



## PENYERAPAN URANIUM, RADIUM DAN BESI DARI LIMBAH CAIR PENGOLAHAN BIJIH URANIUM OLEH ZEOLIT

Titi Wismawati, A. Sorot Sudiro, Tati Herjati  
Pusat Pengembangan Bahan Galian Nuklir

### ABSTRAK

PENYERAPAN URANIUM, RADIUM DAN BESI DARI LIMBAH CAIR PENGOLAHAN BIJIH URANIUM OLEH ZEOLIT. Tujuan penelitian ini untuk mengetahui kemampuan penyerapan dan koefisien distribusi uranium, radium dan besi dalam limbah cair dengan menggunakan zeolit. Komposisi mineral zeolit yang digunakan pada percobaan ini ditetapkan dengan mempelajari sayatan tipis zeolit di bawah mikroskop. Pengaktifan zeolit dilakukan dengan penambahan larutan asam sulfat atau natrium hidroksida. Dari hasil percobaan diperoleh bahwa pengaktifan zeolit dengan menggunakan larutan natrium hidroksida 0,25 N dapat digunakan untuk penyerapan uranium dan besi secara optimal, sedangkan pengaktifan zeolit dengan asam sulfat 0,1 N cocok untuk penyerapan radium, proses aktivasi baik dengan larutan basa maupun asam tersebut dilakukan selama 3 jam. Pada kondisi itu diperoleh efisiensi penyerapan unsur-unsur oleh zeolit adalah 45,85% untuk uranium, 87,80% radium, dan 96,63% besi. Koefisien distribusi masing-masing uranium, radium dan besi dalam limbah cair-zeolit adalah 0,85 ml/g, 7,20 ml/g dan 28,65 ml/g.

### ABSTRACT

*URANIUM, RADIUM AND IRON ABSORPTION FROM LIQUID WASTE URANIUM ORE PROCESSING BY ZEOLITE. The aim of this work is to determine zeolite's sorption capacity and the distribution coefficient of uranium, radium, and iron in zeolite-liquid waste system. Mineralogical composition of zeolite used in the experiment has been determined by examining the thin sections of zeolite grains under a microscope. Zeolite has been activated by the diluted sulfuric acid or sodium hydroxide solution. The results show that the use of 0.25 N sodium hydroxide solution could be optimizing the zeolite for uranium and iron ions sorption and that of 0.1 N sulfuric acid solution is for radium sorption. The re-activation process has been carried out in three hours. Under such a condition, the sorption efficiency of zeolite to those ions have been known to be 45.85% for uranium, 96.63% for iron and 87.80% for radium. The distribution coefficients of uranium, radium and iron ion in zeolite-liquid waste system have been calculated 0.85, 7.02, and 28.65 ml/g respectively.*

### PENDAHULUAN

Limbah cair yang dipergunakan dalam penelitian ini berasal dari Laboratorium Proses dan Teknologi di Pusat Pengembangan Bahan Galian Nuklir (PPBGN), diperkirakan mengandung uranium, radium serta besi yang relatif tinggi. Untuk memperkecil kandungan unsur tersebut di dalam limbah dilakukan penyerapan dengan zeolit sebelum dibebaskan ke lingkungan.

Zeolit yang akan dipergunakan untuk penyerapan perlu dipreparasi dengan cara peremukan, penggerusan dan pengayakan. Pengayakan dari hasil penggerusan dimaksudkan untuk mendapatkan ukuran

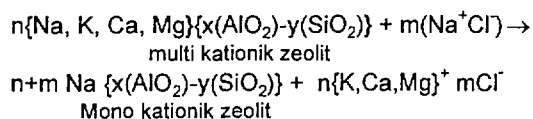
butir zeolit (+ 60 mesh) guna keperluan analisis mineralogi, percobaan aktivasi dan pertukaran ion. Analisis mineralogi dilakukan untuk mengetahui jenis mineral dan persentasenya dalam zeolit. Percobaan pengaktifan zeolit oleh asam atau basa dilakukan untuk mengaktifkan zeolit sehingga dapat meningkatkan daya serapnya terhadap kation. Sedangkan pertukaran ion dimaksudkan untuk menangkap kation (pada percobaan ini hanya untuk ion uranium, radium dan besi yang terkandung dalam limbah cair) oleh zeolit. Uranium, radium dan besi yang terserap dalam zeolit dianalisis dengan menggunakan spektrofotometer dan radon monitor. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui efisiensi penyerapan zeolit terhadap uranium, radium dan besi yang

terdapat dalam limbah cair yang berasal dari pengolahan bijih uranium.

