

DESTRUKSI ASAM NITRAT DALAM EFLUEN PROSES DENGAN MENGUNAKAN BERMACAM-MACAM DESTRUKTAN

Ghaib Widodo⁽¹⁾ dan Bambang Herutomo⁽¹⁾

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN)-BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang 15310

E-mail : ghaibwidodo@yahoo.com

(Makalah diterima : 31-8-2010, disetujui : 29-9-2010)

ABSTRAK

DESTRUKSI ASAM NITRAT DALAM EFLUEN PROSES DENGAN MENGGUNAKAN BERMACAM-MACAM DESTRUKTAN. Telah dilakukan percobaan destruksi asam nitrat dalam efluen proses menggunakan aneka destruktan. Tujuan percobaan ini yaitu agar konsentrasi asam nitrat dalam efluen proses yang berada di IEFE (Instalasi Elemen Bakar Eksperimental) menurun, sehingga dapat diumpankan dan memenuhi syarat proses ekstraksi/*stripping*. Ke empat destruktan dipakai sebagai parameter yaitu formaldehida, asam formiat, sukrosa/gula, dan etanol. Proses percobaan dimulai volume destruktan dari 4, 6, 8, 10, hingga 12 mL (interval volume 2 mL), kemudian dimasukkan ke dalam efluen yang mengandung asam nitrat tinggi, pada suhu 98°C. Gas NO_x (NO₂, NO, N₂O, N₂) dan gas CO₂ (kalau timbul) yang ke luar dari proses destruksi ditrap ke labu berisi aquades secara bertingkat. Hasil percobaan diperoleh konsentrasi asam nitrat terbaik diperoleh sebesar 3,54 M dengan destruktan yang cocok adalah formaldehida.

Kata Kunci : Destruksi, asam nitrat, formaldehida, asam formiat, sukrosa, etanol.

ABSTRACT

DESTRUCTION NITRIC ACID IN THE EFFLUENT PROCESS USING WITH VARIOUS DESTRUCTANS. The experiment have been destruction nitric acid in the effluent process with destructans. Tujuan experiment is the concentrasion nitric acid in the effluent process in EFEI (Elemen Fuel Experimental Installation) droup out, so that fresh feed and processes extraction/*stripping*. Fours at destructans a carry out that parameter is formaldehyde, formic acid, sucrossa, dan ethanol. Start experiment processes volume destructan from 4, 6, 8, 10, so 12 mL (interval volume 2 mL), kemudian dimasukkan ke dalam efluen yang mengandung asam nitrat tinggi, pada suhu 98°C. The NO_x gas (NO₂, NO, N₂O, N₂) dan CO₂ (if timbul) gas yang ke luar dari proses destruksi ditrap ke labu berisi aquades secara bertingkat. Hasil percobaan diperoleh konsentrasi asam nitrat terbaik diperoleh sebesar 3,54 M dengan destruktan formaldehida.

Keyword : Destruction, nitric acid, formaldehyde, formid acid, sucrossa, ethanol.

PENDAHULUAN

Kegiatan penelitian dan kegiatan analisis sebagai pendukung penelitian maupun tugas rutin bidang bahan bakar nuklir (B3N) – di gedung IEBE (Instalasi Elemen Bakar Eksperimental) – Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN), Serpong masih terus dilaksanakan. Selama kegiatan itu terus berlangsung, maka tidak dapat dihindarkan terjadinya penumpukan sejumlah efluen proses. Dari sekian proses gagal produksi dan analisis yang dilakukan tidak lepas dari penggunaan reagen asam nitrat berkonsentrasi tinggi sebagai pelarut. Karena telah banyak diketahui bahwa, gagal uranium oksida itu lebih mudah larut dalam asam nitrat dan di samping itu pemakaian reagen dalam analisis paling banyak menggunakan asam nitrat juga. Pemakaian reagen asam nitrat di samping sebagai pelarut dimaksudkan agar efluen proses diperoleh seragam, sehingga memudahkan cara pengelolaan dan penanganannya.

