

Urania

Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir

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



ADSORPSI URANIUM TERLARUT OLEH KOMPOSIT *AMMONIUM DIHYDROGEN PHOSPHATE* / ZEOLIT

Yuli Purwanto¹, Dwi Luhur Ibnu Saputra¹, Mirawaty¹,
Untung Sugiharto², Wati¹, Jaka Rachmadetin¹, Pungky Ayu Artiani¹
¹Pusat Riset Teknologi Daur Bahan Bakar Nuklir dan Limbah Radioaktif – BRIN
K.S.T. B.J. Habibie Gedung 720, Serpong, Tangerang Selatan, Banten 15314
¹Pusat Riset Teknologi Proses Radiasi – BRIN
K.S.T. B.J. Habibie Gedung 720, Serpong, Tangerang Selatan, Banten 15314
email: yuli037@brin.go.id

(Naskah diterima: 24–08–2023, Naskah direvisi: 29–09–2023, Naskah disetujui: 12–10–2023)

ABSTRAK

ADSORPSI URANIUM TERLARUT OLEH KOMPOSIT *AMMONIUM DIHYDROGEN PHOSPHATE*/ZEOLIT. Zeolit merupakan salah satu mineral aluminosilikat yang banyak dipelajari sebagai material penjerap untuk pengelolaan limbah cair. Mineral ini juga banyak dipelajari untuk pengelolaan limbah cair dari industri nuklir, termasuk di antaranya sebagai penjerap uranium dari limbah cair. Pengelolaan limbah cair yang mengandung uranium ini diperlukan pada setiap tahapan daur bahan bakar nuklir. Modifikasi zeolit, yang dapat dilakukan secara fisika atau kimia, telah dilaporkan dapat meningkatkan kemampuan adsorpsinya. Dalam penelitian ini dilakukan peningkatan kemampuan zeolit dengan menambahkan *ammonium dihydrogen phosphate* (ADP) sehingga terbentuk komposit ADP/zeolit untuk adsorpsi uranium. Tujuan penelitian ini adalah untuk mempelajari kemampuan komposit ADP/zeolit sebagai penjerap uranium dari limbah cair. Zeolit alam dari Lampung digunakan sebagai material awal. Material komposit dipreparasi dengan mencampurkan ADP dan zeolit dalam labu didih. Komposit ADP/zeolit yang diperoleh dikarakterisasi dengan XRD dan selanjutnya digunakan untuk percobaan adsorpsi uranium yang dilakukan dengan metode *batch*. Hasil penelitian menunjukkan mineral utama pada zeolit yang digunakan adalah klinoptilolit. Keberhasilan preparasi komposit ADP/zeolit dibuktikan melalui pola difraksi XRD. Hasil eksperimen ditunjukkan dengan kinetika adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit yang berlangsung cepat dan mencapai kesetimbangan kurang dari 16 menit. Model kinetika adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit model pseudo-orde kedua. Variabel pH menunjukkan adsorpsi uranium nitrat oleh komposit ADP/zeolit optimum pada pH 7. Komposit ADP/zeolit menunjukkan peningkatan kemampuan adsorpsi terhadap uranium dibandingkan dengan zeolit alam. Komposisi penyusun komposit ADP/zeolit didapatkan pada perbandingan ADP : zeolit masing-masing adalah 1:1.

Kata kunci: Komposit, zeolit, *ammonium dihydrogen phosphate*, uranium terlarut, adsorpsi.

ABSTRACT

ADSORPTION OF AQUEOUS URANIUM ONTO AMMONIUM DIHYDROGEN PHOSPHATE/ZEOLIT COMPOSITE. Zeolite is one of natural aluminosilicate minerals that widely studied for adsorbent for liquid waste treatment. This mineral has also been studied for treatment of waste generated from nuclear industries, including adsorption of uranium from liquid waste. The treatment of this kind of waste is critical in various steps of nuclear fuel cycle. Modification of zeolite, which can be carried out physically or chemically, was reported can increase the adsorption performance of the zeolite. In this research, the capability of zeolite was increased by adding Ammonium Dihydrogen Phosphate (ADP) to form an ADP/zeolite composite for uranium adsorption. The objective of this study is to determine the adsorption performance of ADP/zeolite composite for aqueous uranium. Natural zeolite from Lampung was used as starting material. The composite material is prepared by mixing Ammonium Dihydrogen Phosphate and zeolite in a boiling flask. The resulting composite was characterize using XRD and used for adsorption of aqueous uranium by batch method. The results show that the predominant mineral in the natural zeolite was clinoptilolite. Modification of the zeolite by ADP was succeed as was shown in the XRD pattern. The experimental results are shown by the kinetics of uranium adsorption by the ADP/zeolite composite which takes place quickly and reaches equilibrium in less than 16 minutes. The adsorption kinetics of uranium onto the ADP/zeolite composite was found to follow pseudo-second order. The optimum pH for the adsorption was 7. The uranium adsorption capacity of ADP/zeolite composite was higher than that of natural zeolite. The highest uranium adsorption was obtained for the composite with composition ratio of ADP and zeolite was 1:1.

Keywords: Composite, zeolite, ammonium dihydrogen phosphate, dissolved uranium, adsorption.

