

Penggunaan abu terbang dalam penyingkiran logam berat daripada saluran lombong berasid

(Utilization of fly ash in heavy metal removal from acid mine drainage)

NUUR HANI MOHAMMED^{1,2,*}, WAN ZUHAIRI WAN YAACOB¹

¹ Program Geologi, Pusat Pengajian Sains Sekitaran dan Sumber Alam, Fakulti Sains dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 Bangi, Selangor, Malaysia

² No. 24, Jalan Kp 2/2 Taman Kota Perdana, Bandar Putra Permai, 43300 Seri Kembangan, Selangor, Malaysia

* Corresponding author email address: nuurhanimohammed@gmail.com

Abstrak: Saliran lombong berasid (SLB) mengandungi kepekatan logam berat bertoksik dengan keasidan yang tinggi. Kepekatan logam berat yang tinggi dalam SLB mempunyai potensi sebagai sumber pencemaran utama yang memberi kesan kepada kehidupan manusia, akuatik dan sumber semula jadi yang lain. Dalam kajian ini, penyingkiran logam berat telah dilakukan dengan menggunakan bahan sisa industri berkos rendah iaitu abu terbang. Keupayaan penjerapan abu terbang ditentukan dengan menggunakan dua kaedah iaitu penjerapan berkelompok dan ujian rawatan tangki. Kajian terhadap kesan kuantiti dos, pH dan kepekatan logam berat telah dilakukan. Abu terbang terdiri daripada mineral karbonat (>50%) yang berpotensi tinggi sebagai bahan penjerap untuk merawat saluran berasid. Kadar penjerapan maksimum bagi abu terbang berlaku pada nilai pH 5 bagi Pb, pH 7 bagi Zn dan pH 3 bagi Cu. Keupayaan penjerapan juga semakin meningkat dengan pertambahan dos. Abu terbang yang merupakan bahan beralkali tinggi akan merawat dan meneutralkan larutan SLB daripada fasa berasid (pH 2.11) kepada fasa neutral (pH 7.09). Peningkatan nilai pH semasa proses rawatan juga akan meningkatkan keupayaan penyingkiran logam berat.

Kata kunci: Abu terbang, saluran lombong berasid, logam, penjerapan, rawatan

Abstract: Acid mine drainage (AMD) contains very toxic heavy metal with strong acidity. The high concentration of heavy metals in AMD have the potential as a major contamination sources that affect human life, aquatic and other natural resources. In this study, the removal of heavy metals was carried out by using low-cost industrial waste material which is fly ash. The adsorption capacity of fly ash was determined by two methods which are batch adsorption and tank remediation test. The effects of quantity of dosage, pH and heavy metal concentration were investigated. Fly ash consist of carbonate minerals (>50%) with high potential as adsorbent material to treat acid mine. The maximum adsorption rate for fly ash occurred at pH 5 for Pb, pH 7 for Zn and pH 3 for Cu. Adsorption capacity also increased with increasing dose. Fly ash as high alkaline material remediated and neutralized AMD solution from acidic phase (pH 2.11) to neutral phase (pH 7.09). Increasing pH value during treatment process will increase the capacity of the removal of heavy metals.

Keywords: Fly ash, acid mine drainage, metals, adsorption, treatment

PENGENALAN

Saliran lombong berasid (SLB) merupakan salah satu pencemaran berpunca daripada industri perlombongan dan mineral terutamanya yang melibatkan pengoksidaan mineral sulfat (Jianping & Haitao, 2014). Kebiasaannya, larutan SLB mengandungi kepekatan logam terlarut dan sulfat yang tinggi dengan nilai pH serendah daripada pH 2 (Feng *et al.*, 2000). Saliran lombong berasid (SLB) terbentuk apabila bahan pembawa mineral sulfida terdedah kepada oksigen dan juga air (Johnson & Kevin, 2005; Kalin *et al.*, 2006; Rios *et al.*, 2008). Kebiasaannya pembentukan SLB berlaku dalam batuan beragregat logam sulfida (Akcil & Koldas, 2006). Walaupun proses pengoksidaan berlaku secara semula jadi, aktiviti perlombongan boleh menggalakkan penghasilan SLB melalui peningkatan kuantiti logam sulfida yang terdedah.

Abu terbang yang merupakan baki sisa dihasilkan daripada pembakaran bitumen atau sub-bitumen arang (lignit) dalam relau loji kuasa haba merupakan salah satu bahan penjerap yang mempunyai keupayaan untuk merawat air tercemar seperti SLB terutamanya dalam menyingkirkan logam berat (Taha, 2006). Selain itu, abu terbang dianggap sebagai bahan buangan hasil pembakaran bahan industri menunjukkan kecekapan yang efektif sebagai salah satu bahan perawat untuk menyingkirkan ion-ion terlarut yang terdapat dalam larutan (Panday *et al.*, 1985; Dasmahapatra *et al.*, 1996). Kehadiran logam-logam berat yang tinggi tanpa rawatan akan memberi kesan toksik kepada sekitaran akuatik. Pengetahuan berkaitan dengan peratus kandungan mineral dan tahap karbon tak terbakar yang terdapat dalam bahan abu terbang serta kualiti yang diperlukan membolehkan

pelbagai kajian pengubahsuaian dilakukan ke atas bahan ini untuk meningkatkan kualiti bahan sisa industri (Wang *et al.*, 2004). Oleh itu, kajian tentang kepentingan penggunaan abu terbang membawa kepada maklumat yang lebih menyeluruh berkenaan keberkesanan abu terbang terutamanya dalam proses penjerapan.

Proses penjerapan merupakan satu fenomena yang berlaku pada permukaan yang bergantung pada luas permukaan spesifik (LPK), kapasiti pertukaran kation (KPK) dan komposisi mineralogi bagi bahan penjerap yang dikaji (Kao *et al.*, 2000). Kajian mendapati semakin luas nilai LPK bahan penjerap, semakin tinggi kandungan karbon dan semakin halus saiz partikel akan meningkatkan sifat keupayaan penjerapan bagi bahan penjerap (Samson & Sanja, 2008).

Gitari *et al.* (2005) mendapati peratusan bahan alkali abu terbang juga tinggi seperti yang terdapat dalam bahan semula jadi seperti batu kapur yang berfungsi untuk meneutralkan keasidan saluran berasid. Kajian dijalankan untuk membuktikan keberkesanan bahan sisa industri seperti abu terbang sebagai bahan perawat yang sesuai untuk merawat saluran lombong berasid. Pencirian fizikal dan kimia juga telah dilakukan untuk menilai keupayaan penjerapan bahan abu terbang dalam merawat saluran lombong berasid (SLB) dan seterusnya mengkaji kecekapan bahan ini untuk menyingkirkan logam berat.

