



## PEMANFAATAN ALUMINO SILIKO FOSFAT UNTUK PENYERAPAN FLUOR DAN AMONIUM

Aan HB Martin, Thamzil Las  
Pusat Teknologi Pengolahan Limbah Radioaktif

### ABSTRAK

PEMANFAATAN ALUMINO SILIKO FOSFAT UNTUK PENYERAPAN ION FLUOR DAN AMONIUM. Telah dilakukan modifikasi zeolit yang berasal dari Bayah, Lampung dan Tasik menjadi bentuk alumino siliko fosfat (ASP). Alumino siliko fosfat mempunyai struktur kristal yang unik dan memungkinkan mempunyai sifat sebagai penukar anion dan kation. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk memperoleh jenis modifikasi zeolit yang dapat digunakan sebagai penukar kation dan anion. Pembuatan ASP dilakukan dengan mereaksikan zeolit dan amonium dihidrogen fosfat (ADHP) pada perbandingan berat 1:1, 1:5 dan 5:1. Karakterisasi ASP dilakukan dengan XRF, XRD dan TG. Percobaan penyerapan terhadap ion F dan  $\text{NH}_4$  dilakukan dengan metode catu pada konsentrasi ion 0,01, 0,04, 0,08, 0,2 dan 0,4 N. Percobaan dengan menggunakan kolom penukar ion dilakukan pada konsentrasi ion F 0,026 N (500 ppm) dan ion  $\text{NH}_4$  0,0055 N (100 ppm) secara terpisah kedalam kolom berdiameter 1 cm yang masing-masing mengandung 3 g ASP dan zeolit murni. Hasil percobaan catu, menunjukkan peningkatan penyerapan ion F sesuai dengan variasi konsentrasi ion F antara 0,01- 0,08 N yang mampu menyerap ion F 1,09 - 9,17 eq/kg. Untuk konsentrasi ion F lebih tinggi terjadi fluktuasi penyerapan ion F. Pada penyerapan ion  $\text{NH}_4$  terlihat zeolit murni dan ASP mempunyai kemampuan penyerapan yang relatif sama antara 1,09 - 14,24 eq/kg. Dari percobaan kolom penukar ion, pada 50% *breakthrough* (BT), ASP dapat menyerap ion F bervariasi antara 278,48 - 334,19 *bed volume* (BV) atau 900 - 1300 ml larutan yang mengandung 0,026 N (500 ppm) ion F. Pada penyerapan  $\text{NH}_4$ , ASP dapat menyerap ion  $\text{NH}_4$  bervariasi antara 219,64 - 297,17 BV atau 850 - 1150 ml larutan yang mengandung 0,0055 N (100 ppm) ion  $\text{NH}_4$ . Hasil penelitian ini memperlihatkan potensi ASP sebagai penyerap ion F dan  $\text{NH}_4$  yang mungkin dapat diaplikasikan pada pengolahan limbah fabrikasi elemen bakar yang mengandung kompleks uranium fluorida dan  $\text{NH}_4^+$ .

### ABSTRACT

*USE OF ASP FOR REMOVAL OF FLUORINE AND AMMONIUM IONS. The purified zeolites from Bayah, Lampung dan Tasik have been modified into microporous alumino-silico phosphate (ASP) which could be used as anion and cation exchangers. ASP has been prepared by mixing purified zeolites and ammonium dihydrogen phosphate in weight ratios of 1:1, 1:5 and 5:1. The materials have been characterized by XRF, XRD and TG. The ion-exchange experiments have been performed by batch method for various concentrations of 0,01, 0,04, 0,08, 0,2 and 0,4 N F and  $\text{NH}_4$  ion. Column experiment has been performed for : 500 ppm of ion F ( 0,026 N) and 100 ppm (0,0055N) of ion  $\text{NH}_4$  concentrations respectively, fed into 1 cm diameter column containing 3 g pure ion exchangers. From batch experiment the fluorine sorption increases following the increase the concentration and F could be adsorbed up to about 1,09 - 9,17 eq/kg for in the range of concentration 0.01 - 0.08 N. For higher fluorine concentration, the fluorine sorption tends to fluctuate. The ammonium sorption experiments obtain similar results for purified zeolites and ASP. The ion could be absorbed up to about 1.09 - 14.24 eq/kg. In column experiment, 1 g ASP could absorb fluorine up to about 278,48 - 334,19 BV ( 900-1300 ml) at 50% BT, and absorb  $\text{NH}_4$  about 219,64 - 297,17 BV (850 - 1150 ml) separately. These result shows that the ASP might be a potential material to be used for removal of ion F and  $\text{NH}_4$  from the waste generated in the fuel element fabrication.*

### PENDAHULUAN

Penelitian tentang zeolit sebagai material unggulan masa depan sudah semakin berkembang. Oleh karena itu sangatlah menarik untuk dikaji lebih

mendalam mengenai pemanfaatan zeolit untuk pengolahan limbah.

Zeolit adalah senyawa alumino silikat yang mempunyai struktur yang khas, yaitu dengan adanya kekurangan muatan positif pada atom Al nya menyebabkan zeolit dapat mengikat kation secara pertukaran ion.

Kerangka kristal zeolit yang berbentuk tetrahedron membentuk suatu rongga yang menyebabkan zeolit dapat mengikat ion secara sorpsi. Disamping itu zeolit dapat pula bersifat *molecular sieving* dan tidak *swelling* bila kontak dengan cairan sebagaimana mineral lempung<sup>[1]</sup>.

Zeolit alam yang terdapat di Indonesia mutunya relatif rendah karena teknik pengolahannya masih sangat sederhana, oleh karena itu diperlukan penanganan lebih lanjut untuk memperbaiki mutu. Salah satu cara untuk maksud tersebut adalah memodifikasi zeolit kedalam bentuk senyawa alumino siliko fosfat (ASP). Pada penelitian ini dilakukan modifikasi zeolit yang berasal dari Bayah, Lampung dan Tasik. Alumino siliko fosfat adalah suatu bentuk modifikasi zeolit yang mempunyai struktur kristal unik dan memungkinkan mempunyai sifat sebagai penukar anion dan kation. Pembuatan ASP dilakukan dengan cara mereaksikan zeolit murni dan senyawa amonium dihidrogen fosfat (ADHP) pada berbagai perbandingan berat dan dilakukan dengan menggunakan cara pemanasan pada suhu 235 ° C.

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk memperoleh jenis modifikasi zeolit yang mempunyai sifat penyerapan terhadap ion F dan NH<sub>4</sub> yang dilakukan dengan menggunakan metode catu dan kolom penukar ion. Dengan modifikasi ini diharapkan kemampuan penyerapan terhadap ion F dan NH<sub>4</sub> akan menjadi lebih baik, sehingga dapat diaplikasikan untuk mengatasi masalah pengolahan limbah radioaktif terutama dari fabrikasi elemen bakar yang mengandung kompleks uranium fluorida dan NH<sub>4</sub><sup>+</sup>.