Percobaan destruksi asam nitrat ini bertujuan agar konsentrasi asam nitrat yang tinggi di dalam efluen proses di IEBE dapat menurun sehingga dapat memenuhi persyaratan proses ekstraksi/*stripping*.

Selama proses pelarutan uranium, baik untuk analisis tugas rutin, dan penelitian terus berlangsung, maka efluen yang mengandung uranium dengan keasaman yang cukup tinggi, akan terkumpul semakin banyak. Apabila efluen ini dapat diupayakan segera dikelola dan ditangani dengan baik, timbulnya kekhawatiran (*risk management*) dapat dihilangkan. Diketahui bahwa, asam

nitrat dengan konsentrasi tinggi mempunyai sifat korosif, yang mengakibatkan penampung efluen akan terkorosi (terjadi kebocoran) atau pecah karena tidak mampu menahan beban^[1].

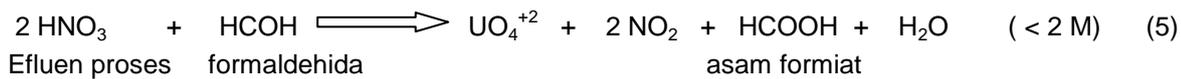
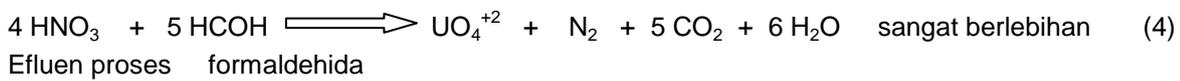
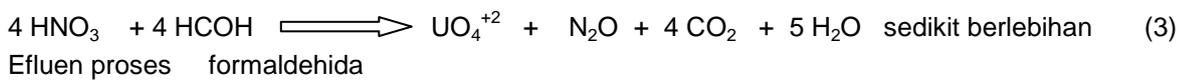
Untuk mengantisipasi hal itu, perlu diupayakan metoda percobaan yang dapat diterapkan untuk menurunkan konsentrasi asam nitrat di dalam efluen proses tersebut. Metode percobaan yang dipakai yaitu efluen proses yang mengandung uranium berkeasaman tinggi (HNO_3) dilakukan percobaan dengan menambahkan destruktan/pengurai asam nitrat. Percobaan yang dilakukan mengadopsi PUSTAKA yang ada yaitu dengan menambahkan 4 (empat) destruktan yaitu (1) formadehida (HCOH), (2) Asam formiat (HCOOH), (3) Sukrosa/gula, ($\text{C}_{12}\text{H}_{24}\text{O}_{11}$) dan (4) Etanol ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$)^[4,5,6]. Adapun fungsi daripada masing-masing destruktan ini adalah untuk memecahkan ikatan HNO_3 yang ada dalam efluen proses. Hasil yang diperoleh dari percobaan ini adalah efluen mengandung uranium dengan konsentrasi asam nitrat rendah yang dapat diumpankan kembali sebagai bahan bakar.

TEORI

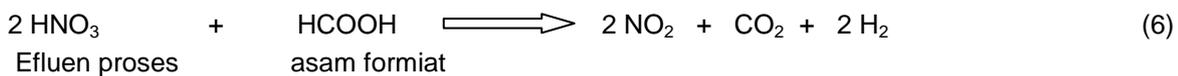
Reaksi antara destruktan dengan asam nitrat dalam efluen proses dapat berlangsung seperti pada reaksi (1) sampai dengan (16), dan terjadinya reaksi antara formaldehida, asam formiat, etanol, dan sukrosa/gula cair sebagai destruktan/pengurai dengan HNO_3 dalam efluen proses berlangsung sangat baik dan bergantung keasamanannya^[5,6,7,8].

