

Urania

Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir

Beranda jurnal: <http://jurnal.batan.go.id/index.php/urania/>



ADSORPSI URANIUM MENGGUNAKAN Na DAN Zr – MONTMORILLONITE

Dwi Luhur Ibnu Saputra¹, Yuli Purwanto¹, Risdiyana Setiawan¹,
Moh Cecep Cepi Hikmat¹, Pratiwi Ayuningtyas², Nayandra Dias Fadilla²,
Malik Musthofa², Mirawaty¹, Jaka Rachmadetin¹

¹Pusat Riset Teknologi Daur Bahan Bakar Nuklir dan Limbah Radioaktif – BRIN
K.S.T. B.J. Habibie Gedung 720, Serpong, Tangerang Selatan, Banten 15314

²Fakultas Teknik, Jurusan Teknik Kimia, Universitas Muhammadiyah Surakarta
Jalan Ahmad Yani, Pabelan, Kartasura, Surakarta, Jawa Tengah 57169
e-mail: dwil004@brin.go.id

(Naskah diterima: 30–08–2023, Naskah direvisi: 05–10–2023, Naskah disetujui: 08–10–2023)

ABSTRAK

ADSORPSI URANIUM MENGGUNAKAN Na DAN Zr – MONTMORILLONITE. Montmorillonite dapat dimanfaatkan sebagai alternatif pengolahan limbah uranium secara adsorpsi. Kation pada *interlayer* montmorillonite dapat digunakan untuk pertukaran ion dengan uranium. Limbah cair uranium berasal dari sisa proses ekstraksi uranium untuk pengambilan radioisotop molibdenum-99 dan juga pada proses pelarutan *yellow cake* yang masih mengandung sedikit uranium. Tujuan penelitian ini adalah memodifikasi Na-montmorillonite dengan penambahan *zirconium(IV) oxychloride octahydrate* ($ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$) untuk meningkatkan efisiensi adsorpsinya terhadap uranium. Modifikasi montmorillonite dikarakterisasi dengan XRD dan XRF. Kinetika adsorpsi uranium ditentukan dengan variasi waktu kontak 10, 30, 60, 120, 180, 300, 360, 420 dan 480 menit kemudian ditentukan laju kinetika adsorpsi *pseudo* orde pertama dan orde kedua. Efisiensi adsorpsi uranium optimum ditentukan dengan variasi pH 3, 5, 7 dan 9. Hasil kurva plot *pseudo* orde pertama dan orde kedua menunjukkan bahwa Na dan Zr-montmorillonite berada pada plot orde kedua dengan konstanta (k_2) adalah 0,000354 dan 0,000458 (g/mg.min). Adsorpsi uranium oleh Na-montmorillonite terjadi pada pH 5 sebesar 93,68 % dan Zr-montmorillonite pada pH 7 sebesar 96,52%. Zr-montmorillonite diperoleh nilai K_d masing-masing sebesar $23,42 \times 10^3$ dan $48,26 \times 10^3$ mLg. Modifikasi Zr dapat meningkatkan efisiensi dan kinetika adsorpsi uranium sehingga berpotensi sebagai alternatif adsorben untuk pengolahan limbah uranium cair.

Kata kunci: Adsorpsi, Na-montmorillonite, Zr-montmorillonite, *zirconium(IV) oxychloride octahydrate*, larutan uranium.

ABSTRACT

URANIUM ADSORPTION USING Na AND Zr-MONTMORILLONITE. The montmorillonite can be used as an alternative for adsorption treatment of uranium waste. Cations in the montmorillonite interlayer can be used as ion exchange in uranium. Uranium liquid waste can be generated from uranium extraction process for molybdenum-99 radioisotope extraction and also in the yellow cake dissolution process. The purpose of this study is to determine the adsorption of uranium using Na montmorillonite and Zr montmorillonite. Modification of Na-montmorillonite was carried out using zirconium (IV) oxychloride octahydrate ($ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$). The Na and Zr-montmorillonite were characterized using XRD and XRF analysis. Parameters of uranium adsorption were determined by batch experiments with contact time variations of 10, 30, 60, 120, 180, 300, 360, 420 and 480 minutes and pH variations of 3, 5, 7 and 9. Kinetics of uranium adsorption were studied using pseudo first-order and pseudo second-order adsorption. The results show that the optimum pH Na-montmorillonite was pH 5 of 93,68 % and Zr-montmorillonite was pH 7 of 96,52 %. The ratio of K_d values in Na and Zr-montmorillonite were $23,42 \times 10^3$ and $48,26 \times 10^3$ mL/g, respectively. The results of the first-order and second-order pseudo-plot curves show that Na and Zr-montmorillonite were in the second-order plot and constant (k_2) were 0,000354 and 0,000458 (g/mg.min), respectively. In conclusion, modification of montmorillonite using Zr increased the uranium adsorption and kinetics. Therefore, this Zr-montmorillonite can be used as an alternative adsorbent for treatment of uranium liquid waste.

Keywords: Adsorption, Na-montmorillonite, Zr-montmorillonite, zirconium(IV) oxychloride octahydrate, uranium solution.

