

PELINDIAN TEMBAGA DARI BIJIH KALKOPIRIT DALAM LARUTAN ASAM SULFAT DAN OZON SEBAGAI OKSIDATOR

Copper Leaching from Chalcopyrite Ore in Sulphuric Acid Solution and Ozone as an Oxidizing Agent

GUNARDI SETYAWAN¹ dan M. ZAKI MUBAROK²

¹ PT. Plasma-Centre Indonesia, Wisma Bumiputera 15th Fl, Jl Jend Sudirman Kav 75 Jakarta

² Program Studi Teknik Metalurgi, Fakultas Teknik Pertambangan dan Perminyakan

Institut Teknologi Bandung, Jl. Ganesa 10 Bandung, 40132

e-mail: gunardisetyawan@yahoo.com

SARI

Dalam makalah ini dibahas hasil-hasil percobaan pelindian tembaga bijih kalkopirit yang berasal dari daerah Pacitan, Jawa Timur menggunakan larutan asam sulfat pada tekanan atmosfer yang dibantu dengan ozon. Serangkaian percobaan pelindian dilakukan dengan variasi konsentrasi asam sulfat, distribusi ukuran partikel bijih, suhu dan rasio berat bijih/volume larutan pelindi dan dipelajari pengaruhnya terhadap persen ekstraksi tembaga. Kinetika pelindian dipelajari pada 3 suhu yang berbeda dengan menggunakan model *shrinking core*. Hasil-hasil percobaan menunjukkan bahwa ozon cukup efektif digunakan sebagai oksidator dalam proses pelindian bijih kalkopirit pada persen padatan yang rendah. Persen ekstraksi Cu tertinggi 97,98% diperoleh pada konsentrasi asam sulfat 0,5M, distribusi ukuran bijih -150 mesh dan rasio berat bijih/volume larutan pelindi 3 g/l. Persen ekstraksi tembaga menurun dengan naiknya suhu dan konsentrasi asam sulfat yang disebabkan penurunan kelarutan ozon dalam larutan pelindi. Analisis kinetika pelindian mengindikasikan bahwa proses pelindian tembaga dari bijih kalkopirit Pacitan dengan bantuan ozon pada kondisi yang ditinjau terkendali oleh proses difusi melalui lapisan produk padat yang tidak bereaksi.

Kata kunci: kalkopirit, tembaga, pelindian, ozon, ekstraksi

ABSTRACT

Results of copper leaching of chalcopyrite ore received from Pacitan Region, East Java in sulfuric acid at atmospheric pressure by the assistance of ozone is discussed. Series of leaching testworks were carried out under variations of sulfuric acid concentration, ore particle size distribution, temperature and ratio of ore weight to the volume of leaching agent and its influence on copper extraction was evaluated. Leaching kinetics was investigated at three different temperatures by adopting shrinking core model. The investigation results reveal that the ozone is an effective oxidizing agent to be used as for leaching of chalcopyrite ore at low slurry density. The highest extracted copper of 97.98% was obtained from the experimental work using sulfuric acid concentration of 0.5M, ore particle size distribution of -150 mesh and the ratio of ore weight to solution volume of 3 g/l. Extracted copper decreased by the increase of solution temperature and sulfuric acid concentration due to lowering ozone solubility in the leaching solution. Analysis of the leaching kinetics indicates that the leaching of copper from Pacitan chalcopyrite ore under evaluated condition is controlled by diffusion through unreacted of the solid product layer.

Keywords: chalcopyrite, copper, leaching, ozone, extraction

PENDAHULUAN

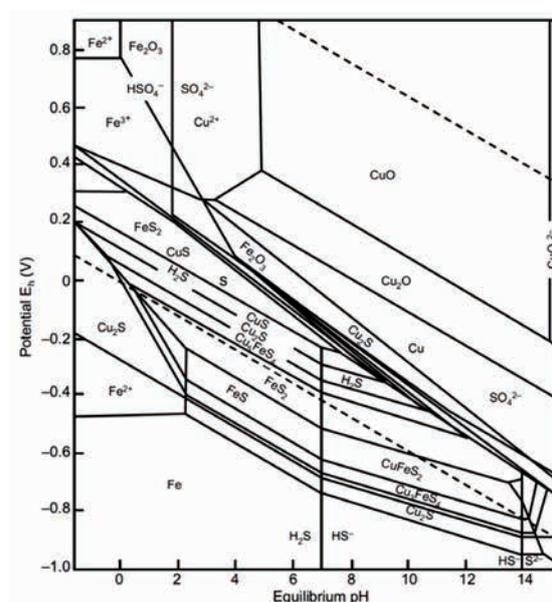
Logam tembaga sebagian besar ditemukan dalam kerak bumi sebagai mineral-mineral tembaga-besi-sulfida seperti kalkopirit (CuFeS_2) dan bornit (Cu_5FeS_4) serta mineral-mineral tembaga sulfida seperti kalkosit (Cu_2S) dan kovelit (CuS). Selain itu, tembaga dalam jumlah yang lebih sedikit juga ditemukan dalam bentuk mineral-mineral oksida, *native*, silikat, karbonat dan sulfat (Schlesinger dkk., 2011). Dengan berjalannya waktu konsentrasi tembaga dalam bijih yang ditambang semakin rendah. Pada saat ini, perusahaan tambang sudah menambang bijih dengan kandungan Cu 0,5%, dan level ini turun signifikan dibandingkan beberapa tahun yang lalu pada kadar tembaga 1-2%.

Untuk bijih tembaga sulfida, proses ekstraksi yang dominan digunakan adalah melalui jalur flotasi untuk menghasilkan konsentrat tembaga yang kemudian dilebur dan dimurnikan dengan *pyrorefining* dan *electrolytic refining*. Jalur proses ini berkontribusi terhadap $\pm 80\%$ dari total produksi tembaga dunia (Schlesinger dkk., 2011). Sementara, untuk bijih tembaga oksida dan sebagian bijih sulfida sukunder, proses ekstraksi tembaga di industri juga dilakukan dengan jalur hidrometalurgi. Jalur hidrometalurgi ini terdiri dari proses pelindian dalam asam sulfat atau klorida diikuti ekstraksi pelarut dan *electrowinning*. Berbeda dengan bijih tipe oksida, diperlukan oksidator tertentu untuk melarutkan tembaga dari bijih tipe sulfida pada tekanan atmosfer maupun tekanan tinggi. Oksidator ini berfungsi untuk mengoksidasi sulfur yang berikatan dengan tembaga menjadi sulfur elemental atau sulfat se-hingga tembaga dapat dilarutkan. Salah satu jenis oksidator yang menarik banyak peneliti di dunia untuk proses ekstraksi tembaga dari bijih tembaga sulfida adalah ozon yang dapat digenerasi dari udara bebas. Keunggulannya, ozon merupakan oksidator yang sangat kuat (lebih kuat dari gas oksigen, gas klorin dan asam peroksida) sebagaimana diindikasikan oleh harga potensial reduksi-oksidasi pada Tabel 1 (Pedroza dkk., 2010). Ozon dapat digenerasi dari udara dengan sebuah generator ozon, yang selanjutnya ozon tersebut di hembuskan ke dalam larutan pelindian.

