

DEVITRIFIKASI GELAS LIMBAH DAN KOROSI CANISTER DALAM STORAGE DAN DISPOSAL LIMBAH RADIOAKTIF

Aisyah

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

ABSTRAK

DEVITRIFIKASI GELAS LIMBAH DAN KOROSI CANISTER DALAM STORAGE DAN DISPOSAL LIMBAH RADIOAKTIF. Limbah cair tingkat tinggi mengandung banyak hasil belah dan sedikit aktinida ditimbulkan dari proses olah ulang bahan bakar bekas. Limbah ini divitrifikasi dengan gelas borosilikat menjadi gelas limbah dan dimasukkan kedalam *canister* pada suhu 1150 °C. Selanjutnya *canister* disimpan sementara dalam *storage* dan akhirnya dapat dilakukan disposal pada formasi geologi. Devitrifikasi dan korosi *canister* gelas limbah dapat terjadi dalam *storage* karena adanya panas peluruhan dari hasil belah serta panas dari penuangan gelas limbah kedalam *canister* yang tidak dapat diakomodir oleh sistem pendingin. Sedangkan dalam disposal adanya kontak antara *canister* dengan media air akan memperbesar laju pelindihan gelas limbah dan laju korosi *canister*. Penelitian terjadinya devitrifikasi dilakukan terhadap gelas limbah dengan kandungan limbah 20 dan 30 %berat yang dipanaskan pada suhu (650 ~ 1100 °C) selama 1~30 jam. Sedangkan penelitian korosi *canister* dilakukan terhadap baja tahan karat AISI 304, 304L dan 321 yang dipanaskan pada suhu 700 dan 1100 °C selama 2 jam. Hasil penelitian menunjukkan bahwa gelas limbah dengan kandungan limbah 30 %berat lebih mudah terdevitrifikasi dari pada gelas limbah dengan kandungan limbah 20 %berat. Laju pelindihan gelas limbah yang terdevitrifikasi meningkat dan jauh lebih besar dari laju pelindihan gelas limbah standar. Laju korosi bahan AISI 304, 304L dan 321 yang dipanaskan pada suhu 700 °C lebih besar daripada yang dipanaskan pada suhu 1100 °C. Besarnya laju korosi sesuai dengan urutan AISI 304 > AISI 304L > AISI 321 baik dalam medium air laut maupun larutan bentonit.

Kata kunci: Limbah cair tingkat tinggi, gelas limbah, devitrifikasi, *canister*, korosi

ABSTRACT

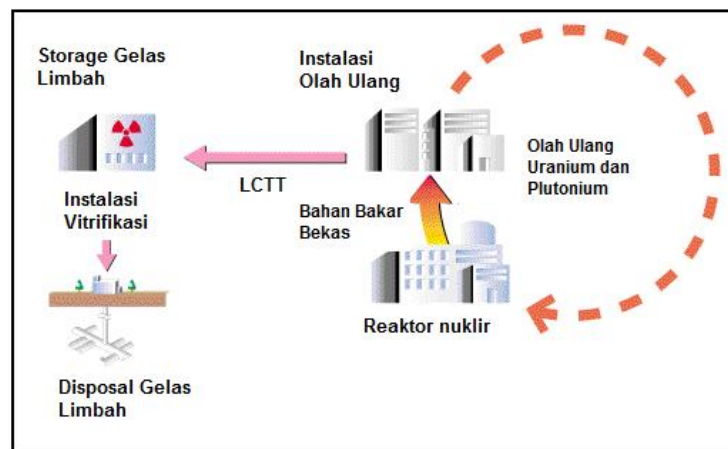
WASTE GLASS DEVITRIFICATION AND CANISTERS CORROSION IN RADIOACTIVE WASTE STORAGE AND IN DISPOSAL. *High level liquid waste arising from the reprocessing of spent fuel contains of many fission products and a few actinides. This waste is vitrified with borosilicate glass to become waste-glass form which is poured into canisters at a temperature of 1150 °C. The canisters are temporarily stored in storage and finally disposed in geological formations. Devitrification of waste glass and canister corrosion possibly occurs in the storage due to either decay heat from the fission products or the heat of waste glass melt that can not be accommodated by the process cooling system during pouring of the melt into glass canisters. While the possibility of contact between the canister with water intruding into the disposal might increase the rate of canister corrosion and leaching rate of the waste glass. A simulation on devitrification of waste glass containing waste of 20 % and 30 % by weight which was heated at the range of (600~1100 °C) for 1~30 hours. While the canister corrossion study was performed by heating stainless steel samples of AISI 304 , 304L and 321 are heated at a temperature of 700 and 1100 °C for 2 hours. The results showed that the waste glass containing waste of 30 % was easier to devitrify than the waste glass containing 20 % by weight. The leaching rate of the devitrified waste glass was higher significantly than the leaching rate of a standard waste glass. The corrosion rate of materials AISI 304, 304L and 321 which were heated at a temperature of 700 °C was greater than that of materials heated at 1100 °C. The magnitude of the corrosion rate was in the order of AISI 304 > AISI 304L > AISI 321, eiter in the medium of sea water or in bentonite solution.*

Keywords: *high level liquid waste, waste glass, devitrification, canister, corrosion*

PENDAHULUAN

Kegiatan ujung belakang daur bahan bakar nuklir (*back end*) merupakan kegiatan pengelolaan limbah radioaktif yang meliputi pra-disposal dan disposal limbah radioaktif. Pra-disposal limbah radioaktif meliputi kegiatan reduksi volume, kondisioning (imobilisasi), pewadahan serta penyimpanan sementara limbah hasil olahan dalam *storage*. Sedangkan disposal limbah radioaktif meliputi kegiatan penyimpanan lestari limbah hasil olahan dalam formasi geologi.

Pada daur bahan bakar tertutup, dilakukan proses olah ulang bahan bakar bekas (*reprocessing*) yang dimaksudkan untuk memungut kembali uranium sisa (*recovered uranium*) dan plutonium yang terbentuk. Pada proses olah ulang ini akan ditimbulkan limbah cair tingkat tinggi (LCTT) yang pada umumnya limbah jenis ini diimobilisasi secara vitrifikasi (*vitrification*). Hasil vitrifikasi yang berupa gelas limbah disimpan sementara dalam *storage* yang selanjutnya disimpan lestari atau disposal pada formasi geologi. Rangkaian pengelolaan bahan bakar bekas seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1[1,2].