Adsorpsi Uranium Menggunakan Na Dan Zr-Montmorillonite

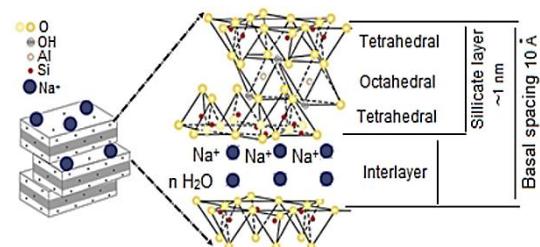
(Dwi Luhur Ibnu Saputra, Yuli Purwanto, Risdiyana Setiawan, Moh. Cecep Cepi Hikmat, Pratiwi Ayuningtyas, Nayandra Dias Fadilla, Malik Musthofa, Mirawaty, Jaka Rachmadetin)

PENDAHULUAN

Monmorillonite merupakan komponen utama yang terdapat bentonit yang strukturnya berbentuk lembaran (*smektit*). Kandungan montmorillonite dapat mencapai sekitar 75 - 85% dari berat bentonit [1]. Bentonit merupakan salah satu jenis tanah lempung yang keberadaannya di Indonesia sangat melimpah dan banyak, yang berada di pulau Jawa dan Kalimantan khususnya daerah Sukabumi, Pacitan dan Pontianak [1]. Secara umum penggunaan lempung bentonit belum optimal tetapi banyak digunakan di berbagai sektor industri, pertanian dan rekayasa [2].

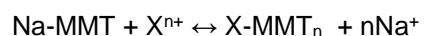
Pemanfaatan lempung bentonit dalam pengambilan kontaminan pada absorbat yang mengandung uranium belum termanfaatkan. Instalasi pengolahan limbah radioaktif, sampai saat ini belum memanfaatkan kemampuan bentonit untuk pengolahan limbah radioaktif cair. Teknologi yang digunakan masih menggunakan proses evaporasi dan pertukaran ion menggunakan resin. Penelitian yang pernah dilakukan bahwa bentonit sangat tepat dan efektif untuk penyerapan limbah uranium [3]. Pemanfaatan bentonit juga digunakan pada penyimpanan akhir limbah (disposal) sebagai bahan tambahan pada *engineered barriers* [4] dikarenakan bentonit memiliki kemampuan *swelling*, permeabilitas yang rendah dan kapasitas adsorpsi tinggi [5] dan juga penggunaan sangat mudah, rendah biaya dan tinggi efisiensinya [6].

Montmorillonite sebagai komponen utama bentonit, memiliki sifat fisika dan kimia. Secara kimia permukaannya memiliki ion-ion yang bermuatan negatif yang mengikat ion kation seperti H^+ , Na^+ , Ca^{2+} dan lainnya [7]. Strukturnya dibentuk oleh senyawa yang terdiri dari Si, Al dan Mg dengan rumus molekul $(M^{+y} \cdot xnH_2O)(Al_{4-y}Mg_y)Si_8O_{20}(OH)_4$ dimana M dapat berupa unsur Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} dan lainnya [8]. Montmorillonite termasuk dalam kelompok mineral lempung *smektit* yang mempunyai tipe lapisan 2:1 (tetrahedral:oktaedral) dengan Na^+ yang dapat tertukar oleh kation di area interlayer terhadap basal tetrahedral [9] sehingga saat montmorillonite terkena air interlayernya akan mengalami hidrasi dan juga dapat mengalami dehidrasi [10] sehingga dapat mengubah jarak basal dalam montmorillonite [11]. Struktur montmorillonite dapat dilihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Smektit lapisan 2:1, interlayer dan jarak basal dari struktur montmorillonite [12], [13].

Montmorillonite banyak diteliti untuk mengadsorpsi kation – kation dari limbah cair seperti As, Cd, Cr, Co, Cu, Fe, Pb, Mn, Ni dan Zn [14]. Adsorpsi kation oleh montmorillonite didominasi oleh proses penukar kation yang digambarkan dengan reaksi berikut [15].



dengan MMT adalah montmorillonite dan X adalah kation adsorbat.

Pada penelitian ini, dipelajari adsorpsi uranium oleh Na-montmotilonite yang dimodifikasi menjadi Zr-montmorillonite guna mengetahui adsorpsi maksimal yang bisa dicapai, kinetika adsorpsi, pengaruh pH dan koefisien distribusi. Larutan uranium yang digunakan adalah larutan yang berasal dari limbah simulasi yang mengandung uranium. Pada modifikasi Zr-montmorillonite, unsur Zr memiliki jari-jari ion yang lebih besar dibandingkan dengan Na yaitu 166 pm [16] berbanding 175 pm [17]. Ukuran ion yang lebih besar ini menyebabkan jarak basal montmorillonite juga menjadi lebih besar sehingga mempermudah terjadinya proses pertukaran ion [18]. Modifikasi montmorillonite telah dipelajari menggunakan *polydopamine* ($C_8H_{11}NO_2$) dengan $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ (PDA/Zr) untuk mengabsorpsi uranium [19] dan Zr- montmorillonite untuk adsorpsi radionuklida Cs-137 [20]. Penelitian ini bertujuan untuk memodifikasi montmorillonite dengan Zr yang selanjutnya digunakan sebagai adsorben larutan uranium guna mengetahui adsorpsi maksimal yang tercapai, kinetika adsorpsi, pengaruh pH dan koefisien distribusinya.

