

## Material Hibrida Mg/Al-HT Terinterkalasi Asam 3,4,5-Trihidroksibenzoat Dengan Metode Kopresipitasi Melalui Mikro Reaktor-T

Danar Danar<sup>1</sup>, Sri Juari Santosa<sup>2</sup>, & Eko Sri Kunarti<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Malang Jl. Semarang 5, Malang 65145

<sup>2</sup>Departemen Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Gadjah Mada Sekip Utara, Bulaksumur, Yogyakarta 55281

email: danar.fmipa@um.ac.id

### Article history

Received: 11<sup>th</sup> June, 2021

Received in revised form: 26<sup>th</sup> June, 2021

Accepted: 27<sup>th</sup> June, 2021

DOI:

10.17977/um0260v5i12021p020

### Kata-kata kunci:

Mg/Al Hidrotalsit  
ATBH

### Abstrak

Material Mg/Al hidrotalsit (Mg/Al-HT-ATBH) terinterkalasi asam 3,4,5-trihidroksibenzoat (ATHB) telah berhasil disintesis dengan metode kopresipitasi langsung melalui mikro reaktor-T. Material hibrida dikarakterisasi dengan XRD dan FT-IR. Hasil penelitian menunjukkan bahwa sintesis Mg/Al-HT-ATBH berlangsung optimum pada pH 8 dengan perbandingan mol ATHB: Mg<sup>2+</sup> : Al<sup>3+</sup> sebesar 0,5 : 2 : 1. Karakterisasi menggunakan FT-IR dan XRD menunjukkan bahwa ATBH terinterkalasi di dalam daerah antar lapis Mg/Al-HT menggantikan anion NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Hal ini menyebabkan terjadinya pergeseran *basal spacing* *d*<sub>003</sub> dari 11,27° menjadi 6,74° dan jarak antar lapis meningkat dari 7,84 menjadi 13,10 Å.

### Abstract

The material of Mg/Al hydrotalcite (Mg/Al-HT-ATBH) intercalated with 3,4,5-trihydroxybenzoic acid (THBA) had been successfully synthesized by coprecipitation using a T-type microchannel reactor. The synthesized hybrids were characterized by XRD and FT-IR. The result showed that intercalation of THBA into Mg/Al-HT-THBA reached optimum condition at medium acidity equal to pH 8 with molar ratio of Mg<sup>2+</sup>:Al<sup>3+</sup>: THBA was 2:1:0,5. Characterization using FT-IR and XRD showed that THBA was intercalated in the interlayer of Mg/Al-HT-THBA replacing NO<sub>3</sub><sup>-</sup> ions. The value of basal spacing *d*<sub>003</sub> shifted from 11.27° to 6.74° and therefore the interlayer distance increased from 7.84 to 13.10 Å.

### PENDAHULUAN

Layered double hydroxides atau hidrotalsit (HT) merupakan lempung bermuatan positif pada lapisannya (Cavani, dkk., 1991). Menurut Jaubertie dkk. (2006) material HT yang dikenal luas adalah Mg<sub>6</sub>Al<sub>2</sub>(OH)<sub>16</sub>(CO<sub>3</sub>)·4H<sub>2</sub>O yang merupakan turunan dari senyawa *brucite* Mg(OH)<sub>2</sub>. Menurut Kloprogge dkk., (2004), HT memiliki banyak aplikasi, yaitu sebagai katalis, padatan pendukung katalis, penukar anion, adsorben, *stabilizer*, dan penangkap anion. HT banyak dimanfaatkan sebagai adsorben untuk mengadsorpsi senyawa-senyawa anorganik

maupun organik dalam larutan karena mempunyai lapisan bermuatan positif yang mampu mengadsorpsi senyawa-senyawa anionik (Cavani, dkk., 1991). Senyawa anionik yang banyak diadsorpsi dengan HT di antaranya adalah adsorpsi Au(III) dalam bentuk [AuCl<sub>4</sub>]<sup>-</sup>.

Beberapa penelitian tentang adsorpsi larutan [AuCl<sub>4</sub>]<sup>-</sup> dengan menggunakan material HT telah dilakukan. Ikhsan (2011) berhasil mengadsorpsi [AuCl<sub>4</sub>]<sup>-</sup> menggunakan HT. Larutan [AuCl<sub>4</sub>]<sup>-</sup> yang teradsorpsi oleh HT belum dapat tereduksi menjadi Au(0). Hal ini menunjukkan bahwa [AuCl<sub>4</sub>]<sup>-</sup> yang teradsorpsi pada permukaan HT belum memberikan sumbangan pada *recovery*

emas yang optimal karena hanya terjadi adsorpsi  $[\text{AuCl}_4]^-$  dan belum dapat dimanfaatkan lebih lanjut. Oleh karena itu, modifikasi material HT perlu dilakukan sehingga material HT dapat mengadsorpsi sekaligus mereduksi  $[\text{AuCl}_4]^-$  dari larutannya.

