

## PROFIL PENYISIHAN Cs-137 DAN Co-60 DALAM FILTRAT LIMBAH KIMIA RADIOAKTIF CAIR DENGAN PROSES PENUKAR ION DAN KOAGULASI

Sugeng Purnomo

Pusat Teknologi Limbah Radioaktif, BATAN, Gd. 50, Kawasan Puspiptek Serpong  
sugengp@batan.go.id

### ABSTRAK

PROFIL PENYISIHAN Cs-137 DAN Co-60 DALAM FILTRAT LIMBAH KIMIA RADIOAKTIF CAIR DENGAN PROSES PENUKAR ION DAN KOAGULASI. Limbah kimia radioaktif cair (LKRC) adalah limbah radioaktif cair (LRC) yang mengandung konstituen kimia dalam konsentrasi relatif tinggi. Limbah ini umumnya berasal dari kegiatan yang menggunakan banyak bahan kimia di laboratorium atau instalasi nuklir. Sampai tahun 2012 terkumpul 2600 liter LKRC di Pusat Teknologi Limbah Radioaktif dan telah dilakukan pengolahan tahap awal dengan proses pengendapan menggunakan soda kaustik. Endapan hidroksida logam yang terbentuk kemudian difiltrasi vakum sehingga terpisahkan 700 liter *sludge* endapan dan 1900 liter filtrat. Filtrat LKRC masih mengandung radioaktivitas 5,18 E-5 mCi/L yang berasal dari Cs-137 dan Co-60 serta radionuklida lainnya. Untuk menurunkan radioaktivitas sampai di bawah batas kriteria limbah, maka dilakukan percobaan penyisihan radionuklida tersebut dengan proses penukar ion dan koagulasi. Laju alir disesuaikan sehingga memberikan waktu tinggal 9,6 menit dalam bed resin. Untuk menyisihkan Cs-137 dalam tiap liter filtrat LKRC dibutuhkan 200 g resin Lewatit monoplus S 108. Penyisihan Co-60 dapat dicapai dengan koagulasi menggunakan ferosulfat 30 mmol/L pada pH 8 dan 10 mmol/L pada pH 12.

Kata kunci: penyisihan Cs-137 dan Co-60, filtrat, penukar ion, koagulasi.

### ABSTRACT

*ELIMINATION PROFILE OF Cs-137 AND Co-60 IN CHEMICAL LIQUID RADIOACTIVE WASTE FILTRATE BY ION EXCHANGE AND COAGULATION PROCESS. Chemical liquid radioactive waste (CLRW) is liquid radioactive waste (LRW) containing chemical constituent in relatively high concentration. This waste usually generated by the activity which use a large chemicals in laboratory or nuclear installation. Until 2012 was collected 2600 litre CLRW in Centre for Radioactive Waste Technology and had been treated first by precipitation process use caustic soda. Metal hydroxide precipitate than vacuum-filtrated so 700 litres precipitate sludge and 1900 filtrate were separated. CLRW filtrate still contain radioactivity 5,18 E-5 mCi/L from Cs-137 and Co-60 and other radionuclide. To decreasing radioactivity until lower than waste criteria, so the experiment by ion exchange and coagulation was carry out. Flowrate was set according to give contact time 9,6 minutes in bed resin. To eliminate Cs-137 in each litre CLRW filtrate need 200 g Lewatit monoplus S 108 resin. Elimination of Co-60 can be done by coagulation with ferrosulphate 30 mmole/L at pH 8 and 10 mmole/L at pH 12.*

*Keywords: elimination of Cs-137 and Co-60, filtrate, ion exchange, coagulation.*

### PENDAHULUAN

Limbah cair yang berasal dari Laboratorium radioaktif pada umumnya merupakan LKRC. Demikian pula proses produksi I-131 menyisakan limbah yang mengandung kromium konsentrasi tinggi. Sampai tahun 2012 tersimpan 2600 liter LKRC yang berasal dari berbagai laboratorium di BATAN, termasuk dari PT. Tjiwi Kimia dan Lembaga Eijkman RSCM. LKRC tersebut mempunyai pH < 1 dan membentuk endapan bila dinetralisasi, sehingga diperlukan proses pengendapan dalam pengolahannya.

