

# PENGARUH VARIASI RASIO Mg/Al PADA SINTESIS HIDROTALSIT DENGAN METODE KOPRESIPITASI HIDROTHERMAL

Sri Handayani, Cahyorini Kusumawardani, Kun Sri Budiasih

Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Yogyakarta

e-mail: [handayani137uny@yahoo.com](mailto:handayani137uny@yahoo.com)

## Abstrak

Katalis terbagi menjadi dua yaitu katalis homogen dan heterogen. Katalis yang sekarang terus berkembang adalah katalis heterogen karena mudah dipisahkan dan dapat digunakan kembali. Tujuan penelitian ini adalah sintesis dan karakterisasi Hidrotalsit Mg/Al sebagai salah satu katalis heterogen yang dapat digunakan dalam reaksi kondensasi aldol. Cara yang digunakan untuk sintesis Hidrotalsit adalah metode kopresipitasi hidrotermal. Sintesis hidrotalsit Mg/Al diawali dengan optimasi suhu hidrotermal. Selanjutnya dilakukan variasi mol Mg/Al dengan rasio 1-4 pada suhu hidrotermal optimal dan dikalsinasi pada 400<sup>0</sup>C. Karakterisasi dilakukan menggunakan FTIR untuk analisis gugus fungsional serta XRD untuk melihat strukturnya. Hasil karakterisasi hidrotalsit sintesis menunjukkan bahwa kondisi terbaik diperoleh pada perbandingan mol Mg/Al sebesar 3:1.

Kata kunci: hidrotalsit, kopresipitasi, katalis heterogen

## Abstract

*Catalyst are divided into two kinds, homogeneous and heterogeneous catalysts. The catalyst that constantly developed is a heterogeneous catalyst because could be separated easily and reuseable. The purpose of this research were synthesis and characterization of hydrotalcite Mg/Al as a heterogeneous catalyst which can be use in the aldol condensation reaction. Synthesis hydrotalcite was conducted by hydrothermal coprecipitation method. Synthesis performed with variations mol Mg/Al at a temperature hydrothermal 100<sup>0</sup>C for 15 hours. Hydrotalcite as a heterogeneous catalyst preparation was done by calcination at 400<sup>0</sup>C. Characterization of synthesized hydrotalcite was performed by FTIR to identified functional group and XRD analysis to characteriz edit's structure. The results showed that the optimum conditions for the synthesized hydrotalcite was obtained at mole ratio Mg/Al 3:1.*

*Keywords: hydrotalcite, coprecipitation, heterogeneous catalysts*

## PENDAHULUAN

Beberapa peneliti telah mengembangkan reaksi kondensasi aldol silang dengan katalis homogen baik basa (Handayani and Arty, 2008) atau asam (Sardjiman, 2000; Pudjono *et.al.*, 2008). Selain beberapa katalis homogen tersebut, dewasa ini telah dikembangkan pula penggunaan katalis heterogen. Katalis heterogen yang dapat

digunakan pada reaksi kondensasi aldol adalah hidrotalsit (Guida *et al.*, 1997; Perez *et al.*, 2004).

Hidrotalsit telah banyak diaplikasikan sebagai katalis dalam proses katalitik heterogen karena memiliki beberapa kelebihan antara lain memiliki luas permukaan tinggi, mudah dipreparasi dan murah, mudah dipisahkan dari produk hasil

reaksi, meminimalkan limbah hasil reaksi dan memungkinkan untuk diregenerasi (Cavani *et al.*, 2001). Karakter tersebut membuat material hidrotalsit cukup menjanjikan untuk aplikasi komersial. Beberapa modifikasi hidrotalsit terbukti menunjukkan aktivitas katalis pada reaksi kondensasi aldol beberapa aldehid dan keton (Koteswara *et al.*, 1998; Roelofs *et al.* 2000; Suzuki dan Ono, 2004). Material hidrotalsit yang biasa digunakan sebagai katalis pada reaksi kondensasi aldol yaitu Mg/Al hidrotalsit (rasio mol Mg/Al pada kisaran 2,1 – 3,6) dengan anion karbonat dan nitrat pada ruang antarlapisan.

Hidrotalsit merupakan lempung anionik yang strukturnya diturunkan dari struktur *brucite*. Formula umum hidrotalsit sebagai lempung anionik adalah  $[M_x^{2+}M_x^{3+}(OH)_2]^{b-}[A^{n-}]_{b/n}.mH_2O$ . Material hidrotalsit yang biasa digunakan sebagai katalis pada reaksi kondensasi aldol yaitu Mg/Al hidrotalsit (rasio mol Mg/Al pada kisaran 2,1 – 3,6) dengan anion karbonat dan nitrat pada ruang antarlapisan.

Sebagian besar katalis hidrotalsit dipreparasi dengan metode ko-presipitasi, dengan berbagai modifikasi metode ko-presipitasi yang dilakukan antara lain melibatkan proses titrasi (Negron *et al.*, 2003), presipitasi pada larutan jenuh (*high*

*supersaturation*) (Kustrowski *et al.*, 2005) ataupun encer (*low supersaturation*) dan metode presipitasi melalui peningkatan pH. Metode titrasi merupakan metode yang paling mudah dan sederhana, tetapi pertukaran kation pada hidrotalsit hasil preparasi sulit dilakukan karena anion yang sangat penuh pada ruang antarlapis. Metode presipitasi pada larutan encer dapat menghasilkan material dengan kristalinitas yang lebih tinggi daripada pada larutan jenuh karena laju pertumbuhan kristal lebih tinggi dibandingkan laju nukleasi sehingga partikel dengan ukuran kecil dapat segera terbentuk. Luas permukaan katalis yang tinggi diperoleh dari partikel berukuran kecil, sehingga metode ini lebih dipilih sebagai metode preparasi katalis meskipun belum banyak dilakukan. Selain aktivitas dan selektivitas katalitik yang tinggi pada reaksi tersebut, regenerasi material katalis setelah digunakan dan reproduksibilitas katalis juga merupakan faktor penting untuk dapat diaplikasikan lebih luas dan komersial.

