

PENYISIHAN KANDUNGAN CESIUM (CS), STRONSIUM (SR), DAN SURFAKTAN PADA AIR LIMBAH RADIOAKTIF MENGGUNAKAN MEMBRAN NANOFILTRASI

Fenisa Vifaly^{*)}, Titik Istirokhatun^{**)}, Heru Susanto^{**)}

Departemen Teknik Lingkungan, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro
Jl. Prof. H. Soedarto, SH Tembalang, Semarang, Indonesia 50275
E-mail: fenisavf@gmail.com

Abstrak

Air limbah radioaktif yang berasal dari kegiatan pembangkit listrik tenaga nuklir (PLTN) mengandung radionuklida cesium (Cs) dan stronsium (Sr) sebagai residu dari reaksi fisi uranium dalam jumlah besar. Selain itu, surfaktan juga banyak ditemukan pada air limbah radioaktif karena adanya kegiatan operasional seperti pencucian reaktor dan pakaian. Maka dari itu, diperlukan metode yang efektif untuk mengolah air limbah radioaktif ini sebelum dialirkan ke badan air agar tidak mengkontaminasi lingkungan sekitar. Penelitian ini menggunakan air limbah radioaktif sintetik yang mengandung 1 mg/l Cs, 1 mg/l Sr, dan 100 mg/l surfaktan nonionik untuk difiltrasi menggunakan membran nanofiltrasi NF270. Dengan variasi kondisi operasi berupa tekanan (4, 5, 6 bar) dan pH air limbah (4, 7, 9), diperoleh nilai fluks yang bervariasi untuk setiap parameter (Cs, Sr, dan/atau surfaktan). Namun dapat disimpulkan bahwa pH 4 menghasilkan fluks yang tinggi untuk Cs dan Sr dan pH 9 menghasilkan fluks yang tinggi untuk surfaktan. Untuk tingkat rejeksi, membran NF270 telah memberikan hasil yang efektif untuk penyisihan Cs dan Sr baik dari larutan umpan tunggal maupun campuran yaitu 100% pada pH 7 dan pH 9 dengan tekanan 5 bar. Sedangkan penyisihan surfaktan dengan persentase tertinggi ditemui ppada penyisihan larutan umpan campuran dengan pH 9 dan tekanan 5 bar, yaitu mencapai 98,6%. Dengan demikian, dapat disimpulkan bahwa tekanan operasi dan pH air limbah sangat berpengaruh terhadap penyisihan kandungan Cs, Sr, dan surfaktan dari air limbah radioaktif dengan menggunakan membran nanofiltrasi NF270.

Kata kunci: Air limbah radioaktif, cesium, stronsium, surfaktan nonionik, nanofiltrasi

Abstract

[Removal Of Cesium (Cs), Strontium (Sr), and Surfactant From Radioactive Wastewater Using Nanofiltration Membrane]. Radioactive wastewater contains a huge amount of cesium (Cs) and strontium (Sr) as uranium fission by-products. Surfactant used in nuclear plant and workers' suit laundry is also found in the wastewater. This radioactive wastewater needs an effective treatment before it is discharged in order to protect the environment from the hazards of radioactive contamination. The aim of this research was to remove 1 mg/l of Cs, 1 mg/l of Sr, and 100 mg/l of nonionic surfactant from artificial radioactive wastewater using nanofiltration membrane (NF270) with various operational pressures (4, 5, 6 bar) in

three feed water pH conditions (4, 7, 9) and to investigate the effect of both operational pressures and feed water pH conditions in removing Cs, Sr, and surfactant. The result showed that the flux of Cs and Sr was high in acidic condition and the flux of surfactant was high in alkaline condition. NF270 was able to completely remove Cs and Sr from the wastewater in neutral and alkaline conditions (operational pressure = 5 bar). It was also effective in removing surfactant from the wastewater as the rejection rate of surfactant reaches 98,6% in alkaline condition (operational pressure = 5 bar). In conclusion, operational pressure and feed water pH condition played a great role in the removal of Cs, Sr, and surfactant from radioactive wastewater.

Keywords: radioactive wastewater, cesium, strontium, nonionic surfactant, membrane treatment, nanofiltration

1. Pendahuluan

Limbah radioaktif merupakan salah satu jenis air limbah yang berbahaya dan beracun. Limbah ini banyak dihasilkan dari pembangkitan listrik tenaga nuklir, pemanfaatan radioisotop pada bidang medis dan agrikultur, serta penelitian di laboratorium (Rana *et. al.*, 2013). Pada industri pembangkit listrik tenaga nuklir, beberapa kegiatan operasional seperti *laundry* dan pembersihan lantai menghasilkan air limbah yang mengandung radionuklida level rendah yang memiliki waktu paruh yang panjang, diantaranya ^{90}Sr dengan waktu paruh 30,2 tahun dan ^{137}Cs dengan waktu paruh 28,8 tahun (Dang *et. al.*, 2016). Menurut Ding *et. al.* (2015), kedua unsur tersebut merupakan radionuklida yang jumlahnya paling banyak terkandung dalam air limbah radioaktif. Sr merupakan radionuklida yang banyak ditemukan pada limbah dari reaktor nuklir sebagai hasil dari reaksi fisi nuklir dari ^{235}U dan ^{239}Pu . Radionuklida ini memiliki sifat toksik dan radioaktivitas yang persisten kuat (Wu *et.*

al., 2014). Sedangkan Cs memiliki struktur kimia yang mirip dengan natrium dan kalium, sehingga bersifat aktif di lingkungan dan mudah diterima oleh organisme air (Lee *et. al.*, 2008). Selain radionuklida, komponen organik juga terkandung di dalam air limbah radioaktif ini. Komponen organik ini berasal dari kegiatan operasi dan *maintenance* pada industri pembangkit listrik pada PLTN, salah satunya surfaktan yang berasal dari kegiatan *laundry* (Tikilili and Chirwa, 2009). Dengan demikian diperlukan suatu metode efektif untuk mengolah limbah radioaktif sebelum dialirkan ke badan air agar tidak mengkontaminasi lingkungan sekitar dan sesuai dengan standar baku mutu air limbah yang berlaku.

Beberapa penelitian telah dilakukan untuk mengolah limbah radioaktif dengan level rendah khususnya yang mengandung Cs dan Sr. Beberapa metode tersebut diantaranya presipitasi (Rahman, 2011), absorpsi pertukaran ion (Fang *et. al.*, 2016), elektrokoagulasi (Kamaraj *et. al.*, 2015), dan pengolahan