## TATA KERJA

### Penyediaan bahan.

Zeolit alam yang berasal dari Bayah, Lampung dan Tasik terlebih dahulu dibersihkan dari kotoran dan dipisahkan dari batuan-batuan lain, kemudian dikeringkan diudara terbuka. Zeolit digerus dan diayak untuk mendapatkan ukuran butiran antara 125 - 400 μm. Zeolit yang telah dibersihkan kemudian dicuci dengan air bebas mineral untuk memisahkan mineral lempung yang tercampur dalam zeolit secara alami, kemudian pengenaan dilakukan

menggunakan metil iodida. Sebanyak 100 gram zeolit ditempatkan dalam labu destilasi dan reflux dilakukan dengan air bebas mineral sebanyak 600 ml. Proses pemurnian ini dilakukan selama tiga hari dan setiap hari airnya diganti. Setelah proses ini, zeolit dicuci dengan air bebas mineral kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 105° C. Setelah kering simpan dalam desikator yang mengandung NaCl jenuh. Larutan sediaan yang digunakan dalam penelitian ini adalah larutan NaF dengan konsentrasi bervariasi : 0,01, 0,04, 0,08, 0,2 dan 0,4N, larutan NH<sub>4</sub>Cl dengan konsentrasi : 0,01, 0,04, 0,08, 0,2 dan 0,4 N dan amonium dihidrogen fosfat (ADHP) dari PEREAKSI E Merck.

### Cara kerja.

Modifikasi zeolit dilakukan menggunakan cara pemanasan campuran zeolit dan ADHP pada komposisi 1:1, 1:5 dan 5:1 pada suhu 235°C selama 4 jam. Sebelum dipanaskan dalam oven, terlebih dahulu dilakukan pengadukan secara merata agar diperoleh campuran yang homogen. .

Karakterisasi ASP yang dilakukan meliputi : komposisi kimia menggunakan XRF, komposisi mineral dan analisis struktur menggunakan XRD dan kestabilan termal menggunakan TG.

Kemampuan penyerapan ion F dan NH<sub>4</sub> oleh ASP dilakukan dengan mengontakan 0,1 gram ASP dan larutan NaF serta NH<sub>4</sub>Cl dengan konsentrasi bervariasi secara terpisah didalam botol polietilen volume 20 ml. Campuran dikocok menggunakan *roller* selama 7 hari untuk mencapai kesetimbangan. Contoh disentrifugasi kemudian filtrat dianalisis dengan kromatografi ion menggunakan kolom anion untuk analisis ion F dan kolom kation untuk analisis ion NH<sub>4</sub>. Analisis jumlah anion dan kation sebelum dan sesudah pengocokan dilakukan juga. Jumlah anion dan kation yang diserap oleh ASP dapat dihitung dengan persamaan :

$$C_s = \frac{C_o - Ct}{C_o} \times \frac{V \cdot N}{m} \text{ ( meq/g )}$$

dimana :

C<sub>s</sub> = jumlah anion atau kation yang terserap dalam zeolit atau ASP (meq/g)

C<sub>o</sub> = konsentrasi ion awal (meq/ml)

$C_1$  = konsentrasi ion setelah kesetimbangan (meq/ml).

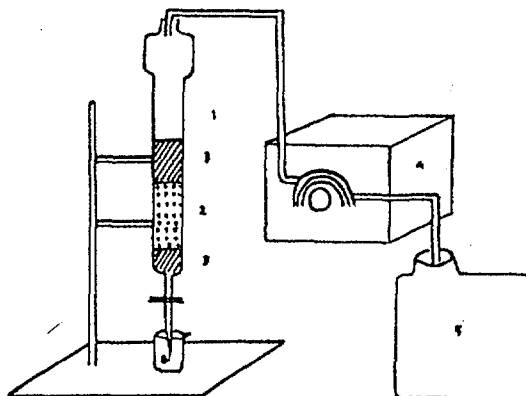
$V$  = volume larutan (ml)

$m$  = berat contoh zeolit (g)

$N$  = normalitas larutan (meq/ml)

Percobaan kolom penukar ion dilakukan dengan cara mengontakkan 3 gram ASP dengan larutan ion F dan  $\text{NH}_4$  secara terpisah dalam kolom penukar ion. Diameter kolom yang digunakan dalam penelitian ini 1 cm, sedangkan kecepatan alir umpan 50ml/jam. Konsentrasi ion F yang digunakan adalah 500 ppm dan konsentrasi ion  $\text{NH}_4$  adalah 100 ppm. Pengambilan contoh dilakukan pada waktu tertentu sampai dengan waktu tercapainya keseimbangan. Konsentrasi ion dalam umpan dan efluen dianalisis menggunakan kromatografi ion. Diagram percobaan kolom penukar ion dapat dilihat pada Gambar 1. Kondisi operasi yang digunakan dalam percobaan ini seperti terlihat pada Tabel 8.

1. kolom gelas
2. alumino siliko fosfat
3. gelas wool
4. pompa peristaltik
5. larutan umpan
6. efluen



Gambar 1. Kolom Penukar Ion

## HASIL DAN BAHASAN

Dari proses pemurnian zeolit menggunakan metil iodida (berat jenis 2,27g/ml) didapatkan kemurnian zeolit Bayah lebih kurang 78,19%, Lampung 83,61% dan Tasik 81,45%. Zeolit Bayah mempunyai densitas antara 2,2026 - 2,2399 g/ml, zeolit asal Lampung antara 1,9942 - 2,1781 g/ml dan zeolit asal Tasik 2,1098 - 2,2009 g/ml. Apabila dibandingkan dengan literatur, secara

umum kedua zeolit tersebut tergolong kedalam zeolit klinoptilolit dan mordenit yang mempunyai densitas lebih rendah dari 2,3 g/ml<sup>[2]</sup>.

Hasil analisis komposisi kimia zeolit murni asal Bayah dan Lampung dengan menggunakan XRF dapat dilihat pada Tabel 1 dan grafik hasil analisis struktur mineral dengan XRD dapat dilihat pada lampiran.

Modifikasi struktur terjadi mulai pada kondisi pemanasan sekitar 235°C selama 1 jam<sup>[3]</sup>. Pengamatan terhadap lamanya waktu pemanasan telah dilakukan pada penelitian terdahulu<sup>[4]</sup> Percobaan dilakukan mulai dari 1 jam hingga 24 jam. Dari hasil penelitian tersebut, diperoleh waktu yang efektif untuk pemanasan adalah 1 jam. Pada kondisi optimum dilakukan variasi penambahan ADHP, sesuai yang dikehendaki. Hasil analisis komposisi kimia ASP Bayah, Lampung dan Tasik dapat dilihat pada Tabel 2, 3 dan 4.

Tabel 1. Data komposisi kimia zeolit murni Lampung dan Bayah.

