



PENERAPAN METODE SORPSI SIRKULER BERTAHAP UNTUK MEREDUKSI AKTIVITAS RADIOSTRONSIUM

Sugeng Purnomo, Suryantoro
Pusat Teknologi Limbah Radioaktif-BATAN

ABSTRAK

PENERAPAN METODE SORPSI SIRKULER BERTAHAP UNTUK MEREDUKSI AKTIVITAS RADIOSTRONSIUM. Telah dilakukan percobaan penerapan metode sorpsi sirkuler bertahap untuk mereduksi aktivitas radiostronsium. Percobaan menggunakan kolom sorpsi berukuran diameter 3 cm yang berisi 200 g zeolite alam dengan ukuran butir -25+50 mesh. Larutan umpan sebanyak 4x1000 ml yang terdiri dari 2 seri larutan yang mengandung Sr-90 dengan aktivitas rata-rata 54,65 nCi (larutan 1 dan 2) dan 165,70 nCi (larutan 3 dan 4) dilewatkan melalui kolom dengan kecepatan alir 0,15 ml/menit, beningan yang diperoleh diumpankan kembali setelah dilakukan pembilasan kolom. Cuplikan umpan dan beningan dari setiap loop proses diukur aktivitasnya dengan metoda pencacahan Cerenkov. Pengulangan sebanyak 3 loop proses memberikan capaian pemisahan Sr-90 dari larutan 1 maupun larutan 2 sebesar 96,16 %, sedangkan dari larutan 3 dan 4 dicapai pemisahan 55,06 %.

ABSTRACT

APPLICATION OF GRADUALLY CIRCULAR SORPTION METHOD FOR RADIOSTRONTIUM ACTIVITY REDUCTION. *The experiment on application of gradually circular sorption method for radiostrontium activity reduction has been done. The experiment use 200 g natural zeolite -25+50 mesh in sorption column (ID 3 cm). The feeding solution consist of 4x1000 ml with 2 series of 54,65 nCi (solution 1 and 2) and 165,70 nCi (solution 3 and 4) be passed the column by rate 0,15 ml/min, the outer of solution founded from the column is recirculated to the column again after its rinsing. Samples of the feeding solution and its outer of solution from each process loop are counted by Cerenkov method. Recycling by 3 process-loop, the separation of Sr-90 from solution 1 and 2 achieve of 96,16 %, and from solution 3 and 4 achieve of 55,06 %.*

PENDAHULUAN

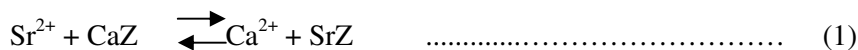
Kebijakan pengolahan limbah radioaktif harus memenuhi pertimbangan aspek tekno-ekonomi sehingga hasil yang dicapai dari operasional pengolahan dapat memenuhi prasyarat teknis sekaligus efisien dalam pembiayaan. Penggunaan material alam sebagai bahan penyerap (sorben) seringkali diterapkan dalam suatu kegiatan pengolahan limbah untuk meminimalisasi pelepasan radioaktivitas ke lingkungan. Salah satu jenis mineral yang banyak dimanfaatkan untuk keperluan tersebut adalah zeolit. Zeolit merupakan mineral aluminosilikat dengan struktur kerangka yang mempunyai banyak rongga dan ditempati kation-kation serta molekul air. Kation-kation dan molekul air tersebut tidak terikat dalam struktur mineral sehingga dapat bergerak bebas dan memungkinkan terjadinya pertukaran kation ataupun dehidrasi *reversible*. Secara kristalografi zeolite berupa kerangka yang dibentuk oleh unit-unit tetrahedron dengan Si atau Al sebagai inti (atom pusat). Semakin banyak tetrahedron berinti Al menyusun suatu kerangka akan menjadikannya cenderung bermuatan negatif dan semakin banyak mengandung kation-kation monovalen/divalen dalam rongga untuk menyeimbangkan muatan. Zeolit dengan karakteristik demikian mempunyai kemampuan yang tinggi dalam hal pertukaran ion.^[3] Zeolit alam dapat ditingkatkan keunggulan sifat-sifatnya melalui substitusi kation-kation yang dikandungnya.

