

KARAKTERISASI GELAS LIMBAH HASIL VITRIFIKASI LIMBAH CAIR TINGKAT TINGGI

Aisyah

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

ABSTRAK

KARAKTERISASI GELAS LIMBAH HASIL VITRIFIKASI LIMBAH CAIR TINGKAT TINGGI.

Limbah cair tingkat tinggi (LCTT) ditimbulkan dari ekstraksi siklus pertama proses olah ulang bahan bakar bekas reaktor nuklir. Limbah ini banyak mengandung hasil belah dan sedikit aktinida dan vitrifikasi dilakukan dengan gelas borosilikat. Komposisi limbah cair tingkat tinggi dipengaruhi antara lain oleh jenis reaktor, fraksi bakar, pengayaan uranium, daya reaktor spesifik dan lama pendinginan bahan bakar bekas sebelum divitrifikasi. Agar diperoleh karakteristik gelas limbah yang memenuhi persyaratan, bagi setiap komposisi limbah yang berbeda memerlukan komposisi bahan pembentuk gelas serta kandungan limbah yang berbeda pula. Telah dilakukan karakterisasi densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan gelas limbah hasil vitrifikasi LCTT simulasi. Karakterisasi gelas limbah dilakukan dengan variabel kandungan limbah 19,84; 22,32; 25,27; 26,59 % berat, dan karakterisasi laju pelindihan dengan variabel kandungan SiO_2 dan Al_2O_3 pada bahan pembentuk gelas masing-masing sebesar 44; 45 ; 46,8 % berat dan 1,4; 2,4; 3,4; 3,7 % berat. Sebagai acuan digunakan gelas limbah standar milik *Japan Atomic Energy Agency*. Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa kandungan limbah yang semakin tinggi akan meningkatkan karakteristik densitas dan laju pelindihan gelas limbah, sedangkan karakteristik koefisien muai panjang relatif tidak berubah. Peningkatan kandungan SiO_2 maupun Al_2O_3 akan menurunkan laju pelindihan. Jika dibandingkan dengan gelas limbah standar maka jumlah kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas keduanya tidak signifikan mempengaruhi karakteristik densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan.

Kata kunci: Gelas limbah, limbah cair tingkat tinggi, vitrifikasi, gelas borosilikat

ABSTRACT

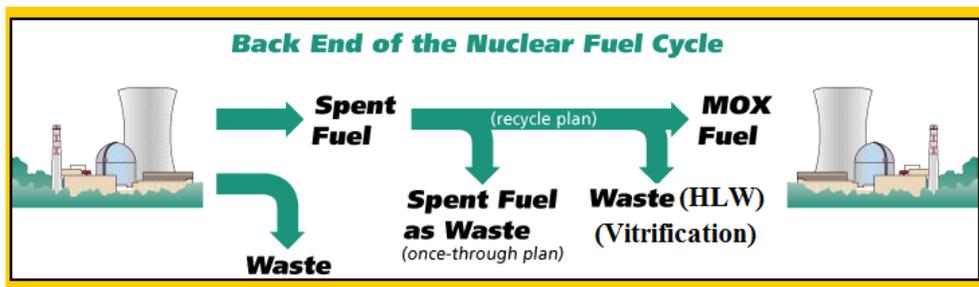
CHARACTERIZATION of WASTE GLASS FROM PRODUCT of A HIGH LEVEL LIQUID WASTE VITRIFICATION.

High level liquid waste (HLLW) is generated from the first step extraction of nuclear fuel reprocessing. This waste contains an amount of fission products and a few actinides, and such waste was vitrified with borosilicate glass. The composition of high-level liquid waste was influenced by the type of reactor, the burn up of fuel, the uranium enrichment, the specific reactor power and the cooling time of the spent fuel before vitrification. In order to obtain the characteristics of the waste glass that meets the requirements, for every composition of different of waste, require the different composition of glass frit and also the different waste loading. Characterization of density, thermal expansion coefficient and leaching rate had been carried out to the simulated waste glass of vitrified HLLW product, such characterization was carried out with a variable of the waste loading of 19.84 ; 22.32 ; 25.27 ; 26.59 wt%, and characterization of leaching rate was carried out with a variables of SiO_2 and Al_2O_3 content of 44 ; 45 ; 46 , 8 wt% and 1.4 ; 2.4 ; 3.4 ; 3.7 wt% respectively. As a reference, the waste glass standard from Japan Atomic Energy Agency was used. The characterization results showed that the higher the waste loading, the higher the density and leaching rate characteristics of waste glass, while the thermal expansion coefficient characteristic is relatively unchanged. The increasing content of SiO_2 and Al_2O_3 will reduce the leaching rate. Compared to the waste glass standard, both the amount of waste loading and glass frit do not significantly affect the density, thermal expansion coefficient and leaching rate characteristics.

Keywords: Waste glass, high level liquid waste, vitrification, borosilicate glass.

