

## PEMISAHAN URANIUM DARI CAMPURAN Fe DENGAN EKSTRAKSI PELARUT MENGGUNAKAN TOPO DAN HDEHP

Kris Tri Basuki\*), D. Pareau\*\*), G. Durand\*\*), A. Chesne\*\*)

\*)Pusat Penelitian Nuklir Yogyakarta - Badan Tenaga Atom Nasional

\*\*)Laboratoire Chimie Nucleaire et Industrielle - Ecole Centrale Paris.

### ABSTRAK

PEMISAHAN URANIUM DARI CAMPURAN Fe DENGAN EKSTRAKSI PELARUT MENGGUNAKAN TOPO DAN HDEHP. HDEHP secara luas digunakan pada proses hidrometalurgi, untuk memisahkan dan memurnikan beberapa logam seperti uranium, logam tanah jarang, Cu, Co dan Nikel. Fe secara umum merupakan pengotor pada industri dasar yang terlarut dalam bentuk Fe(II) atau Fe(III). Fe dan U terlarut bersama-sama pada proses pelarutan  $H_3PO_4$  dan terekstraksi selama pengambilan uranium melalui HDEHP-TOPO. Pada reekstraksi dengan kandungan  $H_3PO_4$  5,1 M, diperoleh 88-93 % untuk Fe(III) dan 7-10 % untuk U(VI).

### ABSTRACT

Di(2-ethylhexyl) phosphoric acid (HDEHP) is widely used in hydrometallurgical process for separation and purification of a number of metals such as uranium, rare earth, copper, cobalt and nickel. Iron is a very common impurity in raw industrial acid metal solutions in either the divalent or trivalent states. So, it is associated with uranium in the wet process phosphoric acid, and it is coextracted during the uranium recovery by HDEHP-TOPO. The reextraction yield was obtained 88-93 % for Fe(III) and 7-10 % for U(VI) respectively by using 5,1 M  $H_3PO_4$  as water phase.

### PENDAHULUAN

Pada tahun 1970-1980 kenaikan produksi uranium di dunia terjadi sangat cepat. Tahun 1970 produksinya 20.000 ton dan tahun 1980/1981 produksinya 44.000 ton. Sejak saat itu turunlah produksi dikarenakan penurunan konsumsi. Pada keadaan ini harga uranium sangat tidak menguntungkan yaitu dari  $\pm$  43 \$/pound pada tahun 1980 menjadi 10,7 \$/pound pada tahun 1991 ini.

Penurunan harga ini banyak menyebabkan penutupan tambang uranium seperti di U.S.A. Dengan hal tersebut, lebih penting rasanya dipikirkan pemilihan metode pemisahan yang selektif agar dapat berkompetisi, terutama dari pertimbangan nilai ekonomis.

Ekstraksi cair-cair sudah banyak digunakan untuk siklus bahan bakar nuklir dalam proses pemisahan uranium pada larutan konsentrasi uranium ataupun pada bahan bakar radiasi (retraitment).

Pengambilan uranium dalam asam fosfat telah banyak dilakukan seperti proses MOPA, DOPA, OPPA dan  $D_2EHPA$ , akan tetapi problema selektivitas ekstraksi untuk Fe(II dan III) tidak pernah terselesaikan. Pemisahan uranium dari asam fosfat seperti di Pabrik PUPUK PETRO KIMIA KUJANG merupakan keharusan yang tidak bisa ditawar untuk meningkatkan

kualitas pupuk. Selain itu juga tidak baik bagi lingkungan dengan kandungan uranium yang cukup tinggi.

### BAHAN DAN TATAKERJA

#### Bahan.

Semua senyawa kimia yang digunakan dengan kemurnian analisis, HDEHP dan TOPO yang digunakan merupakan produksi MOBIL-CO, larutan fase air yang dipakai berdasarkan plan industri. Larutan organik digunakan dengan mencampurkan HDEHP dan TOPO pada larutan kerosen.

#### Tatakerja.

##### Preparasi awal.

Ekstraksi dilengkapi dengan termostat dan dikerjakan selama 20 menit sebagai waktu kesetimbangan fase air ke fase organik. Konsentrasi uranium dan besi di dalam fase air dan fase organik ditentukan berdasarkan metode spektrofotometri.