Dari penelitian ini montmorillonite diharapkan dapat digunakan sebagai alternatif pengolahan limbah uranium cair yang berasal dari instalasi nuklir yang berada di Direktorat Pengelolaan Fasilitas Ketenaganukliran (DPFK), Badan Riset dan Inovasi Nasional

(BRIN). Limbah cair uranium tersebut berasal dari sisa proses ekstraksi uranium pada saat pengambilan radioisotop molibdenum-99 yang digunakan di bidang kedokteran nuklir [21]. Limbah uranium lainnya berasal dari proses pelarutan *yellow cake* yang digunakan sebagai bahan bakar reaktor. Limbah uranium masih mengandung sedikit uranium yang berasal dari kondensat hasil evaporasi [22]. Pengolahan limbah radioaktif cair yang saat ini dilakukan adalah menggunakan resin penukar ion. Akan tetapi, dalam jangka waktu lama resin penukar ion ini dapat mengalami *swelling* yang dapat merusak wadah penyimpanannya. Oleh karena itu diperlukan alternatif material adsorben untuk pengolahan limbah cair.

METODOLOGI

Penentuan adsorpsi uranium dilakukan dengan membandingkan adsorpsi uranium, koefisien distribusi dan kinetika adsorpsi antara Na-montmorillonite (Na-MMT) dan Zr-montmorillonite (Zr-MMT) pada temperatur kamar. Variabel yang digunakan yaitu variasi konsentrasi $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$, waktu kontak dan pH.

a) Bahan dan Alat

Adsorben yang digunakan adalah Na-MMT. Untuk bahan modifikasi digunakan *zirconium(IV) oxychloride octahydrate* ($ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$). Limbah simulasi uranium dengan konsentrasi 50 ppm dibuat menggunakan *uranyl nitrate hexa hydrate* ($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$). Peralatan analisis yang digunakan adalah *X-Ray Diffraction Analysis* (XRD) untuk melihat fasa dan kristal, *X-Ray Fluorescence* (XRF) untuk mengetahui komposisi kimia dan *Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectrometry* (ICP-OES) untuk menentukan kandungan uranium yang terserap dan *furnace* untuk kalsinasi.

b) Pembuatan Zr-Montmorillonite (Zr-MMT)

Na-MMT dicampur dengan $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ konsentrasi 0, 0,01, 0,05, 0,1 M kemudian larutan dipanaskan pada temperatur 90°C. Zr-MMT yang sudah terbentuk dikeringkan dalam oven pada temperatur 110°C selama 3 jam kemudian dikalsinasi *furnace* pada temperatur 500°C.

c) Adsorpsi limbah simulasi uranium oleh Na dan Zr-Montmorillonite

Zr-MMT sebanyak 0,1 g dicampurkan dengan 50 mL larutan limbah simulasi uranium 50 ppm menggunakan shaker dengan variasi waktu kontak 10, 30, 60, 120, 180, 300, 360, 420 dan 480 menit. Percobaan juga dilakukan dengan variasi pH 3, 5, 7 dan 9. Larutan dan Zr-MMT dipisahkan dengan sentrifugasi 3000 rpm selama 10 menit. Kandungan uranium pada supernata dialisis dengan ICP-OES. Langkah perconaan yang sama dilakukan dilakukan dengan Na-MMT.

d) Penentuan Efisiensi dan Kinetika Adsorpsi

Efisiensi adsorpsi uranium ditentukan dengan membandingkan konsentrasi uranium yang teradsorpsi oleh adsorben terhadap jumlah konsentrasi maksimum yang diadsorpsi yang dapat dirumuskan pada persamaan 1 [25].

$$Efisiensi = \frac{(C_o - C_e)}{C_o} \times 100 \% \quad (1)$$

Kinetika adsorpsi ditentukan pada persamaan 2, 3, 4 dan 5 melalui tahapan yaitu penentuan kapasitas adsorpsi (q_e) oleh Na dan Zr-MMT yang di rumuskan pada persamaan berikut [23]–[25].

$$q_e = (C_o - C_e) \times \frac{V}{m} \quad (2)$$

dengan C_o adalah konsentrasi awal uranium dan C_e adalah konsentrasi uranium setelah kesetimbangan penentuan koefisien distribusi adsorpsi dirumuskan pada persamaan (3)[26].

$$K_d = \frac{(C_o - C_e)}{C_o} \times \frac{V}{m} \quad (3)$$

Kemudian menentukan kinetika adsorpsi dengan persamaan (4) dan (5) berikut [27].

Pseudo orde pertama :

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1}{2.303} t \quad (4)$$

Pseudo orde kedua :

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (5)$$

Adsorpsi Uranium Menggunakan Na Dan Zr-Montmorillonite
 (Dwi Luhur Ibnu Saputra, Yuli Purwanto, Risdiyana Setiawan, Moh. Cecep Cepi Hikmat,
 Pratiwi Ayuningtyas, Nayandra Dias Fadilla, Malik Musthofa, Mirawaty, Jaka Rachmadetin)