Prinsip proses pelarutan tembaga dari mineral-mineral tembaga oksida dan sulfida dapat dipelajari Diagram Potensial-pH sistem Cu-S-H₂O seperti ditunjukkan pada Gambar 1. Sebagaimana dapat dilihat pada Gambar 1, pada suhu kamar, tembaga terlarut pada rentang pH sekitar 2 hingga 4 dan potensial setengah sel +0,4-0,8 V vs. SHE (*Standard*

Tabel 1. Harga potensial reduksi-oksidasi standar dari beberapa jenis oksidator (Pedroza dkk., 2010)

Jenis Oksidator	E° (V)
Hydroxyl radical	2,80
Oxygen atomic	2,42
Ozone	2,07
Hydrogen peroxide	1,77
Hypochlorite	1,49
Chlorine gas	1,36
Oxygen molecular	1,23



Gambar 1. Diagram Eh-pH sistem Cu-Fe-S-O-H₂O pada 25°C. [Cu] 0,01 M, [Fe] = [S] = 0,1 M (Schlesinger dkk., 2011)

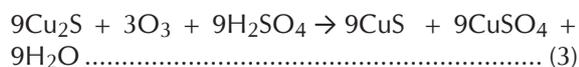
Hydrogen Electrode), yaitu pada daerah kestabilan ion Cu^{2+} . Berdasarkan diagram potensial-pH ini, dapat diketahui bahwa untuk melarutkan tembaga dari mineral-mineral sulfida diperlukan kondisi mengoksidasi larutan dan tingkat keasaman larutan tertentu sehingga Cu stabil sebagai ionnya.

Penelitian pelindian tembaga dari bijih kalkopirit dengan bantuan ozon masih belum banyak dilakukan. Salah satu hasil penelitian yang memberikan informasi yang memadai mengenai pelindian tembaga dari bijih kalkopirit adalah yang dipublikasikan oleh Havlik dkk. (1999). Havlik, dkk. melakukan penelitian pelindian tembaga dari bijih kalkopirit yang berasal dari Kuba. Menurut Havlik

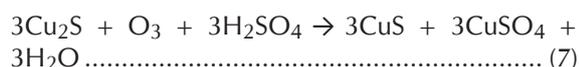
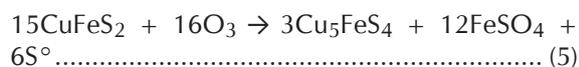
dkk. (1999), pelarutan Cu dari mineral kalkopirit (CuFeS₂) dengan ozon secara keseluruhan berlangsung melalui reaksi berikut:



Diyakini pula bahwa reaksi (1) berlangsung melalui tahap-tahap pembentukan beberapa produk antara yaitu kalkosit (Cu₂S), kuprit (CuS) dan bornit (Cu₅FeS₄). Konsentrasi ozon terlarut menentukan jenis reaksi yang berlangsung. Pelarutan tembaga melalui tahap pembentukan kalkosit (Cu₂S) berlangsung melalui tahapan reaksi sebagai berikut (Havlik, 1999):



Untuk bornit sebagai produk antara, reaksi pelarutan tembaga berlangsung melalui tahap-tahap berikut:



Untuk kovelit sebagai produk antara, tahapan reaksi yang berlangsung adalah:



Sulfur elemental (S⁰) yang terbentuk dari reaksi-reaksi oksidasi mineral sulfida oleh ozon, akan teroksidasi lebih lanjut menjadi asam sulfat, melalui reaksi berikut:



Reaksi terakhir ini memungkinkan proses pelindian bijih tembaga sulfida dengan bantuan ozon dilakukan dalam air saja atau dalam larutan asam sulfat

yang encer sehingga meminimalkan kebutuhan asam untuk proses pelindian.

Penelitian yang dilakukan bertujuan mempelajari efektifitas ozon untuk melindi tembaga dari bijih kalkopirit yang diperoleh dari Kabupaten Pacitan, Jawa Timur. Pada penelitian ini dipelajari beberapa variabel yang belum banyak dipelajari sebelumnya yaitu pengaruh konsentrasi asam, distribusi ukuran partikel bijih dan densitas *slurry* yang dinyatakan dalam rasio antara berat bijih dengan volume larutan pelindi. Hasil-hasil penelitian yang diperoleh dapat menjadi acuan untuk percobaan lebih lanjut dalam skala yang lebih besar dan dalam rangka pengembangan proses ekstraksi tembaga dengan jalur hidrometalurgi di dalam negeri, khususnya pada skala yang tidak terlalu besar. Teknologi generasi ozon telah dikuasai di dalam negeri dan sudah diterapkan di industri pengelolaan limbah. Penggunaan teknologi ini meminimalkan biaya untuk bahan habis karena ozon dapat digenerasi secara setempat dari udara. Selain itu kebutuhan asam sulfat sangat rendah dan bahkan dapat dieliminasi karena asam sulfat dapat digenerasi sendiri melalui proses oksidasi sulfur dari mineral-mineral sulfida oleh ozon dalam larutan pelindi.

METODOLOGI

Sebagaimana telah dikemukakan sebelumnya, bijih tembaga yang digunakan dalam penelitian ini berasal dari daerah Pacitan, Jawa Timur. Sebelum digunakan dalam percobaan, percontoh bijih dipreparasi dan dikarakterisasi terlebih dahulu. Tujuan preparasi percontoh adalah untuk menyediakan percontoh dengan jumlah dan distribusi ukuran tertentu yang akan divariasikan dalam percobaan pelindian. Preparasi percontoh meliputi peremuk-an, penggerusan, *sorting*, *sampling*, analisis ayak dan pengeringan. *Sampling* dilakukan dengan tujuan untuk mendapatkan percontoh yang representatif dan homogen. Setelah diperoleh percontoh bijih dari hasil *sampling*, bijih di ayak sesuai dengan variabel percobaan yang akan digunakan dalam proses pelindian yaitu fraksi ukuran -60 + 80 mesh, -80 + 100 mesh, -100 + 150 mesh dan -150 mesh. Selanjutnya dilakukan analisis komposisi kimia percontoh bijih dengan *X-Ray Fluorescence* (XRF) dan karakterisasi mineral dengan *X-Ray Diffraction* (XRD).

