

# PENGARUH FORMALDEHIDA TERHADAP PENURUNAN KONSENTRASI ASAM NITRAT DAN KENAIKAN KADAR URANIUM DALAM EFLUEN PROSES DI IEBE

Ghaib Widodo\*, Nur Fitria Hanggari\*\*

\*Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN, Serpong

\*\*Sekolah Tinggi Teknologi Nuklir –BATAN, Yogyakarta

e-mail: ghaibwido@yahoo.com

(Diterima 2-8-2010, disetujui 13-9-2010)

## ABSTRAK

**PENGARUH FORMALDEHIDA TERHADAP PENURUNAN KONSENTRASI ASAM NITRAT DAN KENAIKAN KADAR URANIUM DALAM EFLUEN PROSES DI IEBE.** Telah dilakukan percobaan menurunkan konsentrasi asam nitrat dan menaikkan kadar uranium dalam efluen proses menggunakan formaldehida. Tujuan percobaan ini adalah untuk menurunkan konsentrasi asam nitrat dan menaikkan konsentrasi uranium dalam efluen proses di IEBE (Instalasi Elemen Bakar Eksperimental). Parameter yang digunakan adalah volume formaldehida mulai dari 4, 6, 8, 10, hingga 12 mL. Percobaan dilaksanakan dengan menambahkan tetesan formaldehida ke dalam efluen yang mengandung uranium berkeasaman tinggi pada suhu 98 °C, sedangkan gas NO<sub>2</sub> yang terbentuk selama percobaan diserap oleh akuades dalam labu. Hasil percobaan menunjukkan bahwa hasil terbaik tercapai pada penggunaan formaldehida 4 mL, yang dapat menurunkan konsentrasi asam nitrat dari 4,35 M menjadi 3,54 M, dan menaikkan kadar uranium dari 1,446 g/L menjadi 1,768 g/L.

KATA KUNCI: pemungutan, uranium, asam nitrat, formaldehida

## ABSTRACT

**THE INFLUENCE OF FORMALDEHYDE ON THE DECREASING CONCENTRATION OF NITRIC ACID AND THE INCREASING URANIUM CONTENT IN PROCESS EFFLUENT AT EFEI.** Experiment has been performed to reduce nitric acid concentration and to increase uranium content in process effluent by using formaldehyde. The objective of the research is to reduce the nitric acid concentration and to increase the uranium content in the process effluent at EFEI (Experimental Fuel Element Installation). The parameter used is volume of formaldehyde from 4, 6, 8, 10 to 12 mL. The experiment was carried out by adding dropwise formaldehyde into the high acidic uranium at a temperature of 98 °C, whereas the NO<sub>2</sub> gas that was formed was absorbed by demineralized water in the flask. The results of the experiment show that the best yield was attained at a volume of 4 mL, which was able to

---

*reduce the nitric acid concentration from 4.35 M to 3.54 M and increase the uranium content from 1.446 g/L to 1.768 g/L.*

*FREE TERMS: recovery, uranium, nitric acid, formaldehyde*

## I. PENDAHULUAN

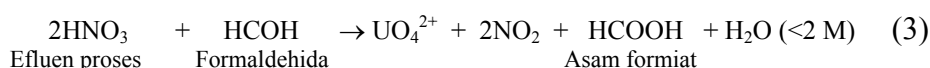
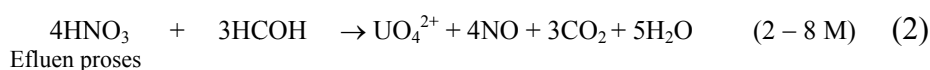
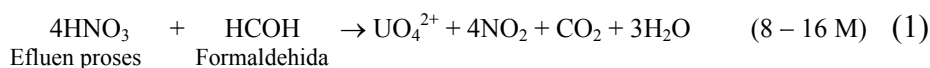
Pada efluen proses yang dihasilkan dari proses pelarutan gagal produk yang berada di Bidang Bahan Bakar Nuklir (B3N) – IEBE (Instalasi Elemen Bakar Eksperimental) – Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN) Serpong, reagen yang digunakan untuk melarutkan oksida uranium di dalamnya adalah asam nitrat konsentrasi tinggi. Hal ini dikarenakan uranium oksida lebih mudah larut dalam asam nitrat, disamping pemakaian reagen yang seragam akan memudahkan cara pengelolaan dan penanganannya. Di samping itu, sisa asam nitrat dapat berasal dari buangan analisis untuk tugas rutin dan penelitian.