menggunakan membran (Rana *et. al.*, 2013). Menurut Rahman (2011), presipitasi dapat digunakan untuk mengolah air limbah dalam volume besar dan kandungan garam tinggi dengan biaya yang relatif rendah, Akan tetapi, pengolahan ini memiliki faktor dekontaminasi yang rendah dan efisiensinya tergantung pada tahap pemisahan padatan dan cairan. Elektrokoagulasi memiliki efisiensi penyisihan yang tinggi untuk Cs (97%) dan Sr (96,8%) jika dilakukan pada kondisi operasi yang optimal (Kamaraj *et. al.*, 2015). Namun menurut Siringi (2012), pengolahan ini memiliki beberapa kelemahan diantaranya terlarutnya elektroda hasil oksidasi ke dalam air sehingga harus diganti secara berkala, terbentuknya lapisan oksida pada katoda yang dapat menurunkan efisiensi penyisihan, dan dibutuhkan konduktivitas suspensi air limbah yang tinggi. Pada penelitian Fang *et. al.* (2016), proses absorpsi pertukaran ion efektif menyisihkan Co, Sr, dan Cs dalam limbah radioaktif, tetapi persentase penyisihan radionuklida menurun ketika terdapat senyawa organik dan padatan tersuspensi dalam air limbah (Fang *et. al.*, 2016). Dari beberapa metode tersebut, penggunaan membran dinilai lebih efektif dalam penyisihan material radioaktif dari air limbah. Hal ini dikarenakan proses ini membutuhkan energi rendah dalam operasinya dibandingkan dengan proses lain, tidak memerlukan temperatur yang tinggi, dan mudah dikombinasikan dengan proses lain (Rana *et. al.*, 2013). Beberapa contoh aplikasi membran pada penyisihan

radionuklida dari air limbah telah dilakukan oleh Weerasekara *et. al.* (2013) dengan penambahan adsorben pada mikrofiltrasi dan Dang *et. al.* (2016) dengan membandingkan kinerja *reverse osmosis* pada tekanan rendah dan ultrafiltrasi dengan tambahan polimer. Kedua penelitian tersebut menampilkan hasil penyisihan yang efektif untuk Sr. Akan tetapi, dibutuhkan pemilihan adsorben yang tepat untuk dapat mencapai nilai fluks dan rejeksi yang tinggi pada mikrofiltrasi. Sedangkan penambahan polimer pada membran ultrafiltrasi cenderung memberikan dampak *fouling* yang lebih tinggi dan menurunkan nilai fluks (Dang *et. al.*, 2016). Selain itu, kedua membran ini juga memiliki pori yang lebih besar daripada kandungan radionuklida dalam air limbah radioaktif yang pada umumnya berbentuk ion baik monovalen maupun divalen.

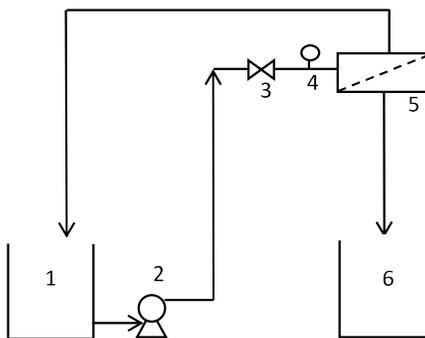
Pada penelitian ini, membran nanofiltrasi NF270 dipilih sebagai alternatif untuk menyisihkan cesium (Cs), stronsium (Sr), dan surfaktan. Hal ini mengingat membran NF masih jarang ditemui pada pengolahan air limbah radioaktif. Membran nanofiltrasi mampu menyisihkan ion divalen dan ion monovalen dengan tekanan operasi yang lebih rendah (Gherasim *et. al.*, 2015) dan menghasilkan fluks yang lebih tinggi (Mohammad, 2014) dibandingkan dengan membran *reverse osmosis*. Penelitian ini bertujuan untuk menganalisis pengaruh tekanan operasi dan pH larutan terhadap kinerja membran dalam penyisihan Cs, Sr dan surfaktan.

2. Metode Penelitian

2.1 Bahan dan Alat

Pada penelitian ini, Cesium Klorida (CsCl) sebagai model Cs, Stronsium Nitrat ($\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$) sebagai model Sr, dan Polysorbate 80 (Tween 80) sebagai model surfaktan digunakan untuk membuat air limbah radioaktif sintetik tunggal dan campuran. Hidrogen Klorida (HCl) dan Natrium Hidroksida (NaOH) digunakan sebagai pengatur kadar pH air limbah radioaktif sintetik. Semua bahan tersebut merupakan standar analisis yang dibeli dari Merck Millipore (Jerman).

Membran *flat sheet* nanofiltrasi NF270 (DOW FilmTecTM, Amerika) yang memiliki polimer penyusun berupa komposit poliamida dengan pori sebesar 180 Da digunakan sebagai media penyaring pencemar dalam air limbah radioaktif sintetik. Alat filtrasi membran yang digunakan merupakan rangkaian sendiri dan terdiri atas (1) tangki umpan, (2) pompa, (3) *valve*, (4) *pressure gauge*, (5) *housing* membran, dan (6) tangki permeat. Skema alat filtrasi membran dapat dilihat pada Gambar 1 berikut.



Gambar 1. Skema Alat Filtrasi Membran

2.2 Air Limbah Radioaktif Sintetik

Penelitian ini menggunakan air limbah radioaktif sintetik yang mengandung 1 mg/l Cs, 1 mg/l Sr (Ding *et. al.*, 2013), dan 100 mg/l surfaktan nonionik (Dang *et. al.*, 2016). Air limbah radioaktif sintetik ini dibuat dengan melarutkan masing-masing Cs, Sr, dan surfaktan ke dalam aquadest untuk memperoleh umpan tunggal serta melarutkan ketiganya ke dalam aquadest untuk memperoleh larutan umpan campuran. pH larutan dibuat bervariasi 4, 7, dan 9 dengan menambahkan HCl dan NaOH menggunakan indikator pH (Merck Millipore, Jerman) sebagai pengukur pH.

2.3 Analisa

2.3.1 Analisa Fluks Membran Nanofiltrasi

Analisa fluks merupakan salah satu metode untuk menguji kinerja membran. Analisa ini dilakukan dengan mengetahui volume permeat yang melewati permukaan membran dalam rentang waktu tertentu. Uji fluks ini dilakukan di Laboratorium *Membrane Research Center* (Mer-C) yang terletak di UPT Laboratorium Terpadu Universitas Diponegoro. Uji fluks ini diawali dengan preparasi membran NF270 yang meliputi pemotongan membran dengan diameter 4,2 cm, perendaman membran tersebut dalam aquades selama 30 menit untuk menghilangkan kontaminan pada permukaan membran, dan perlakuan kompaksi membran pada tekanan 1 bar di atas tekanan operasi untuk menjaga stabilitas fluks selama pengujian. Selanjutnya dilakukan pengukuran fluks awal (Jo) menggunakan aquadest pada

tekanan operasi (4, 5, dan 6 bar) selama 15 menit. Setelah itu dilakukan pengukuran fluks air limbah radioaktif sintetik (J_w) selama 120 menit dengan interval waktu 15 menit. Analisa fluks membran kemudian dihitung menggunakan rumus pada Persamaan 1 berikut.

$$J_o = \frac{V}{A \cdot t} \quad (1)$$

Dengan J_o adalah nilai fluks ($L/m^2 \cdot jam$), V adalah volume permeat (L), A adalah luas permukaan membran (m^2), dan t adalah waktu (jam). Nilai J_w juga dapat diperoleh dengan perhitungan menggunakan persamaan 1 di atas.

2.3.2 Analisa Kandungan Cs dan Sr

Konsentrasi Cs dan Sr pada larutan permeat diukur menggunakan *inductively coupled plasma optical emission spectrometry* atau ICP-OES (PerkinElmer, Amerika Serikat). Uji kandungan Cs dan Sr ini dilakukan di Laboratorium Kimia Universitas Negeri Semarang.

