

PENGOLAHAN LIMBAH URANIUM CAIR DENGAN ZEOLIT MURNI DAN H-ZEOLIT SERTA SOLIDIFIKASI DENGAN POLIMER EPOKSI

Yusuf Damar Jati*), Herlan Martono**), Junaidi**)

Program Studi Teknik Lingkungan, Fakultas Teknik,
Universitas Diponegoro, Semarang
Web : www.enveng.ac.id

ABSTRAK

Radioisotop teknisium-99m (Tc^{99m}) dipakai di bidang kedokteran nuklir dalam diagnosis jantung, otak, ginjal, hati, dan tulang untuk menemukan penyakit atau kelainan-kelainan yang ada di dalamnya. Radioisotop Tc^{99m} diperoleh dari radioisotop induk Mo^{99} . Dalam proses pengambilan Mo^{99} dari target akan ditimbulkan limbah radioaktif yang mengandung campuran U^{235} sisa yang tidak terbakar, U^{238} yang tidak teraktivasi neutron dan radionuklida hasil belah. Limbah radioaktif ini memerlukan ekstraksi bertingkat untuk memisahkan antara uranium dan hasil belah. Salah satu hasil ekstraksi berupa rafinat yang mengandung uranium dan sedikit hasil belah. Limbah rafinat mengandung uranium sebesar 50 ppm. Penelitian ini bertujuan untuk mengolah limbah uranium cair 50 ppm yang terdapat pada limbah rafinat menggunakan adsorben zeolit murni dan H-zeolit, serta solidifikasi menggunakan polimer epoksi. Dari penelitian ini didapat waktu kontak optimum penyerapan uranium 50 ppm oleh zeolit murni dan H-zeolit adalah pada 20 menit. Kemampuan serap optimum zeolit murni terhadap limbah uranium cair yaitu pada kondisi pH 5 sebesar 11,72 mg U per gram zeolit murni. Kemampuan serap optimum H-zeolit terhadap limbah uranium cair yaitu pada kondisi pH 5, sebesar 7,3 mg U per gram H-zeolit. Berdasarkan pertimbangan hasil uji densitas, kuat tekan, dan laju pelindihan maka hasil terbaik blok polimer – limbah terdapat pada kandungan limbah 20 %. Hasil uji karakteristik solidifikasi limbah uranium pada kandungan limbah 20 % yaitu menghasilkan nilai densitas sebesar 1,088 g/cm³, kuat tekan sebesar 13,746 kN/cm², dan laju pelindihan sebesar 7,8. 10⁻⁵ g. cm⁻². hari⁻¹.

Kata Kunci : uranium, zeolit murni, H-zeolit, polimer epoksi

ABSTRACT

Radioisotopes technetium-99m (Tc^{99m}) is used in the field of nuclear medicine in the diagnosis of heart, brain, kidneys, liver, and bone to find diseases or disorders that exist in it. Tc^{99m} radioisotope obtained from the parent radioisotope Mo^{99} . Making process of the target Mo^{99} radioactive waste will be generated containing a mixture of residual unburned U^{235} , U^{238} is not activated neutrons and radionuclide results divisive. Radioactive waste requires the extraction of uranium rise to separate and divide the result. One result of the extraction of the form rafinat containing uranium and less divisive results. Rafinat waste containing uranium at 50 ppm. This study aims to treat waste liquid 50 ppm of uranium contained in the waste rafinat using pure zeolite adsorbent and H-zeolite, and immobilization using epoxy polymer. From this study obtained optimum contact time of 50 ppm uranium absorption by pure zeolite and H-zeolite is at 20 minutes. Ability to pure zeolite optimum absorption of uranium waste that is liquid at the conditions pH 5 at 11.72 mg U per gram of pure zeolite. The ability of H-zeolite optimum absorption of the liquid uranium waste that is the condition of pH 5, at 7.3 mg N per gram of H-zeolites. Based on consideration of the results of the test density, compressive strength, and the rate of pelindihan the best results polymer blocks - the waste contained in the waste content of 20%. The results of the test characteristics of the waste immobilization of uranium in the waste contains 20% of the yield value of 1.088 g/cm³ density, compressive strength of 13.746 kN/cm² and pelindihan rate of 7.8. 10⁻⁵ g. cm⁻². day⁻¹.