PENDAHULUAN

Daur bahan bakar nuklir (*nuclear fuel cycle*) meliputi tahapan proses eksplorasi, penambangan, pengolahan, pemurnian, pengayaan dan pabrikasi uranium, merupakan proses yang dilakukan sebelum bahan bakar nuklir dipakai didalam reaktor. Proses tersebut dikenal sebagai kegiatan ujung depan (*front end*) dari daur bahan bakar nuklir. Sedangkan proses penanganan limbah radioaktif termasuk bahan bakar nuklir bekas (*spent fuel*) disebut kegiatan ujung belakang (*back end*) dari daur bahan bakar nuklir. Kegiatan ujung belakang daur bahan bakar nuklir merupakan kegiatan pengelolaan limbah radioaktif yang meliputi penyimpanan sementara, proses olah ulang dan disposal limbah radioaktif [1-3]. Pada pengelolaan bahan bakar bekas reaktor terdapat istilah daur tertutup dan daur terbuka. Pada sistem daur terbuka, tidak dilakukan proses olah ulang (*once-through*) yaitu bahan bakar bekas setelah habis masa pakainya dalam reaktor langsung disimpan sementara untuk suatu saat dikirim ke fasilitas disposal. Daur tertutup adalah suatu sistem daur bahan bakar nuklir dengan melakukan proses olah ulang bahan bakar bekas (*reprocessing*) untuk memungut uranium sisa (*recovered uranium*) dan plutonium. Plutonium dapat digunakan untuk membuat bahan bakar baru yaitu *Mixed Oxide Fuel* (MOX) guna diumpankan kembali sebagai bahan bakar reaktor. Pada proses olah ulang ini akan ditimbulkan limbah cair aktivitas tinggi (*High Level Liquid Waste*) yang pada umumnya limbah jenis ini diimobilisasi secara vitrifikasi (*vitrification*). Rangkaian pengelolaan bahan bakar bekas sebagai *back end of the nuclear fuel cycle* ditunjukkan pada Gambar 1 [4].



Gambar 1. Pengelolaan Bahan Bakar Bekas Reaktor [4]

Sampai dengan saat ini Indonesia mengambil opsi daur terbuka. Sistem daur terbuka juga bisa berarti *wait and see*, masih terbuka untuk pilihan apakah memilih daur dengan olah ulang atau daur tanpa olah ulang. Oleh karena itu sebagai limbah tingkat tinggi saat ini adalah bahan bakar bekas reaktor. Namun demikian, untuk penguasaan teknologi pengolahan limbah tingkat tinggi, dalam makalah ini yang akan dibahas adalah limbah cair aktivitas tinggi (LCTT) yang berasal dari proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas. Hal ini dimaksudkan sebagai langkah antisipatif jika suatu saat dipilih opsi daur tertutup.

Limbah cair tingkat tinggi (LCTT) adalah limbah yang ditimbulkan dari ekstraksi siklus I proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas yang banyak mengandung radionuklida hasil belah dan sedikit aktinida. Limbah ini disamping memiliki panas radiasi yang cukup tinggi, juga mengandung aktinida yang berumur paro panjang [1,5]. Oleh karena itu LCTT memerlukan pengelolaan dengan tingkat keselamatan yang cukup tinggi termasuk dalam hal pemilihan bahan matriks untuk imobilisasi beserta teknologi imobilisasinya. Beberapa hal yang perlu diperhatikan dalam memilih bahan matriks untuk imobilisasi LCTT adalah proses pembuatan yang mudah, praktis, kandungan limbah (*waste loading*) yang ekonomis, serta hasil imobilisasi memiliki karakteristik yang baik seperti ketahanan kimia yaitu laju pelindihan yang rendah, sifat fisika yang sesuai, kestabilan terhadap radiasi, kestabilan terhadap panas yaitu tidak mudah terjadi devitrifikasi dan keutuhan fisik (*physical integrity*) [6,7]. Terdapat beberapa bahan matriks untuk imobilisasi LCTT seperti gelas, *synrock* dan *vitromet*. Berdasarkan pertimbangan teknik pembuatan, stabilitas dalam jangka panjang dan besarnya kandungan limbahnya, gelas borosilikat dipilih untuk imobilisasi LCTT dan proses ini disebut vitrifikasi [7]. Teknologi vitrifikasi yang telah dikembangkan secara industri untuk imobilisasi LCTT adalah dengan menggunakan *melter* pemanas induksi ataupun *melter* pemanas *Joule* seperti yang dikembangkan di Jepang, Jerman, Amerika dan Perancis [8,9].

Banyak faktor yang mempengaruhi karakteristik gelas limbah hasil vitrifikasi LCTT seperti komposisi limbah, jumlah kandungan limbah, komposisi bahan pembentuk gelas dan kondisi operasi vitrifikasi. Unsur-unsur yang terkandung dalam limbah, bahan pembentuk gelas masing-masing memiliki peran dalam karakteristik gelas limbah yang dihasilkan. Misalnya unsur Mo, Zr dan Cr dapat membentuk fase pemisah dan mempengaruhi viskositas gelas limbah, unsur pembentuk gelas seperti Si, Al, Ca, dan Zr menaikkan suhu pembentukan gelas limbah [10,11].

Pada proses daur ulang bahan bakar bekas, komposisi LCTT yang ditimbulkan akan berbeda-beda tergantung banyak faktor, seperti jenis reaktor, besarnya pengkayaan uranium, fraksi bakar (*burn up*), daya reaktor spesifik dan lama pendinginan sebelum proses vitrifikasi. Untuk jenis komposisi LCTT tertentu memerlukan jumlah kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas yang tertentu pula agar diperoleh karakteristik gelas limbah yang memenuhi syarat baik untuk proses vitrifikasi maupun untuk disposal.

