

## SYNTHESIS OF IRON OXIDE-MONTMORILLONITE COMPOSITE AND STUDY OF ITS STRUCTURAL STABILITY AGAINST SULFURIC ACID

### *Sintesis Komposit Oksida-Besi Montmorillonit dan Uji Stabilitas Strukturnya Terhadap Asam Sulfat*

Karna Wijaya, Eko Sugiharto, Mudasir, Iqmal Tahir, Ika Liawati  
Jurusan Kimia, Fakultas MIPA  
Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta

#### ABSTRACT

The synthesis and characterization of iron oxide-montmorillonite and its structural stability test with various concentration of sulfuric acid were conducted. Synthesis was performed by treating Na-montmorillonite clay with oligocations of iron, followed by calcinating the intercalation compound of oligocations-montmorillonite at 200°C for 24 hours. Calcined product was then characterized to determine the iron content, basal spacing and its porosities distribution. To test structural stability against strong acid (i.e. sulfuric acid), the composites were dispersed into solution of sulfuric acid with various concentration, i.e: 1, 2 and 3M for 24 hours.

The characterization result, especially from x-ray-diffractometry analysis, demonstrated that modification of montmorillonite using iron (III)oxide produced so called house of card structure as indicated by its broad, low intensity reflection at  $2\theta = 5-6^\circ$ . The addition of sulphuric acid into composite resulted in probably the formation of face to face arrangements indicated by the appearance of 001 plane reflection. The acid treatment also caused the decrease in the iron content of the iron oxide-montmorillonite as shown by its neutron activated analysis result. The iron content of iron oxide-montmorillonite before the acid treatment was 32,01% w/w, and after the acid treatment was 14.08% w/w (with sulfuric acid of 1M), 6.05% w/w (sulfuric acid of 2M) and 5,98% w/w (with sulfuric acid of 3M), respectively.

In general, the sulphuric acid treatment to the composite did not distort the 001 planes of the montmorillonite.

**Keywords:** pillarization, montmorillonite, structure stability

#### PENDAHULUAN

Indonesia memiliki sumber daya alam mineral yang tersebar di beberapa propinsi dengan jumlah yang cukup besar, salah satu mineral yang banyak terdapat di Indonesia adalah tanah lempung. Secara geologis tanah lempung merupakan mineral alam dari keluarga silikat yang berbentuk kristal dengan struktur berlapis dan mempunyai ukuran partikel lebih kecil dari dua mikrometer, berwarna agak kecoklatan, bersifat liat jika basah dan keras bila kering [1,2,3,4]

Berdasarkan kandungan mineralnya, tanah lempung dibedakan menjadi : montmorillonit, kaolinit, halosit, klorit dan illit. Montmorillonit merupakan kelompok mineral filosilikat yang paling banyak menarik perhatian. Hal ini disebabkan karena montmorillonit memiliki kemampuan untuk mengembang serta kemampuan untuk diinterkalasi dengan senyawa organik membentuk material

komposit organik-anorganik. Selain itu mineral ini juga mempunyai kapasitas penukar kation yang tinggi sehingga ruang antar lapis montmorillonit mampu mengakomodasi kation dalam jumlah yang besar serta menjadikan montmorillonit sebagai material yang unik [5,6,7,8,9].

Berdasarkan sifat fisiknya, montmorillonit dapat dibagi menjadi dua kelompok, yaitu : Na-montmorillonit dan Ca-montmorillonit. Na-montmorillonit memiliki kandungan  $\text{Na}^+$  yang besar pada antar lapisnya. Selain itu memiliki sifat mudah mengembang bila direndam dalam air dan akan terbentuk suspensi bila didispersikan ke dalam air. Untuk Ca-montmorillonit, kandungan  $\text{Ca}^{2+}$  dan  $\text{Mg}^{2+}$  relatif lebih banyak bila dibandingkan dengan kandungan  $\text{Na}^+$ . Ca-montmorillonit memiliki sifat sedikit menyerap air dan jika didispersikan ke dalam air akan cepat mengendap atau tidak terbentuk suspensi. Oleh karena itu, Na-montmorillonit sering disebut dengan montmorillonit

mengembang dan Ca-montmorilonit disebut dengan montmorilonit tidak mengembang [10,11,12,13,14].

Dewasa ini kebutuhan akan montmorilonit dalam dunia industri cenderung semakin meningkat tetapi kemampuan kerjanya umumnya tidak begitu tinggi dan modifikasi lempung sampai saat ini belum banyak dilakukan sehingga nilai jualnya masih rendah dan belum dapat dimanfaatkan secara optimal. Oleh karena itu, perlu dilakukan modifikasi untuk meningkatkan kemampuan kerja lempung [15,16,17,18,19].