## TEORI

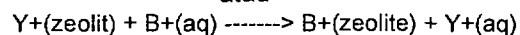
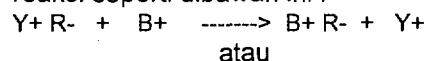
### Sifat Kimia Zeolit

Zeolit alam mengandung multi kationik, sehingga perlu diubah menjadi mono kationik agar pertukaran ion dapat dilakukan secara efisien. Perubahan multi kationik menjadi mono kationik dapat dilakukan dengan menambahkan larutan NaCl dan mengontakkan zeolit dengan uap NaCl jenuh.<sup>[1]</sup> Perubahan multi kationik menjadi mono kationik dapat digambarkan sebagai berikut :



Untuk meningkatkan kemampuan daya serap dan pertukaran ion terhadap ion logam berat tertentu, perlu dilakukan pengaktifan pada zeolit dengan cara pemanasan atau penambahan pereaksi kimia baik asam maupun basa. Pengaktifan ini adalah merupakan perlakuan pendahuluan terhadap zeolit sebelum dilakukan proses pertukaran ion.

Zeolit mempunyai sifat katalis, penukar ion, dan penyerap serta penyaring molekul. Penyaring molekul berhubungan dengan penyerapan molekuler secara selektif, terutama penyerapan terhadap molekul polar seperti H<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>S, dan CO<sub>2</sub>. Berbeda dengan jenis molekul lainnya seperti silikagel dan karbon aktif, zeolit lebih berhasil sebagai penyaring molekul karena mempunyai distribusi ukuran pori tiga dimensi dan bervariasi tergantung jenis komposisinya. Pada kaitannya dengan penyerapan ion (kation), kation berfungsi sebagai penetral struktur polimer alumina-silikat yang bermuatan negatif. Beberapa jenis kation yang dapat diserap oleh zeolit antara lain Rb, Cd, Hg, Li, Pb, Mg, K, Zn, Fe, Ba, Co, Sr, Al, Na, Cu, Cr, Ag, U, Ra dan Ca,<sup>[2]</sup> dengan reaksi seperti dibawah ini :



dimana R- adalah gugus unit zeolit, dan Y+ serta B+ adalah kation

## Pertukaran Ion

Pertukaran ion dapat dilakukan dengan cara mengontakkan larutan limbah yang mengandung ion logam dengan zeolit sehingga ion-ion logam terserap ke dalam zeolit dengan menggunakan kolom. Apabila zeolit sudah jenuh dengan logam yang berasal dari cairan (umpan), maka ion logam akan tampak pada cairan yang keluar (efluen) dan selanjutnya aliran umpan dapat dihentikan.

Selain cara tersebut di atas, pertukaran ion dapat pula dilakukan dalam kondisi keseimbangan, yaitu sejumlah volum larutan limbah tertentu dikontakkan dengan zeolit dalam berat tertentu, kemudian diaduk (digoyang) dalam selang waktu tertentu untuk mencapai keseimbangan. Dengan cara demikian koefisien distribusi dapat diperoleh.

Koefisien distribusi (D) didefinisikan sebagai :

$$D = \frac{\text{konsentrasi ion logam dalam zeolit}}{\text{konsentrasi ion logam dalam fase cairan}} \quad \text{ml/g}$$

Nilai D menunjukkan besarnya afinitas zeolit, dengan makin besarnya nilai D maka makin besar pula afinitas zeolit terhadap ion logam tertentu.<sup>[2]</sup>

## BAHAN DAN TATA KERJA

### Alat

Pemanas, Tungku, oven, alat pengocok, gelas piala, desikator, cawan porselen, Spektrofotometer dan *liquid scintillation analyzer* (Ludlum SAC-R5).