Tujuan riset ini adalah untuk mengembangkan metode kopresipitasi hidrotermal untuk mempreparasi katalis hidrotalsit Mg-Al NO<sub>3</sub>-CO<sub>3</sub> dengan optimasi suhu hidrotermal dan variasi perbandingan Mg/Al = 1 – 4.

## **METODOLOGI PENELITIAN**

Bahan utama yang digunakan dalam penelitian ini antara lain:  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dari Merck,  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dari Merck, NaOH dari Merck,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  dari Aldrich dan gas nitrogen. Seluruh bahan digunakan tanpa pemurnian lebih lanjut.

Alat utama yang digunakan dalam penelitian ini antara lain: peralatan gelas, pengaduk magnet, oven untuk hidrotermal dan kalsinasi. Instrumen yang dibutuhkan untuk karakterisasi hasil dan uji aktivitas antara lain: Difraksi Sinar X, dan Spektroskopi Infra Red.

Penelitian dilakukan dengan mereaksikan magnesium nitrat ( $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) dan aluminium nitrat ( $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ) dengan perbandingan mol 3:1. Magnesium nitrat sebanyak 8,626 g dan aluminium nitrat 3,783 g masing-masing dilarutkan dalam akuades sampai volume 100 mL lalu dialiri gas  $\text{N}_2$  dan diaduk menggunakan pengaduk magnet selama 15 menit. Keduanya dicampur dalam labu leher tiga dengan tetap dialiri gas  $\text{N}_2$  dan diaduk menggunakan pengaduk magnet selama 30 menit. Natrium hidroksida (NaOH) 0,070 mol yaitu 0,280 g dilarutkan menggunakan akuades sampai volume 100 mL, dialiri gas  $\text{N}_2$  dan diaduk menggunakan pengaduk magnet selama 15 menit, ditambahkan ke dalam labu leher tiga. Selama reaksi berlangsung tetap

dilakukan pengadukan dan dialiri dengan gas  $\text{N}_2$  selama 2 jam. Nilai pH larutan dicek menggunakan indikator pH universal. Campuran tersebut dimasukkan dalam botol teflon untuk selanjutnya dilakukan proses pemanasan pada temperatur  $100^\circ\text{C}$  selama 15 jam. Padatan yang diperoleh dari hasil hidrotermal dipisahkan menggunakan sentrifuge selama 15 menit dengan kecepatan 2500 rpm kemudian dicuci dengan akuades. Variasi suhu hidrotermal dilakukan pada 100, 120, 14 dan  $180^\circ\text{C}$ . Variasi rasio Mg/Al dilakukan dengan memvariasi jumlah mol precursor Mg terhadap Al sehingga diperoleh rasio Mg/Al = 1 – 4. Hasil yang diperoleh dipanaskan dalam oven pada temperatur  $60^\circ\text{C}$  selama 12 jam. Persiapan HT sebagai katalis heterogen dilakukan dengan cara kalsinasi pada suhu tinggi ( $400^\circ\text{C}$ ).

Struktur produk dikarakterisasi menggunakan *X-ray difraktometer* (XRD) dan spektroskopi inframerah (IR). Produk hidrotalsit Mg-Al kering dikarakterisasi secara fisik menggunakan XRD dengan kisaran sudut  $2\theta = 2-70^\circ$  dan laju *scanning*  $2\theta$   $0,02^\circ/\text{detik}$ .

## **HASIL DAN PEMBAHASAN**

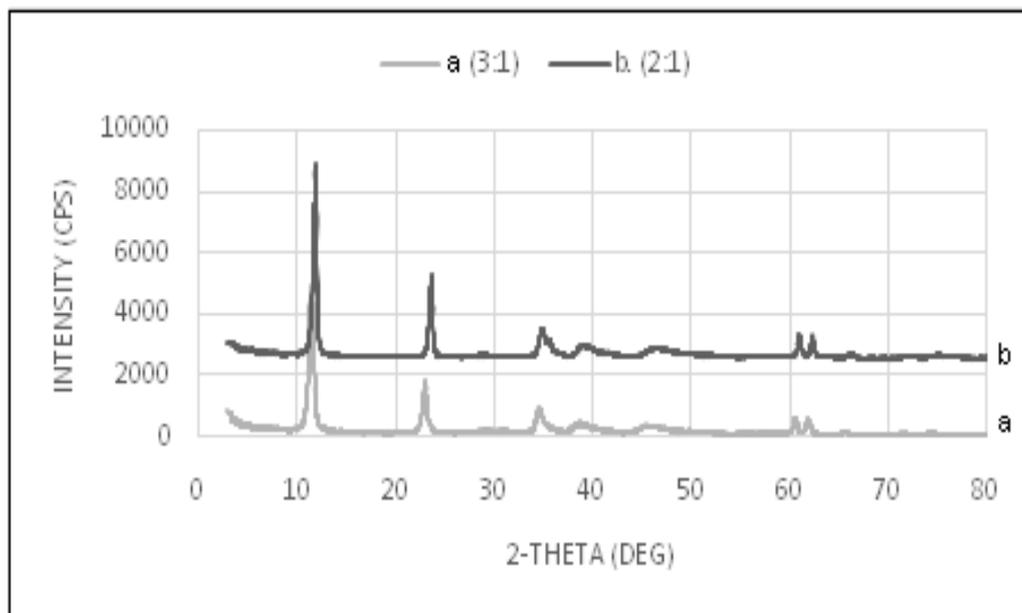
Sintesis hidrotalsit (HT) Mg/Al dilakukan dengan metode kopresipitasi hidrotermal pada suhu antara  $100-180^\circ\text{C}$ .

Hasil sintesis berupa padatan (*powder*) berwarna putih. Jika dikehendaki hidrotalsit dengan anion nitrat, kemungkinan adanya anion lain seperti karbonat dihindarkan dengan *bubbling* gas nitrogen. Dalam jumlah yang cukup gas inert N<sub>2</sub> ini mampu mendorong dan menghilangkan ion karbonat dan dibebaskan sebagai CO<sub>2</sub>. Untuk membatasi interaksi dengan CO<sub>2</sub> dari udara bebas dari atmosfer, sintesis HT Mg/Al dilakukan dengan wadah tertutup dan mengalirkan gas nitrogen secara terus menerus.