Beberapa penelitian telah dilakukan untuk meningkatkan kemampuan montmorilonit sebagai adsorben dan katalis. Salah satu metode yang dilakukan untuk meningkatkan kemampuan montmorilonit adalah dengan pemiliran atau pilarisasi atau pembentukan komposit lempung dengan oksida logam. Biasanya montmorilonit dipilarkan dengan berbagai senyawa organik, senyawa kompleks dan oksida-oksida logam yang diinterkalasikan ke dalam antar lapisnya. Proses pemiliran ini dapat mengakibatkan pori-pori lempung semakin besar dan homogen, antar lapisnyapun relatif menjadi lebih stabil daripada sebelum dipilarkan. Melalui kalsinasi diperoleh pilar oksida logam yang akan menyangga ruang antar lapis montmorilonit.

Adapun tujuan dari penelitian ini adalah untuk:

1. Mensintesis montmorilonit terpillar oksida besi atau komposit oksida besi-montmorillonit.
2. Mengetahui pengaruh penambahan asam sulfat terhadap stabilitas struktur montmorilonit terpillar oksida besi, atau komposit oksida besi-montmorillonit khususnya kestabilan bidang 001nya.

## METODE PENELITIAN

### Bahan Penelitian

Montmorilonit alam dari PT Tunas Inti Makmur, air bebas ion dari Laboratorium PAU Pangan dan Gizi UGM, bahan-bahan kimia dengan kualitas *p.a* buatan Merck, antara lain: kristal NaCl, kristal  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , NaOH, larutan  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , larutan  $\text{AgNO}_3$  dan larutan  $\text{BaCl}_2$ .

### Alat Penelitian

Alat-alat gelas, alat penggerus, ayakan 270 *mesh*, pengaduk magnetik, pemanas, termometer, *oven*, alat sentrifugasi, timbangan analitik, kertas saring biasa dan kertas saring *Whatman 42*, kertas pH, penyaring *Buchner*, tanur, peralatan instrumen meliputi: spektrometer Infra Merah Shimadzu model FTIR 8201 PC, alat Difraksi Sinar-X Shimadzu model XRD 6000 dan *Gas Sorption Analyser NOVA 1000* (BATAN, Yogyakarta).

## Cara Penelitian

### Preparasi lempung Na-montmorilonit

Sebanyak 100,0 g montmorilonit alam yang masih kotor dicuci dalam 2000 mL air bebas ion sambil diaduk selama 24 jam kemudian disaring dengan kertas saring dan dikeringkan dalam *oven* pada temperatur 110-120°C. Montmorilonit yang telah bersih dan kering kemudian digerus dan diayak menggunakan pengayak berukuran 270 *mesh*. Hasil yang diperoleh sebanyak 73,08 g.

Tujuh puluh tiga koma nol delapan gram montmorilonit hasil pencucian didispersikan ke dalam 1096 mL larutan NaCl 1M (64,13 g NaCl), diaduk dengan pengaduk magnetik sambil dilakukan pemanasan 70-80°C selama 24 jam kemudian disaring menggunakan kertas saring.

Hasil penjuhan montmorilonit dengan NaCl 1M tersebut selanjutnya dimasukkan ke dalam 1096 mL larutan NaCl 6 M (384,77 g NaCl) sambil diaduk selama 24 jam, kemudian disaring dengan kertas saring dan dicuci dengan air bebas ion. Pencucian dengan air bebas ion bertujuan untuk membersihkan ion klorida yang mungkin terdapat pada permukaan Na-montmorilonit dan dilakukan sampai filtrat yang diperoleh menjadi jernih serta menunjukkan uji negatif terhadap larutan  $\text{AgNO}_3$ . Pada penelitian ini pencucian montmorilonit menggunakan air bebas ion dilakukan lebih dari 20 kali sampai filtrat benar-benar bebas dari ion klorida. Residu yang diperoleh dari hasil penyaringan selanjutnya dikeringkan dalam *oven* pada temperatur 120°C sampai kering kemudian digerus dan diayak menggunakan ayakan berukuran 270 *mesh*. Hasil penjuhan lempung montmorilonit dengan NaCl yang diperoleh berbentuk padatan sebanyak 8 g yang siap digunakan untuk tahap selanjutnya dan diberi nama Na-montmorilonit.

