

## PHYSICAL CHARACTERISTICS OF FLY ASH NANO PARTICLES AS BACKFILL ON THE RADIOACTIVE WASTE REPOSITORY

*Karakteristik Fisik Partikel Nano Abu Layang sebagai Bahan Urug pada Penyimpanan Limbah Radioaktif*

**Herry Poernomo**

Centre for the Accelerator and Material Process Technology, National Nuclear Energy Agency,  
Jl. Babarsari P.O. Box 6101 Ykbb Yogyakarta 55281

Received August 1, 2008; Accepted September 22, 2008

### ABSTRACT

Characterization of fly ash nano particles as backfilled material candidate in the radioactive waste repository has been done. The objective of this research is to determine the permeability ( $K$ ) and migration rate ( $V_r$ ) of uranium in the backfilled material of fly ash, zeolite, and zeolite + fly ash mixtures. The experiment was carried out by the fixed bed method in a column contains fly ash, or zeolite, or zeolite+fly ash mixtures. It was filled with the saturated water and was flown by uranyl nitrate solution of 500 ppm as the simulated uranium. The uranium effluents was sampled in every 15 minutes and it was analyzed using spectrometer. The concentration of which represented as  $C_t$  and by using concentration profile of  $C_o/C_t$ , then  $V_r$  of uranium in the backfilled material can be determined. The experiment result showed that  $\leq 38 \mu\text{m}$  of fly ash particles sizes could improve the characteristic feature of  $196 \mu\text{m}$  of zeolite sizes as backfilled material with the decreasing permeability values from  $K_{\text{zeolite}} = 4.06 \times 10^{-3} \text{ cm/s}$  to  $K_{\text{zeolite+fly ash}} = 5.00 \times 10^{-5} \text{ cm/s}$  and the decreasing of the migration rate from  $V_{r \text{ zeolite}} = 1.65 \times 10^{-4} \text{ cm/s}$  to  $V_{r \text{ zeolite+fly ash}} = 2.91 \times 10^{-6} \text{ cm/second}$ .

**Keywords:** fly ash, zeolite, backfill materials, uranium migration, radioactive waste repository.

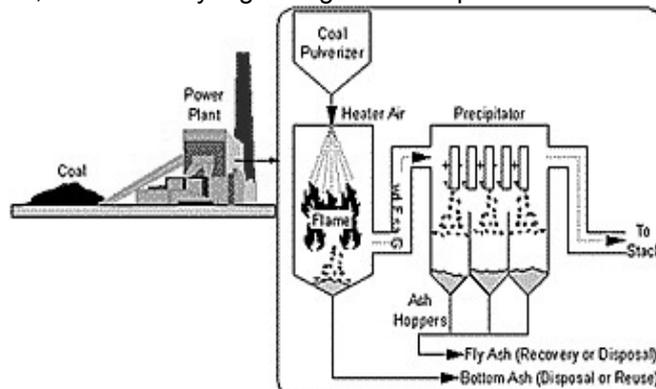
### PENDAHULUAN

Abu layang (*fly ash*) adalah limbah padat yang berasal dari abu yang terbawa oleh gas buang dari pembakaran batubara antara lain untuk pembangkit listrik tenaga uap (PLTU), proses pembakaran *clinker* di *rotary kiln* pabrik semen, dan gasifikasi batubara (*coal gasification*). Gas buang tersebut mengandung partikel-partikel abu layang yang sangat lembut. Abu layang ini akan tertahan pada pengendap elektrostatis sebelum keluar bersama udara panas pembakaran seperti ditunjukkan dengan ilustrasi PLTU batubara pada **Gambar 1** [1].

Partikel abu layang umumnya berbentuk bola dengan distribusi ukuran partikel sebagai berikut : 0,3 – 2% berukuran  $< 1 \mu\text{m}$ , 30 – 70% berukuran  $10 \mu\text{m}$ , 0,5 – 7% berukuran  $> 100 \mu\text{m}$ , dan 0 – 2% berukuran  $> 200 \mu\text{m}$  [2, 3]. Hasil analisis granulometri terhadap abu layang dari PLTU Suralaya diperoleh komposisi abu layang yang berukuran 0,5 –  $50 \mu\text{m}$  sekitar 85% berat abu yang dihasilkan [4, 5]. Hasil granulometri terhadap abu layang yang dilakukan oleh asosiasi pengembangan abu di Australia diperoleh bahwa 86,7% abu layang yang dihasilkan dari PLTU di Australia dengan ukuran yang lolos saringan  $45 \mu\text{m}$  [6]. Mengingat partikel abu layang sebagian besar mempunyai diameter partikel  $<$

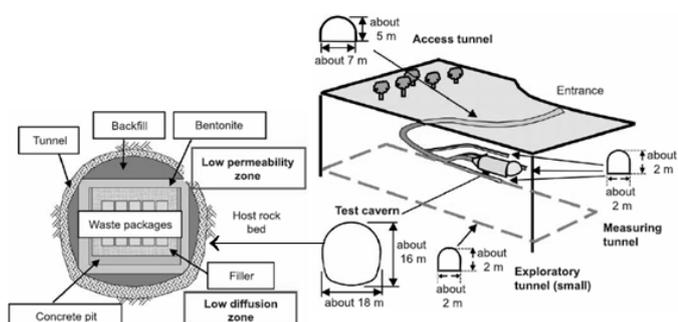
$100 \mu\text{m}$ , maka abu layang dapat digolongkan sebagai partikel nano.

Bahan-bahan yang diperoleh dari batuan dan tanah yang ada di lapisan atau kulit bumi mengandung sebagian besar deret radionuklida uranium ( $^{238}\text{U}$ ) dan thorium ( $^{232}\text{Th}$ ), serta isotop radioaktif kalium ( $^{40}\text{K}$ ). Dalam deret uranium, segmen rantai peluruhan yang dimulai dari radium ( $^{226}\text{Ra}$ ) adalah yang paling utama secara radiologis, maka dari referensi radium sering dipakai sebagai ganti dari uranium [7]. Berdasarkan hal ini, maka abu layang sebagai limbah padat dari PLTU



**Gambar 1.** Ilustrasi timbulnya *fly ash* dari pembakaran batubara pada PLTU batubara

\* Corresponding author. Tel/Fax : +62-274-488435/487824  
Email address : ptabp@batan.go.id



**Gambar 2.** Model penyimpanan limbah radioaktif sistem tunnel

batubara termasuk bahan yang mengandung *TENORM* (*Technologically Enhanced Naturally Occured Radioactive Material*). *TENORM* adalah terjadinya konsentrasi radionuklida alam pada proses industri yang mengolah bahan baku dari dalam kulit bumi.