BAHAN DAN KAEDAH

Bahan kajian

Larutan saluran lombong berasid (SLB) yang digunakan dalam kajian ini diperolehi daripada kolam takungan (retention pond) yang terdapat di tapak lombong Cheng Yu (Bukit Besi, Dungun Terengganu). Sebanyak 20 L air kolam takungan dari tapak lombong yang berasid (nilai pH < 3) diambil dan disimpan dalam botol penyimpanan kedap udara untuk ujian rawatan tangki yang dilakukan di makmal. Sebelum itu, bacaan parameter fiziko-kimia air takungan dicatatkan dan direkodkan terlebih dahulu secara in-situ. Antara parameter yang diukur di makmal ialah nilai pH, kemasinan, jumlah pepejal terlarut dan konduktiviti yang diukur dengan menggunakan pH meter jenis Bench Top Five Easy (model Mettler Toledo). Manakala kepekatan logam berat diukur dengan menggunakan kaedah ICP-MS (*Inductively coupled plasma mass spectrometry*) dan kandungan anion yang terdapat dalam larutan saluran lombong berasid dianalisis menggunakan mesin kromatografi ion dan mesin HACH Model 2800. Bahan abu terbang yang digunakan dalam kajian ini merupakan bahan sisa industri pembakaran arang batu yang terdapat di Kg. Jimah, Port Dickson. Sebelum dianalisis, terlebih dahulu bahan abu terbang di ayak dengan menggunakan penapis bersaiz 0.063 µm untuk mendapatkan saiz partikel yang seragam dan sekata. Sebanyak 200 g abu terbang digunakan dalam ujian rawatan tangki manakala sebanyak 100 g lagi diperlukan untuk ujian penjerapan berkelompok.

Kajian

Pencirian mineralogi

Komposisi dan kandungan mineralogi serta unsur bagi bahan abu terbang ditentukan dengan menggunakan analisis spektrum XRD (skala 2 theta, Model D8 Advance/Bruker/2009) dan analisis XRF (Bruker/S8 Tiger/2009). Sebelum analisis XRD dan XRF dilakukan, sampel bahan perlu disediakan dalam bentuk pelet yang dipadatkan. Pelet sampel disediakan dengan memberi tekanan terhadap serbuk sampel menggunakan mesin penekan jenis silinder supaya permukaan sampel licin sebelum analisis XRD dan XRF dilakukan. Sampel abu terbang ditimbang sebanyak 9 g dan dimasukkan ke dalam set silinder dan kemudian pelet pengikat Geo-Quant (~2.7 g) dimasukkan di sekeliling dan menutupi sampel. Setelah itu, set silinder dilakukan tekanan sebanyak 15 ton tekanan untuk menghasilkan sampel berbentuk pelet.

Luas permukaan spesifik

Sebanyak 120 g CaCl₂ ditimbang dan dimasukkan ke dalam 1 L bikar dan dipanaskan dalam ketuhar selama 1 jam. Timbang 20 g EGME ke dalam 400 mL bikar (Cerato & Lutenegegerl, 2002). Keluarkan larutan CaCl₂ daripada ketuhar dan timbang sebanyak 100 g seterusnya dicampurkan ke dalam bikar yang mengandungi EGME dan dikacau. Setelah sejuk, simpan campuran larutan di bahagian dasar desikator supaya tindak balas semasa proses vakum berlaku dengan sekata. Sebanyak 1 g sampel kering dimasukkan ke dalam piring petri aluminium yang telah ditimbang. Sampel bersama piring aluminium diletakkan di atas piring petri bertutup yang dibuat lubang berdiameter 2 mm. Piring petri yang mengandungi sampel dimasukkan ke dalam desikator yang mengandungi silika gel biru. Sampel ditimbang setiap satu jam sehingga satu jisim tetap diperolehi. Setelah jisim tetap diperolehi, 3 mL ethylene glycol methyl ether (EGME) dipipet menutupi permukaan sampel dan dibiarkan selama satu jam untuk mencapai takat keseimbangan. Seterusnya, dengan menggunakan bekas desikator yang lain, bahagian dasar desikator digantikan dengan 130 g leburan CaCl₂-EGME. Sampel yang berada di dalam piring petri tadi di letakkan ke dalam bekas desikator yang mengandungi campuran leburan CaCl₂-EGME. Desikator ini disambungkan dengan pam vakum (tekanan lebih kurang 635 mmHg) dan sampel divakum selama satu jam. Kemudian sampel dibiarkan mencapai keseimbangan selama satu jam. Sampel ditimbang sehingga mencapai jisim yang tetap.

Kapasiti pertukaran kation

Larutan ammonium asetat 1.0 N disediakan dengan memasukkan campuran 350 mL air suling, 57 mL asid asetat dan 68 mL ammonium hidroksida ke dalam bikar. Larutan diselaraskan dengan nilai pH 7.0 dengan menggunakan asid asetik dan ammonium hidroksida dan diaduk menggunakan pengaduk magnetik. Setelah itu, bikar dipenuhkan 500 mL dengan air suling. Penyediaan sampel dilakukan dengan

menimbang sebanyak 4 gram sampel dan dimasukkan ke dalam tiub empar. Sebanyak 33 mL larutan ammonium asetat dimasukkan ke dalam tiub dan digoncang selama 24 jam dengan pengaduk mekanikal 200 rpm sebelum diempar dengan mesin pengempar (jenis Sartorius) selama 15 minit. Cecair jernih ditapis dengan kertas turas (Whatman berliang 0.45 μm) dan cecair effluen yang jernih dimasukkan ke dalam kelalang berisipadu 100 mL dan dipenuhi dengan air suling. Semua cecair dianalisis menggunakan alat Spektrometer Serapan Atom (Ca²⁺, Mg²⁺, Na⁺, K⁺ dan Fe³⁺).

Ujian penjerapan berkelompok

Terdapat dua faktor yang dikaji dalam ujian penjerapan berkelompok iaitu faktor nilai pH dan faktor kuantiti dos. Faktor pH yang dikaji dalam ujian penjerapan berkelompok iaitu 1, 3, 5, 7, 9, 11 dan 13 manakala faktor kuantiti dos yang digunakan iaitu 0.25 g, 0.5 g, 0.75 g, 1.0 g, 1.25 g, 1.5 g, 1.75 g dan 2.0 g. Langkah penyediaan sampel bagi faktor pH dimulakan dengan memasukkan 4 g abu terbang ke dalam tiub emparan bersama-sama 40 mL larutan pencemar (campuran logam Pb, Zn dan Cu) dan labelkan setiap tiub emparan. Nilai pH direkodkan pada setiap tiub emparan. Tiub emparan yang telah disediakan kemudian digoncang dengan menggunakan mesin penggoncang Junior Orbital Shaker selama 24 jam pada suhu bilik 25 °C. Tiub emparan ditempatkan dalam mesin emparan selama 15 minit pada kelajuan 2500 rpm. Setelah selesai proses emparan, cecair jernih dipipet keluar dan ditapis dengan menggunakan kertas turas membran 0.45 μm. Larutan akhir yang diperolehi kemudian dicairkan dengan menggunakan nisbah pencairan 1:10 dan dianalisis melalui kaedah ICP-MS. Proses penyediaan larutan diulang bagi faktor kuantiti dos dengan menggunakan nilai kuantiti dos yang dipilih. Isoterm serapan diplot di antara (q;mg/g) melawan keseimbangan kepekatan, C (mg/L). Nilai q_e akan dikira dengan menggunakan persamaan di bawah:

$$q_e = \frac{(C_o - C_c) V}{M}$$

q_e = Jumlah unsur pencemar dijerap per jisim penjerap daripada larutan (mg/g)