Gambar 1. Rangkaian Pengelolaan Bahan Bakar Bekas [1].

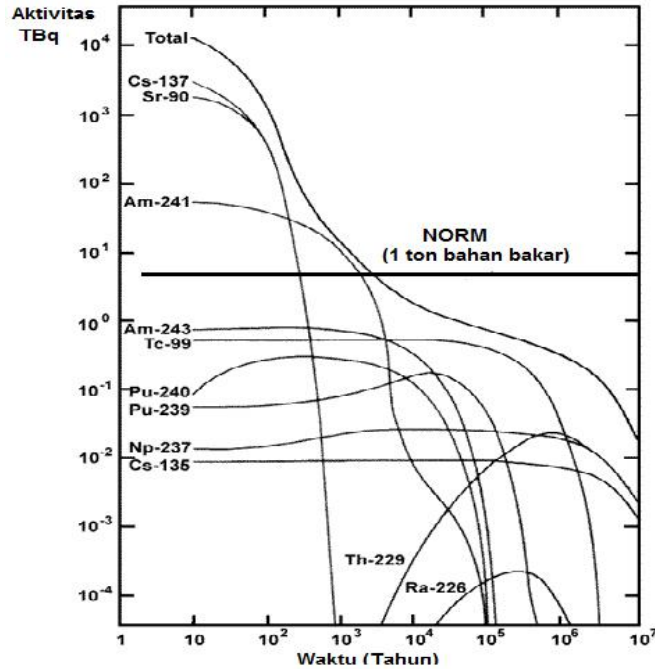
Limbah cair tingkat tinggi banyak mengandung hasil belah dan sedikit aktinida. Berdasarkan pengalaman negara maju seperti Jepang, Perancis imobilisasi LCTT dilakukan dengan gelas borosilikat dan disebut vitrifikasi. Banyaknya hasil belah yang terkandung dalam LCTT dengan aktivitas yang sangat tinggi dapat menimbulkan panas peluruhan yang cukup tinggi dalam gelas limbah hasil vitrifikasi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2 [3,4].

Dalam proses olah ulang setelah uranium dan plutonium dari bahan bakar bekas reaktor nuklir dipisahkan, selanjutnya radioaktivitas dan panas LCTT dibiarkan meluruh ke tingkat yang sesuai. Limbah cair hasil olah ulang yaitu LCTT sebagian besar terdiri dari produk fisi seperti stronsium (^{90}Sr), cesium (^{137}Cs) dan lainnya serta sedikit aktinida seperti anak luruh TRU (transuranium) yang mempunyai waktu paro panjang seperti Np^{237} ($2,10 \times 10^6$ tahun), Tc^{99} ($2,10 \times 10^5$ tahun), I^{129} ($1,57 \times 10^7$ tahun), dan Am^{241} (433 tahun). Radioaktivitas dan panas keluaran dari LCTT meluruh berdasarkan waktu seperti ditunjukkan pada Gambar 2 [3]. Adanya panas yang cukup besar dari peluruhan radionuklida hasil belah baik dalam LCTT itu sendiri maupun dalam LCTT yang telah divitrifikasi dengan gelas, dapat mengakibatkan suhu limbah hasil imobilisasi yang tinggi (> 500 °C). Suhu yang tinggi dan waktu yang cukup lama dapat mengakibatkan timbulnya kerusakan limbah (devitrifikasi) [5,6].

Gelas limbah hasil vitrifikasi selanjutnya dituang kedalam *canister* pada suhu leleh gelas limbah yaitu 1150 °C selanjutnya disimpan dalam *storage* yang dilengkapi dengan sistem pendingin udara dan akhirnya dapat dilakukan disposal pada formasi geologi.

Baja tahan karat merupakan bahan yang banyak dipilih oleh industri termasuk dipilih sebagai bahan *canister* gelas limbah karena penampilannya menarik mengkilap dan memiliki ketahanan korosi yang tinggi walaupun berada dalam medium yang korosif. Ketahanan korosi ini disebabkan adanya lapisan pelindung krom oksida yang secara kontinyu terbentuk dipermukaan

bahan. Namun demikian lapisan krom oksida ini cukup rentan terhadap perlakuan panas. Adanya pemanasan pada suhu sensitisasi (500 – 950 °C) pada saat pemakaian, akan menyebabkan lapisan pelindung rusak sehingga dapat terjadi kerusakan bahan yaitu menurunnya ketahanan korosi, khususnya korosi batas butir [7,8].



Gambar 2. Pengaruh waktu terhadap aktivitas radionuklida dalam LCTT [3].

Dalam vitrifikasi LCTT, masalah dapat timbul segera setelah proses penuangan gelas limbah kedalam *canister* pada suhu tinggi, yaitu:

1. Tatkala sistem pendingin dalam *storage* tidak mampu mengakomodir panas dari suhu penuangan gelas limbah maupun panas peluruhan yang secara terus menerus muncul dalam gelas limbah maupun *canister*. Akibatnya akan terjadi kerusakan gelas limbah dan *canister*. Gelas limbah akan berubah struktur menjadi kristalin yang disebut dengan devitrifikasi, sedangkan *canister* akan mengalami korosi batas butir.
2. Tatkala terdapat retakan dalam disposasi yang dapat menyebabkan terjadinya kontak antara *canister* yang berisi gelas limbah dengan medium air tanah. *Canister* yang telah mengalami korosi batas butir tatkala tersimpan dalam *storage* akan meningkat laju korosinya bahkan dapat hancur. *Canister* yang telah terkorosi dapat mengakibatkan gelas limbah yang telah terdevitrifikasi mudah terlindi keluar.

Beberapa peneliti telah mempelajari beberapa topik terkait seperti perbandingan gelas keramik dan gelas borosilikat untuk solidifikasi limbah aktivitas tinggi, persyaratan gelas limbah untuk vitrifikasi, perubahan komposisi bahan pembentuk gelas pada karakteristik gelas limbah, pengaruh radiasi terhadap gelas-limbah hasil vitrifikasi limbah aktivitas tinggi, sensitisasi pada pengelasan tabung baja tahan karat AISI 304 wadah limbah sumber ^{226}Ra bekas radioterapi, perubahan struktur mikro dan sifat mekanik pada pengelasan drum baja karbon wadah limbah radioaktif [9-13].