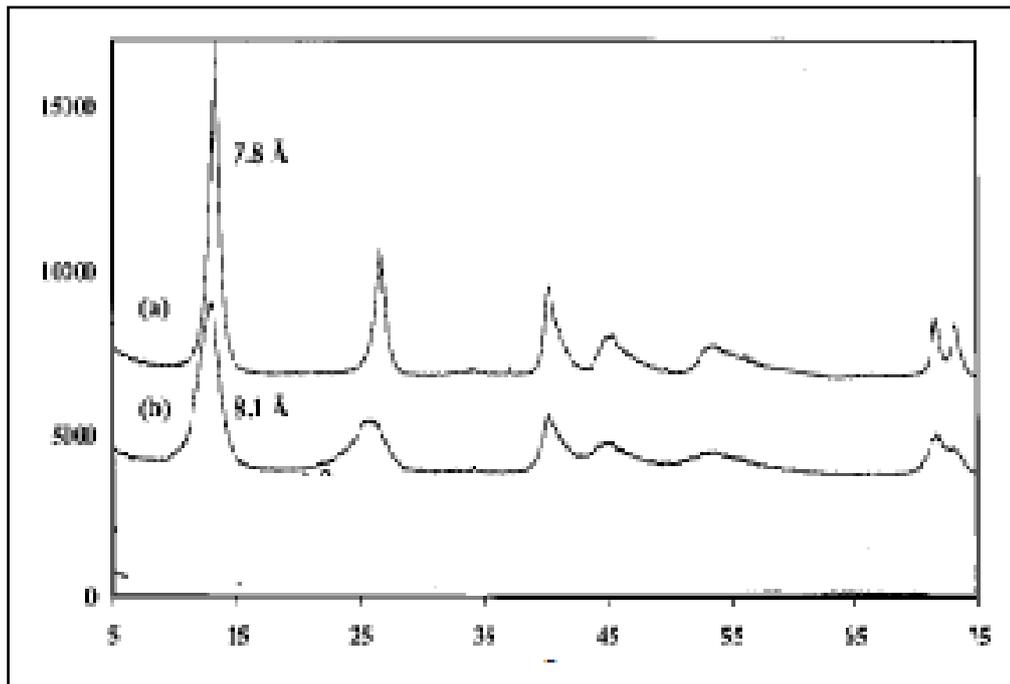
Hidrotalsit hasil penelitian dikarakterisasi dengan difraktometer sinar X (*X Ray diffraction*, XRD). Pola difraksi sinar X hidrotalsit pada rasio Mg/Al 3 dan 2 ditunjukkan pada Gambar 1, pola difraksi

hidrotalsit pembanding disajikan pada Gambar 2, sedangkan data FTIR disajikan pada Gambar 3. Hasil analisis menunjukkan tiga puncak dengan intensitas tertinggi yaitu pada harga  $2\theta$  sebesar 11,66° (bidang 003), 23,45° (bidang 006), dan 34,57° (bidang 110) yang merupakan karakteristik dari senyawa hidrotalsit.

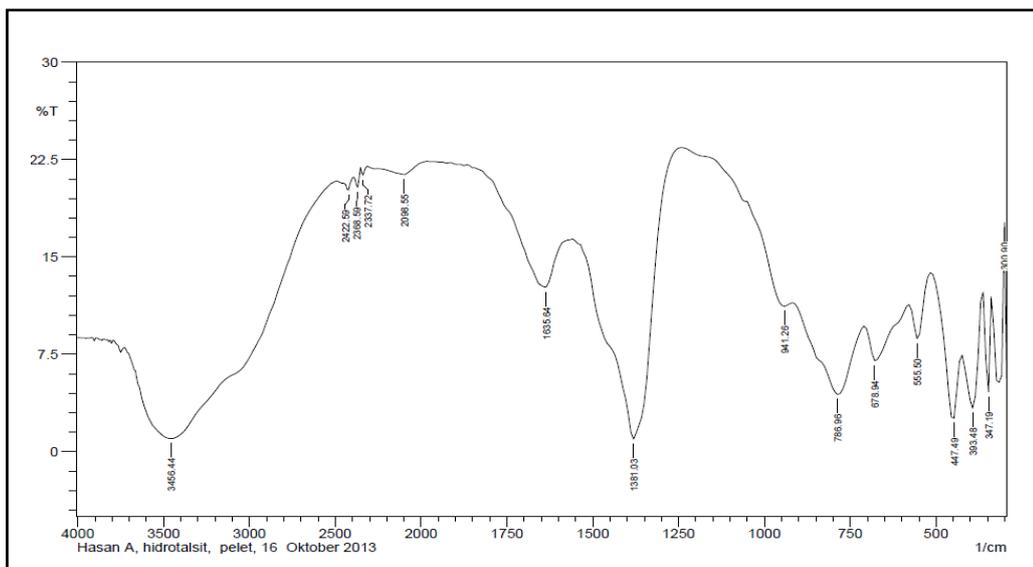
Pola difraksi sinar X dari HT pembanding (Klopproge, 2002) menunjukkan adanya 4 puncak karakteristik yang menunjukkan sampel bersifat kristalin/terkristal dengan sempurna. Keempat puncak tersebut menunjukkan bidang (003) (006)(110) dan (113) yang menunjukkan sifat mineral *clay* HT yang memiliki struktur berlapis.



Gambar 1. Difraktogram HT pada Suhu Hidrotermal 100°C



Gambar 2. Pola Difraksi Sinar X dari HT Pemandang,  $\text{CO}_3^{2-}$  (a) dan  $\text{NO}_3^-$  (b) (Klopproge, 2002)



Gambar 3. Spektra FTIR HT pada Suhu Hidrotermal 100°C

Dari dua spektra pada Gambar 1 terlihat bahwa kedua rasio mol tersebut memberikan hasil yang hampir sama. Kutrowski *et al.* (2006) melaporkan bahwa hasil optimal sintesis hidrotalsit diperoleh pada rasio

Mg/Al 3:2. Oleh karena itu, untuk selanjutnya pada optimasi suhu hidrotermal digunakan rasio Mg/Al 3:2.