### Bahan

Asam sulfat, Natrium hidroksida, Zeolit, Natrium klorida, Natrium fluorida, Asam askorbat, TOPO, Bufer, Hidroksilamin hidroklorida, Phenantrolin dan alkohol.

### Tata Kerja

#### Analisis mineral zeolit

Zeolit digerus hingga diperoleh ukuran 65 mesh, kemudian ditimbang seberat 5 gram untuk menentukan fraksi mineral ringan dan mineral berat. Selanjutnya dicuci dengan

alkohol 90% dan dikeringkan di atas pengering, lalu ditimbang kembali. Zeolit yang telah bersih dianalisis sifat fisiknya dengan menggunakan mikroskop stereo, dari hasil pengamatan dapat diketahui mineral yang terkandung.

### Perubahan multi kationik menjadi mono kationik

Zeolit ditimbang seberat 100 gram, dicuci dengan air dingin sampai kekeruhannya rendah. Zeolit yang sudah bersih direbus dalam gelas piala dengan menambahkan 200 ml NaCl jenuh. Bila air rebusan telah keruh dibuang dan diganti sampai warna keruh hilang. Pencucian zeolit dilakukan dengan penambahan air suling hingga bebas dari ion khlorida, kemudian disaring dengan kertas saring, zeolit yang tersaring dipanaskan dalam oven dengan suhu  $110^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam. Zeolit yang sudah kering dimasukkan dalam desikator yang berisi NaCl jenuh, didiamkan selama 1 minggu.

### Pengaktifan zeolit

Zeolit mono kationik ditimbang seberat 25 gram, dimasukkan dalam wadah yang tertutup dan ditambahkan 100 ml asam sulfat 0,1N, dikocok dengan menggunakan alat pengocok selama 3 jam, kemudian disaring. Zeolit yang tersaring dipanaskan dalam oven pada suhu  $110^{\circ}\text{C}$  selama 1 jam. Untuk pengaktifan zeolit dengan natrium hidroksida 0,25 N, dilakukan dengan cara sama seperti pekerjaan di atas. Tetapi zeolit yang digunakan adalah 75 gram dengan waktu pengocokan 3 jam.

### Perlakuan terhadap limbah cair

Contoh limbah cair berasal dari Laboratorium Proses dan Teknologi PPBGN-BATAN. Contoh limbah diambil dari dalam drum penampungan diatur pHnya dari 1,5 menjadi 3,5. Larutan limbah kemudian dimasukkan kedalam botol plastik 150 ml dan ditambahkan zeolit yang sudah diaktifkan dengan asam sulfat dan natrium hidroksida. Perlakuan selanjutnya adalah proses pertukaran ion dengan perbandingan berat zeolit terhadap volum limbah yang tertentu.

Proses pertukaran ion masing-masing dilakukan selama 3 jam. Larutan disaring dan pada filtratnya dilakukan analisis kadar uranium dan besi dengan menggunakan spektrofotometer, sedangkan radium dianalisis dengan menggunakan *liquid scintillation analyzer counter* Ludlum SAC-R5.

## HASIL DAN BAHASAN

### Hasil analisis

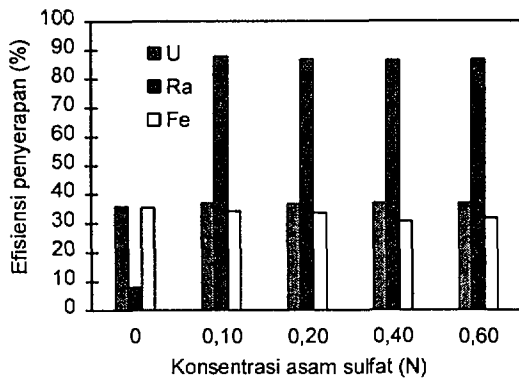
Komposisi mineral zeolit terdapat dalam Tabel 1, sedangkan kandungan uranium, radium dan besi dalam limbah cair baik setelah maupun sebelum dipertukarkan-ionkan dicantumkan pada Tabel 2, dan hasil variasi konsentrasi asam sulfat serta natrium hidroksida yang digunakan untuk pengaktifan zeolit dalam hubungannya dengan penentuan penggunaan konsentrasi optimal bagi penyerapan atau pertukaran ion uranium, radium dan besi ditunjukkan dalam Gambar 1 dan 2.