Keywords: uranium, pure zeolite, H-zeolite, epoxy polymer

PENDAHULUAN

Latar Belakang

Dalam bidang Kedokteran Nuklir telah memberikan peran yang cukup besar pada diagnosis dan terapi organ tubuh manusia. Radioisotop teknisium-99m (Tc^{99m}) dipakai di bidang kedokteran nuklir dalam diagnosis jantung, otak, ginjal, hati, dan tulang untuk menemukan penyakit atau kelainan-kelainan yang ada di dalamnya. Hal ini didasarkan atas sifat Tc^{99m} yang memiliki waktu paruh pendek hanya 6 jam, dan memancarkan radiasi gamma dengan energi rendah sebesar 140 keV. Teknisium 99m tidak memancarkan partikel bermuatan, dan dapat diperoleh dalam bentuk bebas pengemban dari radioisotop *molybdenum-99* (Mo^{99}) yang dapat membentuk ikatan dengan senyawa - senyawa organik. Oleh karena itu penggunaan radioisotop ini memiliki dampak radiasi yang sangat kecil bagi tubuh, sehingga tidak menimbulkan dampak radiologi.

Radioisotop Tc^{99m} diperoleh dari radioisotop induk Mo^{99} . Dalam proses pengambilan Mo^{99} dari target akan ditimbulkan limbah radioaktif yang mengandung campuran U^{235} sisa yang tidak terbakar, U^{238} yang tidak teraktivasi neutron dan radionuklida hasil belah. Limbah radioaktif ini memerlukan ekstraksi bertingkat untuk memisahkan antara uranium dan hasil belah. Salah satu hasil ekstraksi berupa rafinat yang mengandung uranium dan sedikit hasil belah (Aisyah, et al., 2009).

Limbah radioaktif rafinat yang mengandung uranium ini memiliki toksisitas yang tinggi dan berumur panjang sehingga memerlukan pengolahan yang tepat agar tidak memiliki potensi dampak radiologis bagi manusia dan lingkungan. Limbah yang mengandung U diserap oleh zeolit. Penyerapan U oleh zeolit maksimum dipengaruhi oleh pH dan waktu kontak. Selanjutnya zeolit yang jenuh uranium disolidifikasi dengan polimer epoksi. Hasil solidifikasi U dengan polimer epoksi terbaik ditentukan oleh densitas, kuat tekan, dan laju pelindahannya.

Oleh karena itu dilakukan penelitian tentang perbandingan kemampuan serap H-zeolit dengan zeolit murni untuk menyerap limbah uranium. Modifikasi H-zeolit diperoleh dengan melakukan kalsinasi NH_4 -zeolit dalam oven pada suhu 450 °C selama 24 jam. Dalam penelitian ini zeolit yang menyerap uranium pada kondisi optimum akan disolidifikasi menggunakan polimer epoksi.

Tujuan Penelitian

Penelitian ini menggunakan limbah rafinat cair simulasi yang mengandung uranium. Limbah simulasi ini dikontakkan dengan zeolit secara catu, kemudian zeolit yang jenuh akan disolidifikasi dengan menggunakan polimer epoksi. Jadi tujuan penelitian ini adalah:

1. Menentukan waktu kontak dan pH yang sesuai terhadap serapan optimum uranium oleh zeolit murni dan H-zeolit.
2. Mengetahui komposisi perbandingan polimer-limbah agar diperoleh karakteristik hasil solidifikasi yang baik.

Tahap Penelitian

Tahapan penelitian ini dimulai dengan :

