

PEMANFAATAN AMONIUM ZEOLIT DAN POLIMER DALAM PENGOLAHAN LIMBAH AIR PENDINGIN REAKTOR NUKLIR

Aisyah

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

ABSTRAK

PEMANFAATAN AMONIUM ZEOLIT DAN POLIMER DALAM PENGOLAHAN LIMBAH AIR PENDINGIN REAKTOR NUKLIR. Pengoperasian reaktor nuklir akan menimbulkan limbah radioaktif yang salah satunya adalah limbah air pendingin primer yang mengandung hasil belah Sr^{90} , Cs^{137} dan produk korosi Co^{60} . Limbah ini harus dikelola dengan baik agar tidak memberikan dampak bagi masyarakat dan lingkungan. Telah dilakukan penelitian pengolahan limbah air pendingin primer dengan memanfaatkan zeolit murni dan amonium zeolit, serta imobilisasi zeolit bekas menggunakan polimer. Penelitian bertujuan untuk mempelajari kemampuan penyerapan zeolit murni dan amonium zeolit terhadap Sr, Cs dan Co, serta karakteristik hasil imobilisasi. Percobaan dilakukan secara satu dengan mengkontakkan zeolit murni dan amonium zeolit dengan limbah air pendingin reaktor simulasi yang mengandung Sr, Cs dan Co dalam berbagai waktu kontak. Imobilisasi amonium zeolit bekas dengan polimer dilakukan pada berbagai kandungan limbah 10, 20, 30, 40 dan 50 % berat. Karakteristik blok polimer-amonium zeolit bekas yang dipelajari adalah densitas, kuat tekan dan laju pelindihan. Hasil penelitian menunjukkan bahwa waktu kontak optimal adalah 90 menit dengan efisiensi penyerapan amonium zeolit lebih tinggi dibandingkan zeolit murni, dengan urutan: $\text{Sr} > \text{Co} > \text{Cs}$. Karakterisasi blok polimer-amonium zeolit bekas menunjukkan bahwa semakin besar kandungan limbah maka densitas dan laju pelindihan semakin tinggi dan kuat tekan semakin turun. Karakteristik blok polimer-amonium zeolit bekas terbaik diperoleh pada kandungan limbah 20 % berat dengan densitas $1,3051 \text{ g/cm}^{-3}$, kuat tekan $9,68 \text{ kN/cm}^{-2}$ dan tidak terdeteksi adanya hasil belah yang keluar dari blok polimer-amonium zeolit bekas.

Kata kunci: Hasil belah, air pendingin reaktor, zeolit, polimer.

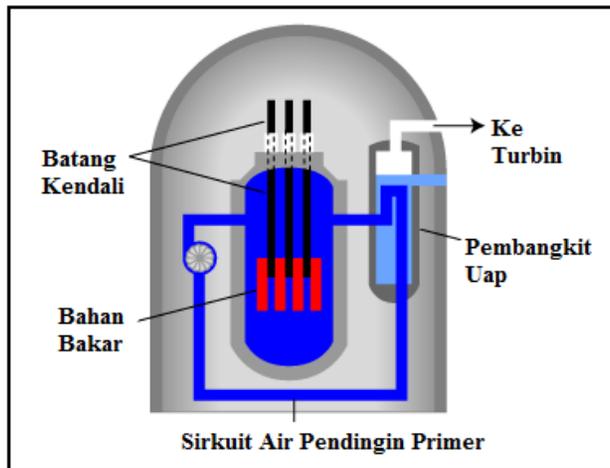
ABSTRACT

UTILIZATION OF AMMONIUM ZEOLITES AND POLYMERS IN TREATMENT OF COOLANT WASTE OF NUCLEAR REACTOR. Operation of nuclear reactor generates radioactive wastes, and one them is the waste from primary coolant water that contain fission products Sr^{90} , Cs^{137} and corrosion product Co^{60} . This waste must be managed to prevent impact to the community and environment. A research on treatment of primary cooling water that contain fission products by utilizing pure zeolite and ammonium zeolite, and immobilization of the spent ammonium zeolite with polymer has been completed. The aim of the research is to study both the sorption ability of pure zeolite and ammonium zeolite to Sr, Cs and Co, and the characteristics of the immobilization product. The experiments was carried out by contacting pure zeolite and ammonium zeolite with simulated waste which contain Sr, Cs and Co in a varied contact time. Immobilization of spent ammonium zeolite with a polymer is conducted in a varied waste loading, i.e.: 10, 20, 30, 40 and 50% weight. The characterization of the ammonium zeolite-polymer blocks was performed by the measurement of the density, compressive strength and leaching rate. The result, at the 90 minutes optimal contact time, showed that the ammonium zeolite sorption efficiency is higher than pure zeolite's, in an order of $\text{Sr} > \text{Co} > \text{Cs}$. The characteristics of ammonium zeolite-polymer blocks was found to be the greater the waste loading the higher the density of the waste, as well as the compressive strength and the leaching rate. The best ammonium zeolite-polymer blocks were obtained at waste loading of 20% weight, the blocks density of 1.3051 g/cm^3 , and the compressive strength of 9.68 kN/cm^2 . The presence of fission product leaching was not detected.

Keywords: Fission product, water-cooled reactor, zeolite, polymer.