Terdapat beberapa karakteristik gelas limbah yang perlu dipelajari seperti densitas, koefisien muai panjang, hantaran panas, viskositas, laju pelindihan, devitrifikasi, titik pelunakan, dan sebagainya [10,14]. Devitrifikasi merupakan salah satu karakteristik gelas limbah yang penting karena terkait dengan laju pelindihan. Sedangkan *canister* merupakan penahan kedua yang berfungsi menjaga integritas gelas limbah yang tersimpan didalamnya, sehingga dipersyaratkan

dari bahan dengan ketahanan korosi yang tinggi. Oleh karena itu dalam penelitian ini akan dipelajari pengaruh kandungan limbah, suhu dan waktu pemanasan terhadap devitrifikasi serta laju pelindihan gelas limbah. Selain itu juga dipelajari ketahanan korosi bahan *canister* yaitu baja tahan karat AISI 304, 304L dan 321 dengan mengukur laju korosi dalam medium air laut dan larutan bentonit. Data hasil penelitian yaitu karakteristik devitrifikasi gelas limbah dan korosi *canister* dapat digunakan sebagai data untuk mendesain *storage* termasuk sistem pendinginnya dan disposasi agar mampu mengakomodir panas peluruhan yang ditimbulkan dari gelas limbah dan panas akibat penguapan gelas limbah ke dalam *canister* sehingga selamat untuk gelas limbah dan *canister*.

Komposisi gelas limbah ditentukan berdasarkan ORIGEN 2, devitrifikasi dianalisis menggunakan Difraktometer Sinar X (XRD), sedangkan struktur mikro dilakukan dengan *Scanning Electrone Microscope* (SEM) beserta *Energy Dispersive-X-Ray Spectroscopy* (EDS), laju korosi diukur menggunakan alat Potensiostat dan laju pelindihan diukur menggunakan soklet.

Penelitian ini dilakukan pada Tahun 2012 di Laboratorium Bidang Teknologi Pengolahan Limbah, Dekontaminasi dan Dekomisioning, Pusat Teknologi Limbah Radioaktif, Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN), Kawasan Puspipetek Serpong.

TATA KERJA

Bahan

1. Bahan yang digunakan dalam pembuatan gelas limbah adalah oksida –oksida SiO₂, B₂O₃, Na₂O, CaO, Al₂O₃, Fe₂O₃, NiO, Cr₂O₃, SrO, Cs₂O, BaO, La₂O₃ dan CeO₂ buatan Merck dengan kemurnian yang tinggi.
2. Baja tahan karat austenitik AISI 304, AISI 304L dan 321 sebagai bahan *canister* dengan komposisi seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi Baja Tahan Karat [15].

Unsur	Kandungan Unsur (%)		
	AISI 304	AISI 304L	AISI 321
C	0,06	0,020	0,051
Mn	1,81	1,610	1,77
Si	0,27	0,500	0,390
P	0,020	0,023	0,024
S	0,008	0,004	0,003
Cr	18	18,3	17,44
Ni	9,87	10,22	10,60
Ti	-	-	0,54
Fe	<i>balance</i>	<i>balance</i>	<i>balance</i>

3. Medium pengkorosi berupa larutan bentonit 2,5 % dan larutan NaCl 3,5 % sebagai simulasi air laut.

Peralatan

Dalam penelitian ini digunakan beberapa peralatan seperti timbangan analitis, tungku pemanas, cawan platina, alat *polishing*, sokhlet, alat potong, Difraktometer Sinar X (XRD), *Scanning Electrone Microscope* (SEM), dan potensiostat.

Metode

1. Pembentukan Gelas Limbah dan Pengamatan Devitrifikasi

Komposisi LCTT simulasi ditentukan menggunakan program ORIGEN 2 berdasarkan atas sejarah elemen bahan bakarnya, yaitu jenis reaktor PWR-UD 50 MWD, fraksi bakar 50.000 MWD/MTIHM, pengkayaan uranium 3 % dan pendinginan selama 4 tahun. Dalam penentuan LCTT simulasi dilakukan penggantian unsur-unsur radioaktif dengan unsur lain yang terdapat dalam 1. golongan pada tabel periodik seperti Tc diganti Mn dan aktinida (U, Np, Pu, Am, Cm)

diganti Ce [10,16]. Komposisi LCTT yang digunakan dalam percobaan adalah Na₂O: 24,87; Fe₂O₃ : 16,47; NiO: 3,47; Cr₂O₃: 7,90; SrO:1,13; Cs₂O: 3,30; BaO: 1,83; La₂O₃: 2,20; dan CeO₂: 38,83 % berat.

Glass frits (bahan pembentuk gelas) ditentukan dengan komposisi : SiO₂: 58 ; B₂O₃: 21,80; Na₂O: 9,67; CaO 7,8; dan Al₂O₃: 2,7 % berat [10,16]. Kandungan limbah dibuat 20% dan 30% berat, sehingga diperoleh komposisi gelas limbah seperti yang ditunjukkan pada **Tabel 2**.

Tabel 2. Komposisi gelas limbah dengan kandungan limbah 20% dan 30% berat.

Oksida	Kandungan Limbah (% berat)	
	20%	30%
SiO ₂	46,40	40,60
B ₂ O ₃	17,44	15,26
Na ₂ O	10,00	10,00
CaO	8,96	9,69
Al ₂ O ₃	2,18	1,91
Fe ₂ O ₃	3,28	4,94
NiO	0,69	1,04
Cr ₂ O ₃	1,59	2,37
SrO	0,23	0,34
Cs ₂ O	0,65	0,99
BaO	0,37	0,55
La ₂ O ₃	0,44	0,66
CeO ₂	7,77	11,65

Pembentukan gelas limbah dilakukan dengan mencampur bahan gelas limbah yang komposisinya seperti pada Tabel 2 sampai homogen dan dilebur pada suhu 1150 °C selama 2,5 jam, Pemanasan dilakukan dalam tungku pemanas menggunakan cawan platina. Selanjutnya dilakukan pendinginan sampai suhu kamar sehingga terbentuk gelas limbah.

Percobaan devitrifikasi dilakukan dengan memanaskan gelas limbah pada berbagai suhu dan waktu (650 ~ 1100 °C dan 1~30 jam). Pengamatan devitrifikasi dilakukan menggunakan difraktometer sinar-X yaitu dengan pengamatan pola difraksi *amorf* atau kristalin. Devitrifikasi terjadi ditandai dengan terbentuknya kristal dalam gelas limbah yang ditunjukkan dengan munculnya puncak pada pola difraksinya. Selanjutnya dapat dibuat diagram *Time Temperature Transformation* (TTT).