Tabel 1 : Komposisi mineral zeolit<sup>[5]</sup>

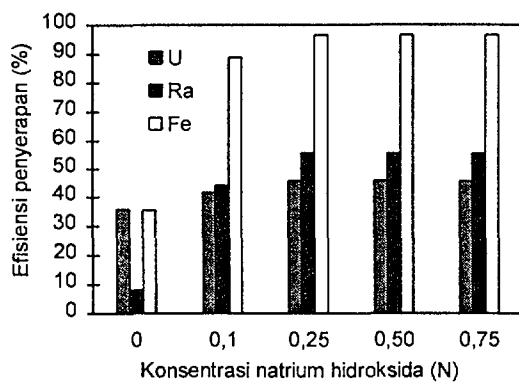
Jenis mineral	Rumus kimia	Komposisi (%)
Mineral utama:		
• Analsin	$\text{Na. Al. (SiO}_3)_2. \text{H}_2\text{O}$	75,0
• Chabazit	$(\text{Ca.Na}) \text{Al}_2(\text{SiO}_3)_6.6\text{H}_2\text{O}$	9,0
Impuritis		
• Kuarsa	$\text{SiO}_2$	0,7
• Biotit	$\text{K(Mg,Fe)}_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	0,3
• Prehnit	$\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$	15,0

Tabel 2 : Kandungan uranium, radium dan besi dalam limbah cair sebelum dan sesudah pertukaran ion oleh zeolit

Unsur	Konsentrasi awal	Konsentrasi setelah pertukaran-ion dengan		
		Zeolit/tanpa pengaktifan	Zeolit/ NaOH	Zeolit/ $\text{H}_2\text{SO}_4$
U	369,99 ppm	237,32 ppm	200,34 ppm	233,11 ppm
Ra	410,0 pCi/l	377,14 pCi/l	228,57 pCi/l	50,00 pCi/l
Fe	394,31 ppm	254,30 ppm	13,30 ppm	259,27 ppm



Gambar 1 : Pengaruh konsentrasi asam sulfat pada penyerapan zeolit terhadap U, Ra dan Fe

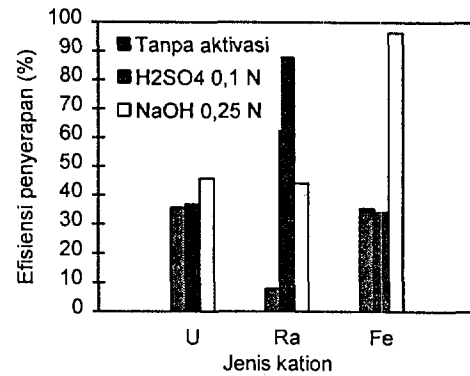


Gambar 2 : Pengaruh konsentrasi natrium hidroksida pada penyerapan zeolit terhadap U, Ra dan Fe

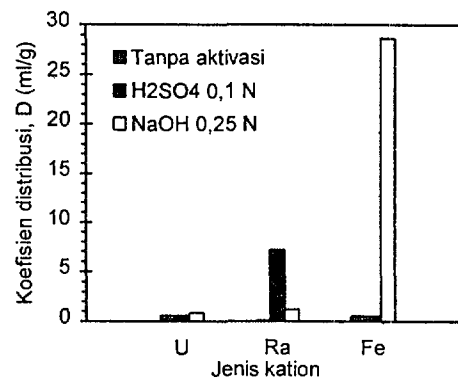
## PEMBAHASAN

Untuk mengetahui mutu zeolit alam perlu dilakukan uji karakteristik yaitu dengan analisis fisik. Sifat fisik yang perlu diketahui antara lain luas permukaan, kapasitas pertukaran kation, dan komposisi mineral. Dengan diketahuinya karakteristik zeolit alam, maka dapat ditentukan arah penggunaannya yang sesuai, mengingat zeolit memiliki sifat multi guna yaitu sebagai penyerap, penukar ion dan penyaring molekul maupun katalis. Dalam percobaan ini baru dilaksanakan analisis komposisi mineral dan sifat fisik zeolit karena peralatan untuk uji coba lainnya tidak terdapat di PPBGN-BATAN.