Pengendapan hidroksida merupakan metode yang praktis dan memberi dua manfaat sekaligus yaitu *setting* pH limbah

dan mengendapkan kromium yang terkandung dan berasal dari proses produksi I-131. Dengan menambahkan larutan NaOH 40 % akan terbentuk endapan kromium dan berbagai hidroksida logam, diharapkan radionuklida dapat terjerap dan terkonsentrasi dalam endapan. Pengolahan tahap berikutnya adalah pemisahan endapan dengan filtrasi vakum. Filtrat yang masih mengandung radioaktivitas di atas batas aman pembuangan efluen perlu diolah lanjut[1].

Percobaan evaporasi skala Laboratorium terhadap filtrat LKRC menunjukkan proses pendidihan yang berbeda dengan limbah cair umumnya. Setelah beberapa saat evaporasi

berlangsung, proses pendidihan dan pembentukan destilat melambat dan akhirnya tampak adanya gejala filtrat yang mencapai kondensor sehingga destilat terkontaminasi. Saat percobaan diteruskan fenomena perlambatan pendidihan dan pembentukan destilat terus pula berlangsung dan akhirnya terbentuk tekanan berlebih yang ditandai dengan lepasnya tutup labu destilasi.



Keadaan khusus dari filtrat LKRC yang sangat berpengaruh terhadap proses penukar ion adalah konsentrasi kation dan anion yang relatif tinggi. Keberadaan Na<sup>+</sup> akan menggeser kesetimbangan ke kiri yang berarti menurunkan kemampuan resin menangkap radionuklida, dari kondisi ini dapat diprediksi dalam pengolahan akan membutuhkan lebih banyak resin[2,4,5]. Keberhasilan penyisihan cobalt dan cesium diamati dengan analisis radioaktivitas menggunakan *Multichannel Analyzer*.

Selain proses penukar ion juga dilakukan percobaan pengolahan dengan



Karena cenderung bersifat elektropositif maka flok tersebut akan menarik ion-ion negatif sehingga membentuk mantel negatif dan mempunyai kemampuan mengikat kation di sekitarnya dan membentuk agregat sehingga akhirnya mengendap. Dalam larutan yang cenderung bersifat basa pembentukan flok hidroksida semakin cepat dan diharapkan efektifitas koagulasi radionuklida juga meningkat.

**METODOLOGI**

**Alat/Bahan**

Untuk mengamati karakteristik filtrat LKRC serta penyisihan Cs-137 dan Co-60 di dalamnya, penelitian ini menggunakan instrumen analisis Spektrofotometer, Spektrofotometer Serapan Atom, *Multichannel Analyzer*, pH dan Konduktometer. Bahan yang digunakan antara lain Resin Lewatit Monoplus S 108, ferrosulfat heksahidrat, amonium heptamolibdat, natrium vanadat, barium klorida, gliserin, n-naftil etilen diamin diklorida.

Alternatif pengolahan filtrat LKRC dilakukan dengan proses penukar ion menggunakan resin Lewatit monoplus S 108 dalam operasi kolom. Dengan *setting* laju alir dan pH filtrat LKRC sebagai umpan, diamati kondisi yang memberikan faktor dekontaminasi paling baik. Pengikatan radionuklida yang diharapkan adalah seperti reaksi kesetimbangan berikut [1,2,3]:



proses koagulasi. Koagulasi merupakan pengolahan kimia yang diterapkan secara luas dalam pengolahan limbah cair. Seperti halnya logam-logam berat, radionuklida dapat mengendap bersama saat berlangsungnya agregasi flok dari bahan koagulan. Ferrosulfat heksahidrat atau garam tunjung termasuk bahan koagulan yang umum digunakan, koagulan ini dalam larutan akan mengalami oksidasi dan hidrolisis membentuk flok hidroksida besi sesuai reaksi[1]:



**Karakterisasi Filtrat Limbah Kimia Radioaktif Cair**

Untuk mengetahui karakteristik filtrat LKRC dilakukan analisis kation (Cr, Cu, Fe, Ni, Co, Zn, Ca, Mg) menggunakan Spektrofotometer Serapan Atom, analisis anion (PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>) menggunakan Spektrofotometer dan Ion-meter, analisis radioaktifitas menggunakan *Multichannel Analyzer*, serta pengukuran sifat kimia fisik sampel (pH, dan daya hantar listrik). Dengan mengetahui konsentrasi kation dalam sampel FLKRC dapat diperkirakan massa ekivalen resin lewatit yang dibutuhkan untuk proses pengolahan.