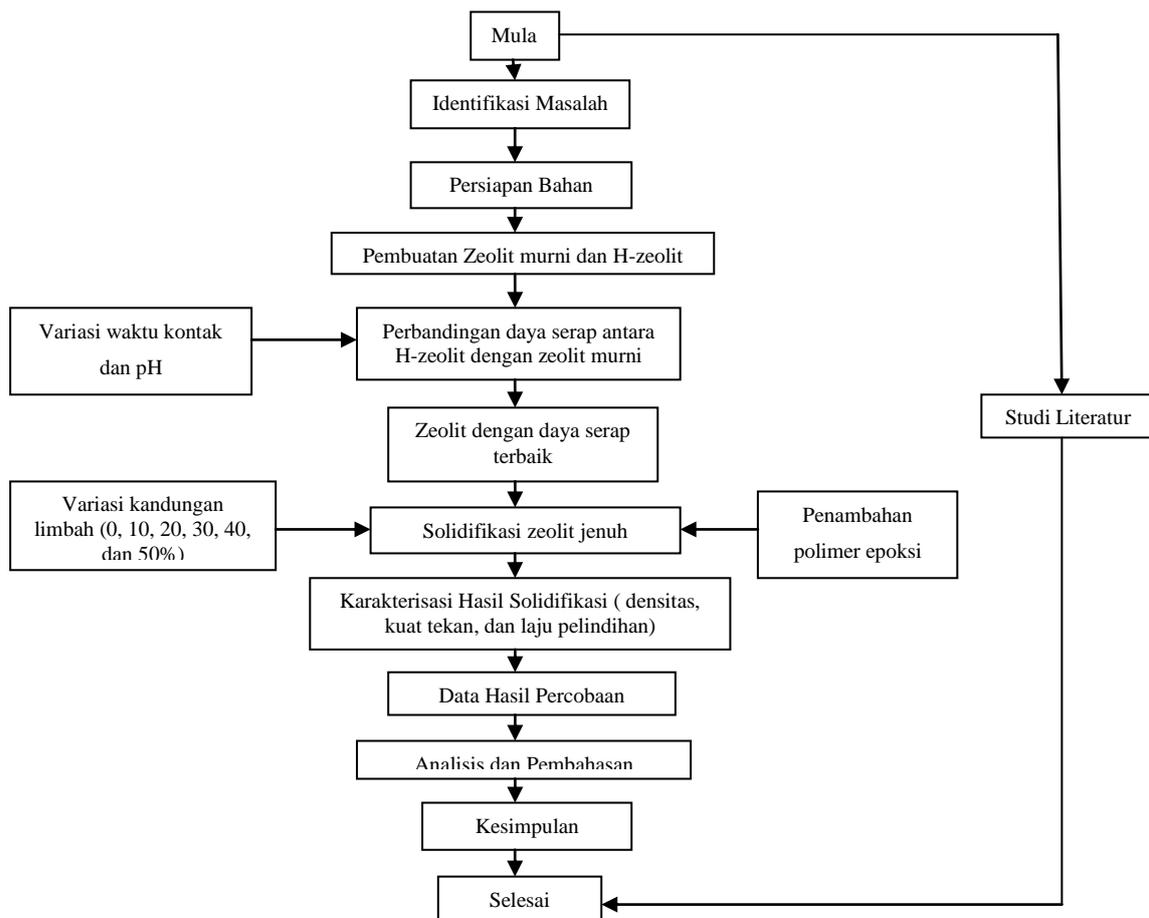
1. Pembuatan zeolit murni
2. Pembuatan H-zeolit
3. Kemudian menyiapkan sebanyak 1 gram zeolit murni dan 1 gram H-zeolit
4. Kemudian 1 gram zeolit murni dimasukan kedalam elenmeyer yang sudah berisi 250 ml uranium 50 ppm, selanjutnya dengan elenmeyer yang berbeda dan sudah berisi 250 ml uranium 50 ppm dimasukan 1 gram H-zeolit
5. Setelah itu elenmeyer yang sudah berisi larutan uranium dan zeolit tadi dikocok menggunakan alat *sheaker* selama 10 menit.
6. Kegiatan nomer 3 - 5 diulang untuk variasi waktu kontak 20, 30, 40, 50, dan 60 menit
7. Setelah dilakukan kegiatan diatas akan diketahui zeolit mana yang lebih baik untuk menyerap uranium, dan diketahui pula waktu kontak optimum
8. Kemudian untuk percobaan selanjutnya menyiapkan kembali sebanyak 1 gram zeolit murni dan 1 gram H-zeolit
9. Kemudian 1 gram zeolit murni dimasukan kedalam elenmeyer yang sudah berisi 250 ml uranium 50 ppm yang sudah divariasikan pH nya menjadi 3, selanjutnya dengan elenmeyer yang berbeda dan sudah berisi 250 ml uranium 50 ppm dengan pH 3 dimasukan pula 1 gram H-zeolit. Variasi pH uranium pada penelitian ini menggunakan HCl dan NaOH
10. Setelah itu elenmeyer yang sudah berisi larutan uranium dan zeolit tadi