PENDAHULUAN

Sistem pendingin merupakan salah satu komponen penting dalam pengoperasian suatu reaktor, baik sistem pendingin primer maupun sekunder. Sistem pendingin reaktor berfungsi sebagai medium pembawa panas yang ditimbulkan akibat terjadinya reaksi fisi dalam teras reaktor. Panas dalam teras reaktor diambil oleh sistem pendingin primer dan kemudian dipindahkan ke sistem pendingin sekunder melalui sistem penukar panas atau pada reaktor daya, panas dari sistem pendingin primer dimanfaatkan untuk pembangkit uap panas yang selanjutnya uap panas ini digunakan untuk menggerakkan turbin pembangkit listrik, dengan susunan komponen reaktor seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1[1]. Pada Gambar 1 tampak bahwa komponen penting suatu reaktor terdiri dari bahan bakar, batang kendali, sirkuit air pendingin primer, pembangkit uap dan turbin.



Gambar 1. Susunan komponen dalam suatu reaktor nuklir [1].

Di dalam reaktor, air pendingin primer akan terkontaminasi bahan radioaktif hasil fisi, aktivasi maupun korosi yang berasal dari interaksi antara unsur-unsur kimia yang terkandung dalam komponen-komponen reaktor termasuk air pendingin primer dengan neutron.

Adapun jenis radionuklida yang terdapat dalam air pendingin primer yang terbentuk dalam reaktor dalam kondisi operasi normal adalah [1-3]:

1. Radionuklida hasil aktivasi unsur-unsur kimia yang terkandung dalam air pendingin primer sebagai pengotor air (^3H , ^{16}N , ^{18}F , ^{41}Ar dan lainnya).
2. Radionuklida hasil belah dari reaksi fisi ^{235}U sebagai kontaminan pada permukaan bahan bakar karena fabrikasi (^{137}Cs , ^{90}Sr , dan lainnya).
3. Radionuklida produk korosi dari material struktur reaktor dan material yang digunakan untuk peralatan pada sistem pendingin primer (^{54}Mn , ^{58}Co , ^{60}Co dan lainnya)

Dari beberapa jenis radionuklida tersebut, maka radionuklida dengan waktu paro sangat pendek seperti ^{16}N , ^{17}N dan ^{18}O akan mengalami peluruhan dalam tangki tunda, sedangkan radionuklida dengan umur paro menengah (^{137}Cs , ^{60}Co , ^{90}Sr dan lainnya) akan tertinggal dalam sistem pendingin reaktor, sehingga tatkala air pendingin dikeluarkan dari reaktor sebagai limbah maka limbah air pendingin tersebut mengandung radionuklida berumur paro menengah seperti ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{90}Sr dan lainnya [3].

Sesuai dengan Undang-undang No.10 Tahun 1997 tentang ketenaganukliran, pengelolaan limbah radioaktif dilaksanakan oleh Pusat Teknologi Limbah Radioaktif (PTLR) selaku Badan Pelaksana. Dalam melaksanakan fungsinya PTLR memiliki Instalasi Pengolahan Limbah Radioaktif (IPLR) yang diperuntukkan untuk mengolah limbah radioaktif cair dari reaktor nuklir G.A. Siwabessy beserta laboratorium pendukungnya. Pengolahan limbah cair dari air pendingin primer reaktor G.A. Siwabessy dilakukan dengan evaporator. Dari proses evaporasi tersebut akan dihasilkan konsentrat yang mengandung hasil belah. Konsentrat hasil belah kemudian diimobilisasi menggunakan semen [4].

Proses evaporasi limbah air pendingin primer reaktor merupakan proses yang memerlukan energi panas yang tinggi sehingga merupakan proses dengan biaya yang relatif tinggi. Selain itu fasilitas evaporator telah beroperasi lebih dari 20 tahun sehingga perlu diwaspadai adanya proses *aging*. Oleh karena itu perlu dilakukan pengembangan proses pengolahan limbah air pendingin primer reaktor yang lebih ekonomis namun tetap dengan tingkat keselamatan yang tinggi. Proses pertukaran ion merupakan salah satu proses pengolahan limbah radioaktif yang memanfaatkan bahan penukar ion seperti resin, bentonit maupun zeolit beserta modifikasinya. Zeolit merupakan mineral alam yang banyak terdapat di Indonesia seperti zeolit Bayah, Lampung, Tasikmalaya, Sukabumi dan lainnya. Namun demikian zeolit alam merupakan adsorben yang memiliki daya serap rendah sehingga untuk meningkatkannya dilakukan modifikasi zeolit alam.

Zeolit merupakan kristal alumina silika yang berstruktur tiga dimensi, yaitu terbentuk dari tetrahedral alumina dan silika dengan rongga-rongga di dalam yang berisi ion-ion logam, biasanya alkali atau alkali tanah dan molekul air. Mineral zeolit yang paling umum dijumpai adalah klinoptilolit, dengan rumus kimia $x/n \text{ Mn}^+[(\text{AlO}_2)_x(\text{SiO}_2)_y] \cdot z\text{H}_2\text{O}$. Mn^+ merupakan kation yang dapat dipertukarkan dengan kation lain, sedangkan atom Al dan Si merupakan struktur kation dan oksigen yang akan membentuk struktur tetrahedron pada zeolit. Molekul air yang terdapat dalam zeolit merupakan molekul yang mudah lepas [5-7]. Oleh karena itu zeolit dapat digunakan sebagai penukar kation untuk pengambilan radionuklida hasil belah yang terkandung dalam air pendingin reaktor dalam pengolahan limbah radioaktif. Namun demikian karena zeolit alam memiliki daya tukar kation yang rendah maka dilakukan modifikasi zeolit alam menjadi amonium zeolit (NH_4 zeolit).