Reaksi destruksi HNO_3 dalam efluen menggunakan formaldehida^[4,5,6,9,10,11,12,13] :

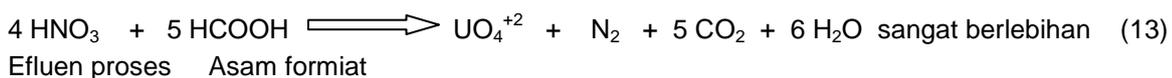
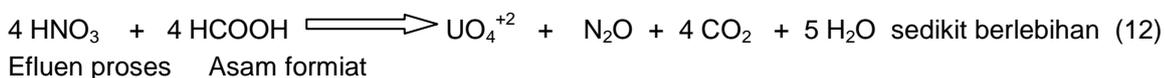
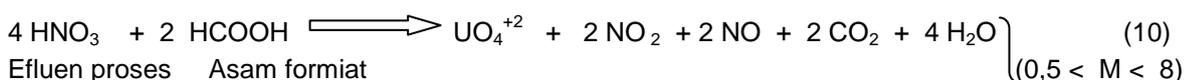
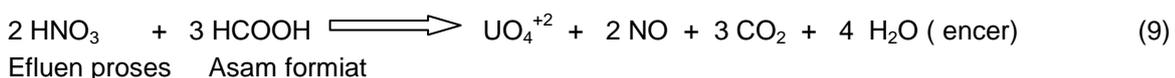
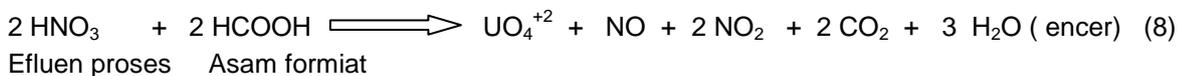
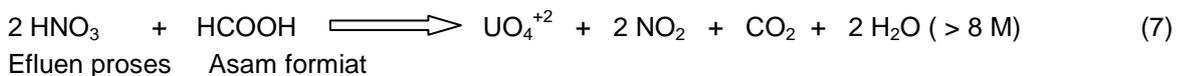




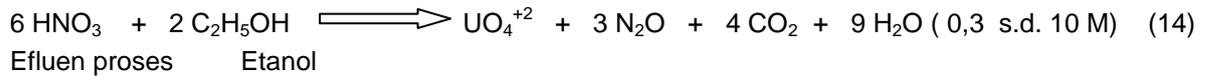
Apabila keasaman HNO_3 kurang dari 2M, maka reaksi yang terbentuk disamping gas NO_2 terbentuk juga asam formiat (HCOOH) yang pada akhirnya akan bereaksi juga dengan efluen, seperti reaksi (6).



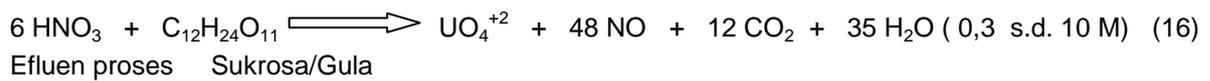
Reaksi destruksi HNO_3 dalam efluen menggunakan asam formiat^[4,5,6,7] :



Reaksi destruksi HNO_3 dalam efluen menggunakan etanol ^[4] :