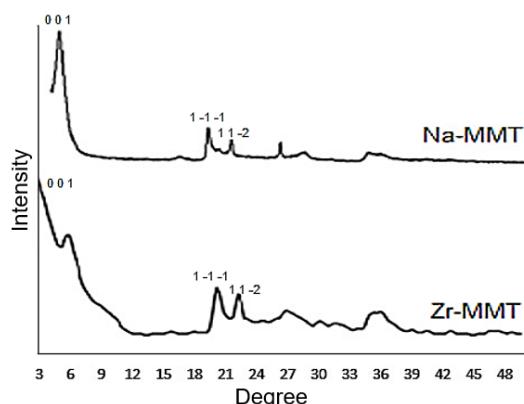
dengan q_e adalah kapasitas adsorpsi per gram MMT, q_t adalah konsentrasi adsorpsi per gram MMT pada waktu kontak, K_1 (1/min) adalah laju konstanta adsorpsi *pseudo* orde pertama dan k_2 (g/mg/min) adalah konstanta adsorpsi *pseudo* orde kedua. Nilai k_1 diperoleh dari plot log ($q_e - q_t$) terhadap t , sedangkan nilai k_2 diperoleh dari plot t/q_t terhadap t . m (g) adalah massa adsorben, dan v (mL) adalah volume larutan, C_0 adalah konsentrasi awal uranium, C_e adalah konsentrasi setelah kesetimbangan

HASIL DAN PEMBAHASAN

a) Karakterisasi Na dan Zr-Montmorillonite menggunakan XRD dan XRF.

Karakterisasi Na dan Zr-MMT menggunakan software *Highscore* dengan kode data base montmorillonite 96-900-2780. Hasil analisis menunjukkan puncak dari Na-MMT dan Zr-MMT dapat dilihat pada Gambar 2. Difraksi pada Na-MMT, puncak tajam muncul berada pada 2θ yaitu $5,81^\circ$, dan puncak lemah muncul pada 2θ yaitu $19,76^\circ$ sesuai dengan struktur kristal montmorillonite. Puncak difraksi lainnya masing-masing pada 2θ yaitu $21,94^\circ$ dan $26,61^\circ$ yang mengandung pengotor kristobalit dan kuarsa.

Pada Zr-MMT terlihat puncak montmorillonit bergeser ke arah kiri pada 2θ yaitu $5,77^\circ$ kemudian terdapat puncak lain pada 2θ yaitu $3,25^\circ$. Puncak-puncak tersebut membedakan antara Na-MMT dengan Zr-MMT. Pada Zr-MMT puncak lemah muncul pada 2θ yaitu $19,85^\circ$.



Gambar 2. Karakterisasi Na dan Zr-MMT dengan XRD

Komposisi senyawa Na dan Zr-MMT dapat diketahui dengan karakterisasi menggunakan XRF. Pada Tabel 1 dilihat komposisi senyawa keduanya yang dianalisis

dengan XRF yaitu memiliki unsur Si, Al, Fe, Mg, Na dan K sedangkan pada Zr-MMT sudah terbentuk unsur ZrO_2 sebesar 11,97% dan Zr sebesar 8,8615%. Komposisi Si/Al pada Na-MMT lebih besar dari Zr-MMT dikarenakan komposisi utamanya terdapat senyawa tambahan ZrO_2 . Senyawa *zirkonium okside* pada Zr-MMT secara kuantitatif mempengaruhi rasio Si/Al dari Zr-MMT. Rasio Si/Al mempengaruhi muatan permukaan dari montmorillonite. Secara umum rasio Si/Al yang lebih tinggi berkorelasi dengan kapasitas kation yang lebih rendah selain itu rasio Si/Al dapat mempengaruhi selektivitas pertukaran ion pada monmorillonite [28].

Rasio Si/Al pada Zr-MMT dari hasil penelitian ini adalah 3,7. Nilai ini lebih besar dari rasio Si/Al Na-MMT yaitu 2,6. Nilai ini mengindikasikan bahwa kapasitas tukar ion Zr-MMT lebih rendah dari Na-MMT. Akan tetapi, hasil adsorpsi menunjukkan persentasi adsorpsi uranium oleh Zr-MMT lebih besar dibandingkan Na-MMT. Adsorpsi yang lebih tinggi ini dikarenakan Zr-MMT lebih selektif mengadsorpsi uranium dibandingkan dengan Na-MMT.

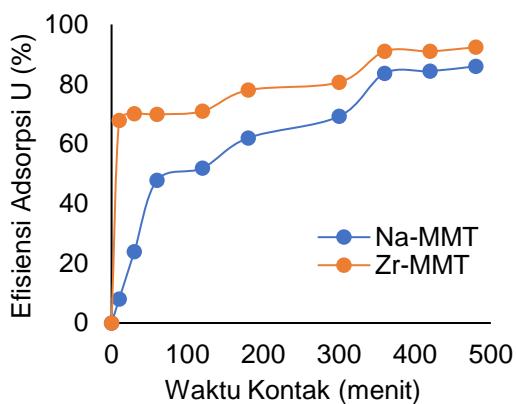
Tabel 1. Komposisi Kimia Na dan Zr-MMT

Komposisi senyawa	Na-MMT (%)	Zr-MMT (%)
SiO_2	64,20	46,17
Al_2O_3	21,70	12,32
Fe_2O_3	5,40	7,01
MgO	3,70	1,48
Na_2O	1,70	0,55
CaO	1,20	0,27
SO_3	0,70	0,00
P_2O_5	0,50	0,00
K_2O	0,30	0,27
Cl	0,20	0,00
TiO_2	0,20	0,00
SrO	0,10	0,00
MnO	0,00	0,04
ZrO_2	0,00	11,97