2.3.3 Analisa Kandungan Surfaktan

Konsentrasi Tween 80 sebagai surfaktan pada larutan permeat diukur dengan *high performance liquid chromatography* atau HPLC (Shimadzu, Jepang). Uji kandungan surfaktan ini dilakukan di UPT Laboratorium Terpadu Universitas Diponegoro.

2.3.4 Analisa Karakteristik Membran

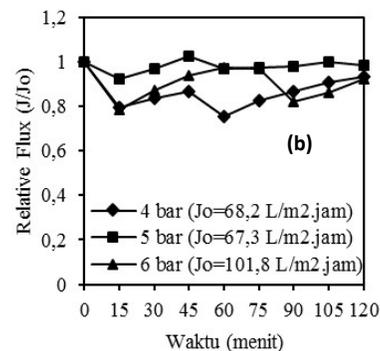
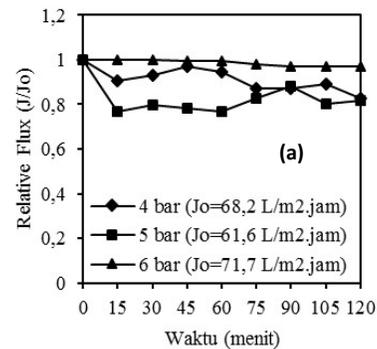
Untuk mengetahui karakteristik membran NF270 sebelum dan setelah filtrasi air limbah radioaktif sintetik dilakukan pengujian *scanning electron microscopy* (SEM) dan *fourier transform infrared spectroscopy* (FTIR). Uji SEM

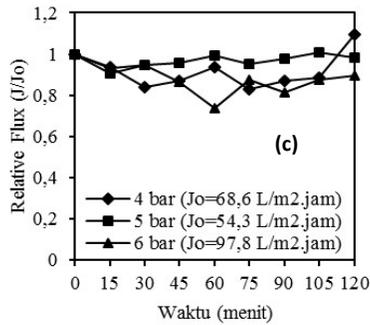
dilakukan di UPT Laboratorium Terpadu Universitas Diponegoro menggunakan JEOL SEM JSM-6510 *series* (Jepang). Uji SEM digunakan untuk mengetahui morfologi membran. Uji FTIR yang berfungsi untuk mengetahui gugus fungsi pada permukaan membran dilakukan di Laboratorium Kimia Universitas Negeri Semarang menggunakan Frontier FT-IR dari Perkin Elmer (Amerika).

3. Hasil dan Pembahasan

3.1 Pengaruh Tekanan Operasi terhadap Flux Larutan Umpan Tunggal

3.1.1 Cesium (Cs)





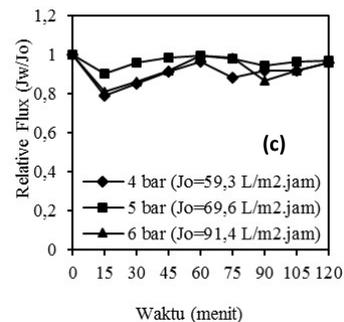
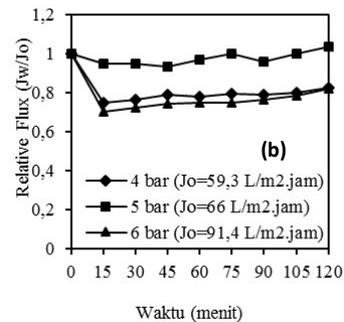
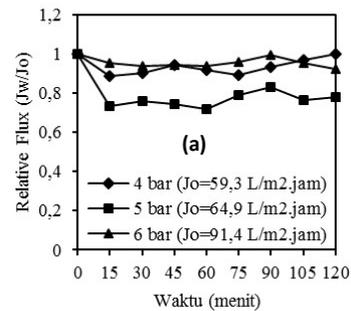
Gambar 2. Profil relative flux Cs terhadap waktu pada (a) pH 4, (b) pH 7, dan (c) pH 9

Gambar 2 menunjukkan profil *relative flux* Cs terhadap waktu. Pada penelitian ini, pengaruh tekanan operasi terhadap *relative flux* dengan larutan umpan Cs diinvestigasi pada kondisi pH asam (pH 4), pH netral (pH 7), dan pH basa (pH 9). Larutan umpan tersebut difiltrasi menggunakan membran NF270 pada tekanan operasi 4 bar, 5 bar, dan 6 bar selama 120 menit.

Hasil menunjukkan bahwa tekanan tidak memberikan pengaruh yang signifikan terhadap *relative flux* Cs dalam kondisi pH asam, netral, maupun basa. Sebab pada larutan umpan dengan pH 4, tekanan 6 bar memberikan hasil *relative flux* yang tertinggi. Sedangkan pada larutan umpan dengan pH 7 dan 9, hasil *relative flux* tertinggi berada pada tekanan 5 bar. Hal ini dapat terjadi karena adanya efek elektroviskos yang terjadi pada pH tinggi. Menurut Childress dan Elimelech (2000), efek elektroviskos mempengaruhi tingkat *flux* ketika permukaan membran memiliki perbedaan muatan dengan ion yang difiltrasi, sebab ion tersebut akan terabsorpsi dan terakumulasi dalam pori

membran dan membentuk *electrical double layer* (EDL). Pada kondisi pH 7 dan pH 9 muatan membran lebih negatif sehingga EDL terbentuk lebih pada kondisi tersebut. EDL ini akan menyebabkan *fouling* yang lebih besar pada tekanan yang tinggi seperti pada tekanan 6 bar sehingga pada tekanan tersebut, *relative flux* turun dan tekanan 5 bar menghasilkan *flux* yang paling optimum.

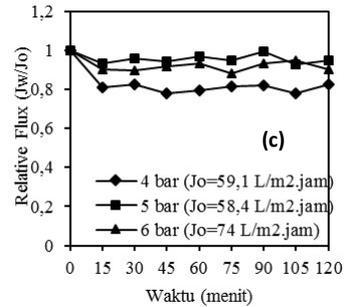
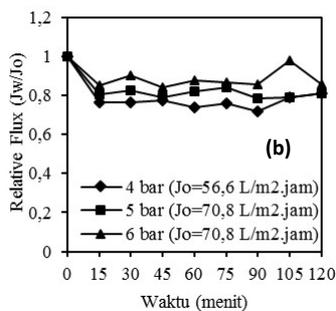
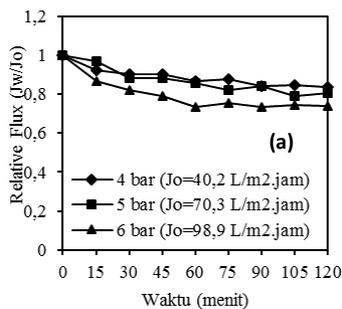
3.1.2 Stronsium (Sr)



Gambar 3. Profil *relative flux* Sr terhadap waktu pada (a) pH 4, (b) pH 7, dan (c) pH 9

Gambar 3 menunjukkan profil *relative flux* Sr pada kondisi pH 4, 7, dan 9 menggunakan tekanan operasi 4, 5, dan 6 bar. Uji *flux* Sr memberikan hasil yang serupa dengan Cs. Pada hasil uji flux umpan dengan pH 4, tekanan 6 bar memberikan hasil *relative flux* yang tertinggi. Sedangkan pada umpan dengan pH 7 dan 9, hasil *relative flux* tertinggi berada pada tekanan 5 bar. Fenomena pada uji *flux* Sr ini menghasilkan trend yang sama dengan uji *flux* Cs karena keduanya merupakan unsur dengan ion positif, sehingga dapat dijelaskan bahwa Cs dan Sr mengalami kesamaan fenomena pada saat uji *flux*.