C_o = Kepekatan unsur pencemar dalam larutan sebelum ditambah dalam sampel (mg/L)

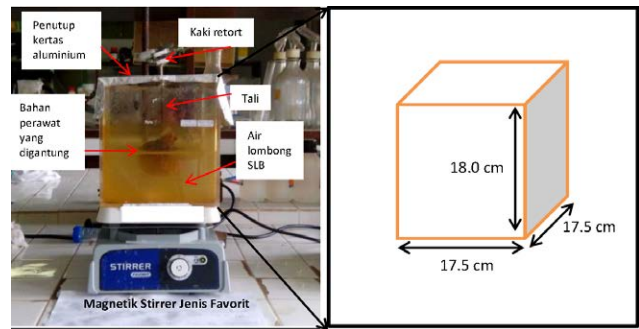
C_c = Kepekatan dalam keseimbangan yang tertinggal dalam larutan selepas ujian (mg/L)

V = Isi padu yang digunakan (L)

M = Jisim bahan penjerap yang digunakan (g)

Ujian rawatan tangki

Rekaan saiz tangki yang digunakan bagi ujian tangki 1:20 ialah dengan ukuran isi padu 18.0 sm x 17.5 sm x 17.5 sm direka dengan menggunakan bahan asas iaitu plastik silika berketebalan 3 sm (Rajah 1). Sebanyak 200 g bahan perawat digunakan untuk merawat 4000 mL air saluran



Rajah 1: Rekaan dan kedudukan ujian tangki bagi kaedah rawatan air lombong (Gambar sebelah kanan merupakan skema gambar rajah bagi ukuran tangki).

lombong Bukit Besi (bagi nisbah 1:20) selama 50 hari. Bahan perawat abu terbang dimasukkan ke dalam kain putih kemudian diikat sepenuhnya sebelum digantung pada kaki retort. Perubahan nilai pH dan kepekatan logam berat direkodkan dari mula sehingga akhir rawatan dijalankan.

HASIL DAN PERBINCANGAN
Pencirian saluran lombong berasid (SLB)

Jadual 1 menunjukkan hasil keputusan analisis *ex-situ* seperti nilai pH, konduktiviti, jumlah pepejal terlarut (TDS), dan kemasinan serta kepekatan kation dan anion (Jadual 2) yang terdapat dalam larutan SLB bagi tapak lombong bijih pirit di Bukit Besi. Hasil analisis air lombong dalam kolam takungan mendapati air berada dalam keadaan berasid

Jadual 1: Parameter *ex-situ* larutan SLB yang terdapat di Bukit Besi.

Bil.	Parameter	Nilai
1	pH	2.11
2	Konduktiviti(μs/sm)	2660
3	TDS(mg/L)	1327.67
4	Kemasinan(p.s.u)	1.37

Jadual 2: Analisis kepekatan logam berat dan kandungan anion (mg/L) bagi larutan SLB.

Bil.	Unsur	Kepekatan (mg/L)
1	Fe	82.2
2	Mn	19.97
3	Ni	0.09
4	Zn	0.83
5	Cd	0.01
6	Cu	1.07
7	Sulfat	4455.87
8	Klorida	2.46

dengan nilai pH 2.11 manakala nilai konduktiviti dan TDS yang direkodkan juga adalah tinggi dengan nilai 2660 $\mu\text{S}/\text{sm}$ dan 1327.67 mg/L. Nilai pH yang berasid dan nilai konduktiviti dan TDS yang tinggi dipengaruhi oleh tindak balas kimia mineral pirit yang terdapat di tapak lombong. Jenkins *et al.* (2000) menyatakan bahawa saluran lombong berasid berlaku disebabkan proses luhulawa mineral pirit yang dioksida menghasilkan air yang sangat berasid ($< \text{pH } 3$). Kajian Liew & Sheppard (2001) mendapati bahawa nilai konduktiviti tinggi dengan nilai pH yang rendah di dalam persekitaran SLB sangat berkait rapat dengan kandungan sulfat, kehadiran pepejal terlarut serta kepekatan logam. Kandungan logam berat yang terdapat dalam sampel air lombong adalah tinggi terutamanya bagi logam Fe (82.2 mg/L), Mn (19.97 mg/L) dan Cu (1.07 mg/L). Manakala jumlah kepekatan bagi Ni, Zn dan Cd adalah kurang daripada 1 mg/L ($< 1 \text{ mg/L}$). Larutan SLB yang terdapat di tapak lombong juga mengandungi ion sulfat yang tinggi iaitu 4455.87 mg/L. Merujuk kepada Malin *et al.* (2015), saluran yang terbentuk daripada batuan yang kaya dengan logam sulfida akan menyebabkan gangguan pada alam sekitar melalui pembentukan sulfat yang tinggi serta pencemaran logam berat. Logam terlarut dan bahan-bahan berkaitan yang lain di dalam air SLB boleh menjadi sangat bertoksik kepada hidupan akuatik dan juga organisma daratan. Umumnya, ketoksikan bagi elemen terlarut meningkat dengan peningkatan kepekatan kehadiran logam (Smith & Huyck, 1999).

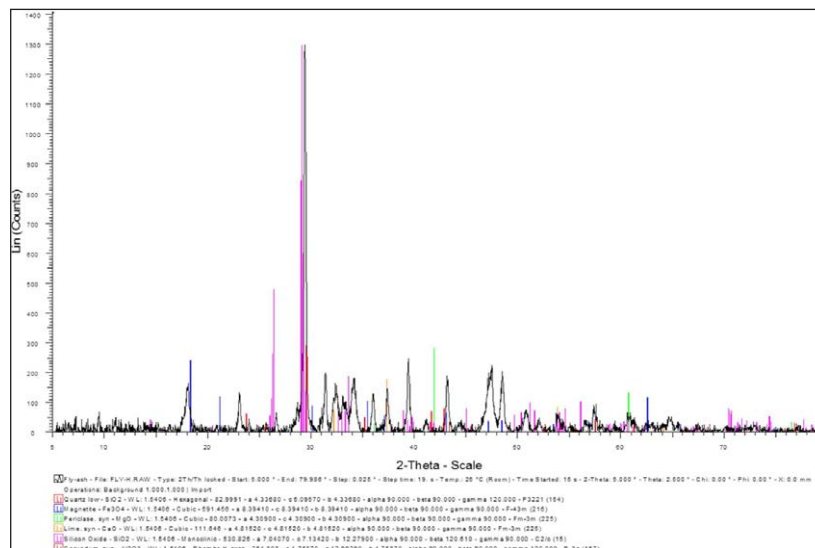
Analisis mineral abu terbang

Hasil analisis XRD mendapati bahan abu terbang terdiri daripada $>50\%$ kandungan CaO yang bersifat alkali merupakan komponen karbonat utama dalam penutralan asid (Rajah 2). Analisis XRF menunjukkan sampel abu terbang didominasi oleh mineral karbonat iaitu kalsit yang