Hasil penelitian terdahulu menunjukkan pemisahan Sr dapat berlangsung secara kumulatif, dengan 17 kali pengumpanan ulang larutan umpan yang mengandung 4 g/liter Sr melalui kolom zeolit, dapat dipisahkan 88% Sr. Untuk melihat apakah pola sorpsi serupa juga terjadi pada konsentrasi *solute* (padatan yang terlarut) yang rendah (seperti halnya keadaan radionuklida di dalam limbah). Untuk dapat diterapkan dalam operasi pengolahan limbah, maka dalam penelitian ini perlu dilakukan percobaan menggunakan larutan umpan yang lebih mendekati karakter limbah radioaktif cair sesungguhnya.

Limbah radioaktif cair dari instalasi nuklir di PPTA Serpong mempunyai aktivitas relatif rendah (10^{-6} Ci/ml). Limbah simulasi dibuat dengan mengencerkan larutan standar Sr-90 sampai pada tingkat radioaktivitas yang masih dapat terukur oleh instrument yang digunakan untuk mengamati pola sorpsi yang terjadi. Atas pertimbangan segi praktis, pencacahan dilakukan dengan metoda Cerenkov menggunakan *Liquid Scintillation Analyzer Tri Carb 1600 TR*. Hasil pengukuran akan menunjukkan kecenderungan penurunan laju cacah bening dari loop ke loop.

DASAR TEORI

Sorpsi Sr oleh zeolit (Ca sebagai *exchangeable cation*) dapat dijelaskan melalui mekanisme pertukaran homovalen biner sebagai berikut:



Dari persamaan reaksi pertukaran tersebut, dapat dirumuskan konstante pertukaran empirik:

$$K_{ex} = \frac{[\text{Ca}^{2+}]}{[\text{Sr}^{2+}]} \left(\frac{\text{SrZ}}{\text{CaZ}} \right)^n \dots\dots\dots (2)$$

[Ca²⁺], [Sr²⁺] = aktivitas molal solute, berupa kation yang dipertukarkan; CaZ, SrZ = fraksi mol kation dalam sorben; n = konstante.

Dengan koefisien aktivitas rasional *solute* pada permukaan sorben λ_{SrZ}, λ_{CaZ} persamaan tersebut dapat ditulis lebih lengkap:

$$K_{ex} = \frac{[\text{Ca}^{2+}]}{[\text{Sr}^{2+}]} \frac{\lambda_{\text{SrZ}}(\text{SrZ})}{\lambda_{\text{CaZ}}(\text{CaZ})} \dots\dots\dots (3)$$

Berdasarkan kaidah pertukaran kation Gibbs-Duhem akan berlaku:

$$(\text{SrZ})d\ln\lambda_{\text{SrZ}} + (\text{CaZ})d\ln\lambda_{\text{CaZ}} = 0 \dots\dots\dots (4)$$

Dengan membagi tiap suku dengan d(CaZ) diperoleh:

$$\begin{aligned} \frac{(\text{SrZ})d\ln\lambda_{\text{SrZ}}}{d(\text{CaZ})} + \frac{(\text{CaZ})d\ln\lambda_{\text{CaZ}}}{d(\text{CaZ})} &= 0 \\ \frac{(\text{SrZ})d\ln\lambda_{\text{SrZ}}}{d(\text{CaZ})} &= -\frac{(\text{CaZ})d\ln\lambda_{\text{CaZ}}}{d(\text{CaZ})} \\ \frac{d\ln\lambda_{\text{SrZ}}}{d(\text{CaZ})} &= -\frac{(\text{CaZ})d\ln\lambda_{\text{CaZ}}}{(\text{SrZ})d(\text{CaZ})} \dots\dots\dots (5) \end{aligned}$$

Kombinasi persamaan 2 dan 3 menghasilkan:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\text{SrZ}}{\text{CaZ}} \right)^n &= \frac{\lambda_{\text{SrZ}}}{\lambda_{\text{CaZ}}} \\ \ln \frac{\lambda_{\text{SrZ}}}{\lambda_{\text{CaZ}}} &= (n-1) \ln \left(\frac{\text{SrZ}}{\text{CaZ}} \right) \dots\dots\dots (6) \end{aligned}$$

Derivasi terhadap CaZ:

$$d\ln\lambda_{\text{SrZ}}d(\text{CaZ}) = (n-1)(\text{SrZ})(\text{CaZ}) + d\ln\lambda_{\text{CaZ}}d(\text{CaZ}) \dots\dots\dots (7)$$