**A. Percobaan Penukar Ion**

Ditimbang 200 g resin Lewatit monoplus S 108 kemudian dimasukkan dalam kolom kromatografi (bahan gelas diameter 4 cm, tinggi 60 cm) menggunakan corong dan dibantu semprot akuades sehingga membentuk bed resin yang terendam sempurna dalam kolom, lalu kolom tersebut

diklem pada statif. Dituang filtrat LKRC melalui corong dan kertas saring kedalam labu corong pisah (*separation funnel*) di atas kolom. Kran pada corong pisah dibuka penuh kran pada bagian bawah kolom dibuka sehingga debit efluen FLKRC keluar kolom 24 mL/menit. Efluen ditampung dalam 5 s/d 10 wadah 500 mL. Seluruh efluen yang diperoleh dan FLKRC di-counting menggunakan *Multichannel Analyzer*. Ditentukan aktifitas dan jenis radionuklida dalam sampel. Percobaan serupa diulangi menggunakan 400 g resin dan debit efluen 48 mL/menit.

#### B. Percobaan Koagulasi

Filtrat LKRC dikondisikan pada pH 8 dan 12 ditambah larutan ferrosulfat sehingga memberikan konsentrasi 10, 20, 30, 40, dan 50 mmol/L, dilakukan pengadukan 10 menit dengan 120 rpm dan 50 menit dengan 60 rpm. Flok endapan disaring, filtrat di-counting menggunakan *Multichannel Analyzer*.

#### HASIL DAN PEMBAHASAN

Data analisis kation-anion dan radioaktifitas serta pengukuran parameter kimia fisik FLKRC ditunjukkan pada Tabel 1. Dalam data tersebut tampak bahwa FLKRC mengandung beragam konstituen kimia dalam jumlah relatif tinggi, khususnya kation mencapai 9,379 miligram-ekivalen per liter. Dalam proses penyisihan Cs-137 dan Co-60 menggunakan resin kation Lewatit Monoplus S 108, keberadaan kation ini akan sangat membebani resin. Selain daripada itu adanya beragam anion juga memberi pengaruh sehingga mengurangi efektifitas pertukaran ion yang diharapkan.

Percobaan penukar ion skala lab menggunakan kolom resin berukuran diameter 4 cm dan tinggi 60 cm. laju alir ditentukan sesuai dengan kondisi operasi yang direkomendasikan untuk Lewatit monoplus S 108. Untuk mengamati konsentrasi aktifitas filtrat LKRC sebelum dan setelah proses pertukaran ion digunakan *Multichannel Analyzer* seperti ditunjukkan pada Gambar 1.

Tabel 1. Karakteristik FLKRC

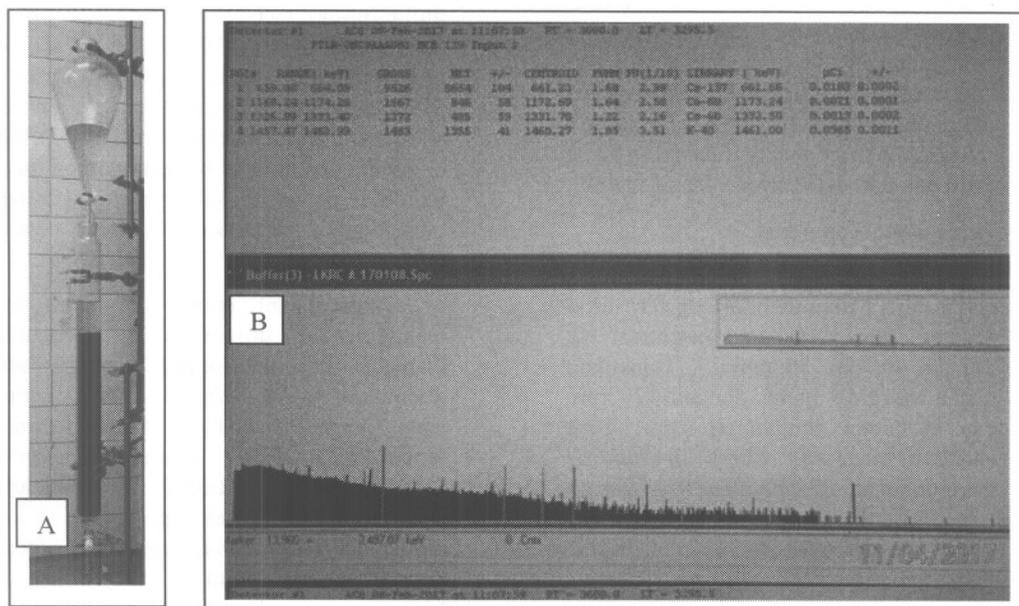
Parameter	Pengukuran/analisis			meq/L
	1	2	3	
pH	8,17	8,51	7,79	
DHL	47,2 mS/cm	45,9 mS/cm	48,6 mS/cm	
Cs-137	3,82E-5 mCi/L	4,98E-5 mCi/L	4,54E-5 mCi/L	
Co-60	0,76E-5 mCi/L	0,54E-5 mCi/L	0,64 E-5 mCi/L	
Cu	18,64 mg/L			0,570
Fe	2,649 mg/L			0,142
Cr	4,265 mg/L			0,246
Zn	3,100 mg/L			0,095
Ca	73,7 mg/L			3,678
Co	1,301 mg/L			0,044
Ni	3,254 mg/L			0,111
Mg	56,500 mg/L			4,648
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	57,862 mg/L			
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	23,413 g/L			
NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	6,84 mg/L			
Cl <sup>-</sup>	875 mg/L			
Total				9,379