Beberapa peneliti telah mempelajari pemanfaatan zeolit alam maupun beberapa jenis modifikasinya dalam pengelolaan limbah radioaktif maupun industri seperti untuk penyerapan beberapa unsur seperti Sr, Cs, Cr, Ni dan sebagainya [8-12]. Dalam penelitian ini akan dipelajari zeolit murni dan modifikasinya yaitu NH_4 zeolit dalam pengolahan limbah radioaktif cair. Penelitian dilakukan dengan tujuan untuk mempelajari kemampuan penyerapan zeolit murni dan NH_4 zeolit terhadap hasil belah Sr, Cs, dan produk korosi Co yang terdapat dalam limbah air pendingin reaktor nuklir, serta mempelajari karakteristik blok polimer- NH_4 zeolit bekas hasil imobilisasi.

Dalam penelitian ini digunakan limbah air pendingin primer reaktor nuklir simulasi yang mengandung Sr, Cs dan Co. Proses penyerapan dilakukan dengan parameter waktu kontak. Amonium zeolit yang telah jenuh dengan Sr, Cs dan Co yang selanjutnya disebut sebagai NH_4 zeolit bekas kemudian diimobilisasi dengan polimer poliester dengan parameter jumlah kandungan limbah. Karakterisasi hasil imobilisasi yang berupa blok polimer- NH_4 zeolit bekas ditentukan densitas, kuat tekan dan laju pelindihan. Densitas ditentukan dengan mengukur masa dan volume blok polimer- NH_4 zeolit bekas, kuat tekan diukur dengan alat uji tekan Paul Weber dan laju pelindihan diukur dengan alat sokhlet. Analisis Sr, Cs dan Co dilakukan dengan alat analisis *Atomic Absorption Spectrometer* (AAS).

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Bidang Teknologi Pengolahan Limbah Dekontaminasi dan Dekomisioning, Pusat Teknologi Limbah Radioaktif, Badan Tenaga Nuklir Nasional pada Tahun 2012. Penelitian dilakukan sebagai upaya mempersiapkan suatu proses pengolahan limbah radioaktif cair aktivitas rendah dan sedang sebagai antisipasi menghadapi *aging* dari fasilitas evaporator. Selama ini pengolahan limbah radioaktif aktivitas rendah dan sedang yang pada umumnya merupakan limbah pendingin reaktor dilakukan secara evaporasi menggunakan evaporator.

METODE

Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah Zeolit Lampung, Stronsium Nitrat $\{\text{Sr}(\text{NO}_3)_2\}$, Cobal Nitrat Heksa Hidrat $\{\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}\}$, Cesium Chlorida (CsCl), Metil Iodida (CH_3I), Perak Nitrat (AgNO_3), Kalium Chlorida (KCl), NH_4Cl , dan Polimer Poliester.

Alat

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain timbangan, seperangkat alat refluks, *roller*, alat gelas, *Atomic Absorption Spectrometer* (AAS), jangka sorong, alat uji tekan (*Paul Weber*), alat sokhlet, *hot plate*, oven dan lainnya.

Tata Kerja

Pembuatan Zeolit Murni

Zeolit alam yang berasal dari Lampung dibersihkan dari kotoran dan batuan-batuan lain dan kemudian dihaluskan serta diayak untuk memperoleh ukuran partikel zeolit antara 40 - 60 mesh. Zeolit dimurnikan dengan cara di refluks dengan air bebas mineral selama 3 x 8 jam, hal ini untuk memisahkan garam terlarut yang tercampur. Setiap 8 jam air bebas mineral diperbaharui. Zeolit kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 105 °C selama 3 jam. Selanjutnya dilakukan pemisahan zeolit dari partikel/ mineral berat dengan menggunakan metil iodida (CH₃I). Zeolit yang bebas dari mineral berat seperti silikat akan mengapung dibagian atas dalam cairan metil iodida. Zeolit dipisahkan dari mineral berat sehingga diperoleh zeolit murni yang masih dalam bentuk multi kation. Zeolit murni disimpan dalam desikator yang mengandung NaCl jenuh minimal satu minggu sebelum dikarakterisasi [13,14].

Pembuatan NH₄ Zeolit

Zeolit murni sebanyak 100 gram direfluks dalam 400 ml larutan NH₄Cl jenuh selama 3 x 8 jam, selanjutnya dilakukan pencucian dengan air bebas mineral sampai filtrat bebas dari ion Cl (tes negatif menggunakan larutan AgNO₃ 1%). Amonium zeolit yang telah terbentuk kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 70 °C selama 3 jam dan disimpan dalam desikator yang mengandung NaCl jenuh selama seminggu. Amonium zeolit siap digunakan untuk percobaan [5,15].

Pembuatan Limbah Simulasi

Limbah air pendingin reaktor yang mengandung hasil belah dan produk korosi dibuat secara simulasi dengan cara melarutkan Sr (NO₃)₂, CsCl dan Co(NO₃)₂.6H₂O masing-masing dengan konsentrasi Sr, Cs dan Co sebesar 75, 250, 50 ppm. Konsentrasi radionuklida hasil belah dan produk korosi pada limbah simulasi mengacu pada konsentrasi radionuklida hasil belah dan produk korosi pada limbah air pendingin Reaktor GA Siwabesy yang dikirim ke Pusat Teknologi Limbah Radioaktif untuk dilakukan pengelolaan.

Percobaan Penyerapan Hasil Belah

Percobaan penyerapan Sr, Cs dan Co yang terkandung dalam limbah simulasi dilakukan menggunakan zeolit murni dan NH₄ zeolit secara terpisah dengan parameter waktu kontak. Setelah diperoleh waktu kontak yang optimum, maka dilakukan percobaan penyerapan campuran Sr, Cs dan Co oleh NH₄ zeolit. Dari percobaan ini dapat dilihat faktor kompetisi dari radionuklida yang terkandung dalam limbah simulasi.