Hasil pengukuran konsentrasi radioaktivitas pada *TENORM* abu layang yang ditimbulkan dari PLTU batubara di Paiton Probolinggo Jawa Timur menunjukkan konsentrasi radioaktivitas alam deret uranium ( $^{238}\text{U}$ ) sebesar 170 Bq/kg, deret thorium ( $^{232}\text{Th}$ ) sebesar 87 Bq/kg, dan kalium ( $^{40}\text{K}$ ) sebesar 105 Bq/kg [8]. Nilai konsentrasi radioaktivitas pada abu layang tersebut lebih rendah dari ketentuan *clearance level* yang dipersyaratkan dalam *IAEA-TECDOC-855* (1996) dan *Nuclear Energy Agency* (2004) yaitu 300 Bq/kg untuk radionuklida tunggal  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ , dan  $^{232}\text{Th}$  [9, 10].

Penyimpanan abadi limbah radioaktif aktivitas tinggi atau berumur paro panjang seperti  $^{238}\text{U}$  dapat dilakukan dengan sistem penyimpanan dalam terowongan (*repository tunnel*) yang berupa bangunan terowongan dari baja tahan karat kualitas baik pada formasi geologi tanah dalam dari batuan keras (*host rock*) terpilih seperti pada **Gambar 2** [11].

Salah satu bagian dari penghalang rekayasa adalah bahan urug. Sebagai bahan urug biasanya digunakan serbuk mineral seperti zeolit, bentonit, kuarsa, lempung, abu layang, dan lain-lain. Serbuk mineral lokal dalam ukuran nano dapat berfungsi menghambat migrasi radionuklida dari paket limbah radioaktif terimmobilisasi dalam repositori ke lingkungan tanah di sekitarnya yang berperan sebagai penghalang alami. Abu layang dapat dipakai sebagai bahan urug dan bahan penyangga (*buffer materials*) pada sistem penyimpanan limbah radioaktif [12, 13].

Limbah abu layang dari PLTU batubara dimungkinkan dapat dimanfaatkan sebagai bahan urug pada penyimpanan limbah radioaktif. Untuk menguji kemampuan abu layang agar dapat dijadikan bahan urug antara lain dengan cara mengetahui sifat fisik dan migrasi radionuklida uranium pada abu layang.

Berdasarkan hal ini, maka perlu dilakukan karakteri

**Tabel 1.** Komposisi unsur kimia abu layang dari PLTU batubara Suralaya

Unsur Kimia	Komposisi, % berat
$\text{SiO}_2$	60,51
$\text{Al}_2\text{O}_3$	23,24
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	5,07
CaO	2,95
MgO	1,37
$\text{TiO}_2$	0,61
$\text{Na}_2\text{O}$	0,72
$\text{K}_2\text{O}$	0,47
MnO	0,07

**Tabel 2.** Komposisi unsur kimia zeolit dari Sampang, Patuk, Gunung Kidul

Unsur Kimia	Komposisi, % berat
$\text{SiO}_2$	64,74 – 66,59
$\text{Al}_2\text{O}_3$	13,89 - 14,17
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	0,96 – 1,54
CaO	1,64 - 2,81
MgO	0,60 – 0,94
$\text{Na}_2\text{O}$	1,23 - 1,47
$\text{K}_2\text{O}$	0,95 – 1,27
MnO	0,16 – 0,18
$\text{H}_2\text{O}$	0,22 – 2,61

sasi partikel nano abu layang sebagai bahan urug pada penyimpanan limbah radioaktif dengan mengevaluasi karakteristik fisik (porositas dan permeabilitas), kecepatan migrasi uranium melalui bahan urug yang mengandung abu layang pada penyimpanan limbah radioaktif secara simulasi.

## METODE PENELITIAN

### Bahan

Bahan urug simulasi yang digunakan adalah mineral lokal zeolit dan abu layang. Abu layang diambil dari PLTU batubara Suralaya dengan komposisi kimia seperti pada **Tabel 1** [14].

Zeolit diambil dari Desa Sampang, Kecamatan Patuk, Kabupaten Gunung Kidul, dengan komposisi mineral terdiri dari klinoptilolit (24,64%) dan modernit (59,24%). Sedangkan komposisi kimia zeolit seperti pada **Tabel 2** [15].

### Alat

Peralatan yang digunakan adalah oven merk Sybron, ayakan Tyler standar ASTM ISO 565-R20, kolom gelas diameter dalam 1,55 cm dan 1,75 cm, beker gelas, gelas ukur, labu ukur, corong gelas, stopwatch, pompa dosis, spektrometer Corning.

**Prosedur Kerja**

**Penyiapan Serbuk Abu Layang dan Zeolit**

Abu layang dan zeolit masing-masing dikeringkan dalam oven sampai diperoleh berat yang tetap. Kemudian serbuk zeolit dan abu layang dimasukkan dalam panci ayakan standar ASTM ISO 565-R20 yang disusun dari atas ke bawah yaitu 60, 80 mesh atau setara dengan 250, 180 μm untuk zeolit serta 100, 120, 140, 200, 230, dan 400 mesh atau setara dengan 150, 125, 106, 75, 63, 38 μm untuk abu layang. Mesin pengayak dihidupkan selama 30 menit, kemudian hasil pengayakan diambil dari masing-masing panci ayakan sehingga diperoleh partikel zeolit dengan kisaran ukuran partikel 180 – 250 μm serta diperoleh partikel abu layang dengan kisaran ukuran partikel masing-masing sebagai berikut : 125-150, 106-125, 75-106, 63-75, 38-63, dan < 38 μm. Kemudian ditentukan ukuran partikel rerata dengan persamaan :

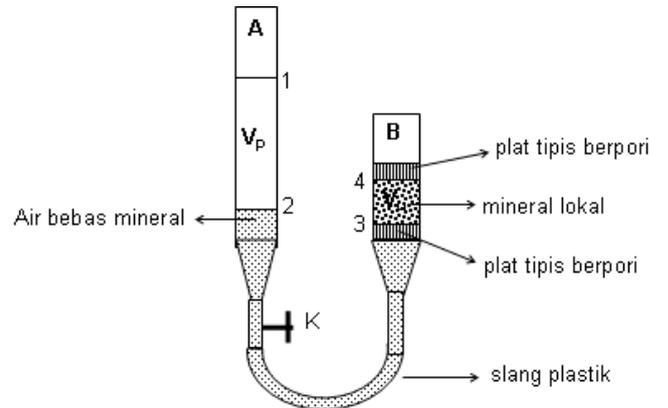
$$d_p = 3 \sqrt{\frac{(d_1 + d_2) \{ (d_1)^2 + (d_2)^2 \}}{4}} \quad (1)$$

dengan  $d_p$  = diameter partikel rerata (μm),  $d_1$  = diameter lubang saringan yang meloloskan partikel (μm),  $d_2$  = diameter lubang saringan yang menahan partikel (μm).