Hasil fraksinasi menunjukkan bahwa bahan galian zeolit merupakan kelompok mineral dari senyawa silikat, aluminium serta natrium dan kalsium, dominan berupa analsin bersifat optik isotropik dan chabazit bersifat



Gambar 3 : Efisiensi penyerapan zeolit terhadap kation U, Ra dan Fe



Gambar 4 : Koefisien distribusi (D) zeolit terhadap kation U, Ra dan Fe

optik (bias rangkap) sangat lemah<sup>[3]</sup>, memiliki kekerasan antara 3,5 sampai 5,5 dan mempunyai berat jenis 2 sampai dengan 2,4.<sup>[4]</sup> Mineral utama yang ada dalam komposisi mineral zeolit yang digunakan dalam percobaan ini adalah analsin dan chabazit dengan impuritis prehnit, kuarsa, dan biotit.<sup>[5]</sup> Zeolit tanpa pengaktifan dapat digunakan sebagai penyerap uranium, radium dan besi dalam limbah cair dari pengolahan bijih uranium seperti terlihat pada Tabel 2 dan Gambar 3 atau 4.

Pada kegiatan ini limbah cair diperkirakan banyak mengandung uranium, radium dan besi. Hasil analisis kandungan ion logam tersebut dalam limbah cair dapat dilihat pada Tabel 2. Dari hasil analisis dapat disimpulkan bahwa kadar uranium dalam limbah relatif besar yaitu diatas 300 ppm, sedang limbah cair pengolahan bijih uranium biasanya mengandung 100 - 200 ppm.<sup>[6]</sup>

Untuk mengetahui konsentrasi penggunaan  $H_2SO_4$  dan NaOH pada proses pengaktifan secara optimum, maka dilakukan percobaan pengaktifan dengan variasi konsentrasi  $H_2SO_4$  (Gambar 1) dan variasi konsentrasi NaOH (Gambar 2). Dari hasil percobaan diperoleh bahwa penyerapan uranium dan besi yang efektif adalah dengan NaOH 0,25 N, sedangkan untuk penyerapan radium adalah dengan  $H_2SO_4$  0,1 N. Dasar pemilihan penggunaan konsentrasi NaOH 0,25 N dan  $H_2SO_4$  0,1 N adalah karena peningkatan konsentrasi tidak memberikan hasil peningkatan penyerapan yang berarti.

Hasil analisis uranium dalam filtrat menunjukkan bahwa efisiensi penyerapan dan koefisien distribusi tertinggi didapatkan pada pengaktifan zeolit dengan menggunakan NaOH 0,25 N yaitu masing-masing 45,85 % dan 0,85 ml/g (Gambar 3 dan 4). Demikian juga pada analisis besi, efisiensi penyerapan tertinggi zeolit yang diaktifkan dengan NaOH 0,25 N (Gambar 3) mencapai 96,63% dengan koefisien distribusi (Gambar 4) tertinggi adalah 23,89 ml/g. Penyerapan serta koefisien distribusi tertinggi untuk radium yaitu masing-masing 87,80 % dan 7,20 ml/g pada pengaktifan zeolit dengan menggunakan asam sulfat 0,1 N (Gambar 3 dan 4). Hal ini terjadi karena afinitas zeolit (yang diaktifkan dengan NaOH 0,25 N) terhadap ion uranium dan besi lebih besar daripada zeolit yang diaktifkan dengan  $H_2SO_4$  0,1N. Sedangkan afinitas zeolit terhadap ion radium, diperoleh bahwa efisiensi penyerapan zeolit yang diaktifkan dengan  $H_2SO_4$  0,1 N lebih besar dari pada zeolit yang diaktifkan dengan NaOH 0,25 N.