Percobaan pengambilan Sr, Cs dan Co dilakukan dengan mengkontakkan zeolit murni maupun NH₄ zeolit masing-masing sebanyak 0,25 gram dengan 250 ml larutan limbah simulasi yang masing-masing mengandung Sr, Cs dan Co. Masing-masing campuran kemudian dirolling dalam waktu 30, 60, 90, 120 dan 150 menit. Beningan dianalisis konsentrasi Sr, Cs dan Co sehingga diperoleh waktu kontak yang optimum [16]. Dengan cara yang sama percobaan pengambilan campuran Sr, Cs dan Co dilakukan dengan NH₄ zeolit dengan waktu kontak optimum pada percobaan sebelumnya. Kemampuan penyerapan Sr, Cs dan Co oleh zeolit murni maupun NH₄ zeolit didefinisikan sebagai efisiensi penyerapan, yang dihitung sebagai jumlah Sr, Cs dan Co yang terserap dalam zeolit murni maupun NH₄-zeolit, dan dihitung dengan persamaan:

$$\text{Efisiensi Penyerapan Sr/Cs/Co} = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100\% \quad (1)$$

dimana C₀ dan C_t masing-masing adalah konsentrasi Sr, Cs dan Co mula-mula dan konsentrasi dalam beningan.

Penjenuhan NH₄ Zeolit dengan Limbah Simulasi

Penjenuhan NH₄ zeolit dengan limbah simulasi dilakukan untuk imobilisasi NH₄ Zeolit yang telah digunakan untuk percobaan penyerapan limbah. Penjenuhan dilakukan dengan cara mengkontakkan NH₄ zeolit dengan campuran limbah simulasi pada kondisi penyerapan optimum. NH₄ zeolit yang telah jenuh limbah simulasi selanjutnya disebut NH₄ zeolit bekas.

Imobilisasi NH₄ Zeolit Bekas dengan Polimer Poliester

Imobilisasi NH₄ zeolit bekas dilakukan dengan polimer poliester pada variasi kandungan limbah 0, 10, 20, 30, 40, dan 50 % berat. Imobilisasi dilakukan dengan mencampur NH₄ zeolit bekas dengan polimer poliester dengan jumlah masing-masing sesuai dengan kandungan limbahnya. Campuran polimer dan NH₄ zeolit bekas diaduk sampai homogen kemudian dimasukkan ke dalam cetakan yang berbentuk silinder dengan ukuran 2x2x2 cm dan dibiarkan selama 8 jam untuk proses *curing* sehingga diperoleh blok polimer-NH₄ zeolit bekas. Karakterisasi dilakukan terhadap blok polimer-NH₄ zeolit bekas yang telah mengeras dengan mengukur densitas, kuat tekan dan laju pelindahannya [13,15].

Karakterisasi Blok Polimer-NH₄ Zeolit Bekas

Karakterisasi blok polimer-NH₄ zeolit bekas dilakukan dengan metode [13-16]:

1. Pengukuran densitas dilakukan dengan mengukur volume dan masa blok polimer- NH₄ zeolit bekas. Densitas blok polimer-NH₄ zeolit bekas dihitung dengan persamaan:

$$\rho = \frac{m}{V} \quad (2)$$

dimana: ρ = berat jenis (gram cm⁻³), m = massa blok polimer-NH₄ zeolit bekas (gram), V = volume blok polimer-NH₄ zeolit bekas (cm³).

2. Uji Tekan dilakukan dengan alat tekan Paul Weber. Blok polimer-NH₄ zeolit bekas dilakukan penekanan sampai pecah. Kekuatan tekan blok polimer-NH₄ zeolit bekas dihitung dengan persamaan:

$$\sigma_c = \frac{P_{maks}}{A} \quad (3)$$

dimana σ_c adalah kekuatan tekan (kN/cm²); P_{maks} : beban tekanan maksimum (kN); dan A adalah luas penampang blok polimer-NH₄ zeolit bekas mula-mula (cm²).

3. Laju pelindihan dilakukan menurut *Japan Industrial Standard (JIS)*, yaitu laju pelindihan dipercepat dalam medium air. Blok polimer-NH₄ zeolit bekas dimasukkan dalam basket dan dipasang pada alat sokhlet untuk direfluks dengan air suling pada suhu 100 °C selama 24 jam. Laju pelindihan dihitung berdasarkan:

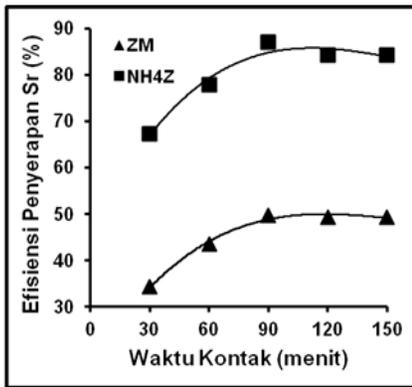
$$L = W/S.t \quad (4)$$

dimana: L : laju pelindihan (g cm⁻² hari⁻¹), W : berat nuklida dalam blok polimer-NH₄ zeolit bekas yang terlindih (g), S : luas permukaan blok polimer-NH₄ zeolit bekas (cm²), dan t : waktu pelindihan (hari)