Hasil analisis komposisi kimia dengan XRF percontoh bijih dengan fraksi ukuran -150 mesh ditunjukkan pada Tabel 2. Contoh hasil analisis XRD

Tabel 2. Komposisi kimia bijih hasil analisis XRF pada fraksi ukuran -150 mesh

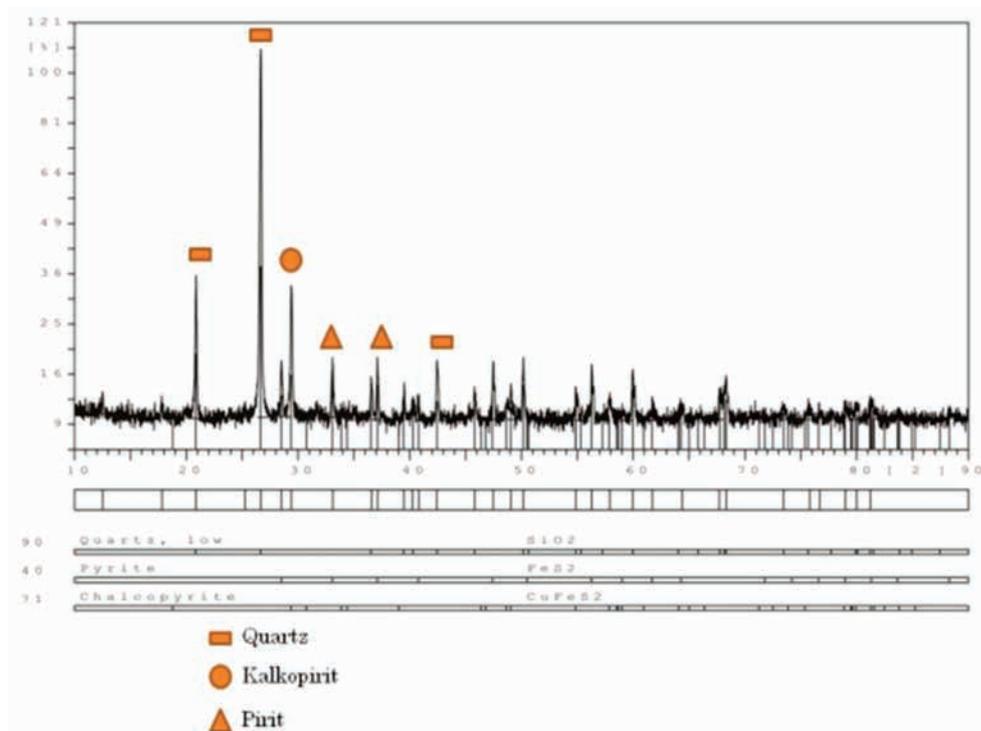
Senyawa	% berat	Unsur	% berat
CuO	3,46	Cu	2,76
SiO ₂	56,84	Si	26,67
SO ₃	14,63	S	5,85
Al ₂ O ₃	8,46	Al	4,48
Fe ₂ O ₃	12,45	Fe	9,68
TiO ₂	0,11	Ti	0,07
K ₂ O	2,28	K	1,89
CaO	0,08	Ca	0,06
MnO	0,034	Mn	0,03
MgO	0,57	Mg	0,34
P ₂ O ₅	0,034	P	0,25
NiO	0,009	Ni	0,01
PbO	0,087	Pb	0,08
MoO ₃	0,131	Mo	0,09
ZnO	0,79	Zn	0,64

untuk percontoh bijih dengan fraksi ukuran -150 mesh ditunjukkan pada Gambar 3. Hasil analisis XRD mengkonfirmasi bahwa bijih yang diterima dari daerah Pacitan adalah tipe kalkopirit dengan

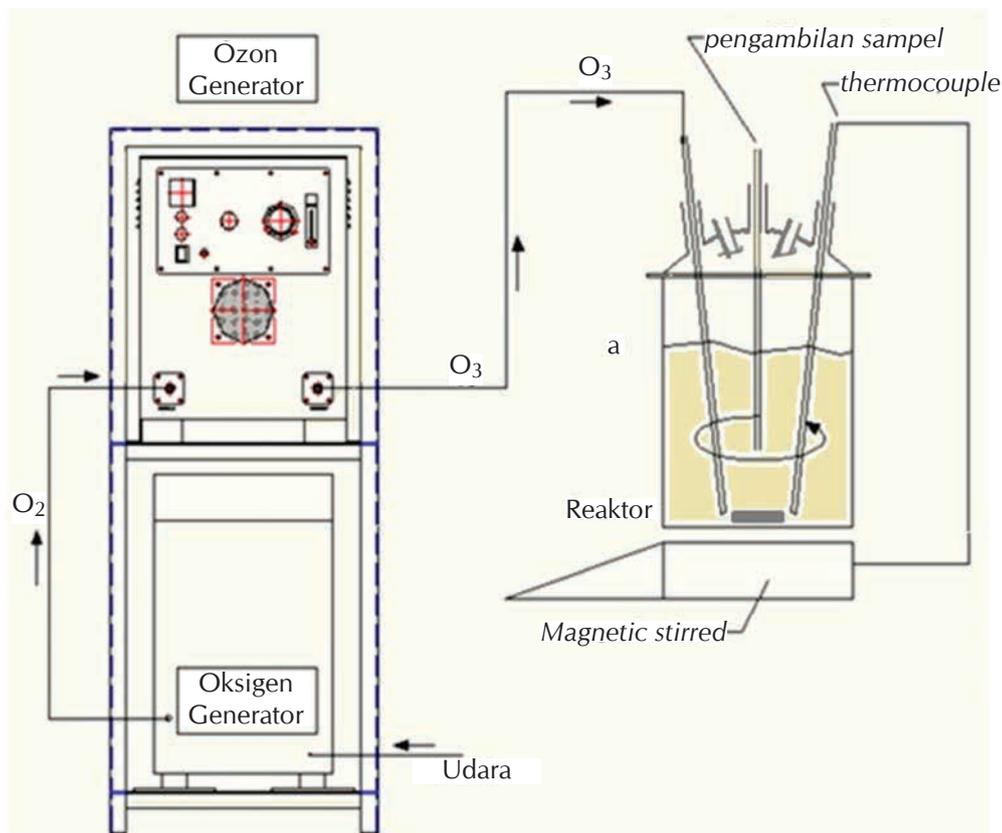
mineral-mineral pengotor berupa pirit dan kuarsa.