3.1.3 Surfaktan



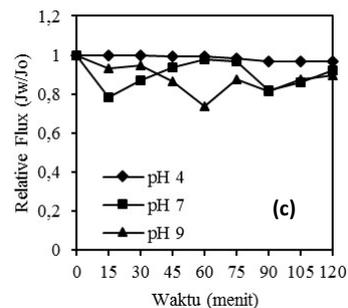
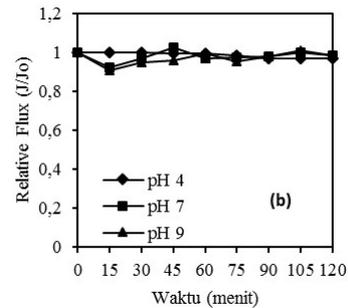
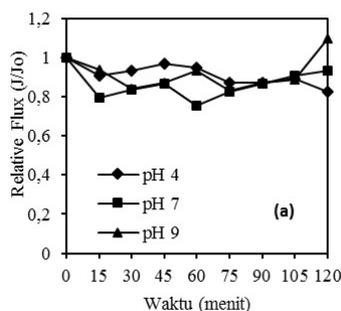
Gambar 4. Profil *relative flux* Surfaktan terhadap waktu pada (a) pH 4, (b) pH 7, dan (c) pH 9

Gambar 4 menunjukkan profil *relative flux* membran NF270 terhadap waktu untuk larutan umpan tunggal surfaktan dengan variasi tekanan operasi yaitu 4, 5, dan 6 bar pada tiga kondisi pH larutan (4, 7, 9). Dari grafik tersebut dapat dilihat bahwa *relative flux* yang dicapai cukup tinggi karena membran NF270 memiliki sifat hidrofilik. Sifat hidrofilik ini menyebabkan membran memiliki interaksi yang kuat dengan air sehingga mampu memisahkan molekul surfaktan dari air dengan baik. Berbeda dengan Cs dan Sr, larutan umpan tunggal surfaktan ini memiliki nilai *relative flux* paling tinggi saat menggunakan tekanan operasi 4 bar untuk pH 4 dan 6 bar untuk pH 7. Sedangkan untuk pH 9, tekanan operasi sebesar 5 bar yang memberikan nilai *relative flux* tertinggi. Pada pH tinggi tekanan 4 bar memberikan *flux* paling rendah diantara ketiga tekanan. Sehingga dapat disimpulkan bahwa, meskipun tidak linear, pada kondisi pH yang lebih tinggi maka tekanan yang dibutuhkan semakin besar.

Pada grafik tersebut juga dapat dilihat bahwa terjadi penurunan antara *flux* yang menggunakan aquades murni dengan *flux* yang menggunakan aquades mengandung surfaktan. Hal ini disebabkan oleh penurunan sifat kebasahan (*wettability*) dari membran NF270 karena terjadinya peristiwa adsorpsi. Surfaktan berupa Polysorbate 80 memiliki *hydrophilic-lipophilic balance* (HLB) dengan nilai 15 yang mengindikasikan bahwa surfaktan ini cenderung memiliki sifat hidrofilik (Griffin, 1949). Kesamaan sifat hidrofilik antara membran dan larutan ini akan menyebabkan bagian kepala hidrofilik surfaktan teradsorpsi oleh gugus hidrofilik membran, sehingga bagian ekor surfaktan yang bersifat hidrofobik akan menghadap ke larutan umpan dan kemudian menurunkan *wettability* dan *flux* itu sendiri. Hal ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Paria dan Khilar (2004), ikatan yang kuat antara gugus hidrofilik surfaktan dengan adsorben hidrofilik seperti silika atau oksida dapat menyebabkan perubahan rantai alkil pada permukaan adsorben.

3.2 Pengaruh pH Larutan terhadap Flux Larutan Umpan Tunggal

3.2.1 Cs



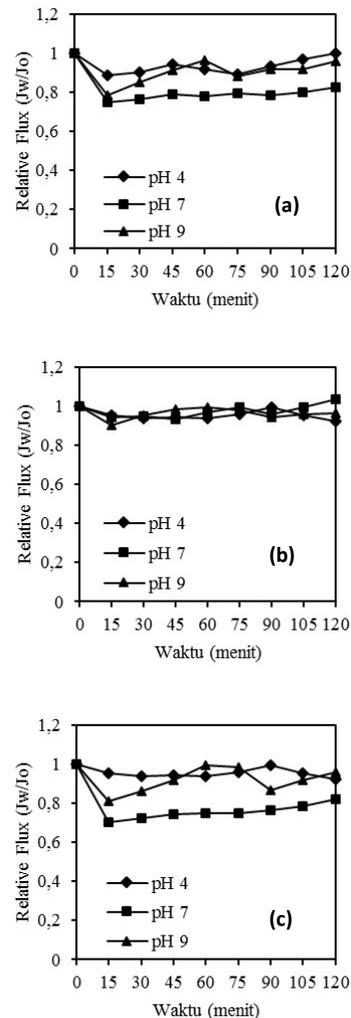
Gambar 5. Profil relative flux Cs terhadap waktu pada tekanan (a) 4 bar (b) 5 bar (c) 6 bar

Gambar 5 merupakan profil *relative flux* Cs terhadap waktu pada tiga tekanan operasi (4, 5, 6 bar) sehingga terlihat perbedaan hasil *flux* pada pH 4, pH 7, dan pH 9. Dari gambar di atas, terlihat bahwa *flux* tertinggi dicapai ketika larutan berada dalam kondisi asam atau pada pH 4. Sesuai dengan yang dinyatakan oleh Ozaki *et. al.* (2002), nilai *flux* lebih tinggi pada saat pH larutan berada di sekitar titik isoelektriknya, dan akan menurun pada keadaan pH yang lebih tinggi, pada penelitian ini adalah pH 7 dan pH 9.

Hal ini dapat dijelaskan bahwa di sekitar titik isoelektrik, permukaan membran memiliki muatan yang lebih rendah, sehingga menyebabkan pori cenderung lebih renggang dan

menghasilkan *flux* yang lebih tinggi. Sebaliknya, pada pH 7 dan pH 9, penyempitan pori terjadi karena adanya *electrostatic repulsion* atau gaya tolak menolak antar gugus karboksil dari membran NF pada saat permukaan membran memiliki muatan negatif, penyempitan pori ini menyebabkan *flux* menurun. Selain itu, penurunan *relative flux* ini juga disebabkan oleh efek elektroviskos. Efek elektroviskos mempengaruhi tingkat *flux* ketika permukaan membran memiliki perbedaan muatan dengan ion yang difiltrasi, sebab ion tersebut akan terabsorpsi dan terakumulasi dalam pori membran dan membentuk *electrical double layer* (EDL). Pada kondisi pH 7 dan pH 9 muatan membran lebih negatif sehingga EDL akan terbentuk dan menutup pori membran sehingga menyebabkan penurunan *relative flux*. Fenomena terakhir yang mempengaruhi penurunan *relative flux* pada variasi kondisi pH adalah tekanan osmotik. Semakin tinggi pH, rejeksi ion akibat perbedaan muatan akan lebih tinggi dan menyebabkan konsentrasi polarisasi serta tekanan osmotik meningkat. Peningkatan tekanan osmotik ini tidak sebanding dengan tekanan operasi yang konstan, sehingga menyebabkan penurunan *net driving pressure* dan menurunkan *flux*. Hal ini sesuai dengan hasil penelitian sebelumnya yang telah dilakukan oleh Childress dan Elimelech (2000).