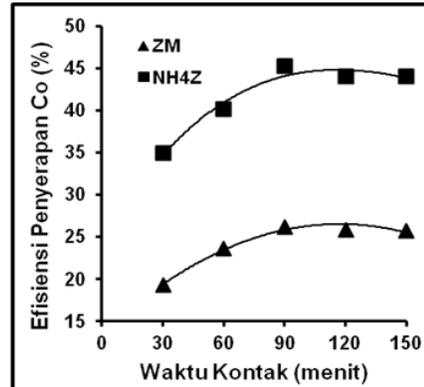
HASIL DAN PEMBAHASAN

Komposisi kimia zeolit murni Lampung yang dianalisis menggunakan X-ray Fluorecense (XRF) adalah SiO₂: 72,6; Al₂O₃: 12,4; Fe₂O₃ 1,19; Na₂O: 0,45; TiO₂: 0,16; MgO: 1,15; K₂O: 2,17; CaO: 3,56 % berat; SiO₂/ Al₂O₃ : 5,85 [17]. Dari komposisi terlihat bahwa ratio SiO₂/Al₂O₃ zeolit lampung tergolong zeolit dengan kadar Si sedang. Sebagai adsorben, katalis maupun penukar ion ratio Si/Al memegang peranan penting. Terkait dengan ratio Si/Al terdapat 3 kelompok zeolit, yaitu zeolit dengan kadar Si rendah mempunyai ratio Si/Al=1, zeolit dengan kadar Si sedang mempunyai rasio Si/Al = 5 dan zeolit dengan kadar Si tinggi mempunyai rasio Si/Al=10–100 [18]. Zeolit alam Lampung memiliki komposisi mineral 78 % Klinoptilolit, analsim 14 % dan modernit 8 %. Modernit merupakan salah satu zeolit alam dengan ratio Si/Al yang tinggi. Hal ini menyebabkan modernit memiliki stabilitas termal yang tinggi. Klinoptilolit memiliki atom Al sedikit sehingga kapasitas pertukaran ionnya kecil [17]. Hal ini berarti bahwa sebagian besar ion pusat struktur adalah silika yang bermuatan +4 dan mengikat 4 atom oksigen sehingga netral. Adanya ion Al yang bermuatan +3 menjadikan struktur tidak stabil dan menarik kation-kation disekitarnya untuk menetralkan muatan. Jenis klinoptilolit sangat baik digunakan sebagai penyaring molekul termasuk menyerap molekul-molekul dari limbah radioaktif [17]. Oleh karena itu zeolit alam lampung yang mengandung klinoptilolit cukup banyak ini dapat digunakan untuk mereduksi radionuklida yang terkandung dalam limbah radioaktif. Untuk meningkatkan efisiensi penyerapan radionuklida yang terdapat dalam limbah radioaktif maka telah dilakukan modifikasi zeolit alam menjadi NH₄ Zeolit dengan hasil seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2-6.

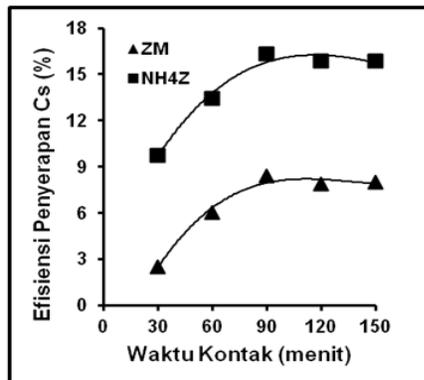
Pada Gambar 2-4 terlihat bahwa efisiensi penyerapan Sr, Co dan Cs oleh NH₄ zeolit lebih besar dari pada zeolit murni. Hal ini karena NH₄ zeolit merupakan unikation, sedangkan pada zeolit murni masih merupakan multikation. Zeolit dengan unikation memiliki kapasitas tukar kation (KTK) yang lebih tinggi dibandingkan dengan zeolit multi kation. Demikian juga pada pengaruh waktu kontak terhadap efisiensi penyerapan, tampak bahwa efisiensi penyerapan meningkat dengan meningkatnya waktu kontak baik untuk zeolit murni maupun untuk NH₄ zeolit. Hal ini terjadi karena semakin lama waktu kontak berarti reaksi semakin sempurna sampai dicapai kesetimbangan. Waktu kontak optimum dicapai pada waktu kontak 90 menit dengan efisiensi penyerapan Sr, Co dan Cs pada zeolit murni dan NH₄ zeolit masing-masing 49,76 dan 86,93 %; 26,16 dan 45,21% serta 8,39 dan 16,33 %.



Gambar 2. Pengaruh Waktu Kontak Terhadap Efisiensi Penyerapan Sr oleh Zeolit dan NH₄ Zeolit



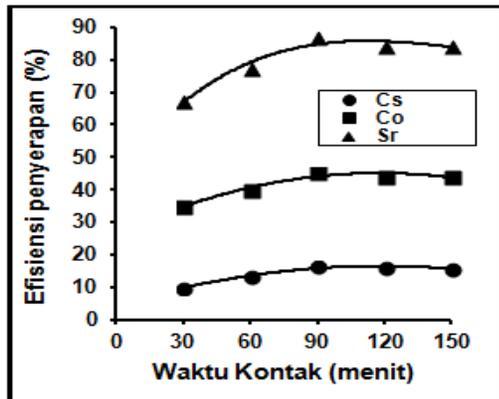
Gambar 3. Pengaruh Waktu Kontak Terhadap Efisiensi Penyerapan Co oleh Zeolit dan NH₄ Zeolit



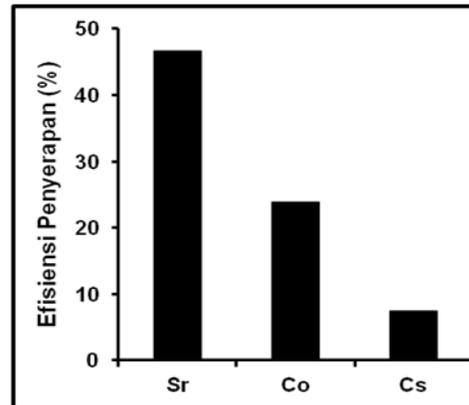
Gambar 4. Pengaruh Waktu Kontak Terhadap Efisiensi Penyerapan Cs oleh Zeolit dan NH₄ Zeolit.