Percobaan pelindian dilakukan dalam sebuah reaktor gelas berleher lima dengan volume 1,5 liter dan melalui leher-leher tersebut dilakukan injeksi gas ozon, pengambilan percontoh larutan dan pengaturan suhu. Dosis ozon dibuat tetap yaitu 5,3% dengan mengatur laju injeksi gas O₂ dari dari *oxygen generator* sebesar 5 liter/menit. Proses pengadukan dilakukan dengan *magnetic stirrer* tipe *IKA RCT Basic* yang terintegrasi dengan *hotplate* yang dapat diatur suhunya. Skematik percobaan yang dilakukan disajikan pada Gambar 3.

Variabel-variabel percobaan yang dipelajari meliputi konsentrasi asam sulfat, distribusi ukuran partikel bijih, suhu dan rasio antara berat bijih terhadap volume larutan. Konsentrasi asam divariasikan pada 0,25M, 0,5M, 1M. Pada konsentrasi asam yang memberikan persen ekstraksi Cu tertinggi kemudian dilakukan variasi distribusi ukuran bijih yaitu 60+80 mesh, -80+100 mesh, -100+150 mesh dan -150 mesh. Pada konsentrasi asam sulfat dan distribusi ukuran partikel bijih yang terbaik kemudian dilakukan variasi suhu dan rasio antara berat bijih terhadap volume larutan. Suhu larutan pelindian divariasikan pada 30°C, 40°C dan 60°C, sementara rasio antara berat bijih terhadap volume larutan divariasikan pada 3 gram/liter dan 10 gram/liter.



Gambar 2. Spektrum XRD untuk percontoh bijih dengan fraksi ukuran -150 mesh.



Gambar 3. Skematik percobaan pelindian yang dilakukan

HASIL DAN PEMBAHASAN

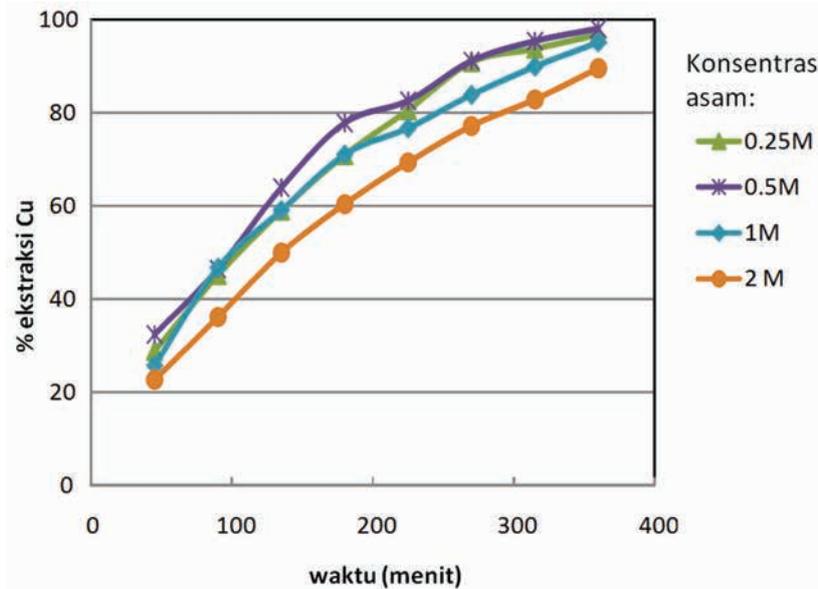
Hasil Percobaan dengan Variasi Konsentrasi Asam

Hasil-hasil percobaan dengan variasi konsentrasi asam sulfat untuk percontoh bijih dengan fraksi ukuran -150 mesh, pada suhu 30°C, rasio berat bijih/volume larutan 3 gram/liter dan kecepatan pengadukan 300 rpm serta dosis ozon 5,3% ditunjukkan pada Gambar 4. Persen ekstraksi Cu tertinggi setelah 360 menit, diperoleh pada konsentrasi H₂SO₄ 0,5M yaitu 97,98%. Persen ekstraksi Cu yang diperoleh menurun seiring dengan peningkatan konsentrasi awal H₂SO₄ dari 0,25M hingga 2M. Peningkatan persen ekstraksi Cu terjadi secara signifikan pada penurunan konsentrasi 2M menjadi 1M, namun penurunan konsentrasi asam lebih lanjut dari 1M menjadi 0,5 M dan 0,25 M tidak berpengaruh signifikan terhadap persen ekstraksi Cu. Hal ini diperkirakan terjadi karena semakin tinggi konsentrasi H₂SO₄ kelarutan ozon dalam larutan semakin menurun. Dilaporkan bahwa dalam larutan yang semakin asam (pada pH yang lebih rendah), kelarutan ozon semakin rendah (Smedt dkk., 2001).

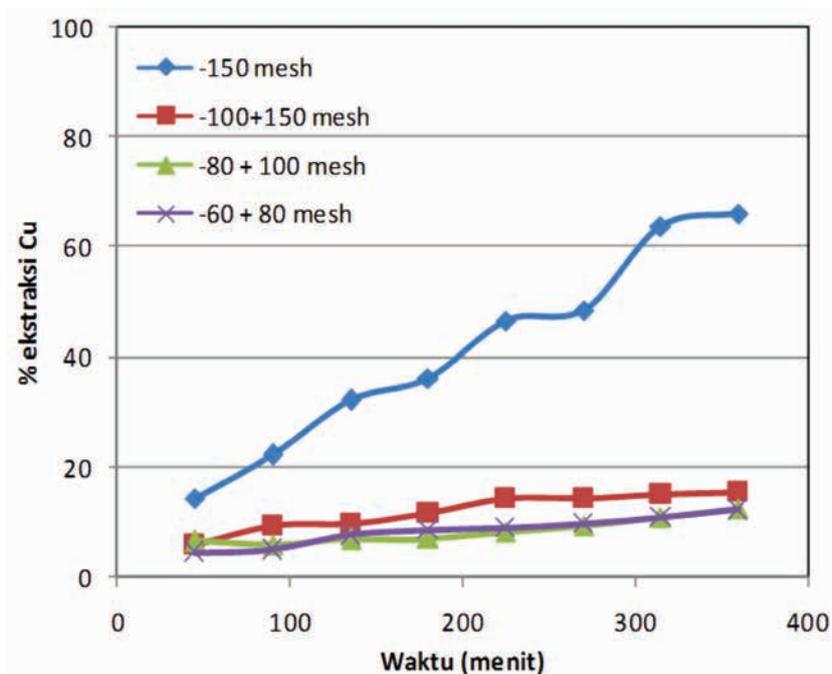
Hasil Percobaan dengan Variasi Distribusi Ukuran Bijih