Sesuai dengan kandungan limbahnya maka komposisi bahan pembentuk gelas memiliki peran yang penting dalam menghasilkan karakteristik gelas limbah yang sesuai dengan standar. Perubahan komposisi bahan pembentuk gelas akan menghasilkan karakteristik gelas limbah yang berbeda. Unsur Si maupun Al merupakan salah satu komponen penting dalam bahan pembentuk gelas yang merupakan unsur pembentuk kerangka gelas yang jumlahnya dapat mempengaruhi karakteristik gelas limbah [7]. Jadi semakin tinggi kadar Si dalam bahan pembentuk gelas maka akan dihasilkan gelas limbah dengan kualitas yang semakin baik, namun suhu pelelehan makin tinggi.

Pada penelitian sebelumnya telah dipelajari persyaratan gelas limbah untuk vitrifikasi, perbandingan gelas keramik dan gelas borosilikat, pengaruh perlakuan panas terhadap devitrifikasi gelas limbah, pengaruh radiasi dan radionuklida hasil belah terhadap sifat fisika dan kimia gelas-limbah [12-15]. Terdapat beberapa karakteristik gelas limbah yang perlu dipelajari seperti densitas, koefisien muai panjang, hantaran panas, viskositas, laju pelindihan, titik pelunakan, hantaran listrik, panas jenis, dan kekuatan mekanik. Oleh karena itu dalam penelitian ini akan dipelajari karakteristik gelas limbah terkait dengan adanya perubahan kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas seperti SiO_2 dan Al_2O_3 . Perubahan salah satu unsur tertentu dapat mengakibatkan perubahan karakteristik gelas-limbah yang dihasilkan.

Karakteristik gelas limbah yang dipelajari dalam penelitian ini adalah densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan gelas limbah terkait dengan adanya perubahan kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas. Penentuan karakteristik densitas gelas limbah diperlukan dalam perancangan *melter*, *canister*, beban transportasi dan kekuatan tumpuk pada penyimpanan gelas limbah. Karakteristik koefisien muai panjang gelas limbah merupakan sifat yang penting untuk mengevaluasi ketahanan terhadap kejutan panas dan beban kompresi antara gelas limbah dan canister agar tidak terjadi keretakan gelas limbah dalam canister. Sedangkan laju pelindihan merupakan karakteristik gelas limbah yang menunjukkan kekuatan gelas limbah dalam mengungkung radionuklida yang ada didalamnya. Seperti diketahui bahwa tujuan akhir pengelolaan limbah adalah menjaga agar radionuklida terikat cukup kuat dalam *monolith* bahan matriks dalam jangka waktu yang sangat lama, sehingga potensi radionuklida terlindih ke lingkungan bisa diminimalkan.

Sebagai acuan adalah gelas limbah standar milik *Japan Atomic Energy Agency* (JAEA) Jepang dengan komposisi bahan pembentuk gelas dan kandungan limbah ditunjukkan pada Tabel 1, sedangkan karakteristik gelas limbahnya ditunjukkan pada Tabel 2. Komposisi LCTT pada gelas limbah standar ditentukan dengan program *ORIGEN 2* berdasarkan atas reaktor PWR dengan fraksi bakar 45.000 MWd/MtU, pengayaan uranium 4,5 %, daya reaktor spesifik 38 MW/MtU dan lama pendinginan 4 tahun. Gelas limbah standar ini memiliki karakteristik yang memenuhi persyaratan baik secara ekonomi maupun teknis vitrifikasinya [12,16].

Limbah cair tingkat tinggi dalam penelitian ini dibuat secara simulasi dengan komposisi ditentukan berdasarkan program komputer *ORIGEN 2*. Pembuatan gelas limbah simulasi dilakukan dengan cara melelehkan campuran bahan pembentuk gelas dan limbah dalam berbagai komposisi pada suhu 1150 °C. Karakterisasi gelas limbah yang terbentuk dilakukan untuk densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan. Densitas dilakukan secara *Archimedes*, koefisien muai panjang dilakukan dengan alat dilatometer sedangkan laju pelindihan dilakukan dengan alat soklet. Karakteristik gelas limbah yang diteliti akan dibandingkan dengan karakteristik gelas limbah standar sehingga dapat diketahui besarnya perubahan karakteristiknya.

Tabel 1. Komposisi Gelas Limbah Standar [12,16]

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

Tabel 2. Karakteristik Gelas Limbah Standar [12,16]

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

Penelitian ini bertujuan untuk mempelajari beberapa karakteristik gelas limbah seperti densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan yang terkait dengan adanya perubahan kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas, sehingga dapat diperoleh gelas limbah dengan karakteristik yang tidak hanya memenuhi standar namun juga ekonomis dan secara teknis dapat divitrifikasi dengan baik. Penelitian ini dilakukan di JAEA dalam rangka Program *Training High Level Waste Management*. Penulisan makalah dilakukan di Bidang Teknologi Pengolahan Limbah Dekontaminasi dan Dekomisioning, Pusat Teknologi Limbah Radioaktif, Badan Tenaga Nuklir Nasional pada Tahun 2013. Walaupun saat ini Indonesia belum melakukan proses olah ulang, namun topik penelitian ini menjadi penting sebagai acuan dalam mengelola LCTT yang ditimbulkan dari kegiatan produksi radioisotop maupun pengujian bahan bakar paska iradiasi dimana limbah yang ditimbulkan memiliki komposisi yang mirip dengan LCTT yang ditimbulkan dari proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas [17,18].