Hasil optimasi suhu hidrotermal dengan rasio Mg/Al 3:1 disajikan pada

Gambar 4. Dari Gambar 4 terlihat bahwa suhu hidrotermal terbaik diperoleh pada suhu 100°C. Jika suhu hidrotermal di atas 100°C maka akan merusak struktur hidrotalsit yang ditandai dengan munculnya puncak yang tidak diinginkan.

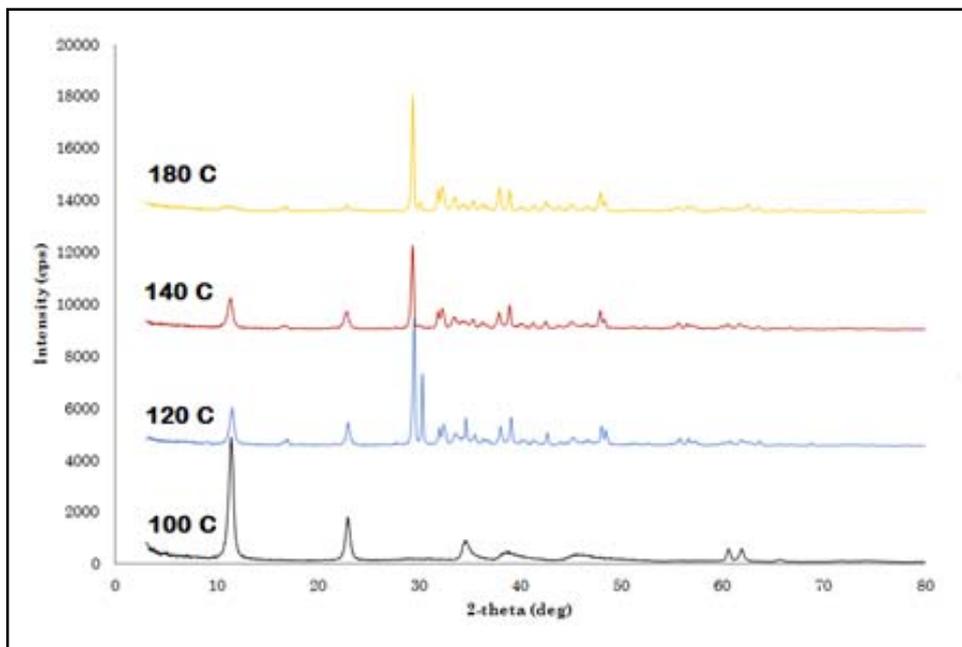
### Variasi Rasio Mg/Al

Berdasarkan penelitian dari Alnavis (2010), Mg-Al dengan rasio 2:1 pada difraktogram XRD memiliki tiga puncak dengan intensitas tertinggi, yaitu pada harga  $2\theta$  sebesar 11,66°, 23,45°, dan 34,57° yang merupakan karakteristik dari senyawa hidrotalsit. Hasil percobaan menunjukkan fakta yang serupa yang diperoleh dari proses hidrotermal pada suhu

80°C. Semakin tinggi suhu hidrotermal, intensitas puncak difraktogram hidrotalsit semakin menurun.

Berkaitan dengan proses kalsinasi, ada berbagai aspek yang dapat diamati. Kalsinasi memberikan pengaruh terhadap kapasitas serapan Hidrotalsit sebagai adsorben. HT yang dikalsinasi pada suhu tinggi, yaitu sekitar 500°C menunjukkan kapasitas absorpsi yang paling besar dibanding yang tidak dikalsinasi (Liang, 2008).

Suhu kalsinasi biasanya bervariasi antara 573–773 K. Kalsinasi dapat secara efektif merusak struktur hidrotalsit. Hidrotalsit terkalsinasi atau *calcined hydrotalcite* (C-HT) dapat dikembalikan ke



Gambar 4. Difraktogram HT Mg/Al 3:1 dengan Variasi Suhu Hidrotermal

struktur semula dengan penambahan air dan anion. Air dan anion dapat diserap ke dalam antarlapis. Anion yang diserap tidak selaluharus sama dengan anion asalnya, misalnya nitrat dapat diganti dengan karbonat atau hidroksida. Kondisi ini dapat menjadi sebuah ‘efek memori’ yang berguna untuk menghilangkan atau menyerap anion tertentu seperti polutan berbahaya, baik organik maupun anorganik. “Efek memori” juga dapat dimanfaatkan untuk aplikasi katalisis.

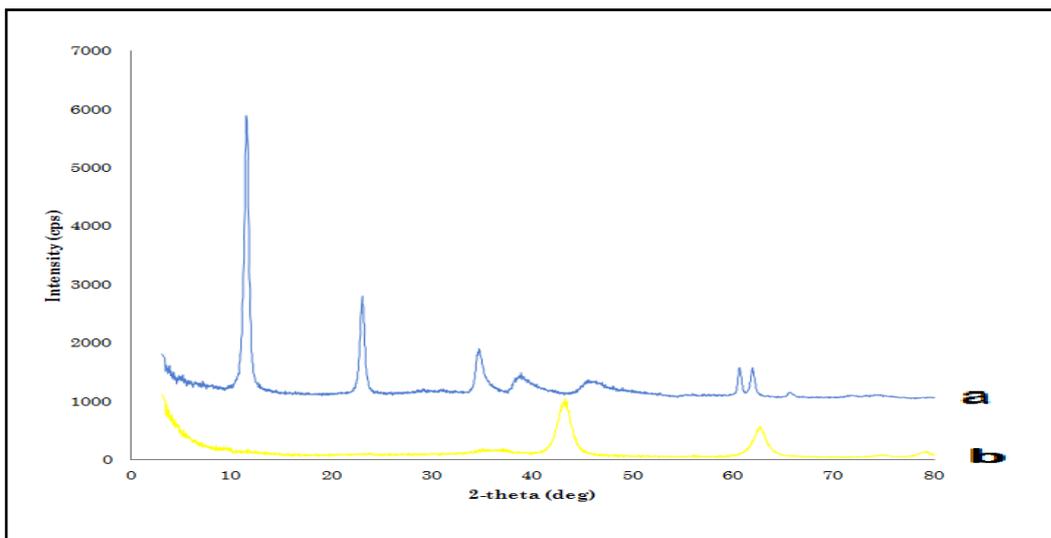
Anion yang terdapat dalam antarlapis memberikan perbedaan karakteristik. Stabilitas termal dari HT dengan anion oksalat lebih tinggi daripada karbonat. Masing masing memiliki suhu dekomposisi 523 K dan 473 K. Sifat basisitas anion antarlapis adalah faktor kunci dari proses dehidroksilasi. Jika basisitas rendah lebih stabil secara termal, atau lebih tahan terhadap pemanasan (Roelofs, 2002).