Oksida	Lampung (%)	Bayah (%)
$\text{SiO}_2$	70,88	72,81
$\text{Al}_2\text{O}_3$	14,38	14,25
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	1,50	1,46
$\text{Na}_2\text{O}$	0,22	0,20
$\text{K}_2\text{O}$	2,44	2,81
$\text{CaO}$	2,62	2,36
$\text{MgO}$	1,42	1,17
$\text{MnO}_2$	0,07	0,07
$\text{H}_2\text{O}$	6,48	4,89
$\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	4,93	5,11

Data hasil analisis komposisi kimia menunjukkan bahwa terjadi pertambahan kandungan fosfor pada berbagai jenis ASP. Pada proses ini terjadi substitusi Si oleh P menjadi senyawa alumino siliko fosfat dapat dihasilkan dari proses substitusi P kedalam zeolit. Dari beberapa literatur disebutkan bahwa pada proses substitusi itu terdapat 3 kemungkinan bentuk yang terjadi, yaitu struktur alumino siliko fosfat dengan muatan atom P positif, netral dan negatif tergantung jenis proses substitusi yang terjadi.<sup>[5]</sup>

Dari kurva XRD Gambar 2 dan 3 pada lampiran, menunjukkan adanya perubahan struktur dan hal ini juga terlihat dari pengukuran luas permukaan spesifik ASP dari

bentuk murninya. Terlihat bahwa semua jenis ASP mempunyai pola XRD yang mirip dengan bentuk asalnya. Substitusi Si terhadap Al menyebabkan menurunnya unit sel karena ukuran ikatan Al-O lebih panjang dari Si-O. Hal ini juga terjadi pada substitusi P terhadap Si akan menurunkan ukuran unit sel ikatan P-O lebih pendek dari ikatan Si-O. Hasil ini memerlukan penjelasan lebih lanjut dengan analisa IR (infra red).

Tabel 2. Komposisi kimia ASP Bayah

Oksida (% w)	1:1	1:5	5:1
SiO <sub>2</sub>	60,44	60,11	56,86
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	24,70	26,59	34,89
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	5,86	6,31	3,14
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,89	0,73	1,05
K <sub>2</sub> O	1,25	0,92	1,77
CaO	0,80	0,65	1,25
MnO <sub>2</sub>	0,02	0,02	0,02
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> O	0,07	0,04	0,07
H <sub>2</sub> O	6,44	4,87	1,04
SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2,45	2,26	1,63
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,24	0,24	0,09

Tabel 3. Komposisi kimia ASP Lampung.

Oksida (% w)	1:1	1:5	5:1
SiO <sub>2</sub>	61,82	65,29	60,98
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18,41	17,72	29,90
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	9,52	10,73	4,82
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,88	0,79	1,09
K <sub>2</sub> O	0,77	0,34	1,31
CaO	0,71	0,48	1,37
MnO <sub>2</sub>	0,03	0,01	0,03
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> O	0,05	0,04	0,08
H <sub>2</sub> O	8,52	4,88	0,49
SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3,68	3,68	2,04
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,52	0,61	0,16

Tabel 4. Komposisi kimia ASP Tasik

Oksida (% w)	1:1	1:5	5:1
SiO <sub>2</sub>	66,75	69,96	76,59
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11,75	9,58	12,08
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	7,91	12,08	10,52
SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5,68	7,30	6,34
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,67	1,26	0,87

untuk memperjelas terjadinya substitusi Si oleh P. Dalam makalah ini tidak disinggung mengenai analisa ASP dengan IR. Rasio P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada masing-masing ASP

menunjukkan kemampuan ASP sebagai penyerap anion atau kation. Pada umumnya apabila rasio P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> > 1, sifat sebagai penukar anion cenderung lebih dominan dan bila rasio P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> < 1 lebih bersifat sebagai penukar kation. Apabila kandungan P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ≈ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, sifat sebagai penukar anion ≈ penukar kation.

Percobaan catu dilakukan untuk mengetahui kemampuan serap ASP yang diharapkan berfungsi sebagai penukar anion dan kation. Serapan pada berbagai jenis ASP dilakukan untuk memperkirakan kapasitas penyerapan terhadap ion F dan H<sub>4</sub>. Hasil percobaan ini dapat dilihat pada Tabel 5.

Dari data yang dihasilkan terlihat bahwa ASP baik yang berasal dari Bayah (ASPB), Lampung (ASPL) dan Tasik mampu menyerap ion F dan NH<sub>4</sub> dengan kemampuan yang cukup tinggi. Untuk ASP 1:1 yang dikontakkan dengan larutan ion F 0,01 - 0,08 N, kemampuan penyerapan ion F bervariasi antara 1,09 - 4,45 eq/kg (Lampung), 1,17 - 9,17 eq/kg (Bayah) dan 1,67 - 3,96 eq/kg (Tasik). Untuk ASP 1:5 yang dikontakkan dengan larutan ion F 0,01 - 0,08 N, kemampuan penyerapan berkisar antara 1,24 - 9,16 eq/kg (Lampung), 1,17 - 9,16 eq/kg (Bayah) dan 1,92 - 4,81 eq/kg. Untuk ASP 5:1 yang dikontakkan dengan larutan ion F 0,01-0,08 N, kemampuan penyerapan berkisar antara 1,37 - 8,57 eq/kg. Untuk konsentrasi ion F 0,20 - 0,40 N, kemampuan penyerapan cenderung meningkat. Hal ini terjadi pada semua jenis ASP. Dari data tersebut dapat dijelaskan kemungkinan proses yang terjadi tidak hanya disebabkan oleh pertukaran ion tetapi juga terjadi proses pengendapan atau terjadinya pembentukan senyawa kompleks. Proses pertukaran ion hanya terjadi pada konsentrasi ion dibawah 0,1N.<sup>[6]</sup> Untuk perbandingan hasil penyerapan ion F oleh zeolit murni, seperti pada Tabel 5, terlihat peningkatan penyerapan ion F untuk semua jenis ASP. Hal ini menunjukkan potensi ASP sebagai penukar anion.

Untuk penyerapan NH<sub>4</sub>, zeolit murni dan ASP relatif mempunyai kemampuan penyerapan yang sama, kecuali pada konsentrasi ion NH<sub>4</sub> 0,04 N karena terjadi penyerapan berfluktuasi.