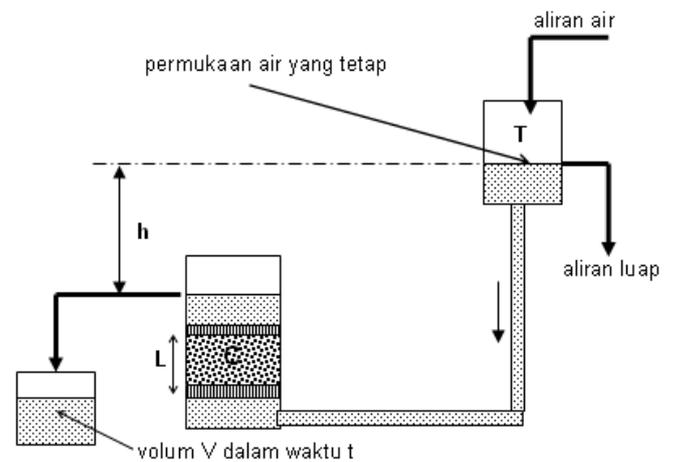
**Penentuan Porositas Serbuk Abu Layang dan Zeolit**

Penentuan porositas sampel dilakukan seperti pada **Gambar 3**. Kolom gelas B dengan diameter dalam  $d = 1,55$  cm yang berisi serbuk mineral lokal (zeolit atau abu layang) dengan volume unggun tertentu misal  $V_u$  dialiri air bebas mineral yang dialirkan dari buret A melalui bagian bawah kolom gelas B. Saat aliran air bebas mineral tepat pada bagian bawah unggun serbuk mineral lokal di batas 3 pada kolom gelas B, maka kran K pada buret A ditutup. Dicatat volum pada batas 1, kemudian dialirkan air bebas mineral ke dalam serbuk mineral lokal dalam kolom gelas B dengan cara kran K dibuka kembali. Setelah semua serbuk mineral lokal dalam kolom gelas B terlihat basah oleh aliran air bebas mineral sampai batas 4, maka kran K ditutup kembali. Dicatat pengurangan volume air bebas mineral dalam buret dari batas 1 ke 2 misal  $V_p$ , yang merepresentasikan volume pori-pori partikel dan rongga antar partikel serbuk dalam kolom gelas B. Porositas efektif ( $\epsilon$ ) partikel padat berpori ditentukan dengan persamaan [16, 17] :

$$\epsilon = \frac{V_p}{V_u} \quad (2)$$



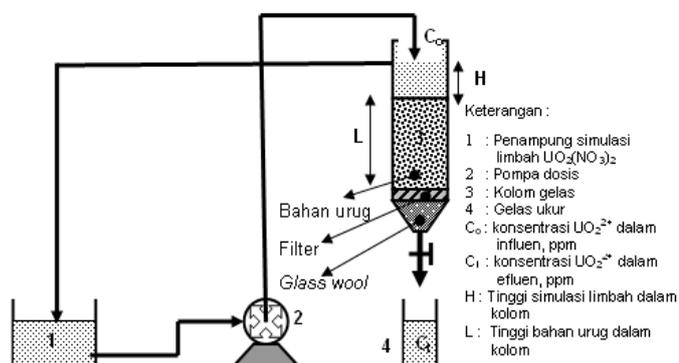
**Gambar 3.** Rangkaian peralatan penentuan porositas efektif



**Gambar 4.** Rangkaian peralatan penentuan permeabilitas secara *constant head*

**Penentuan Permeabilitas (K) Secara Constant Head**

Penentuan permeabilitas sampel dilakukan seperti pada **Gambar 4**. Kolom gelas vertikal C dengan diameter dalam  $d = 1,75$  cm yang dilengkapi pipa pemasukan dan pengeluaran *overflow* diisi serbuk mineral lokal dengan ukuran partikel tertentu pada ketinggian  $L = 10$  cm. Penampung T yang dilengkapi pipa pengeluaran secara gravitasi dan pipa pengeluaran *overflow* diisi air bebas mineral dengan tinggi *head loss*  $h = 50$  cm. Dialirkan air bebas mineral dari penampung T secara gravitasi ke dalam kolom C dari bagian bawah, aliran dihentikan setelah tercapai keadaan jenuh yaitu aliran masuk (*influen*) = aliran keluar kolom terisi serbuk mineral lokal (*efluen*). Setelah jenuh kran pengeluaran pada penampung T ditutup, selanjutnya mulai dilakukan pengukuran waktu alir ( $t$ ) sampai volume efluen  $V = 5$  cm<sup>3</sup>. Dilakukan langkah percobaan seperti di atas untuk ukuran partikel serbuk mineral lokal yang bervariasi. Permeabilitas di-



**Gambar 5.** Rangkaian peralatan penentuan kecepatan migrasi uranium dalam bahan urug

tentukan secara *constant head* dengan persamaan [16]:

$$K = \frac{V \cdot L}{A \cdot t \cdot h} \quad (3)$$

dengan  $V$  = volume efluen dalam waktu  $t$  ( $cm^3$ ),  $L$  = tinggi unggun serbuk mineral lokal dalam kolom ( $cm$ ),  $A$  = luas penampang kolom terisi serbuk mineral lokal ( $cm^2$ ),  $t$  = waktu penampungan  $V$  (detik),  $h$  = *head loss* ( $cm$ ).