Fungsi penting dari aplikasi hidrotalsit (HT) adalah sebagai katalis. Sebelum digunakan sebagai katalis, hidrotalsit hasil sintesis perlu dipreparasi dan dioptimasi untuk mendapatkan kualifikasi katalis yang dibutuhkan. Salah satu tahap aktivasi hidrotalsit sebagai katalis adalah proses kalsinasi. Setelah proses kalsinasi diperlukan rekonstruksi

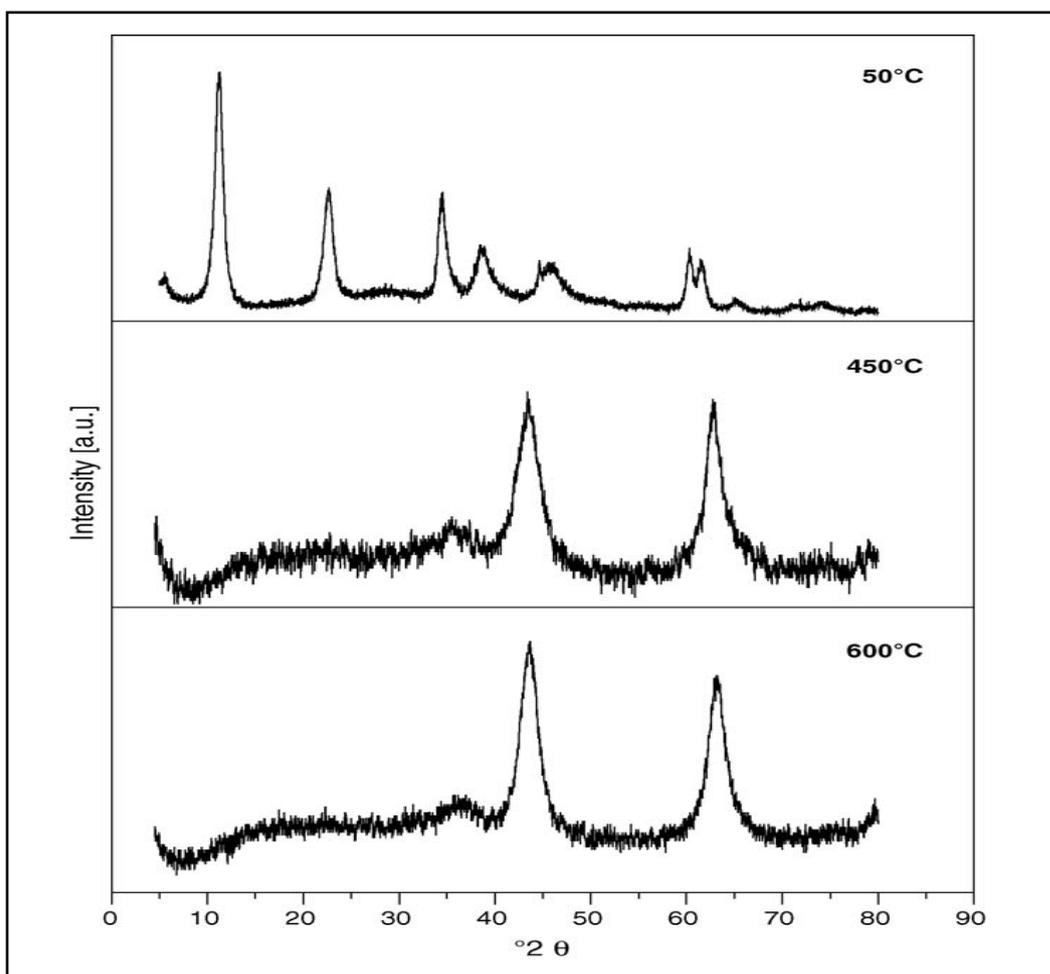
struktur Ht dengan rehidrasi. Beberapa proses preparasi katalis kondensasi aldol dipersiapkan untuk aplikasi reaksi.

Salah satu hal yang menarik dari efek kalsinasi pada hidrotalsit adalah, terdekomposisinya menjadi campuran oksida setelah dikalsinasi pada 725-775 K. *Calcinatedhidrotalcite* (CHT) memiliki luas area permukaan yang besar dengan karakteristik basa Lewis. Kondisi ini menjadi peluang yang baik untuk digunakan sebagai katalis (Roelofs, 2002). Difrakto-gram XRD dari HT hasil sintesis sebelum dan sesudah dikalsinasi disajikan pada Gambar 5, sebagai pembanding adalah XRD dari Kutrowski *et al.* (2005) yang disajikan pada Gambar 6.

Berdasarkan penelitian Rao (1998) hidrotalsit yang tidak dikalsinasi tidak memiliki aktivitas katalisis. HT dengan kalsinasi 723 K yang diikuti rehidrasi dengan uap air pada suhu kamar memiliki sifat katalis yang baik. Hidrotalsit ini dipakai dalam katalisis reaksi kondensasi aldol dari benzaldehid dan aseton pada suhu kamar. Hasil aldol yang terbentuk lebih dari 85% pada aktivasi optimum. Aktivitas yang lebih tinggi pada HT yang direhidrasi memberikan kesimpulan bahwa aldolisasi dalam fasa heterogen dikatalisis oleh ion hidroksida (OH<sup>-</sup>).



