

PENGARUH TEMPERATUR KALSINASI TERHADAP HIDROTALSIT Mg/Al YANG DISINTESIS MELALUI METODE PRESIPITASI TAK JENUH

Hasan Adidarma, Sri Handayani, Cahyorini Kusumawardani,
Kun Sri Budiasih

Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Yogyakarta
Jl. Colombo No.1 Yogyakarta
e-mail: handayani137uny@yahoo.com

Abstrak

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh variasi temperatur kalsinasi dari 200°C hingga 500°C terhadap karakter struktur hidrotalsit Mg/Al. Hidrotalsit Mg/Al disintesis melalui metode presipitasi tak jenuh dengan perlakuan hidrotermal, menggunakan $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ dan $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ sebagai bahan baku, dan larutan basa NaOH dan Na_2CO_3 sebagai presipitator. Hidrotalsit Mg/Al hasil sintesis sebelum dan setelah kalsinasi dikarakterisasi menggunakan fourier transform infrared (FTIR) dan X-ray diffractometer (XRD). Hasil analisis data FTIR dan XRD menunjukkan bahwa kalsinasi hidrotalsit Mg/Al pada temperatur kalsinasi 200°C tidak mengakibatkan perubahan struktur senyawa hidrotalsit, kalsinasi pada temperatur 300-400°C struktur senyawa hidrotalsit mulai berubah membentuk campuran oksida magnesium dan aluminium, dan pada temperatur kalsinasi 500°C struktur kristal hidrotalsit telah berubah membentuk senyawa oksida MgO (periclase) dengan sedikit campuran oksida aluminium dalam bentuk $\theta-Al_2O_3$ dan $\gamma-Al_2O_3$.

Kata kunci: hidrotalsit, presipitasi tak jenuh, hidrotermal

Abstract

This research aims to determine the effect of calcination temperature variation from 200°C to 500°C on the Mg/Al hydrotalcite structure. Mg/Al hydrotalcite has been synthesized via a low supersaturated precipitation method with hydrothermal treatment, using $Mg(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ and $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ as the raw materials, and base solution of NaOH and Na_2CO_3 as the precipitators. Mg/Al hydrotalcite compound synthesized before and after calcination were characterized using fourier transform infrared (FTIR) and X-ray diffractometer (XRD). The results of FTIR and XRD data analysis showed that the calcination of hydrotalcite of Mg/Al at 200°C did not changed the structure of hydrotalcite compounds, calcination at temperatures 300-400°C showed that structure of hydrotalcite compound starts to change form a mixture of magnesium oxide and aluminum, and calcination at 500°C showed that the crystal structure of Mg/Al hydrotalcite has broken to form a mixture of metal oxides, namely MgO (periclase) with a little mixture of aluminum oxide in the form of $\theta-Al_2O_3$ and $\gamma-Al_2O_3$.

Keywords: hydrotalcite, low supersaturated precipitation, hydrothermal.

PENDAHULUAN

Menurut Hanum (2008) senyawa hidrotalsit merupakan senyawa *layered double hydroxides (LDHs)* yang juga dikenal sebagai lempung anionik, mempunyai

formula umum $[M_{1-x}^{2+}M_x^{3+}(OH)_2]^{b-}[A^{n-}]_{b/n} \cdot mH_2O$. M^{2+} dan M^{3+} adalah kation divalen dan trivalen dengan kisaran x normal antara 0,17 sampai 0,33. A^{n-} adalah anion organik atau anorganik pada antarlapis dengan

muatan negatif yang dapat dipertukarkan.

Hidrotalsit dapat dipreparasi melalui metode ko-presipitasi, 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 pada larutan tak jenuh (*low supersaturation*) (Narayanan dan Krishna, 1998). Selain itu menurut Cavani *et al.* (1991) preparasi hidrotalsit dengan perlakuan hidrotermal dapat meningkatkan kristalinitasnya. Kalsinasi senyawa hidrotalsit Mg/Al pada temperatur 450°C selama 18 jam menyebabkan terjadinya pembentukan MgO secara lengkap (Hanum, 2008).