Dengan mengkombinasi persamaan 5 dan 7, selanjutnya

$d\ln\lambda_{SrZ} d(CaZ)$ dieliminir maka akan didapat:

$$d\ln\lambda_{CaZ} = (n-1)d\ln(CaZ) \dots\dots\dots (8)$$

Hasil integrasi persamaan di atas adalah:

$$\lambda_{CaZ} = (CaZ)^{n-1} \dots\dots\dots (9)$$

Hal serupa berlaku untuk SrZ:

$$\lambda_{SrZ} = (SrZ)^{n-1} \dots\dots\dots (10)$$

Harga koefisien aktivitas rasional terhadap fraksi mol terserap untuk pertukaran biner dengan nilai n antara 0,8 dan 2,0 dapat dilihat pada **Gambar 1**. Gambar tersebut menunjukkan bahwa untuk konstante pertukaran tertentu dimana n kurang dari satu, koefisien aktivitas rasional komponen minor akan jauh lebih besar daripada satu. Sebaliknya jika n lebih dari satu, adsorpsi komponen minor meningkat sejalan dengan konsentrasi komponen tersebut mendekati nol. Gambar tersebut juga menunjukkan bahwa jika SrZ sama atau kurang dari 5% CaZ dan [Ca] relatif tetap maka $\lambda_{CaZ} \approx (CaZ) \approx 1$. Isotherm Freunlich merumuskan fungsi pertukaran sebagai:

$$(SrZ) = K[Sr]^n \dots\dots\dots (11)$$

Pada konsentrasi Sr yang sangat kecil dan n = 1, persamaan isotherm Langmuir ekivalen dengan persamaan Freunlich.^[4]

$$N_{SrZ} = N_{max} b \frac{C}{(1+bC)} \dots\dots\dots (12)$$

N_{SrZ} = berat Sr diserap setiap satuan berat sorben, N_{max} = berat maksimum Sr dapat diserap oleh setiap satuan berat sorben, b = konstanta, C = konsentrasi Sr dalam larutan.

Untuk konsentrasi Sr sangat rendah:

$$N_{SrZ} = N_{max} bC \dots\dots\dots (13)$$

Dalam bentuk persamaan linier-logaritmik, pertukaran Ca-Sr, dapat dirumuskan:

$$\log \frac{[Ca]}{[Sr]} = \log K_{ex} + n \log \left(\frac{CaZ}{SrZ} \right) \dots\dots\dots (14)$$

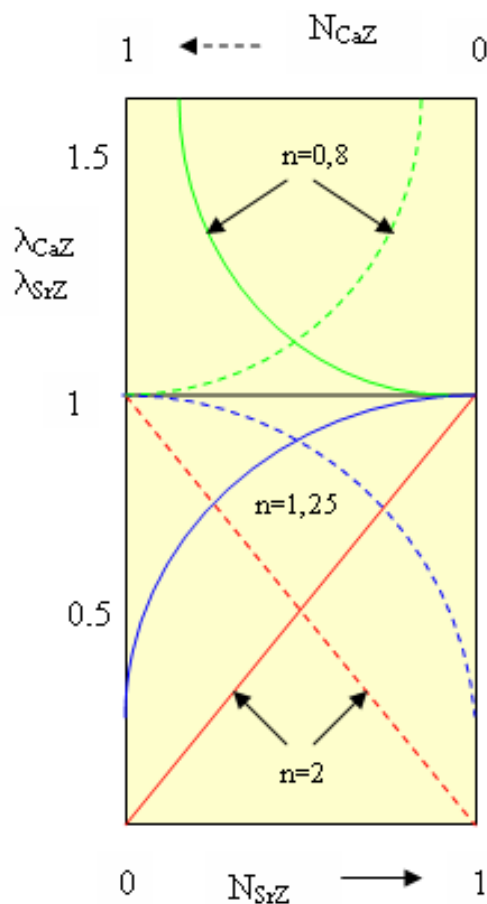
TATA KERJA

Bahan

Larutan standar Sr-90 0,1 $\mu\text{Ci/ml}$, $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ dan Akuades.

Peralatan

Alat penggerus (*grinder*), alat pengayak (*screener*), kolom sorpsi dan *liquid Scintillation Analyzer* 1200TR



Gambar 1. Fungsi koefisien aktivitas rasional λ_{SrZ} terhadap berat Sr diserap setiap satuan berat sorben untuk pertukaran homovalen biner.^[4]

Langkah Kerja

A. Persiapan kolom sorpsi

1. Ditimbang 1000 g zeolit, ditempatkan dalam *grinder*, kemudian dilakukan penggerusan 5 menit sehingga diperoleh kehalusan serbuk yang dikehendaki.
2. Serbuk zeolit ditempatkan dalam *screener* dengan ukuran screen bervariasi, kemudian dilakukan pengayakan selama 20 menit.