2. Pengukuran Laju pelindihan

Laju pelindihan dilakukan dengan menggunakan alat sokhlet menggunakan metode laju pelindihan dipercepat pada suhu 100 °C selama 24 jam. Laju pelindihan dihitung menggunakan persamaan sebagai berikut [10,17,18]:

$$LR = (m_i - m_f) / (SA \times t) \quad (1)$$

dengan m_i adalah berat sampel mula-mula m_f adalah berat contoh akhir SA adalah luas permukaan contoh t adalah waktu pelindihan dan satuan pelindihan adalah g /cm²hari. Luas permukaan contoh didekati dengan persamaan:

$$SA = \frac{6M}{\rho \phi \times 0,89} \quad (2)$$

dengan SA adalah ILuas permukaan (cm²), M adalah berat partikel gelas – limbah (g), ρ adalah densitas gelas (g/cm³), ϕ adalah diameter rata-rata partikel gelas (cm) dan 0,89 adalah faktor konversi

3. Pengamatan Korosi Canister

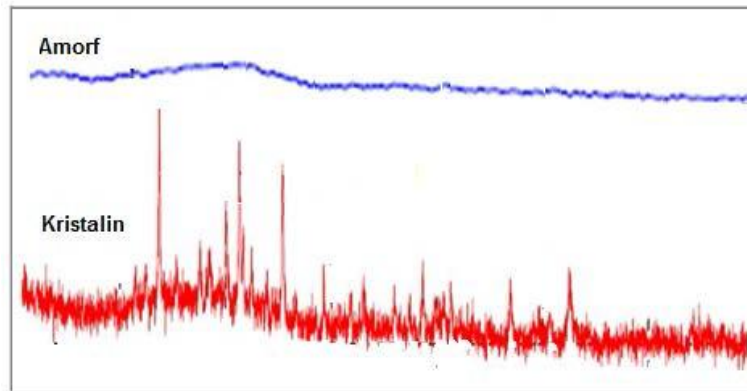
Perlakuan panas *canister* akibat penguangan gelas limbah kedalamnya disimulasikan dengan pemanasan contoh baja tahan karat austenitik AISI 304, AISI 304L dan AISI 321 yang berbentuk lingkaran dengan diameter ϕ : 17 mm pada suhu 700 dan 1100 °C selama 2 jam dan diikuti pendinginan cepat dalam air (*quenching*). Selanjutnya contoh yang telah mengalami perlakuan panas, diampelas sampai halus untuk selanjutnya dilakukan pengamatan struktur mikro menggunakan SEM dan penentuan laju korosi menggunakan alat uji korosi potensiostat. Laju korosi biasanya dinyatakan dengan laju penetrasi logam (mpy: *mils per year*) atau laju pengurangan berat (mdd: mg/dm²/hari) dinyatakan dengan persamaan [19-21]:

$$\text{Laju korosi} = 0,129 i_{\text{cor}} (W/\rho) \quad (3)$$

dengan i_{cor} adalah rapat arus korosi ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$), W adalah berat ekuivalen (g.ekivalen), ρ adalah rapat massa logam (g/cm³) dan 0,129 adalah faktor konversi.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil analisis XRD pada gelas limbah hasil vitrifikasi ditunjukkan pada Gambar 3.



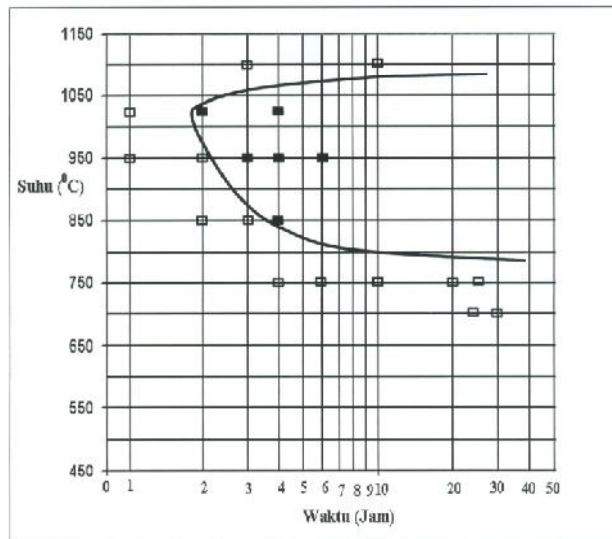
Gambar 3. Pola Difraksi XRD Struktur *Amorf* dan *Kristalin* Gelas Limbah

Karakteristik utama gelas limbah hasil vitrifikasi adalah terbentuknya struktur *amorf*. Karakteristik struktur *amorf* ini didapat dari hasil analisis menggunakan XRD sehingga terbentuk pola difraksi seperti yang terlihat pada Gambar 3 yaitu tampak tidak ada puncak-puncak yang terbentuk. Struktur *amorf* akan berubah menjadi kristalin yaitu ditandai dengan munculnya puncak-puncak difraksi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3. Hal ini yang menandai bahwa telah terjadi devitrifikasi (kerusakan gelas limbah). Kerusakan gelas limbah biasanya terjadi jika gelas limbah mengalami pemanasan pada saat penyimpanan dalam *storage*. Pada umumnya gelas limbah akan disimpan sementara dalam *storage* yang dilengkapi dengan sistem pendingin selama 30-50 tahun. Pendinginan gelas limbah dalam *storage* ini bertujuan untuk menghindari terjadinya devitrifikasi gelas-limbah

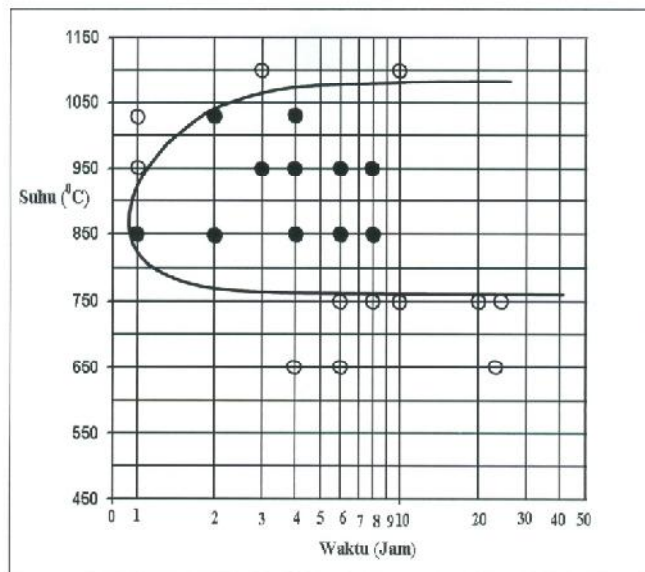
Karakteristik devitrifikasi diamati dengan XRD untuk gelas limbah dengan kandungan limbah 20 dan 30 %berat pada suhu pemanasan gelas limbah (650 ~ 1100 °C) dan waktu pemanasan tertentu (1~30 jam). Hasil analisis XRD menunjukkan pola difraksi yang beragam yaitu terbentuk struktur kristalin yang berarti terjadi devitrifikasi maupun struktur tetap *amorf* yang artinya tidak terjadi devitrifikasi. Dari data tersebut dibuat diagram TTT seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4 dan 5.