11. dikocok menggunakan alat *sheaker* menggunakan waktu kontak optimum
12. Kegiatan nomer 8 – 10 diulang untuk variasi pH yang berbeda yaitu 5, 7, 9, dan 11
13. Dari percobaan diatas dapat diketahui pH optimum
14. Zeolit yang memiliki daya serap terbaik akan dijenuhkan dengan

limbah uranium, kemudian disolidifikasi menggunakan polimer epoksi. Solidifikasi ini dilakukan dengan variasi kandungan limbah 10, 20, 30, 40, dan 50 % berat limbah

15. Setelah itu dilakukan uji karakteristik blok polimer-limbah yang meliputi uji densitas, kuat tekan, dan laju pelindihan.

Diagram Alir Penelitian



Pembuatan Zeolit Murni

1. Zeolit Bayah digerus
2. Zeolit diayak untuk mendapatkan zeolit dengan ukuran butiran 40 - 60 mesh.
3. Zeolit direfluks dengan air bebas mineral selama 3 x 8 jam pada suhu ± 80 °C untuk memisahkan garam terlarut (digunakan 750 ml air untuk 125 gram zeolit), setiap periode 8 jam air bebas mineral diperbarui.
4. Zeolit dikeringkan didalam oven pada suhu 105 °C sekurang - kurangnya selama 3 jam.
5. Zeolit dipisahkan dari partikel atau mineral bebas dengan memasukkannya kedalam larutan CH_3I (metil iodida), zeolit yang bebas dari partikel - partikel berat seperti silikat akan mengapung di bagian atas cairan metil iodida. Zeolit dipisahkan dari mineral berat, sehingga diperoleh zeolit murni yang masih dalam bentuk multi kation.
6. Zeolit murni disimpan di dalam desikator yang mengandung NaCl jenuh selama 1 minggu

Pembuatan H-Zeolit

Zeolit yang digunakan dalam percobaan ini adalah H-zeolit yang dibuat dari zeolit murni yang direfluks dengan NH_4Cl jenuh selama 24 jam. Selanjutnya NH_4 -zeolit dikalsinasi pada suhu 450 °C selama 24 jam akan menghasilkan H-zeolit. H-zeolit diharapkan mempunyai daya serap yang lebih besar.

Penyerapan Uranium Oleh Zeolit

Penelitian ini menggunakan cara catu, yaitu zeolit dikontakkan dengan limbah dengan cara dikocok menggunakan alat *sheaker* dengan variasi waktu kontak 10, 20, 30, 40, 50, dan 60 menit, kemudian diambil waktu optimumnya, kemudian waktu optimum ini digunakan untuk mengkontak limbah yang sudah divariasikan pHnya menjadi 3, 5, 7, 9, dan 11.