3. Ditimbang 200 g zeolit ukuran -25+50 mesh, dimasukkan ke dalam kolom sorpsi. Ditambahkan 200 ml akuades untuk pencucian. Pencucian diulang 3 kali sehingga zeolit cukup bersih.
4. Zeolit dimasukan dalam kolom yang dibuat sedemikian kompak tanpa ada udara yang terjebak.

B. Persiapan larutan umpan Sr-90

1. Ditimbang $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ secukupnya (mengandung 4 g Sr), ditempatkan dalam *beaker glass*, dilarutkan dengan 100 ml akuades.
2. Dipipet 10 ml standar Sr-90, ditambahkan ke dalam *beaker glass* di atas. Ditambah akuades sampai 1000 ml, diaduk dan dicuplik 10 ml kedalam *vial* gelas.

C. Percobaan sorpsi

1. Larutan umpan dimasukkan ke dalam labu *reservoir* di bagian atas kolom sorpsi, dialirkan ke dalam kolom dengan membuka kran sampai tinggi larutan di atas lapisan zeolit sama dengan tinggi lapisan zeolit.
2. Larutan umpan dialirkan ke kolom dengan membuka kran pada kolom dan pada reservoir sehingga diperoleh laju alir kira-kira 0,15 ml/menit. Beningan ditampung dalam *beaker glass*. Setelah selesai, beningan dicuplik 10 ml ke dalam *vial* gelas.
3. Kolom dibilas dengan 200 ml akuades. Beningan dimasukkan ke labu reservoir (sebagai umpan loop 2).
4. Langkah di atas diulangi sampai beberapa kali (loop) sehingga diperkirakan sorpsi Sr-90 kumulatif mencapai maksimum.
5. Dilakukan pengukuran laju cacah cuplikan umpan dan seluruh cuplikan beningan menggunakan LSA 1600TR.

D. Pembuatan kurva kalibrasi laju cacah terhadap aktivitas

1. Larutan Sr-90 diencerkan berseri 10x, 100x, 1.000x, 10.000x.
2. Masing-masing larutan tersebut dipipet 10,0 ml ke dalam vial, ditempatkan dalam variset dan dilakukan pencacahan menggunakan LSA 1600TR.
3. Dibuat kurva korelasi laju cacah terhadap aktivitas Sr-90 lengkap dengan persamaan regresinya (kurva standar).

E. Analisis Sr-90 dalam cuplikan larutan umpan dan beningan

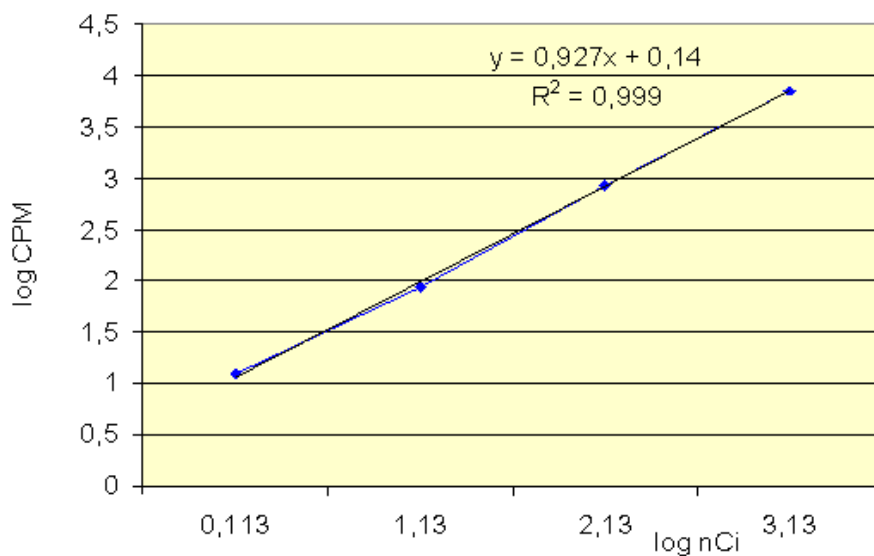
1. Dilakukan pengukuran laju cacah cuplikan umpan dan seluruh cuplikan beningan menggunakan LSA 1600TR.
2. Dihitung aktivitas Sr-90 dalam umpan dan cuplikan beningan pada tiap loop berdasarkan persamaan regresi kurva standar.
3. Digambarkan profil sorpsi Sr-90.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Dari percobaan yang dilakukan diperoleh data korelasi laju cacah terhadap aktivitas Sr-90 pada **Tabel 1** dan kemudian dibuat kurva standar (kalibrasi) korelasi aktivitas Sr-90 dengan laju cacahnya pada **Gambar 2**.