Bila zeolit digunakan untuk pengolahan limbah cair hasil pengolahan bijih uranium diperlukan 2 macam zeolit yang terpisah yaitu zeolit dengan proses pengaktifan NaOH 0,25 N untuk menyerap uranium dan besi serta zeolit dengan proses pengaktifan  $H_2SO_4$  0,1 N untuk menyerap radium.

## SIMPULAN

Dari hasil pembahasan di atas dapat disimpulkan bahwa :

1. Limbah yang berasal dari laboratorium proses dan teknologi PPBGN-BATAN masih mempunyai kandungan uranium yang relatif tinggi yaitu 369,99 ppm.

2. Penyerapan uranium dan besi terbesar adalah pada proses pengaktifan zeolit dengan menggunakan NaOH 0,25 N, sedangkan penyerapan radium terbesar adalah pada proses pengaktifan zeolit dengan  $H_2SO_4$  0,1 N.
3. Dari kondisi tersebut diperoleh efisiensi penyerapan zeolit terhadap unsur-unsur U, Ra dan Fe masing-masing adalah 45,85%, 87,80% dan 96,63%, serta koefisien distribusinya masing-masing untuk U, Ra dan Fe adalah 0,85, 7,20 dan 28,65 ml/g.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih saya sampaikan kepada Kepala Bidang Keselamatan Kerja dan Lingkungan yang telah membimbing dalam penulisan makalah ini, Kepala Sub Bidang Mineralogi yang telah membantu melakukan analisis mineral zeolit serta rekan-rekan Bidang Keselamatan Kerja dan Lingkungan yang telah membantu hingga makalah ini selesai.

## PUSTAKA

- [1]. TAMZIL LAS, Use of Zeolite for Radioactive Waste Treatment, First Year Assesment Report, Salford University, UK., 1987.
- [2]. HUSAINI, Daya Pertukaran Ion Zeolit Polmas Terhadap Beberapa Jenis Ion Logam Berat, Buletin PPTM Vol. 14, Bandung, 1992.
- [3]. BETEKHTIN, A., A Course of Mineralogy, Moscow, 1957.
- [4]. WILLARD LINCOLN ROBERTS, GEORGE ROBERT RAPP JR., JULIUS WEBER, Encyclopedia of Minerals, Litton Educational Publishing Inc., 1974.
- [5]. EDWARD S. DANA, WILLIAM E. FORD, A Text book of Mineralogy, Fourth edition, Ninth Printing, Japan, 1972.
- [6]. HIRONO S., FUKUSHIMA S., Vat Leaching of The Uranium Ore From Ningyo - Toge Deposits Works, Power Reactor And Nuclear Fuel Development Corporation, Okayama, Japan, 1982.

## TANYA JAWAB

### 1. Kosim Affandi

- Berapa konsentrasi maksimal uranium yang dapat diserap secara optimal oleh zeolit?

#### Titi Wismayati

- Konsentrasi maksimal yang dapat diserap oleh zeolit adalah 169,65 ppm.

### 2. Hafni Lissa Nuri

- Tujuan penelitian yang dilakukan adalah untuk mengambil/menyerap unsur-unsur Fe, Ra dan U oleh zeolit. Ke tiga unsur tersebut mempunyai kondisi yang berbeda untuk mencapai penyerapan yang optimal dan dari hasil penelitian belum nampak.
- Apakah memang belum ada kondisi yang memberikan penyerapan ke tiga unsur tersebut optimal?

- Bagaimana kalau proses tersebut dibandingkan dengan proses pengendapan pada pH yang berbeda-beda?

#### Titi Wismayati

- Pada penelitian ini belum ada, karena afinitas unsur-unsur tersebut (U, Ra, Fe) terhadap zeolit berbeda sesuai dengan perlakuan pengaktifan zeolitnya. dalam hal ini afinitas U dan Fe optimal pada kondisi pengaktifan zeolit dengan NaOH 0,25 N, sedangkan Ra optimal pada kondisi H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 0,2 N.
- Jika dibandingkan dengan pengendapan pada pengaturan pH yang sudah dilaksanakan, maka penyerapan limbah cair dengan zeolit mempunyai keuntungan :
  - limbah cair tidak bertambah
  - tidak terjadi pengendapan atau tidak ada limbah padat.