Hidrotalsit memiliki banyak aplikasi, diantaranya adalah sebagai katalis, padatan pendukung katalis, penukar anion, adsorben, stabilizer, dan penangkap anion (Kloprogge *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.*, 1991). Berdasarkan beberapa kelebihan dan karakter yang dimiliki senyawa hidrotalsit maka material hidrotalsit sangat menjanjikan untuk aplikasi secara komersil.

Penelitian ini bertujuan untuk mensintesis hidrotalsit Mg/Al melalui metode

presipitasi tak jenuh dengan perlakuan hidrotermal dan mempelajari pengaruh temperatur kalsinasi dari 200°C hingga 500°C terhadap struktur hidrotalsit Mg/Al hasil sintesis.

METODE PENELITIAN

Sebanyak 50mL larutan homogen dari campuran NaOH dan Na₂CO₃ ditambahkan sedikit demi sedikit ke dalam 100 mL larutan homogen yang mengandung 0,010 mol Mg(NO₃)₂·6H₂O dan 0,005 mol Al(NO₃)₃·9H₂O. Dilakukan pengadukan selama 2 jam pada pH tetap ±10 dan dialirkan gas N₂. Kemudian dilakukan proses hidrotermal pada temperatur 100°C selama 15 jam. Endapan putih yang diperoleh dikeringkan pada temperatur 80°C selama 15 jam, selanjutnya dikalsinasi pada variasi temperatur 200, 300, 400 dan 500°C. Hidrotalsit Mg/Al hasil sintesis sebelum dan setelah kalsinasi dikarakterisasi menggunakan instrument Rigaku Miniflex 600 *Benchtop X-Ray Diffraction (XRD)* dari Jepang dengan kisaran sudut 2θ = 3-80° dan laju scanning 2θ = 0,02°/detik, dan spektrofotometer *fourier transform infrared (FTIR)* dengan metode pelet KBr pada bilangan gelombang 350-4000 cm⁻¹.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Data *hkl* dari difraktogram hidrotalsit Mg/Al hasil sintesis dibandingkan dengan data *hkl* pada kartu JCPDS nomor 14-0191 (Tabel 1).

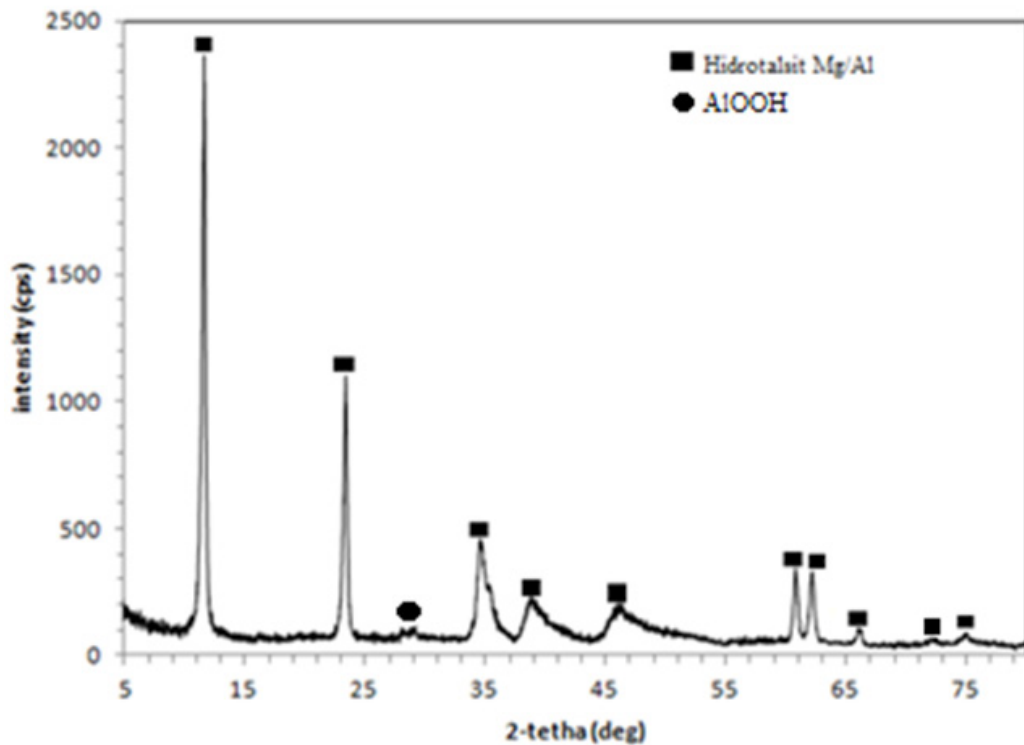
Tabel 1. Data Hkl Difraktogram Hidrotalsit Mg/Al