Tabel 1. Korelasi laju cacah terhadap aktivitas larutan standar Sr-90

No	Aktivitas larutan standar Sr-90 (nCi)	Log nCi	Laju Cacah Sr-90			CPM Rerata	Log CPM Rerata
			CPM	Blangko	CPM neto		
1.	1.340	3,13	7.215,75	45,40	7.170,35	7,163,48	3,855
			7.217,55	46,40	7.171,15		
			7.190,95	42,00	7.148,95		
2.	134	2,13	892,10	45,40	846,70	848,02	2,93
			896,40	46,40	850,00		
			889,35	42,00	847,35		
3.	13,4	1,13	133,95	45,40	88,55	87,08	1,94
			130,00	46,40	83,60		
			131,10	42,00	89,10		
4.	1,34	0,113	57,05	45,40	11,65	12,61	1,10
			57,00	46,40	10,60		
			57,60	42,00	15,60		



Gambar 2. Korelasi aktivitas Sr-90 dg laju cacah

Dari hasil pengukuran laju cacah cuplikan umpan dan beningan dapat disusun data pada **Tabel 2**.

Tabel 2. Aktivitas umpan dan beningan dalam percobaan sorpsi Sr-90 menggunakan zeolit

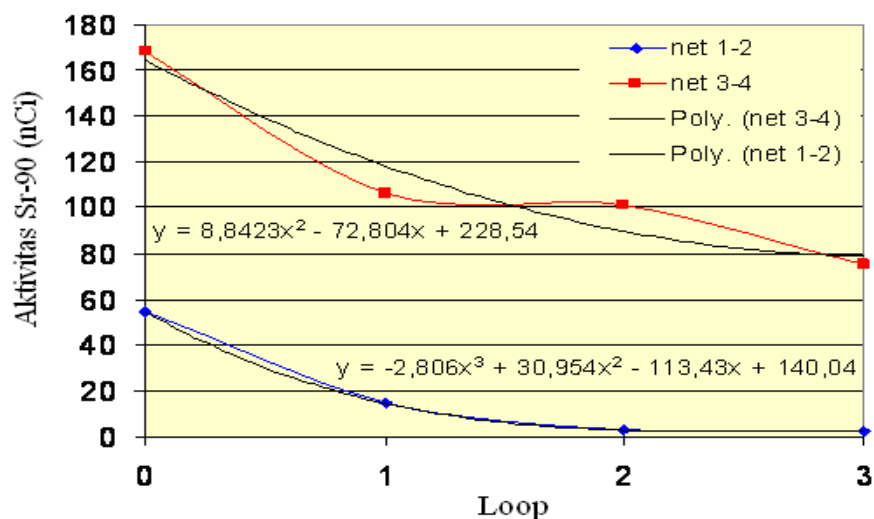
loop	CPM				Aktivitas	
	seri 1	seri 2	rerata 1-2	rerata 1-2 neto	nCi	% Sr-90 terpisah
0	103,37	103,14	103,255	56,33	54,65	0
1	63,25	64,13	63,69	16,76	14,78	72,96
2	50,90	49,86	50,38	3,45	2,70	95,06
3	50,70	48,65	49,675	2,75	2,10	96,16

loop	CPM				Aktivitas	
	seri 3	seri 4	rerata 3-4	rerata 3-4 neto	nCi	% Sr-90 terpisah
0	206,93	201,95	204,44	157,51	165,70	0
1	152,43	148,63	150,53	103,6	105,45	36,36
2	145,55	146,58	146,065	99,14	100,56	39,31
3	122,85	121,08	121,965	75,04	74,46	55,06

Laju cacah blangko: 46,93 CPM (ekivalen 44,88 nCi Sr-90)