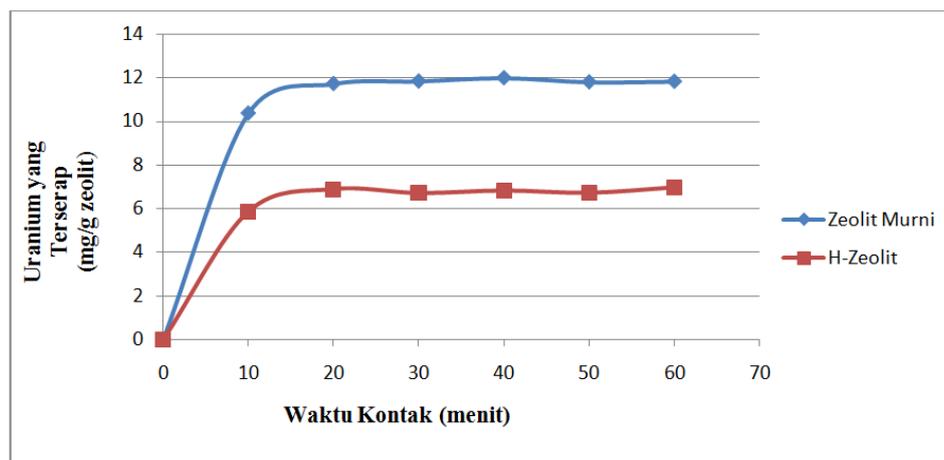
Solidifikasi Zeolit

Zeolit yang sudah jenuh dikeringkan menggunakan oven pada suhu 100 °C. Proses solidifikasi dilakukan dengan mencampur resin epoksi, pengeras (*hardener*) dengan zeolit jenuh yang sudah dikeringkan dengan kandungan limbah 0, 10, 20, 30, 40, dan 50 % berat. Campuran polimer-limbah diaduk sampai homogen kemudian dimasukkan ke dalam cetakan yang berbentuk silinder dan dibiarkan selama 8 jam untuk proses curing. Karakterisasi dilakukan terhadap polimer-limbah yang telah mengeras dengan mengukur densitas, kuat tekan dan laju pelindihannya.

ANALISA DAN PEMBAHASAN

Perbandingan Kemampuan Serap Zeolit Murni dengan H-Zeolit Terhadap Limbah Uranium Cair

Perbandingan kemampuan serap antara zeolit murni dan H-zeolit terhadap 250 ml limbah uranium cair 50 ppm dilakukan dengan proses catu, dengan variasi waktu kontak 10, 20, 30, 40, 50, dan 60 menit.



Gambar 1.

Grafik Hubungan Antara Uranium yang Terserap dengan Waktu Kontak

Dari hasil analisis tersebut dapat disimpulkan bahwa kapasitas serap zeolit murni lebih besar dibandingkan H-zeolit, hal ini disebabkan karena menurut Las (1997) tidak semua kation pada zeolit murni dapat diubah menjadi bentuk uni-kation. Pada H-zeolit masih terdapat kation – kation alkali dan alkali tanah, namun sebagian sudah dipertukaran menjadi H_3O^+ .

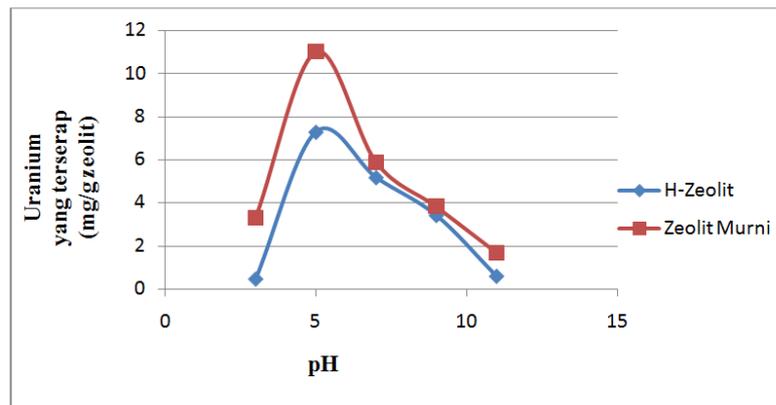
Hal ini dapat juga malah memperkompleks kation pada H-zeolit sehingga akan terjadi kompetisi antara ion H_3O^+ dengan kation – kation alkali dan alkali tanah pada H-zeolit, sehingga mengakibatkan

terganggunya pertukaran ion dan penyerapan UO_2^{2+} .

Dari percobaan ini didapat waktu kontak optimum adalah 20 menit. Pada waktu tersebut uranium terserap oleh zeolit murni 11,72 gram dan uranium terserap oleh H-zeolit 6,89 gram.

Pengaruh Variasi pH Terhadap Uranium Terserap Zeolit Murni dan H-Zeolit

Variasi pH dilakukan dengan cara menambahkan HCl dan NaOH kedalam limbah uranium cair dengan variasi pH 3, 5, 7, 9, dan 11.



Gambar 2.

Grafik Variasi pH Terhadap Uranium Terserap Zeolit Murni dan H-Zeolit

Dari grafik diatas dapat disimpulkan bahwa penyerapan paling optimal zeolit murni dan H-zeolit terjadi pada pH 5. Penyerapan uranium oleh zeolit murni pada pH 5 adalah 11,02 mg/g zeolit, sedangkan penyerapan uranium oleh H-zeolit pada pH 5 adalah 7,30 mg/g zeolit.