#### Penentuan Kecepatan Migrasi Uranium pada Formula Zeolit-Abu Layang sebagai Bahan Urug

Percobaan dilakukan seperti pada **Gambar 5** dengan menggunakan 3 kolom gelas berdiameter  $d = 1,55$  cm yang masing-masing terisi sampel abu layang, zeolit, campuran zeolit+abu layang dengan tinggi  $L = 5$  cm yang telah dijenuhkan dengan air bebas mineral. Air bebas mineral di atas sampel dalam kolom dengan ketinggian  $H = 5$  cm dikeluarkan melalui bagian bawah kolom. Pada saat permukaan air bebas mineral tepat segaris dengan permukaan sampel dalam kolom, kran efluen ditutup, pompa dosis dihidupkan, sehingga umpan limbah cair uranil nitrat [ $UO_2(NO_3)_2$ ] dengan konsentrasi 500 ppm sebagai simulasi radionuklida  $^{238}U$  masuk dari atas kolom sampai ketinggian influen di atas sampel 5 cm. Kemudian kran efluen dibuka dan efluen yang keluar dari bagian bawah kolom ditampung dalam gelas ukur selama 30 menit. Dianalisis konsentrasi  $UO_2^{2+}$  dalam efluen sebagai ( $C_t$ ) setiap 30 menit menggunakan spektrometer.

Analisis  $C_t$  dilakukan dengan mengambil efluen dari gelas ukur sebanyak  $1$   $cm^3$ , dimasukkan ke dalam labu ukur  $5$   $cm^3$ , ditambahkan larutan Arsenazo  $0,5$   $cm^3$ , kemudian volum  $5$   $cm^3$  ditepatkan dengan menambahkan  $HNO_3$  3M sampai garis tanda. Dikocok sampai homogen, didiamkan 15 menit agar bereaksi sempurna. Selanjutnya dianalisis dengan spektrometer pada panjang gelombang 680 nm.

Kecepatan migrasi ( $V_r$ ) uranium dapat ditentukan dari data profil konsentrasi uranium dalam efluen yang keluar kolom terisi unggun mineral zeolit  $196$   $\mu m$ , abu layang  $\leq 38$   $\mu m$ , dan campuran zeolit+abu layang pada Gambar 12 serta persamaan (2) s.d. (7).

Migrasi uranium dalam bahan urug adalah uranium terlarut yang dapat dibawa oleh aliran larutan yang dapat melewati bahan urug. Migrasi tersebut akan terhambat oleh karakteristik fisik bahan urug seperti jumlah pori dalam partikel dan pori antar partikel yang diwakili oleh porositas efektif, terhambat oleh kepadatan bahan urug yang diwakili oleh densitas curah, terhambat oleh saluran kecil berkelok-kelok (*pathways*) yang diwakili oleh tortuositas, terhambat oleh uranium yang terjerap oleh partikel bahan urug secara sorpsi fisik dan kimia yang diwakili oleh koefisien distribusi. Kecepatan migrasi uranium melalui bahan urug dapat ditentukan dengan persamaan :

$$V_r = \frac{V_w}{R} \quad (4)$$

dengan  $V_r$  = kecepatan migrasi uranium dalam bahan urug ( $cm/menit$ ),  $V_w$  = kecepatan linier larutan melalui bahan urug ( $cm/menit$ ),  $R$  = faktor retardasi.

Penentuan  $V_w$  dapat dicari dari persamaan Darcy's [16] :

$$V_w = \frac{K}{\epsilon} \cdot \frac{H}{L} \quad (5)$$

dengan  $H$  = tinggi cairan di atas unggun adsorben dalam kolom,  $cm$ .

Sedangkan  $R$  adalah faktor retardasi, yaitu faktor yang menghambat migrasi uranium dalam bahan urug secara fisik oleh densitas curah dan porositas efektif serta secara sorpsi yang dapat ditentukan dengan persamaan [18] :

$$R = 1 + \frac{\rho_b \cdot K_d}{\epsilon} \quad (6)$$

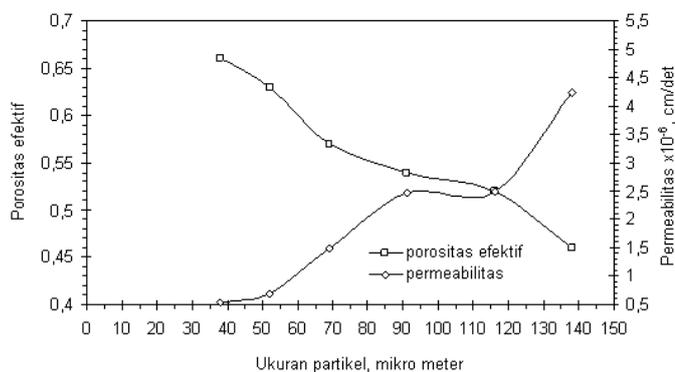
Sedangkan  $K_d$  dapat ditentukan dengan persamaan [19] :

$$K_d = \frac{V_T \cdot C_0 - \sum V_t \cdot C_t}{\sum V_t \cdot C_t} \cdot \frac{V_T}{M} \quad (7)$$

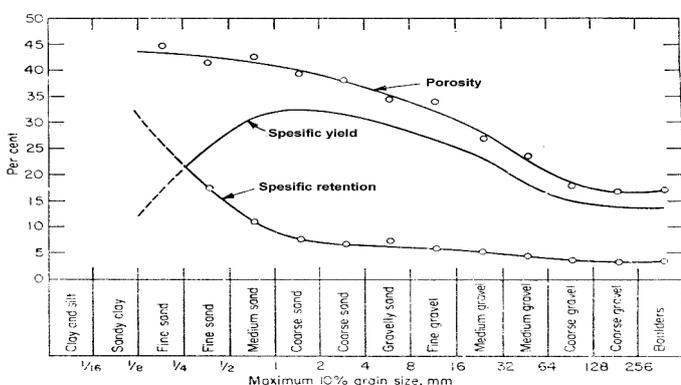
dengan  $K_d$  = koefisien distribusi  $V_T$  = volum total efluen ( $cm^3$ ) sampai tercapai  $C_t = C_0$ ,  $\sum V_t \cdot C_t$  = akumulasi konsentrasi uranium dalam efluen sampai tercapai  $C_t = C_0$  ( $mg/dm^3$ ),  $M$  = berat unggun adsorben dalam kolom sebagai simulasi bahan urug ( $g$ ).