bersifat alkali serta mineral kuarza. Selain itu, terdapat juga mineral mullit dan hematit dalam sisa abu terbang. Selain komponen CaO (59.24%) dan SiO₂ (18.88%), komposisi utama lain yang turut terdapat dalam sisa abu terbang antaranya ialah Al₂O₃ (10.35%), MgO (4.34%) dan SO₃ (2.91%) (Jadual 3). Berdasarkan EPA (1986), mineral seperti kalsit, silika amorfus, hematit, kuarza, mullit, dan oksida logam cenderung untuk wujud bersama-sama dengan abu terbang alkali. Selain itu, bahan abu terbang mempunyai luas

Jadual 3: Hasil keputusan analisis peratus komposisi mineral yang terdapat dalam abu terbang.

Formula	Abu Terbang
SiO ₂	18.88
CaO	59.24
Al ₂ O ₃	10.35
Fe ₂ O ₃	5.87
MgO	4.34
SO ₃	2.91
TiO ₂	0.44
MnO	0.09
ZrO ₂	0.02
SrO	0.05
P ₂ O ₅	0.18
Na ₂ O	0.29
CuO	0.06
ZnO	0.03
K ₂ O	0.35
WO ₃	-

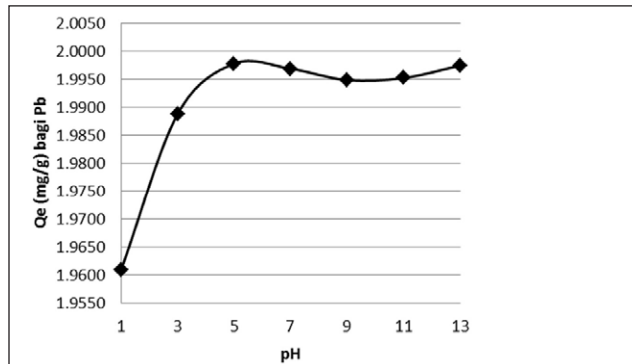


Rajah 2: Analisis spektrum XRD bagi sampel FA.

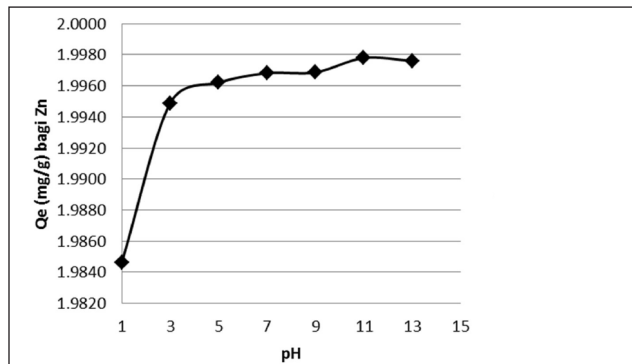
permukaan spesifik (373.104 m²/g) dengan nilai KPK yang direkodkan iaitu 28.96 meq/100g. Jumlah luas permukaan spesifik yang tinggi dan diameter liang yang kecil merupakan faktor penting bagi mengkaji kecekapan penyingkiran logam oleh bahan penjerap (Jianping & Haito, 2014).

Ujian penjerapan berkelompok

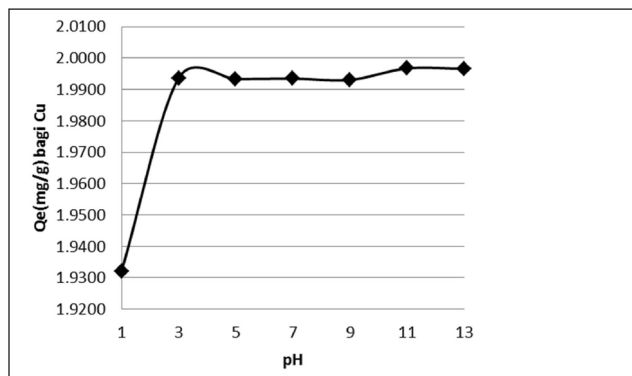
Graf penjerapan logam berat, q_e (mg/g) melawan nilai pH untuk setiap logam berat (Pb, Zn dan Cu) ditunjukkan pada Rajah 3, Rajah 4 dan Rajah 5, manakala Rajah 6



Rajah 3: Graf penjerapan abu terbang dengan Qe (mg/g) melawan faktor pH bagi logam berat Pb.



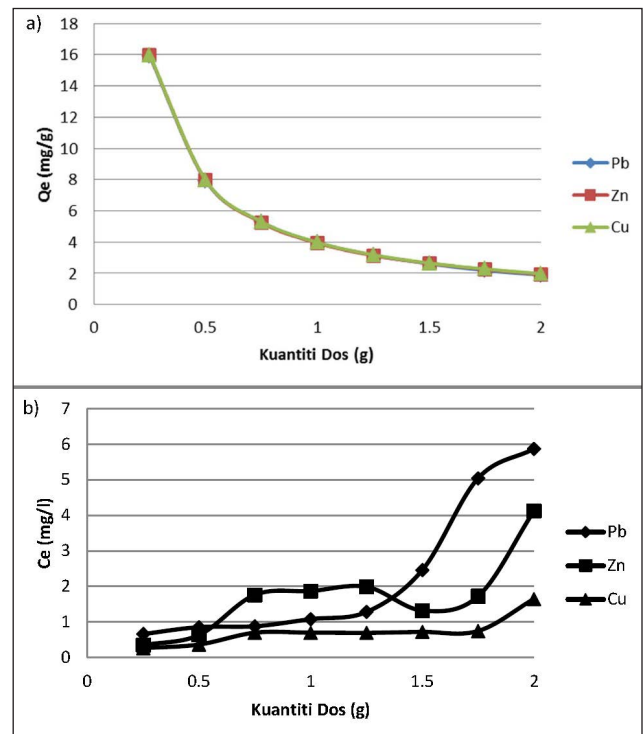
Rajah 4: Graf penjerapan abu terbang dengan Qe (mg/g) melawan faktor pH bagi logam berat Zn.