Gambar 5 menunjukkan pengaruh waktu kontak terhadap efisiensi penyerapan Sr, Co dan Cs oleh NH₄ zeolit. Pada Gambar tampak bahwa efisiensi penyerapan NH₄ zeolit yang paling tinggi adalah terhadap Sr, kemudian Co dan yang paling rendah adalah efisiensi penyerapan terhadap Cs. Hal ini dapat diterangkan bahwa ion-ion divalent akan lebih kuat terserap dari pada ion-ion monovalent pada sorpsi radionuklida berkonsentrasi rendah. Selain itu jari-jari ion juga berkontribusi dalam proses penyerapan (pertukaran ion). Seperti diketahui bahwa jari-jari ion Sr²⁺, Co²⁺ dan Cs⁺ masing-masing 1,13; 0,99; dan 1,69 Å [19]. Semakin besar jari-jari ion maka akan lebih mudah terserap, sehingga untuk radionuklida divalen Sr dan Co maka Sr akan terserap lebih banyak dari Co. Oleh karena itu efisiensi penyerapan sesuai dengan urutan Sr²⁺ > Co²⁺ > Cs⁺.

Untuk mengetahui kompetisi penyerapan radionuklida Sr, Co dan Cs yang berada suatu larutan oleh NH₄ zeolit dalam waktu kontak 90 menit, maka diperoleh hasil seperti yang ditunjukkan pada Gambar 6. Sejalan dengan Gambar 5, pada Gambar 6 yaitu efisiensi penyerapan Sr, Co dan Cs yang berada dalam satu larutan terhadap NH₄ Zeolit tampak bahwa efisiensi penyerapan paling tinggi adalah Sr kemudian Co dan yang paling rendah adalah Cs masing-masing 46,65; 23,91 dan 7,47 %. Untuk masing-masing radionuklida, efisiensi penyerapan dalam campuran lebih rendah dibandingkan dengan efisiensi penyerapan masing-masing radionuklida secara terpisah. Hal ini menunjukkan adanya kompetisi dari ketiga radionuklida tersebut. Terlihat bahwa efisiensi penyerapan tertinggi adalah Sr sesuai dengan urutan Sr²⁺ > Co²⁺ > Cs⁺.



Gambar 5. Pengaruh Waktu Kontak Terhadap Efisiensi Penyerapan Sr, Co dan Cs oleh NH₄ Zeolit.



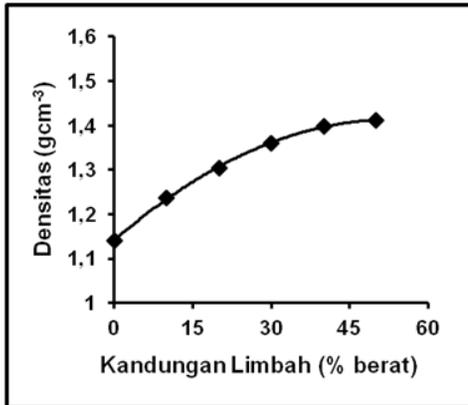
Gambar 6. Pengaruh Waktu Kontak Terhadap Efisiensi Penyerapan Campuran Sr, Co dan Cs oleh NH₄ Zeolit.

Terdapat beberapa faktor yang berpengaruh pada efisiensi penyerapan (termasuk didalamnya mekanisme pertukaran ion) antara lain [20]:

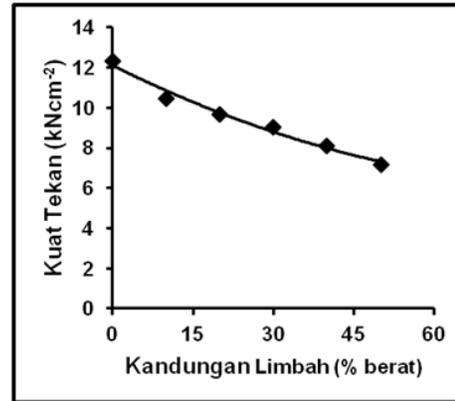
1. Dalam larutan dengan konsentrasi rendah, dan pada suhu kamar maka tingkat efisiensi penyerapan bertambah dengan bertambahnya valensi ion yang bertukar, seperti Na⁺ < Ca²⁺ < Al³⁺ < Th⁴⁺.
2. Pada kondisi yang serupa dan pada valensi yang konstan, untuk ion-ion yang univalen (bervalensi 1) tingkat pertukaran bertambah dengan berkurangnya ukuran ion terhidrasinya seperti Li⁺ < H⁺ < Na⁺ < NH₄⁺ < K⁺ < Rb⁺ < Cs⁺, sementara untuk ion divalen, semakin besar ukuran ion maka proses pertukaran akan meningkat seperti Ni²⁺ < Co²⁺ < Ca²⁺ < Sr²⁺ < Pb²⁺ < Ba²⁺.

Hasil imobilisasi NH₄ zeolit bekas dengan polimer poliester membentuk blok polimer-NH₄ zeolit bekas. Secara visual terlihat perbedaan warna pada polimer-NH₄ zeolit bekas yaitu untuk kandungan limbah 0 %, blok polimer-NH₄ zeolit bekas berwarna bening, hal ini karena belum bercampur dengan NH₄-zeolit bekas. Blok polimer-NH₄ zeolit bekas dengan kandungan limbah 10 – 50 % memiliki warna abu-abu, dan makin tinggi kandungan limbah, maka warna abu-abu nya semakin tua. Warna abu-abu yang timbul berasal dari warna NH₄-zeolit bekas.