Ukuran partikel bijih menentukan luas permukaan bijih yang akan kontak dengan reagen pelindi selama pelindian. Semakin halus ukuran partikel bijih, maka semakin besar luas permukaan kontak antara bijih dengan reagen pelindi yang berdampak pada laju pelarutan tembaga dari mineral kalkopirit. Namun demikian, harus ditentukan ukuran partikel bijih yang optimum yang memberikan persen ekstraksi tembaga paling tinggi dengan biaya penggerusan yang minimal. Ukuran partikel bijih yang terlalu halus juga dapat menyebabkan kesulitan di dalam proses pemisahan larutan hasil pelindian dengan residu yang berukuran halus.

Profil persen ekstraksi Cu sebagai fungsi waktu dan distribusi ukuran partikel bijih pada konsentrasi H₂SO₄ 0,5M, suhu 30°C, rasio berat bijih/volume larutan 3 gram/liter dan kecepatan pengadukan 300 rpm disajikan pada Gambar 5. Hasil percobaan menunjukkan bahwa pada distribusi ukuran -150 mesh terjadi peningkatan persen ekstraksi Cu yang signifikan dibandingkan distribusi ukuran bijih yang



Gambar 4. Profil persen ekstraksi tembaga sebagai fungsi waktu pada berbagai konsentrasi sulfat (T = 30°C)



Gambar 5. Profil persen ekstraksi tembaga sebagai fungsi waktu pada berbagai fraksi ukuran partikel bijih

lebih kasar yang divariasikan pada percobaan. Tidak dilakukan analisis derajat liberasi bijih yang detail, namun berdasarkan hasil percobaan dengan oksidator lain yang menunjukkan hasil yang sama (Mubarak dkk., 2013), dapat diperkirakan bahwa

pada ukuran lebih kasar dari -150 mesh, mineral kalkopirit belum terliberasi secara baik. Mineral-mineral kalkopirit yang masih terjebak dalam mineral kuarsa atau pirit akan sulit dilarutkan dalam kondisi percobaan yang dilakukan dan mengakibatkan

kan persen ekstraksi tembaga yang rendah.

Hasil Percobaan dengan Variasi Suhu

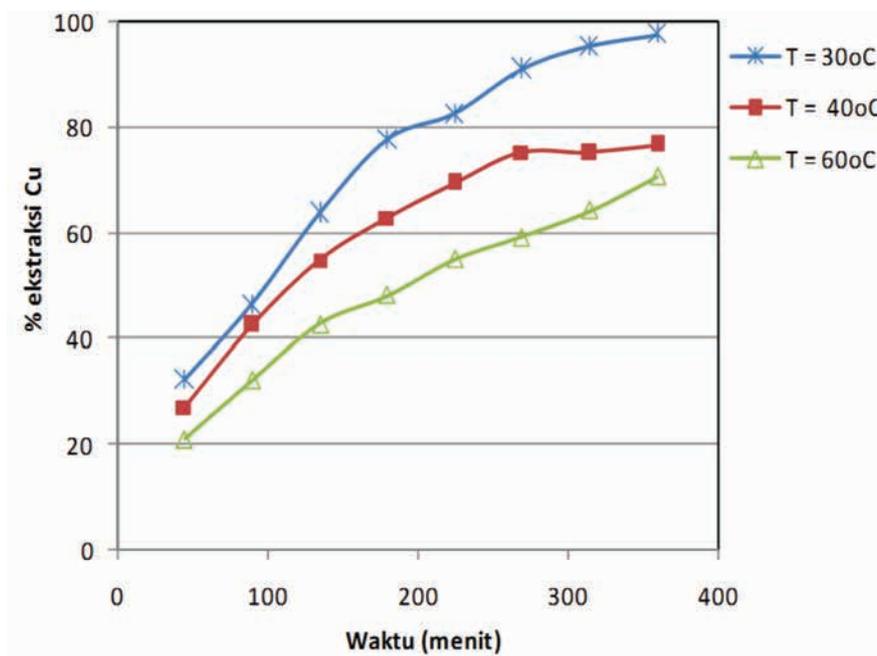
Profil persen ekstraksi tembaga sebagai fungsi waktu pada berbagai suhu pelindian, konsentrasi asam sulfat 0,5 M dan distribusi ukuran partikel bijih -150 mesh ditunjukkan pada Gambar 6. Hasil percobaan menunjukkan bahwa persen ekstraksi tembaga tertinggi diperoleh pada suhu pelindian paling rendah yaitu 30°C. Peningkatan suhu larutan menjadi 40°C dan 60°C menurunkan persen ekstraksi tembaga karena kelarutan ozon yang semakin turun dengan kenaikan suhu. Hasil ini berkesesuaian dengan hasil penelitian Havlik dkk. (1999) yang menyatakan bahwa persen ekstraksi tembaga tertinggi dalam larutan asam sulfat yang diinjeksikan ozon diperoleh pada suhu kamar dan cenderung turun pada peningkatan suhu hingga 60°C dan 70°C. Secara umum, peningkatan suhu larutan akan mempercepat laju reaksi dan laju difusi spesi reaktif menuju antarmuka reaksi sehingga dengan waktu pelindian yang sama, persen ekstraksi tembaga yang lebih tinggi dapat dicapai pada suhu yang lebih tinggi. Namun demikian, peningkatan suhu berbanding terbalik dengan kelarutan ozon. Semakin tinggi suhu larutan, kelarutan ozon semakin rendah sebagaimana ditunjukkan oleh hasil penelitian Battino dkk. yang disajikan pada Gambar 7 (Battino dkk., 1983). Sebagaimana kelarutan

ozon, kelarutan oksigen juga turun dengan naiknya suhu dari 0°C hingga 100°C (Battino dkk., 1983 dan Sheng dkk., 2007).