b) Efisiensi dan Kinetika Adsorpsi Uranium Pada Na dan Zr-Montmorillonite

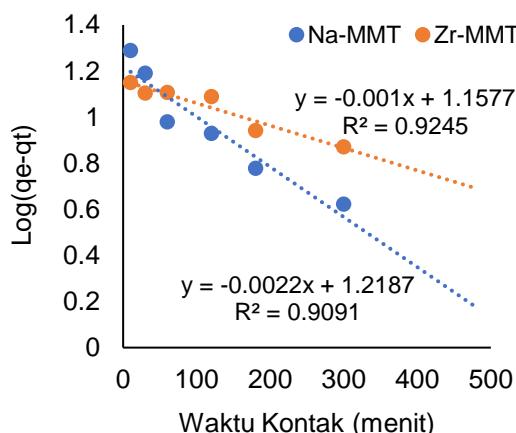
Penentuan waktu kontak maksimum pada efisiensi dan kapasitas adsorpsi (q_e) uranium dilakukan selama 480 menit. Pada Gambar 3 dapat dilihat efisiensi adsorpsi maksimum dari Na dan Zr-MMT yaitu masing – masing 84,65% dan 91,45% dengan waktu kontak 360 – 480 menit. Pada waktu tersebut

Na dan Zr-MMT telah jenuh oleh uranium sehingga dapat diketahui kesetimbangan adsorpsinya. Kapasitas serap (q_e) merupakan konsentrasi adsorbat dari larutan uranium yang teradsorpsi oleh adsorben Na dan Zr-MMT dalam gram adsorbat per gram adsorben pada suhu kamar dan tekanan 1 atm hingga mencapai kesetimbangan. Nilai q_e yang baik adalah kapasitas serap nya yang tinggi.

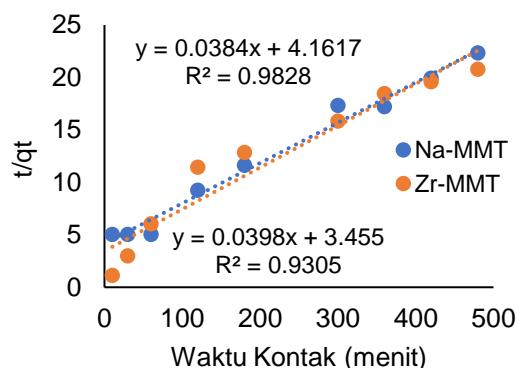


Gambar 3. Pengaruh waktu kontak terhadap efisiensi adsorpsi uranium oleh Na dan Zr-MMT

Pendekatan laju adsorpsi dapat dilihat dari kinetika adsorpsinya. Adsorpsi uranium pada waktu kontak yang dipelajari, diplot ke dalam persamaan Lagergren's *pseudo* orde pertama dan *pseudo* orde kedua yang ditunjukkan pada persamaan 3 dan 4. Kurva plot orde *pseudo* pertama pada Na dan Zr-MMT dapat dilihat pada Gambar 4 dan kurva plot orde *pseudo* kedua pada Gambar 5.



Gambar 4. Kurva linier *pseudo* orde pertama adsorpsi uranium pada Na dan Zr-MMT



Gambar 5. Kurva linier *pseudo* orde kedua adsorpsi uranium pada Na dan Zr-MMT

Kinetika adsorpsi yang digunakan adalah nilai regresi linier mendekati 1. Kinetika adsorpsi Na dan Zr-MMT mengikuti *pseudo* orde kedua $R^2 = 0,9828$ dan $0,9308$. *Pseudo* orde kedua menggambarkan bahwa laju adsorpsi berkurang selama selang waktu tertentu.

Hasil kurva plot *pseudo* orde pertama dan orde kedua menunjukkan bahwa kinetika kedua adsorben tersebut mengikuti *pseudo* orde kedua dengan k_2 masing-masing $0,000354$ dan $0,000458$ (g/mg.min). Nilai parameter kinetika adsorpsi *pseudo* orde kedua dapat dilihat pada Tabel 2.

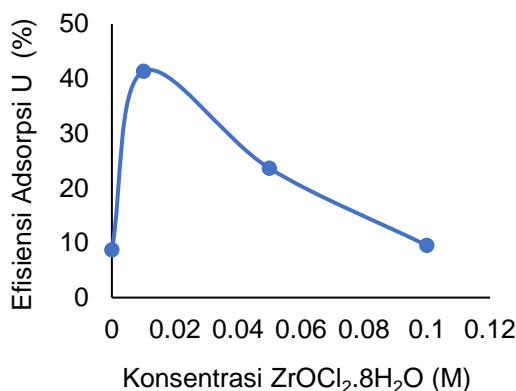
Tabel 2. Nilai kinetika adsorpsi uranium *pseudo* orde kedua Na dan Zr-MMT

Parameter	Adsorben	
	Na-MMT	Zr-MMT
$q_{e\ exp}$	20,9 mg/g	22,75 mg/g
$q_{e\ cal}$	26,04 mg/g	25,12 mg/g
orde <i>pseudo</i> kedua	kedua	kedua
k_2 (g/mg.min)	0,000354	0,000458
R^2	0,9828	0,9308

c) Pengaruh Konsentrasi $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ pada kapasitas adsorpsi oleh Zr-MMT

Pada Gambar 6 dapat dilihat bahwa variasi konsentrasi $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ yang ditambahkan mendapatkan adsorpsi uranium yang relatif baik yaitu $0,01\text{ M}$ dengan efisiensi sebesar $41,328\%$. Semakin besar konsentrasi yang di tambahkan akan menurunkan adsorpsinya, ini terjadi karena Zr yang berlebih akan menggantikan kation-kation lain seperti Si/Al/Mg sehingga Na-MMT menjadi jenuh Zr, yang mengakibatkan kemampuan serapnya terhadap uranium menjadi semakin berkurang seperti yang ditunjukkan pada Gambar 6.