Karakterisasi blok polimer-NH₄ zeolit bekas hasil imobilisasi ditunjukkan pada Gambar 7 dan 8. Gambar 7 menunjukkan pengaruh kandungan limbah terhadap densitas blok polimer-NH₄ zeolit bekas. Dalam gambar tampak bahwa semakin besar kandungan limbah maka densitas semakin tinggi. Hal ini terjadi karena semakin tinggi kandungan limbah maka semakin banyak NH₄-zeolit bekas dalam campuran polimer-NH₄ zeolit bekas. Amonium zeolit bekas memiliki masa yang lebih besar dibandingkan dengan masa polimer, sehingga semakin besar kandungan limbah maka semakin besar pula masa dari blok polimer-NH₄ zeolit bekas sedangkan volumenya tetap. Hal ini yang mengakibatkan densitas blok polimer-NH₄ zeolit bekas meningkat. Densitas hasil imobilisasi perlu diperhatikan karena besaran densitas menjadi pertimbangan dalam transportasi dan perancangan tempat penyimpanan sementara (*interm storage*), serta penyimpanan lestari (*disposal*) [21-22].



Gambar 7. Pengaruh Kandungan Limbah Terhadap Densitas Blok Polimer-NH₄ Zeolit Bekas.



Gambar 8. Pengaruh Kandungan Limbah Terhadap Kuat Tekan Blok Polimer-NH₄ Zeolit Bekas.

Gambar 8 menunjukkan pengaruh kandungan limbah terhadap kuat tekan blok polimer-NH₄ zeolit bekas hasil imobilisasi. Pada Gambar 8 tampak bahwa semakin besar kandungan limbah maka semakin kecil kuat tekannya. Adanya jumlah kandungan limbah yang semakin besar dan jumlah polimer yang semakin kecil, berarti rantai polimer yang terbentuk semakin pendek. Dengan rantai polimer yang semakin pendek dan volume limbah yang semakin besar maka tiap lapisan rantai polimer tidak cukup untuk mengungkung limbah sehingga kekuatan tekan menjadi turun. Hal ini juga dapat dijelaskan karena NH₄-zeolit yang ditambahkan ke polimer akan membentuk bahan komposit yang melemahkan kuat tekan polimer. Kuat tekan blok polimer-NH₄ zeolit bekas merupakan besaran yang perlu diketahui untuk mengevaluasi seberapa jauh blok polimer-NH₄ zeolit bekas mampu menerima beban tumpuk di tempat penyimpanan sementara maupun disposal juga mengevaluasi ketahanan blok polimer-NH₄ zeolit bekas jika jatuh pada saat *handling*.

Hasil pengujian pengaruh kandungan limbah terhadap laju pelindihan menunjukkan bahwa tidak terdeteksi adanya Sr, Co dan Cs yang terlindih keluar blok polimer-NH₄ zeolit bekas. Hal ini menunjukkan bahwa Sr, Co dan Cs telah terkungkung cukup kuat oleh NH₄ zeolit dan polimer. Laju pelindihan merupakan karakteristik hasil imobilisasi yang penting diketahui disamping untuk memilih komposisi polimer dan limbah yang baik juga untuk mengevaluasi kemampuan polimer dalam mengungkung radionuklida yang terdapat dalam limbah agar tidak mudah menyebar ke lingkungan.

Berdasarkan hasil karakterisasi blok polimer-NH₄ zeolit bekas seperti densitas, kuat tekan, dan laju pelindihan, maka blok polimer-NH₄ zeolit bekas dengan kandungan limbah 20 % merupakan hasil imobilisasi terbaik. Hal ini karena pada kandungan limbah 20 % berat perubahan kuat tekan dan densitasnya kecil sekitar 10 %. Blok polimer-NH₄ zeolit bekas dengan kandungan limbah lebih besar dari 20 % berat terjadi penurunan kuat tekan yang besar. Untuk kandungan limbah yang lebih besar dari 20 % maka densitas semakin besar. Jika densitas semakin besar, maka berat limbah semakin besar, sehingga transportasi, penyimpanan dan disposalnya mahal. Oleh karena itu dipilih kandungan limbah 20 % berat, dengan pertimbangan keselamatan lebih diutamakan daripada penghematan tempat penyimpanan limbah radioaktif.

Laju pelindihan pada kandungan limbah 20 % tidak terdeteksi artinya sangat kecil sekali jika dibandingkan dengan harga laju pelindihan untuk standar hasil imobilisasi menggunakan polimer yaitu 10^{-7} - 10^{-4} [23]. Adanya penghalang ganda untuk lepasnya unsur dari blok polimer-NH₄ zeolit bekas yaitu NH₄-zeolit dan polimer akan memperkecil lepasnya unsur-unsur. Hal ini berarti faktor keselamatannya lebih tinggi karena lebih sedikit radionuklida yang lepas ke lingkungan.

KESIMPULAN

Proses penyerapan hasil belah dan produk korosi yang terkandung dalam air pendingin primer reaktor akan lebih efektif dilakukan dengan NH_4 zeolit dibandingkan dengan zeolit murni. Jumlah Sr, Co dan Cs yang dapat terserap oleh NH_4 zeolit pada waktu kontak yang optimum 90 menit sesuai dengan urutan $\text{Sr} > \text{Co} > \text{Cs}$ artinya hasil belah Sr terserap paling besar dibandingkan dengan Co dan Cs. Hasil karakterisasi blok polimer – NH_4 zeolit bekas menunjukkan bahwa semakin besar kandungan limbah maka densitas semakin besar, kuat tekan semakin kecil dan tidak terdeteksi laju pelindihan Sr, Co dan Cs. Berdasarkan pengujian densitas, kuat tekan, dan laju pelindihan blok polimer– NH_4 zeolit bekas, maka hasil imobilisasi terbaik diperoleh pada blok polimer– NH_4 zeolit bekas dengan kandungan limbah 20 %berat. Sebagai pendamping proses evaporatorasi limbah cair, maka Amonium Zeolit dapat dimanfaatkan sebagai alternatif pengolahan limbah air pendingin reaktor di Instalasi Pengolahan Limbah Radioaktif (IPLR).