METODE

Bahan

Bahan yang digunakan untuk membuat gelas limbah simulasi berupa serbuk oksida dengan kemurnian tinggi produk E. Merck yaitu oksida-oksida seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1. Sebagai standar digunakan gelas limbah milik JAEA dengan komposisi bahan pembentuk gelas dan limbah serta karakteristik gelas limbah seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1 dan 2.

Peralatan

Dalam penelitian ini digunakan beberapa peralatan seperti *melter* (tungku), timbangan, cawan platina, *crusible* grafit, termometer, seperangkat alat dilatometer, dan soklet.

Tata Kerja

Dibuat beberapa macam gelas limbah simulasi dengan komposisi yang divariasikan dari komposisi gelas limbah standar (Tabel 1). Dilakukan variasi kandungan limbah sebesar 19,84; 22,32; 25,27 dan 26,29 % berat, SiO₂ sebesar 44; 45; dan 46,8 % berat, serta Al₂O₃ sebesar 1,4; 2,4; 3,4; dan 3,7 % berat. Untuk radionuklida hasil belah diwakili oleh Cs sedangkan aktinida diwakili oleh unsur Ce. Pembuatan gelas limbah simulasi dilakukan dengan cara mencampur bahan pembentuk gelas dan limbah sampai homogen dan campuran dipanaskan dalam *melter* 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. Gelas limbah dengan berbagai variasi kandungan limbah dan bahan pembentuk limbah yang telah mendingin siap dilakukan karakterisasi.

Karakterisasi gelas limbah dilakukan untuk densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan terhadap variasi kandungan limbah, sedangkan karakteristik laju pelindihan juga dipelajari terhadap variasi kandungan SiO₂ dan Al₂O₃, sehingga dapat diketahui perubahan karakteristiknya jika dibandingkan dengan karakteristik gelas limbah standar.

Karakteristik densitas gelas limbah ditentukan secara Archimedes dengan cara menimbang potongan gelas limbah di udara dan dalam keadaan tercelup dalam air pada suhu kamar. Densitas gelas limbah dihitung dengan persamaan:

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

dimana ρ adalah densitas gelas limbah (g cm⁻³), ρ_w adalah densitas air (g cm⁻³), ρ_a adalah densitas udara (g cm⁻³), W_a adalah berat gelas limbah di udara (g) dan W_w adalah berat gelas limbah di air (g). Sebagai standar dalam pengukuran densitas digunakan aluminium [12,19, 20].

Pengukuran koefisien muai panjang dilakukan dengan alat dilatometer dengan cara memanaskan sampel gelas limbah yang berbentuk balok dengan ukuran 5x5x(15 ~ 20) mm dari suhu 30 sampai 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 adalah koefisien muai panjang contoh (°C⁻¹), L_0 adalah panjang contoh awal (mm), ΔL adalah penambahan panjang contoh setelah pemanasan (mm) dan $5,61 \times 10^{-7}$ adalah koefisien muai panjang kuarsa (sebagai koreksi) [21-23].

Laju pelindihan dilakukan menurut *Japan Industrial Standart* (JIS), yaitu laju pelindihan dipercepat dalam medium air. Contoh gelas-limbah dihaluskan dan dimasukkan dalam basket dan dipasang pada *soxhlet* untuk direfluks dengan air suling pada suhu 100 °C selama 24 jam. Laju pelindihan gelas-limbah dengan cara *Soxhlet* pada suhu 100 °C dan 1 atm selama 24 jam ini sama dengan laju pelindihan gelas limbah pada suhu kamar selama 1 tahun [12,16,19]. Laju pelindihan dihitung berdasarkan berat contoh yang hilang dengan persamaan:

$$L = W / S.t \quad (3)$$

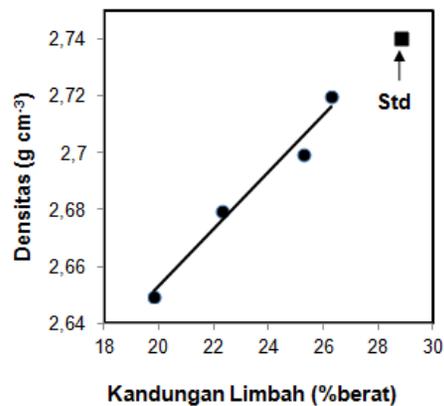
dengan L: laju pelindihan (g cm⁻² hari⁻¹), S: luas permukaan contoh (cm²), W: berat gelas limbah yang terlindih (g), t: waktu pelindihan (hari).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil karakterisasi densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan ditunjukkan pada Gambar 2 sampai dengan Gambar 6. Karakteristik densitas gelas limbah terhadap kandungan limbah ditunjukkan pada Gambar 2.

