Radioactive Fission Waste of the Conversion of High-Enriched Uranium to Low-Enriched Uranium Target on 99Mo Production,” *IOP Conf. Ser. Earth Environ. Sci.*, vol. 1201, no. 1, 2023, doi: 10.1088/1755-1315/1201/1/012003.
- [9] H. A. Abderrahim, P. Baeten, D. De Bruyn, and R. Fernandez, “MYRRHA – A multi-purpose fast spectrum research reactor,” *Energy Convers. Manag.*, vol. 63, pp. 4–10, 2012, doi: 10.1016/j.enconman.2012.02.025.
- [10] M. I. Ojovan and S. V. Yudinsev, “Glass, ceramic, and glass-crystalline matrices for HLW immobilisation,” *Open Ceram.*, vol. 14, no. February, p. 100355, 2023, doi: 10.1016/j.oceram.2023.100355.
- [11] R. C. Sanito, M. Bernuy-Zumaeta, S. J. You, and Y. F. Wang, “A review on vitrification technologies of hazardous waste,” *J. Environ. Manage.*, vol. 316, no. 200, p. 115243, 2022, doi: 10.1016/j.jenvman.2022.115243.
- [12] S. A. Walling *et al.*, “Characterisation and disposability assessment of multi-waste stream in-container vitrified products for higher activity radioactive waste,” *J. Hazard. Mater.*, vol. 401, no. August 2020, p. 123764, 2021, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.123764.
- [13] J. C. Rigby *et al.*, “Alternative reductants for foam control during vitrification of high-iron High Level Waste (HLW) feeds,” *J. Non. Cryst. Solids*, vol. 608, no. x, 2023, doi: 10.1016/j.jnoncrysol.2023.122240.
- [14] I. Tolnai, J. Osan, F. Pinakidou, Z. Kovacs, and M. Fabian, “Effects of UO3 on the structure, thermal and chemical stability of borosilicate glass matrix,” *J. Non. Cryst. Solids*, vol. 637, no. May, p. 123054, 2024, doi: 10.1016/j.jnoncrysol.2024.123054.
- [15] H. Jia *et al.*, “Stable borosilicate glass doped with CsPbBr3 quantum dots for efficient photodetectors,” *Ceram. Int.*, vol. 49, no. 1, pp. 1283–1290, 2023, doi: 10.1016/j.ceramint.2022.09.107.
- [16] M. H. Alhakami, A. S. Abouhaswa, N. A. Althubiti, and T. A. Mohaymen Taha, “Design and characterization of borosilicate glass modified with TiO2 for enhanced optical and radiation shielding applications,” *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 225, no. July, p. 112150, 2024, doi: 10.1016/j.radphyschem.2024.112150.
- [17] Aisyah, “Pemanfaatan Abu Layang Sebagai Bahan Pembentuk Gelas pada Vitrifikasi Limbah Cair Tingkat Tinggi,” *J. Teknol. Pengelolaan Limbah*, vol. 17, no. 2, pp. 1–12, 2014.
- [18] A. Goel, J. S. McCloy, R. Pokorny, and A. A. Kruger, “Challenges with vitrification of Hanford High-Level Waste (HLW) to borosilicate glass – An overview,” *J. Non-Crystalline Solids X*, vol. 4, no. August, p. 100033, 2019, doi: 10.1016/j.nocx.2019.100033.
- [19] Aisyah, “Karakterisasi Gelas Limbah Hasil Vitrifikasi Limbah Cair Tingkat Tinggi,” *J. Teknol. Pengelolaan Limbah*, vol. 16, no. 1, pp. 13–22, 2013.
- [20] Croff.A.G, “A User’s Manual for the ORIGEN2 Computer Code,” no. January,

- pp. 1–109, 1980.
- [21] Aisyah, P. A. Artiani, and J. Rachmadetin, "Radioactive Fission Waste from Molybdenum-99 Production and Proliferation Risks," *IOP Conf. Ser. Earth Environ. Sci.*, vol. 927, no. 1, p. 012041, 2021, doi: 10.1088/1755-1315/927/1/012041.
- [22] H. G. Martono, "Management of High Level Radioactive and Transuranic Waste in Indonesia," *GEMA Tek. Maj. Ilm. Tek.*, vol. 10, no. 2, pp. 142-150–150, 2007.
- [23] H. Martono and Wati, "Pengaruh Komposisi Dan Radiasi Terhadap Ketahanan Kimia Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi," in *Prosiding Seminar Nasional Teknologi Pengelolaan Limbah*, 2015, vol. XIII, pp. 67–78.
- [24] H. Martono, "Treatment of High Level Liquid Waste and Characterization of Waste Glass," 1988.
- [25] Wati, "Pengaruh Komposisi Waktu dan Keasaman Terhadap Ketahanan Kimia Gelas Limbah," *Pus. Pendidik. dan Latih. Badan Tenaga Atom Nasional, Yogyakarta*, 1992.
- [26] Z. H. Jiang and Q. Y. Zhang, "The structure of glass: A phase equilibrium diagram approach," *Prog. Mater. Sci.*, vol. 61, no. August 2013, pp. 144–215, 2014, doi: 10.1016/j.pmatsci.2013.12.001.