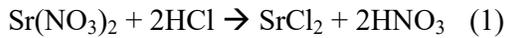
3.2.2 Sr



Gambar 6. Profil *relative flux* Sr terhadap waktu pada tekanan (a) 4 bar (b) 5 bar (c) 6 bar

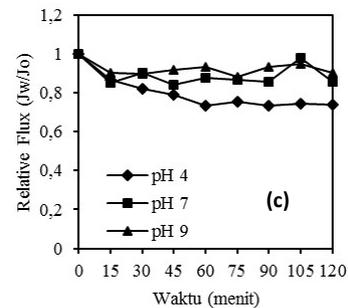
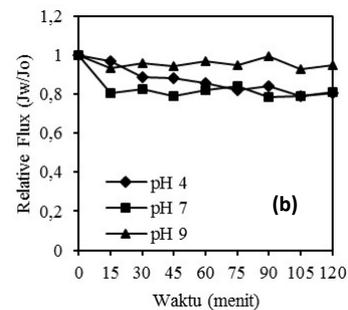
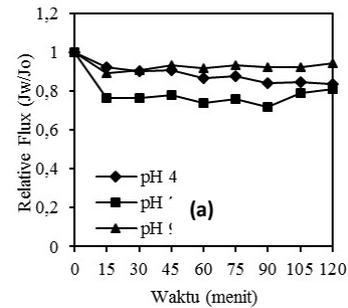
Gambar 6 di atas menunjukkan *relative flux* Sr menggunakan tekanan operasi 4, 5, dan 6 bar untuk menguji *flux* Sr pada larutan umpan dengan kondisi pH 4, 7, dan 9. Sama seperti halnya Cs, larutan dengan pH 4 memberikan hasil *flux* yang tertinggi dibandingkan larutan dengan pH

7 dan pH 9. Namun kenaikan *flux* pada pH 4 yang disebabkan oleh pembesaran pori membran selain disebabkan oleh gaya elektrostatis, efek elektroviskos, maupun tekanan osmotik, juga disebabkan oleh terjadinya degradasi oksidatif oleh asam nitrat (HNO_3).



Dari persamaan 1 di atas terlihat bahwa stronsium nitrat sebagai senyawa pembawa Sr yang bereaksi dengan asam klorida sebagai pengatur pH akan menghasilkan produk berupa asam nitrat. Menurut Platt *et. al.* (2004) pada penelitiannya dengan membran NF45 (memiliki material penyusun poliamida yang serupa dengan NF270), asam nitrat akan mengoksidasi permukaan membran terutama pada temperatur tinggi (80°C). Oksidasi permukaan membran ini akan memperbesar ukuran pori membran dan menyebabkan kenaikan *flux* disertai dengan penurunan tingkat retensi. Penurunan tingkat retensi tersebut dibuktikan dengan rendahnya persentase rejeksi Sr yang dijelaskan pada subbab berikutnya. Adapun penjelasan *flux* Sr pada kondisi pH 7 dan pH 9 yang lebih rendah dibandingkan dengan *flux* pada kondisi pH 4, sesuai dengan fenomena *flux* yang terjadi pada Cs.

3.2.3 Surfaktan



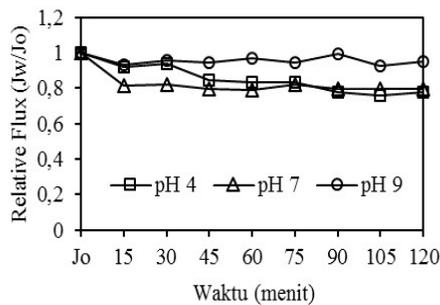
Gambar 7. Profil Relative Flux Surfaktan terhadap waktu pada tekanan (a) 4 bar (b) 5 bar (c) 6 bar

Pengaruh pH larutan terhadap *relative flux* larutan umpan tunggal surfaktan pada berbagai tekanan dapat dilihat pada gambar 7. Dari ketiga gambar tersebut dapat disimpulkan bahwa larutan umpan tunggal surfaktan dengan pH 9 menghasilkan *flux* yang lebih besar

dibandingkan larutan dengan pH 4 dan pH 7.

Tween 80 sebagai surfaktan yang digunakan pada penelitian ini tergolong pada jenis surfaktan nonionik, yaitu surfaktan yang alkilnya tidak bermuatan, sehingga bersifat netral pada larutan dengan kondisi pH rendah maupun tinggi. Sesuai dengan penelitian Boussu *et. al.* (2007), jenis surfaktan ini mengalami adsorpsi pada membran yang disebabkan oleh hidrofobitasnya. Selain itu, Boussu *et. al.* juga menyatakan bahwa penyebab lain dari tertahannya surfaktan nonionik pada permukaan membran adalah MWCO dari surfaktan itu sendiri. Tingginya *flux* pada pH 9 dapat dijelaskan oleh Luo *et. al.* (2012) yang menyatakan bahwa konsentrasi polarisasi molekul surfaktan berkurang pada pH yang tinggi.

3.3 Uji Fluks Larutan Campuran

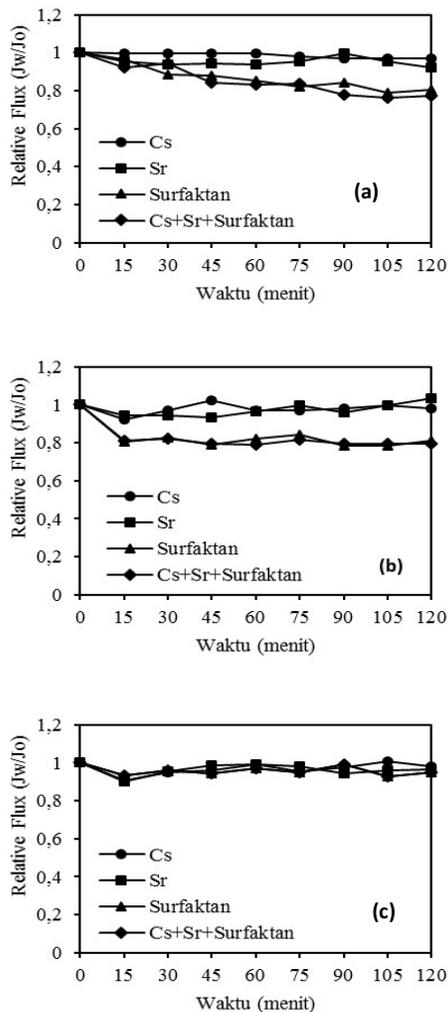


Gambar 8. Profil *relative flux* Larutan umpan campuran terhadap waktu (P = 5 bar)

Gambar 8 di atas menunjukkan *relative flux* membran terhadap waktu dari larutan umpan campuran yang mengandung Cs, Sr, dan surfaktan pada berbagai kondisi pH. Kondisi pH 9 pada

larutan umpan campuran menghasilkan *flux* yang lebih tinggi dibandingkan dengan kedua kondisi pH lainnya.