Tabel 5. Penyerapan ion F dan NH<sub>4</sub> oleh berbagai jenis ASP

Jenis ASP	konsentrasi awal (N)	C <sub>s</sub> F (eq/kg)	C <sub>s</sub> NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (eq/kg)
Zeolit murni Lampung (ZML)	0.01	0.04	1.11
	0.04	0.11	1.98
	0.08	0.20	2.31
	0.20	0.17	2.46
	0.40	0.29	3.19
ASP L 1:1	0.01	1.09	1.09
	0.04	1.54	5.60
	0.08	4.45	3.68
	0.20	19.30	11.76
	0.40	6.36	4.01
ASP L 1:5	0.01	1.24	1.39
	0.04	1.83	5.59
	0.08	9.16	3.75
	0.20	6.87	12.45
	0.40	3.21	9.44
ASP L 5:1	0.01	1.37	1.31
	0.04	1.75	5.96
	0.08	8.57	3.50
	0.20	12.02	7.07
	0.40	18.90	2.83
Zeolit murni Bayah (ZMB)	0.01	0.09	1.19
	0.04	0.09	2.06
	0.08	0.11	2.49
	0.20	0.91	3.01
	0.40	0.08	3.32
ASP B 1:1	0.01	1.17	1.16
	0.04	1.85	5.89
	0.08	9.17	5.70
	0.20	14.3	5.56
	0.40	31.86	13.48
ASP B 1:5	0.01	1.17	1.08
	0.04	1.79	5.78
	0.08	9.16	5.64
	0.20	18.3	7.75
	0.40	1.82	14.24
ASP B 5:1	0.01	1.31	1.28
	0.04	1.62	5.63
	0.08	8.29	5.37
	0.20	11.45	4.49
	0.40	24.65	11.94
Zeolit murni Task	0.01	0.62	1.11
	0.04	0.31	1.76
	0.08	0.44	2.34
	0.20	0.21	3.19
	0.40	0.13	3.29
ASPT 1:1	0.01	1.67	1.24
	0.04	2.01	1.92
	0.08	3.96	2.09
	0.20	6.52	2.17
	0.4	14.11	3.65
ASPT 1:5	0.01	1.92	1.16
	0.04	2.11	1.86
	0.08	4.81	2.11
	0.20	7.38	2.91
	0.40	16.54	3.94
ASP T 5:1	0.01	1.21	0.99
	0.04	1.91	1.87
	0.08	2.89	2.01
	0.20	4.11	2.09
	0.40	9.21	3.26

Dari data yang dihasilkan terlihat bahwa ASP baik yang berasal dari Bayah, Lampung dan Tasik mampu menyerap anion dan kation dengan kemampuan yang cukup tinggi. Untuk ASP 1:1 yang dikontakkan dengan larutan ion F 0,01 - 0,08 N, kemampuan penyerapan ion F bervariasi antara 1,09 - 4,45 eq/kg (Lampung), 1,17 - 9,17 eq/kg (Bayah) dan 1,67 - 3,96 eq/kg (Tasik). Untuk ASP 1:5 yang dikontakkan dengan larutan ion F 0,01 - 0,08 N, kemampuan penyerapan berkisar antara 1,24 - 9,16 eq/kg (Lampung), 1,17 - 9,16 eq/kg (Bayah) dan 1,92 - 4,81 eq/kg. Untuk ASP 5:1 yang dikontakkan dengan larutan ion F 0,01-0,08N, kemampuan penyerapan berkisar antara 1,37 - 8,57eq/kg. Untuk konsentrasi ion F 0,20 - 0,40N, kemampuan penyerapan cenderung meningkat. Hal ini terjadi pada semua jenis ASP. Dari data tersebut dapat dijelaskan kemungkinan proses yang terjadi tidak hanya disebabkan oleh pertukaran ion tetapi juga terjadi proses pengendapan atau terjadinya pembentukan senyawa kompleks. Proses pertukaran ion hanya terjadi pada konsentrasi ion dibawah 0,1N.<sup>[7]</sup> Untuk perbandingan hasil penyerapan ion F oleh zeolit murni, seperti pada Tabel 5, terlihat peningkatan penyerapan ion F untuk semua jenis ASP. Hal ini menunjukkan potensi ASP sebagai penukar anion.

Zeolit murni dan ASP relatif mempunyai kemampuan penyerapan terhadap NH<sub>4</sub> yang sama, kecuali pada konsentrasi ion NH<sub>4</sub> 0,04 - 0,4N karena terjadi penyerapan yang berfluktuasi. Hal tersebut disebabkan pengaruh kekuatan dan aktifitas kation dalam larutan terhadap keaktifan pertukaran kation dari struktur ASP.

Dalam aplikasi secara teknis pemanfaatan ASP untuk penyerapan ion F dan NH<sub>4</sub>, perlu dipelajari karakteristik pemisahan ion F dan NH<sub>4</sub> dengan menggunakan kolom penukar ion. Hasil percobaan dengan menggunakan kolom penukar ion dapat dilihat pada Tabel 6 dan 7. Kondisi operasi percobaan kolom seperti terlihat pada Tabel 8.

Perbedaan harga C<sub>s</sub> F<sup>-</sup> dan C<sub>s</sub> NH<sub>4</sub><sup>+</sup> pada masing-masing jenis ASP dapat diamati. Perbedaan ini sangat dipengaruhi oleh muatan total pada setiap struktur ASP yang terbentuk. Dari percobaan kolom dan catu

pada konsentrasi rendah (0,10N), jumlah anion dan kation yang terserap pada ASP cenderung meningkat sesuai dengan kenaikan konsentrasi ion. Pada percobaan kolom hal ini sangat dipengaruhi oleh kondisi kolom dan material zeolit atau ASP yang berfungsi sebagai penyaring atom dengan struktur pori. Kemampuan penyerapan ini mungkin masih dapat ditingkatkan dengan mempelajari lebih lanjut beberapa parameter diantaranya: diameter kolom, kecepatan alir, tinggi kolom, temperatur dan ukuran partikel.

Dari kurva *breakthrough* (Gambar 4 dan 5 pada lampiran) dapat dijelaskan mengenai sifat/kelakuan pertukaran ion menggunakan kolom, yang merupakan rasio antara jumlah ion yang terserap ( $C_i/C_o$ ) diplotkan terhadap volume larutan yang digunakan. Dari percobaan kolom dapat dihitung faktor dekontaminasi (FD) yang merupakan rasio antara jumlah ion pada awal percobaan dan ion yang terserap ( $\Delta FD = \Delta C_i/C_i$ ). Faktor dekontaminasi ion F dan  $NH_4$  oleh berbagai jenis ASP dapat dilihat pada Tabel 6 dan 7. Tabel dan gambar kurva *breakthrough* ion F dan  $NH_4$  dalam berbagai jenis ASP dapat dilihat pada Tabel 9 dan 10 serta Gambar 4a,4b,5a dan 5b pada lampiran.

Tabel 6. Penyerapan ion F [500 ppm] oleh berbagai jenis ASP menggunakan kolom penukar ion

Jenis ASP	Cs* F (eq/kg)	FD
Zeolit Murni Lampung	0.98	1.83
ASP L 1:1	9.13	1.43
ASP L 1:5	8.43	1.47
ASP L 5:1	10.97	1.33
Zeolit Murni Bayah	0.76	1.42
ASP B 1:1	9.13	1.43
ASP B 1:5	10.19	1.35
ASP B 5:1	10.45	1.35

Tabel 7. Penyerapan ion  $NH_4$  [100 ppm] oleh berbagai jenis ASP menggunakan kolom penukar ion .

Jenis ASP	Cs* $NH_4^+$ (eq/kg)	FD
Zeolit Murni Lampung	1.37	1.79
ASP L 1:1	1.40	1.28
ASP L 1:5	1.38	1.28
ASP L 5:1	1.29	1.19
Zeolit Murni Bayah	1.48	1.43
ASP B 1:1	1.42	1.52
ASP B 1:5	1.36	1.56
ASP B 5:1	1.46	1.52

Cs\* adalah kapasitas ion yang terserap dalam 1g ASP

Tabel 8. Kondisi percobaan kolom penukar ion.