Modifikasi adsorben HT dapat dilakukan dengan penambahan agen pereduksi dan modifikasi ukuran adsorben HT. Modifikasi adsorben HT dengan penambahan agen pereduksi biasanya digunakan senyawa organik yang mempunyai potensial reduksi yang cukup besar sehingga menghasilkan material hibrida berbasis HT. Beberapa senyawa organik yang dapat dimanfaatkan sebagai agen pereduksi untuk memodifikasi HT menjadi material hibrida adalah asam tanat (Hamamoto, dkk., 2009), asam askorbat (AA) (Hidayanti, 2013), asam salisilat dan asam galat atau asam 3,4,5-trihidroksibenzoat (ATBH) (Santosa, 2020). Senyawa-senyawa tersebut mampu mengadsorpsi  $[\text{AuCl}_4]^-$  sekaligus mereduksinya menjadi Au(0).

Penelitian yang dilakukan Yanti dkk. (2018) tentang HT yang termodifikasi ATBH pada daerah antarlapisnya dengan metode kopresipitasi langsung untuk adsorpsi  $[\text{AuCl}_4]^-$  diperoleh hasil adsorpsi  $[\text{AuCl}_4]^-$  dan reduksi Au(III) menjadi Au(0) berhasil dilakukan. Hal ini disebabkan, ATBH mempunyai nilai potensial reduksi  $-0,4951$  V (Maghfiroh, 2015) dan  $[\text{AuCl}_4]^-$  mempunyai nilai potensial reduksi  $+0,994$  V (Đurović dkk, 2014). Nilai potensial reduksi ATBH yang lebih negatif dibandingkan  $[\text{AuCl}_4]^-$  menunjukkan ATBH dapat berperan sebagai agen pereduksi.

Pang (2014) juga berhasil melakukan interkalasi pada Mg/Al-HT dengan anion dodesil sulfat (DS) dengan metode kopresipitasi melalui mikro reaktor-T. Sintesis *Fresh* Mg/Al-HT dilakukan dengan mereaksikan larutan garam dan ammonia melalui mikro reaktor-T. Sintesis material hibrida dilakukan dengan menambahkan tetes demi tetes 50 mL natrium dodesil sulfat 0,01 M ke dalam 50 mL Mg/Al-HT dengan pengadukan yang kontinu pada suhu kamar. Suspensi yang diperoleh kemudian disentrifugasi pada 12.000 rpm selama 5 menit dan dicuci dengan air sehingga diperoleh material hibrida Mg/Al-HT terinterkalasi DS. Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan interkalasi ATBH pada HT dengan adaptasi metode yang dilakukan oleh Pang (2014).

Parameter yang dipelajari adalah konsentrasi molar dan pH sintesis. Material hibrida Mg/Al-HT-APBH ini dikarakterisasi dengan XRD dan FTIR.

## METODE

Peralatan karakterisasi yang digunakan, meliputi *X-Ray Difraktometer* (XRD, Rigaku Miniflex 600 dan Shimadzu XRD 6000) untuk menentukan puncak-puncak karakteristik material, spektrofotometer *Fourier Transform Infrared* (FT-IR, Nicolet Avatar 360IR) untuk identifikasi gugus fungsional material.

Peralatan penunjang yang digunakan meliputi *shaker* (VRN 200), oven (Fischer Scientific model 655F), neraca analitik (Mettler Toledo Al 204), mikro reaktor-T dengan ukuran diameter pipa 0,8  $\mu\text{m}$ , penyaring Millipore 0,8  $\mu\text{m}$ , pompa peristaltik (Masterflex L/S model 77800-60), mortar, lumpang agat, pengaduk magnet, plat pengaduk magnet, desikator, ayakan *fisher* 200 mesh, pH meter, *centrifuge* (Kokusan tipe H-107), dan beberapa peralatan gelas.

Bahan-bahan kimia yang digunakan untuk penelitian ini adalah bahan-bahan berkualitas p.a yaitu:  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , HCl 37%,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ , NaOH, semua bahan tersebut produksi E-merck, asam 3,4,5-trihidrobenzoat ( $\text{C}_7\text{H}_6\text{O}_5 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) (Sigma-Aldrich), akuades (Laboratorium Kimia Dasar FMIPA UGM), gas  $\text{N}_2$ , kertas saring millipore 0,8  $\mu\text{m}$ , dan kertas saring Whatman 42.