Dari Gambar 4 terlihat bahwa pada suhu 850 0C dan waktu pemanasan selama 3 jam, devitrifikasi gelas limbah dengan kandungan limbah 20% berat belum terjadi. Pada Gambar 5 tampak bahwa gelas limbah dengan kandungan limbah 30 % berat yang dipanaskan pada suhu 850 0C selama 1 jam sudah terjadi devitrifikasi. Hal ini menunjukkan bahwa gelas limbah dengan kandungan limbah 30 % berat lebih mudah terjadi devitrifikasi daripada gelas limbah dengan

kandungan limbah 20 % berat. Hal ini karena kandungan unsur-unsurnya lebih banyak, sehingga akan mendorong lebih mudah terjadinya kristal dalam gelas limbah. Dapat diterangkan juga bahwa gelas limbah dengan kandungan limbah 30 % berat, kadar Si nya lebih rendah, sehingga titik lelehnya lebih rendah. Akibatnya gelas dengan kandungan limbah 30 % berat viskositasnya lebih rendah sehingga lebih mudah terjadi devitrifikasi. Pada gelas limbah yang sesungguhnya (radioaktif) panas peluruhan yang ditimbulkan lebih besar untuk gelas dengan kandungan limbah 30 % berat, sehingga jika ditinjau dari segi inipun terjadinya devitrifikasi lebih mudah. Pada suhu di atas 1050 0C baik untuk gelas limbah dengan kandungan limbah 20 dan 30 %, maka devitrifikasi tidak terjadi. Hal ini disebabkan bahwa karena suhu tersebut telah mendekati titik lelehnya sehingga gerakan atom-atomnya terlalu cepat dan atom-atomnya tidak dapat mengatur diri untuk membentuk kristal.

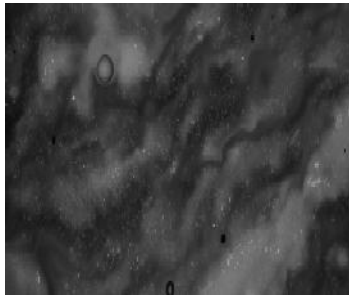


Gambar 4. Diagram TTT dari gelas limbah dengan kandungan limbah 20% berat (■ : terbentuk kristal; □ : tidak terbentuk kristal)

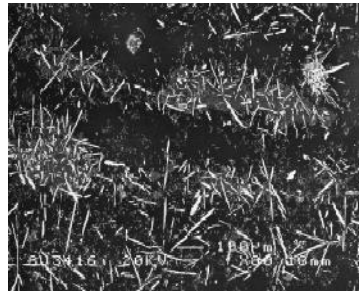


Gambar 5. Diagram TTT dari gelas limbah dengan kandungan limbah 30% berat. (● : terbentuk kristal; ○ : tidak terbentuk kristal)

Hasil pengamatan struktur mikro menggunakan SEM terhadap gelas limbah *amorf* dan gelas limbah yang mengalami devitrifikasi ditunjukkan pada Gambar 6 dan 7 [22].



Gambar 6. Struktur Mikro Gelas Limbah *Amorf*, Pengamatan dengan SEM [22]

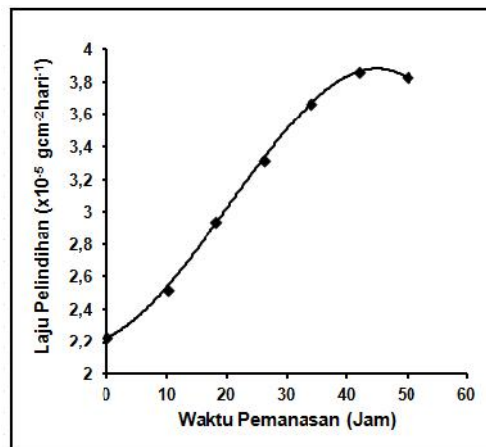


Gambar 7. Struktur Mikro Gelas Limbah yang Mengalami Devitrifikasi, Pengamatan dengan SEM [22]

Pada Gambar 6 tampak struktur gelas limbah *amorf* yaitu struktur yang homogen, sedangkan pada Gambar 7 tampak kristal-kristal berbentuk jarum pada gelas limbah yang mengalami devitrifikasi

Hasil analisis terhadap puncak-puncak kristal pada pola difraksi XRD maupun analisis EDS terhadap kristal jarum menunjukkan bahwa kristal yang terbentuk pada gelas limbah yang mengalami devitrifikasi adalah kristal Si. Tidak terdeteksi adanya jenis kristal lain yang terjadi dalam gelas limbah. Jumlah kristal Si yang terbentuk sangat tergantung pada lamanya gelas limbah terpapar pada suhu devitrifikasi. Semakin lama gelas limbah terpapar pada suhu devitrifikasi maka jumlah kristal Si yang terbentuk semakin meningkat. Hal ini berarti kerusakan gelas limbah semakin parah dan laju pelindihan akan semakin meningkat.

Sekecil apapun terjadinya devitrifikasi gelas limbah harus dihindari baik dalam kondisi *storage* maupun disposasi. Adanya devitrifikasi menunjukkan bahwa telah terjadi kerusakan gelas limbah. Adanya kerusakan gelas limbah dalam *storage* akan berakibat laju pelindihan gelas limbah meningkat. Hal ini akan sangat berbahaya jika terjadi intrusi air tanah dalam fasilitas disposasi. Gelas limbah akan terlindih keluar setelah terjadinya korosi *canister* pada fasilitas disposasi dan ini dihindari. Gambar 8 menunjukkan peningkatan laju pelindihan gelas limbah dengan kandungan limbah 30 %berat yang mengalami devitrifikasi pada suhu 850°C pada berbagai waktu pemanasan.