Adsorpsi Uranium Terlarut Oleh Komposit *Ammonium Dihydrogen Phosphate*/Zeolit
(Yuli Purwanto, Dwi Luhur Ibnu Saputra, Mirawaty, Untung Sugiharto, Wati,
Jaka Rachmadetin, Pungky Ayu Artiani)

PENDAHULUAN

Zeolit merupakan kristal alami dan juga buatan, memiliki porositas mikro, berupa alumino silikat yang tersusun dari kation alkali dan alkali tanah. Zeolit alam terbentuk dari hasil reaksi antara abu vulkanik dan air alkali yang terjadi pada kisaran ribu tahun. Pemanfaatan zeolit di berbagai belahan dunia sudah ada semenjak berabad-abad yang lalu [1], [2]. Sekitar 40 jenis zeolit alam sudah diketahui, didominasi oleh kandungan Si/Al yang rendah, hanya sedikit dengan kandungan Si/Al yang tinggi [3]. Secara umum rumus kimia zeolit adalah $Mx/n((AlO_2)_x(AlO_2)_y)(H_2O)_z$, dengan M menunjukkan kation ekstra-kerangka valensi n, yang mengompensasi muatan negatif kerangka dan memungkinkan zeolit menjadi penukar kation [3], [4]. Zeolit alam banyak terdapat di Indonesia, antara lain di Lebak Banten (zeolit Bayah), Sidomulyo Lampung, Tasikmalaya dan Sukabumi Jawa Barat [5].

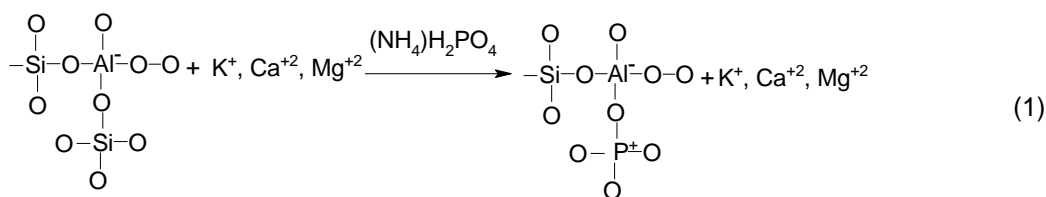
Zeolit alam banyak mengandung garam terlarut, partikel/mineral berat seperti silikat dan zat pengotor lainnya yang dapat mengganggu proses penyerapan, sehingga diperlukan proses modifikasi untuk mengoptimalkan performa adsorpsinya. Modifikasi dapat dilakukan secara fisika atau kimia yang bertujuan untuk meningkatkan kemampuan kapasitas adsorpsi, mengubah bentuk kation dan komposisi kerangka zeolit [6]. Modifikasi secara fisik dilakukan dengan mengubah ukuran partikel, bentuk atau porositasnya, yang dapat dilakukan dengan pemotongan, penggilingan, kalsinasi [7]. Modifikasi secara kimia dilakukan dengan mengubah komposisi kimianya, yang prosesnya dapat dilakukan dengan beberapa cara seperti pertukaran ion dealuminasi [8], [9], substitusi isomorfis, penambahan polimer/surfaktan.

Aplikasi zeolit, baik alami maupun yang dimodifikasi, telah banyak dimanfaatkan di berbagai bidang baik sebagai adsorben [10], katalis [11], pengering [12], penukar ion [13], [14] dan bahan bangunan [15]. Pemanfaatan zeolit sebagai adsorben banyak digunakan untuk menghilangkan senyawa organik dan logam berat dari limbah industri. Beberapa penelitian tentang zeolit alam maupun modifikasi yang digunakan sebagai adsorben untuk logam berat dan radionuklida seperti Fe,

Pb [16], Cr [17], Cd [18], [19], U [20]–[22], Th [23], Cs [14], Sr [24], Co [25], [26].

Fokus studi ini adalah aplikasi adsorpsi uranium dari limbah cair. Pengolahan limbah cair uranium merupakan bagian penting dari setiap tahapan daur bahan bakar nuklir. Saat ini pengelolaan limbah cair mengandung uranium banyak dilakukan dengan menggunakan resin penukar ion. Akan tetapi metode ini memiliki beberapa tantangan diantaranya memiliki sifat *swelling* yang dapat merusak matriks imobilisasi limbah dalam jangka lama. Oleh karena itu dipelajari adsorben alternatif yang lebih sesuai terhadap matrik imobilisasi dan tetap memiliki kemampuan adsorpsi terhadap uranium. Pengelolaan limbah uranium dengan metode adsorpsi menggunakan bahan alam maupun modifikasinya telah dipelajari di antaranya menggunakan karbon aktif [27], zeolit [28], [29], bentonit/montmorilonit [30], [31]. Beberapa jenis modifikasi zeolit yang sudah dilakukan adalah, komposit Polyacrylonitrile (PAN) klinoptilolit [32], nano komposit CuO/X zeolit [33], zeolit alam modifikasi amonium [29], klinoptilolit modifikasi asam [2], zeolit heksadesil trimetil amonium bromida (HDTMABr) [34], komposit Chitosan zeolit [35]. Selain modifikasi tersebut, *ammonium dihydrogen phosphate* ($NH_4H_2PO_4$) juga telah dilaporkan untuk penyiapan komposit ADP/zeolit.

Komposit merupakan penggabungan dua buah material atau lebih yang memiliki sifat berbeda untuk menjadi material baru yang memiliki sifat berbeda dengan sifat material induknya [36]. Pembuatan komposit bertujuan untuk memperoleh karakterisasi yang lebih baik dari material pembentuknya [37]. Dalam pembentukan komposit, zeolit berperan sebagai kerangka sedangkan ADP sebagai matrik pengisi yang memberikan peningkatan karakteristik sebagai material adsorben. Pembuatan komposit zeolit dengan *ammonium dihydrogen phosphate* telah dipelajari untuk beberapa pemanfaatan antara lain sebagai katalis perengkahan senyawa hidrokarbon [26] dan bahan untuk alat pemadam api ringan [38]. Akan tetapi, pemanfaatan komposit ini untuk adsorpsi uranium belum dilaporkan. Reaksi pembentukan komposit ADP/zeolit ditunjukkan pada persamaan 1 [39].