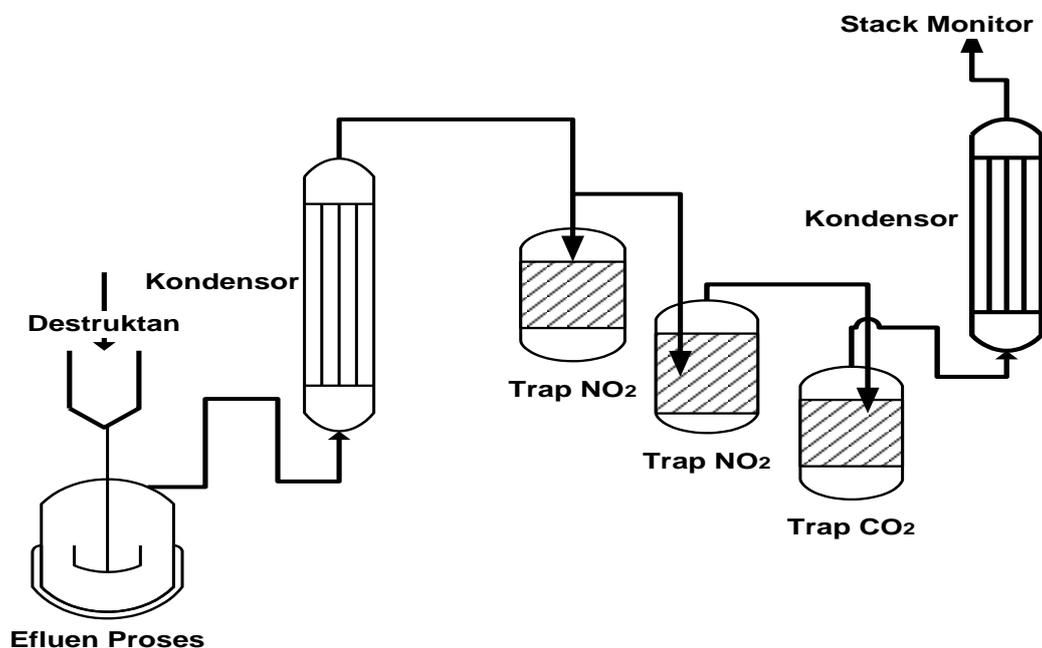


Reaksi destruksi HNO_3 dalam efluen menggunakan sukrosa/gula ^[4] :



Adanya pemecahan ikatan HNO_3 di dalam efluen proses oleh bermacam-macam destruktan ini akan diperoleh uranium yang

mempunyai kadar asam nitrat yang rendah yaitu di bawah 4 M yang memenuhi untuk proses ekstraksi/*stripping* ^[1,3].



Gambar 1 : Percobaan destruksi HNO_3 dalam efluen proses dengan menggunakan bermacam-macam destruktan

TATAKERJA

1. Bahan

Efluen proses , aquades, $\text{Ca}(\text{OH})_2$, formaldehida, asam formiat, etanol, sukrosa/gula cair, air sabun, segenap bahan kimia analisis.

2. Alat

Labu leher tiga, thermometer, corong pisah, kondensator, statif klem, adapter, gabus/karet sumbat, pipet ukur, lak ban, botol sampling bertutup, segenap peranti analisis

3. Cara kerja

Alat proses dirangkai dan dipastikan tidak terjadi kebocoran, tes kebocoran dilakukan cara mengalirkan udara tekan pada rangkaian alat, kemudian pada setiap sambungan disemprotkan air sabun/tepol. Langkah-langkah kerja adalah sebagai berikut :