Proses pemungutan uranium dari gagal bahan bakar nuklir melibatkan tiga proses, yaitu: proses pelarutan (*dissolution*), ekstraksi / *stripping* (re-ekstraksi), dan evaporasi<sup>[1]</sup>. Sementara itu kegiatan analisis kadar uranium, kontaminan, dan impuritas tak dapat dilepas dari kegiatan tersebut sebagai faktor pendukungnya. Adapun tujuan dari ketiga proses tersebut, yaitu (1) melarutkan uraniumnya dalam asam nitrat konsentrasi tinggi (6 – 8 M)<sup>[2]</sup>; (2) memperoleh bahan derajat nuklir (*nuclear grade*) dengan cara memproses uranium berimpuritas hasil pelarutan dengan menggunakan proses ekstraksi / pelarutan, dilanjutkan dengan proses *stripping* (re-ekstraksi); (3) mengevaporasi larutan hasil ekstraksi / *stripping* agar diperoleh konsentrasi yang memenuhi proses konversi kimia (pengendapan, kalsinasi, reduksi, dst)<sup>[3]</sup>.

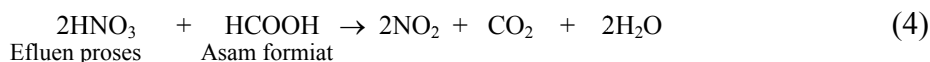
Selama proses pelarutan uranium, analisis rutin dan penelitian terus berlangsung. Dengan demikian, efluen yang mengandung uranium dengan keasaman yang cukup tinggi akan semakin banyak terkumpul. Apabila hal ini segera dikelola dan ditangani, maka hal yang tidak diinginkan seperti kebocoran dapat dihindari. Seperti diketahui, asam dengan keasaman tinggi terutama asam nitrat mempunyai sifat yang korosif, yang dapat mengakibatkan penampung efluen mengalami korosi (terjadi kebocoran) atau pecah karena tidak mampu menahan beban.

Untuk mengatasi hal tersebut, maka diterapkan salah satu metode percobaan yaitu menurunkan kadar asam dan sekaligus memungut uranium di dalam efluen tersebut. Metode yang dipakai yaitu penambahan formaldehida sedikit demi sedikit ke dalam efluen yang mengandung uranium berkeasaman

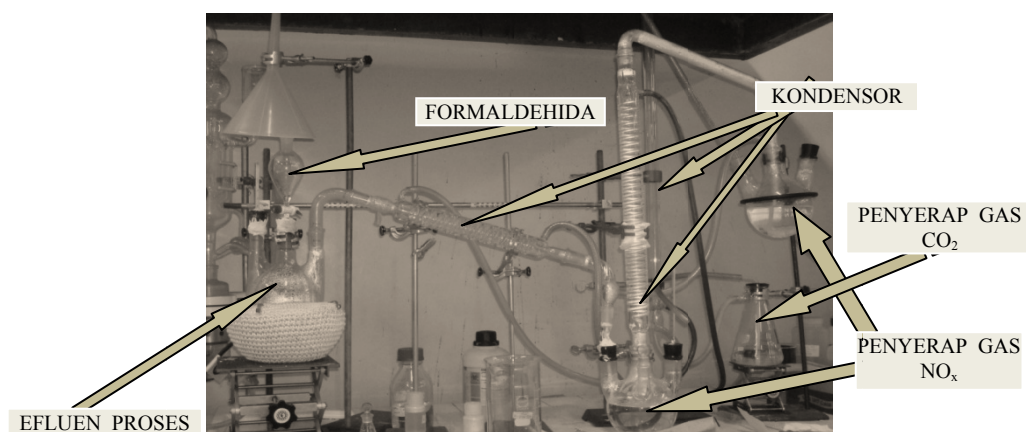
tinggi ( $\text{HNO}_3$ )<sup>[3,4,5]</sup>. Fungsi formaldehida adalah untuk memecah ikatan  $\text{HNO}_3$  dalam efluen itu dan terjadi reaksi seperti pada reaksi (1) sampai dengan (3), dengan catatan bahwa terjadinya reaksi antara formaldehida dengan  $\text{HNO}_3$  berlangsung sangat baik tergantung pada keasamannya<sup>[6,7]</sup>.



Apabila keasaman  $\text{HNO}_3$  kurang dari 2 M, maka reaksi yang terbentuk disamping gas  $\text{NO}_2$  juga terbentuk asam formiat ( $\text{HCOOH}$ ) yang pada akhirnya akan bereaksi juga dengan efluen, seperti reaksi (4).



Oleh karena itu dengan adanya pemecahan  $\text{HNO}_3$  oleh formaldehida akan diperoleh uranium yang mempunyai konsentrasi asam nitrat yang rendah yaitu di bawah 4 M yang memenuhi syarat untuk proses ekstraksi / *stripping* <sup>[1,2]</sup>.