### Preparasi larutan oligokation besi

Agen pemilar dibuat dengan cara hidrolisis. Sebanyak 86,50 g  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dilarutkan dalam 1600 mL air bebas ion sambil diaduk sehingga diperoleh larutan  $\text{FeCl}_3$  0,2 M. Larutan ini dihidrolisis dengan penambahan NaOH ( $\text{OH}^-/\text{Fe}^{3+}=2,0$ ) sampai diperoleh larutan  $\text{FeCl}_3$  dengan pH sekitar dua, kemudian larutan ini diaduk dalam gelas beker 2000 mL selama 24 jam pada temperatur kamar (25°C). Larutan oligomer yang diperoleh selanjutnya diperam (*aging*) selama 24 jam pada temperatur kamar.

### Sintesis montmorilonit terpillar oksida besi

Tahap ini dimulai dengan pembuatan suspensi Na-montmorilonit, yang dibuat dari 8 g Na-montmorilonit didispersikan ke dalam 400 mL air bebas ion (perbandingan 2% berat) dengan diaduk selama 24 jam tanpa pemanasan. Suspensi Na-

montmorilonit selanjutnya ditambahkan ke dalam larutan oligomer secara bertetes–tetes sampai habis kemudian diaduk selama 24 jam pada temperatur kamar. Setelah pengadukan 24 jam selesai dilakukan maka suspensi hasil interkalasi ini didiamkan pada temperatur kamar selama 24 jam, kemudian dilakukan sentrifugasi satu kali selama 20 menit. Sentrifugasi yang dilakukan bertujuan untuk memisahkan oligokation besi–montmorilonit dari oligomernya. Oligokation besi–montmorilonit yang diperoleh selanjutnya disaring dengan penyaring *Buchner* dan sedimen yang diperoleh dicuci beberapa kali dengan air bebas ion sampai jernih dan filtrat bebas dari ion klorida. Pengujian dilakukan dengan larutan  $\text{AgNO}_3$  yang diteteskan ke dalam filtrat hasil penyaringan. Tes negatif filtrat terhadap larutan  $\text{AgNO}_3$  yang ditandai dengan tidak terbentuknya endapan putih  $\text{AgCl}$ , menunjukkan bahwa sedimen tersebut telah bebas dari ion klorida. Sedimen yang diperoleh dikeringkan dalam oven pada temperatur  $50^\circ\text{C}$  kemudian digerus dan diayak 270 mesh. Selanjutnya dikalsinasi pada temperatur  $200^\circ\text{C}$  selama 2 jam. Hasil kalsinasi yang diperoleh sebanyak 5 g dan diberi nama komposit oksida besi–montmorilonit

#### **Studi stabilitas struktur montmorilonit termodifikasi oksida besi terhadap asam sulfat**

Ke dalam 15 mL larutan asam sulfat 1 M, 2 M, dan 3M dimasukkan masing–masing 1,5 gram oksida besi–montmorilonit. Campuran diaduk selama 24 jam kemudian disaring. Hasil yang diperoleh dicuci dengan air bebas ion beberapa kali. Untuk menguji bahwa sudah tidak ada lagi sisa ion sulfat, filtrat dites dengan larutan  $\text{BaCl}_2$ . Jika tes menunjukkan hasil negatif atau tidak terbentuk endapan putih  $\text{BaSO}_4$  maka pencucian dihentikan. Oksida besi–montmorilonit yang sudah diperlakukan dengan asam selanjutnya dikeringkan pada temperatur  $100^\circ\text{C}$ , digerus sampai halus lalu disaring dengan penyaring berukuran 270 mesh

#### **Karakterisasi**

##### **Penentuan basal spacing ( $d_{001}$ )**

Penentuan *basal spacing* dilakukan dengan metode analisis difraksi sinar-X. Sekitar 0,5 g bubuk sampel yang akan dianalisis diletakkan dalam tempat sampel dan ditentukan langsung dalam difraktometer sinar – X Shimadzu model XRD 6000 menggunakan radiasi  $\text{Cu K}_\alpha$ . Sampel yang dianalisis dapat digunakan kembali untuk analisis lainnya.

##### **Penentuan luas permukaan dan porositas**

Sampel montmorilonit yang akan dianalisis ditempatkan dalam tempat sampel Gas Sorption

Analyser NOVA 1000. Sebelum dilakukan pengukuran, sampel dipanaskan dan dilakukan proses degassing pada temperatur  $150^\circ\text{C}$  selama 1 jam dengan kondisi vakum. Selanjutnya sampel didinginkan dengan nitrogen cair sampai terbentuk lapis tunggal molekul nitrogen pada permukaan sampel. Volume gas atau berat gas yang teradsorpsi pada temperatur nitrogen cair ( $77,4\text{ K}$ ) dapat ditentukan. Dengan terukurnya perubahan tekanan dan volume atau berat gas yang teradsorpsi oleh sampel maka luas permukaan spesifik, volume total pori, distribusi ukuran pori dan isotherm adsorpsi dari sampel yang dianalisis dapat ditentukan.