*Fresh* Mg/Al Hidrotalsit (F-HT) diperoleh dengan melarutkan 4 mmol  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan 2 mmol  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dengan 20 mL akuades bebas  $\text{CO}_2$ . Larutan tersebut disebut sebagai larutan garam. Larutan garam dan 20 mL larutan  $\text{NH}_3$  7% dipompa ke dalam mikro reaktor-T melalui dua *inlet* dengan kecepatan alir 20 mL/menit dengan bantuan pompa peristaltik. Suspensi yang diperoleh kemudian disaring dengan millipore 0,8  $\mu\text{m}$  dan dicuci dengan akuades bebas  $\text{CO}_2$  sebanyak tiga kali. Endapan yang diperoleh dikarakterisasi dengan XRD dan FT-IR.

Material hibrida Mg/Al HT variasi mol ATBH diperoleh dengan mendispersikan 0,50 g padatan F-Mg/Al-HT ke dalam 47 ml akuades bebas  $\text{CO}_2$  dan ditetesi dengan 50 mL larutan ATBH dengan variasi mol 0,10; 0,4; dan 1,0

mmol sambil diaduk selama 12 jam pada suhu ruangan. Larutan tersebut dimasukkan ke dalam autoclave dan dipanaskan dalam oven selama 5 jam pada suhu 120 °C, kemudian dipisahkan dengan sentrifugasi selama 5 menit dengan kecepatan 5000 rpm. Endapan yang diperoleh kemudian disaring dengan millipore 0,8  $\mu\text{m}$  dan dicuci dengan akuades bebas  $\text{CO}_2$  sebanyak tiga kali. Endapan yang diperoleh dikarakterisasi dengan spektrometer FT-IR dan difraktometer XRD.

Material hibrida Mg/Al HT yang disintesis dengan variasi pH diperoleh dengan mendispersikan 0,50 g padatan F-Mg/Al-HT ke dalam 47 ml akuades bebas  $\text{CO}_2$  dan ditetesi dengan 50 mL larutan asam 3,4,5-trihidrobenzoat dengan konsentrasi optimum. Larutan campuran tersebut kemudian diatur keasamannya pada pH 4, 8, 9, dan 10 sambil diaduk selama 12 jam pada suhu ruangan. Larutan tersebut dimasukkan ke dalam autoclave dan dipanaskan dalam oven selama 5 jam pada suhu 120 °C, kemudian dipisahkan dengan sentrifugasi selama 5 menit dengan kecepatan 5000 rpm. Endapan yang diperoleh kemudian disaring dengan millipore 0,8  $\mu\text{m}$  dan dicuci dengan akuades bebas  $\text{CO}_2$  sebanyak tiga kali. Endapan yang diperoleh dikarakterisasi dengan spektrometer FT-IR dan difraktometer XRD.

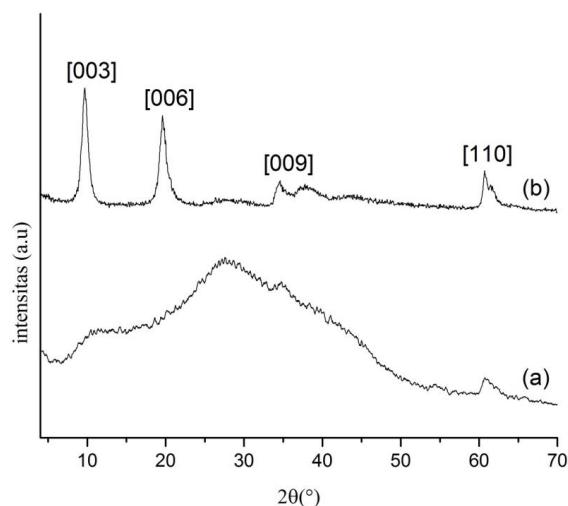
## HASIL DAN PEMBAHASAN

### *Fresh-Mg/Al hidrotalsit*

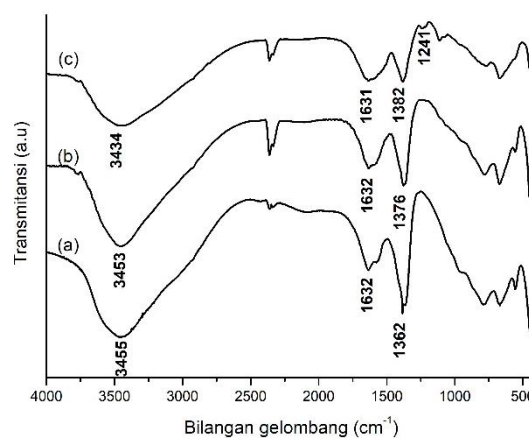
Hasil pola difraktogram XRD pada Gambar 1 (a) menunjukkan bahwa sintesis material F-HT mempunyai puncak *amorf* pada  $2\theta$  antara 20-45°. Pola difraktogram F-HT ini mirip dengan pola difraktogram hidrotalsit terkefalisasi pada penelitian yang dilakukan Pang dkk. (2014). Pola difraktogram F-HT tidak terlihat puncak difraksi [003] yang mengindikasikan belum terbentuknya daerah antar lapis hidrotalsit pada material F-HT. Hal ini berbeda dengan pola difraktogram Mg/Al- $\text{NO}_3$  HT yang terlihat puncak difraksi [003] sehingga terdapat daerah antarlapis hidrotalsit. Selain itu, terdapatnya puncak kecil pada  $2\theta$  61° yang merupakan puncak difraksi [110] mengindikasikan bahwa hidrotalsit yang terbentuk mempunyai struktur dua dimensi. Berdasarkan hasil analisis pola difraktogram F-HT dapat disimpulkan bahwa F-HT mempunyai struktur lembaran dua dimensi.