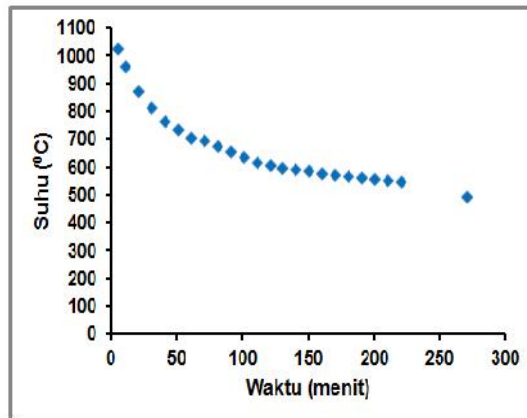


Gambar 8. Pengaruh Waktu Pemanasan Terhadap Laju Pelindihan Gelas Limbah

Pada Gambar 8 tampak bahwa semakin lama gelas limbah terpapar pada suhu devitrifikasi maka laju pelindihan akan semakin meningkat. Hal ini terjadi karena semakin lama gelas limbah terpapar pada suhu devitrifikasi maka jumlah kristal dalam gelas limbah semakin

meningkat. Jumlah kristal yang semakin banyak dapat mengakibatkan keretakan gelas limbah meningkat dan bahkan gelas limbah dapat hancur. Kerusakan gelas limbah dapat menjadikan laju pelindihan meningkat, sehingga jika dalam fasilitas disposal nanti terjadi kontak antara gelas limbah dengan air tanah dan terjadi kerusakan *canister*, maka laju pelindihan gelas limbah akan meningkat, radionuklida dalam gelas limbah berpotensi lepas ke lingkungan. Laju pelindihan yang besar menunjukkan kualitas gelas limbah yang buruk karena potensi lepasnya radionuklida ke lingkungan semakin besar. Hasil penelitian menunjukkan bahwa laju pelindihan gelas-limbah yang mengalami devitrifikasi adalah $(2,52-3,83 \times 10^{-5} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1})$ lebih besar dari laju pelindihan gelas-limbah standar $(2,3 \times 10^{-5} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1})$. Hal ini menunjukkan bahwa telah terjadi kerusakan kerangka gelas limbah yang mengalami devitrifikasi sehingga laju pelindihan sangat meningkat. Laju pelindihan merupakan karakteristik yang penting mengingat tujuan akhir dari imobilisasi limbah adalah untuk memperkecil potensi terlepasnya radionuklida yang ada dalam limbah ke lingkungan dalam jangka waktu lama. Oleh karena itu diperlukan penanganan yang baik pada setiap tahapan pengelolaan LCTT yang meliputi vitrifikasi, pewadahan, penyimpanan dalam *storage* dan disposal agar dihasilkan gelas limbah dengan karakteristik yang baik.

Adanya penuangan gelas limbah kedalam *canister* pada suhu tinggi yaitu $1150 \text{ }^\circ\text{C}$ mengakibatkan *canister* mengalami beban panas. Sesuai dengan kapasitas *canister*, penuangan gelas limbah kedalam *canister* berlangsung selama 2 jam dan dilanjutkan dengan serangkaian proses seperti pengelasan, dekontaminasi dan sebagainya. Berdasarkan pada perhitungan perpindahan panas secara sederhana pada saat penuangan gelas limbah sampai selesai pewadahan gelas limbah dalam *canister*, maka *canister* berada pada suhu sensitisasi ($800-600 \text{ }^\circ\text{C}$) selama sekitar 2 jam dengan diagram penurunan panas seperti yang ditunjukkan pada Gambar 9.

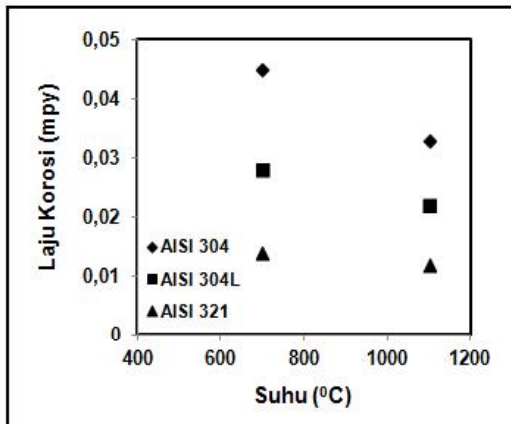


Gambar 9. Penurunan Suhu *Canister* pada Penuangan Gelas-Limbah

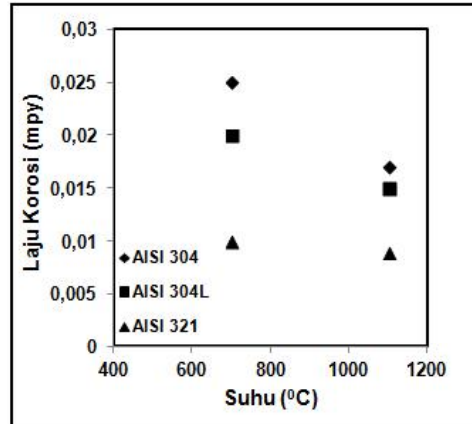
Keberadaan *canister* pada suhu sensitisasi terutama pada suhu $700 \text{ }^\circ\text{C}$ selama sekitar 2 jam dapat sebagai inisiator untuk terjadinya korosi batas butir, karena suhu sensitisasi tersebut merupakan suhu kritis untuk terbentuknya presipitat krom karbida (Cr_{23}C_6) penyebab terjadinya korosi batas butir. Oleh karena itu selama 30 – 50 tahun penyimpanan *canister* dalam *storage*, kerusakan *canister* dapat meningkat apalagi jika sistem pendinginan dalam *storage* tidak optimal.

Setelah penyimpanan *canister* gelas limbah dalam *storage*, selanjutnya *canister* gelas limbah dapat didisposal pada formasi geologi. Disposal pada formasi geologi dinegara kepulauan seperti Indonesia memungkinkan terjadinya intrusi air laut atau air tanah kedalam disposal. Idealnya tempat disposal dipilih lapisan batuan yang kedap air dan tanpa adanya retakan. Namun berdasarkan beberapa penelitian, kebanyakan lapisan batuan yang ada di Indonesia mengalami keretakan. Adanya retakan ini memungkinkan intrusi air laut atau air tanah kedalam disposal dan menerobos lapisan bentonit sebagai *backfill material* dan kontak dengan *canister* gelas limbah. Laju korosi akan dipercepat pada *canister* yang cenderung sudah mengalami korosi batas butir pada saat penuangan gelas-limbah. Gambar 10 dan 11 masing masing menunjukkan hasil penelitian laju korosi bahan *canister* AISI 304, 304L dan 321 yang diukur dalam medium air laut dan larutan 2,5 % bentonit. Laju korosi diukur terhadap bahan AISI 304, 304L dan 321 yang

mengalami beban panas pada suhu sensitisasi (700 °C) dan suhu 1100 °C masing-masing selama 2 jam.