Gambar 1. Alat proses penurunan konsentrasi  $\text{HNO}_3$  dan kenaikan kadar uranium menggunakan formaldehida.

## II. TATA KERJA

### 1.1. Bahan

Bahan yang digunakan adalah efluen proses, akuades,  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ , formaldehida ( $\text{HCOH}$ ), air sabun, dan bahan kimia analisis.

### 1.2. Alat

Alat yang digunakan adalah labu leher tiga, termometer, corong pisah, kondensor, statif klem, adaptor, gabus / karet sumbat, pipet ukur, lak ban, botol tampung tertutup, dan peranti analisis.

### 1.3. Cara Kerja

1. Alat proses dirangkai dan dipastikan tidak terjadi kebocoran. Uji kebocoran dilakukan dengan cara mengalirkan udara tekan pada rangkaian alat, kemudian pada setiap sambungan disemprotkan air sabun.
2. Sebelum uji fungsi dilaksanakan, air sebagai pendingin dialirkan terlebih dahulu ke dalam kondensor. Uji fungsi dilakukan dengan memasukkan asam nitrat ke dalam labu tanpa uranium (*blank*), kemudian dipanaskan hingga suhu mencapai titik didih asam nitrat dengan melihat bacaan suhu pada termometer ( $90\text{ }^\circ\text{C}$ ). Selanjutnya formaldehida diteteskan hingga volume 2 mL.
3. Suhu proses peruraian asam nitrat terjadi pada suhu  $98\text{ }^\circ\text{C}$  diikuti dengan keluarnya gas  $\text{NO}_2$  ( $\text{NO}_x$ ) yang berwarna coklat, mengalir memenuhi seluruh rangkaian alat yang dilewatinya seperti adaptor, kondensor (sebagai pendingin), lewat adaptor lagi kemudian di-*scrub* ke dalam labu yang berisi akuades. Kelebihan gas  $\text{NO}_2$  yang tak terikat di-*scrub* ke dalam labu berikutnya (bertingkat). *Scrubbing* selanjutnya berupa labu berisi air kapur [ $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ] yang berfungsi apabila ada gas  $\text{CO}_2$  yang lewat. Setelah keluar dari labu, gas didinginkan dan dialirkan ke cerobong monitor.
4. Tahapan seperti pada no. 2 dan 3 dilakukan untuk percobaan yang menggunakan efluen proses yang mengandung uranium dan kadar asam yang tinggi. Sebanyak 250 mL efluen proses yang mengandung uranium berasam tinggi dimasukkan dalam labu. Volume formaldehida divariasikan mulai dari 4, 6, 8, 10, hingga 12 mL.
5. Untuk setiap variasi volume formaldehida, setelah percobaan masing-masing dilakukan analisis kadar uranium dan konsentrasi  $\text{HNO}_3$ . Hasilnya diberikan dalam bentuk tabel dan gambar.

### III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Proses percobaan ini dilakukan untuk mengetahui penurunan konsentrasi asam nitrat dan kenaikan kadar uranium dalam efluen, karena adanya formaldehida yang diberikan ke dalam efluen. Hasil analisis konsentrasi  $\text{HNO}_3$  dan kadar uranium pada variasi volume HCOH (formaldehida) ditunjukkan dalam Tabel 1(a), 1(b), 1(c), dan 1(d) dan pada Gambar 2 dan 3.

Tabel 1(a). Hasil analisis konsentrasi  $\text{HNO}_3$  dan kadar uranium untuk volume awal HCOH 4 mL.

Volume HCOH (mL)	Konsentrasi $\text{HNO}_3$ (M)	Kadar U (g/L)
0	4,35	1,446
4	3,86	1,497
6	3,77	1,511
8	3,71	1,652
10	3,61	1,713
12	3,54	1,768

Tabel 1(c). Hasil analisis konsentrasi  $\text{HNO}_3$  dan kadar uranium untuk volume awal HCOH 8 mL.