Tujuan penelitian ini untuk menentukan parameter adsorpsi komposit ADP/zeolit terhadap ion uranium yang selanjutnya dibandingkan dengan parameter adsorpsi dari zeolit alam. Parameter adsorpsi ini diperlukan untuk menentukan efisiensi adsorpsi uranium yang selanjutnya dapat digunakan untuk mendesain proses pengolahan limbah dengan metode adsorpsi. Pada penelitian ini dilakukan sintesis dan karakterisasi komposit ADP/zeolit yang selanjutnya akan digunakan untuk adsorpsi ion uranium terlarut. Zeolit yang digunakan berasal dari Lampung yang mempunyai luas permukaan spesifik 25,9110 (m²/g). Parameter tersebut berkorelasi dengan kemampuan adsorpsi dan nilai tersebut relatif lebih besar dibandingkan dengan beberapa zeolit dari daerah lain di Indonesia (Thamzil Las, dkk., 1997). Sintesis komposit ADP/zeolit dilakukan dengan merefluks zeolit alam dengan ADP dan dilakukan karakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD). Penelitian adsorpsi akan dilakukan secara *batch* dengan larutan uranium yang dipreparasi dari uranium nitrat heksahidrat. Penggunaan larutan uranium nitrat heksahidrat sebagai limbah simulasi untuk mendapatkan kemurnian kandungan uranium tanpa adanya pengompleks lain, sehingga kemampuan adsorpsi lebih baik. Parameter dalam proses adsorpsi meliputi kinetika adsorpsi, pH optimum, dan kapasitas adsorpsi dari komposit ADP/zeolit terhadap uranium terlarut dalam limbah cair.

METODOLOGI

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah zeolit alam dari Lampung sebagai adsorban. Percobaan menggunakan limbah uranium simulasi untuk mendapatkan kemurnian larutan uranium dalam larutan tanpa adanya ion atau senyawa pengotor. Limbah uranium simulasi yang digunakan dibuat dari uranyl nitrat heksahidrat (UO₂(NO₃)₂·6H₂O), metil iodida (CH₃I) untuk pemurnian zeolit, *ammonium dihydrogen phosphate* (ADP) untuk pembuatan komposit zeolit dan arsenazo (C₂₂H₁₈As₂N₄O₁₄S₂) untuk

pengomplek pada proses analisis konsentrasi uranium terlarut. Sementara peralatan yang digunakan terdiri dari oven, *shaker*, *centrifuge*, *spektrometer UV-Vis* (Lambda 35, Perkin Elmer), dan XRD.

Sebelum digunakan untuk eksperimen adsorpsi, zeolit dimurnikan dengan proses refluks selama 3 × 8 jam. Zeolit yang telah direfluks kemudian dikeringkan dalam oven dengan temperatur 105°C selama 3 jam. Setelah itu, zeolit dibilas dengan CH₃I untuk menghilangkan mineral berat yang terkandung di dalamnya [5]. Zeolit yang telah dicuci ini selanjutnya digunakan untuk membuat komposit ADP/zeolit. Pembuatan komposit dilakukan dengan mencampur zeolit tersebut dengan NH₄H₂PO₄. Campuran kemudian dipanaskan menggunakan oven pada temperatur 235 °C selama 4,5 jam. Setelah dikeluarkan dari oven, komposit yang dihasilkan dicuci dengan air mendidih untuk menghilangkan amonium yang tersisa. Komposit ADP/zeolit kemudian dikeringkan dalam oven pada temperatur 105 °C selama 3 jam [5]. Komposit ini dibuat pada beberapa variasi perbandingan berat NH₄H₂PO₄ dan zeolit yaitu 1:5; 1:1; dan 5:1 dengan metode yang sama. Untuk mengetahui telah terbentuk komposit ADP/zeolit maka zeolit alam dan komposit ADP/zeolit yang diperoleh dikarakterisasi dengan XRD. Pola difraksi yang diperoleh dianalisis dengan *X'Pert HighScore software*.

Komposit ADP/zeolit selanjutnya digunakan untuk eksperimen adsorpsi uranium dengan metode *batch*. Eksperimen dilakukan dengan mencampurkan 0,25 g komposit ADP/zeolit dengan 250 ml larutan uranium 50 ppm pada temperatur 25 °C. Setelah waktu kontak yang ditentukan, campuran dipisahkan dengan sentrifugasi 3000 rpm selama 10 menit. Selanjutnya uranium yang terkandung di dalam supernatan dianalisis menggunakan spektrometer UV-Vis dengan arsenazo sebagai pengompleks untuk analisis tersebut. Sebagai perbandingan, eksperimen juga dilakukan menggunakan zeolit alam yang

Adsorpsi Uranium Terlarut Oleh Komposit *Ammonium Dihydrogen Phosphate*/Zeolit (Yuli Purwanto, Dwi Luhur Ibnu Saputra, Mirawaty, Untung Sugiharto, Wati, Jaka Rachmadetin, Pungky Ayu Artiani)

telah dimurnikan dengan proses refluks dan pencucian dengan CH_3l . Variabel tetap dalam eksperimen ini adalah konsentrasi uranium, perbandingan berat adsorben dan volume larutan uranium (w/v), dan temperatur eksperimen adsorpsi. Variabel bebas dalam eksperimen ini adalah waktu kontak, pH larutan, dan perbandingan $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ terhadap zeolit pada komposit (w/w).