Pada Gambar 2 tampak bahwa dengan bertambahnya kandungan limbah, maka densitas semakin besar. Pada pembuatan gelas limbah, oksida limbah dan bahan pembentuk gelas memiliki perbandingan yang tertentu, sehingga penambahan kandungan limbah akan diikuti dengan penurunan bahan pembentuk gelas. Adanya penambahan kandungan limbah berarti presentase oksida dari unsur-unsur yang lebih besar massanya meningkat sedangkan

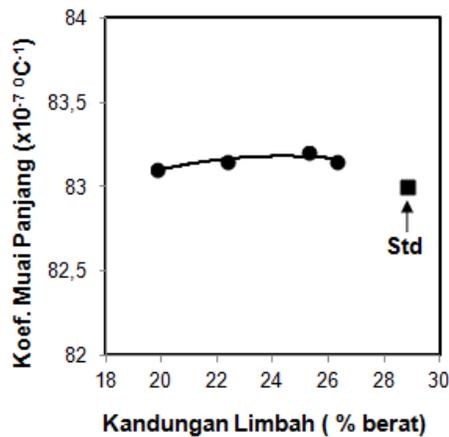
prosentase unsur pembentuk gelas yang lebih rendah massanya menurun. Bertambahnya presentase unsur yang lebih besar massanya akan menaikkan densitasnya. Jika dibandingkan dengan densitas gelas limbah standar (Std) yaitu $2,74 \text{ g/cm}^3$ dengan densitas gelas limbah yang diteliti yaitu gelas limbah dengan kandungan limbah antara 19,84-26,29 %berat yang memiliki densitas berkisar antara $2,65\text{-}2,72 \text{ g/cm}^3$, maka densitas gelas limbah standar nampak lebih besar sekitar (0,73-3,28 %). Hal ini karena kandungan limbah pada gelas limbah standar lebih besar dari pada kandungan limbah pada gelas limbah yang diteliti. Namun demikian perubahan karakteristik densitas gelas limbah ini tidak terlalu besar, sehingga penurunan kandungan limbah dari gelas limbah standar sampai dengan 5 %berat masih menghasilkan gelas limbah dengan karakteristik yang memenuhi persyaratan. Seperti diketahui bahwa data densitas ini sangat penting untuk diketahui guna perancangan *melter*, *canister* serta strategi penyusunan *canister* yang berisi gelas limbah dalam *storage* maupun disposal. Semakin besar densitas gelas limbah maka gelas limbah mampu menerima beban tumpuk yang lebih besar dan hal ini akan lebih menghemat lahan *storage* maupun disposal. Jika kandungan limbah lebih ditingkatkan lagi maka densitas dapat lebih meningkat lagi yang berarti gelas limbah akan semakin mampu menerima beban tumpuk yang lebih besar. Namun demikian kandungan limbah yang semakin besar akan menurunkan jumlah oksida pembentuk gelas, salah satunya yaitu menurunkan jumlah SiO_2 . Seperti diketahui SiO_2 merupakan salah satu unsur dalam bahan pembentuk gelas yang cukup dominan yang membentuk struktur kerangka gelas yang kuat. Jumlah SiO_2 yang menurun dapat mengakibatkan menurunnya karakteristik gelas limbah karena kerangka SiO_2 tidak cukup menampung radionuklida dalam limbah. Hal ini dapat meningkatkan laju pelindihan. Oleh karena itu untuk mendapatkan karakteristik gelas limbah yang baik maka jumlah kandungan limbah dibatasi yaitu maksimal 30 % berat. Kandungan limbah yang lebih tinggi lagi akan lebih meningkatkan laju pelindihan dan ini harus dihindari.



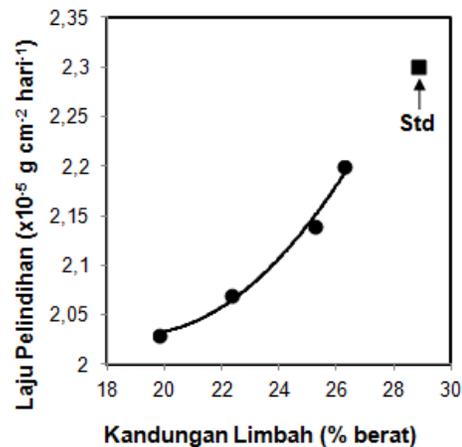
Gambar 2. Karakteristik Densitas Gelas Limbah Terhadap Kandungan Limbah

Karakteristik koefisien muai panjang gelas limbah terhadap kandungan limbah ditunjukkan pada Gambar 3. Pada Gambar 3 tampak bahwa semakin tinggi kandungan limbah maka terjadi peningkatan koefisien muai panjang namun dalam orde yang cukup kecil (orde $10^{-7} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$), sehingga dikatakan bahwa bertambahnya kandungan limbah praktis tidak merubah karakteristik koefisien muai panjang. Kenaikan koefisien muai panjang antara lain dipengaruhi oleh berkurangnya SiO_2 secara signifikan [24]. Dalam penelitian ini penurunan jumlah SiO_2 yang terkait dengan kenaikan kandungan limbah yang diteliti tidak cukup signifikan dapat menaikkan koefisien muai panjang gelas limbah. Perubahan karakteristik koefisien muai panjang gelas limbah akan signifikan jika penurunan jumlah SiO_2 cukup besar. Perbandingan jumlah oksida dalam bahan pembentuk gelas adalah tertentu seperti misalnya antara SiO_2 dan B_2O_3 , dimana dengan semakin tinggi jumlah SiO_2 maka jumlah B_2O_3 akan semakin turun. Koefisien muai panjang B_2O_3 jauh lebih besar dibandingkan dengan koefisien muai panjang SiO_2 yaitu masing-masing 150×10^{-7} dan $(5 - 6) \times 10^{-7} / ^{\circ}\text{C}$, sehingga B_2O_3 akan berpengaruh lebih besar pada koefisien muai panjang gelas limbah [25]. Jika dibandingkan dengan koefisien muai