Rajah 5: Graf penjerapan abu terbang dengan Qe (mg/g) melawan faktor pH bagi logam berat Cu.

menunjukkan graf penjerapan logam berat bagi kuantiti dos. Seperti yang ditunjukkan oleh Rajah 3, kadar penjerapan logam berat Pb bagi abu terbang berlaku lebih tinggi pada nilai pH 5. Pada nilai pH 1 hingga 7, terdapat sedikit kenaikan lengkung bagi penjerapan logam berat Zn berbanding penjerapan logam berat Cu yang paling maksimum pada nilai pH 3 bagi bahan abu terbang (Rajah 4 dan Rajah 5). Apabila pH meningkat, lebih banyak ion hidroksil akan hadir yang membentuk pemendakan pada permukaan larutan (Chen *et al.*, 2011). Nilai pH larutan boleh menjejaskan sifat keelektrikan pada permukaan abu terbang, kekuatan ion dan ion-ion logam yang hadir dalam larutan. Pada keadaan sangat berasid, ion H⁺ akan bertindak meneutralkan anhidrida yang terdapat pada permukaan abu terbang seterusnya akan mengurangkan keupayaan penjerapan bagi abu terbang. Manakala di bawah keadaan sangat berkali, berlaku pemendakan seterusnya akan menghalang proses penjerapan.

Secara keseluruhannya, berdasarkan keputusan kesan kuantiti dos terhadap keupayaan penyingkiran logam berat (Pb, Cu dan Zn) mendapati kadar pengambilan (uptake rate) logam berat semakin berkurang dari 16.0 mg/g kepada 2.0 mg/g dengan penambahan kuantiti dos bahan penjerap yang digunakan. Keupayaan penjerapan logam berat bagi penjerap abu terbang secara umumnya akan menurun apabila dos jisim bertambah, manakala kecekapan penjerap menyingkirkan ion-ion logam akan semakin meningkat (Syakirin *et al.*, 2015). Penurunan graf lengkung secara mendadak pada



Rajah 6: Kadar kecekapan penjerapan (Qe dan Ce melawan kuantiti dos) bagi logam berat Pb, Zn dan Cu. a) Qe (mg/g) melawan kuantiti dos, b) Ce (mg/l) melawan kuantiti dos.

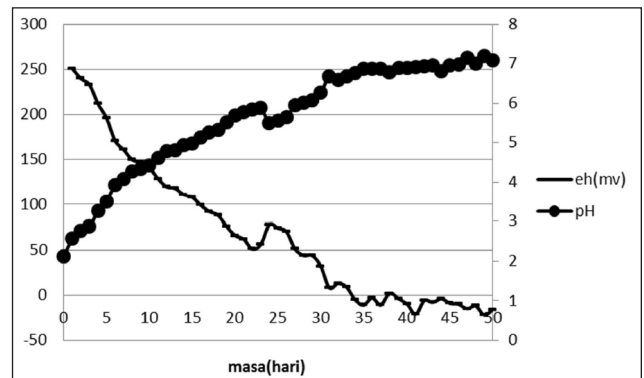
permulaan kerana berlakunya penyingkiran logam secara pesat akibat tindakan permukaan penjerap yang menyediakan tapak yang lebih aktif untuk penjerapan logam berat Pb, Cu dan Zn (Kumar & Kirthika, 2009). Merujuk kepada Rajah 6a, keupayaan penjerapan berkurangan secara mendadak apabila menggunakan kuantiti dos yang paling sedikit iaitu 0.25 g sehingga menghampiri keupayaan yang malar apabila kuantiti dos ditambah. Secara kesimpulan, kuantiti dos bahan penjerap yang bertambah akan meningkatkan kadar penjerapan dan akan mencapai tahap keseimbangan apabila mencapai jumlah yang paling optimum (Rajah 6b). Berdasarkan graf kadar penjerapan logam terpilih didapati bahawa kadar penjerapan bagi logam terpilih Pb apabila dirawat dengan abu terbang menunjukkan kadar penjerapan yang lebih tinggi apabila kuantiti dos ditambah sehingga 1.5 g dan 2 g dos. Peningkatan kadar penjerapan bertambah dengan penambahan kuantiti dos yang digunakan sehingga mencapai keseimbangan di antara ion logam yang terjerap dengan permukaan bahan abu terbang (Eleonora & Jan, 2015).

Ujian rawatan tangki

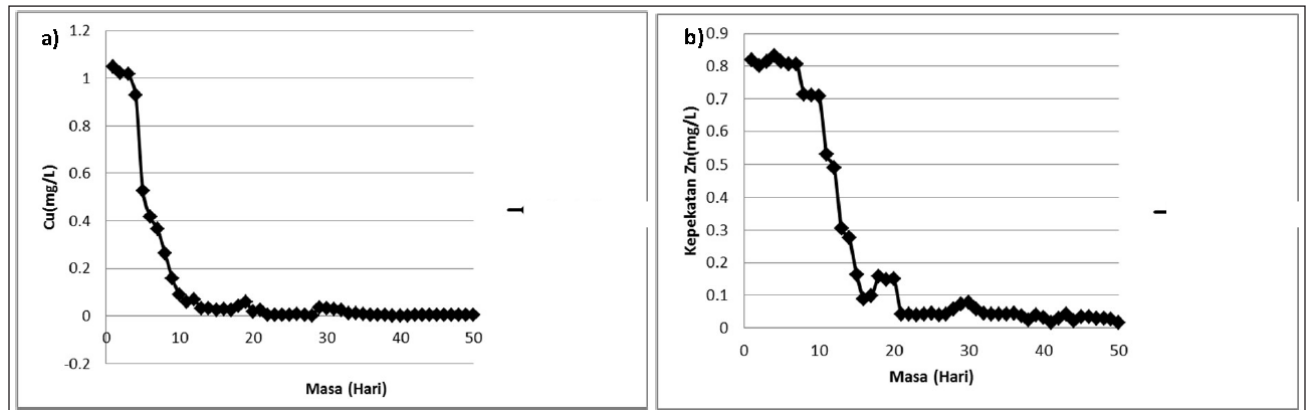
Corak perubahan graf nilai pH bagi rawatan tangki menggunakan nisbah 1:20 menunjukkan peningkatan secara perlahan-lahan pada permulaan rawatan sehingga ke hari akhir uji kaji yang dilakukan selama 50 hari. Nilai potensi penurunan (eH) pula berkadar songsang dengan perubahan nilai pH yang menunjukkan penyusutan sehingga ke hari akhir rawatan SLB dilakukan. Rajah 7 menunjukkan peningkatan nilai bacaan pH secara berterusan selama 50 hari bagi ujian rawatan dengan nisbah 1:20. Berdasarkan Rajah 7, berlaku peningkatan secara mendadak daripada pH 2.12 kepada 4.09 bagi abu terbang selepas 7 hari rawatan dijalankan. Corak perubahan nilai pH selepas 7 hari bagi tangki dengan bahan penjerap abu terbang meningkat secara berterusan sehingga ke hari-23 dengan nilai pH 5.88 sebelum menyusut sedikit pada hari-24 dengan nilai pH 5.5 sehingga mencapai bacaan pH 7.09 pada hari akhir proses rawatan. Hasil kajian daripada Gitari *et al.* (2005), mendapati bahawa pada hari tertentu rawatan dijalankan, nilai pH didapati sekata

dan tidak berubah apabila menghampiri fasa neutral. Nilai pH adalah mendatar pada hari tertentu disebabkan oleh sistem telah mencapai tahap ketepuan. Rajah 7 juga menunjukkan pada permulaan rawatan SLB sehingga hari-7, bacaan eH bagi rawatan tangki menurun secara mendadak dengan setiap kenaikan bacaan pH iaitu daripada 261 mV kepada 161 mV. Nilai eH pada hari terakhir rawatan dijalankan bagi nisbah 1:20 ialah -16 mV. Pada keadaan berasid dengan nilai pH yang rendah, keadaan penurunan sulfat adalah berhubung kait dengan potensi pengoksidaan-penurunan yang lebih positif (Clinton *et al.*, 2007).