Percobaan pengolahan menggunakan kolom penukar ion menunjukkan terikatnya Cs-137 oleh resin sampai diperoleh 2 x 500 mL efluen

dengan aktifitas di bawah klirens, berikutnya Cs-137 mulai muncul dalam efluen ke 3 dan kian meningkat konsentrasinya pada efluen ke 4 dan 5.

Hal ini berarti bahwa pada dasarnya Cs-137 dapat terikat oleh resin Lewatit walaupun resin segera jenuh karena beban kation yang tinggi dalam filtrat LKRC. Untuk Co-60 menunjukkan tidak ada penangkapan yang berarti oleh resin, efluen pertama telah mengandung Co-60

sedikit di bawah konsentrasi dalam filtrate LKRC, kemudian pada efluen ke 2 dan seterusnya meningkat dan relatif menyamai konsentrasi influen. Hal ini seperti ditunjukkan pada Tabel 2 dan Gambar 2.



Gambar 1. (A) Kolom penukar ion skala lab, (B)  $\gamma$  spectrum sampel filtrat LKRC

Pada percobaan dengan 400 g Lewatit, diperoleh 4 x 500 mL efluen dengan konsentrasi Cs-137 di bawah klirens. Hal ini memperjelas bahwa penyisihan radiocesium sebanding dengan jumlah resin yang digunakan. Sedangkan untuk Co-60 mempunyai kecenderungan yang sama dengan percobaan pertama yaitu tidak menunjukkan pengikatan oleh

resin karena konsentrasi  $\text{Na}^+$  yang sangat tinggi dalam filtrat LKRC (dari soda kaustik yang digunakan pada proses pengendapan LKRC) mendorong reaksi kesetimbangan kearah kiri (persamaan reaksi no. 2) dan memberikan efek yang lebih besar dalam hal menurunnya ikatan resin dan Co-60 dengan muatan  $2^+$  dibanding terhadap Cs-137[2,4].

Tabel 2. Konsentrasi Aktifitas filtrat LKRC dan efluennya (massa lewatit 200 g)

Sampel	Konsentrasi radionuklida, $\mu\text{Ci/mL}$	
	Cs-137	Co-60
Filtrate LKRC	$3,82 \times 10^{-5}$	$0,76 \times 10^{-5}$
Efluen 1	$< 2,00 \times 10^{-7}$	$0,50 \times 10^{-5}$
Efluen 2	$< 2,00 \times 10^{-7}$	$0,76 \times 10^{-5}$
Efluen 3	$1,80 \times 10^{-5}$	$0,74 \times 10^{-5}$
Efluen 4	$1,82 \times 10^{-5}$	$0,74 \times 10^{-5}$
Efluen 5	$3,14 \times 10^{-5}$	$0,74 \times 10^{-5}$