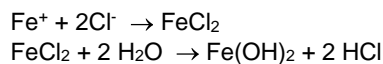
Gambar 10. Laju Korosi *Canister* Gelas Limbah dalam Medium Air Laut.



Gambar 11. Laju Korosi *Canister* Gelas Limbah dalam Medium Larutan Bentonit.

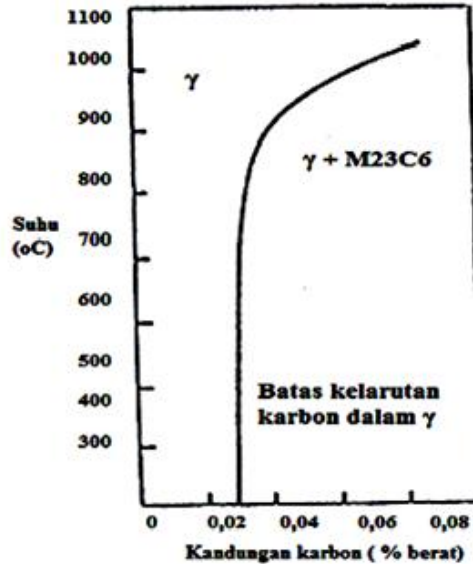
Pada Gambar 10 dan 11 tampak bahwa untuk bahan yang mengalami beban panas pada suhu sensitisasi baik untuk pengukuran laju korosi dalam medium air laut maupun dalam medium larutan bentonit memiliki laju korosi yang lebih besar dari pada bahan yang mengalami pemanasan kembali setelah penuangan gelas limbah ke dalamnya (pemanasan pada suhu 1100 °C). Hal ini sesuai dengan yang ditunjukkan pada Gambar 12 bahwa pada suhu 1100 °C untuk semua rentang kadar karbon (AISI 304, 304L dan 321) maka bahan berada dalam kondisi *saturated solid solution* dimana karbon larut sempurna dalam fasa austenit [23-25]. Pada kondisi ini bahan berada dalam satu fasa yaitu fasa austenit tanpa adanya presipitat karbida. Bahan dengan struktur satu fasa (austenit) memiliki laju korosi yang lebih rendah dibandingkan dengan bahan berfasa ganda (austenit + presipitat karbida). Selain itu adanya presipitat karbida pada bahan berfasa ganda dapat menyebabkan daerah deplesi Cr. Adanya penurunan (deplesi) kadar Cr akan menyebabkan batas butir menjadi lebih anodik terhadap daerah sekitarnya sehingga terjadi efek galvanik. Adanya efek galvanik pada bahan yang berada dalam media korosif akan mengakibatkan laju korosi yang lebih besar.

Dari Gambar 10 dan 11 juga tampak bahwa laju korosi untuk seluruh bahan *canister* (AISI 304, 304L dan 321) dalam medium air laut lebih tinggi dari pada dalam larutan bentonit. Hal ini terjadi karena air laut mengandung ion agresif Cl⁻ yang bergerak menuju Fe⁺ atau ion-ion logam yang terbentuk akibat reaksi oksidasi dan akhirnya membentuk karat. Semakin banyak ion-ion logam yang terbentuk maka akan semakin banyak karat yang terbentuk yang mengakibatkan *canister* gelas limbah terkikis sedikit demi sedikit. Reaksi yang terjadi adalah sebagai berikut:



Larutan bentonit tidak termasuk medium yang sangat korosif seperti air laut. Dalam medium larutan bentonit, korosi *canister* lebih disebabkan karena adanya kontak antara butiran-butiran halus bentonit dengan *canister* sehingga terjadi sedikit pengikisan lapisan pelindung krom oksida. Krom oksida merupakan lapisan pelindung pada seluruh permukaan bahan baja tahan karat AISI 304, 304L dan 321, lapisan ini menghalangi intrusi medium korosif kedalam bahan. Rusaknya lapisan pelindung akan mengakibatkan bahan terkorosi, walaupun tidak separah dalam medium air laut. Dalam medium air laut, terjadi kerusakan yang cukup besar pada lapisan pelindung krom oksida, sehingga permukaan bahan menjadi terbuka dan mudah terserang korosi, sehingga laju korosi menjadi lebih besar. Pada Gambar 10 dan 11 juga tampak bahwa laju korosi bahan sesuai dengan urutan AISI 304 > AISI 304L > AISI 321. Laju korosi bahan AISI 304

terbesar dibandingkan dengan bahan AISI 304L dan 321. Rendahnya kadar karbon pada baja tahan karat AISI 304L dan adanya kandungan titanium dalam AISI 321 mampu menurunkan laju korosi bahan.



Gambar 12. Kelarutan Karbon dalam Paduan Fe- Cr-Ni [23].

Data karakteristik devitrifikasi gelas limbah yang diperoleh seperti kandungan limbah yang optimal (< 30 %berat), saat mulai terjadinya devitrifikasi (suhu sekitar 1000 °C), lamanya gelas limbah terpapar pada suhu devitrifikasi (2 jam) serta panas peluruhan yang timbul dan panas akibat penguapan gelas limbah kedalam *canister* kesemuanya menjadi data penting untuk menghitung perpindahan panas dalam mendesain sistem pendingin dalam *storage*. Sistem pendingin ini harus mampu mengakomodir semua panas yang timbul pada gelas limbah dan *canister* agar tidak terjadi devitrifikasi gelas limbah dan korosi *canister*. Dengan demikian dalam disposal, radionuklida dalam limbah dapat terkungkung dengan selamat dan potensi pelindihan radionuklida ke lingkungan dapat diminimalkan.