### Sintesis Mg/Al-HT-ATBH pada Berbagai Konsentrasi ATBH

Hasil karakterisasi dengan spektrometer FT-IR terhadap Mg/Al-HT-ATBH yang disintesis pada berbagai konsentrasi ATBH menunjukkan beberapa perbedaan pada daerah serapan. Berdasarkan spektra FTIR Mg/Al-HT-ATBH yang ditunjukkan Gambar 2 terlihat puncak serapan pada bilangan gelombang 1362  $\text{cm}^{-1}$  semakin menurun intensitasnya seiring meningkatnya konsentrasi ATBH yang digunakan dalam sintesis Mg/Al-HT-ATBH. Puncak serapan pada bilangan gelombang 1362  $\text{cm}^{-1}$  merupakan puncak serapan vibrasi *stretching* N-O dari anion  $\text{NO}_3^-$ . Hal tersebut mengindikasikan bahwa semakin besar konsentrasi ATBH, maka semakin banyak anion  $\text{NO}_3^-$  yang berada pada daerah antar lapis HT yang tergantikan.



**Gambar 1.** Difraktogram (a) F-HT dan (b) Mg/Al- $\text{NO}_3$  HT



**Gambar 2.** Spektra FTIR Mg/Al-HT-ATBH dengan perbandingan mol  $\text{Mg}^{2+}:\text{Al}^{3+}:\text{ATBH}$  sebesar (a) 2:1:0,05; (b) 2:1:0,2; dan (c) 2:1:0,5

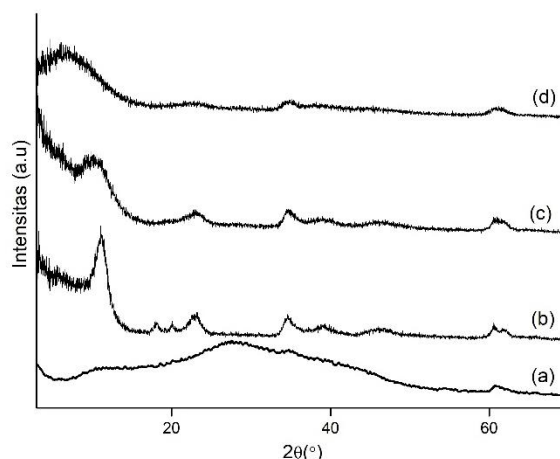
Perbedaan lain yang terlihat dalam Gambar 2 adalah menurunnya puncak serapan pada bilangan gelombang 1632 dan 3455  $\text{cm}^{-1}$  yang masing-masing merupakan puncak serapan dari vibrasi *bending* dan *stretching* O-H dari gugus hidroksi. Hal ini disebabkan dengan semakin meningkatnya konsentrasi ATBH yang digunakan dalam sintesis Mg/Al-HT-ATBH dapat menggeser keberadaan gugus hidroksi pada permukaan lapisan Mg/Al-HT-ATBH dan molekul  $\text{H}_2\text{O}$  pada daerah antar lapis Mg/Al-HT-ATBH sehingga puncak serapan dan vibrasi *bending*  $\text{H}_2\text{O}$  dan *stretching* O-H dari molekul air dan gugus hidroksi tersebut menjadi menurun. Selain penurunan intensitas, terlihat juga pada Gambar 2 (c) munculnya puncak serapan baru pada bilangan gelombang 1240  $\text{cm}^{-1}$  yang merupakan vibrasi C-O *stretching* dari gugus karboksilat molekul ATBH.

Berdasarkan spektra FT-IR Mg/Al-HT-ATBH yang ditunjukkan pada gambar 2 terlihat bahwa semuanya mengindikasikan adanya serapan gugus fungsi dari ATBH, sehingga dapat disimpulkan bahwa gugus fungsi yang terdapat pada ATBH berinteraksi dengan gugus fungsi pada HT dan mengindikasikan keberadaan ATBH dalam struktur HT. Pembuktian keberhasilan interkalasi ATBH pada daerah antar lapis HT digunakan pengujian dengan difraktometer sinar-X. Hasil analisis difraktogram XRD material hasil sintesis ditunjukkan oleh Gambar 3 dan Tabel 1 tentang identifikasi puncak  $2\theta$  dari material hibrida yang terbentuk.