HASIL DAN PEMBAHASAN

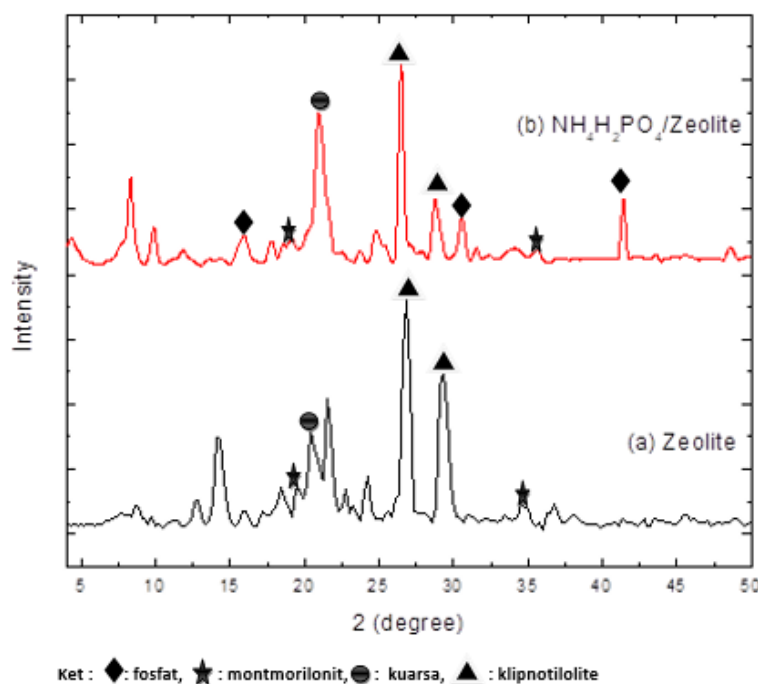
Hasil perbandingan pola difraksi zeolit alam dan komposit ADP/zeolit ditunjukkan pada Gambar 1. Dari pola difraksi yang ditunjukkan Gambar 1 (a), zeolit yang digunakan dalam penelitian ini termasuk mineral jenis klinoptilolit. Identifikasi mineral ini berdasarkan kesesuaian pola difraksi hasil XRD zeolit dengan data base untuk klinoptilolit adalah 96-154-4903 menghasilkan puncak pada 2θ sebesar $26,29^\circ$ dan $28,19^\circ$. Montmorilonit dengan data base 96-900-5243 memiliki puncak 2θ pada $20,95^\circ$. Kuarsa 96-dari *database* 900-5033 menunjukkan puncak 2θ pada $20,95^\circ$. Pada Gambar 1 (b) terlihat bahwa terjadi penurunan intensitas dan pergeseran beberapa puncak yang ada pada zeolit dengan disertai adanya puncak-puncak baru yang merupakan identitas gugus fosfat.

Dalam hal ini tidak tampak adanya perubahan struktur dasar zeolit. Identifikasi fosfat dilakukan dengan menggunakan data base 96-900-7584. Penambahan puncak baru terjadi pada sudut 2θ (2 teta) $15,38^\circ$, $30,60^\circ$, dan $41,26^\circ$ yang menunjukkan terjadinya pembentukan fosfat.

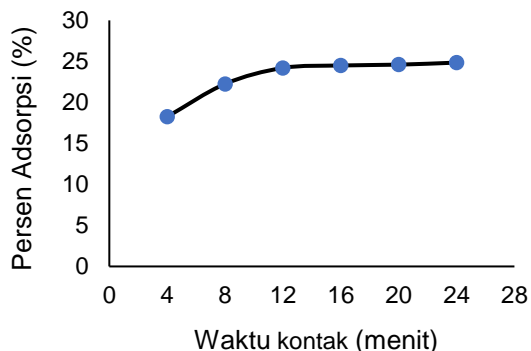
Waktu kontak memegang peran penting dalam proses adsorpsi, terutama dari segi efisiensi ekonomi [40]. Adsorpsi uranium dilakukan dengan proses *batch* dengan mengontakkan 0,25 g komposit ADP/zeolit dengan 250 mL uranium 50 ppm. Proses adsorpsi dilakukan di atas *shaker* dengan variabel waktu kontak 4, 8, 12, 16, 20, dan 24 menit. Setelah waktu kontak tercapai, sampel diambil untuk dianalisa kandungan uranium. Banyaknya uranium yang diadsorpsi dihitung dengan menggunakan persamaan 2.

$$\text{adsorpsi} = \frac{(C_0 - C_e)}{C_0} \times 100 \% \quad (2)$$

dengan C_0 (mg/L) adalah konsentrasi U(VI) dalam larutan awal, C_e (mg/L) konsentrasi U(VI) setelah kesetimbangan [29], [40], [41]. Hasil perhitungan adsorpsi U(VI) pada variabel waktu kontak ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 1. Hasil karakterisasi XRD untuk (a) zeolit dan (b) komposit ADP/zeolit.



Gambar 2. Adsorpsi uranium oleh ADP/zeolit pada variabel waktu kontak.

Gambar 2 menunjukkan eksperimen waktu kontak dari 4 – 24 menit menghasilkan banyaknya adsorpsi uranium oleh komposit ADP/Zeolit memiliki rentang nilai 15 – 25%. Proses adsorpsi sudah menunjukkan kesetimbangan pada menit ke 16, ditandai dengan stabilnya nilai persen adsorpsi. Selanjutnya model kinetika adsorpsi digunakan untuk mempelajari kesetimbangan proses adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit.

Berdasarkan data adsorpsi uranium pada variabel waktu kontak yang dihasilkan, dapat dipelajari model kinetika adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit. Hasil adsorpsi uranium waktu kontak diplot ke dalam persamaan Lagergren's pseudo orde pertama dan pseudo orde kedua yang ditunjukkan pada persamaan 3 dan 4, sedangkan kapasitas adsorpsi dihitung dengan persamaan 5.