panjang gelas limbah standar dan gelas limbah yang diteliti yaitu masing –masing $83 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$ dan $(83,1-83,2) \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$ maka tidak terdapat perbedaan yang signifikan artinya koefisien muai panjang tidak mengalami perubahan dengan perubahan kandungan limbah. Hal yang penting diperhatikan adalah perbedaan antara koefisien muai panjang antara *canister* dan gelas limbah. Pada saat gelas limbah mengalami perubahan fase (*transition point*), perubahan koefisien muai panjang dari gelas limbah sangat besar. Pada kondisi tersebut, bila penyusutan volume antara gelas limbah dan *canister* tidak sebanding, maka akan terjadi tegangan kompresi pada *interface* antara *canister* dan gelas limbah. Keadaan ini akan mengakibatkan keretakan kecil sampai kehancuran gelas limbah tergantung dari besarnya tegangan kompresi. Koefisien muai panjang merupakan sifat yang penting untuk mengevaluasi ketahanan gelas-limbah terhadap kejutan panas.



Gambar 3. Karakteristik Koefisien Muai Panjang Gelas Limbah Terhadap Kandungan Limbah

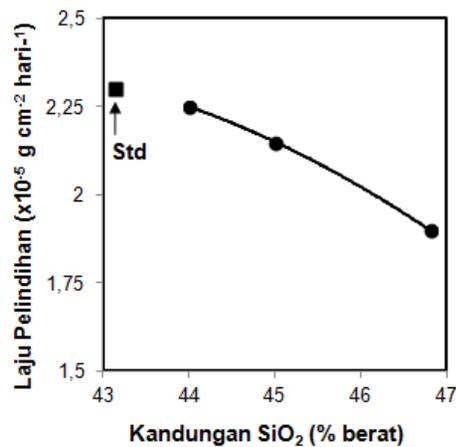


Gambar 4. Karakteristik Laju Pelindihan Gelas Limbah Terhadap Kandungan Limbah

Karakteristik laju pelindihan terhadap pengaruh kandungan limbah ditunjukkan pada Gambar 4. Dari Gambar 4 tampak bahwa kandungan limbah yang semakin besar akan meningkatkan laju pelindihan. Kandungan limbah yang besar berarti jumlah radionuklida yang harus ditampung dalam kerangka gelas juga besar, bahkan kerangka gelas akan menjadi penuh dengan radionuklida yang terkandung dalam limbah. Akibatnya, radionuklida mudah terlindih

keluar. Gelas limbah dengan laju pelindihan yang besar merupakan gelas limbah dengan kualitas yang tidak baik. Laju pelindihan gelas-limbah hasil penelitian ($2,03-2,2 \times 10^{-5} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1}$) lebih kecil dari harga laju pelindihan gelas-limbah standar ($2,3 \times 10^{-5} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1}$). Hal ini karena pada gelas limbah standar jumlah kandungan limbah lebih besar dari jumlah kandungan limbah yang diteliti sehingga jumlah radionuklida yang harus ditampung dalam kerangka gelas semakin banyak, sehingga potensi pelindihan radionuklida keluar dari gelas limbah semakin besar. Yang perlu diperhatikan adalah semakin kecil laju pelindihan menunjukkan bahwa gelas-limbah mempunyai kualitas yang cukup baik. Laju pelindihan merupakan karakteristik yang penting mengingat tujuan akhir dari immobilisasi limbah adalah untuk memperkecil potensi terlepasnya radionuklida yang ada dalam limbah ke lingkungan.

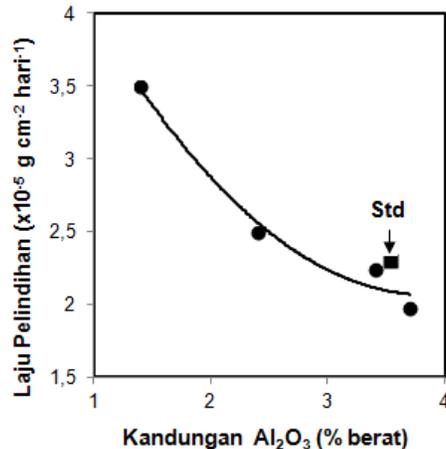
Jumlah kandungan limbah dan jumlah bahan pembentuk gelas memiliki keterkaitan yang cukup besar terhadap karakteristik gelas limbah hasil vitrifikasi terutama karakteristik laju pelindihan. Terdapat 2 unsur penting dalam bahan pembentuk gelas yaitu SiO_2 dan Al_2O_3 yang berpengaruh terhadap karakteristik laju pelindihan gelas limbah. Gambar 5 menunjukkan karakteristik laju pelindihan gelas limbah terhadap kandungan SiO_2 .