Uji *flux* ini menunjukkan *relative flux* yang cenderung menurun dari menit ke-15 sampai menit ke-120. Selama proses filtrasi berlangsung, surfaktan yang memiliki berat molekul lebih besar dari pori membran ini akan membentuk lapisan gel di atas permukaan membran dengan konsentrasi yang lebih besar dari *critical micellar concentration* (CMC) dari surfaktan itu sendiri, sehingga terbentuk molekul-molekul surfaktan yang disebut misel (Ferella *et. al.*, 2007). Ferella *et. al.* (2007) juga menyatakan bahwa senyawa kompleks misel-logam akan terbentuk ketika berada dalam larutan yang memiliki konsentrasi lebih besar daripada CMC. Terbentuknya senyawa kompleks ini akan menutup pori membran sehingga menurunkan kinerja membran tersebut yang ditandai dengan menurunnya *flux*.



Gambar 9 menunjukkan perbandingan *relative flux* antara masing-masing larutan umpan tunggal yang mengandung Cs, Sr, atau surfaktan, dengan *relative flux* larutan umpan campuran. Dari ketiga gambar tersebut terlihat bahwa larutan umpan campuran menghasilkan *flux* paling rendah dibandingkan ketiga larutan umpan tunggal. Hal ini dapat terjadi karena larutan umpan campuran memiliki senyawa yang lebih kompleks daripada larutan umpan tunggal sehingga menyebabkan penurunan kinerja membran yang lebih signifikan. Cs dan Sr yang berupa ion hanya akan terdeposisi pada permukaan membran namun tidak menutupi pori membran secara keseluruhan sehingga *flux* yang dihasilkan lebih tinggi. Selain itu, konsentrasi juga mempengaruhi kinerja membran NF270 ini. Konsentrasi Cs dan Sr masing-masing adalah 1 mg/l sedangkan konsentrasi surfaktan adalah 100 mg/l. Sesuai dengan Al-Amoudi dan Lovitt (2007) yang menyatakan bahwa salah satu faktor yang mempengaruhi proses pemisahan senyawa dari membran NF adalah konsentrasi umpan.

3.4 Pengaruh Tekanan Operasi dan pH Larutan Terhadap Rejeksi

Tabel 1.
 Konsentrasi Parameter Cs, Sr, dan Surfaktan I Sebelum dan Sesudah Filtrasi

pH	Konsentrasi Awal (mg/L)			Konsentrasi Akhir (mg/L)			Persentase Rejeksi (%)		
	Cs	Sr	S	Cs	Sr	S	Cs	Sr	S
Larutan umpan tunggal									
4	1	1	100	0	0,368	1,829	100	63,2	98,2
7	1	1	100	0	0	1,981	100	100	98
9	1	1	100	0	0	1,994	100	100	98
Larutan umpan campuran									
4	1	1	100	0	0,035	1,821	100	96,5	98,2
7	1	1	100	0	0	2,193	100	100	97,8
9	1	1	100	0	0	1,451	100	100	98,6

Gambar 9. Perbandingan Profil *Relative Flux* Umpan Tunggal dan Campuran pada (a) pH 4 (b) pH 7 (c) pH 9

Dari tabel 1 dapat dilihat bahwa membran NF270 mampu menyisihkan 100% kandungan Cs dari umpan tunggal

dan campuran pada semua kondisi air limbah, baik asam, netral, maupun basa. Sedangkan kandungan Sr dari umpan tunggal tidak dapat disisihkan dengan sempurna pada kondisi air limbah dengan pH 4, namun dapat direjeksi keseluruhannya pada pH 7 dan pH 9. Penyisihan Cs dan Sr yang tinggi pada pH 7 dan pH 9 disebabkan oleh titik isoelektrik dari membran NF270 yang berada pada pH 3,2 (Dalwani, 2011). Ketika berada pada pH di atas titik pH isoelektrik, muatan membran akan menjadi lebih negatif. Tingginya muatan negatif membran pada kondisi operasi tersebut, akibatnya ion Cs^+ dan Sr^{2+} mengalami *electrostatic attraction* dengan permukaan membran sehingga kedua ion tersebut tidak dapat lolos ke aliran permeat.

Rejeksi Sr yang rendah pada pH 4 dapat dijelaskan dengan peristiwa degradasi oksidatif permukaan membran oleh asam nitrat, yang dihasilkan dari reaksi antara stronsium nitrat dan hidrogen klorida (persamaan 1). Sebagaimana telah dijelaskan pada subbab sebelumnya, akibat dari degradasi oksidatif ini adalah membesarnya pori membran sehingga retensi Sr pada membran tidak sempurna.

Surfaktan dari air limbah radioaktif dapat disisihkan hingga 98,6%. Pada surfaktan, mekanisme penyisihan yang terjadi adalah pemisahan yang disebabkan oleh perbedaan ukuran pori membran dengan berat molekul dari surfaktan tersebut. Tween 80 yang digunakan untuk merepresentasikan surfaktan memiliki berat molekul (BM) 1310 gram/mol (=1310 Da) sehingga dapat tertahan pada permukaan membran NF270 yang hanya

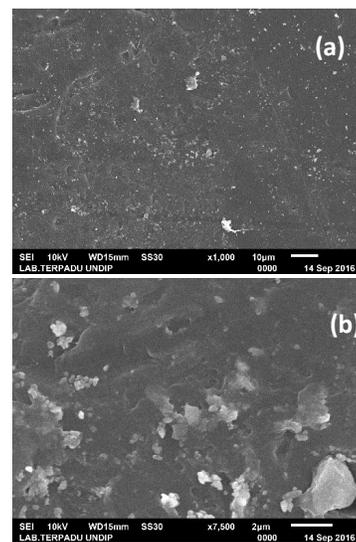
memiliki *molecular weight cut-off* (MWCO) sebesar 180 Da.

Dari tabel 1 juga terlihat bahwa penyisihan kandungan Cs, Sr, dan surfaktan memiliki persentase yang tinggi pada larutan umpan campuran. Hal ini dapat terjadi karena keberadaan surfaktan pada larutan umpan campuran, yang berfungsi sebagai “pengikat” baik untuk Cs maupun Sr dan membentuk senyawa kompleks dengan ukuran molekul yang besar, sehingga dapat lebih banyak tertahan pada membran.