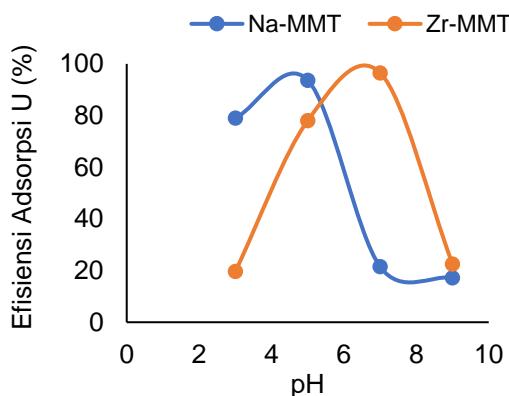
Adsorpsi Uranium Menggunakan Na Dan Zr-Montmorillonite
 (Dwi Luhur Ibnu Saputra, Yuli Purwanto, Risdiyana Setiawan, Moh. Cecep Cepi Hikmat,
 Pratiwi Ayuningtyas, Nayandra Dias Fadilla, Malik Musthofa, Mirawaty, Jaka Rachmadetin)



Gambar 6. Pengaruh konsentrasi $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ terhadap efisiensi adsorpsi uranium

d) Pengaruh pH

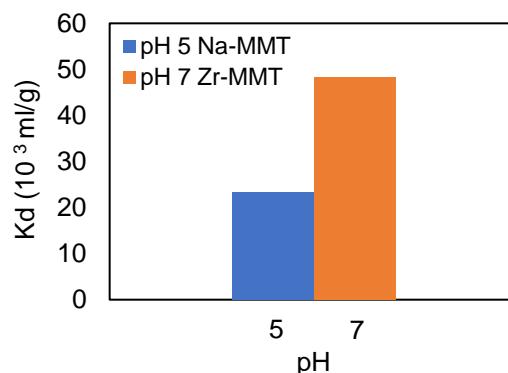
Pengaruh pH terhadap efisiensi adsorpsi uranium yang relatif baik terjadi pada pH 5 dari Na- MMT yaitu 93,68% sedangkan Zr-MMT terjadi pada pH 7 yaitu 96,52% dan dapat dilihat pada Gambar 7. Pada pH 3 adsorbat mengandung UO_2^{2+} [29] dan berisi banyak ion hidrogen sehingga ion-ion pada absorbat tersebut saling mangganggu. Hal ini mengakibatkan pada pH 3 uranium yang teradsorpsi hanya sedikit. Na-MMT di pH 5 mengalami deprotonasi yang menyebabkan permukaan bermuatan negatif. Sedangkan pada Zr-MMT di pH 7, uranium membentuk senyawa kompleks $[(\text{UO}_2)(\text{OH})]^+$, $\text{UO}_2(\text{OH})_2^{2+}$ dan $[(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5]^{[29]}$ sehingga pada pH 5 dan 7 yang teradsorpsi mengalami peningkatan. Pada pH 9 adsorbat sangat dipengaruhi ion hidroksil hingga membentuk senyawa kompleks anion $[(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_7]^{-[30]}$ yang menyebabkan adsorpsi menurun.



Gambar 7. Pengaruh pH terhadap efisiensi adsorpsi uranium oleh Na dan Zr-MMT

e) Koefisien distribusi (Kd) Na dan Zr-Montmorillonite

Koefisien distribusi (Kd) adalah perbandingan konsentrasi uranium di adsorben terhadap konsentrasi uranium di larutan [31]. Kd dapat juga dilihat dari variasi pH yang relatif baik, telah diketahui bahwa Kd pada Na-MMT adalah $23,42 \times 10^3$ mL/g sedangkan pada Zr-MMT adalah $48,26 \times 10^3$ mL/g. Nilai Kd dapat dilihat pada Gambar 8.



Gambar 8. Koefisien distribusi (Kd) dari adsorpsi uranium oleh Na dan Zr-MMT pada pH relatif baik masing - masing

SIMPULAN

Karakteristik hasil difraksi sinar-X dari Na dan Zr-MMT memiliki perbedaan yaitu terdapat puncak pada Zr-MMT pada 2θ yaitu $3,25^\circ$. Rasio Si/Al pada Zr-MMT lebih besar dari rasio Si/Al Na-MMT masing-masing yaitu 3,7 dan 2,6.

Efisiensi adsorpsi maksimum dari waktu kontak pada adsorben Na dan Zr-MMT yaitu 84,65% dan 91,45%, sedangkan efisiensi adsorpsi pada pH yang relatif baik dari Zr-MMT lebih besar yaitu 96,52% dibandingkan dengan Na-MMT yaitu 93,68%. Sedangkan koefisien distribusi (Kd) pada Zr-MMT lebih besar yaitu $48,26 \times 10^3$ mL/g dibandingkan dengan Na-MMT yaitu $23,42 \times 10^3$ mL/g. Kinetika dari kedua adsorben tersebut mengikuti *pseudo* orde kedua dengan k_2 masing – masing yaitu 0,000354 dan 0,000458 (g/mg min).