KESIMPULAN

Devitrifikasi gelas limbah dapat terjadi karena adanya panas peluruhan dari radionuklida hasil belah yang terkandung dalam limbah yang gagal diakomodir oleh sistem pendingin dalam *storage* limbah radioaktif. Terdapat beberapa faktor yang dapat mempengaruhi terjadinya devitrifikasi gelas limbah dalam *storage* yaitu besarnya suhu dan lamanya gelas limbah terpapar pada suhu devitrifikasi serta kandungan limbah dalam gelas limbah. Devitrifikasi gelas limbah harus dihindari karena dapat meningkatkan laju pelindihan pada fasilitas disposal. Gelas limbah dengan laju pelindihan yang tinggi merupakan gelas limbah dengan kualitas yang rendah.

Korosi *canister* gelas limbah dapat terjadi pada saat mulai penyimpanan gelas limbah dalam *storage* dan berlanjut sampai dalam disposal. Dalam *storage* korosi *canister* terutama korosi batas butir terjadi karena adanya panas dari penguapan gelas limbah kedalamnya maupun panas peluruhan yang tidak segera dapat diakomodir oleh sistem pendingin. Laju korosi akan semakin meningkat tatkala dalam fasilitas disposal *canister* sempat kontak dengan medium air laut maupun larutan bentonit.

Untuk meminimalisir terjadinya devitrifikasi gelas limbah dan korosi *canister*, maka sistem pendingin dalam *storage* harus dapat beroperasi secara sempurna. Pemilihan bahan *canister* dari baja tahan karat AISI 304L atau 321 menjadi salah satu alternatif untuk meminimalisir terjadinya korosi *canister*.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih penulis sampaikan kepada Saudara Yuli Purwanto, AMd yang telah banyak membantu dalam penelitian ini dan Ir. Herlan Martono, M.Sc yang telah membantu dalam interpretasi data hasil penelitian.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. www.fepc.or.jp/english/library/power_line/detail/04, *The Challenge of High Level Radioactive Waste Disposal* (Juli 2011).
- [2]. IAEA, *Spent Fuel Reprocessing Options*, IAEA TECDOC Series No.1587, IAEA, Vienna, (2008).
- [3]. www.angelfire.com/co4/uranium2/, *Some Physics of Uranium* (April 2011).
- [4]. JNC, *Second Progress Report on Research and Development for the Geological Disposal of HLW in Japan*, JNC, Japan, (2000).
- [5]. IAEA, *Spent Fuel and High Level Waste : Chemical Durability and Performance Under Simulated Repository Conditions*, IAEA TECDOC 1563 IAEA, Vienna, (2007).
- [6]. Herlan, M., Persyaratan Gelas-Limbah Untuk Vitrifikasi Skala Industri Dan Penyimpanan, *J. Teknol. Teknologi Pengelolaan Limbah*, Vol.8(1), hal. 8-15, (2005).
- [7]. Korostelev, A.B, et.al., Evaluation of Stainless Steel for Their Resistance to Intergranular Corrosion, *Journal of Nuclear Materials*, 233-237, p.1361-1363, (1996).
- [8]. Petitjean, V., Paul, D., et.al., Development of Vitrification Process and Glass Formulation for Nuclear Waste Conditioning, WM'02 Conference, February 24-28, 2002, Tucson, (2003).
- [9]. 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).
- [10]. Aisyah, Perubahan Komposisi Bahan Pembentuk Gelas Pada Karakteristik Gelas Limbah, *J. Teknol. Teknologi Pengelolaan Limbah*, Vol.15(2), hal.1-14, (2012).
- [11]. Herlan Martono, Aisyah, Pengaruh Radiasi Terhadap Gelas-Limbah Hasil Vitrifikasi Limbah Aktivitas Tinggi, Prosiding Seminar Nasional Kimia 2012, hal.D14-D22, Universitas Negeri Surabaya, Unesa University Press, Surabaya, (2012).
- [12]. Aisyah, Sensitisasi pada Pengelasan Tabung Baja Tahan Karat AISI 304 Wadah Limbah Sumber ^{226}Ra Bekas Radioterapi, *J. Teknol. Pengelolaan Limbah*, Vol.14(1), hal.23-33, (2011).
- [13]. Aisyah, Perubahan Struktur Mikro dan Sifat Mekanik pada Pengelasan Drum Baja Karbon Wadah Limbah Radioaktif, Prosiding Seminar Nasional Teknologi Pengolahan Limbah VIII, hal.159-173, PTLR-RISTEK, Serpong (2010).
- [14]. **Yalmal, V.S., et.al.**, Preparation and characterization of vitrified glass matrix for high level waste from MOX fuel processing, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 353: 4647-4653, (2005).
- [15]. Inter Atom, Sertifikat Bahan Baja Tahan Karat AISI 304, AISI 304L dan 321, (1988).
- [16]. **Roth, G., and Weisenburger, S.**, Vitrification of high-level liquid waste: glass chemistry, process chemistry and process technology, *Nuclear Engineering and Design*, 202: 197-207, (2000).
- [17]. Ratna B.,, *Ketahanan Kimia Dan Mekanik Hasil Vitrifikasi Limbah Radioaktif Dengan Glassfrit Abu Batubara*, Tesis S-2, Program Studi Ilmu Lingkungan, UNDIP, Semarang, (2012).
- [18]. 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).
- [19]. Sedricks, A.J., *Corrosion of Stainless Steels*, 2nd ed. John Willey and Sons Inc, New York (1996).
- [20]. Lian - Fulia, and Jean-Pierre Celisa, Intergranular corrosion of 304 stainless steel pickled in acidic electrolytes, *Scripta Materialia*, 51: 949-953, (2004).
- [21]. Pandey, J.L., Inder, S., Singh, M.N., Electrochemical corrosion behaviour of heat-treated AISI 304 austenitic stainless steel in inorganic acid mixture, *Journal Anti Corrosion Methods and Materials*, 44: 6 – 9, (1997).

- [22]. Peter B. Rose, Michael I. Ojovan, et.all., Crystallisation Within Simulated High Level Waste Borosilicate Glass, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 824*, p. CC5.6.1-CC5.6.6, Materials Research Society, (2004).
- [23]. Peckner D., Bernstein I.M., *Stainless Steel and Heat Treatment*, Handbook of Stainless Steels, Mc Graw-Hill, USA (1977).
- [24]. Bruemmer, S.M, Charlot,I.A., Development of grain boundary chromium depletion in 304 and 316 type stainless steel, *Scr. Metall.*,20: 19-24, (1996).
- [25]. www.corrosionclinic.com/types_of_corrosion/intergranular_corrosion_cracking.htm, *Different Types of Corrosion - Recognition, Mechanisms & Prevention Intergranular Corrosion (Cracking)*, (Juni 2012).