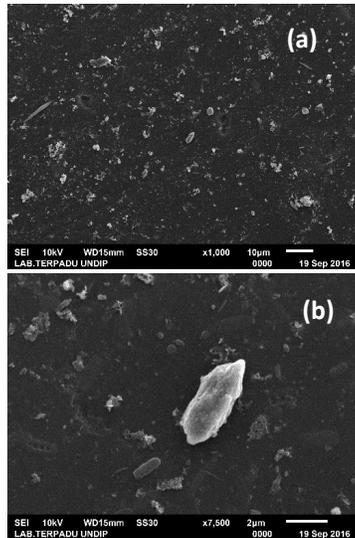
3.5 Karakteristik Membran NF270

3.5.1 Karakterisasi Membran NF270 dengan SEM

Karakterisasi membran dengan SEM bertujuan untuk menganalisis bentuk dan perubahan morfologi permukaan membran sebelum dan setelah digunakan untuk filtrasi. Gambar 10 menunjukkan membran NF270 sebelum dilakukan filtrasi dan gambar 11 merupakan membran NF270 setelah dilakukan filtrasi Cs, Sr, dan surfaktan.



Gambar 10. Hasil Uji SEM Membran NF270 Sebelum Filtrasi dengan perbesaran (a) 1000x (b) 7500x

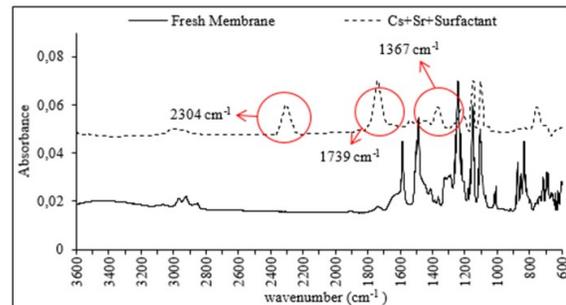


Gambar 11. Hasil Uji SEM Membran NF270 Setelah Filtrasi Umpam Campuran Cs+Sr+Surfaktan dengan perbesaran (a) 1000x (b) 7500x

Dari kedua hasil SEM di atas, tampak perbedaan antara penampakan permukaan membran NF270 sebelum dengan membran NF270 setelah digunakan untuk filtrasi. Perbedaan tersebut ditunjukkan dengan adanya formasi senyawa kompleks misel-metal yang menutupi pori membran. Seperti yang telah dijelaskan pada subbab sebelumnya, reaksi antara surfaktan dengan Cs dan Sr akan menghasilkan senyawa kompleks tersebut. Bentuk senyawa kompleks ini dapat dilihat secara jelas pada gambar 11 (b).

3.5.2 Karakterisasi Membran NF270 dengan FTIR

Karakterisasi dengan FTIR ini bertujuan untuk menganalisis peristiwa *fouling* yang terjadi pada saat filtrasi dengan mengetahui gugus fungsi yang terdepositasi pada permukaan membran. Pada gambar 12 berikut ditampilkan perbandingan hasil FTIR membran NF270 yang belum digunakan dan membran NF270 dengan umpam campuran Cs, Sr, dan Surfaktan.



Gambar 12. Hasil Uji FTIR Membran NF270 dengan Umpam Surfaktan Tunggal dan Umpam Cs+Sr+Surfaktan

Gambar di atas menunjukkan spektrum yang berbeda-beda antara *fresh membrane* dengan membran yang telah digunakan untuk menyisihkan larutan umpam campuran yang mengandung senyawa Tween 80 yaitu $C_{64}H_{124}O_{26}$. Perbedaan tersebut ditunjukkan dengan munculnya puncak (*peak*) baru. *Peak* baru muncul pada panjang gelombang 2304 cm^{-1} yang menunjukkan gugus fungsi C-H, 1739 cm^{-1} yang menunjukkan gugus fungsi C=O, dan 1367 cm^{-1} yang menunjukkan gugus fungsi C-O.

4. Kesimpulan

Membran NF270 memberikan hasil *flux* yang tinggi untuk Cs, Sr, surfaktan baik dalam umpam tunggal. Untuk Cs dan

Sr, semakin tinggi pH larutan maka semakin rendah tekanan operasi yang dibutuhkan untuk memperoleh *flux* yang tinggi serta pH 4 menghasilkan *flux* tertinggi pada semua tekanan. Sedangkan untuk surfaktan, tekanan optimum yang dibutuhkan setiap larutan berbeda-beda, namun pH 9 menghasilkan *flux* tertinggi pada semua tekanan. *Flux* yang dihasilkan dari uji menggunakan umpan campuran lebih rendah dibandingkan hasil *flux* dengan uji menggunakan umpan tunggal.

Membran NF270 mampu merejeksi 100% Cs dari larutan umpan tunggal Cs dan larutan umpan campuran pada semua kondisi pH. Sr pada pH 4 tidak dapat direjeksi secara sempurna, yaitu hanya 63,2% dari larutan umpan tunggal Sr dan 96,5% dari larutan umpan campuran. Sedangkan kandungan surfaktan pada larutan umpan tunggal surfaktan dan larutan umpan campuran dapat direjeksi hingga 98%.

Membran NF270 mengalami perubahan karakteristik setelah digunakan untuk memfiltrasi umpan tunggal dan umpan campuran yang mengandung Cs, Sr, dan surfaktan. Perubahan karakteristik tersebut terlihat pada hasil pengujian membran menggunakan SEM dan FTIR.

Referensi

Adamo, M., Dick, L. W., Qiu, D., Lee, A. H., Devincenis, J., & Cheng, K. C. (2010). A simple reversed phase high-performance liquid chromatography method for polysorbate 80 quantitation in monoclonal antibody drug products. *Journal of*

Chromatography B, 878(21), 1865-1870.

Bacchin, P., Aimar, P., & Field, R. W. (2006). Critical and sustainable fluxes: theory, experiments and applications. *Journal of Membrane Science*, 281(1), 42-69.

Baker, R. W. (2004). *Membrane technology*. John Wiley & Sons, Inc.

Belfort, G., Davis, R. H., & Zydney, A. L. (1994). The behavior of suspensions and macromolecular solutions in crossflow microfiltration. *Journal of Membrane Science*, 96(1-2), 1-58.

Braeken, L., Ramaekers, R., Zhang, Y., Maes, G., Van der Bruggen, B., & Vandecasteele, C. (2005). Influence of hydrophobicity on retention in nanofiltration of aqueous solutions containing organic compounds. *Journal of Membrane Science*, 252(1), 195-203.

Butterman, W. C.; Brooks, W. E. & Reese, Jr., R. G. (2004). "Mineral Commodity Profile: Cesium" (PDF). United States Geological Survey. Retrieved, 12-27.

Cheryan, M. (1998). *Ultrafiltration and microfiltration handbook*. CRC press.

Childress, A. E., & Elimelech, M. (2000). Relating nanofiltration membrane performance to membrane charge (electrokinetic) characteristics. *Environmental Science & Technology*, 34(17), 3710-3716.

Crabtree, R. H. (2009). *The organometallic chemistry of the transition metals*. John Wiley & Sons.