Rajah 8 merupakan graf perubahan kepekatan logam Cu dan Zn dalam rawatan tangki bagi nisbah 1:20. Nilai kepekatan awal logam Cu yang direkodkan ialah 1.07 mg/L. Rajah 8(a) menunjukkan kepekatan Cu bagi abu terbang menyusut secara mendadak dari 1.07 mg/L kepada 0.031 mg/L pada hari ke-13 sebelum mencapai keseimbangan penjerapan dengan nilai kepekatan akhir iaitu 0.003 mg/L pada hari ke-50 rawatan. Kajian daripada Hajarnavis & Bhide (2001) membuktikan bahawa abu terbang menunjukkan ciri-ciri penjerap yang baik untuk menyingkirkan Cu daripada larutan yang melibatkan kadar penyingkiran Cu yang maksimum melalui penjerapan permukaan dan penyebaran



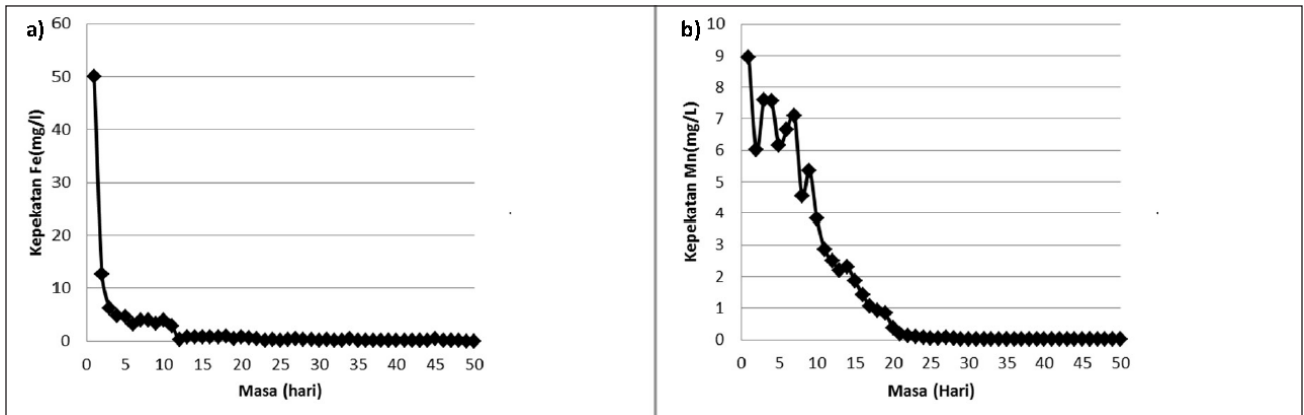
Rajah 7: Perubahan nilai pH dan nilai eH bagi ujian rawatan SLB menggunakan bahan penjerap abu terbang dengan nisbah 1:20 selama 50 hari.



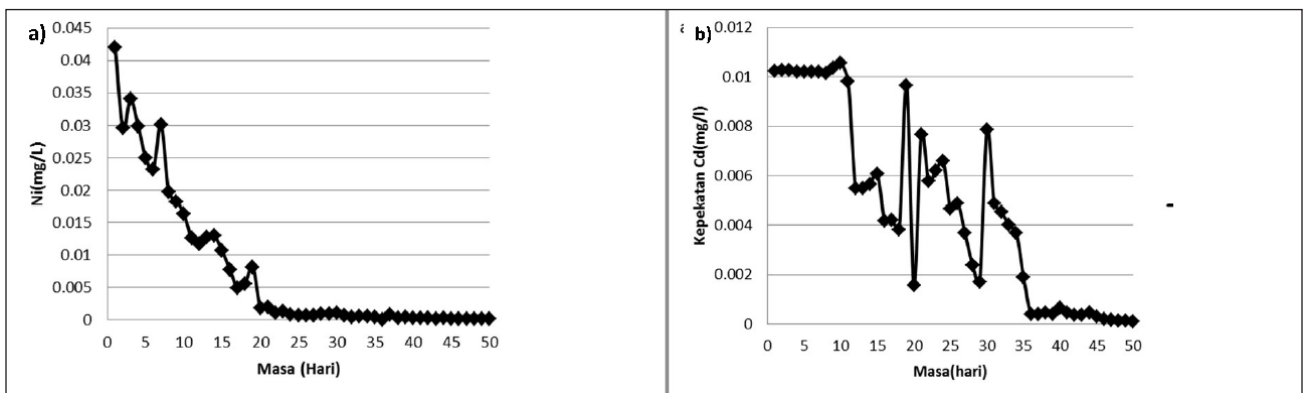
Rajah 8: Penyingkiran logam berat a) kuprum (Cu) dan b) zink (Zn) bagi rawatan tangki SLB selama 50 hari.

antara permukaan. Rajah 8 (b) merupakan graf perubahan penyingkiran logam Zn bagi bahan penjerap abu terbang dan nilai kepekatan awal bagi logam Zn ialah 0.83 mg/L. Pola penyingkiran logam Zn bagi rawatan dengan abu terbang dengan nisbah 1:20 lebih perlahan pada permulaan rawatan sehingga hari ke-7 sebelum berkurangan secara mendadak pada hari ke-16 dari 0.83 mg/L kepada 0.088 mg/L. Terdapat sedikit peningkatan kepekatan Zn pada hari ke-18 (0.159 mg/L) dan selepas itu nilai kepekatan berkurang secara konsisten sehingga mencapai kepekatan akhir iaitu 0.016 mg/L. Merujuk kepada Chen *et al.* (2011), apabila nilai pH bagi larutan terlalu tinggi, logam yang tersimpan ($Zn(OH)_2$ dan $Pb(OH)_2$) akan terlarut dan oleh itu keupayaan penyingkiran akan menurun. Nilai kepekatan awal bagi logam Fe ialah 82.203 mg/L bagi tangki dengan nisbah 1:20 (Rajah 9(a)). Hasil analisis mendapati seawal hari ke-4, kepekatan logam Fe telah berkurangan secara mendadak daripada 82.203 mg/L kepada 4.744 mg/L. Nilai kepekatan akhir yang diperoleh adalah 0.026 mg/L. Rawatan SLB dengan menggunakan bahan industri yang terdiri daripada Ca yang tinggi seperti terkandung dalam abu terbang membolehkan penghapusan logam Fe, Al dan As lebih cepat dan berkesan (Eva *et al.*, 2013). Rajah 9(b) pula merupakan graf perubahan kepekatan bagi logam Mn dengan