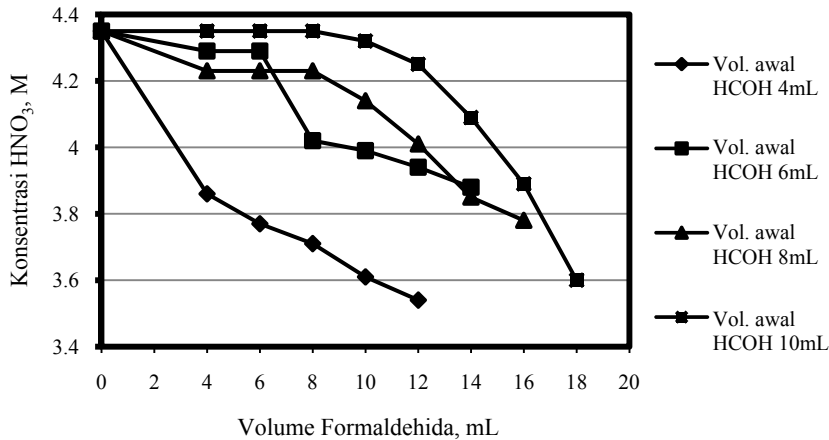
Volume HCOH (mL)	Konsentrasi $\text{HNO}_3$ (M)	Kadar U (g/L)
0	4,35	1,446
8	4,23	1,449
10	4,14	1,484
12	4,01	1,487
14	3,85	1,533
16	3,78	1,565

Tabel 1(b). Hasil analisis konsentrasi  $\text{HNO}_3$  dan kadar uranium untuk volume awal HCOH 6 mL.

Volume HCOH (mL)	Konsentrasi $\text{HNO}_3$ (M)	Kadar U (g/L)
0	4,35	1,446
6	4,29	1,482
8	4,02	1,493
10	3,96	1,513
12	3,94	1,588
14	3,88	1,692

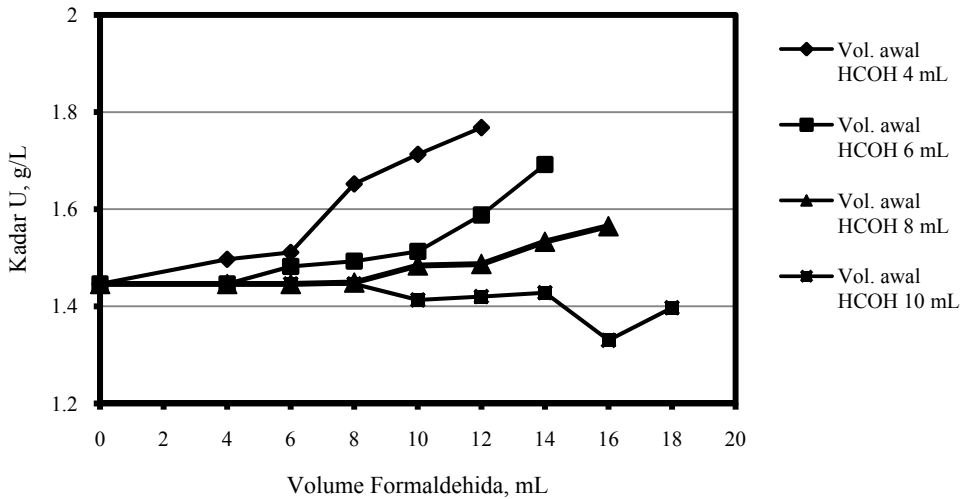
Tabel 1(d). Hasil analisis konsentrasi  $\text{HNO}_3$  dan kadar uranium untuk volume awal HCOH 12 mL.

Volume HCOH (mL)	Konsentrasi $\text{HNO}_3$ (M)	Kadar U (g/L)
0	4,35	1,446
10	4,32	1,413
12	4,14	1,420
14	4,01	1,428
16	3,89	1,330
18	3,60	1,397



Gambar 2. Korelasi konsentrasi asam nitrat terhadap volume formaldehida.

Pada Tabel 1(a), 1(b), 1(c) dan 1(d) (untuk analisis konsentrasi  $\text{HNO}_3$ ) dan Gambar 2, tampak bahwa penambahan volume formaldehida menyebabkan penurunan konsentrasi asam nitrat. Hal ini disebabkan asam nitrat yang berada dalam efluen proses mengalami destruksi/peruraian oleh formadehida yang membentuk gas  $\text{NO}_2$  dan gas  $\text{CO}_2$  jika ada reaksi lanjut (bergantung pada konsentrasi asam nitratnya), seperti ditunjukkan pada reaksi (3) dan (4). Kemolaran  $\text{HNO}_3$  pada awalnya 4,35 M berarti efluen setelah bereaksi dengan formaldehida akan terjadi peruraian  $\text{HNO}_3$  seperti pada reaksi (2), karena pada reaksi (2) tersebut kisaran konsentrasinya antara 2 M sampai dengan 8 M. Namun penambahan volume formaldehida dalam efluen akan menurunkan konsentrasi  $\text{HNO}_3$ , dan reaksi yang terjadi adalah reaksi (3) dan (4). Dari Gambar 2 tampak variasi volume formaldehida yang diawali dengan volume 4 mL  $\text{HNO}_3$  dengan konsentrasi sebesar 3,53 M. Inilah konsentrasi  $\text{HNO}_3$  yang relatif baik yang mendekati persyaratan untuk proses ekstraksi / *stripping* yaitu sebesar 3 – 4 M. Sementara untuk variasi volume lainnya yaitu yang dimulai 6, 8, dan 10 mL menunjukkan hasil analisis kurang memuaskan. Hal ini dimungkinkan reaksi awal destruksi/peruraian  $\text{HNO}_3$  terlalu cepat akibatnya tidak terjadi reaksi yang berurutan seperti pada penambahan formaldehida pada volume awal 4 mL.