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1}{2.303} t \tag{3}$$

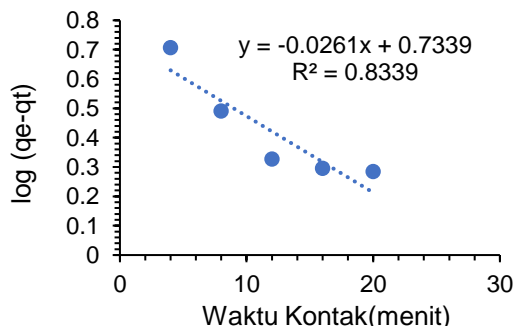
$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \tag{4}$$

$$q_e = \frac{C_0 - C_e}{m} x v \tag{5}$$

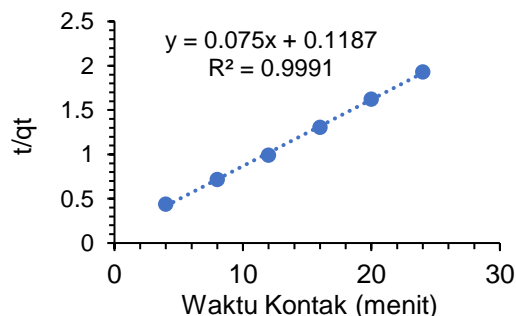
dengan q_e (mg/g) adalah kapasitas adsorpsi uranium, q_t (mg/g) adalah jumlah uranium yang terserap pada t , t (menit) adalah waktu kontak, k_1 (1/menit) adalah konstanta laju adsorpsi pseudo orde pertama, K_2 (g/mg min) adalah konstanta laju adsorpsi pseudo orde kedua. Nilai k_1 diperoleh dari plot $\log (q_e - q_t)$ dengan t , sedangkan nilai k_2 diperoleh dari plot t/q_t terhadap t . m (g) adalah massa

adsorben, dan v (mL) adalah volume larutan [4], [35], [40]–[43].

Hasil plot pseudo orde pertama dan pseudo orde kedua masing-masing ditunjukkan pada Gambar 3 dan Gambar 4. Hasil perhitungan parameter masing-masing orde ditunjukkan pada Tabel 1. Plot persamaan Lagergren's dan hasil perhitungan parameter pada tabel 1 menunjukkan bahwa adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit mengikuti model kinetik pseudo orde kedua. Hal tersebut ditunjukkan dengan nilai koefisien korelasi (R^2) pseudo orde kedua lebih baik dengan nilai 0,9991 dan perhitungan nilai adsorpsi maksimal yang diperoleh dari hasil perhitungan mendekati dari hasil eksperimen yaitu masing-masing 13,334 mg/g dan 14,225 mg/g. Hasil model kinetika adsorpsi sesuai dengan penelitian oleh Bakatula, Liu, dan Zahakifar bahwa adsorpsi uranium nitrat oleh zeolit modifikasi memiliki model kinetika orde kedua [29], [41], [44]. Dari hasil perhitungan nilai koefisien korelasi dari penelitian ini 0,9991 mendekati 1 pada pseudo orde kedua sesuai dengan penelitian Bakatula, Liu, dan Zahakifar yaitu masing-masing 0,9982; 0,9999; dan 0,9731.



Gambar 3. Kurva linier pseudo orde pertama adsorpsi uranium oleh ADP/zeolit.



Gambar 4. Kurva linier pseudo orde kedua adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit.

Adsorpsi Uranium Terlarut Oleh Komposit *Ammonium Dihydrogen Phosphate*/Zeolit (Yuli Purwanto, Dwi Luhur Ibnu Saputra, Mirawaty, Untung Sugiharto, Wati, Jaka Rachmadetin, Pungky Ayu Artiani)

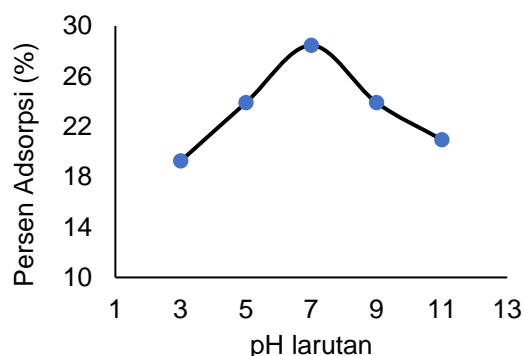
Model kinetika adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit pada pseudo orde dua menggambarkan bahwa kapasitas adsorpsi sebanding dengan jumlah situs aktif yang terisi pada permukaan adsorben. Selain itu, hal ini juga menggambarkan bahwa adsorpsi

terjadi secara kimia yang diperkirakan bahwa adsorpsi melibatkan gaya valensi dengan cara pertukaran elektron antara uranium terhadap aluminium oksida yang ada pada adsorben [24].

Tabel 1. Nilai kinetika adsorpsi uranium pseudo orde satu dan pseudo orde kedua oleh ADP/zeolit.

Pseudo orde satu				Pseudo orde dua			
k_1 (min^{-1})	$q_e \text{ Cal}$ (mg/g)	$q_e \text{ Exp}$ (mg/g)	R^2	k_2 (g/mg min)	$q_e \text{ cal}$ (mg/g)	$q_e \text{ Exp}$ (mg/g)	R^2
0,0601	5,4188	14,225	0,8339	0.0474	13,334	14,225	0,9991

Larutan limbah terutama pH menjadi parameter esensial dalam pengelolaan limbah cair mengandung uranium. Parameter ini mempengaruhi pembentukan spesi uranium dan pengikatan logam permukaan [32]. Spesiasi uranium terdistribusi berdasarkan pH larutan, sehingga proses adsorpsi akan sangat dipengaruhi oleh spesiasi pada pH larutan [40]. Hasil perhitungan besarnya adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit pada variasi pH ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Kurva adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit variabel pH larutan.