Hasil difraktogram sinar-X menunjukkan terjadi perubahan struktur F-HT (Gambar 3 (a)) setelah penambahan ATBH. Pada Gambar 3 (b-d) terlihat adanya puncak baru dengan puncak difraksi [003], [006], dan [009] setelah penambahan ATBH. Puncak-puncak difraksi tersebut merupakan puncak karakteristik dari daerah antar lapis HT sehingga membuktikan bahwa terjadi *co-assembly* antara lapisan HT yang bermuatan positif dengan anion ATBH membentuk struktur berlapis Mg/Al-HT-ATBH.

Hasil difraktogram sinar-X pada Gambar 3 (b-d) menunjukkan terjadi pergeseran puncak difraksi [003] ke arah yang lebih kecil, yaitu dari 11,27°-6,74°. Pergeseran puncak difraksi [003] ke arah yang lebih kecil mengindikasikan adanya kenaikan nilai *basal spacing* pada daerah antar lapis Mg/Al-HT-ATBH. Hal ini disebabkan terjadi pertukaran anion di daerah antar lapis HT

dengan anion yang memiliki ukuran lebih besar. Anion  $\text{NO}_3^-$  merupakan salah satu yang terdapat dalam daerah antar lapis HT yang mempunyai ukuran 3,32 Å (Nong, 2011) sedangkan ATBH mempunyai ukuran yang lebih besar, yaitu 7,72 Å (ATBH netral); 6,64 Å (anion  $[\text{ATBH}]^-$ ); dan 6,28 Å (anion  $[\text{ATBH}]^{2-}$ ) (Yanti, 2015).



**Gambar 3.** Difraktogram XRD (a) F-HT dan Mg/Al-HT-ATBH pada perbandingan mol  $\text{Mg}^{2+}:\text{Al}^{3+}:\text{ATBH}$  (b) 2:1:0,05; (c) 2:1:0,2; dan (d) 2:1:0,5

Tabel 1 menunjukkan bahwa nilai *basal spacing*  $d_{003}$  semakin besar dengan meningkatnya konsentrasi ATBH mengindikasikan bahwa anion ATBH telah masuk ke dalam daerah antar lapis Mg/Al-HT. Masuknya anion ATBH yang mempunyai ukuran lebih besar dibandingkan anion  $\text{NO}_3^-$  menyebabkan jarak antar lapis HT meningkat sehingga mengindikasikan bahwa interkalasi berhasil dilakukan. Perbandingan  $\text{Mg}^{2+}:\text{Al}^{3+}:\text{ATBH}$  optimum adalah pada perbandingan mol 2:1:0,5 karena mempunyai pergeseran *basal spacing*  $d_{003}$  yang paling besar dengan nilai  $d_{003}$  adalah 13,1 Å sehingga asumsinya dapat mengoptimalkan adsorpsi HT pada daerah antar lapis HT.

**Tabel 1.** Identifikasi puncak  $2\theta$  Mg/Al-HT-ATBH pada perbandingan mol  $\text{Mg}^{2+}:\text{Al}^{3+}:\text{ATBH}$  (a) 2:1:0; (b) 2:1:0,05; (c) 2:1:0,2; dan (d) 2:1:0,5

| Sampel | $2\theta_{003}$ (derajat) | $d_{003}$ (Å) |
|--------|---------------------------|---------------|
| (a)    | -                         | -             |
| (b)    | 11,27                     | 7,84          |
| (c)    | 10,62                     | 8,33          |
| (d)    | 6,74                      | 13,1          |

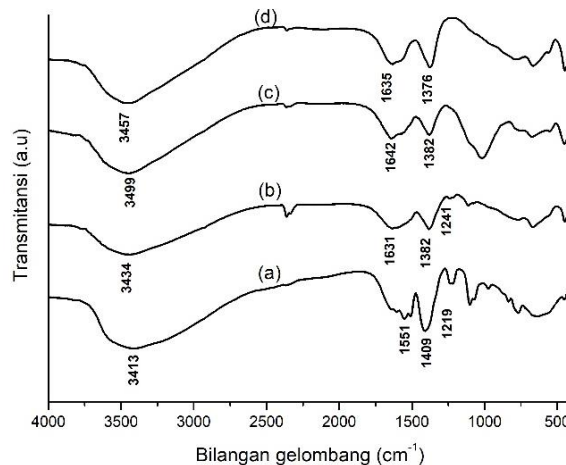
### Sintesis Mg/Al-HT-ATBH pada Berbagai Variasi pH Sintesis

Hasil karakterisasi dengan spektrometer FT-IR terhadap Mg/Al-HT-ATBH yang disintesis pada berbagai variasi pH menunjukkan beberapa perbedaan pada daerah serapan. Berdasarkan spektra FTIR Mg/Al-HT-ATBH yang ditunjukkan Gambar 5 (a-b) terlihat puncak serapan pada bilangan gelombang  $1409\text{ cm}^{-1}$  semakin menurun intensitasnya seiring meningkatnya konsentrasi pH yang digunakan dalam sintesis Mg/Al-HT-ATBH. Puncak serapan pada bilangan gelombang  $1409\text{ cm}^{-1}$  merupakan puncak serapan vibrasi *stretching* N-O dari anion  $\text{NO}_3^-$ . Hal tersebut mengindikasikan bahwa kenaikan pH sintesis dari pH 4 ke pH 8 maka semakin banyak anion  $\text{NO}_3^-$  yang berada pada daerah antar lapis HT yang tergantikan oleh anion ATBH.