nilai kepekatan awal yang dicatatkan ialah 19.97 mg/L. Pola graf bagi rawatan dengan nisbah 1:20 menunjukkan corak perubahan yang tidak konsisten pada awal tindak balas. Pola perubahan kepekatan Mn dengan bahan penjerap abu terbang menunjukkan keberkesanan yang lebih efektif untuk menyingkirkan logam berat Mn dapat diperhatikan pada permulaan hari sehingga hari ke-21 (daripada 19.97 mg/L kepada 0.191 mg/L). Selepas hari ke-21, kepekatan Mn lebih sekata yang ditunjukkan oleh pola graf yang mendatar sehingga memperoleh kepekatan terakhir iaitu 0.002 mg/L. Rajah 10(a) menunjukkan graf pola perubahan kepekatan bagi logam Ni dengan nilai kepekatan awal yang dicatatkan ialah 0.09 mg/L. Berdasarkan pola perubahan kepekatan Ni yang diperoleh, didapati bahawa rawatan dengan menggunakan abu terbang bagi nisbah 1:20 lebih efektif untuk menyingkirkan logam Ni. Seawal hari ke-20, hampir 90% logam Ni telah disingkirkan dengan nilai kepekatan 0.002 mg/L sehingga kepekatan akhir diperoleh iaitu 0.0001 mg/L. Hasil analisis mendapati peratus penyingkiran logam adalah disebabkan oleh keupayaan pengekalan bagi bahan penjerap yang bergantung pada ciri-ciri fizikal dan kimia bahan (Begona & Julia, 2009). Rajah 10(b) merupakan graf profil perubahan kepekatan bagi logam Cd dengan nilai kepekatan awal yang amat rendah dicatatkan iaitu



Rajah 9: Penyingkiran logam berat a) ferum (Fe) dan b) mangan (Mn) bagi rawatan tangki SLB selama 50 hari.



Rajah 10: Penyingkiran logam berat a) nikel (Ni) dan b) kadmium (Cd) bagi rawatan tangki SLB selama 50 hari.

0.01 mg/L. Corak perubahan pola penyingkiran logam Cd menunjukkan pola yang kurang konsisten disebabkan kepekatan logam yang terdapat dalam larutan SLB adalah terlalu sedikit. Penyingkiran berlaku dengan pesat pada hari ke-12 bagi abu terbang dari 0.01 mg/L kepada 0.006 mg/L, manakala pada hari ke-36, kepekatan Cd mula stabil sehingga mencapai nilai kepekatan akhir iaitu 0.0001 mg/L.

KESIMPULAN

Kajian ini menunjukkan bahawa air lombong yang dikaji mempunyai ciri-ciri air yang tercemar dengan saliran lombong berasid (Interim National Water Quality Standard For Malaysia, INWQS). Antaranya ialah mempunyai nilai pH yang rendah iaitu pH 2.11 dengan nilai konduktiviti yang tinggi dengan nilai 2660 $\mu\text{s}/\text{sm}$. Selain itu, air lombong juga tercemar dengan kepekatan logam berat yang tinggi seperti Fe (82.2 mg/L), Mn (19.97 mg/L) dan Cu (1.07 mg/L) dan kandungan ion sulfat yang melebihi 4000 mg/L. Hasil kajian makmal juga mendapati bahan abu terbang mempunyai ciri-ciri sebagai bahan penjerap efektif yang berpotensi untuk merawat saliran lombong berasid. Abu terbang terdiri daripada komposisi kimia yang utama iaitu mineral kalsit CaCO_3 melebihi 50% yang merupakan bahan kapur yang bersifat alkali. Bahan karbonat merupakan elemen penting bagi abu terbang yang bertindak meneutralkan asid yang terdapat dalam saliran lombong berasid. Nilai LPS (373.104 m^2/g) dan KPK (28.96 meq/100g) yang tinggi turut memainkan peranan penting bagi bahan penjerap abu terbang dalam menyingkirkan logam berat. Hasil ujian penjerapan menunjukkan kadar penjerapan maksimum bagi Pb adalah pada nilai pH 5. Manakala kadar penjerapan maksimum bagi Zn adalah pada nilai pH 7 dan Cu pada nilai pH 3. Pada keadaan sangat berasid, ion H^+ akan bertindak meneutralkan anhidrida yang terdapat pada permukaan abu terbang seterusnya akan mengurangkan keupayaan penjerapan bagi abu terbang (Cho *et al.*, 2005). Kuantiti dos bahan penjerap yang semakin bertambah akan meningkatkan kadar penjerapan dan akan menghampiri keupayaan malar dan stabil apabila mencapai keupayaan paling maksimum. Rawatan SLB dengan menggunakan bahan penjerap abu terbang mendapati nilai pH air lombong yang dirawat meningkat sehingga mencapai nilai pH akhir iaitu pH 7.09. Dengan peningkatan nilai pH semasa rawatan dijalankan, kadar penyingkiran logam juga menunjukkan peningkatan. Apabila nilai pH menghampiri fasa neutral, kadar penyingkiran mencapai tahap maksimum sehingga 99% bagi kesemua logam berat. Sebagai kesimpulan, abu terbang boleh digunakan sebagai bahan penjerap yang berkesan untuk menyingkirkan logam berat seperti Fe, Cu, Zn, Mn, Cd dan Ni. Abu terbang juga bersifat alkali, mudah didapati dan berkos rendah bertindak membantu meneutralkan air yang berasid secara semula jadi tanpa sebarang kesan sampingan.

PENGHARGAAN

Penulis merakamkan setinggi penghargaan kepada Kementerian Pengajian Tinggi dan geran Fakulti Sains dan Teknologi untuk bantuan kewangan (Dana Fundamental Research Grant Scheme No. Projek: FRGS/1/2012/STWN06/UKM/02/2). Kami juga menghargai sumbangan pihak CRIM UKM dalam menganalisis sampel kajian dan para pewasit diatas cadangan penambahbaikan.

SUMBANGAN PENGARANG

NHM menentukan konsep dan rekabentuk, membuat interpretasi dan penulisan tajuk baharu yang dicadangkan; Penggunaan abu terbang dalam penyingkiran logam berat daripada saliran lombong berasid, manakala WZWY menyelia serta menyediakan kemudahan sampingan bagi tujuan penyelidikan.

KONFLIK KEPENTINGAN

Para pengarang tidak mempunyai konflik kepentingan yang berkaitan dengan kandungan artikel ini untuk diisytiharkan.