Gambar 5 menunjukkan adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit dipengaruhi oleh pH larutan. Dari hasil spesiasi uranium berdasarkan pH larutan diketahui bahwa pada pH dibawah 5 didominasi oleh UO_2^{2+} dan adanya persaingan dengan ion H^+ akan menyebabkan kapasitas adsorpsi lebih kecil. Ion uranil akan terhidrolisis seiring dengan peningkatan pH larutan. Jumlah anion $\text{UO}_2(\text{OH})^+$ dan $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$ meningkat seiring dengan peningkatan pH yang menyebabkan peningkatan kapasitas

adsorpsi, puncaknya pada pH 6-8 [40]. Hasil percobaan menunjukkan pH relatif baik berada pada nilai 7, sehingga sesuai dengan spesies uranium nitrat dalam larutan. Percobaan pada pH 7-9 kapasitas adsorpsi uranium akan menurun karena adanya peningkatan kandungan spesi uranium sehingga menjadi pesaing proses adsorpsi.

Komposit ADP/Zeolit dibuat dengan menggabungkan zeolit alam dengan ADP. Variasi komposisi penyusun komposit dibuat untuk memperoleh komposit terbaik. Komposisi penyusun komposit dibuat dengan membandingkan tiga variasi yaitu perbandingan berat antara $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ dengan zeolit alam masing-masing 1:5; 5:1 dan 1:1. Penentuan komposisi terbaik dilakukan dengan eksperimen adsorpsi *batch* dengan mengontakkan 0,25 g komposit ADP/zeolit dengan 250 mL uranium pada konsentrasi 50 mg/L dan pH 7. Hasil pengukuran kemampuan adsorpsi uranium oleh masing-masing komposisi komposit ADP/zeolit dibandingkan dengan zeolit murni ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Kapasitas adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit dengan beberapa variasi perbandingan komposisi.

No.	Jenis Adsorben	Adsorpsi Uranium (%)
1	Zeolit alam	9,2
2	ADP : zeolit, 5 : 1	7,1
3	ADP : zeolit, 1 : 5	14,9
4	ADP : zeolit, 1 : 1	25,3

Tabel 2 menunjukkan bahwa modifikasi zeolit melalui komposit ADP/zeolit memberikan kemampuan adsorpsi yang lebih baik dibandingkan dengan zeolit alam.

Dengan komposisi yang optimal berada pada perbandingan $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$: zeolit 1:1, diperoleh uranium teradsorpsi sebesar 25,5%. Zeolit alam memiliki kemampuan adsorpsi yang kecil dikarenakan masih adanya pengotor yang dapat menjadi pesaing bagi uranium. Komposit ADP/zeolit dengan komposisi dominan $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ menunjukkan uranium yang teradsorpsi lebih kecil dari zeolit murni, hal ini dikarenakan kandungan unsur penukar ion yang lebih sedikit dibandingkan zeolit murni. Hasil perbandingan kemampuan adsorpsi uranium oleh zeolit modifikasi yang lain menunjukkan bahwa komposit Polyacrylonitrile (PAN) klinoptilolit memiliki kemampuan adsorpsi uranium lebih besar dengan 26-32% [32]. Sedangkan adsorpsi uranium oleh nano komposit CuO/X zeolit memiliki kemampuan adsorpsi 35% [33]. Adsorpsi uranium nitrat dengan adsorben zeolit alam modifikasi amonium menghasilkan kemampuan adsorpsi sebesar 20,18% [29]. Modifikasi zeolit alam dengan komposit ADP/zeolit memiliki kemampuan adsorpsi uranium yang tidak berbeda jauh dengan modifikasi yang dilakukan oleh penelitian lain.

SIMPULAN

Penggunaan komposit ADP/zeolit menunjukkan peningkatan kemampuan adsorpsi terhadap uranium dibandingkan dengan zeolit alam. Komposisi penyusun komposit ADP/zeolit optimal pada perbandingan $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$: zeolit adalah 1:1. Penelitian ini juga menemukan bahwa waktu kontak 16 menit merupakan waktu kesetimbangan proses adsorpsi. Model kinetika adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit dengan persamaan Lagergren menunjukkan proses adsorpsi mengikuti model pseudo orde kedua. Variabel pH menunjukkan adsorpsi uranium oleh komposit ADP/zeolit optimum pada pH netral (7).

UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih diucapkan kepada Kepala PRTDBBNLR dan seluruh pihak terkait yang memberikan pendanaan melalui program RIIM dengan nomor kontrak B1746/II.7.5/FR/11/2022 dan B4849/III.2/HK.04.03/11/2022. Ucapan terima kasih juga penulis sampaikan kepada Ibu Ir. Aisyah, M.T yang telah memberikan bimbingan selama kegiatan penelitian dan proses penulisan karya tulis ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] E. G. G. Gottardi, "Natural Zeolites," in *Geology for Civil Engineers*, pp. 5–59, 2010.
- [2] S. Matijasevic *et al.*, "Removal of uranium (VI) from aqueous solution by acid modified zeolites," *Zast. Mater.*, vol. 57, no. 4, pp. 551–558, 2016, doi: 10.5937/zasmat1604551m.
- [3] Pramatha Payra; Prabik K. Dutta, "Zeolites: A Primer," in *Zeolite*, Ohio: Marcel Dekker, Inc, pp. 1–19, 2003.
- [4] M. Jiménez-Reyes, P. T. Almazán-Sánchez, and M. Solache-Ríos, "Radioactive waste treatments by using zeolites: A short review," *J. Environ. Radioact.*, vol. 233, February, 2021, doi: 10.1016/j.jenvrad.2021.106610.
- [5] T. Las, "Pemanfaatan mineral zeolit untuk pengolahan limbah", *Laporan Akhir Riset Unggulan Terpadu (RUT)*, Jakarta, 1997.
- [6] Darmansyah, L. Hermida, A. Fatahillah, and M. Y. Atrafatrin, "Sintesis dan aplikasi zeolit modifikasi surfaktan sebagai adsorben limbah cair tapioka (Perbandingan dengan zeolit alam kalsinasi)," *Pros. Semin. Nas. "Kontribusi Akad. dalam Pencapaian Pembang. Berkelanjutan" Univ. Brawijaya, Malang 12 Februari 2016*, pp. 75–83, 2016.
- [7] F. Syafii, S. Sugiarti, and Charlena, "Modifikasi zeolit melalui interaksi dengan $\text{Fe}(\text{OH})_3$ untuk meningkatkan kapasitas tukar anion," November, pp. 307–315, 2010.
- [8] D. Y. Lestari, "Kajian modifikasi dan karakterisasi zeolit alam dari berbagai negara," *Pros. Semin. Nas. Kim. dan Pendidik. Kim. 2010*, p. 6, 2010.
- [9] N. Indah and F. Mukti, "Modifikasi zeolit alam sebagai adsorben ammonium hidroksida (NH_4OH)," *Teknoin*, vol. 22, no. 10, pp. 752–763, 2016, doi: 10.20885/teknoin.vol22.iss10.art4.
- [10] S. Kristianingrum, S. Sulistyani, A. Fillaeli, E. Dwi Siswani, and N. Hasna Nafiisah, "Aplikasi sistem kontinyu menggunakan karbon aktif untuk penurunan kadar logam Cu dan Zn dalam air limbah," *J. Sains Dasar*, vol. 9, no. 2, pp. 54–59, 2020, doi: 10.21831/jsd.v9i2.38965.
- [11] I. Aziz, S. Nurbayti, and A. Rahman, "Penggunaan zeolit alam sebagai katalis dalam pembuatan biodiesel," *J. Kim.*

Adsorpsi Uranium Terlarut Oleh Komposit *Ammonium Dihydrogen Phosphate*/Zeolit
(Yuli Purwanto, Dwi Luhur Ibnu Saputra, Mirawaty, Untung Sugiharto, Wati,
Jaka Rachmadetin, Pungky Ayu Artiani)