- Cucakovich, N. B. (1971). Determination of Tween 80 in tissue culture media, vaccines, and related products. *Analytical biochemistry*, 40(1), 183-186.
- Dalwani, M. R. (2011). *Thin film composite nanofiltration membranes for extreme conditions*. University of Twente.
- Dang, T. T. H., Li, C. W., & Choo, K. H. (2016). Comparison of low-pressure reverse osmosis filtration and polyelectrolyte-enhanced ultrafiltration for the removal of Co and Sr from nuclear plant wastewater. *Separation and Purification Technology*, 157, 209-214.
- Evangelou, V. P. (1998). *Environmental soil and water chemistry: principles and applications* (No. 631.455 E6).
- Fang, X., Xu, Z., Luo, Y., Ren, L., & Hua, W. (2016). Removal of Radionuclides from Laundry Wastewater Containing Organics and Suspended Solids Using Inorganic Ion Exchanger. *Procedia Environmental Sciences*, 31, 375-381.
- Federation, W. E., & American Public Health Association. (1998). Standard methods for the examination of water and wastewater. *American Public Health Association (APHA): Washington, DC, USA*.
- Ferella, F., Prisciandaro, M., & De Michelis, I. (2007). Removal of heavy metals by surfactant-enhanced ultrafiltration from wastewaters. *Desalination*, 207(1), 125-133.
- Gherasim, C. V., Hancková, K., Palarčík, J., & Mikulášek, P. (2015). Investigation of cobalt (II) retention from aqueous solutions by a polyamide nanofiltration membrane. *Journal of Membrane Science*, 490, 46-56.
- Griffin, W. C. (1946). Classification of surface-active agents by "HLB". *J Soc Cosmetic Chemists*, 1, 311-326.
- International Atomic Energy Agency. 2009. *Classification of Radioactive Waste*. Vienna
- Kallioinen, M., & Nyström, M. (2008). Membrane surface characterization. *Advanced membrane technology and applications*, 841-877.
- Kamaraj, R., & Vasudevan, S. (2015). Evaluation of electrocoagulation process for the removal of strontium and cesium from aqueous solution. *chemical engineering research and design*, 93, 522-530.
- Kaner, R. (2003). C&EN: It's Elemental: The Periodic Table—Cesium.
- Koros, W. J., Ma, Y. H., & Shimidzu, T. (1996). Terminology for membranes and membrane processes (IUPAC Recommendations 1996). *Pure and Applied Chemistry*, 68(7), 1479-1489.
- Li, N. N., Fane, A. G., Ho, W. W., & Matsuura, T. (Eds.). (2011). *Advanced membrane technology and applications*. John Wiley & Sons.
- Lin, Y. L., Chiang, P. C., & Chang, E. E. (2007). Removal of small trihalomethane precursors from

- aqueous solution by nanofiltration. *Journal of Hazardous materials*, 146(1), 20-29.
- Lee, C. P., Kuo, Y. M., Tsai, S. C., Wei, Y. Y., Teng, S. P., & Hsu, C. N. (2007). Numerical analysis for characterizing the sorption/desorption of cesium in crushed granite. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 275(2), 343-349.
- Mänttari, M., Pihlajamäki, A., & Nyström, M. (2006). Effect of pH on hydrophilicity and charge and their effect on the filtration efficiency of NF membranes at different pH. *Journal of Membrane Science*, 280(1), 311-320.
- Mohammad, A. W., Teow, Y. H., Ang, W. L., Chung, Y. T., Oatley-Radcliffe, D. L., & Hilal, N. (2015). Nanofiltration membranes review: Recent advances and future prospects. *Desalination*, 356, 226-254.
- Mudler, M. (1996). Basic Principles of Membrane Technology. *Kluwer Academic, Dordrecht*.
- Ojovan, M. I., & Lee, W. E. (2013). *An introduction to nuclear waste immobilisation*. Newnes.
- Ozaki, H., Sharma, K., & Saktaywin, W. (2002). Performance of an ultra-low-pressure reverse osmosis membrane (ULPROM) for separating heavy metal: effects of interference parameters. *Desalination*, 144(1), 287-294.
- Paria, S., & Khilar, K. C. (2004). A review on experimental studies of surfactant adsorption at the hydrophilic solid-water interface. *Advances in colloid and interface science*, 110(3), 75-95.
- Platt, S., Nyström, M., Bottino, A., & Capannelli, G. (2004). Stability of NF membranes under extreme acidic conditions. *Journal of membrane science*, 239(1), 91-103.
- Radiman, C. L., Yuliany, Y., & Suendo, V. (2009). Pengaruh Media Perendam Terhadap Permeabilitas Membran Polisulfon. *Jurnal Matematika & Sains*, 7(2), 77-83.
- Rahman, R. O., Ibrahim, H. A., & Hung, Y. T. (2011). Liquid radioactive wastes treatment: a review. *Water*, 3(2), 551-565.
- Rana, D., Matsuura, T., Kassim, M. A., & Ismail, A. F. (2013). Radioactive decontamination of water by membrane processes—a review. *Desalination*, 321, 77-92.
- Schäfer, A. I., Fane, A. G., & Waite, T. D. (2005). *Nanofiltration: principles and applications*. Elsevier.
- Shon, H. K., Phuntsho, S., Chaudhary, D. S., Vigneswaran, S., & Cho, J. (2013). Nanofiltration for water and wastewater treatment—a mini review. *Drinking Water Engineering and Science*, 6(1), 47-53.
- Singh, A., Mishra, V. K., Patel, S. K., Sheikh, S., Sadhu, K., & Courey, N. K. (2010). Effect of surfactant on Two immiscible liquid by Mansingh Survisometer. *Int. J. of Pharmacy and Life sciences*, 1(3), 182-187.
- Siringi, D. O., Home, P., Chacha, J. S., & Koehn, E. (2006). Is electrocoagulation (EC) a solution to

- the treatment of wastewater and providing clean water for daily use. *Journal of Engineering and Applied Sciences*, 7, 197-204.
- Stuart, B. (2004). *Infrared spectroscopy*. John Wiley & Sons, Inc.
- Susanto, Heru. 2011. *Teknologi Membran*. Semarang: Badan Penerbit Universitas Diponegoro
- Yuan, C. L., Xu, Z. Z., Fan, M. X., Liu, H. Y., Xie, Y. H., & Zhu, T. (2014). Study on characteristics and harm of surfactants. *Journal of Chemical and Pharmaceutical Research*, 6(7), 2233-2237.
- Tikilili, P. V., & Chirwa, E. M. N. (2009). Microbial degradation of recalcitrant organics from radioactive waste using indigenous cultures of naphthalene degrading bacteria. *Chem. Eng. Trans*, 18, 845-850.
- Weerasekara, N. A., Choo, K. H., & Choi, S. J. (2013). Metal oxide enhanced microfiltration for the selective removal of Co and Sr ions from nuclear laundry wastewater. *Journal of membrane science*, 447, 87-95.
- Wu, L., Zhang, G., Wang, Q., Hou, L. A., & Gu, P. (2014). Removal of strontium from liquid waste using a hydraulic pellet co-precipitation microfiltration (HPC-MF) process. *Desalination*, 349, 31-38.
- Wuelfing, W. P., Kosuda, K., Templeton, A. C., Harman, A., Mowery, M. D., & Reed, R. A. (2006). Polysorbate 80 UV/vis spectral and chromatographic characteristics—defining boundary conditions for use of the surfactant in dissolution analysis. *Journal of pharmaceutical and biomedical analysis*, 41(3), 774-782.
- Zhang, R., Wang, Y., Ji, Y., Shi, B. J., Zhang, Z. P., Zhang, H. Y., & Wang, Y. M. (2013). Quantitative analysis of oleic acid and three types of polyethers according to the number of hydroxy end groups in Polysorbate 80 by hydrophilic interaction chromatography at critical conditions. *Journal of Chromatography A*, 1272, 73-80.