Keberadaan anion  $\text{NO}_3^-$  yang digantikan oleh anion ATBH diindikasikan dengan munculnya puncak serapan munculnya puncak serapan pada bilangan gelombang antara  $1219 - 1241\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi gugus C-O *stretching* yang berasal dari gugus karboksilat yang terdapat pada Gambar 5(a) dan 5(b). Berdasarkan spektra FTIR Mg/Al-HT-ATBH yang ditunjukkan Gambar 5 (c-d), kenaikan pH 9 dan 10 menyebabkan peningkatan konsentrasi  $\text{OH}^-$  di larutan sehingga terjadi kompetisi antara anion ATBH dan  $\text{OH}^-$  dalam menggantikan anion  $\text{NO}_3^-$  yang berada pada daerah antar lapis HT. Anion  $\text{OH}^-$  akan lebih mudah terikat pada permukaan daerah antar lapis HT yang bermuatan positif melalui interaksi elektrostatik dibandingkan anion ATBH disebabkan anion  $\text{OH}^-$  yang bersifat lebih *donating* elektron daripada anion ATBH (Yanti, 2015). Hal tersebut menyebabkan anion ATBH pada kenaikan pH 9 sampai 10 yang menggantikan anion  $\text{NO}_3^-$  yang berada pada daerah antar lapis HT tidak optimal dibandingkan pada pH sintesis 8.

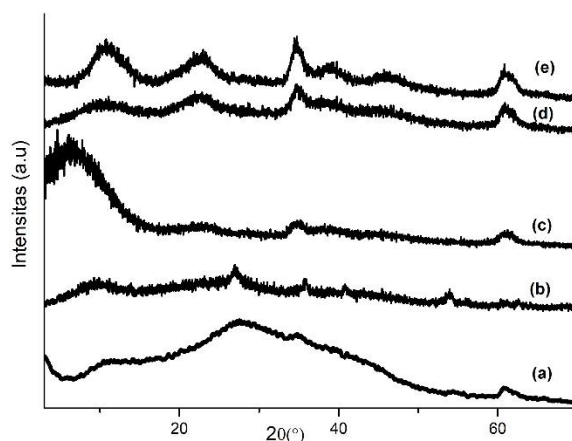
Perbedaan yang juga terlihat dalam Gambar 5 (a-b) adalah menurunnya puncak serapan pada bilangan gelombang  $1551$  dan  $3413\text{ cm}^{-1}$  yang masing-masing merupakan puncak serapan dari vibrasi *bending* dan *stretching* O-H dari gugus hidroksi. Hal ini mengindikasikan pada pH 8, anion ATBH dapat menggeser keberadaan gugus hidroksi pada permukaan lapisan Mg/Al-HT-ATBH dan molekul  $\text{H}_2\text{O}$  pada daerah antar lapis Mg/Al-HT-ATBH sehingga puncak serapan

dan vibrasi *bending*  $\text{H}_2\text{O}$  dan *stretching* O-H dari molekul air dan gugus hidroksi tersebut menjadi menurun. Hal ini disebabkan ATBH mempunyai nilai  $\text{pKa}_1$  sebesar 4,4 dan  $\text{pKa}_2$  sebesar 8,5 sehingga pada pH 8 dimungkinkan terjadi peningkatan jumlah anion ATBH.



**Gambar 5** Spektra FT-IR Mg/Al-HT-ATBH pada pH sintesis (a) 4, (b) 8, (c) 9, dan (d) 10

Berdasarkan Gambar 5 (b-d) terjadi peningkatan puncak serapan pada bilangan gelombang  $1631$  dan  $3434\text{ cm}^{-1}$ . Mg/Al-HT-ATBH yang disintesis pada pH 9 dan 10 terjadi peningkatan konsentrasi  $\text{OH}^-$  di larutan sehingga terjadi keberadaan  $\text{OH}^-$  dalam pada permukaan dan daerah antar lapis HT meningkat. Hasil analisis difraktogram XRD material hasil sintesis ditunjukkan oleh Gambar 6 dan Tabel 2 tentang identifikasi puncak  $2\theta$  dari material hibrida yang terbentuk.