hkl	
HT Mg/Al standar	HT Mg/Al sintesis
003	003
006	006
012	-
009	009
015	015
018	018
110	110
113	113
116	-
202	-
205	205

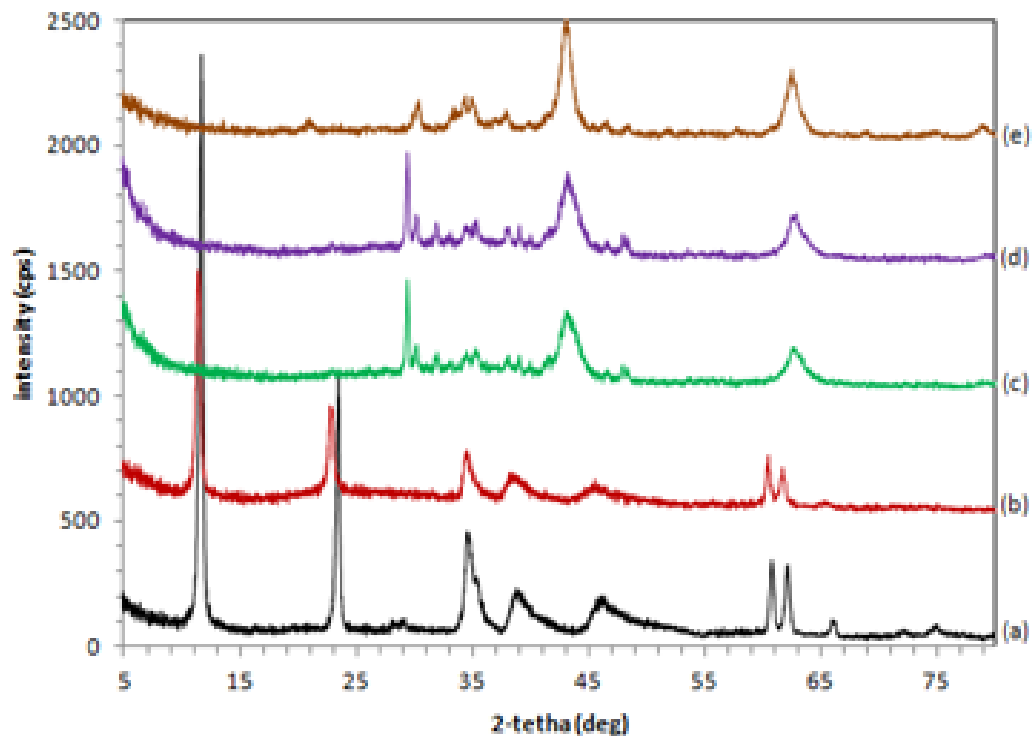
Berdasarkan data pada Tabel 1 ditunjukkan bahwa hampir seluruh puncak dari senyawa hasil sintesis memiliki nilai

hkl yang relatif sama dengan data hidrotalsit Mg/Al standar pada JCPDS nomor 14-0191, yang mengindikasikan senyawa hasil sintesis memiliki struktur kristal yang sama dengan hidrotalsit Mg/Al standar.