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Mengetahui pengaruh ukuran partikel terhadap sifat fisik mineral abu layang dimaksudkan untuk mendapatkan ukuran partikel mineral yang memberikan karakteristik fisik yang terbaik. Karakteris-



Gambar 6. Pengaruh ukuran partikel nano abu layang terhadap porositas efektif dan permeabilitas

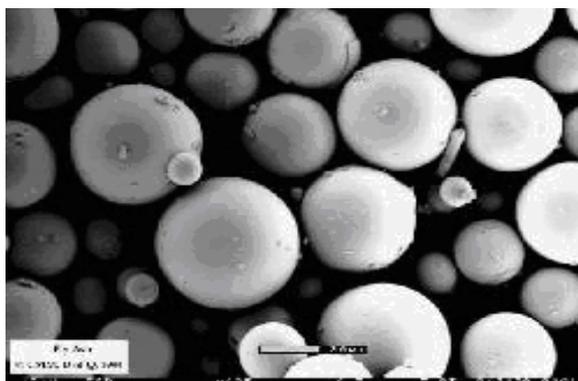


Gambar 7. Pengaruh ukuran butir mineral terhadap porositas efektif

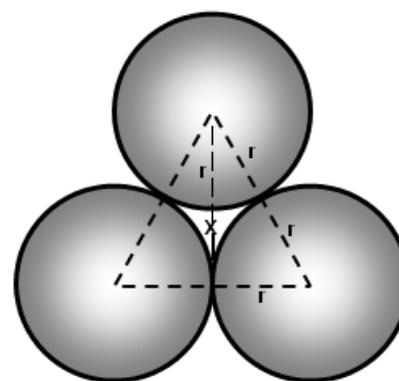
tik fisik meliputi porositas efektif ( $\epsilon$ ) dan permeabilitas ( $K$ ) yang disajikan pada Gambar 6.

Gambar 6 menunjukkan bahwa sampel dengan ukuran partikel yang semakin kecil, maka porositas efektif semakin besar. Hal ini dapat dipahami karena pada ukuran partikel yang semakin kecil pada volume unggun yang tetap, maka jumlah partikel dengan rongga dalam (*internal pore*) dan jumlah rongga antar partikel dalam unggun atau yang biasa disebut rongga luar (*external pore*) akan bertambah besar. Porositas efektif semakin besar untuk ukuran partikel yang semakin kecil tersebut sesuai dengan teori yang dinyatakan oleh Ven Te Chow pada Gambar 7 [16].

Gambar 7 menunjukkan bahwa semakin kecil ukuran partikel abu layang menyebabkan permeabilitas semakin kecil. Hal ini diterangkan sebagai berikut : semakin kecil ukuran partikel maka ukuran *internal pore* masing-masing partikel dan pori antar partikel menjadi lebih kecil. Pori antar partikel tersebut saling berhubungan satu dengan yang lain membentuk kapiler yang berbelit dan berbelok. Kapiler yang terbentuk dari rongga antar pori yang saling berhubungan tersebut dengan jumlah belokan yang semakin banyak menyebabkan permeabilitas semakin kecil.



Gambar 8. Bentuk partikel abu layang



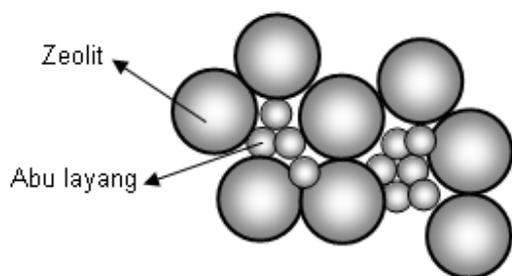
Gambar 9. Ilustrasi rongga antar partikel bulat homogen dari zeolit

Gambar 7 terlihat bahwa permeabilitas abu layang dengan ukuran butir  $\leq 38 \mu\text{m}$  dari PLTU Suralaya sebesar  $5,40 \times 10^{-5} \text{ cm/detik}$  adalah yang terkecil. Kemudian dilakukan pengukuran terhadap densitas curah ( $\rho_b$ ) dengan hasil sebesar  $\rho_b = 0,612 \text{ g/cm}^3$ . Hasil pengukuran permeabilitas abu layang dengan ukuran butir  $\leq 38 \mu\text{m}$  diperoleh  $K = 5,40 \times 10^{-5} \text{ cm/detik}$ . Nilai  $K$  ini masuk dalam kisaran permeabilitas abu layang dari PLTU yang menggunakan batubara bituminous klas F yaitu dengan nilai  $K$  antara  $4 \times 10^{-4} \text{ cm/detik}$  s.d.  $5 \times 10^{-7} \text{ cm/detik}$  [4].

Abu layang terdiri dari material yang partikelnya berbentuk bulat berpori yang relatif homogen seperti terlihat pada Gambar 8 [3]. Dengan asumsi partikel-partikel zeolit berbentuk bulat dan strukturnya rapat, maka ukuran rongga antar partikel zeolit yang terbentuk dapat diperkirakan dengan bantuan skema seperti pada Gambar 9 dengan,  $r$  = jari-jari partikel zeolit ( $\mu\text{m}$ ),  $x$  = diameter rongga antar partikel zeolit ( $\mu\text{m}$ ). Dengan menggunakan rumus Phytagoras diperoleh persamaan :

$$(2r)^2 = r^2 + (x+r)^2 \tag{8}$$

$$x^2 + 2xr - 2r^2 = 0 \tag{9}$$



**Gambar 10.** Ilustrasi rongga antar partikel zeolit terisi partikel abu layang

Mineral alam lokal yang digunakan sebagai calon bahan urug adalah zeolit dengan ukuran partikel -60/+80 mesh atau setara dengan ukuran diameter partikel rerata 196  $\mu\text{m}$ . Pemilihan ukuran partikel zeolit tersebut adalah berdasarkan kemampuan zeolit untuk menjerap uranium secara *batch* yang terbaik yaitu berukuran -60/+80 mesh atau diameter rerata partikel 196  $\mu\text{m}$  dengan hasil faktor dekontaminasi uranium 83,30 dan efisiensi pemisahan uranium 98,80% [17]. Dengan demikian komposisi bahan urug untuk menjerap radionuklida uranium dalam penelitian ini yaitu dengan mencampurkan mineral alam lokal zeolit dengan diameter rerata partikel 196  $\mu\text{m}$  dan abu layang dengan ukuran  $\leq 38 \mu\text{m}$ . Hasil pengukuran porositas dan permeabilitas pada zeolit 196  $\mu\text{m}$  masing-masing  $\varepsilon = 0,73$  dan  $K = 4,06 \times 10^{-3} \text{ cm/det}$ . Pencampuran zeolit dan abu layang ini dimaksudkan untuk mengetahui karakteristik fisik, sorpsi dan migrasi uranium yang terbaik pada variasi komposisi zeolit/abu layang.