Gambar 5. Difraktogram HT Hasil Sintesis: a) Sebelum Kalsinasi; b) Setelah Kalsinasi

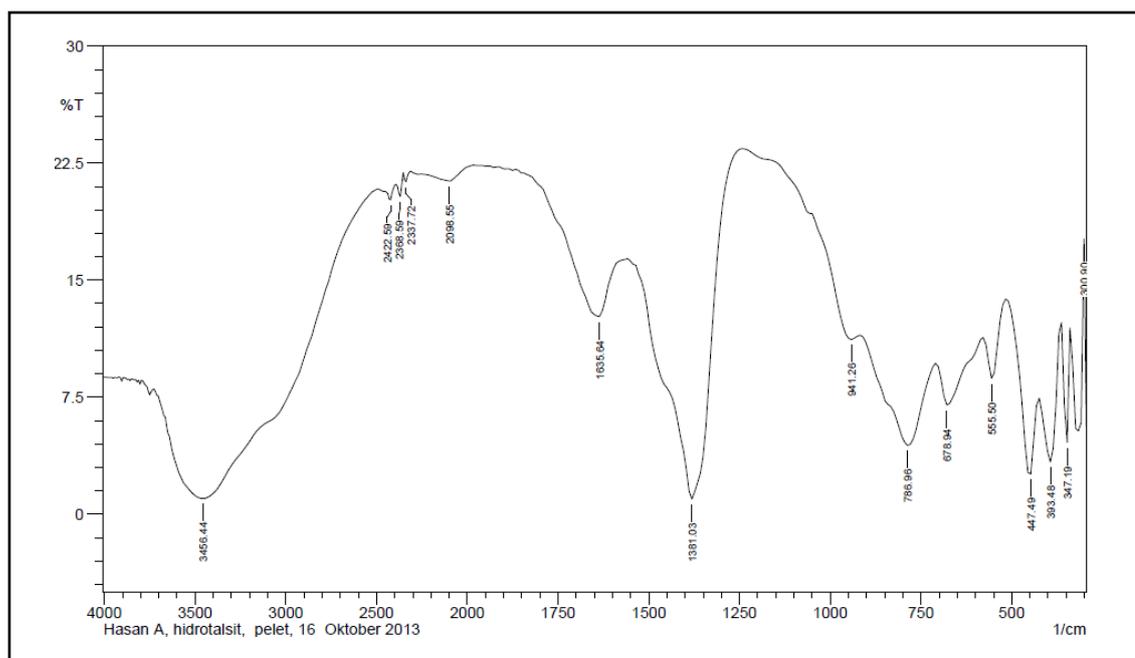


Gambar 6. Difraktogram HT Sebelum dan Sesudah pada 450 dan 600°C sebagai Pembanding (Kutrowski et al., 2005)

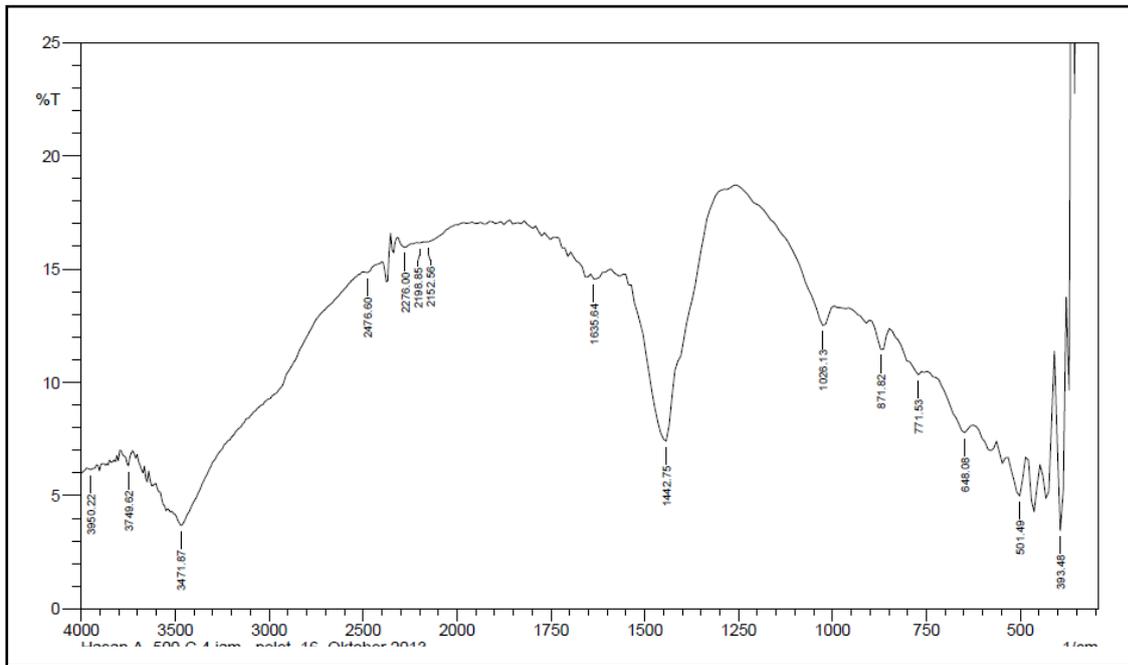
Dua metode rehidrasi adalah fasa cair dan gas kondensasi aldol. Campuran oksida Mg–Al yang direhidrasi dengan fasa gas (HT RG) memberikan hasil yang lebih tinggi dibandingkan dengan HT yang direhidrasi dengan fasa cair (RGRL). Keduanya memiliki sifat tekstur yang jauh berbeda yang memberi efek pada sifat katalisisnya. Efek memori mempengaruhi derajat rekonstruksi dari struktur lamelar saat oksida direhidrasi dengan fase gas, lebih kukat dari rehidrasi fasa cair. Sifat katalis banyak ditentukan oleh karakter basa (Lewis) dari tepi/antarmuka hidrotalsit (Abello, 2005).