#### Ekstraksi

- Dilakukan ekstraksi isoterm Fe(III) dan U(VI) dari larutan 5,1 M  $H_3PO_4$  dengan 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO pada suhu 25 °C dengan variasi :

- konsentrasi U = 2,65 ; 4,85 dan 9,36 gr/l  
konsentrasi Fe = 3,47 ; 12,30 ; 22,40 dan 33,42 g/l.
- Dilakukan ekstraksi Fe dengan konsentrasi awal bervariasi 3,50; 5,40; 12,30; 22,30 dan 32,40 g/l pada keasaman 2 - 7 M H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan pelarut 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO, suhu 25 °C serta dengan penambahan uranium 4,8 g/l.
  - Dilakukan ekstraksi uranium dengan konsentrasi awal bervariasi 2,65; 4,90 dan 13,92 gr/l pada keasaman 2 - 7 M H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan pelarut 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO, suhu 25 °C serta dengan penambahan Fe yang bervariasi 3,47; 5,42; 22,30 dan 32,42 g/l.
  - Dilakukan ekstraksi 4,90 g/l Fe(III) pada 5,1 M H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO dan penambahan uranium bervariasi 2,65; 4,85 dan 13,92 g/l, suhu bervariasi 298 °K; 308 °K dan 318 °K.
  - Dilakukan ekstraksi uranium di dalam 5,1 M H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO dan penambahan Fe bervariasi 2,47; 5,42 dan 12,30 gr/l, suhu bervariasi 298 °; 308 ° dan 318 °K.
  - Dilakukan ekstraksi Fe di dalam 5,1 M H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> pada suhu 25 °C dan penambahan 4,9 g/l uranium dengan pelarut bervariasi 1 M HDEHP + 0,025 M TOPO; 0,5 M HEDHP + 0,125 M TOPO dan 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO.

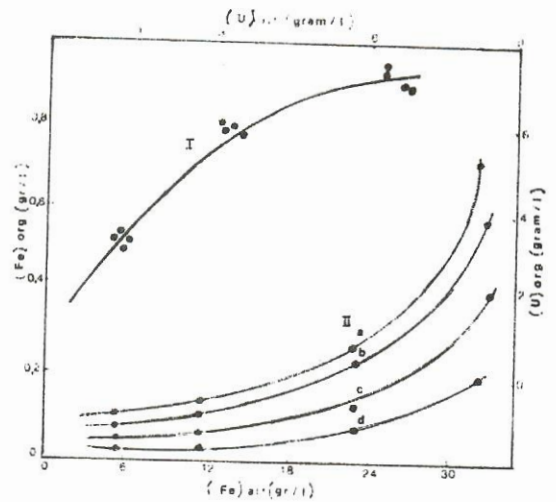
### HASIL DAN DISKUSI

Sifat isoterm untuk ekstraksi Fe(III) dan U(VI) dalam fase air 5,1 M H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dan fase organik 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO dalam kerosen pada temperatur 25 °C dapat dilihat pada gambar 1.

Hasil menunjukkan bahwa ada pengaruh dari U(VI) pada ekstraksi Fe(III) dan sangat nyata pengaruhnya pada konsentrasi U(VI) yang cukup tinggi. Harga koefisien distribusi Fe(III) dengan konsentrasi mula-mula U(VI) sebanyak 4,9 g/l digambarkan dengan fungsi konsentrasi H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> pada Gambar 2.

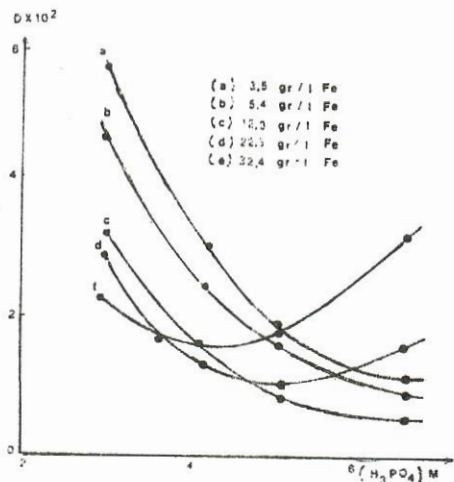
Harga yang sama juga diterapkan untuk ekstraksi U(VI) dengan variasi konsentrasi Fe(III) dari 3,5 g/l sampai 32,3 g/l pada fase air diterakan pada Gambar 3.

Hal tersebut menunjukkan bahwa korelasi koefisien distribusi U(VI) turun untuk semua percobaan dengan kenaikan konsentrasi H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>.