**Gambar 6.** Difraktogram XRD (a) F-HT dan Mg/Al-HT-ATBH pada variasi pH (b) 4; (c) 8; (d) 9; dan (e) 10.

Hasil difraktogram sinar-X pada Gambar 6 (b-c) menunjukkan terjadi pergeseran puncak difraksi [003] ke arah yang lebih kecil, yaitu dari  $8,86^\circ - 6,74^\circ$ . Pergeseran puncak difraksi [003] ke arah yang lebih kecil mengindikasikan adanya kenaikan nilai *basal spacing* pada daerah antar lapis Mg/Al-HT-ATBH. Hal ini disebabkan terjadi pertukaran anion  $\text{NO}_3^-$  di daerah antar lapis HT dengan anion ATBH yang memiliki ukuran lebih besar. Hal ini mengindikasikan bahwa anion ATBH telah berhasil terinterkalasikan ke daerah antar lapis HT.

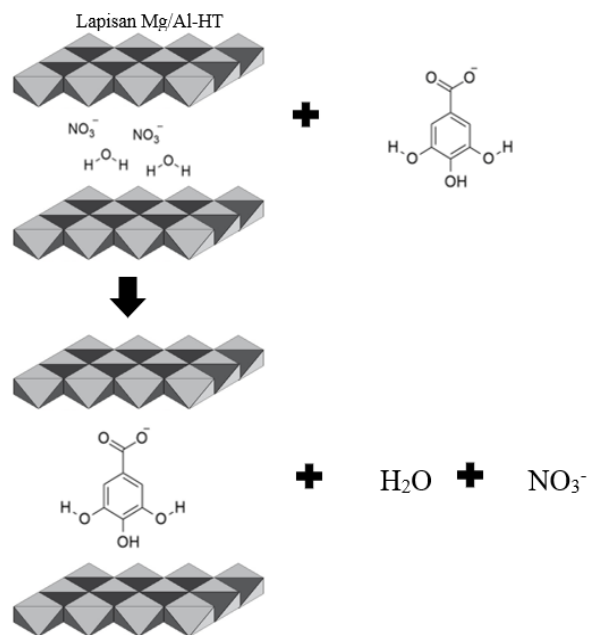
**Tabel 2** Identifikasi puncak 2 $\theta$  Mg/Al-HT-ATBH pada perbandingan pH yang bervariasi

| Sampel | 2 $\theta_{003}$ (derajat) | $d_{003}$ (Å) |
|--------|----------------------------|---------------|
| (a)    | -                          | -             |
| (b)    | 8,86                       | 10,00         |
| (c)    | 6,74                       | 13,1          |
| (d)    | 9,9                        | 8,9           |
| (e)    | 10,89                      | 8,12          |

Hasil difraktogram sinar-X pada Gambar 6 (c-e) menunjukkan terjadi pergeseran puncak difraksi [003] ke arah yang lebih besar, yaitu dari  $6,74^\circ - 10,89^\circ$ . Pergeseran puncak difraksi [003] ke arah yang lebih besar mengindikasikan adanya penurunan nilai *basal spacing* pada daerah antar lapis Mg/Al-HT-ATBH. Hal ini kemungkinan disebabkan terjadi kompetisi antara anion ATBH dan  $\text{OH}^-$  dalam pertukaran anion  $\text{NO}_3^-$  di daerah antar lapis HT. Kenaikan pH (basa) sintesis akan menyebabkan kenaikan konsentrasi  $\text{OH}^-$ . Anion  $\text{OH}^-$  lebih mudah terikat pada permukaan daerah antar lapis HT yang bermuatan positif melalui interaksi elektrostatis dibandingkan anion ATBH disebabkan anion  $\text{OH}^-$  yang bersifat lebih *donating* elektron daripada anion ATBH (Yanti, 2015). Hal tersebut menyebabkan Mg/Al-HT-ATBH yang disintesis pada pH 9 dan 10 memiliki jumlah anion ATBH yang lebih sedikit dibandingkan jumlah anion ATBH pada Mg/Al-HT-ATBH yang disintesis pada pH sintesis 8 untuk menggantikan anion  $\text{NO}_3^-$  yang berada pada daerah antar lapis HT.

Posisi anion ATBH yang terinterkalasi pada daerah antar lapis HT dapat diprediksikan dengan mengetahui ukuran jarak *d-spacing* 003 dan ketebalan dari lapisan Mg/Al-HT. Berdasarkan penelitian Nong dkk. (2011)

ketebalan lapisan Mg/Al-HT adalah  $4,70 \text{ \AA}$ . Hasil sintesis Mg/Al-HT optimum adalah pada perbandingan mol  $\text{Mg}^{2+}:\text{Al}^{3+}:\text{ATBH} = 2:1:0,5$  dan pH sintesis 8. Material pada kondisi tersebut mempunyai pergeseran *basal spacing*  $d_{003}$  yang paling besar dengan nilai  $13,1 \text{ \AA}$ . Oleh karena itu, diperkirakan anion ATBH pada daerah antar lapis HT tersusun satu lapisan. Posisi anion ATBH pada daerah antar lapis Mg/Al-HT-ATBH dapat diilustrasikan seperti pada Gambar 7.