- Val.*, vol. 2, no. 4, pp. 511–515, 2012, doi: 10.15408/jkv.v2i4.268.
- [12] D. A. S. Djaeni, M., Nurul Asiah, “Proses pengeringan adsorpsi dengan media udara yang didehidratifikasi zeolit dan peralatan yang digunakan,” S00201407536, 2019.
- [13] R. Kriswarini, E. Noerpitarsi, N. Noviarty, S. Indaryati, and A. Nugroho, “Pengaruh standar lantanum terhadap validasi metode pengukuran neodimium dan serium menggunakan X-Ray Fluorescence (XRF),” *Pertem. dan Present. Ilm. Stand.*, vol. 2020, pp. 115–122, 2021, doi: 10.31153/ppis.2020.89.
- [14] N. Noviarty, D. Anggraini, and A. Nugroho, “Cs ion exchange capacity of zeolite Bayah, Lampung, and Tasikmalaya,” *J. Zeolit Indones.*, vol. 8, no. 1, pp. 39–43, 2009.
- [15] A. R. Pratomo, F. Supriani, and A. Gunawan, “Pengaruh penggunaan zeolit sebagai bahan pengganti sebagian semen terhadap kuat tekan paving block konvensional,” *Inersia, J. Tek. Sipil*, vol. 10, no. 2, pp. 35–40, 2019, doi: 10.33369/ijts.10.2.35-40.
- [16] T. Elysaeth, Jufrodi, and Hudaeni, “Adsorpsi logam berat besi dan timbal menggunakan zeolit alam Bayah teraktivasi,” *J. Chemtech*, vol. 1, no. 1, pp. 26–29, 2015.
- [17] S. Sriatun, “Modifikasi zeolit alam menggunakan trietanolamin (TEA) sebagai adsorben ion logam kromium (III),” *Akta Kim. Indones.*, vol. 5, no. 2, p. 62, 2020. doi: 10.12962/j25493736.v5i2.7807.
- [18] S. W. Pratomo, F. W. Mahatmanti, and T. Sulistyaningsih, “Pemanfaatan zeolit alam teraktivasi H_3PO_4 sebagai adsorben ion logam Cd(II) dalam larutan,” *J. Chem. Sci.*, vol. 6, no. 2, pp. 161–167, 2017.
- [19] D. Krisdiyanto, Khamidinal, and A. Faqih, “Adsorption Cd (II) by zeolite from bottom ash modified by dithizone,” *J. Trop. Chem. Res. Educ.*, vol. 4, no. 2, pp. 110–125, 2022, doi: 10.14421/jtcre.2022.42-06.
- [20] Y. D. Jati and H. Martono, “H-Zeolit serta solidifikasi dengan polimer epoksi,” *J. Tek. Lingkungan*, vol. 2, no. 2, pp. 1–8, 2013.
- [21] M. Barkat, D. Nibou, S. Amokrane, S. Chegrouche, and A. Mellah, “Uranium (VI) adsorption on synthesized 4A and P1 zeolites: Equilibrium, kinetic, and thermodynamic studies,” *Comptes Rendus Chim.*, vol. 18, no. 3, pp. 261–269, 2015, doi: 10.1016/j.crci.2014.09.011.
- [22] S. Olmez Aytas, S. Akyil, and M. Eral, “Adsorption and thermodynamic behavior of uranium on natural zeolite,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 260, no. 1, pp. 119–125, 2004, doi: 10.1023/B:JRNC.0000027070.25215.92
- [23] F. Rahmawati, “Adsorpsi thorium dalam larutan menggunakan zeolit alam termodifikasi mangan oksida,” *Skripsi*, 2017.
- [24] K. T. Basuki, M. Fatuzzahroh, D. Ariyanti, and A. Saputra, “Studi kinetika adsorpsi ion stronsium,” vol. 1, pp. 22–26, 2022.
- [25] G. Mutiara and H. Al, “Gesyth Mutiara Hikmah Al Ichsan 11630023,” no. li, 2015.
- [26] Y. Zhao, J. Liu, N. He, C. Liu, and H. Guo, “A comparison on the hydrothermal stability of nano-sized H-ZSM-5 zeolite modified by ammonium dihydrogen phosphate and trimethylphosphate,” *Catal. Letters*, vol. 149, no. 8, pp. 2169–2179, 2019, doi: 10.1007/s10562-019-02778-8.
- [27] A. Mellah, S. Chegrouche, and M. Barkat, “The removal of uranium(VI) from aqueous solutions onto activated carbon: Kinetic and thermodynamic investigations,” *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 296, no. 2, pp. 434–441, 2006, doi: 10.1016/j.jcis.2005.09.045.
- [28] M. Jiménez-Reyes, P. T. Almazán-Sánchez, and M. Solache-Ríos, “Radioactive waste treatments by using zeolites. A short review,” *J. Environ. Radioact.*, vol. 233, no. April, 2021, doi: 10.1016/j.jenvrad.2021.106610.
- [29] E. N. Bakatula, A. K. Mosai, and H. Tutu, “Removal of uranium from aqueous solutions using ammonium-modified zeolite,” *South African J. Chem.*, vol. 68, pp. 165–171, 2015, doi: 10.17159/0379-4350/2015/v68a23.
- [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] M. Majdan, S. Pikus, A. Gajowiak, D. Sternik, and E. Zieba, "Uranium sorption on bentonite modified by octadecyltrimethylammonium bromide," *J. Hazard. Mater.*, vol. 184, no. 1–3, pp. 662–670, 2010, doi: 10.1016/j.jhazmat.2010.08.089.
- [32] S. Akyil, M. A. A. Aslani, and M. Eral, "Sorptions characteristics of uranium onto composite ion exchangers," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 256, no. 1, pp. 45–51, 2003, doi: 10.1023/A:1023391707606.
- [33] M. R. Abdi, H. R. Shakur, K. Rezaee Ebrahim Saraee, and M. Sadeghi, "Effective removal of uranium ions from drinking water using CuO/X zeolite based nanocomposites: Effects of nano concentration and cation exchange," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 300, no. 3, pp. 1217–1225, 2014, doi: 10.1007/s10967-014-3092-3.
- [34] A. Krajiňák, E. Viglašová, M. Galamboš, and L. Krivosudský, "Kinetics, thermodynamics and isotherm parameters of uranium(VI) adsorption on natural and hdtma-intercalated bentonite and zeolite," *Desalin. Water Treat.*, vol. 127, pp. 272–281, 2018, doi: 10.5004/dwt.2018.22762.
- [35] L. Yang *et al.*, "Efficient selective adsorption of uranium using a novel eco-friendly chitosan-grafted adenosine 5'-monophosphate foam," *Carbohydr. Polym.*, vol. 285, no. January, p. 119157, 2022, doi: 10.1016/j.carbpol.2022.119157.
- [36] V. Zharvan, M. Muris, and S. Subaer, "Studi struktur mikro dan kuat lentur komposit geopolimer serat bambu dengan temperatur curing berbeda," *J. Fis. dan Apl.*, vol. 9, no. 3, p. 100, 2013, doi: 10.12962/j24604682.v9i3.849.
- [37] A. Takwanto, Y. Maryanty, A. W. Mustikarini, and D. W. Sari, "Komposit zeolit-polivinil alkohol sebagai adsorben untuk menurunkan kesadahan air tanah," pp. 131–144.
- [38] H. Li, L. Feng, D. Du, X. Guo, M. Hua, and X. Pan, "Fire suppression performance of a new type of composite superfine dry powder," *Fire Mater.*, vol. 43, no. 8, pp. 905–916, 2019, doi: 10.1002/fam.2750.
- [39] S. . Malik, "Inorganic Ion Exchangers," University of Salford, the United Kingdom, 1988.
- [40] T. Yang, W. Zhang, H. Liu, and Y. Guo, "Enhanced removal of U(VI) from aqueous solution by chitosan-modified zeolite," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 323, no. 2, pp. 1003–1012, 2020, doi: 10.1007/s10967-019-06993-w.
- [41] R. Liu *et al.*, "Polyacrylate/phytic acid hydrogel derived phosphate-rich macroporous carbon foam for high-efficiency uranium adsorption," *J. Water Process Eng.*, vol. 53, no. February, p. 103659, 2023, doi: 10.1016/j.jwpe.2023.103659.
- [42] M. Solgy, M. Taghizadeh, and D. Ghoddocynejad, "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.
- [43] A. S. El-Sheikh, E. A. Haggag, and N. R. A. El-Rahman, "Adsorption of uranium from sulfate medium using a synthetic polymer; kinetic characteristics," *Radiochemistry*, vol. 62, no. 4, pp. 499–510, 2020, doi: 10.1134/S1066362220040074.
- [44] F. Zahakifar, A. R. Keshtkar, and M. Talebi, "Synthesis of sodium alginate (SA)/ polyvinyl alcohol (PVA)/ polyethylene oxide (PEO)/ ZSM-5 zeolite hybrid nanostructure adsorbent by casting method for uranium (VI) adsorption from aqueous solutions," *Prog. Nucl. Energy*, vol. 134, no. January, p. 103642, 2021, doi: 10.1016/j.pnucene.2021.103642.