##### **Penentuan gugus fungsional**

Penentuan gugus fungsional dilakukan dengan alat spektrometer FTIR model Shimadzu 8201 PC dengan metode padatan (bubuk). Sebanyak 0,2 mg lempung yang akan dianalisis dihomogenkan dengan 20 mg bubuk KBr (perbandingan 1%) kemudian dengan tekanan 2000 psi ditekan hingga menjadi pelet yang tipis dan transparan. Pelet tersebut kemudian diletakkan dalam sel dan analisis spektra dilakukan pada bilangan gelombang  $400 - 4000\text{ cm}^{-1}$ .

##### **Penentuan Kandungan besi di dalam Na-montmorillonit dan komposit oksida besi-montmorillonit**

Untuk penentuan kandungan Fe dalam lempung terpillar digunakan metode analisis pengaktifan neutron (APN). Masing-masing 0,1 gram sampel Na-montmorilonit, montmorilonit termodifikasi oksida besi dan montmorilonit termodifikasi oksida besi dengan penambahan asam sulfat 1M, 2M, dan 3M yang masing-masing dituliskan sebagai Komposit -1M, Komposit-2M dan Komposit-3M serta *Standar Reference Material* (SRM) 2704 dimasukkan ke dalam tempat sampel kemudian diradiasi selama 2 menit dan didinginkan selama 5 menit (sebagai waktu tunda). Selanjutnya sampel dan SRM dicacah dengan alat spektrometer gamma jenis 92x spectrum master.

#### **HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN**

##### **Preparasi Na-Montmorilonit**

Montmorilonit alam yang akan digunakan dicuci dengan air bebas ion untuk menghilangkan pengotor yang dapat larut dalam air dan menempel pada permukaan montmorilonit. Selanjutnya dikeringkan dalam oven pada temperatur  $120^\circ\text{C}$  dengan tujuan untuk menghilangkan molekul-molekul air yang terdapat dalam ruang antar lapis montmorilonit. Pada tahap ini dihasilkan

montmorilonit yang relatif lebih bersih dari pengotor-pengotornya.

Preparasi Na-montmorilonit dilakukan dengan cara menjenuhkan montmorilonit dengan larutan NaCl 1M diikuti dengan larutan NaCl 6M. Penjenuhan dengan larutan NaCl 1M bertujuan untuk membuka dan mengaktifkan ruang antar lapis montmorilonit sedangkan penjenuhan dengan larutan NaCl 6M dimaksudkan untuk menggantikan ion-ion selain  $\text{Na}^+$  di dalam antar lapis montmorilonit. Mekanisme pertukaran kation yang terjadi adalah sebagai berikut :



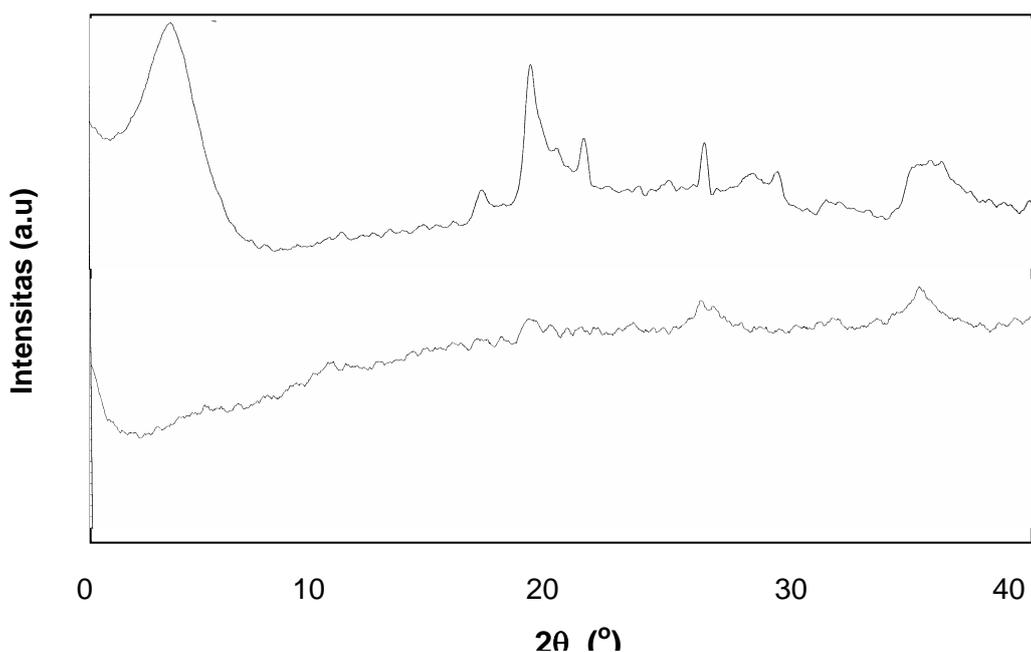
Dengan M adalah kation-kation selain  $\text{Na}^+$  yang terdapat pada antar lapis montmorilonit, seperti  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  dan  $\text{Ca}^{2+}$ . Hasil yang diharapkan setelah dilakukan penjenuhan adalah kation-kation yang dapat ditukarkan seperti  $\text{Ca}^{2+}$  dan  $\text{K}^+$  dalam keadaan terhidratnya dapat digantikan oleh  $\text{Na}^+$  sehingga jumlah  $\text{Na}^+$  di dalam antar lapis montmorilonit menjadi maksimal dan Na-montmorilonit sebagai produk pertukaran kation menjadi lebih homogen. Hasil analisis pengaktifan neutron (APN) terhadap montmorillonit alam dan Na-montmorillonit menunjukkan bahwa peningkatan kandungan natrium (%b/b) tidak begitu tinggi, yaitu 2,56% untuk montmorillonit alam menjadi 6,75% untuk Na-montmorilonit.