Bahan	ASPL 1:1	ASPL 1:5	ASPL 5:1	Z-M L	ASP B 1:1	ASP B 1:5	ASP B 5:1	Z-M B
Berat (g)	3	3	3	3	3	3	3	3
B.V	3.95	3.87	3.99	4.0	3.87	3.79	3.89	4.1
Flow rate (ml/jam)	50	50	50	50	50	50	50	50
Larutan umpan F (ppm)	500							
$NH_4$ (ppm)	100							

Tabel 9. Data *breakthrough* ion F<sup>-</sup> pada berbagai jenis ASP.

Jenis ASP	Konsentrasi (ppm)	Bed Volume	Jumlah BV (50%BT)
ASP L 1:1	500	3,95	278,8
ASP L 1:5	500	3,87	284,24
ASP L 5:1	500	3,99	225,56
ASP B 1:1	500	3,87	258,40
ASP B 1:5	500	3,79	316,62
ASP B 5:1	500	3,89	334,19

Tabel 10. Data *breakthrough* ion  $NH_4$  pada berbagai jenis ASP.

Jenis ASP	Konsentrasi (ppm)	Bed Volume	Jumlah BV (50%BT)
ASP L 1:1	100	3,95	265,82
ASP L 1:5	100	3,87	297,17
ASP L 5:1	100	3,99	263,16
ASP B 1:1	100	3,87	219,64
ASP B 1:5	100	3,79	277,04
ASP B 5:1	100	3,89	282,78

Untuk membandingkan efisiensi kolom pada skala besar, biasanya penyerapan diamati pada 50% *Break Through* (BT). Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa ASP dapat menyerap F bervariasi antara 225,56 - 334,19 *Bed Volume* (BV) atau 899,98-1300 ml larutan yang mengandung 500 ppm ion F. Hal yang sama diperlihatkan pada penyerapan  $\text{NH}_4$  oleh berbagai jenis ASP yang bervariasi antara 219,64 - 297,17 BV atau 850 - 1150 ml larutan yang mengandung 100 ppm ion  $\text{NH}_4$ . *Bed volume* merupakan volume ASP dalam kondisi operasi percobaan.

Dari hasil percobaan tersebut dapat dilihat bahwa ASP dapat digunakan sebagai penukar anion dan kation. Hal ini disebabkan karena ASP mempunyai struktur kristal yang unik, yaitu dengan adanya muatan positif dan negatif pada struktur kristalnya sehingga memungkinkan untuk dapat digunakan sebagai penukar anion dan kation. Secara umum kemampuan pertukaran ion pada berbagai jenis ASP adalah : ASP 1:5 > ASP 1:1 > ASP 5:1 sedangkan untuk penyerapan ion  $\text{NH}_4$  secara umum hampir semua jenis ASP mempunyai kemampuan menyerap  $\text{NH}_4$  yang relatif sama. Untuk itu disarankan apabila digunakan dalam skala besar, sebaiknya menggunakan ASP 1:1, disamping hasilnya cukup baik juga lebih ekonomis.

Dari hasil penelitian ini telah diperoleh informasi baru tentang potensi ASP untuk pengolahan limbah yang mengandung ion F dan  $\text{NH}_4$ .

## SIMPULAN

Dari hasil analisis karakterisasi zeolit murni asal Bayah dan Lampung, kedua zeolit ini tergolong kedalam jenis zeolit klinoptilolit dan mordenit yang mempunyai kemurnian cukup tinggi. Kemurnian zeolit Bayah lebih kurang 78,19 % dan untuk Lampung 83,16%.

Modifikasi zeolit asal Bayah, Lampung dan Tasik menjadi bentuk ASP dapat meningkatkan penyerapan anion tanpa banyak merubah kemampuan penyerapan terhadap kation.

Alumino siliko fosfat mampu menyerap ion F dan  $\text{NH}_4$  dengan kapasitas penyerapan

anion dan kation yang cukup tinggi. Dari hasil percobaan catu, terjadi peningkatan penyerapan ion F untuk semua jenis ASP (1:1, 1:5 dan 5:1). Untuk konsentrasi rendah (0,01- 0,08 N) ASP mampu menyerap ion F mulai dari 1,09 - 9,17 eq/kg, sedangkan untuk konsentrasi tinggi kemampuan penyerapan sangat berfluktuasi. Untuk penyerapan ion  $\text{NH}_4$ , umumnya zeolit murni mempunyai kemampuan penyerapan yang relatif sama antara 1,11 - 3,32 eq/kg kecuali pada ASP konsentrasi terjadi penyerapan  $\text{NH}_4$  yang berfluktuasi. Dari percobaan kolom penukar ion, pada 50% BT, ASP dapat menyerap ion F bervariasi antara 278,48 - 334,19 BV atau 900-1300 ml larutan yang mengandung 500 ppm ion F. Pada penyerapan  $\text{NH}_4$ , ASP dapat menyerap ion  $\text{NH}_4$  bervariasi antara 219,64 - 297,17 BV atau 850 - 1150 ml larutan yang mengandung 100 ppm ion  $\text{NH}_4$ .

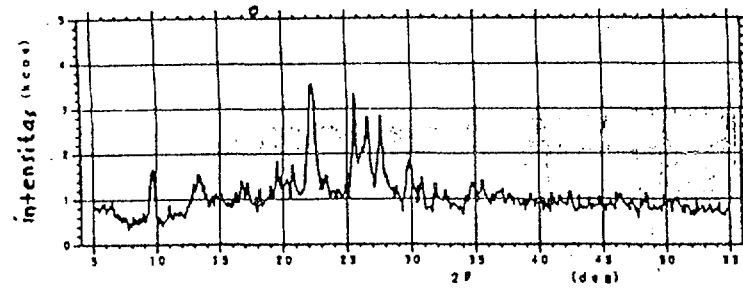
Hasil penelitian ini memperlihatkan potensi ASP sebagai penyerap ion F dan  $\text{NH}_4$  yang mungkin dapat diaplikasikan pada pengolahan limbah fabrikasi elemen bakar yang mengandung kompleks uranium fluorida dan  $\text{NH}_4$ .