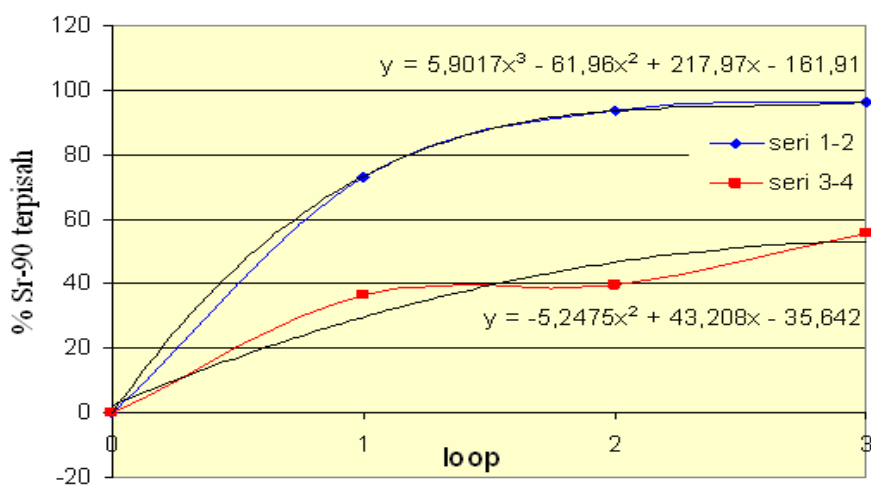
Untuk mempermudah melihat profil sorpsi Sr-90 oleh zeolit, dapat digambarkan kurva penurunan aktivitas Sr-90 maupun kurva % Sr-90 kumulatif yang terpisahkan sebagai fungsi loop sorpsi.

Dengan memperhatikan kurva aktivitas Sr-90 dalam umpan maupun beningan dari loop ke loop berikutnya (**Gambar 3**), tampak bahwa aktivitas radiostronsium cenderung menurun secara bertahap. Besarnya penurunan aktivitas sampai pada loop tertentu proporsional dengan aktivitas umpan. Gradien kurva berangsur menurun sampai akhirnya mendekati datar, hal ini menunjukkan bahwa sorpsi Sr-90 oleh zeolite berangsur mengalami penurunan seiring dengan berkurangnya *exchangeable cation*. Sekali larutan umpan selesai dilewatkan melalui kolom, Sr-90 terbagi dengan proporsi tertentu dalam zeolite dan beningan. Pembilasan kolom dengan “sedikit” akuades dan kecepatan alir lebih besar memungkinkan terjadinya desorpsi Sr-90 dari kolom sekaligus mengembalikan kondisi zeolit untuk proses sorpsi pada loop berikutnya.



Gambar 3. Profil penurunan aktivitas Sr-90 hasil sorpsi

Kemampuan kolom zeolit menyerap dapat dipertahankan mendekati keadaan awal manakala pembilasan kolom dapat meregenerasi *exchangeable cation*. Hal ini akan optimal manakala digunakan larutan pembilas yang mengandung *exchangeable cation* dengan konsentrasi cukup tinggi sehingga pada pembilasan tersebut terjadi desorpsi Sr-90 dari zeolit sekaligus mengembalikan keberadaan *exchangeable cation* di dalamnya.



Gambar 4. Profil sorpsi Sr-90 kumulatif

Profil sorpsi Sr-90 kumulatif (Gambar 4) memperlihatkan bahwa sorpsi berlangsung lebih baik untuk konsentrasi atau radioaktivitas umpan yang lebih rendah. Dengan demikian proses sorpsi akan efektif bila diterapkan untuk tujuan menurunkan radioaktivitas limbah cair dengan aktivitas rendah. Apabila pengolahan limbah dilakukan dengan menerapkan beberapa proses secara bertingkat, maka proses sorpsi baik ditempatkan sebagai proses akhir sebelum efluen hasil olahan didispersi ke lingkungan.

KESIMPULAN

Data percobaan yang diperoleh menunjukkan bahwa metode sorpsi sirkuler bertahap dapat meningkatkan jumlah kumulatif Sr-90 yang terpisahkan dari larutan umpan atau limbah radioaktif. Prosentase pemisahan yang dicapai berkaitan dengan konsentrasi / aktivitas radionuklida di dalam limbah tersebut. Pada konsentrasi / aktivitas Sr-90 yang rendah maka sorpsi akan berlangsung sangat efektif.

DAFTAR PUSTAKA

1. CHARLES A. WENTZ, "Hazardous Waste Management", Mc Graw-Hill Publishing Company, 1989.
2. MICHAEL D. LA GRECA, et al., "Hazardous Waste Management", Mc Graw-Hill, International Edition, 2001.
3. TSITSISHVILLI, G.V. et al., "Natural Zeolites", Ellis Horwood Limited, England, 1992.
4. LANGMUIR D. "The Power Exchange Function: A General Model for Metal Adsorption onto Geological Materials", in "Adsorption From Aqueous Solutions" by Tewari, P.H., Plenum Press, New York, 1981.