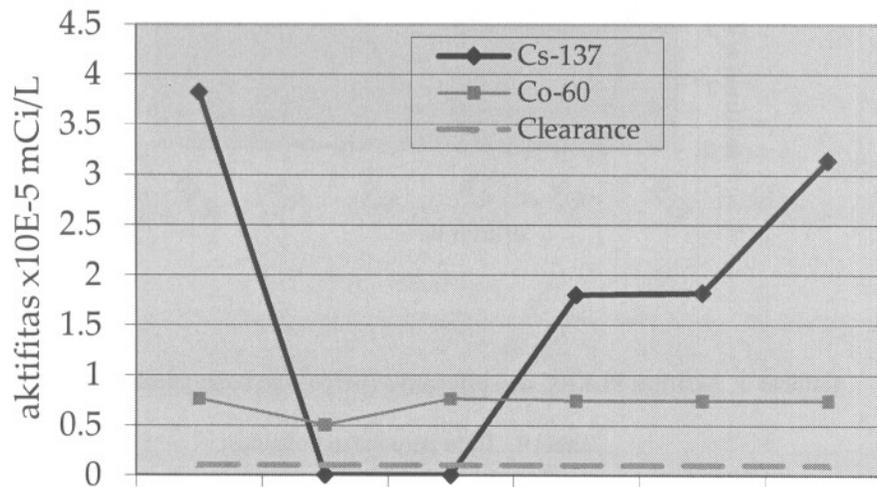
Pada Gambar 2 dan 3 tampak profil kurva *breakthrough* Cs-137; saat awal pengumpulan FLKRC melalui bed resin

diperoleh efluen yang bebas radiocesium. Setelah resin mulai jenuh maka konsentrasi aktifitas Cs-137 dalam efluen

berangsur meningkat sampai akhirnya sama dengan aktifitas awal. Pada Gambar 3, dengan mengamati lebih banyak sampel memberikan profil daerah *breaktrough* yang lebih jelas.

Percobaan koagulasi menggunakan ferrosulfat memberikan hasil penyisihan Cs-137 dan Co-60 yang ditunjukkan Tabel 4. Profil penyisihan cesium dan cobalt dapat dilihat pada Gambar 4 yang menunjukkan bahwa konsentrasi aktivitas Cs-137 dalam limbah, khususnya untuk

pH 8 menurun secara perlahan sesuai dengan dosis koagulan. Pada percobaan dengan pH 12 konsentrasi Cs-137 menurun tajam pada dosis 10 mmol/L dan kemudian menurun perlahan seperti halnya pada pH 8. Hal ini menunjukkan bahwa pada pH 12 yang berarti konsentrasi ion hidroksil lebih tinggi menyebabkan pembentukan flok feri hidroksida dan agregasinya lebih cepat, begitu pula dengan pembentukan mantel negatif ion hidroksida dalam agregat flok.



Gambar 2. Aktifitas FLKRC dan efluennya (percobaan menggunakan 200 g lewatit)

Dengan demikian maka efek elektrostatis yang ditimbulkan terhadap Cs-137 dalam bentuk kation cesium menjadi lebih besar dan koagulasi berlangsung lebih efektif.

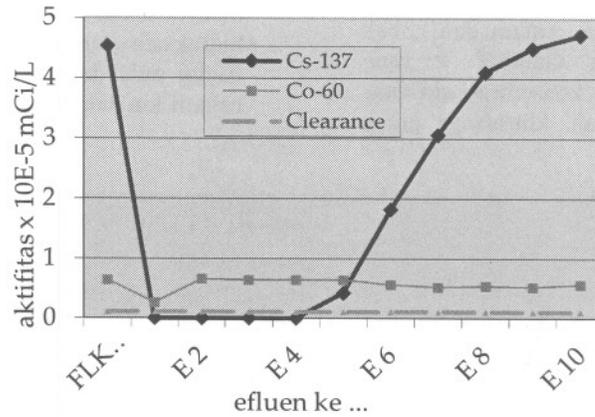
Namun demikian kedua seri percobaan tersebut belum dapat menurunkan konsentrasi Cs-137 sampai di bawah klierens.

Tabel 3. Konsentrasi Aktifitas FLKRC dan efluennya (massa lewatit 400 g)

Sampel	Konsentrasi radionuklida, $\mu\text{Ci}/\text{mL}$	
	Cs-137	Co-60
Filtrate LKRC	$4,54 \times 10^{-5}$	$0,64 \times 10^{-5}$
Efluen 1	$< 2,00 \times 10^{-7}$	$0,26 \times 10^{-5}$
Efluen 2	$< 2,00 \times 10^{-7}$	$0,66 \times 10^{-5}$
Efluen 3	$< 2,00 \times 10^{-7}$	$0,64 \times 10^{-5}$
Efluen 4	$< 2,00 \times 10^{-7}$	$0,64 \times 10^{-5}$
Efluen 5	$0,42 \times 10^{-5}$	$0,64 \times 10^{-5}$
Efluen 6	$1,82 \times 10^{-5}$	$0,56 \times 10^{-5}$
Efluen 7	$3,06 \times 10^{-5}$	$0,52 \times 10^{-5}$
Efluen 8	$4,10 \times 10^{-5}$	$0,54 \times 10^{-5}$
Efluen 9	$4,50 \times 10^{-5}$	$0,52 \times 10^{-5}$
Efluen 10	$4,72 \times 10^{-5}$	$0,56 \times 10^{-5}$