## DAFTAR PUSTAKA

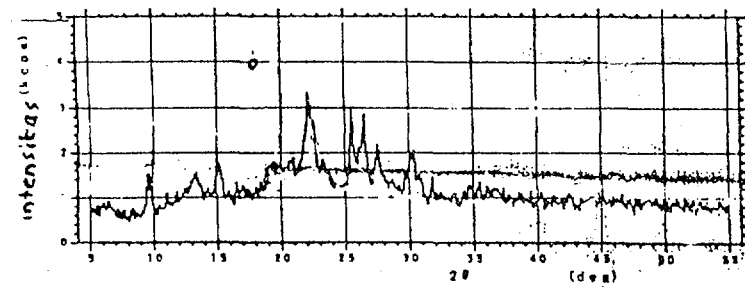
- [1]. T. IWASAKI, O.ITABASHI, HARJATMO, SURYANTONO, T.GOTO, Study on utilization of natural zeolite : (1) Zeolite and Bentonite in Indonesia, Report in "Japanese Journal" Assoc. Min. Geol., 28 (1995) 35-34.
- [2]. B.M.LOK, C.A.MESSINA, R.L.PATTON, R.T.GAJEK, T.R.CANON and FLANIGEN, Silicoalumunium phosphate molecular sieves: Another new class of microporous crystalline in organic solid, J.Am.Chem.Soc., 106 (1984) 6092-6093.
- [3]. SAND, L.B and MUMPTON, F. A., In "Natural zeolite, occurrence, properties and uses", Pergamon Press, London, 69-72, (1979).
- [4]. AMINI.S, "Modifikasi zeolit untuk penukar anion", Presentasi Ilmiah Sains dan Teknologi Nuklir, Bandung, (1996).

- [5]. LAS. T, "Use of natural zeolite for nuclear waste treatment", PhD Thesis, Dept.Applied Chemistry, University of Salford, England, 100 - 112, (1989).
- [6]. LAS.T, "Zeolit Untuk Industri", Prosiding Kolokium Lembaga Ilmu Dasar ITI, Institute Teknologi Indonesia, Serpong, (1991).
- [7]. SMITH . J.V., *Zeolites*, 4 , 309, (October 1984).
- [8]. HOWDEN, M. and PILOT, J., "Ion Exchange Technology", (Naden & Streat Eds.), Ellis Harwood, Chichester, 66, (1984). Eds