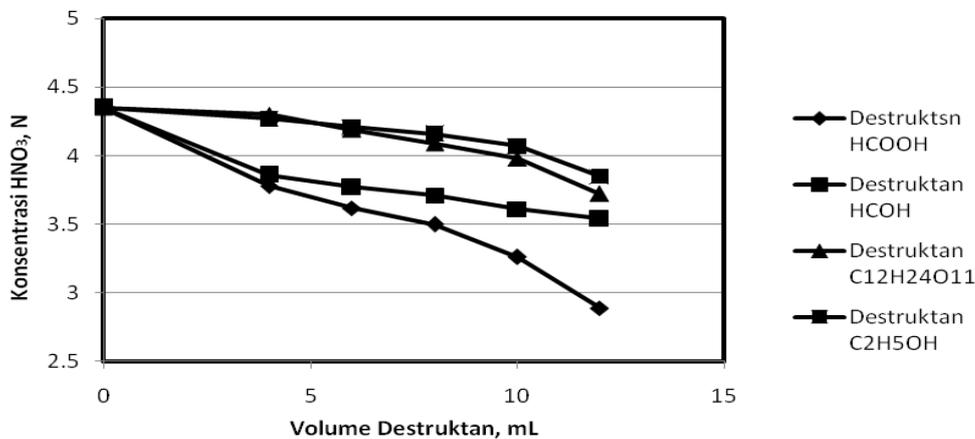
- Sebelum uji fungsi dilaksanakan, air dialirkan terlebih dahulu ke dalam kondensor sebagai pendingin, kemudian uji fungsi alat dilakukan dengan memasukkan asam nitrat ke dalam labu tanpa uranium (*blank*). Dipanaskan hingga suhu mencapai titik didih asam nitrat dengan melihat unjuk kerja suhu pada termometer (90°C), kemudian salah satu destruktan misal formaldehida diteteskan hingga volume 4 mL.
- Suhu proses peruraian asam nitrat terjadi pada suhu 98°C diikuti dengan keluarnya gas NO_x (NO_2 , NO , N_2O , N_2) yang berwarna coklat mengalir memenuhi seluruh rangkaian alat yang dilewatinya seperti adapter, kondensor (alat pendingin), melewati adapter lagi kemudian dijebak dalam labu yang berisi aquades. Kelebihan gas NO_x yang tidak terikat masuk ke jebakan dalam labu berikutnya (bertingkat). Jebakan selanjutnya berupa labu berisi air kapur $\text{Ca}(\text{OH})_2$

yang berfungsi apabila terdapat gas CO_2 yang lewat. Gas yang terlepas didinginkan dan dialirkan ke *stack* monitor.

- Pekerjaan seperti pada no 2 dan 3 dilakukan untuk percobaan efluen proses yang mengandung uranium dan kadar asam yang tinggi. Sebanyak 250 mL efluen proses yang mengandung uranium berasam tinggi dimasukan dalam labu. Dengan memvariasi volume destruktan yaitu mulai dari 4, 6, 8, 10, hingga 12 mL.
- Setelah selesai percobaan pada setiap variasi volume destruktan, kemudian masing-masing dilakukan analisis konsentrasi HNO_3 kemudian hasil dibuat tabel.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Percobaan destruksi asam nitrat efluen proses dilakukan untuk mengetahui tingkat penurunan konsentrasi asam nitrat dalam efluen, akibat pengurai ikatan asam nitrat karena adanya penambahan bermacam-macam destruktan yang ditambahkan ke dalam efluen tersebut. Hasil analisis penurunan konsentrasi HNO_3 pada variasi volume bermacam-macam destruktan ditunjukkan dalam Tabel 1 pada lampiran dan Gambar 2.



Gambar 2 : Korelasi konsentrasi asam nitrat terhadap volume destruktan

Dari Tabel 1 pada Lampiran dan Gambar 2 akibat dari penambahan volume destruktan mengakibatkan penurunan konsentrasi asam nitrat. Hal tersebut disebabkan karena asam nitrat yang berada dalam efluen proses disdestruksi/diuraikan oleh adanya destruktan yang membentuk gas NO_x , air, dan gas CO_2 kalau ada reaksi lanjut (bergantung konsentrasi asam nitratnya), seperti ditunjukkan pada reaksi (1) sampai dengan (16). Namun karena HNO_3 dalam efluen proses hasil analisis mempunyai konsentrasi 4,35 M berarti HNO_3 dalam efluen proses tersebut diperkirakan kurang lebih akan mengikuti terdestruksi menjadi gas NO_2 , air, dan gas CO_2 seperti pada reaksi (2, 10, 11, 14, 15, dan 16). Karena adanya destruksi tersebut, maka semakin lama konsentrasi HNO_3 dalam efluen proses semakin menurun, hal itu diakibatkan oleh penambahan volume destruktan ke dalamnya. Seperti pada Gambar 2 masing-masing destruktan menunjukkan hasil analisis konsentrasi HNO_3 dalam efluen proses menurun berarti percobaan ini berhasil. Konsentrasi HNO_3 ditunjukkan masing-masing pada penambahan volume formaldehida yang menurun dari 4,35 M menjadi 3,54 M, untuk penambahan volume asam formiat menurun dari 4,35 M menjadi 2,89 M. Demikian juga pada penambahan volume etanol dan sukrosa juga menunjukkan penurunan konsentrasi HNO_3 . Dari keempat destruktan hasil penurunan konsentrasi HNO_3 paling memenuhi proses ekstraksi/*stripping* sebesar 3 – 3,5 M yaitu destruktan formaldehida sebesar 3,53 M, merupakan konsentrasi HNO_3 yang terbaik dan mendekati persyaratan/memenuhi^[1,3].