Gambar 5. Karakteristik Laju Pelindihan Gelas Limbah Terhadap Kandungan SiO_2

Pada Gambar 5 tampak bahwa semakin besar kandungan bahan pembentuk gelas SiO_2 , maka laju pelindihan menurun. Unsur Si merupakan salah satu unsur dalam bahan pembentuk gelas yang cukup dominan yang membentuk struktur kerangka gelas yang kuat. Semakin tinggi kandungan SiO_2 maka jumlah kerangka gelas yang terbentuk yang dapat ditempati unsur radionuklida didalamnya semakin banyak. Oleh karena itu radionuklida dalam limbah akan terikat cukup kuat dalam kerangka gelas sehingga potensi terlindihnya radionuklida keluar gelas limbah menjadi kecil. Laju pelindihan gelas standar paling tinggi dibandingkan dengan laju pelindihan gelas limbah yang diteliti. Hal ini karena gelas limbah standar memiliki kandungan SiO_2 yang lebih kecil dibandingkan dengan gelas limbah yang diteliti. Semakin tinggi kandungan SiO_2 maka kualitas gelas limbah akan semakin baik karena karakteristik laju pelindihannya semakin kecil. Namun demikian kandungan SiO_2 yang besar akan menaikkan titik leleh dan viskositas gelas limbah, sehingga proses vitrifikasi memerlukan suhu yang lebih tinggi lagi. Ini akan meningkatkan laju korosi refractory (bata tahan api) melter sehingga meningkatkan timbulnya limbah radioaktif padat sekunder. Demikian pula untuk bisa menuangkan lelehan gelas limbah dari melter ke canister perlu pemanasan yang lebih tinggi. Hal ini akan mengakibatkan energi untuk pembentukan gelas limbah menjadi lebih tinggi.

Karakteristik laju pelindihan gelas limbah terhadap jumlah kandungan bahan pembentuk gelas Al_2O_3 ditunjukkan pada Gambar 6.



Gambar 6. Karakteristik Laju Pelindihan Gelas Limbah Terhadap Jumlah Kandungan Al_2O_3

Unsur Si dan Al merupakan unsur pembentuk kerangka gelas yang jumlahnya dapat mempengaruhi karakteristik gelas limbah. Pengaruh jumlah kandungan Al_2O_3 mirip dengan pengaruh jumlah kandungan SiO_2 terhadap karakteristik gelas limbah, yaitu menurunkan laju pelindihan gelas limbah. Hal ini seperti yang ditunjukkan pada **Gambar 6** bahwa semakin tinggi jumlah kandungan Al_2O_3 maka karakteristik laju pelindihan semakin menurun. Alumina merupakan suatu unsur yang mempunyai kekuatan ikat menengah, artinya unsur ini agak sukar membentuk kerangka gelas tetapi menaikkan ketahanan kimianya. Silika dan alumina dapat saling mensubstitusi, sehingga untuk mendapatkan ikatan yang lebih kuat maka Al^{+3} dapat mengganti Si^{+4} dengan cara mengikat satu unsur lagi, sehingga terjadi ikatan yang lebih kuat. Pengurangan kandungan Al_2O_3 dibawah 3,7 % berat akan menaikkan laju pelindihannya. Substitusi Al pada Si sampai dengan 5% akan menurunkan laju pelindihannya sampai dengan 60 kali.

KESIMPULAN

Karakteristik densitas gelas limbah dipengaruhi oleh jumlah kandungan limbah. Kenaikan jumlah kandungan limbah akan menaikkan densitas gelas limbah. Jika dibandingkan dengan gelas limbah standar, maka adanya perubahan kandungan limbah antara (19,84-26,29 %berat) yang lebih kecil dari kandungan limbah standar memberikan karakteristik densitas yang lebih rendah. Perubahan jumlah kandungan limbah tidak merubah karakteristik koefisien muai panjang, bahkan terhadap koefisien muai panjang gelas limbah standar. Karakteristik laju pelindihan semakin meningkat dengan meningkatnya jumlah kandungan limbah bahkan gelas limbah standar memiliki laju pelindihan yang lebih besar dari gelas limbah yang diteliti. Peningkatan kandungan SiO_2 maupun Al_2O_3 dapat menurunkan laju pelindihan. Perubahan jumlah kandungan limbah dan bahan pembentuk gelas tidak signifikan mempengaruhi karakteristik densitas, koefisien muai panjang dan laju pelindihan. Penentuan salah satu karakteristik gelas limbah harus dikompromikan dengan karakteristik yang lain.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. IAEA, *Spent Fuel Reprocessing Options*, Tecdoc Series No.1587, IAEA, Vienna, (2008).
- [2]. IAEA, *Management of Reprocessed Uranium Current Status and Future Prospects*, Tecdoc Series No. 1529, IAEA, Vienna (2007).
- [3]. www.numo.or.jp/en/jigyounew_eng_tab04.html, *The Recycling of Nuclear Fuel and High Level Radioactive Waste* (Januari 2011)
- [4]. http://nucltrans.org/Nuc_Trans/links/frames/top-backend-fuel.htm, *Transparency in the Back End of the Nuclear Fuel Cycle* (Desember 2012).