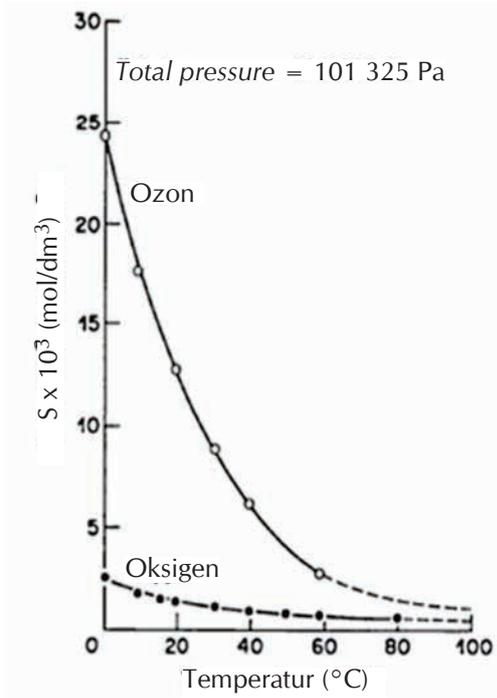
Hasil Percobaan dengan Variasi Rasio Padatan/Larutan

Persen padatan dalam pelindian menentukan kapasitas pelindian. Makin tinggi persen padatan dan rasio padatan terhadap volume larutan pelindi, maka kapasitas pabrik dalam satuan berat bijih kering per satuan waktu yang bisa diolah makin tinggi. Di sisi lain, makin tinggi persen padatan, maka makin tinggi kekentalan larutan dan akan mempengaruhi kelarutan gas oksidator di dalam larutan pelindi.

Dalam penelitian ini untuk memudahkan percobaan, jumlah padatan dinyatakan dalam rasio berat padatan bijih per satuan volume larutan. Profil persen ekstraksi tembaga sebagai fungsi waktu pada rasio berat padatan/volume larutan 3 gram/liter dan 10 gram/liter ditunjukkan pada Gambar 8. Terlihat bahwa peningkatan jumlah padatan bijih yang dilindi dari 3 gram/liter larutan menjadi 10 gram/liter menurunkan persen ekstraksi tembaga secara signifikan. Penurunan persen ekstraksi tembaga ini terkait dengan kelarutan ozon yang semakin menurun pada persen padatan yang semakin tinggi. Dosis ozon optimum yang diinjeksikan ke dalam larutan pada persen padatan yang lebih tinggi (di



Gambar 6. Profil persen ekstraksi tembaga sebagai fungsi waktu dan suhu pelindian konsentrasi asam sulfat 0,5 M

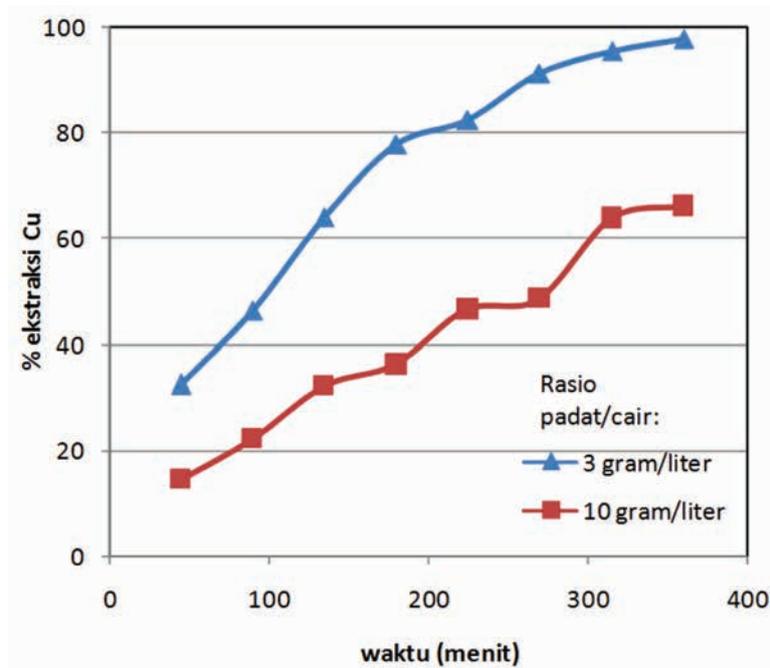


Gambar 7. Kelarutan ozon dan oksigen sebagai fungsi suhu (Battino, 1983).

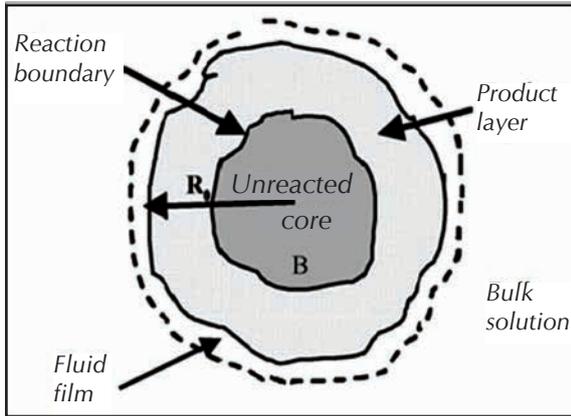
atas 5,3%) masih perlu diteliti lebih lanjut sehingga diperoleh konsentrasi ozon terlarut yang memadai pada persen padatan yang lebih tinggi.

Analisis Kinetika Pelindian

Kinetika pelindian didekati dengan model *shrinking core* (SCM). Untuk mempelajari kinetika pelindian tembaga dari bijih kalkopirit Pacitan digunakan data-data percobaan pelindian pada fraksi ukuran bijih -150 mesh dan suhu 30, 40, 60 dan 80°C. Inti yang menyusut diasumsikan hanya dikontribusi oleh tembaga yang larut, sementara ukuran partikel dianggap tetap dengan adanya keberadaan silika yang kandungannya cukup tinggi dan tidak larut selama pelindian. Sebagaimana disajikan pada Tabel 2, silika merupakan komponen utama dalam bijih dengan persentase mencapai 56,8%. Analisis kinetika ini bertujuan untuk memprediksi laju reaksi dan mengetahui tahap pengendali laju proses. Pengendali laju proses sangat penting untuk diketahui agar dapat ditentukan cara yang tepat untuk meningkatkan laju proses pelindian seperti peningkatan suhu, pengadukan atau reduksi ukuran bijih. Model *shrinking core* diilustrasikan pada Gambar 9. Berdasarkan model SCM ini terdapat



Gambar 8. Profil ekstraksi tembaga sebagai fungsi waktu pada dua rasio berat bijih/volume larutan yang berbeda



Gambar 9. Model *shrinking core* (Pedroza dkk., 2012)

tiga tahap proses yang mungkin menjadi pengendali laju, yaitu difusi melalui film fluida pada permukaan bijih, reaksi kimia pada antarmuka dan difusi melalui produk yang tidak bereaksi.