Gambar 3. Korelasi kadar uranium terhadap volume formaldehida.

Tabel 1(a), 1(b), 1(c), dan 1(d) (untuk analisis kadar uranium) dan Gambar 3 menunjukkan korelasi antara kadar uranium terhadap volume formaldehida. Pada proses awal, kadar uranium dalam efluen naik dari 1,446 g/L ke 1,497 g/L (penambahan HCOH 4 mL), seterusnya hingga pada volume formaldehida 12 mL diperoleh hasil analisis kadar uraniumnya sebesar 1,768 g/L. Hal ini disebabkan asam nitrat yang berada bersama uranium dalam efluen didestruksi/diuraikan oleh formaldehida menjadi gas  $\text{NO}_2$  dan juga air yang sebagian ikut menguap akibatnya kenaikan kadar uranium. Pada variasi volume formaldehida tersebut diperoleh hasil analisis kadar uranium dalam efluen yang terbaik, yaitu sebesar 1,768 g/L. Hal ini berkaitan dengan konsentrasi asam nitrat yang harus memenuhi persyaratan pada proses ekstraksi / *stripping*. Sementara pada percobaan variasi volume formaldehida berikutnya yang diawali dengan volume formaldehida 6, 8, dan 10 mL hasil analisis memberikan nilai di bawah 1,768 g/L. Hal itu disebabkan volume awal formaldehida yang mengurai  $\text{HNO}_3$  terlalu besar sehingga reaksi penguraian  $\text{HNO}_3$  seterusnya semakin berkurang. Dengan demikian, dapat dipastikan bahwa hasil perolehan kadar uraniumnya menurun seperti pada proses variasi volume formaldehida yang diawali dengan 10 mL dimana hasilnya lebih rendah / menurun yaitu sebesar 1,393 g/L.

#### IV. KESIMPULAN

Percobaan menurunkan konsentrasi asam nitrat yang sekaligus menaikkan kadar uranium dalam efluen proses menggunakan formaldehida, dapat disimpulkan sebagai berikut: volume formaldehida terbaik yang direaksikan dengan efluen proses dimulai pada volume 4 mL dengan diakhiri volume 12 mL (berkaitan erat dengan hasil konsentrasi asam nitratnya), kadar uranium yang terpengut sebesar 1,768 g/L dengan konsentrasi asam nitrat HNO<sub>3</sub> sebesar 3,53 M yang memenuhi kriteria untuk proses ekstraksi / *stripping* yaitu sebesar 3 – 4 M.

#### V. DAFTAR PUSTAKA

1. NUKEM. (1983). Basic and Detail Engineering Process Element Fabrication Plant for BATAN. Hanau: Nukem VT, 4 (2.0080).
2. P.T. Batan Teknologi. (2005). Proses Olah Ulang Gagal Produk (5F). (Petunjuk Pelaksanaan). BT.121 – A01 – 30306.
3. Mishra, S., Lawrence, F., Sreeniyasan, R., Pandey, N.K., Mallika, C., Koganti, S.B., & Mudall, U. K. (2010). Development of a Continuous Homogeneous Process for Denitration by Treatment with Formaldehyde. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. India*.
4. Cox, J.L., Hallen, R.T., & Lilga, M.A. (1994). Thermochemical Nitrate Destruction, *Environmental Science Technology*. Richland, Washington.
5. Ananiev, A.V., Broudic, J.C., & 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. Russia, Moscow.
6. Hall, R., Patton, B.D., & Haas, P.A. (1985). Reaction of Formaldehyde and Nitric Acid in a Remotely Operated Thermosiphon Evaporator. Presentation at American Nuclear Society Winter Meeting. Conf. -851115-33, California.
7. Eibling, R.E. (1993). Nitric Acid - Formaldehyde Compatibility in DWPF. Westinghouse Savannah River Company, WSRC-RP-92-1247. South Carolina.