- [5]. www.jolisfukyu.tokai-sc.jaea.go.jp/fukyu/mirai-en/2006/8_2.html, *Characteristics of HLW Generated from Future Cycles: Perspectives on Application and Flexibility of Current Vitrification Technology for High Level Wastes (HLW) Generated from Future Fuel Cycles* (Juli 2012)
- [6]. <http://sti.srs.gov/fulltext/WSRC-STI-2007-00238.pdf>, Carol, M., Jantzen and James, C., M., *High Level Waste (HLW) Vitrification Experience in the US: Application of Glass Product/Process Control to Other HLW and Hazardous Wastes*, (Oktober 20011).
- [7]. Kanwar Raj and Kaushik, C.P., Glass Matrices for Vitrification of Radioactive Waste: an Update on R & D Efforts, *Materials Science and Engineering*, Vol 2, p.1-6, (2006).
- [8]. Devaux, J.L., Jean, D., Baillif, F., *Industrial HLW Immobilization in Glass in France: Vitrified Waste Characterization and Quality Control Program*, IAEA-SM-326/42, Belgium, (1992).
- [9]. Petitjean, V., Paul, D., Fillet, C., Boen, R., Veyer, C., Flament, T., Development of Vitrification Process and Glass Formulation for Nuclear Waste Conditioning, (WM'02 Conference, February 24-28, 2002), p. 1-9, Tucson, (2003).
- [10]. Roth, G., and Weisenburger, S., Vitrification of high-level liquid waste: glass chemistry, process chemistry and process technology, *Nuclear Engineering and Design*, Vol. 202(2-3), p.197-207, (2000).
- [11]. www.grayglass.net/glass.cfm/Lighting/Borosilicate/catid/3/conid/79, Borosilicate (Januari 2011).
- [12]. Martono, H., Persyaratan Gelas-Limbah Untuk Vitrifikasi Skala Industri Dan Penyimpanan, *Jurnal Teknologi Pengelolaan Limbah*, Vol.8(1), hal.8-15, 2005.
- [13]. Martono, H., Perbandingan Gelas Keramik dan Gelas Borosilikat untuk Solidifikasi Limbah Aktivitas Tinggi, Prosiding Seminar Nasional ke 37, Jaringan Kerja Sama Kimia Indonesia, hal.121--126, Jakarta, (2006).
- [14]. Aisyah, Martono, H., Pengaruh Perlakuan Panas dan Kandungan Limbah Terhadap Perubahan Struktur Gelas-Limbah, *J. Teknol Pengelolaan Limbah*, Vol. 13 (2), hal.8-17, (Des.2010).
- [15]. Martono, H., Aisyah, Pengaruh Radiasi Terhadap Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi Limbah Aktivitas Tinggi, Prosiding Seminar Nasional Kimia 2012, ISBN:978-979-028-550-7, hal. D14-D22 Jurusan Kimia-FMIPA, Universitas Negeri Surabaya, Unesa University Press, Surabaya, (2012).
- [16]. Martono H., *Training Report on Treatment of High Level Liquid Waste and Characterization of Waste Glass*, PNC, Jepang, (1998).
- [17]. Aisyah, Martono, H., Pengelolaan Limbah Radioaktif Hasil Samping Produksi Radioisotop Molibdenun-99, Prosiding Seminar Teknologi Pengelolaan Limbah V, ISSN: 1410 – 6086, hal. 26-38, PTLR-BATAN, Serpong, (2007).
- [18]. Martono, H., Aisyah, Wati, Pengolahan Limbah Cair Hasil Samping Pengujian Bahan Bakar Paska Iradiasi Dari Instalasi Radiometalurgi, *J. Teknol. Pengelolaan Limbah*, Vol.10(2), hal.1-8,(Des. 2007).
- [19]. IAEA, *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*, Tecdoc -1537, IAEA, Vienna, (2007).
- [20]. www.brand.de/fileadmin/user/pdf/GK800/english/GK800_04_Temp_and_Density_e.pdf, *Temperature and Density Measurement* (Pebruari 2011).
- [21]. Lima, M.,M and Monteiro,R., Characterisation and thermal behaviour of a borosilicate glass, *Thermochimica Acta*, Vol 373(1), p. 69-74, (2001), Available: www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0040603101004567, (Desember 2010).
- [22]. Bouras,N., Madjoubi, M.,A., Kolli, S., Benterki and Hamidouche, M., Thermal and Mechanical characterization of borosilicate glass, Proceedings of the JMSM 2008 Conference, Physics Procedia, Vol. 2(3), p.1135-1140, (2009).
- [23]. www.glassproperties.com/expansion/ExpansionMeasurement.htm, *Alexander Fluegel, Thermal Expansion Measurement of Glasses* (Desember 2011).
- [24]. Martono, H., Aisyah, Pengaruh Kandungan Radionuklida Hasil Belah Terhadap Sifat Fisika Dan Kimia Gelas-Limbah, Prosiding Seminar Nasional Kimia Dan Kongres Nasional Himpunan Kimia Indonesia, Pusat Penelitian Kimia - LIPI Dan Himpunan Kimia Indonesia, hal. 436-443, Jakarta, (2006)..
- [25]. www.wilmad-labglass.com/pdf/borosilicate_glass_props.pdf, *Technical information: Borosilicate Glass Properties* (Januari 2011).