Sementara itu, untuk variasi destruktan asam formiat hasil analisis konsentrasi HNO_3 kurang memuaskan, karena konsentrasi HNO_3 menurun jauh sampai 2,89 M. Hal ini akan mengakibatkan proses ekstraksi/*stripping* tidak berhasil,

karena pada proses ekstraksi/*stripping* harus mempunyai konsentrasi HNO_3 berkisar antara 3 – 3,5 M sebagai *salting out agent*^[3]. Oleh karena itu pemakaian asam formiat dan yang paling banyak dipakai dalam proses pengolahan HLLW (*high level liquid waste*), hal itu sesuai dengan yang disarankan oleh pustaka^[8] dengan syarat kadar uranium didalamnya harus sudah rendah. Karena tidak mengolah lagi uraniumnya.

Untuk variasi 2 destruktan yaitu sukrosa dan etanol yang sebetulnya dapat juga menurunkan konsentrasi HNO_3 dalam efluen proses. Saran pustaka lain^[6,7,8] destruktan sukrosa dan etanol hanya dipakai sebagai alternatif percobaan, karena seperti diketahui pada reaksi (14, 15, dan 16) terjadi destruksi HNO_3 juga. Namun, pada pabrik pengolahan uranium maupun pengolahan limbah skala pabrik belum digunakan secara komersial.

SIMPULAN

Percobaan destruksi asam nitrat dalam efluen proses menggunakan 4 destruktan yaitu formaldehida, asam formiat, etanol, dan sukrosa dapat disimpulkan sebagai berikut : destruktan yang paling cocok untuk mendestruksi asam nitrat adalah formaldehida dengan konsentrasi destruksi asam nitrat, HNO_3 sebesar 3,53 M dan hasil ini yang memenuhi untuk proses ekstraksi/*stripping* yaitu sebesar 3 – 3,5 M.

UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis ucapkan terimakasih yang sebesar-besarnya kepada Yth. Sdri. Nur Fitria Hanggari mahasiswi STTN – BATAN Yogyakarta yang telah ikut membantu pelaksanaan percobaan dan Sdri Ira mahasiswi UNIERSITAS ANDALAS yang telah ikut membantu preparasi analisis, sehingga percobaan ini cepat dapat diselesaikan.