**Gambar 7.** Ilustrasi proses interkalasi anion ATBH pada antar lapis Mg/Al-HT

## KESIMPULAN

Sintesis Mg/Al-HT terinterkalasi ATBH telah berhasil dilakukan dengan menggunakan metode kopresipitasi menggunakan mikroreaktor-T pada pH sintesis 8 dengan perbandingan mol  $\text{Mg}^{2+}:\text{Al}^{3+}:\text{ATBH}$  sebesar 2:1:0,5. Hal ini ditandai munculnya puncak serapan pada panjang gelombang  $1421 \text{ cm}^{-1}$  dari vibrasi C-O *stretching* dari gugus fungsi ATBH dan penurunan *stretching* N-O dari anion  $\text{NO}_3^-$  pada panjang gelombang 1362 pada analisis FT-IR dan bergesernya *basal spacing*  $d_{003}$  ke arah  $2\theta$  lebih kecil pada analisis XRD.

## DAFTAR RUJUKAN

Cavani, F., Trifiri, F., and Vaccari, A. 1991. Hydrotalcite-type Anionic Clay:

- Preparation, Properties and Application. *Catal. Today*, 11, 173-301.
- Đurović, M. D., Puchta, Ralph., Bugarčić, Ž. D., and Eldik, R. v. 2014. Studies on the reactions of  $[\text{AuCl}_4]^-$  with different nucleophiles in aqueous solution. *Dalton Trans*, 43, 8620-8632.
- Hamamoto, K., Kawakita, H., Ohto, K., and Inoue, K. 2009. Polymerization of Phenol Derivatives by the Reduction of Gold Ions to Gold Metal. *React. Funct. Polym.*, 69, 694-697.
- Hidaiyanti, R. 2013. *Immobilisasi Asam Askorbat pada Mg/Al Hidrotalsit dan Aplikasinya untuk Removal  $\text{AuCl}_4^-$* . Tesis tidak diterbitkan. Yogyakarta: Universitas Gadjah Mada.
- Ikhsan, N. A. 2011. *Kajian Adsorpsi-Desorpsi  $[\text{AuCl}_4]^-$  pada Mg/Al-Hidrotalsit*. Tesis tidak diterbitkan. Yogyakarta: Universitas Gadjah Mada.
- Jaubertie, C., Holgado, M. J., San Roman, M. S., dan Rives, V. 2006. Structural Characterization and Delamination of Lactate-Intercalated Zn,Al-Layered Double Hydroxides. *Chem. Mater*, 18, 3114-3121.
- Kloprogge, J. T., Hickey, L., and Frost, R. L. 2004. The Effect of Synthesis pH and Hydrothermal Treatment on The Formation of Zinc Aluminium Hydrotalcite. *J. Solid State Chem.*, 177, 4047.
- Magfiroh. 2015. *Pengaruh Posisi Gugus Hidroksi Senyawa Turunan Asam Benzoat terhadap Pembentukan Nanopartikel Perak dari  $\text{AgNO}_3$* . Tesis tidak diterbitkan. Yogyakarta: Universitas Gadjah Mada.
- Nong, L., Xiao, C., and Jiang, W. 2011, Azo Dye Removal from Aqueous Solution of Organic-Inorganic Hybrid Dodecanoic Acid Modified Layered Mg-Al Hydrotalcite. *Korean J. Chem. Eng.*, 28(3), 933-938.
- Pang, X., Sun, M., Ma, X., and Hou, W. 2014. Synthesis of layered double hydroxide nanosheets by coprecipitation using a T-type microchannel reactor. *J. Solid State Chem.*, 210, 111-115.
- Santosa, S. J., Fitriani, D., Aprilita, N. H., and Rudiarmo, B. 2020. Gallic and salicylic acid-functionalized Mg/Al hydrotalcite as highly effective materials for reductive adsorption of  $\text{AuCl}_4^-$ . *Apply. Surf. Sci.*, 507, 145115.
- Yanti, I., Santosa, S. J., and Kartini, I. 2018. Interaction study between 3,4,5-trihydroxy benzoic acid-modified Mg/Al-hydrotalcite with Au ions on the adsorption process of  $\text{AuCl}_4^-$ . *AIP Conf. Proc.* 2026, 020091-1-020091-6.
- Yanti, I. 2015. *Interkalasi Asam Galat Pada Mg/Al-Hidrotalsit Melalui Metode Kopresipitasi Langsung dan Penggunaannya Untuk Adsorpsi-Reduksi  $\text{AuCl}_4^-$* . Tesis tidak diterbitkan. Yogyakarta: Universitas Gadjah Mada.