### Sintesis Komposit Oksida Besi-Montmorilonit

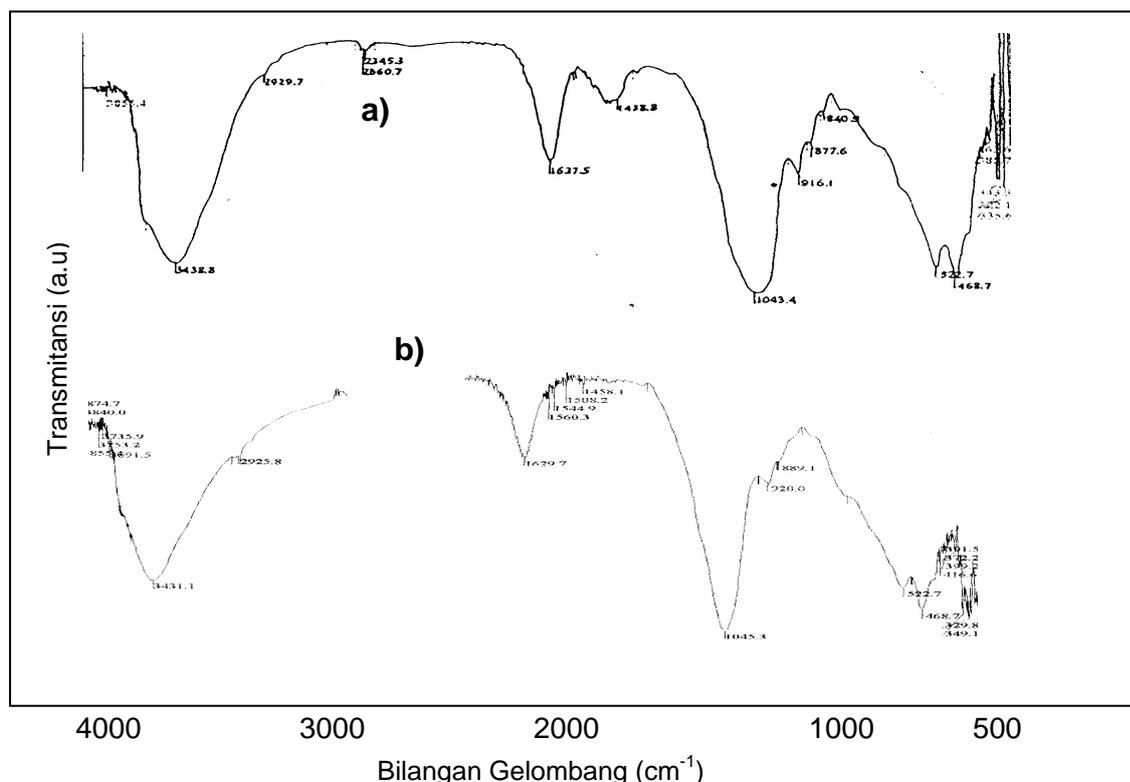
Komposit Oksida Besi-Montmorilonit disintesis melalui proses interkalasi agen pemilar polikation logam besi ke dalam antar lapis silikat Na-montmorilonit. Polikation logam besi yang terinterkalasi ini akan menggantikan kation-kation antar lapis yang mudah ditukarkan dan dengan kalsinasi polikation logam besi akan berubah menjadi oksida yang dapat menyangga antar lapis silikat montmorilonit. Dengan terbentuknya oksida besi ini akan diperoleh perubahan harga *basal spacing*  $d_{001}$ , luas permukaan spesifik serta porositasnya yang meliputi : volume pori, distribusi ukuran pori dan isoterm adsorbsinya.