DAFTAR PUSTAKA

1. PT.Batan Teknologi (2005) .Proses Olah Ulang Gagalan Produk (5F)", BT.121 – A01 – 30306, Petunjuk Pelaksanaan.
2. LACHER, J.R., SALZMAN, J.D., and PARK, J. D. (1995) . Dissolving Uranium in Nitric Acid", Chemistry Department, University of Colorado, Boulder, Colo.
3. BONINI, ING., CABREJAS, ING., DE LIO, J.ING., OCCHIO, L., atc., (1998) :Nuclear Fuel Cycle Head-Endenriched Uranium Purification and Conversion into Metal. UAMyCN, Gerencia Centro Atómico Ezeiza, Sao Paulo, Brazil.
4. MISHRA, S., LAWRENCE, F., SREENIVASAN, R, PANDEY, N. K. , MALLIKA, C. , KOGANTI, S. B., and MUDALI, U. K. (2010) . Development of a continuous homogeneous process for denitration by treatment with formaldehyde. Journal of Radioanalytical and nuclear Chemistry , India.
5. WIDODO, G., dan HANGGARI, N.F., (2010) :Pengaruh Formaldehida Terhadap Proses Pemungutan Uranium dan Terhadap Penurunan Konsentrasi Asam Nitrat Dalam Efluen Proses di IEBE. Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir.
6. VANDEGRIFT, G. F., (2000) . Transformation of Urex Effluents to Solid Oxides by Concentration, Denetration, and Calcination. Argonne National Laboratory 9700 South Cass Avenue Argonne II, America.
7. PURROY, D.S., BIRCK, S., CHRISTIANSEN, B., GLATZ, J.P., HOLLAS, S., MALMBEEK, R., ROMER, K., SHEPPLER, C., TEIXEIRA, E., WEERD, W.D., and WINCKEL, S.V. (2000) . Towards a Diamex Process Flowsheet Using High Active Concentrate (HAC). Institute for Transuranium Element, Postfach 2340, 76125 Karlsruhe, Germany.
8. HWANG, D.S., LEE, E.H., KIM, K.W., LEE, K.II., PARK, J.H., YOO, J.H., and PARK, S.J., (1999) . Denetration of Simulated High-Level Liquid Waste by Formic Acid. Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon 305 - 353, Korea.
9. ANANIEV, A. V., BROUDIC, J. -C., and BROSSARD, Ph. (2003). The urea decomposition in the process of the heterogeneous catalytic denitration of nitric acid solutions: Part I. Kinetics of the reaction. IPC RAS, 31, Leninskiy Prospect, 117951 , Moscow, , Russia.
10. COX, J.L., HALLEN, R. T., and LILGA, M. A. (1994) . Thermochemical Nitrate Destruction", Environmental Science Technology, Richland, Washington.
11. HALL, R., PATTON, B.D., and HAAS, P.A., (1985). Reaction of Formaldehyde and Nitric Acid in a Remotely Operated Thermosiphon Evaporator. For Presentation at American Nuclear Sociaety Winter Meeting, Conf. -851115-33, California.
12. EIBLING, R.E. (1993). Nitric Acid - Formaldehyde Compatibility in DWPF. Westinghouse Savannah River Company, WSRC-RP-92-1247, South Carolina.
13. MISHRA, S., LAWRENCE, F., SREENIVASAN, R., PARSDEY, N.K., MALLIKA, C., and KOGANDI, S. B., MUDALL, U.K., (2010). Deleopment of a Continuous Homogeneous Process for Denetration by Treatment With Formaldehyde. Reprocessing Research & Development Division, Indira Gandhi, India.

LAMPIRANTabel 1 : Hasil analisis konsentrasi HNO_3 pada variasi volume destruktan

| Volume HCOH, mL | Konsentrasi HNO_3 , M | Volume HCOOH, mL | Konsentrasi HNO_3 , M | Volume $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$, mL | Konsentrasi HNO_3 , M | Volume $\text{H}_{12}\text{C}_{24}\text{O}_{11}$, mL | Konsentrasi HNO_3 , M |
|-----------------|--------------------------------|------------------|--------------------------------|---|--------------------------------|---|--------------------------------|
| 0 | 4,35 | 0 | 4,35 | 0 | 4,35 | 0 | 4,35 |
| 4 | 3,86 | 4 | 3,78 | 4 | 4,27 | 4 | 4,30 |
| 6 | 3,77 | 6 | 3,62 | 6 | 4,21 | 6 | 4,19 |
| 8 | 3,71 | 8 | 3,50 | 8 | 4,16 | 8 | 4,09 |
| 10 | 3,61 | 10 | 3,26 | 10 | 4,07 | 10 | 3,98 |
| 12 | 3,54 | 12 | 2,89 | 12 | 3,85 | 12 | 3,72 |