Menurut Levenspiel, model-model matematika untuk setiap jenis pengendali laju reaksi sesuai model *shrinking core* adalah sebagai berikut (Levenspiel, 1999):

1. Difusi melalui lapisan fluida pada permukaan bijih,

$$\frac{t}{\tau} = 1 - \left(\frac{r_c}{R}\right)^3 = X_B \dots \dots \dots (12)$$

2. Difusi melalui lapisan produk padat yang tidak bereaksi,

$$\frac{t}{\tau} = 1 - 3(1 - X_B)^{2/3} + 2(1 - X_B) \dots \dots \dots (13)$$

3. Reaksi antarmuka sebagai pengendali,

$$\frac{t}{\tau} = 1 - \frac{r_c}{R} = 1 - (1 - X_B)^{1/3} \dots \dots \dots (14)$$

dimana t adalah waktu pelindian, τ adalah waktu pelindian dan Cu dianggap habis bereaksi dan X_B adalah fraksi Cu yang terkonversi pada waktu t . Inti yang menyusut diasumsikan hanya karena proses pelarutan Cu , sehingga X_B ditentukan dari perbandingan mol Cu yang terlarut dengan mol Cu mula-mula dalam bijih.

Untuk menentukan pengendali laju proses pelindian tembaga maka dilakukan pengaluran harga-harga X_B , $\{1 - 3(1 - X_B)^{2/3} + 2(1 - X_B)\}$ dan $\{1 - (1 - X_B)^{1/3}\}$

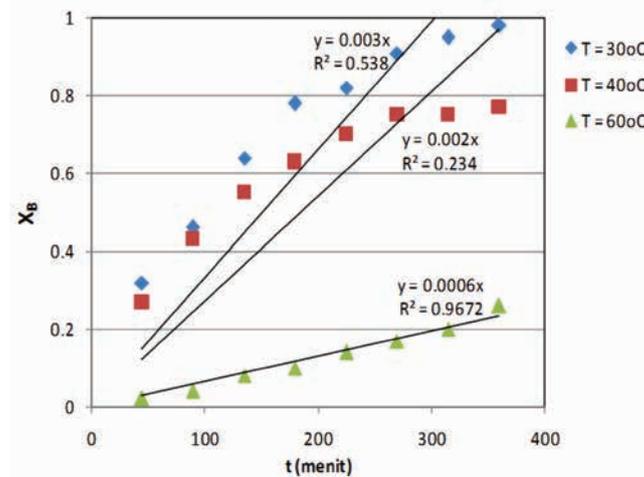
dari hasil-hasil percobaan terhadap waktu pelindian (t). Pengendali laju proses ditentukan dengan cara sebagai berikut:

- Reaksi terkendali oleh laju difusi melalui film fluida apabila pengaluran X_B terhadap t linier,
- Reaksi terkendali oleh laju difusi melalui produk padat yang tidak bereaksi apabila pengaluran $\{1 - 3(1 - X_B)^{2/3} + 2(1 - X_B)\}$ terhadap t linier,
- Reaksi terkendali oleh laju reaksi antarmuka apabila pengaluran $\{1 - (1 - X_B)^{1/3}\}$ terhadap t linier.

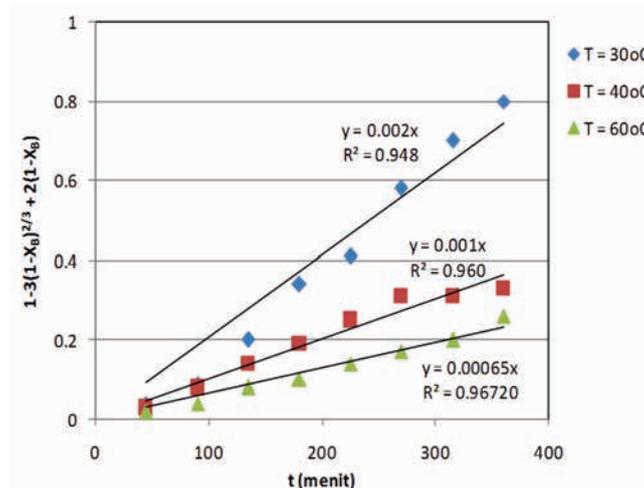
Kelinearan hubungan antara parameter-parameter di atas terhadap waktu (t) dievaluasi dari harga kuadrat koefisien korelasi (R^2) dari persamaan regresi liniernya, dimana nilai R^2 yang mendekati 1 dianggap paling berkorelasi linier. Hasil-hasil pengaluran harga-harga X_B , $\{1 - 3(1 - X_B)^{2/3} + 2(1 - X_B)\}$ dan $1 - (1 - X_B)^{1/3}$ terhadap waktu pelindian (t) disajikan pada Gambar 10-12.

Dari hasil-hasil regresi linier yang dilakukan, model yang paling cocok dengan hasil percobaan (nilai koefisien korelasi yang paling mendekati 1 secara konsisten) adalah model kinetika yang terkendali oleh laju difusi melalui lapisan produk padat yang tidak bereaksi. Hasil ini berkesesuaian dengan hasil pelindian konsentrat tembaga sulfida dalam larutan asam sulfat dengan oksidator oksigen dan $Fe(III)$ pada tekanan atmosfer yang dilaporkan oleh Chmielewski dkk. (2011) dan hasil pelindian konsentrat kalkopirit dalam larutan asam sulfat dengan kehadiran sodium nitrite ($NaNO_2$) yang dilaporkan oleh Gok dkk. (2013) yang juga menggunakan model *shrinking core*. Menurut hasil analisis Chmielewski dkk. (2011), laju pelindian tembaga dikendalikan oleh lapisan karbonat yang mengkonsumsi asam yang selanjutnya akan diikuti oleh pelarutan mineral-mineral tembaga. Pada penelitian ini lapisan produk padat yang tidak bereaksi adalah lapisan mineral kalkopirit ($CuFeS_2$) yang belum teroksidasi oleh gas ozon terlarut dan kuarsa yang tidak larut.