### Karakterisasi dengan difraksi sinar-X

Besarnya peningkatan jarak antar lapis silikat montmorilonit yang terjadi akibat terbentuknya oksida logam besi dalam antar lapisnya dapat ditentukan dari hasil analisis difraksi sinar-X. Perubahan harga *basal spacing* ini mengindikasikan bahwa telah terjadi proses pembentukan oksida logam besi di dalam antarlapis montmorillonit, perubahan *basal spacing* ditentukan dengan menghitung selisih antara harga *basal spacing*  $d_{001}$  dari komposit oksida besi-montmorillonit dengan ketebalan lapisan silikat montmorilonit tak terhidrat atau biasa ditulis dengan  $\Delta d = (d_{001} - 9,6) \text{ \AA}$ . Karakterisasi produk interkalasi polikation logam besi ke dalam antar lapis silikat Na-montmorilonit dengan difraksi sinar-X ditunjukkan oleh Gambar 1.



Gambar 1 Difraktogram difraksi sinar-X (a) Na-montmorilonit dan (b) komposit oksida besi-montmorillonit



Gambar 2 Spektra inframerah untuk (a) Na-montmorillonit dan (b) oksida besi-montmorillonit

Tabel 1 Daerah serapan spektroskopi inframerah untuk Na-montmorillonit dan oksida besi-montmorillonit

Bilangan gelombang (cm <sup>-1</sup> )		Indikasi
Na-montmorillonit	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> montmorillonit	
468,7	468,7	tekukan O-Si-O + tekukan Al-O deformasi Si-O -OH yang terikat pada Fe <sup>3+</sup> , Al <sup>3+</sup> regangan O-Al-O regangan Si-O-Si tekukan O-H dari molekul H <sub>2</sub> O regangan -OH oktahedral
522,7	522,7	
877,6	889,1	
916,1	920	
1043,4	1045,3	
1637,5	1629,7	
3438,5	3431,1	

Dari difraktogram difraksi sinar-X di atas, dapat dipastikan untuk difraktogram oksida besi-montmorillonit tidak terlihat adanya puncak di daerah 2θ yang lebih kecil dari puncak Na-montmorillonit di daerah 2θ = 5,76 karena difraktogram oksida besi-montmorillonit ini melebar di daerah tersebut sehingga sulit untuk menentukan harga *basal spacing* maupun tinggi pilar oksida besi dari komposit oksida besi-montmorillonit. Pelebaran refleksi ini mungkin disebabkan oleh faktor antara lain : Terjadinya delaminasi struktur lapisan silikat karena proses interkalasi kation logam besi, dimana telah diketahui bahwa delaminasi merupakan sifat yang

unik dari struktur kristal atau material berlapis dan dapat menyebabkan terbentuknya struktur rumah kartu.

**Identifikasi dengan spektroskopi inframerah**

Metode analisis menggunakan spektroskopi inframerah bermanfaat untuk melengkapi data karakteristik dari difraksi sinar-X. Hasil spektroskopi FTIR untuk Na-montmorillonit dan oksida besi-montmorillonit ditunjukkan pada Gambar 2 dan data serapan yang muncul pada spektra inframerah di atas berada pada daerah 400 cm<sup>-1</sup> - 4000 cm<sup>-1</sup> dan diringkas pada Tabel 1.

Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa spektra infra merah hampir tidak dapat memberikan petunjuk yang nyata tentang adanya oksida besi sebagai pilar di dalam antarlapis montmorillonit.

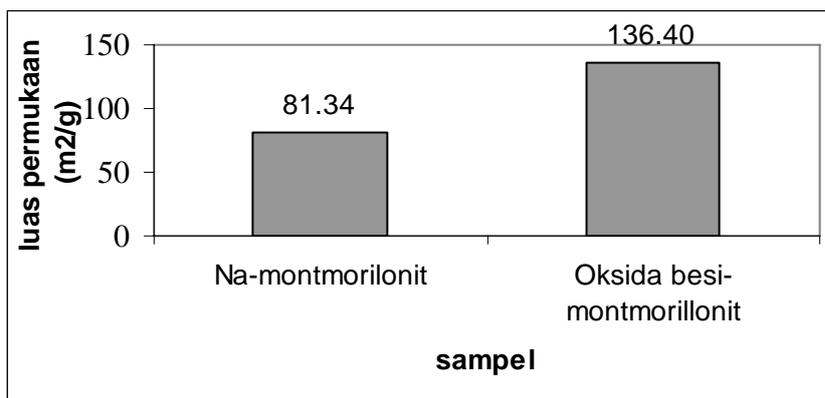
**Identifikasi dengan analisis serapan gas**