Selain itu berdasarkan hasil analisis menggunakan *database* pada instrumen *Rigaku Miniflex 600 Benchtop X-Ray Diffraction* ditunjukkan bahwa senyawa hasil sintesis merupakan hidrotalsit Mg/Al dengan anion antarlapisan berupa CO_3^{2-} yang memiliki rumus kimia $\text{Mg}_{0.67}\text{Al}_{0.33}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_{0.165}(\text{H}_2\text{O})_{0.48}$. Hidrotalsit Mg/Al hasil sintesis memiliki impurities berupa AlOOH atau AlHO_2 yang ditunjukkan oleh adanya puncak pada $2\theta = 29,03^\circ$ atau $hkl = 110$, namun puncak tersebut menghilang



Gambar 1. Difraktogram Hidrotalsit Mg/Al 2:1 Hasil Sintesis (Sebelum Kalsinasi)



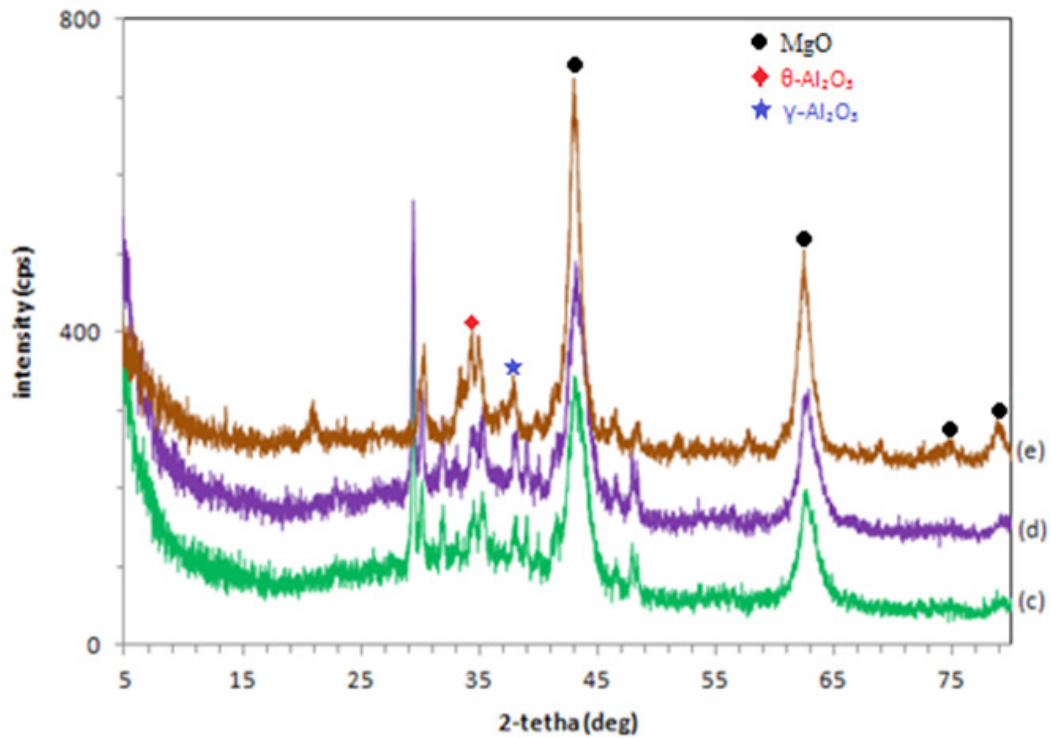
Gambar 2. Difraktogram Hidrotalsit Mg/Al 2:1 Hasil Sintesis yang Telah Dikalsinasi pada Temperatur (a) Tanpa Kalsinasi, (b) 200°C, (c) 300°C, (d) 400°C, (e) 500°C

setelah dilakukan kalsinasi pada temperatur 200°C yang menunjukkan bahwa senyawa tersebut tidak stabil pada temperatur 200°C.