Persamaan (9) di atas dapat diselesaikan dengan rumus ABC. Diameter rerata partikel zeolit = 196  $\mu\text{m}$ , maka  $r$  partikel zeolit = 98  $\mu\text{m}$ . Ukuran rongga tersempit antar partikel yang terbentuk ( $x$ ) dapat dihitung sebagai berikut :

$$x^2 + 2(98)x - 2(98)^2 = 0 \quad (10)$$

$$x^2 + 196x - 19208 = 0 \quad (11)$$

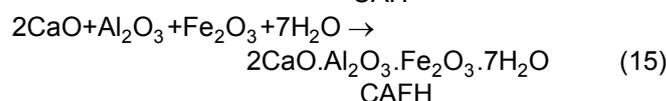
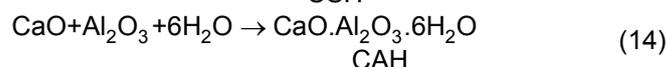
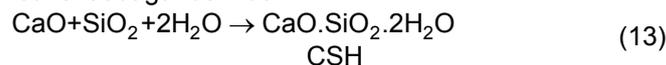
$$x = 71,74 \mu\text{m} \quad (12)$$

Beberapa rongga antar partikel zeolit yang terbentuk dengan ukuran sekitar  $x = 71,74 \mu\text{m}$  tersebut akan terisi oleh partikel abu layang berukuran  $\leq 38 \mu\text{m}$  seperti pada **Gambar 10**.

Partikel-partikel abu layang yang mengisi rongga antar partikel zeolit tersebut saling berhubungan satu dengan yang lain sehingga dapat membentuk saluran-saluran sangat sempit yang berbelit dan berkelok. Hal ini merupakan salah satu kontribusi yang dapat menyebabkan terjadinya penurunan permeabilitas pada formula bahan urug zeolit + abu layang.

Bentuk partikel abu layang yang bulat dengan ukuran partikel nano ( $< 100 \mu\text{m}$ ) seperti Gambar 8 adalah bersifat pozolanik. Kemudian dengan adanya interaksi antara zeolit, abu layang, dan uranil nitrat yang

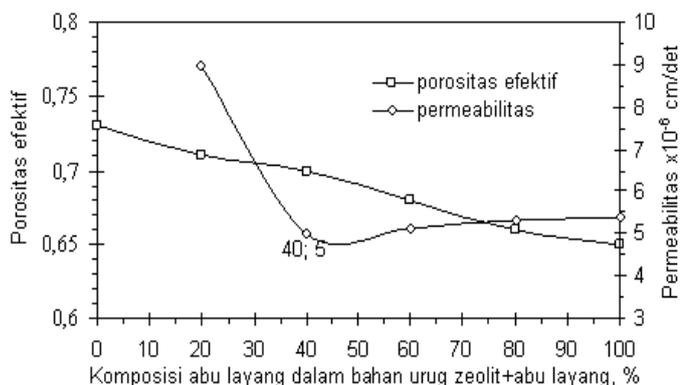
mengandung air kemungkinan akan terjadi reaksi antara kalsium (CaO) dalam zeolit dengan air yang terkandung dalam uranil nitrat dan ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) yang terkandung dalam abu layang. Reaksi terjadi pada permukaan partikel abu layang dengan membentuk lapisan gel tipis kalsium silikat hidrat (CSH), kalsium aluminat hidrat (CAH), dan kalsium aluminat ferit hidrat (CAFH) di antara dinding bulatan partikel zeolit dan abu layang dengan mekanisme reaksi sebagai berikut :



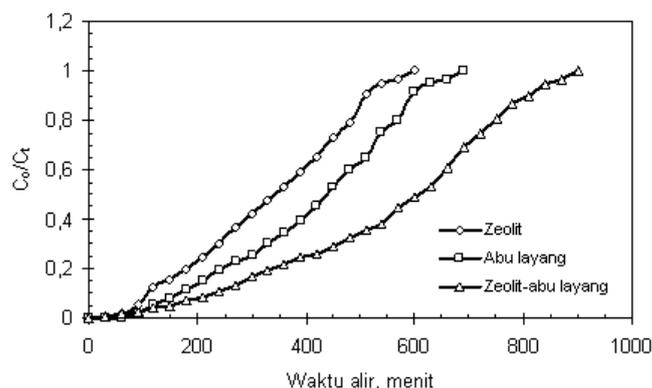
Lapisan gel tipis CSH, CAH, dan CAFH pada permukaan partikel abu layang dapat memperkuat ikatan beberapa partikel zeolit dan abu layang. Dengan terbentuknya lapisan gel tipis tersebut, maka masing-masing ikatan partikel zeolit-abu layang tersebut saling berikatan membentuk beberapa kelompok ikatan partikel atau aglomerisasi partikel dalam unggun bahan urug. Dengan terjadinya aglomerisasi partikel, maka akan mencegah terjadinya fluidisasi beberapa partikel dalam unggun bahan urug oleh aliran fluida uranil nitrat. Setelah jangka waktu tertentu (7, 14, 21, dan 28 hari), maka lapisan gel tipis CSH, CAH, dan CAFH akan bertambah keras. Hal ini dapat dianalogikan dengan proses *setting* dan *hardening* pada proses pengerasan adonan semen + air pada perbandingan semen/air sekitar 0,3 – 0,4. Jika diperpanjang waktu terjadinya aliran laminar fluida uranil nitrat di dalam unggun bahan urug zeolit + abu layang, maka kemungkinan aliran fluida di dalam unggun bahan urug akan semakin melambat.

Karena bentuk partikel abu layang bulat dengan diameter  $\leq 38 \mu\text{m}$ , maka abu layang berfungsi sebagai pengisi rongga antar partikel zeolit dengan diameter  $x = 71,74 \mu\text{m}$ . Dengan tersumbatnya rongga antar partikel zeolit oleh abu layang, maka dapat memperkecil permeabilitas formula bahan urug zeolit+abu layang. Pengaruh perbandingan berat campuran zeolit/abu layang terhadap porositas efektif dan permeabilitas bahan urug ditunjukkan pada **Gambar 11**.