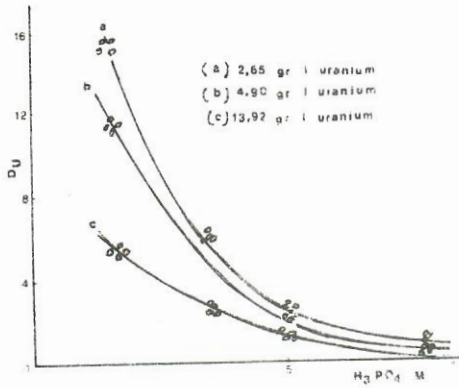


Gambar 1. Ekstraksi isoterm Fe(III) dan U(VI). Dari 5,1 M H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dengan 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO pada suhu 25 °C.

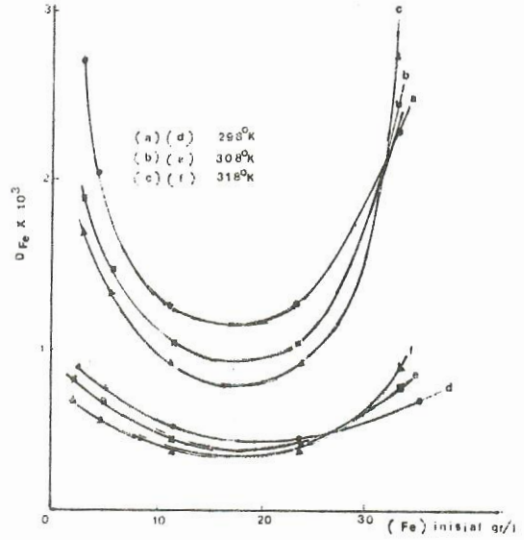
I. (U) inisial dalam g/l = 2,65; 4,85; 9,36; 13,92.  
II. (Fe) inisial dalam g/l = a) 3,47 b) 12,3 c) 22,4 d) 33,42.



Gambar 2. Koefisien Distribusi Fe(III) pada fungsi H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> dan 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO pada suhu 25 °C, serta dengan konsentrasi awal uranium 4,85 g/l.



Gambar 3. Koefisien distribusi U(VI) pada fungsi  $H_3PO_4$  dengan kondisi 0,3 M HDEHP + 0,075 TOPO pada suhu 25 °C serta kondisi awal Fe(III) : 3,47 g/l : 22,3 g/l : 5,42 g/l : 32,42 g/l



Gambar 4. Pengaruh konsentrasi awal Fe(III) pada ekstraksi Fe(III) dengan kondisi  $H_3PO_4$  dan 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO serta kondisi awal uranium : 2,65 g/l : 4,85 g/l : 13,92 g/l

Dengan kenaikan  $H_3PO_4$ , menyebabkan reaksi bergeser ke arah kanan membentuk  $[UO_2 3H_3PO_4]^{++}$  dan menyebabkan uranium dari fase air sulit terekstraksi ke fase organik, sedangkan untuk koefisien distribusi Fe(III) naik setelah penambahan konsentrasi awal di atas 20 g/l dikarenakan adanya Fe(III) bebas.

$$Fe^{3+} + H_2PO_4^- \rightleftharpoons [Fe(H_2PO_4)]^{++} \quad K = 10^{3,5}$$

$$H_3PO_4 \rightleftharpoons H^+ + H_2PO_4^- \quad K = 10^{-2,1}$$

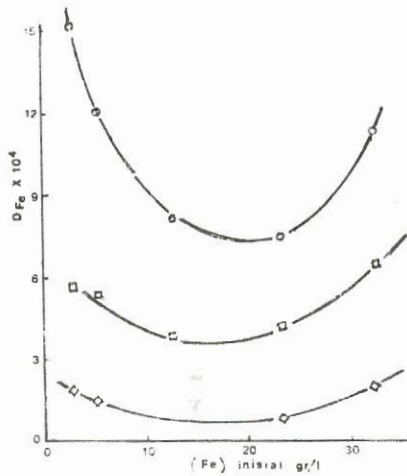
$$H_2PO_4^- \rightleftharpoons H^+ + HPO_4^{2-} \quad K = 10^{-2,2}$$

$$HPO_4^{2-} \rightleftharpoons H^+ + PO_4^{3-} \quad K = 10^{-12,4}$$

Hal ini secara nyata sangat baik korelasinya dengan hasil pada Gambar 1, dengan penggambaran hasil pada Gambar 4 dengan konsentrasi U(VI) konstan.