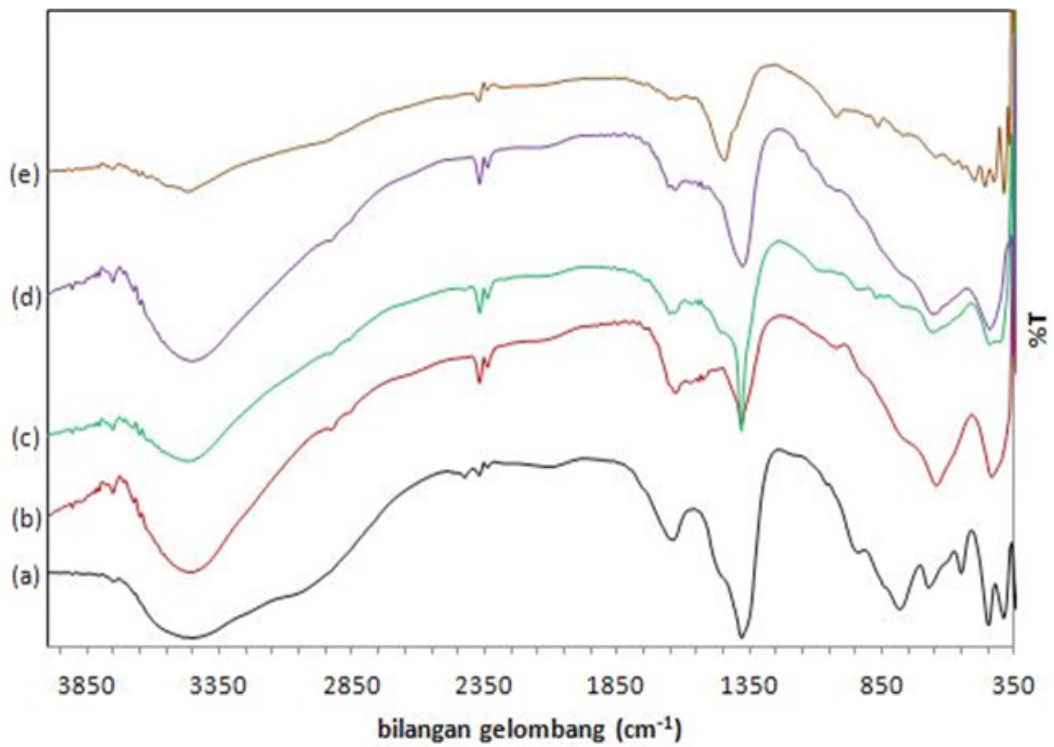
Berdasarkan Gambar 2 ditunjukkan bahwa setelah dilakukan kalsinasi pada temperatur 200°C senyawa hasil sintesis masih memiliki struktur kristal yang relatif sama dengan senyawa hidrotalsit Mg/Al karena pola puncak-puncak difraktogramnya relatif sama dengan difraktogram hidrotalsit Mg/Al sebelum kalsinasi. Namun terjadi pergeseran puncak ke arah kiri, hal tersebut disebabkan terjadinya perubahan volume sel (semakin membesar) karena pengaruh kenaikan suhu. Hal ini sebagai akibat dari hilangnya molekul H₂O pada *interlayer spacing* hidrotalsit Mg/Al. Namun demikian setelah dilakukan

kalsinasi pada temperatur 300, 400, dan 500 °C, struktur kristal senyawa hidrotalsit Mg/Al telah rusak. Hal tersebut dikarenakan telah terjadi dekomposisi termal membentuk campuran oksida magnesium dan aluminium (Gambar 4), yaitu mem-bentuk MgO (JCPDS 45-0946) dengan sedikit campuran oksida aluminium dalam bentuk θ -Al₂O₃ (JCPDS 35-0121) dan γ -Al₂O₃ (JCPDS 10-0425).

Hasil analisis terhadap spektra FTIR dari senyawa hasil sintesis (tanpa kalsinasi) menunjukkan adanya puncak serapan pada bilangan gelombang 447,49cm⁻¹ yang karakteristik terhadap vibrasi ulur ikatan Mg-O, puncak serapan pada bilangan gelombang 555,5cm⁻¹ yang karakteristik terhadap vibrasi ulur ikatan Al-O yang keduanya berasal



Gambar 3. Detail Difraktogram Hidrotalsit Mg/Al 2:1 Hasil Sintesis yang Telah Dikalsinasi pada Temperatur (c) 300°C, (d) 400°C, (e) 500°C