Dari spektra FTIR antara HT dan HT terkalsinasi pada Gambar 7 dan 8 dapat dilihat bahwa semakin tinggi suhu kalsinasi

maka serapan dengan puncak melebar pada daerah 3400-3500  $\text{cm}^{-1}$  semakin berkurang intensitasnya. Pita ini adalah hasil vibrasi ulur (stretching) O-H dari gugus hidroksi di dalam lembaran-lembaran Mg-Al HT dengan molekul-molekul air dalam partikel atau dalam antarlapis. Di sisi lain, serapan pada daerah sekitar 1650  $\text{cm}^{-1}$  juga berkurang. Pita ini diduga merupakan vibrasi tekukan (*bending*) OH yang berasal dari molekul air pada daerah antarlapis. Semakin tinggi suhu kalsinasi pita uluran simetris O=C-O pada daerah 1385  $\text{cm}^{-1}$  pun juga semakin berkurang. Gejala ini tampak dari hasil kalsinasi suhu 400°C hingga suhu 500°C. Hal sesuai dengan hasil penelitian terdahulu yang



Gambar 7. Spektra Infra merah HT Sebelum Kalsinasi



Gambar 8. Spektra HT Setelah Kalsinasi 500°C

Tabel 1. Rangkuman Pita Karakteristik HT dan HT Terkalsinasi

HT	HT 500°C	Keterangan
3456,44	3471,87	Ulur/stretching O-H permukaanHt
1635,64	1635,64	Tekukan/ bending OH
1381,03		uluran simetris nitrat
678,94	648,08	Tekukan nitrat
555.50	501,49	ulur Al-O
447,49	450	ulurMg-O

melaporkan dekomposisi pada 450°C (Parida, 2000). Pada spectra hasil kalsinasi juga tampak adanya puncak pada daerah 1442 cm<sup>-1</sup> yang belum diketahui vibrasinya.

Penelitian lain sebagai pembanding, menunjukkan adanya pita serapan pada 3000–3200 cm<sup>-1</sup> yang merupakan hasil vibrasi H<sub>2</sub>O-CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>. Pita khas dari HT- CO<sub>3</sub><sup>-</sup> terlihat dari adanya pita yang pecah/*split* di sekitar 1365 dan 1400 cm<sup>-1</sup> bersama dengan pita lemah sekitar 870 and 667cm<sup>-1</sup>. Vibrasi

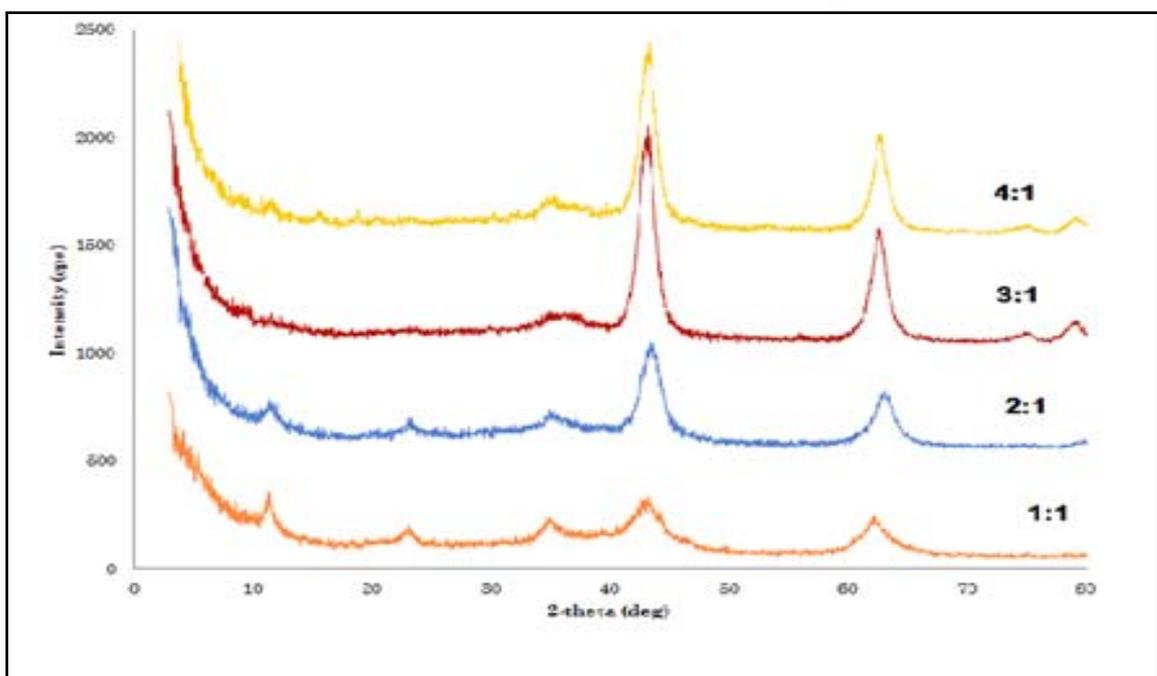
ulur simetri dari ion karbonat memberi puncak *mode* di sekitar 1050–1060 cm<sup>-1</sup>. Pita dari CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> kuat di daerah 1360 cm<sup>-1</sup> dengan puncak lemah di 827 cm<sup>-1</sup>, dan pita pada 667 cm<sup>-1</sup> menunjukkan *mode* dari bidang-bidang HT. Simetri dari NO<sub>3</sub><sup>-</sup> tidak berubah saat berada dalam lapisan HT (Kloprogge, 2002).

Dilihat dari spektra inframerah pembanding, hidrotalsit tanpa kalsinasi memiliki puncak lebar antara 4000-2700

$\text{cm}^{-1}$  yang berkaitan dengan vibrasi *deformasi superimposisi* dari air yang diserap secara fisisorpsi, vibrasi dari gugus OH dalam struktur, vibrasi HO...OH dan atau  $\text{CO}_2\text{-OH}$  dalam hidrotalsit dan karakteristik vibrasi ulur dari ikatan Mg-OH dalam Mg/Al hidroksikarbonat. Pita serapan di daerah  $1632 \text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi *bending* dari H-O-H yang dari air yang terabsorb dalam antarlapis hidrotalsit (Parida, 2000).

Serapan intensif pada daerah  $1383 \text{ cm}^{-1}$  merupakan serapan  $\text{CO}_2$  dan impuritas dari  $\text{NO}_3^-$  yang merupakan hasil dari larutan dalam proses sintesis. Adanya doublet pada

sekitar bilangan gelombang  $791$  dan  $663 \text{ cm}^{-1}$  bertepatan dengan posisi dan rasio intensitas dari vibrasi karakteristik hidrotalsit. Selama kalsinasi terjadi penurunan intensitas yang signifikan dari puncak vibrasi air dan karbonat. Hal ini tentu sesuai dengan adanya kehilangan air dan  $\text{CO}_2$  selama pemanasan (Parida, 2000). Hasil variasi rasio mol Mg/Al 1-4 ditampilkan pada Gambar 9. Pada Gambar 9 tersebut terlihat bahwa intensitas tertinggi didapat pada perbandingan mol Mg/Al 3:1.