Menurut Las, et al. (2011) pada saat pH rendah, larutan kontak dengan permukaan oksigen pada lapisan zeolit dan pada lapisan tersebut akan dihasilkan proton yang berlebih sehingga mengakibatkan kompetisi antara ion H^+ dengan kation yang terdapat pada zeolit, sehingga proses pertukaran ion terganggu. Proton tersebut berasal dari $Si(OH)_2^{2+}$ yang mendominasi permukaan zeolit. Maka dari itu kemampuan zeolit untuk menyerap UO_2^{2+} cenderung menurun seiring dengan penambahan HCl.

Menurut Wati, et al. (2011) pada saat pH larutan uranium meningkat, uranil akan mudah mengalami hidrolisis. Tipe spesies hasil uranil yang telah terhidrolisis yaitu $(UO_2)_2(OH)_2$ dengan ukuran ion uranil yang lebih besar. Maka dari itu semakin tinggi pH larutan uranium semakin sulit uranium untuk terserap atau tertangkap oleh zeolit karena

ukuran ionnya akan semakin membesar dan akan cenderung untuk mengendap seiring meningkatnya pH.

Perhitungan hasil kali kelarutan $(UO_2)_2(OH)_2$ pada pH 7, 9, dan 11 yang terdapat pada lampiran menunjukkan nilai Ksp lebih besar dari Kspnya. Hal tersebut memperkuat referensi diatas bahwa uranium cenderung untuk mengendap seiring meningkatnya pH.

Pada pH 5 terjadi penyerapan optimum karena, pada pH tersebut tipe uranilnya berbentuk UO_2^{2+} sedang pada pH 7, 9, dan 11 uranil akan terhidrolisis menjadi $(UO_2)_2(OH)_2$ dengan ukuran ion yang lebih besar dan akan cenderung untuk mengendap, dan pada pH 5 pembentukan ion H^+ lebih sedikit dibandingkan pada pH 3.

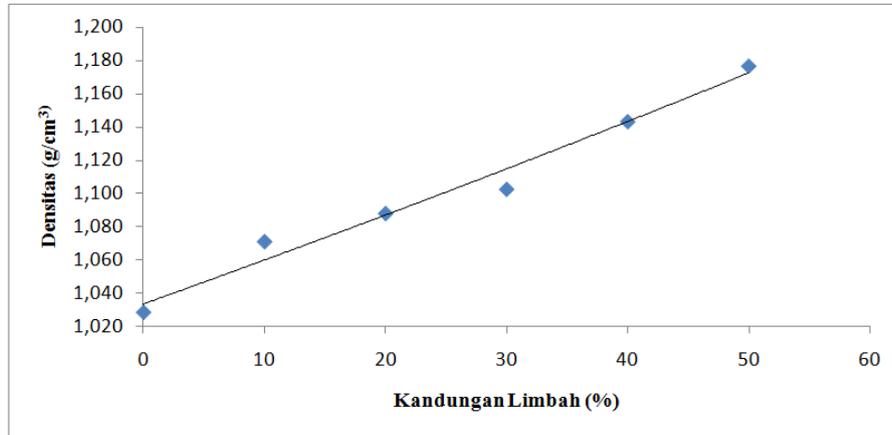
Kondisi optimum penyerapan uranium oleh zeolit murni pada waktu kontak 20 menit dan pH 5. Pada kondisi tersebut uranium terserap zeolit murni adalah 11,02 mg U per gram zeolit murni. Kondisi optimum penyerapan uranium oleh H-zeolit pada waktu kontak 20 menit dan pH 5 adalah 7,30 mg U per gram H-zeolit. Pada percobaan selanjutnya digunakan zeolit murni.

Uji Karakteristik Hasil Solidifikasi Uji Densitas

Densitas merupakan salah satu parameter blok polimer limbah yang

dibutuhkan untuk memprediksi keselamatan transportasi, penyimpanan sementara (*interm storage*), dan penyimpanan lestari.

Hasil pengujian densitas dapat dilihat pada grafik dibawah ini :



Gambar 3.