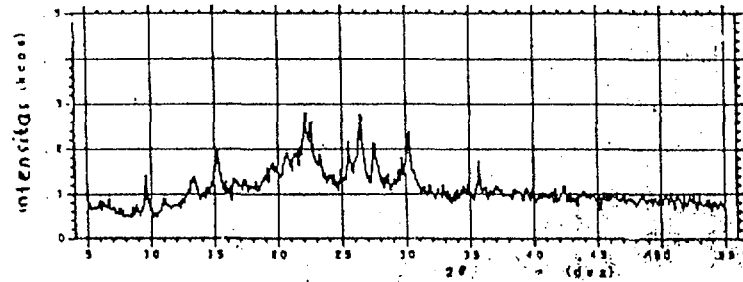




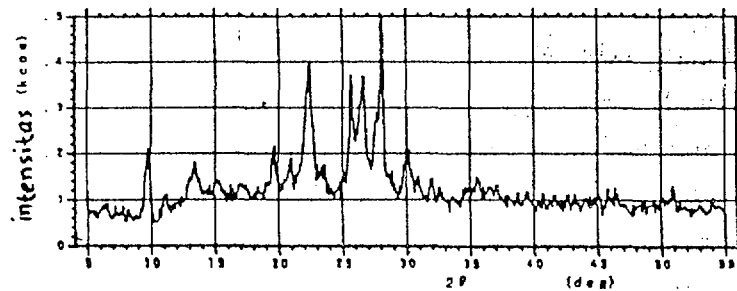
3a. ASP Bayah murni



3b. ASP Bayah 1:1

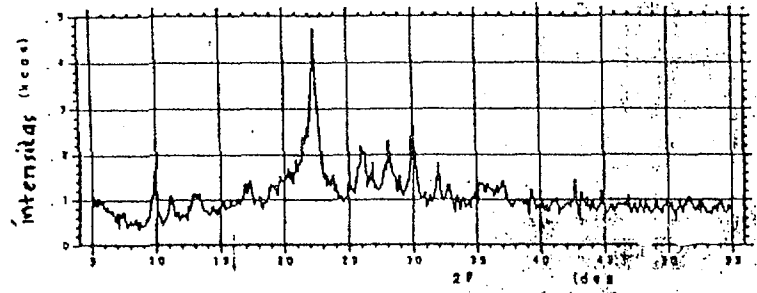


3c. ASP Bayah 1:5

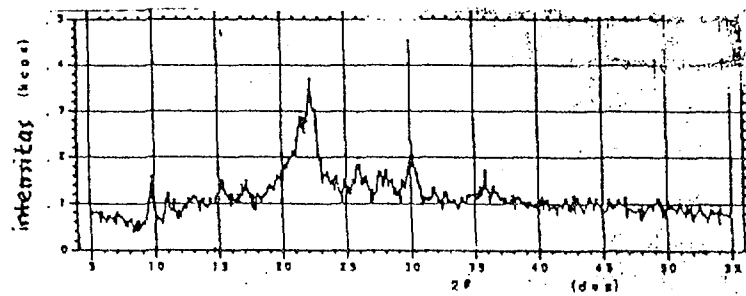


3d. ASP Bayah 5:1

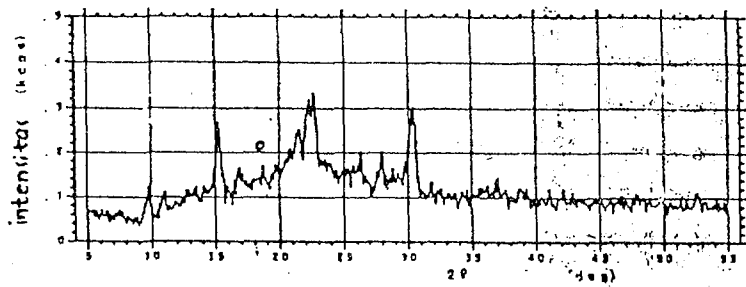
Gambar 3. Kurva XRD zeolit murni Bayah



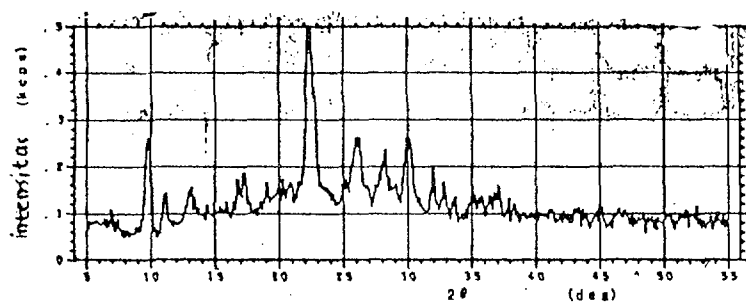
2.a. Z Lampung murni



2b. ASP Lampung 1:1

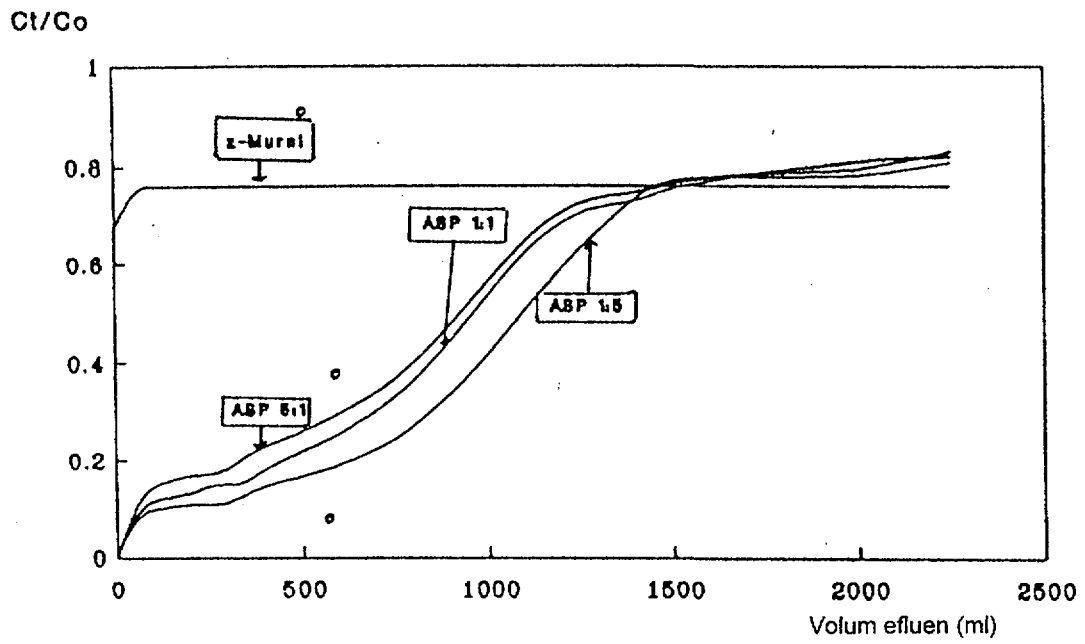


2c. ASP Lampung 1:5

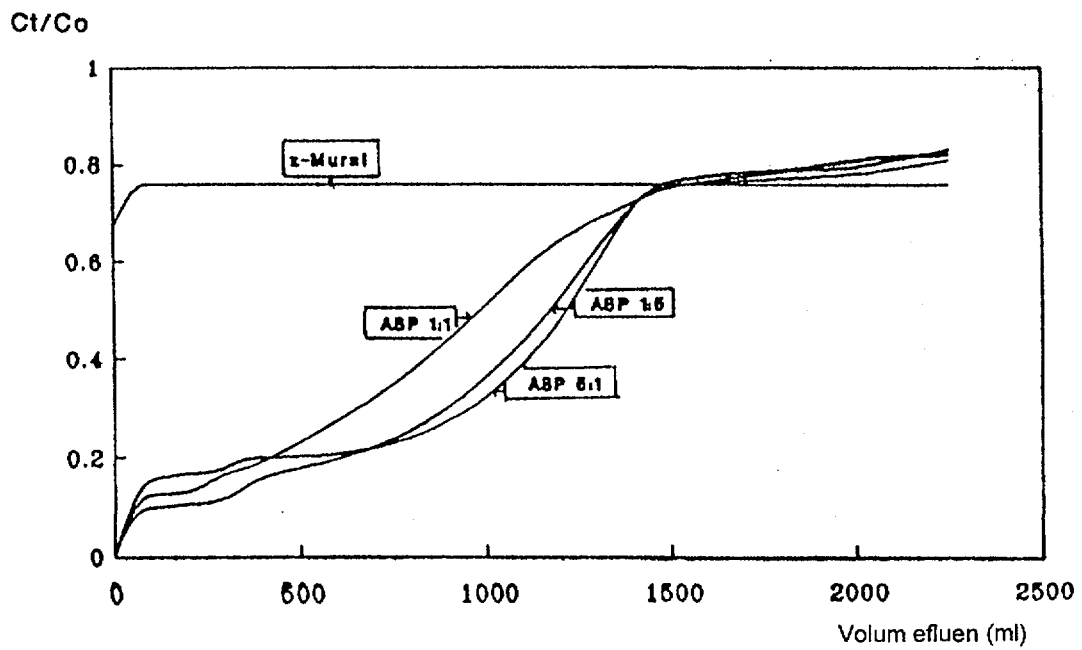


2d. ASP Lampung 5:1

Gambar 2. Kurva XRD Zeolit Lampung dan ASP



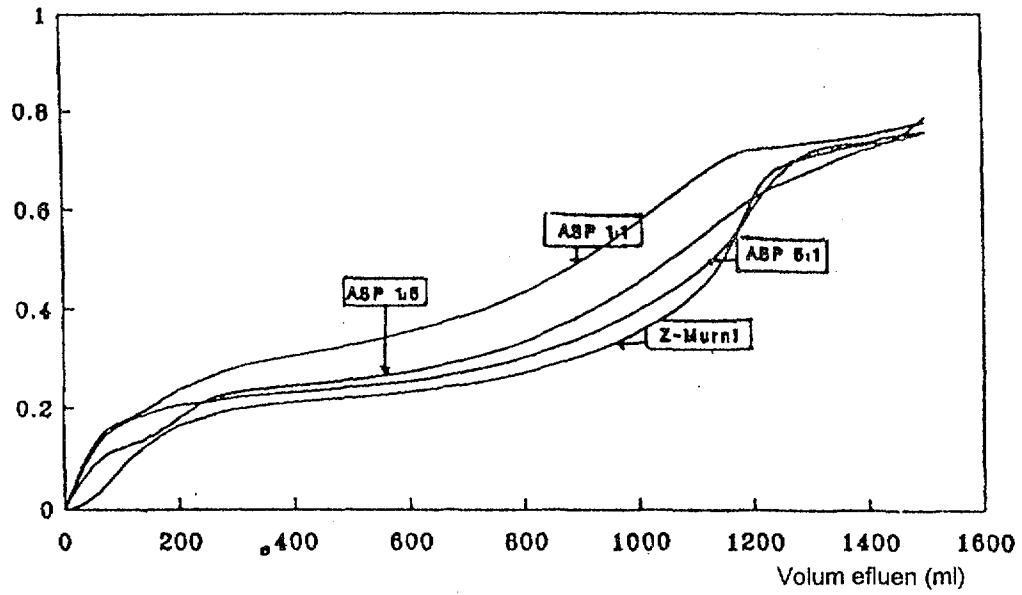
Gambar 4.a. Kurva Break Through F ASP Lampung