Modifikasi Na-MMT dengan penambahan ($\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$) menjadi Zr-MMT dapat meningkatkan adsorpsi dan kinetika adsorpsi uranium sehingga berpotensi dapat digunakan sebagai alternatif adsorben untuk pengolahan limbah uranium cair.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terimakasih kepada Ir. Aisyah, M.T yang telah membimbing dalam penelitian ini serta Organisasi Riset Kimia Maju dan Organisasi Riset Tenaga Nuklir BRIN yang telah membantu analisis menggunakan elsa poin untuk pengujian XRD, XRF dan ICP.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] A. Rahman, Y. Arryanto, A. L. Juwono, and S. Roseno, "Sintesis dan Karakterisasi Organolempung dari Bentonit Indonesia," *Spektra J. Fis. dan Apl.*, vol. 16, no. 1, pp. 42–47, 2015.
- [2] S. T. Gonggo, F. Edyanti, and Suherman, "Karakterisasi Fisikokimia Mineral Lempung Sebagai Bahan Dasar Industry Keramik Didesa Lembah Bomban Kecamatan Bolano Lambunu Kabupaten Parigi Moutong," *J. Akad. Kim.*, vol. 2, no. 2, pp. 105–113, 2013.
- [3] M. M. Zareh, A. Aldaher, A. E. M. Hussein, M. G. Mahfouz, and M. Soliman, "Uranium adsorption from a liquid waste using thermally and chemically modified bentonite," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 295, no. 2, pp. 1153–1159, 2013, doi: 10.1007/s10967-012-2234-8.
- [4] L. Laloui, A. Ferrari, and J. A. Bosch, "Bentonite clay barriers in nuclear waste repositories," *E3S Web Conf.*, vol. 205, pp. 1–9, 2020, doi: 10.1051/e3sconf/202020501003.
- [5] S. H. Tadesse, "Application of Ethiopian bentonite for water treatment containing zinc," *Emerg. Contam.*, vol. 8, pp. 113–122, 2022, doi: 10.1016/j.emcon.2022.02.002.
- [6] A. Elkhaliefa, I. H. Ali, E. I. Brima, I. Shigidi, A. B. Elhag, and B. Karama, "Evaluation of the adsorption efficiency on the removal of lead(II) ions from aqueous solutions using Azadirachta indica leaves as an adsorbent," *Processes*, vol. 9, no. 3, 2021, doi: 10.3390/pr9030559.
- [7] K. T. Basuki, L. A. Hasnowo, and E. Jamayanti, "Adsorption of Uranium Simulation Waste Using Bentonite:Titanium Dioxide," *Urania J. Ilm. Daur Bahan Bakar Nukl.*, vol. 25, no. 1, pp. 19–31, 2019, doi: 10.17146/urania.2019.25.1.4527.
- [8] A. Ubowska, "Montmorillonite as a Polyurethane Foams Flame Retardant," *Arch. Combust.*, vol. 30, no. 4, pp. 459–462, 2010.
- [9] M. Davidovic *et al.*, "Nanocomposite Based on Natural Materials," *Adv. Divers. Ind. Appl. Nanocomposites*, no. March, 2011, doi: 10.5772/14865.
- [10] D. V. Voronin, *et al.*, "Clay composites for thermal energy storage: A review," *Molecules*, vol. 25, no. 7, pp. 1–26, 2020, doi: 10.3390/molecules25071504.
- [11] H. Wang, T. Shibue, and H. Komine, "Hydration and dehydration of water of bentonite: A solid-state ¹H magic-angle spinning NMR study," *Chem. Phys.*, vol. 536, no. April, p. 110796, 2020, doi: 10.1016/j.chemphys.2020.110796.
- [12] A. J. Ibrahim, H. A. W. Dwesh, and A. R. Y. Al-Sawad, "Adsorption of methylene blue dye onto bentonite clay: Characterization, adsorption isotherms, and thermodynamics study by using UV-Vis technique," *Anal. Methods Environ. Chem. J.*, vol. 6, no. 3, pp. 5–18, 2023, doi: 10.24200/amecj.v6.i03.243.
- [13] M. del M. Orta, J. Martín, J. L. Santos, I. Aparicio, S. Medina-Carrasco, and E. Alonso, "Biopolymer-clay nanocomposites as novel and ecofriendly adsorbents for environmental remediation," *Appl. Clay Sci.*, vol. 198, no. August, p. 105838, 2020, doi: 10.1016/j.clay.2020.105838.
- [14] K. G. Bhattacharyya and S. Sen Gupta, "Adsorption of a few heavy metals on natural and modified kaolinite and montmorillonite: A review," *Adv. Colloid Interface Sci.*, vol. 140, no. 2, pp. 114–131, 2008, doi: 10.1016/j.cis.2007.12.008.
- [15] N. Subramanian and L. Nielsen Lammers, "Thermodynamics of ion exchange coupled with swelling reactions in hydrated clay minerals," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 608, pp. 692–701, 2022, doi: 10.1016/j.jcis.2021.09.106.
- [16] H. Davy, "Atomic properties: Natrium," vol. 001, pp. 1–15.
- [17] H. Martin, "Atomic properties: Zirkonium," pp. 23–26, 1852.