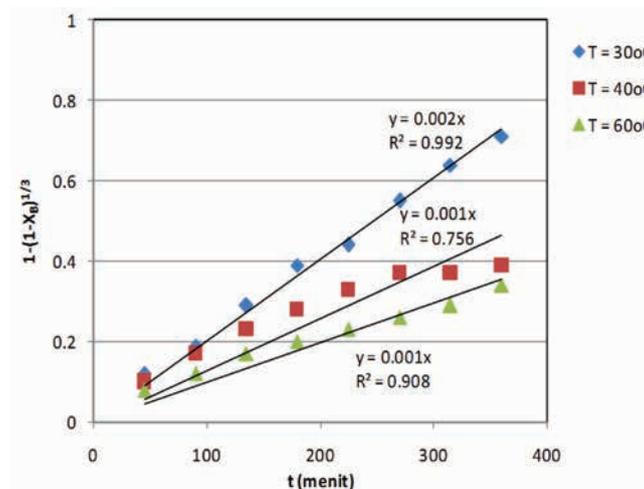
Gas ozon mula-mula berdifusi ke dalam larutan dari antarmuka gas-cairan dan berdifusi lebih lanjut menuju antarmuka cairan-padatan (percontohan bijih). Pada saat gas ozon sudah mencapai permukaan bijih, maka gas ini akan berpartisipasi dalam reaksi pelindian tembaga dengan mengoksidasi sulfur dalam mineral tembaga menjadi sulfat seperti ditunjukkan oleh reaksi (1). Selanjutnya laju pelarutan tembaga akan dikendalikan oleh laju difusi gas oksidator ini melalui lapisan padatan mineral kalkopirit yang belum bereaksi. Laju pelindian ini bergantung pada beberapa variabel yang meliputi dosis ozon, konsentrasi asam, persen padatan dan suhu.



Gambar 10. Hasil pengaluran dan regresi X_B hasil percobaan terhadap waktu (t)



Gambar 11. Hasil pengaluran dan regresi $1-3(1-X_B)^{2/3} + 2(1-X_B)$ hasil percobaan terhadap waktu (t)



Gambar 12. Hasil pengaluran dan regresi $1-(1-X_B)^{1/3}$ hasil percobaan terhadap waktu (t)

Dengan semakin turunnya kelarutan ozon seiring dengan naiknya suhu dan peningkatan konsentrasi asam, peningkatan laju pelindian dan persen ekstraksi tembaga dapat dilakukan dengan reduksi ukuran bijih, peningkatan kecepatan pengadukan dan dosis ozon. Dosis ozon harus ditentukan pada level optimumnya, karena ozon merupakan gas beracun dan sangat korosif. Untuk menangkap gas ozon berlebih yang keluar dari reaktor, perlu dipasang sistem penangkap gas untuk mengkonversi ozon menjadi senyawa yang tidak berbahaya.

KESIMPULAN DAN SARAN

Ozon efektif digunakan sebagai oksidator dalam proses pelindian tembaga dari bijih kalkopirit Pacitan dengan persen ekstraksi Cu tertinggi mencapai 97,98% pada konsentrasi asam sulfat 0,5M, distribusi ukuran bijih -150 mesh dan rasio berat bijih/volume larutan pelindi 3 gram/liter. Persen ekstraksi tembaga turun dengan naiknya suhu, konsentrasi asam sulfat dan persen padatan. Faktor krusial yang menentukan persen ekstraksi tembaga adalah kelarutan ozon. Kelarutan ozon turun dengan naiknya konsentrasi asam sulfat, suhu dan persen padatan. Perlu dilakukan studi lebih lanjut mengenai dosis ozon yang optimum dan peningkatan persen ekstraksi tembaga pada persen padatan yang lebih tinggi.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis menyampaikan terimakasih kepada Direktur PT. Plasma Centre Indonesia yang telah memberikan dukungan alat dan kesempatan untuk menyelesaikan penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

Battino R., Timothy, T.R and Tominaga T., 1983. The solubility of oxygen and ozone in liquids, *Journal of Physical Chemistry Reference Data* vol.12, no.2, p. 163-177.

Pedroza, F.R.C., Aguilar, M.J.S., Rodríguez, E.S., Luevanos, A.M., Treviño, T. E. P. dan Sánchez, A.D., 2012. *Oxidative hydrometallurgy of sulphide minerals*, Recent Researches in Metallurgical Engineering – From Extraction to Forming, Chapter II, p. 25-44.

Pedroza, F.R.C., Castillo, M.A.S., Aguilar, M.J.S., Luevanos A.M. and Gutiérrez, E.C., 2010. Evaluation of acid leaching of low grade chalcopyrite using ozone by statistical analysis, *Canadian Metallurgical Quarterly*, vol. 45, no.1, p. 103-110.

Chmielewski, T., Borowski, K., Gibas, K., Ochrowicz K. and Wozniak, B., 2011. Atmospheric leaching of copper flotation concentrate with oxygenated sulphuric acid solutions, *Journal of Physicochemical Problems of Mineral Processing*, vol. 47, p. 193 – 206.

Gok, O., Anderson, C.B., Cicekli, G. and Cocen, E.I., 2013. Leaching kinetics of copper from chalcopyrite concentrate in nitrous-sulfuric acid, *Journal of Physicochemical Problems of Mineral Processing*, vol. 50, no.1., p. 399 – 413.

Havlik, T., Dvorscikova, J., Ivanova, Z., Kammel, R., 1999. Sulphuric acid chalcopyrite leaching using ozone as oxidant, *Metall*, vol. 53, no. 1-2, p. 57-60.

Levenspiel, O., 1999. *Chemical reaction engineering*, John Wiley & Sons, New York, p. 570-582.

Mubarok, M.Z dan Dilova, A., 2013. Atmospheric leaching behavior of East Java chalcopyrite ore in sulfuric acid solution and hydrogen peroxide as oxidizing agent, *Proceeding of International Symposium on Earth Science and Technology 2013*, Fukuoka, Japan, p.389-403.

Schlesinger, M.E., King, M.J., Sole, K.C. and Davenport, W.G., 2011. *Extractive metallurgy of copper*, fifth Edition, Elsevier, p. 285-286.

Sheng, Q.T., Hua, N.G., Feng, W.J. and Feng, C.L., 2007. Kinetic process of oxidative leaching of chalcopyrite under low oxygen pressure and low temperature, *Transaction of Nonferrous Metals Society of China*, vol. 17, p. 418-422.

Smedt, F.D., Gendt, S. Heyns, M.M. and Vinckier C., 2001. The ozone solubility and its decay in aqueous solutions: crucial issues in ozonated chemistries for semiconductor cleaning, *Solid State Phenomena*, vol. 76-77, p. 211-214.