RUJUKAN / REFERENCES

- Akcil, A. & Koldas, S., 2006. Acid Mine Drainage (AMD): causes, treatment and case studies. *Journal of Cleaner Production*, 14 (12-13), 1139-1145.
- Begona, F.P. & Julia, A.E., 2009. Evaluation of fly ashes for the removal of Cu, Ni and Cd from acidics water. *Dyna*, 161, 141-147.
- Cerato, A. B. & Lutenegegerl, A. J., 2002. Determination of surface area of fine-grained soils by the Ethylene Glycol Monoethyl Ether (EGME) method. *Geotechnical Testing Journal*, 25(3), 315-321.
- Chen, X., Hou, W.H., Song, G.L. & Wang, Q.H., 2011. Adsorption of Cu, Cd, Zn and Pb ions from aqueous solutions by electric arc furnace slag and the effects of pH and grain size. *Chemical Biochemical Engineering*, 25(1), 105-114.
- Cho, H., Oh, D. & Kim, K., 2005. A study on removal characteristics of heavy metals from aqueous solution by fly ash. *Journal of Hazardous Materials*, 27, 187-195.
- Clinton, D.C., Richard, T.W., Charles, N.A., Robert, R.O. & Blaine, M., 2007. Microbial sulfate reduction and metal attenuation in pH 4 acid mine water. *Geochemical Transactions*, 8(10), 1186.
- Dasmahapatra, G.P., Pal, T.K., Bhadra, A.K. & Buhattacharya, B., 1996. Studies on separation characteristics of hexavalent chromium from aqueous solution by fly ash. *Separation Science and Technology*, 31, 2001-2009.
- Eleonora, S. & Jan, K., 2015. Removal of Copper(II) and Zinc(II) Ions from Aqueous Solution by Chemical Treatment of Coal Fly Ash. *Croat. Chem. Acta*, 88(3), 267-279.
- Environmental Protection Agency (EPA), 1986. Stabilization/solidification of Hazardous waste, EPA/600/D - 86/028, Industrial Environmental Research Lab, Cincinnati, OH, USA.
- Eva, M., Marian, S., Petra, P., Branislav, M. & Peter, S., 2013. Metals recovery from acid mine drainage and possibilities for their utilization. *Pollution Journal Environment Study*, 22(4), 1111-1118.

- Feng, D., Aldrich, C. & Tan, H., 2000. Treatment of acid mine water by use of heavy metal precipitation and ion exchange. *Journal Minerals Engineering*, 13, 623-625.
- Gitari, W.M., Somerset, V.S., Petrik, L.F., Key, D., Iwouha, E. & Okujeni, C., 2005. Treatment of acid mine drainage with fly ash: removal of major, minor element, SO₄ and utilization of the solid residues for wastewater treatment. *World of Coal Ash Conference*, April 11-15, 2005, Lexington, Kentucky, USA.
- Hajarnavis, M.R. & Bhide, A.D., 2001. Removal of copper by adsorption on fly ash. *Journal of Scientific & Industrial Research*, 60, 564-573.
- Jenkins, D.A., Johnson, D.B. & Freeman, C., 2000. Mynydd Parys Cu-Pb-Zn mines: mineralogy, microbiology and acid mine drainage. In: Cotter-Howells, J.D., Campbell, L.S., Valsami-Jones, E. & Batchelder, M. (Eds.), *Environmental mineralogy: microbial interactions, anthropogenic influences, contaminated land and waste management. The Mineralogy Society Series no.9*. Mineralogical Society, London, UK. Pp. 161-180.
- Jianping, X. & Haitao, W., 2014. Study on the treatment of acid mine wastewater by coal fly ash. *Proceedings of the International Conference on Material and Environmental Engineering*, 150-153.
- Johnson, D.B. & Kevin, B.H., 2005. Acid mine drainage remediation options: a review. *Science of the Total Environment*, 338, 3-14.
- Kalin, M., Fyson, A. & Wheeler, W.N., 2006. The chemistry of conventional and alternative treatment systems for the neutralization of acid mine drainage. *Science Total Environment*, 366, 395-408.
- Kao, P.N., Tzeng, J.H. & Huang, T.L., 2000. Removal of chlorophenols from aqueous solution by fly ash. *Journals of Hazardous Materials*, 76, 237-249.
- Kumar, P. S. & Kirthika, K., 2009. Equilibrium and kinetics study of adsorption of nickel from aqueous solution onto bael tree leaf powder. *Journal of Engineering Science and Technology*, 4(4), 351-363.
- Liew, D. & Sheppard, J., 2001. Use of conductivity to monitor the treatment of acid mine drainage and sulphate-reducing bacteria. *Water Resource*, 35(8), 2081-2086.
- Malin, B., Mona, A. & Paivi, K., 2015. Characterization of the bacterial and sulphate reducing community in the alkaline and constantly cold water of the closed Kotalahti mine. *Minerals*, 5, 452-472.
- Nematollah, J., Nezamaddin, M. & Mina, H., 2014. Adsorption of Zn (II) from aqueous solution by using chitin extracted from crustacean shell. *J. Adv. Environ. Health Res.*, 2(2), 110-119.
- Panday, K.K., Prasad, G. & Singh, V.N., 1985. Copper (II) removal from aqueous solution by fly ash. *Water Research*, 19, 869-873.
- Ríos, C.A., Williams, C.D. & Roberts, C.L., 2008. Removal of heavy metals from acid mine drainage (AMD) using coal fly ash, natural clinker and synthetic zeolites. *Journal Hazard Material*, 156, 23-35.
- Samson, O.B. & Sanja, P.V., 2008. Evaluation and treatment of coal fly ash for adsorption application. *Leonardo Electronic Journal of Practices and Technologies*, 12, 37-48.
- Smith, K.S. & Huyck, H.L.O., 1999. An Overview of The Abundance, Relative Mobility, Bioavailability, and Human Toxicity of Metals. In: Plumlee, G. S. & Logsdon, M. J., (Eds.), *The environmental geochemistry of mineral deposits - Part A. Processes, methods, and health issues: Reviews in Economic Geology*, 6A, 29-70.
- Syakirin, M.Z., Faradiella, M.K. & Nurjaliah, M., 2015. Manganese removal from aqueous solution by steel slag: Kinetic and Equilibrium Studies. *IJSRSET151491*, (1)5, 20-29.
- Taha, G.M., 2006. Utilization of low-cost waste material bagasse fly ash in removing of Cu²⁺, Ni²⁺, Zn²⁺, and Cr³⁺ from industrial waste water. *Ground Water Monitoring & Remediation*, 26(4), 137-141.
- Wang, S., Boyjoo, Y., Choueib, A. & Zhu, J., 2004. Utilization of fly ash as low cost adsorbents for dye removal. *Chemeca 2004*, 26-29 September, Sydney.

*Manuscript received 7 August 2020;
Received in revised form 22 December 2020;
Accepted 11 January 2021
Available online 19 May 2022*