Untuk Co-60 dengan konsentrasi awal yang memang lebih rendah dari Cs-137, mengalami penurunan hingga di bawah klierens dengan konsentrasi koagulan 10 mmol/L untuk pH 12 dan 30 mmol/L untuk pH 8. Secara umum terdapat pola penyisihan yang identik di antara kedua

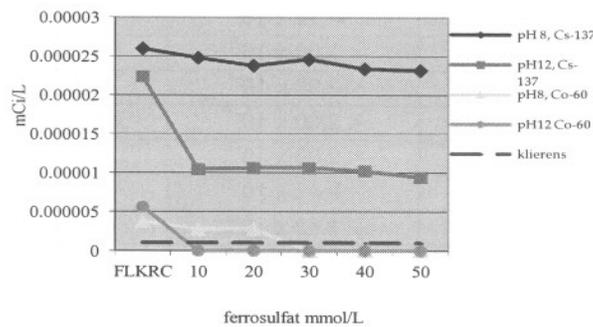
radionuklida tersebut. Pada pH 8 terjadi penurunan perlahan sesuai dosis koagulan dan pada pH 12 berlangsung penurunan konsentrasi cukup tajam dengan dosis koagulan 10 mmol/L dan kemudian penurunan perlahan dengan penambahan dosis koagulan.



Gambar 3. Aktifitas FLKRC dan efluennya (percobaan menggunakan 400 g lewatif)

Tabel 4. Data percobaan koagulasi

Koagulan	Cs-137, mCi/L		Co-60, mCi/L	
	pH 8	pH 12	pH 8	pH 12
Kondisi Awal	0,0000260	0,0000224	0,0000038	0,0000056
10 mmol/L	0,0000248	0,0000104	0,0000028	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>
20 mmol/L	0,0000238	0,0000106	0,0000028	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>
30 mmol/L	0,0000246	0,0000106	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>
40 mmol/L	0,0000234	0,0000102	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>
50 mmol/L	0,0000232	0,0000094	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>	< 2,00 x 10 <sup>-7</sup>



Gambar 4. Profil penyisihan Cs-137 dan Co-60

3. Dibandingkan volume limbah yang diolah, volume resin relative lebih kecil sehingga masih ada reduksi volume.

## KESIMPULAN

Cs-137 dalam FLKRC dapat disisihkan dengan proses penukar ion menggunakan resin Lewatit monoplus S 108 sampai di bawah nilai klirens. Resin yang dibutuhkan sebanyak 200 g per liter filtrat LKRC karena kandungan beragam konstituen kimia yang sangat membebani resin. Co-60 dapat disisihkan dengan proses koagulasi menggunakan ferrosulfat dengan dosis 30 mmol/L pada pH 8 dan 10 mmol/L pada pH 12. Pengolahan filtrat LKRC dapat dilakukan dengan kedua proses tersebut secara bertahap.

## DAFTAR PUSTAKA

1. G.H. Jeffery, J. Bassett, J. Mendham, R.C. Denney, *Vogel's Textbook Of Quantitative Chemical Analysis Fifth Edition*, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1989.
2. C.E. Harland, *Ion Exchange Theory and Practice, 2nd ed.*, The Royal Chemistry Society, Cambridge, UK, 1994.
3. Friedrich Helfferich, *Ion Exchange*, Dofer Publications Inc., New York, 1995.
4. M.J. Slater, *Principle of Ion Exchange Technology*, Butterworth-Heinemann Ltd., Oxford, 1991.
5. M. Douglas LeVan, Giorgio Carta, Carmen M. Yon, *Adsorption and Ion Exchange* The McGraw-Hill Companies Inc., 1999.

## Tanya Jawab

Penanya : Rosika K.

Pertanyaan :

1. Apa jenis resin yang digunakan ?
2. Berapa batas radioaktivitas radionuklida yang sudah disisihkan yang diijinkan ?
3. Apakah penambahan resin, koagulasi tidak menambah volume limbah ?

Jawaban :

1. Menggunakan resin lewatit monoplus S 108.
2. Untuk dilepas le lingkungan, tingkat radioaktivitas harus kurang dari  $10^{-6}$  mCi/L.