Gambar 4.b. Kurva Break Through F ASP Bayah

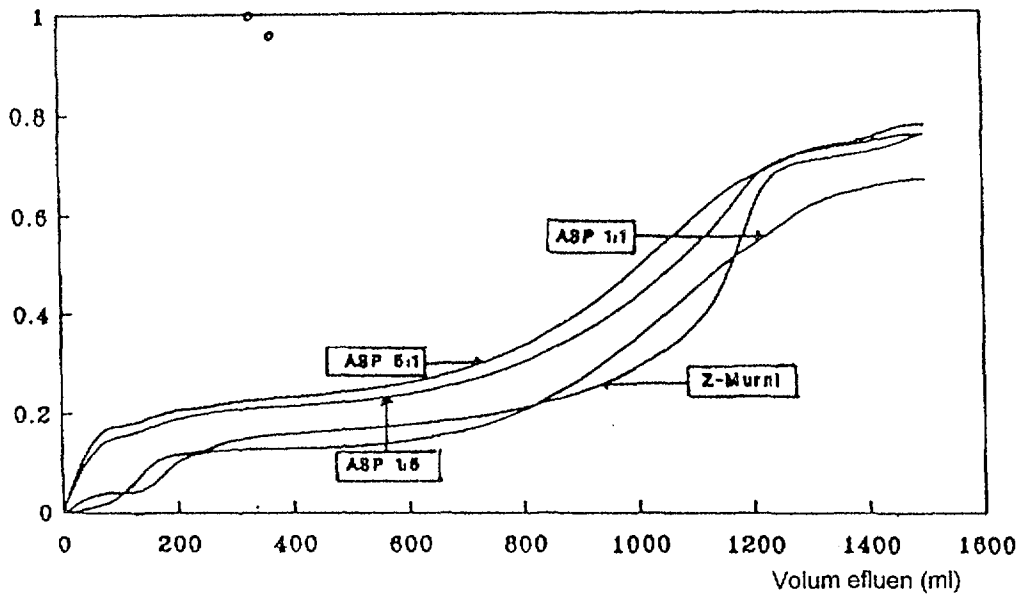
[F] = 500 ppm

Ct/Co



Gambar 5.a. Kurva Break Through NH<sub>4</sub> ASP Bayah

Ct/Co



Gambar 5.b. Kurva Break Through NH<sub>4</sub> ASP Lampung

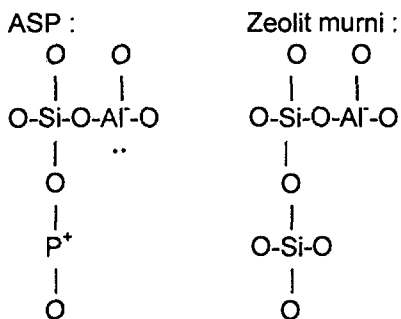
[NH<sub>4</sub><sup>+</sup>] = 100 ppm

**TANYA JAWAB****1. Hanafi**

- Apa yang menyebabkan perubahan daya serap antara zeolit murni dan ASP? Mohon dijelaskan tahap-tahapnya.
- Bagaimana gambaran struktur kristal dari zeolit murni dan ASP tersebut?
- Apa yang dimaksud dengan struktur kristal yang unik dari ASP?

**Aan Martin**

- Yang menyebabkan perubahan daya serap ASP dan zeolit murni terhadap ion F dan NH<sub>4</sub> adalah struktur ASP yang bermuatan - dan + dari AlO<sub>2</sub><sup>-</sup> dan PO<sub>2</sub><sup>+</sup>, sehingga ASP mempunyai kemampuan serap terhadap anion yang cukup baik, sedangkan zat murni hampir tidak dapat menyerap anion.
- Struktur kristal :



- Yang dimaksud dengan struktur kristal unik yaitu bahwa ASP mempunyai muatan AlO<sub>2</sub><sup>-</sup> dan PO<sub>2</sub><sup>+</sup> sehingga memungkinkan memiliki sifat sebagai penukar anion dan kation.

**2. Siti Amini**

- Saran judul : Aluminium Siliko Fosfat sebaiknya disingkat ASF.
- Kesimpulan bahwa kemampuan ASP untuk penyerapan anion tidak mempengaruhi penyerapan kation tampaknya kurang didukung data. Mohon penjelasan.
- Limbah PEB mengandung U<sup>6+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, ... dst. Bagaimana kaitan hasil penelitian ini dengan limbah U? Perlu diketahui bahwa ion U dan NH<sub>4</sub> adalah bersaing untuk dapat diserap.
- Pada tabel 6 ditulis bahwa ASP 1 : 5 adalah yang paling baik. Apa kriteria "baik" tersebut?

**Aan Martin**

- Terima kasih atas sarannya. ASP diambil dari istilah internasional *Alumino Silico Phosphate* (ASP).
- Dari hasil percobaan catu dibandingkan dengan zeolit murni, ASP memiliki kemampuan serap terhadap ion F<sup>-</sup> yang cukup tinggi, sedangkan untuk penyerapan NH<sub>4</sub>, baik ASP maupun zeolit murni mempunyai kemampuan serap yang cukup tinggi. (Dalam penelitian ini tidak ditunjukkan data kompetisi penyerapan anion dan kation -ed.).
- Penelitian ini merupakan penelitian dasar untuk mengetahui kemampuan serap terhadap ion F<sup>-</sup> dan NH<sub>4</sub><sup>+</sup> secara terpisah. Diasumsikan bahwa pengambilan U dari daur bahan bakar nuklir 100 % dan mengingat bahwa U sangat berharga maka perlu diambil kembali. Penelitian mengenai penyerapan terhadap U dan NH<sub>4</sub> secara multi ion masih terus dilakukan dan sedang dikaji lebih lanjut.
- Kriteria di sini umumnya ASP 1 : 5 mampu menyerap ion F<sup>-</sup> lebih tinggi dibandingkan dengan yang lain.

**3. Sorot Soediro**

- Berapa % penyerapan NH<sub>4</sub> atau ion F yang terambil dalam limbah daur bahan bakar nuklir?
- Pada komposisi berapa % penyerapan maksimal?
- Apakah modifikasi ADHP hanya dapat menyerap ion F dan NH<sub>4</sub> saja?

**Aan Martin**

- Penyerapan NH<sub>4</sub> oleh ASP sekitar 70-90% untuk konsentrasi bervariasi antara 0,01-0,08 N dengan KTK 1,09-5,59 eq/kg.
- Penyerapan ion F oleh ASP antara 70-85% pada konsentrasi yang sama. Harga Cs (konsentrasi F<sup>-</sup> yang terserap pada padatan) bervariasi antara 1,09-9,17 eq/kg.
- Komposisi ASP 1 : 5 mempunyai kemampuan penyerapan anion paling baik. Namun karena harga ADHP relatif mahal, untuk skala industri digunakan ASP 1 : 1, karena di samping hasilnya cukup baik, penggunaan ADHP relatif sedikit.
- Modifikasi zeolit ke dalam bentuk ASP tidak hanya dapat menyerap F<sup>-</sup> dan NH<sub>4</sub><sup>+</sup>. Penelitian yang telah dan sedang dilakukan melalui RUT dan Uspen membuktikan bahwa ASP mampu

menyerap logam berat seperti Cu, Cd, Co, Pb, Zn, Mn, Fe dan Ni cukup baik, sedangkan anion yang diserap adalah  $\text{SO}_4^{=}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$  dan  $\text{PO}_4^{3-}$ . Untuk limbah radioaktif, sebagai model digunakan Co-60, Sr-90 dan Cs-137. Dari

penelitian ini dapat dilihat potensi ASP sebagai penukar anion & kation. Untuk uranium, penelitian sedang dilakukan dan hasilnya masih dalam tahap evaluasi dan pengkajian.