Hasil analisis serapan gas ditunjukkan pada Gambar 3. Dari data Gambar 3 terlihat bahwa proses pembentukan oksida besi dapat menyebabkan peningkatan luas permukaan spesifik serta volume total pori. Luas permukaan spesifik dari komposit oksida besi-montmorillonit lebih besar dari pada luas permukaan spesifik Na-montmorillonit. Hal ini terjadi karena selain adanya proses pilarisasi juga terbentuk struktur rumah kartu. Proses pilarisasi menyebabkan timbulnya pori baru dengan ukuran mikropori, sedangkan struktur rumah kartu menyebabkan adanya pori dengan ukuran mesopori sehingga memberikan kontribusi terhadap peningkatan luas permukaan spesifik. Hal ini didukung dari data volume total pori

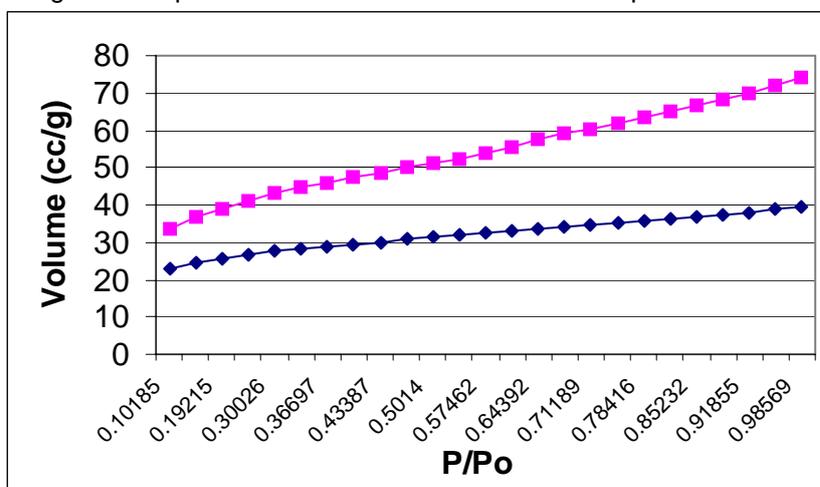
yang menunjukkan bahwa volume total pori pada oksida besi-montmorillonit lebih besar daripada volume total pori dari Na-montmorillonit, yang berarti bahwa pembentukan oksida besi ke dalam antar lapis silikat dapat meningkatkan porositas montmorillonit.

Isoterm adsorpsi N<sub>2</sub> dari komposit mengikuti isoterm tipe IV dari klasifikasi Brenauer yang menunjukkan bahwa adsorpsi gas N<sub>2</sub> terjadi pada adsorben yang memiliki pori dengan diameter 15-1000Å. Dengan demikian dapat dipastikan bahwa pada komposit oksida besi-montmorillonit terdapat distribusi ukuran pori *bimodal* yaitu struktur pori dengan ukuran mikropori dan mesopori.