Adsorpsi Uranium Menggunakan Na Dan Zr-Montmorillonite
 (Dwi Luhur Ibnu Saputra, Yuli Purwanto, Risdiyana Setiawan, Moh. Cecep Cepi Hikmat,
 Pratiwi Ayuningtyas, Nayandra Dias Fadilla, Malik Musthofa, Mirawaty, Jaka Rachmadetin)

- [18] C. M. Bijang, S. J. Sekewael, and J. A. Koritelu, "Aktivasi Lempung Dengan Basa Dan Aplikasinya Sebagai Penukar Kation Untuk Mengurangi Konsentrasi Ion Mg²⁺ Dan Ca²⁺ Dalam Air Sumur," *Ind. J. Chem. Res.*, no. 1989, pp. 93–98, 2014.
- [19] N. Rahman, P. Varshney, and M. Nasir, "Synthesis and characterization of polydopamine/hydrous zirconium oxide composite and its efficiency for the removal of uranium (VI) from water," *Environ. Nanotechnology, Monit. Manag.*, vol. 15, no. January, p. 100458, 2021, doi: 10.1016/j.enmm.2021.100458.
- [20] T. Las, "Pemanfaatan Mineral Zeolit Untuk Pengolahan Limbah", Laporan Akhir Riset Unggulan Terpadu (RUT)," Jakarta, 1997.
- [21] Aisyah, P. A. Artiani, and J. Rachmadetin, "Radioactive Fission Waste from Molybdenum-99 Production and Proliferation Risks," *IOP Conf. Ser. Earth Environ. Sci.*, vol. 927, no. 1, 2021, doi: 10.1088/1755-1315/927/1/012041.
- [22] A. Saputra, Y. D. Agus, H. Ghufron, and A. Sari, "Pendayagunaan Unit Pelarutan Yellow Cake Pilot Conversion Plant (PCP) Sebagai Evaporator Cairan Limbah Uranium," *Maj. Ilm. PIN*, vol. 23, pp. 1–12, 2019.
- [23] R. A. Farghali, M. S. Basiony, S. E. Gaber, H. Ibrahim, and E. A. Elshehy, "Adsorption of organochlorine pesticides on modified porous Al₃O₃/bentonite: Kinetic and thermodynamic studies," *Arab. J. Chem.*, vol. 13, no. 8, pp. 6730–6740, 2020, doi: 10.1016/j.arabjc.2020.06.027.
- [24] M. L. F. A. De Castro, M. L. B. Abad, D. A. G. Sumalinog, R. R. M. Abarca, P. Paoprasert, and M. D. G. de Luna, "Adsorption of Methylene Blue dye and Cu(II) ions on EDTA-modified bentonite: Isotherm, kinetic and thermodynamic studies," *Sustain. Environ. Res.*, vol. 28, no. 5, pp. 197–205, 2018, doi: 10.1016/j.serj.2018.04.001.
- [25] M. Solgy, M. Taghizadeh, and D. Ghodocynejad, "Adsorption of uranium(VI) from sulphate solutions using Amberlite IRA-402 resin: Equilibrium, kinetics and thermodynamics study," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 75, pp. 132–138, 2015, doi: 10.1016/j.anucene.2014.08.009.
- [26] Y. Khawassek, "Anion exchange of uranium from sulfuric acid solution: adsorption and kinetics characteristics," in *Proceedings of ALTA 2017 Uranium-Ree Sessions*, 2017, vol. 25, no. May 2017, pp. 126–140.
- [27] X. Shi, Q. Li, T. Wang, and K. S. Lackner, "Kinetic analysis of an anion exchange absorbent for CO₂ capture from ambient air," *PLoS One*, vol. 12, no. 6, pp. 1–12, 2017, doi: 10.1371/journal.pone.0179828.
- [28] J. Li, M. Gao, W. Yan, and J. Yu, "Regulation of the Si/Al ratios and Al distributions of zeolites and their impact on properties," *Chem. Sci.*, vol. 14, no. 8, pp. 1935–1959, 2022, doi: 10.1039/d2sc06010h.
- [29] S. D. Ebbs, D. J. Brady, and L. V. Kochian, "Role of uranium speciation in the uptake and translocation of uranium by plants," *J. Exp. Bot.*, vol. 49, no. 324, pp. 1183–1190, 1998, doi: 10.1093/jxb/49.324.1183.
- [30] C. J. Chisholm-Brause, J. M. Berg, R. A. Matzner, and D. E. Morris, "Uranium(VI) sorption complexes on montmorillonite as a function of solution chemistry," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 233, no. 1, pp. 38–49, 2001, doi: 10.1006/jcis.2000.7227.
- [31] C. D. Seidou, T. Wang, M. M. R. B. Espoire, Y. Dai, and Y. Zuo, "A Review of the Distribution Coefficient ($K_{d,i}$) of Some Selected Heavy Metals over the Last Decade (2012–2021)," *J. Geosci. Environ. Prot.*, vol. 10, no. 08, pp. 199–242, 2022, doi: 10.4236/gep.2022.108014.

HALAMANINI DIBIARKAN KOSONG