Ukuran partikel adsorben yang semakin kecil dalam kolom percobaan memberikan jumlah luas permukaan partikel adsorben dan porositas efektif menjadi lebih besar. Porositas efektif yang semakin membesar akan memperbanyak jumlah larutan yang mengisi pori-pori dalam unggun (*bulk*) adsorben, maka frekuensi kontak antara partikel adsorben dengan larut-



**Gambar 11.** Pengaruh komposisi mineral abu layang dalam bahan urug zeolit-abu-layang terhadap porositas efektif dan permeabilitas



**Gambar 12.** Profil konsentrasi uranium dalam efluen yang keluar dari kolom terisi mineral lokal sebagai calon bahan urug

**Tabel 3.** Pengaruh komposisi bahan urug dari mineral lokal terhadap karakteristik fisik, dan migrasi uranium

Bahan urug, (% berat)	Karakteristik		
	Fisik K, (cm/det)	Fisik dan Sorpsi R	Migrasi V <sub>r</sub> , cm/det
Abu layang ≤ 38 μm, 100%	5,40x10 <sup>-5</sup>	8,82	9,27x10 <sup>-6</sup>
Zeolit 196 μm, 100%	4,06x10 <sup>-3</sup>	33,72	1,65x10 <sup>-4</sup>
Zeolit /abu layang 60 / 40 %	5,00x10 <sup>-5</sup>	24,56	2,91x10 <sup>-6</sup>

an yang mengandung uranium lebih besar sehingga penjerapan uranium oleh zeolit menjadi lebih besar. Permeabilitas campuran yang semakin kecil akan memperlambat aliran larutan uranil nitrat, aliran yang lambat ini akan memberikan kontribusi waktu kontak antara uranil nitrat dengan adsorben zeolit akan lebih maksimal.

### Karakteristik Migrasi Uranium dalam Bahan Urug

Proses adsorpsi limbah uranium oleh campuran bahan urug dengan cara mengontakkan larutan limbah simulasi dengan bahan urug secara sinambung. Dalam penelitian ini pH limbah, konsentrasi limbah, kecepatan influen, diameter kolom dan tinggi kolom dibuat tetap. Bahan penjerap yang digunakan tidak dilakukan aktivasi. Berdasarkan analisis konsentrasi  $UO_2^{2+}$  dalam influen ( $C_o$ ) dan konsentrasi  $UO_2^{2+}$  dalam efluen ( $C_t$ ) dari hasil percobaan dengan menggunakan spektrometer, maka dapat dibuat profil konsentrasi  $UO_2^{2+}$  seperti ditunjukkan pada Gambar 12.

Pada Gambar 12 menunjukkan bahwa dibandingkan dengan formula bahan urug dari zeolit atau abu layang saja, maka formula bahan urug dari campuran zeolit+abu layang membutuhkan waktu yang lebih besar untuk mencapai kemampuan sorpsi maksimum yang ditandai dengan  $C_o/C_t = 1$ . Hal ini disebabkan karena waktu tinggal larutan uranil nitrat yang melalui formula bahan urug dari campuran

zeolit+abu layang lebih besar sehingga kontak antara uranium dengan zeolit lebih lama yang berakibat proses sorpsi lebih baik.

Pengaruh formula bahan urug terhadap karakteristik fisik, sorpsi, dan migrasi ditunjukkan pada Tabel 3. Hasil penelitian seperti pada Tabel 3 dapat dijelaskan bahwa R mineral abu layang terhadap  $UO_2^{2+}$  sebesar 8,82. Sedangkan R mineral zeolit terhadap  $UO_2^{2+}$  sebesar 33,72. Abu layang memberikan R lebih kecil daripada R bahan penjerap zeolit alam. Hal ini bisa dipahami karena sorpsi  $UO_2^{2+}$  yang terjadi dalam zeolit disebabkan oleh sorpsi fisik dan kimia sedangkan pada abu layang hanya terjadi sorpsi fisik. Sorpsi fisik yaitu molekul uranium yang kemungkinan berupa endapan  $UO_2(OH)_2$  akan terfiltrasi pada pori antar partikel atau menempel pada permukaan partikel. Sedangkan terjadinya endapan  $UO_2(OH)_2$  kemungkinan disebabkan oleh reaksi antara kation  $UO_2^{2+}$  dengan  $OH^-$  yang terdapat dalam zeolit. Sorpsi kimia dapat terjadi karena kation alkali dan alkali tanah dalam zeolit di luar struktur kerangka aluminasilika zeolit akan ditukar oleh kation  $UO_2^{2+}$  yang afinitasnya lebih besar. Disamping itu dapat terjadi sorpsi kimia uranium pada zeolit karena pengikatan kation  $UO_2^{2+}$  oleh kisi-kisi kristal aluminasilika bermuatan negatif disebabkan oleh adanya penggantian  $Si^{4+}$  oleh  $Al^{3+}$  secara isomorphous pada lapisan tetrahedral zeolit [20].

Penambahan abu layang dalam bahan urug zeolit+abu layang akan mengurangi faktor retardasi uranium pada bahan urug zeolit+abu layang. Faktor retardasi uranium yang menurun ini disebabkan karena sebagian zeolit yang mempunyai R yang relatif besar, diganti oleh abu layang yang mempunyai R yang relatif lebih kecil dibandingkan zeolit alam.

Dari Tabel 3 terlihat bahwa penambahan abu layang dalam bahan urug zeolit+abu layang dapat memperkecil permeabilitas. Permeabilitas yang kecil menyebabkan kecepatan linear cairan yang melalui bahan urug ( $V_w$ ) menjadi berkurang. Penambahan abu layang pada campuran zeolit+abu layang dengan komposisi 60/40% berat memberikan hasil karakteristik fisik K serta karakteristik migrasi  $V_r$  uranium yang terbaik. Pada komposisi ini, maka kontribusi kedua bahan pada campuran saling bersinergi. Zeolit mempunyai faktor retardasi uranium dan porositas efektif yang relatif besar, namun permeabilitas relatif besar. Sedangkan abu layang mempunyai faktor retardasi uranium dan porositas efektif yang relatif kecil, namun permeabilitas yang relatif kecil. Oleh karena itu zeolit terutama digunakan sebagai penjerap uranium secara fisika dan kimia, sedangkan abu layang digunakan untuk memperbaiki kualitas fisik yaitu sebagai penahan terhadap kondisi lingkungan, karena zeolit mempunyai sifat tidak tahan terhadap radiasi dan asam ( $pH \leq 5$ ), serta konduktivitas panas yang rendah [20]. Sedangkan abu layang mempunyai kandungan mineral terbanyak silikat gelas, kuarsa dan mulit yang bersifat stabil terhadap pengaruh kimia-fisis seperti suhu, tekanan dan kondisi air tanah. Dengan demikian apabila zeolit akan digunakan sebagai bahan urug, maka perlu ditambah abu layang agar dapat diperoleh bahan urug dengan permeabilitas rendah, tahan terhadap pengaruh kimia dan fisik, tetapi kemampuan sorpsi tinggi seperti yang dipersyaratkan oleh *Atomic Energy Canada Limited* dalam Lopez [13].