Gambar 4. Spektra FTIR Hidrotalsit Mg/Al 2:1 Hasil Sintesis yang Telah Dikalsinasi pada Temperatur (a) Tanpa Kalsinasi, (b) 200°C, (c) 300°C, (d) 400°C, (e) 500°C

dari struktur lembaran hidrotalsit Mg/Al, puncak serapan melebar pada bilangan gelombang $3456,44\text{cm}^{-1}$ dan puncak serapan pada bilangan gelombang $1635,64\text{cm}^{-1}$ yang karakteristik terhadap vibrasi ulur dan tekukan ikatan O-H dari gugus hidroksil pada lembaran-lembaran hidroksida dan molekul-molekul air pada interlayer dalam struktur senyawa hidrotalsit Mg/Al sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Mokhtar *et al.* (2011), serta puncak serapan pada bilangan gelombang $1381,03\text{cm}^{-1}$ dan $678,94\text{cm}^{-1}$ yang karakteristik terhadap vibrasi ulur dan tekukan ikatan O=C-O dari CO_3^{2-} . Hal tersebut mengindikasikan bahwa senyawa yang dianalisis merupakan hidrotalsit Mg/Al dengan anion antar lapisan CO_3^{2-} .

Berdasarkan Gambar 4, terlihat bahwa semakin tinggi temperatur kalsinasi mengakibatkan puncak-puncak yang karakteristik terhadap vibrasi ulur dan tekukan ikatan O-H semakin menghilang (terjadi penurunan intensitas serapan), hal serupa juga terjadi pada puncak-puncak yang karakteristik terhadap adanya gugus CO_3^{2-} , hingga pada temperatur kalsinasi 500°C puncak yang karakteristik terhadap gugus fungsi OH dan CO_3^{2-} memiliki serapan yang paling rendah. Hal tersebut mengindikasikan bahwa pada temperatur kalsinasi 500°C telah terjadi dekomposisi termal yang mengakibatkan struktur senyawa hidrotalsit Mg/Al telah rusak dan mulai membentuk campuran logam oksida magnesium dan aluminium. Masih adanya serapan pada daerah bilangan

gelombang $3400\text{-}3500\text{cm}^{-1}$ dan $1635,64\text{cm}^{-1}$ setelah dilakukan kalsinasi pada temperatur 500°C disebabkan oleh adanya gugus hidroksi dari $\text{Mg}(\text{OH})_2$ yang terbentuk dari reaksi antara MgO dan H_2O di udara. Sedangkan serapan pada daerah bilangan gelombang 2300cm^{-1} disebabkan oleh adanya vibrasi O=C=O dari CO_2 dari udara yang terserap pada material hidrotalsit Mg/Al.

KESIMPULAN

Kalsinasi hidrotalsit Mg/Al pada temperatur kalsinasi 200°C tidak menunjukkan perubahan struktur senyawa hidrotalsit, kalsinasi pada temperatur $300\text{-}400^\circ\text{C}$ struktur senyawa hidrotalsit mulai berubah membentuk campuran oksida magnesium dan aluminium, dan pada temperatur kalsinasi 500°C struktur kristal hidrotalsit telah berubah membentuk senyawa oksida MgO (*periclase*) dengan sedikit campuran oksida aluminium dalam bentuk $\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$ dan $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$.

DAFTAR PUSTAKA

- Cavani F., Trifiro F., Vaccari A. 1991. Hydrotalcite-type anionic clays: Preparation, properties and applications, *Journal of Catalysis Today*, No.11, 173-301.
- Hanum, F. 2008. Reaksi Katalisis isomer eugenol menjadi isoeugenol menggunakan katalis Mg/Al hidrotalsit. *Skripsi*. Depok: Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Indonesia.

- Kloprogge J.T., Hickey L., Frost R.L. 2004. The Effect of synthesis pH and hydrothermal treatment on the formation of zinc aluminium hydrotalcite, *Journal of Solid State Chemical*, No.177, 4047.
- Kustrowski P., Sulowska 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, *Journal of Micro. Meso. Mat.*, No.1, 11-22.
- Narayanan S., Krishna, K. 1998. Hydrotalcite-supported palladium catalysts part I: Preparation, characterization of hydrotalcites and palladium on uncalcined hydrotalcites for CO, *Journal of Applied Catalysis A: General*, No.174, 221-229.
- Negron, G., Guerra N., Lomas L., Gavino R., Cardenas G. 2003. Calcined Mg/Al hydrotalcites catalyst in the regioselective synthesis of silylated vicinal azidoalcohols, *Regional Issue "Organic Chemistry in Mexico"*, No.11, 179-184.