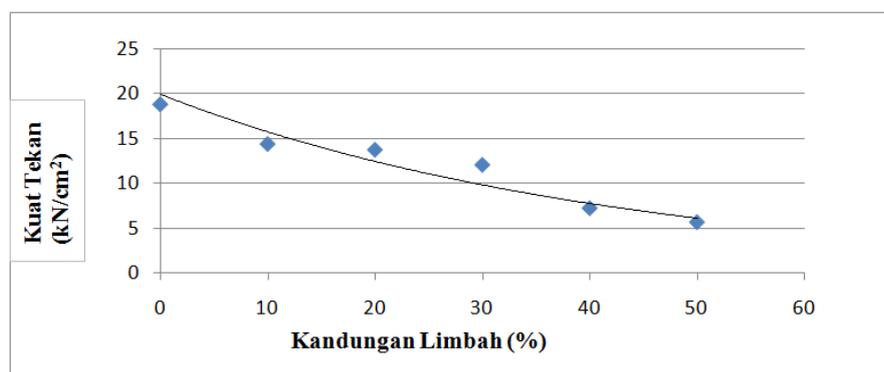
Grafik Hubungan antara Kandungan Limbah dan Densitas

Dari grafik diatas, semakin besar kandungan limbahnya, maka semakin besar pula nilai densitasnya. Hal ini karena persentase unsur - unsur dengan berat atom yang besar meningkat, sehingga densitas blok polimer-limbah akan semakin besar. Jadi dapat dikatakan bahwa dengan penambahan kandungan limbah akan mengakibatkan pengurangan bahan polimer epoksi dalam proses solidifikasi, sehingga akan dihasilkan suatu bentuk blok polimer-limbah yang mempunyai berat jenis tinggi.

Perlunya dilakukan uji densitas karena, densitas menjadi pertimbangan dalam perencanaan tempat penyimpanan limbah.

Uji Kuat Tekan

Kuat tekan blok polimer limbah merupakan parameter penting untuk evaluasi karena jatuh atau mengalami benturan. Hasil pengujian kuat tekan dapat dilihat pada grafik dibawah ini :



Gambar 4.

Grafik Hubungan antara Kandungan Limbah dengan Kuat Tekan

Dari grafik di atas dapat disimpulkan bahwa, semakin besar kandungan limbahnya maka semakin menurun kuat tekan blok polimer - limbahnya. Hal ini disebabkan

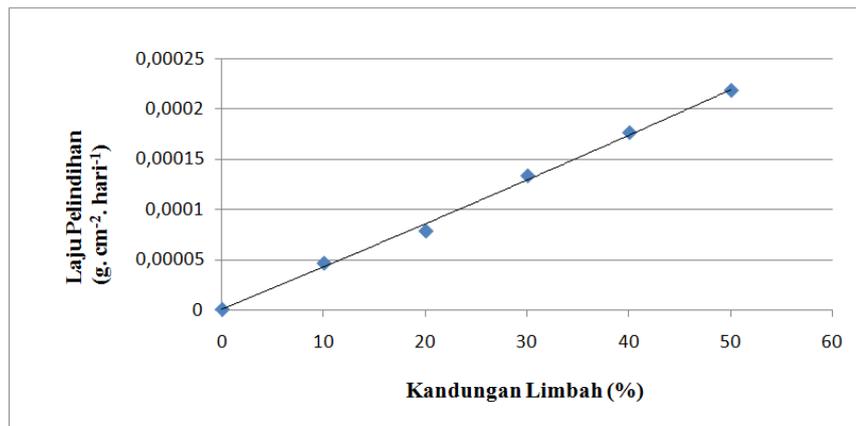
karena apabila semakin besar kandungan limbahnya maka jumlah polimer pada blok polimer - limbah semakin sedikit, sehingga

rantai ikatan antara molekul polimer semakin berkurang.

Uji Laju Pelindihan

Laju pelindihan adalah salah satu karakteristik blok polimer limbah yang penting

untuk evaluasi hasil solidifikasi, karena tujuan akhir solidifikasi limbah memperkecil potensi terlepasnya radionuklida yang ada dalam limbah itu ke lingkungan. Hasil pengujian kuat tekan dapat dilihat pada grafik dibawah ini :



Gambar 5

Grafik Hubungan antara Kandungan Limbah dengan Laju Pelindihan

Pada gambar tersebut, laju pelindihan meningkat seiring dengan meningkatnya kandungan limbah dalam polimer. Hal ini karena semakin tinggi kadar limbah dalam polimer maka perbedaan konsentrasi antara uranium dalam polimer dan air pelindih akan semakin besar pula, sehingga akan semakin mudah terjadinya proses difusi. Akibatnya uranium yang terlindih semakin banyak.