Formula bahan urug dari campuran zeolit+abu layang pada komposisi 60/40% berat memberikan karakteristik fisik terbaik yang diwakili oleh permeabilitas (K) sebesar  $5,00 \cdot 10^{-5}$  cm/detik. Hasil penelitian yang dilakukan oleh Lopez memberikan data K bahan urug sebesar  $5,3 \cdot 10^{-4}$  s.d.  $5,1 \cdot 10^{-9}$  cm/detik [13]. Apabila data K hasil penelitian ini dibandingkan dengan data K dari penelitian Lopez, maka formula bahan urug dari campuran zeolit+abu layang dengan komposisi 60/40% berat dapat dijadikan bahan urug pada penyimpanan limbah radioaktif.

## KESIMPULAN

Dari hasil penelitian dapat disimpulkan, bahwa partikel nano abu layang dapat memperbaiki karakteristik fisik dan migrasi uranium dalam bahan urug

dengan formula campuran zeolit 196  $\mu\text{m}$  dan abu layang  $\leq 38 \mu\text{m}$  pada perbandingan zeolit/abu layang sebesar 60/40% berat. Perbaikan karakteristik fisik diwakili oleh penurunan permeabilitas dari  $K_{\text{zeolit}} = 4,06 \cdot 10^{-3}$  cm/detik menjadi  $K_{\text{zeolit-abu layang}} = 5,0 \cdot 10^{-5}$  cm/detik. Sedangkan perbaikan karakteristik migrasi uranium diwakili oleh penurunan kecepatan migrasi ( $V_r$ ) uranium, yaitu dari  $V_r$  uranium pada zeolit sebesar  $1,65 \cdot 10^{-4}$  cm/detik menjadi  $V_r$  uranium pada zeolit+abu layang sebesar  $2,91 \cdot 10^{-6}$  cm/detik.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih kepada Tri Suyatno yang telah membantu penelitian ini di Sub Bidang Pengelolaan Limbah dan Keselamatan Lingkungan, Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan – BATAN Yogyakarta.

## DAFTAR PUSTAKA

1. <http://www.tfhr.gov/hnr20/recycle/waste/cfa51.htm>, 9 Mei 2007.
2. <http://www.rmajko.com/qualitycontrol.htm>, 21 Desember 2006.
3. <http://www.geocities.com/rmajko/flyash.html>, 26 Desember 2006.
4. <http://www.rmajko.com/soilstab.htm>, 21 Desember 2006.
5. Rusdiarso, B., 1996, *Analisis dan Kajian tentang Pemanfaatan Abu Layang sebagai Adsorben Zat Warna*, Laporan Penelitian, FMIPA – UGM, Yogyakarta.
6. ADAA, *Fly Ash Reference Material*, Ash Development Association of Australia, <http://www.adaa.asn.au/refmaterial.htm>, 4 Mei 2007.
7. Kaiser, S., 1999, *Radiological Protection Principles Concerning the Natural Radioactivity of Building Materials*, Radiation Protection 112, European Commission, <http://ec.europa.eu/energy/nuclear/radioprotection/publication/doc/12en.pdf>, 21 November 2007.
8. Widodo, S., 2007, Trace Element dalam Fly Ash Industri Batubara, Workshop Aplikasi Energi Nuklir untuk Proses Batubara Cair, PTKMR – BATAN.
9. IAEA, 1996, IAEA-Tecdoc 855, ISSN 1011-4289, IAEA-Vienna, p.11.
10. NEA, 2004, <http://www.nea.fr/html/rwm/docs/2004/rwm-rf2004-6.pdf>, 30 November 2007.
11. Nuclear Waste Storage, [http://library.thinkquest.org/17940/texts/nuclear\\_waste\\_storage/nuclear\\_waste\\_storage.html](http://library.thinkquest.org/17940/texts/nuclear_waste_storage/nuclear_waste_storage.html), 31 Maret 2007.

12. Coghurn, C.O., Hodgson, L.M., and Ragland, R.C., 1986, Disposal of Low Level Radioactive Waste Using High Calcium Fly Ash, Technical Report, Arkansas University, Dept. of Mechanical Engineering, Fayetteville – USA.
13. Lopez, R.S. and Johnson, L.H., 1986, Vault Sealing Research and Development for the Canadian Nuclear Fuel Waste Management, Atomic Energy of Canada Limited – 9053.
14. Ernawanto, Y., 1998, Studi tentang Karakteristik Abu Layang terhadap Sorpsi Sr-90, Skripsi, Sekolah Tinggi Teknologi Lingkungan, Yogyakarta.
15. Martini, T., 1999, Zeolit, Dinas Pertambangan, Pemda Daerah Istimewa, Yogyakarta.
16. Ven Te Chow, 1964, Handbook of Applied Hidrology, Mc Graw-Hill Book Company, New York, pp. 13-1, 13-15.
17. Budiyo, M.E. and Poernomo, H., 2001, Kajian Pengaruh Penambahan Pasir pada Zeolit untuk Menjerap Nuklida Uranium dalam Limbah Radioaktif Fase Air, dalam Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM – BATAN, Yogyakarta, hal. 209 - 215.
18. Champ, D.R., Molyaner, G.L., Young, J.L., and Lapcevic, P., 1985, Atomic Energy of Canada Limited - 8905.
19. Poernomo, H. and Kundari, N.A., 2006, *Indo. J. Chem.*, 6, 3.
20. Wiederhold, E.W., 1972, *Use of Local Minerals in the Treatment of Radioactive Waste*, Technical Report Series No. 136, IAEA, Vienna.