Koefisien distribusi Fe(III) turun dengan kenaikan temperatur untuk konsentrasi Fe(III) di fase air lebih dari 20 g/l.

Pengaruh yang sama pada koefisien distribusi U(VI) kurang jelas dengan penggunaan variasi konsentrasi Fe(III). Pengaruh kenaikan koefisien distribusi Fe(III) dengan konsentrasi awal 20 g/l dan konsentrasi U(VI) konstan dalam larutan 5,1 M  $H_3PO_4$ , ditunjukkan dengan kenaikan molaritas dari ekstrak dan digambarkan pada Gambar 5. Fe dapat direkstraksi dari fase organik ke fase air dengan konsentrasi



Gambar 5. Pengaruh konsentrasi distribusi dengan koefisien ekstraksi Fe(III) dengan kondisi 5,1 M  $H_3PO_4$  pada suhu 25 °C dengan konsentrasi awal Fe : 1,9 g/l.

- : 1 M HDEHP + 0,025 M TOPO
- : 0,5 M HDEHP + 0,125 M TOPO
- : 0,3 M HDEHP + 0,075 M TOPO

5,1 M  $H_3PO_4$  pada temperatur 25 ° dan 50 °C. Kandungan Fe pada  $H_3PO_4$  adalah 1,9 g/l.

Hasil dari reekstraksi Fe(III) antara 88 % - 93 % yang berasal dari fase organik 0,5 M HDEHP + 0,125 M TOPO ke fase air 5,1 M  $H_3PO_4$  dengan temperatur 25 °C.

Pada waktu yang sama reekstraksi untuk U(VI) antara 7 - 10 %.

## KESIMPULAN

Campuran antara HDEHP dan TOPO yang dilarutkan pada senyawa kerosen dapat digunakan untuk memisahkan U(VI) dan Fe(III) pada proses ekstraksi.

Pemisahan kembali pada reekstraksi dapat dilakukan pada kondisi fase air dengan konsentrasi 5,1 M  $H_3PO_4$  dengan hasil reekstraksi untuk Fe(III) 88 - 93 % dan untuk U(VI) 7 - 10 %.

## DAFTAR PUSTAKA

1. Hurst, F.J. and Crouse, D.J., Ind. eng. chem., Proc. Des. Develop., (1974) 3, 13, 286.
2. Berry, W.W. and Henrickon, A.V., US. Pat. 4 (1981) 302, 427.
3. Bunus, F.T., Domocos, V.C. and Dimitresen, P., J. inorg. nucl. chem. (1978) 40, 117.
4. Meles, S., Prostenik, M.V., Polyhedron 3 (1984) 615.
5. Broic, I., Polla. E. and Radosevic, M. Analyst, 110 (1985) 1249, 1463.
6. Anil, K. De. et. al, Solvent extraction of metal, Nostrand Reinhold Company, London (1974).
7. James, E. Grinder, Radiochemistry of Uranium, NAS NS-3050 (1962)

## DISKUSI

### Gunandjar:

1. Mohon dapat diberikan bentuk senyawa kompleks  $UO_2$  di dalam fase organik HDEHP-TOPO?
2. Spesies kompleks  $UO_2$  dalam fase air tergantung dari konsentrasi  $H_3PO_4$ . Mohon bisa dijelaskan pada daerah konsentrasi  $H_3PO_4$  berapa masing-masing spesies kompleks itu terbentuk (dominan) ?
3. Apa dasar pemilihan konsentrasi 5,1 M  $H_3PO_4$ , mengapa tidak diatas konsentrasi itu?
4. Mohon bisa dijelaskan optimasi sehingga diperoleh perbandingan HDEHP dan TOPO 0,3 M dan 0,075 M ?

### Kris Tri Basuki:

1.  $[UO_2 2TOPO]^{1++}$  dan  $[UO_2 2.HDEHP]^{1++}$ .
2. Semua daerah membentuk kompleks yang dominan untuk  $[UO_2 3H_3PO_4]^{1++}$  setelah program.
3. Secara plan industri.
4. Secara plan industri.

### Wuryanto:

Mohon diinformasikan keunggulan dan kelemahan proses DOPA yang telah dilakukan dengan hasil penelitian saudara yang menggunakan OHDP. Dan bagaimana kemungkinan aplikasi secara industri untuk mengambil U(VI) dari pabrik pupuk.

### Kris Tri Basuki:

OHDP lebih selektif untuk proses pemurnian uranium dari asam fosfat bila dibandingkan proses DOPA.