Pemilihan Kandungan Limbah Terbaik

Dalam suatu proses pengolahan limbah ada beberapa hal yang menjadi pertimbangan yaitu hasil pengolahan yang memenuhi persyaratan, proses sederhana sehingga dapat diterapkan di Instalasi Pengolahan Limbah Radioaktif (IPLR) dan tentunya ekonomis. Kandungan limbah yang besar sudah barang tentu akan lebih ekonomis, namun karakteristik polimer - limbah yang dihasilkan cenderung menurun. Demikian pula sebaliknya karakteristik polimer - limbah yang baik dapat diperoleh pada proses dengan kandungan limbah yang lebih rendah. Tujuan pengolahan limbah radioaktif adalah mengungkung radionuklida dalam bahan matriks tertentu sehingga meminimalkan potensi pelepasan radionuklida ke lingkungan.

Pada kandungan limbah lebih besar dari 20 % terjadi kenaikan nilai laju pelindihan yang cukup tinggi yaitu mencapai 10^{-4} , sehingga mempunyai potensi pelepasan uranium ke lingkungan yang lebih besar. Berdasarkan pertimbangan laju pelindihan, kuat tekan, dan densitas polimer - limbah maka dipilih kandungan limbah terbaik pada

20 %. Hasil uji karakteristik solidifikasi limbah uranium pada kandungan limbah 20 % yaitu menghasilkan nilai densitas sebesar $1,088 \text{ g/cm}^3$, kuat tekan sebesar $13,746 \text{ kN/cm}^2$, dan laju pelindihan sebesar $7,8 \cdot 10^{-5} \text{ g. cm}^{-2} \cdot \text{hari}^{-1}$.

PENUTUP

Kesimpulan

1. Zeolit murni memiliki kemampuan serap terhadap limbah uranium lebih baik dibandingkan dengan H-zeolit.
2. Kemampuan serap optimum zeolit murni terhadap limbah uranium cair yaitu pada kondisi pH 5 sebesar $11,72 \text{ mg U per gram zeolit murni}$. Kemampuan serap optimum H-zeolit terhadap limbah uranium cair yaitu pada kondisi pH 5, sebesar $7,3 \text{ mg U per gram H-zeolit}$.
3. Berdasarkan pertimbangan hasil uji densitas, kuat tekan, dan laju pelindihan maka hasil terbaik blok polimer - limbah terdapat pada kandungan limbah 20 %. Hasil uji karakteristik solidifikasi limbah uranium pada kandungan limbah 20 % yaitu menghasilkan nilai densitas sebesar $1,088 \text{ g/cm}^3$, kuat tekan sebesar $13,746 \text{ kN/cm}^2$, dan laju pelindihan sebesar $7,8 \cdot 10^{-5} \text{ g. cm}^{-2} \cdot \text{hari}^{-1}$.

Saran

Agar dilakukannya uji komposisi kimia secara kuantitatif untuk lebih memperjelas kadar kandungan ion yang terdapat pada zeolit murni dan H-zeolit.

DAFTAR PUSTAKA

- Aisyah, Martono Herlan, Wati. 2009. *Pengolahan Limbah Produksi Radioisotop Menggunakan Resin Penukar Anion*. PTLR BATAN, Tangerang
- Las, T. 1997. *Pemanfaatan Mineral Zeolit untuk Pengolahan Limbah*. PTLR BATAN, Jakarta

Las, T., F. Firdiyono, dan A. Hendrawan. 2011. *Adsorpsi Unsur Pengotor Larutan Natrium Silikat Menggunakan Zeolit Alam Karangnunggal*. UIN Syarif Hidayatullah, Jakarta

Wati, H. Zamroni, dan H. Martono. 2011. *Pengolahan Limbah Rafinat Simulasi yang Ditimbulkan dari Produksi Radioisotop Molibdenum-99 Menggunakan Bentonit Berpilar dan Resin Epoksi*. PTLR BATAN, Tangerang