Gambar 9. Difraktogram Calc-HT dengan Variasi Rasio MolMg/Al pada Suhu Hidrotermal  $100^\circ\text{C}$  dan Kalsinasi  $400^\circ\text{C}$

## KESIMPULAN

Hidrotalsit Mg/Al telah berhasil disintesis menggunakan metode kopresipitasi hidrotermal. Variasimol Mg/Al pada sintesis HT yang telah dilakukan adalah 1:1, 2:1, 3:1 dan 4:1. Hasil terbaik adalah HT dengan perbandingan mol Mg/Al 3:1 dengan suhu hidrotermal 100°C. Preparasi HT sebagai katalis dilakukan dengan kalsinasi HT pada suhu 500°C. Hasil XRD dari HT sebelum dan sesudah kalsinasi menunjukkan bahwa preparasi HT sebagai katalis heterogen telah berhasil dilakukan.

## DAFTAR PUSTAKA

- Alnavis, N.B. 2010, Mg/Al Hydrotalcite dari Brine Water: Sintesis dan aplikasinya sebagai adsorben eosin yellow dan methyl violet, *Skripsi*.
- Abello, S., Medina, F., Tichit, D., Ramirez, J., Groen, J.C., Sueiras, J.E., Salagre, P., and Cesteros, Y. 2005. Aldol condensations over reconstructed Mg–Al hydrotalcites: Structure–activity relationships related to the rehydration method, *Chem. Eur. J.*, 11, 728 – 739.
- Cavani, F., Trifiro, F., Vaccari, A. 1991. Hydrotalcite-type anionic clays: Preparation, properties and application, *Catal. Today*, 11, 173-301.
- Guida, A., Lhouty, M.H., Tichit, D., Figueras, F., and Geneste, P. 1997. Hydrotalcites as base catalysts. Kinetics of Claisen-Schmidt condensation of acetylacetone and synthesis of chalcone, *Appl. Catal.*, Vol 164, Issues 1-2, 251-264.
- Handayani, S. and Arty, I.S. 2008. Synthesis of hydroxyl radical scavengers from benzalacetone and its derivatives, *Journal of Physical Chemistry*, Vol 19, No.2, 62-68.
- Kloprogge, J.T., Wharton, D., Hickey, L., and Frost, R.L. 2002. Infrared and raman study of interlayer anions CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> and ClO<sub>4</sub><sup>-</sup> in Mg/Al hydrotalcite, *American Mineralogist*, Vol. 87, p. 623–629.
- Koteswara Rao, K., Gravelle, M., Valente, J., Figueras, F. 1998. The aldol condensation of acetaldehyde and heptanal on hydrotalcite-type catalysts, *J. Catal.*, 173, 115.
- Kustrowski, P., Sulkwska, D., Chmielarz, L., Lasocha, A., Dudek, B., Dziembaj, R. 2005. Influence of thermal treatment conditions on the activity of hydrotalcite-derived Mg–Al oxides in the aldol condensation of acetones, *Micro. Meso. Mat.* 1, 11-22.
- Kustrowski, P., Sulkowska, D., Chmielarz, L. and Dziembaj, R. 2006. Aldol condensation of citral and acetone over mesoporous catalysts obtained by thermal and chemical activation of magnesium-aluminium hydrotalcite-like precursors, *Appl. Catal.*, Vol 302, 317-324.
- Liang L.V., Wang, Y., Wei, M., Cheng, J. 2008. Bromide ion removal from contaminated water by calcined and uncalcined MgAl-CO<sub>3</sub> layered double hydroxides, *Journal of Hazardous Materials* 152 (2008) 1130–1137.
- Negron, G., Guerra, N., Lomas, L., Gavino, R., Cardenas, G. 2003. Calcined Mg–Al hydrotalcites catalyst in the region-

- selective synthesis of silylated vicinal azidoalcohols, *Regional Issue Organic Chemistry in Mexico*, 11, 179-184.
- Parida, K., Das, J. 2000. Mg-Al hydrotalcites: preparation, characterization and ketonisation of acetic acid, *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 151, 185-192.
- Perez, C.N., Perez, C.A., Henriques, C.A., and Monteiro, J.L.F. 2004. Hydrotalcites as precursors for Mg-Al mixed oxides used as catalysts on the aldol condensation of citral with acetone, *Applied Catalysis A: General*, 272, 229-240.
- Pudjono, Siswindari, and Widada, H. 2008. Synthesis of 2,5-bis-(4'-hydroxybenzylidene) cyclopentanone and 2,5-bis(4'-chlorobenzylidene) cyclopentanone compounds and antiproliferative test to hela cells, *Majalah Farmasi Indonesia*, 19(1), 48-55.
- Rao, K.K., Gravelle, M., J.S., Figueras, F. 1998. Activation of Mg-Al hydrotalcite catalysts for aldol condensation reactions, *J. of Catalysis*, Vol.173, Iss 1, p. 115-12.
- Roelofs, J.C.A.A., van Dillen, A.J., de Jong, K.P. 2000. Aldol condensations catalysed by novel Mg-Al-O-t-Bu hydrotalcite, *Catal. Today*, 60, 297-308.
- Roelofs, J.C.A.A., van Bokhoven, J.A., van Dillen, A.J., Geus, J.W., and de Jong, K.P. 2002. The thermal decomposition of Mg-Al hydrotalcites: Effects of interlayer anions and characteristics of the final structure, *Chem. Eur. J.* V 8, No. 24.
- Sardjiman. 2000. Synthesis of some new series of curcumin analogues, antioxidative, antiinflammatory, antibacterial activities and qualitative-structure activity relationship, *Disertasi*, Fakultas Farmasi Gadjah Mada University, Yogyakarta.
- Suzuki, E. Dan Ono, Y. 2004. Aldol condensation reaction between formaldehyde and acetone over heat-treated synthetic hydrotalcite and hydrotalcite-like compounds, *Bull. Chem. Soc. Jpn*, 61, 1008-1010