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. http://www.hk-phy.org/energy/power/print/nuclear_phy_print_e.html, *Nuclear Power* (Agustus 2010)..
- [2]. <http://large.stanford.edu/courses/2011/ph241/omar1/>, *Suraya Omar, Nuclear Reactor Coolants* (Januari 2011).
- [3]. Mulyaningsih, T.R., Pengukuran Radioaktivitas Pendingin Primer RSG-GAS Pada Saat Beroperasi, *Jurnal Teknologi Reaktor Nuklir*, Vol 3(1), hal 46-56, (2001).
- [4]. PTLR, *Laporan Analisis Keselamatan rev.6*, PTLR, Serpong, (2009).
- [5]. Las, T., Zamroni, H., Penggunaan Zeolit dalam Bidang Industri dan Lingkungan, *Jurnal Zeolit Indonesia*, Vol.1, hal.23-26, (2002).
- [6]. Scottcott, M.A., et.al., *Handbook of Zeolite Science and Technology*, New York, (2003).
- [7]. Zamroni, H., Kestabilan Panas Dan Kimia Zeolit, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Teknologi Pengolahan Limbah I, hal.117-122, PTLR, Serpong, (1997).
- [8]. Yu, A., Lonin, A.P, Investigation of Radionuclide ^{137}Cs Sorption by Natural and Synthetic Zeolites, *Problems of Atomic Science And Technology, Nuclear Physics Investigations*, Vol.44, p.82-84, (2004).
- [9]. Yildiz,B., Erten, H.N., Kis, M., The Sorption Behavior of CS^+ Ion on Clay Minerals and Zeolite in Radioactive Waste Management: Sorption Kinetics and Thermodynamics, *J Radioanal Nucl Chem*, Vol.288, p.475–483, (2011).
- [10]. Zamroni, H., Las, T., Pembuatan Mn-Zeolit Untuk Penyerapan Limbah Radioaktif ^{90}Sr Dan Limbah Fe, Prosiding Hasil Penelitian P2PLR Tahun 2000, hal.102-107, P2PLR, Serpong, (2001).
- [11]. Nurimaniwathy, Tri Suyatno, Reduksi Kadar Cr dan Ni dalam Limbah Cair Menggunakan Zeolit Alam Dari Bayah Jawa Barat, Prosiding Seminar Nasional Penelitian dan Pengelolaan Perangkat Nuklir, hal. 491-496, PTAPB, Yogyakarta, (2006).
- [12]. Dian Anggraini, Siti Amini, Yusuf Nampira, Noviarty, Pemanfaatan Zeolit Lampung Untuk Penukar Kation Cs Dari Larutan Radioaktif Hasil Fisi, Prosiding Presentasi Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir VI, hal. 229-233, P2TBDU, Jakarta, (2001).
- [13]. Firda, R., *Imobilisasi Zeolit Bekas Sebagai Penyerap Limbah Rafinat Dari Produksi Molibdenum 99 Dengan Polimer*, Tugas Akhir, Program Studi Teknik Lingkungan, UNDIP, Semarang, (2009).
- [14]. JIS R 3105, *Methods for Chemical Analysis of Borosilicate Glasses*, JSA, Japan, (1995).
- [15]. JIS K0058-1, *Leaching Test Methods*, JSA, Japan, (2009).
- [16]. Crancovic, M.G., *Materials Characterization*, ASM Handbook, 9th ed , 10, , ASM, USA, (1992).
- [17]. Aditya Zulfa, *Uji Adsorpsi Gas Karbon Monooksida (CO) Menggunakan Zeolit Alam Malang dan Lampung*, Skripsi S-1, Teknik Kimia, Universitas Indonesia, Jakarta, (2011).
- [18]. <http://kimia.unnes.ac.id/kasmui/komputasi/artikel-zainal.pdf>, *Kasmui, Zaenal, M., Woro Sumarni, Kajian Pengaruh Variasi Rasio Si/Al Dan Variasi Kation Terhadap Perubahan Ukuran Pori Zeolit Y Dengan Menggunakan Metode Mekanika Molekuler* (Februari 2011).
- [19]. Masterton, W.L., Bolocofsky, D., Tei Pei Lee, Ionic Radii From Scaled Particle Theory Of The Salt Effect, *J. Phys. Chem.*, Vol.75 (18), p. 2809–2815, (1971).
- [20]. Hadyana, P., Setiono, L., *Buku Ajar Vogel: Kimia Analisis Kuantitatif Anorganik*, Buku Kedokteran EGC, Jakarta, (1994).

- [21]. JNC, *Second Progress Report on Research and Development for Geological Disposal of HLW in Japan*, JNC, Japan, (2000).
- [22]. IAEA, *Chemical Durability and Related Properties of Solidified High Level Waste Form*, Technical Report Series No. 257, IAEA, Vienna, (1985).
- [23]. Martono H, Aisyah, Penerapan Vitrifikasi Dan Polimerisasi Pada Pengolahan Limbah Cair Aktivitas Rendah Dari Pembangkit Listrik Tenaga Nuklir, Prosiding Seminar Nasional XII, Jasakiai, hal. 505-512, Jogjakarta, (2009).