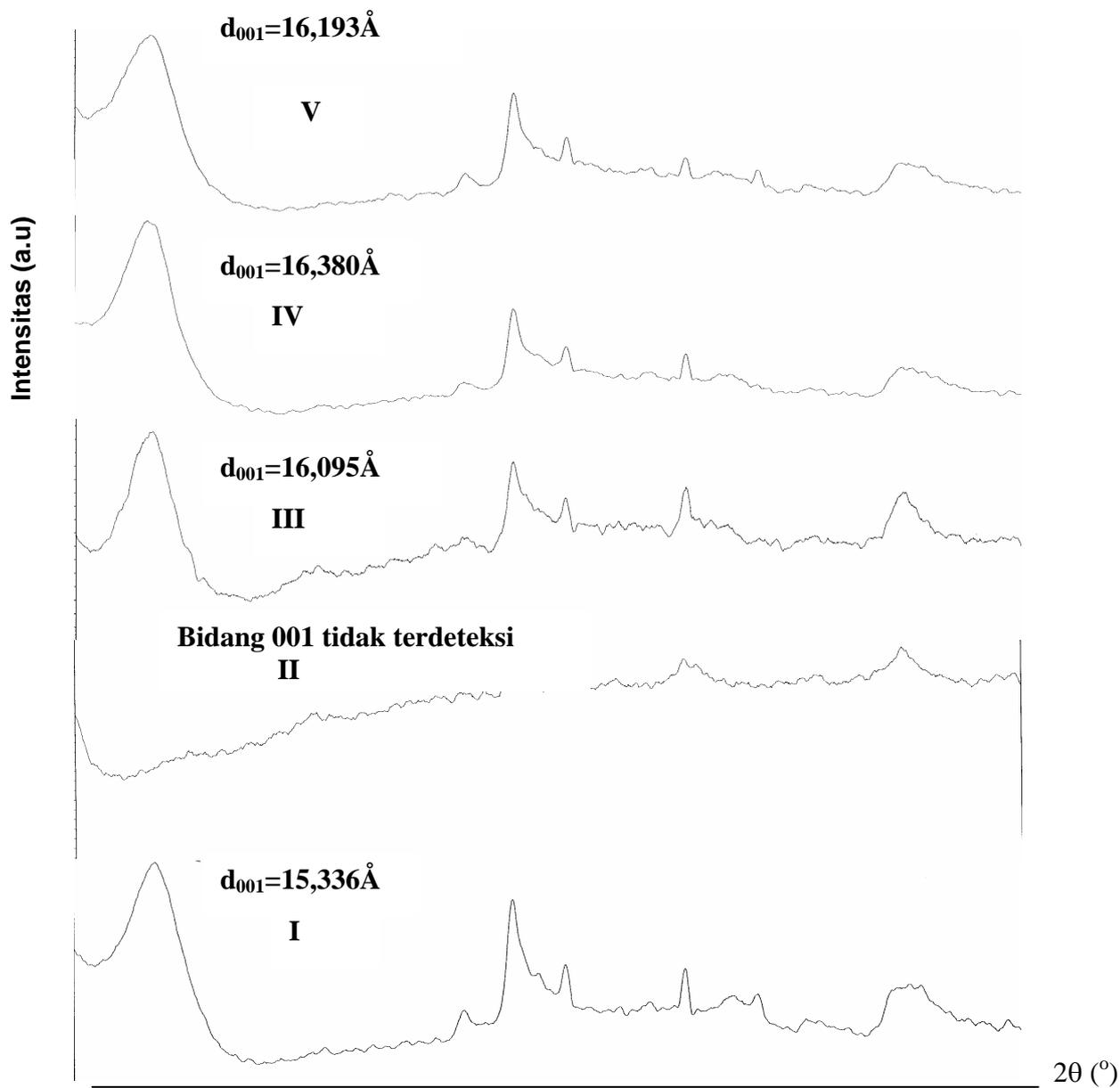
Jumlah pori komposit oksida besi-montmorillonit yang relatif lebih banyak dibanding jumlah pori Na-montmorillonit (yang ditunjukkan oleh volume total pori komposit yang lebih besar daripada volume total pori Na-montmorillonit) mengakibatkan kemampuan adsorpsi N<sub>2</sub> dari komposit relatif lebih tinggi daripada Na-montmorillonit (Gambar 4).



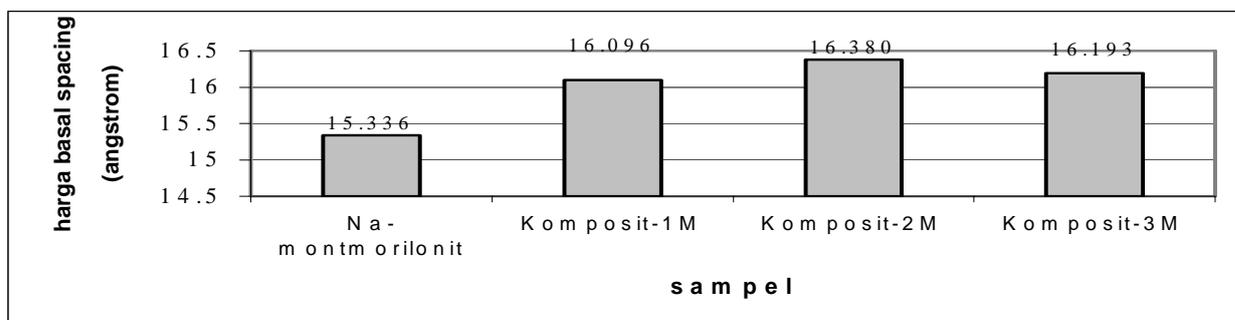
**Gambar 3** Histogram luas permukaan Na-montmorillonit dan komposit oksida besi-montmorillonit



**Gambar 4** Adsorpsi isoterm oleh N<sub>2</sub> dari Na-montmorillonit dan komposit oksida besi montmorillonit



**Gambar 5** Difraktogram difraksi sinar-X dari Na-montmorilonit (I), komposit (II) dan komposit dengan penambahan asam sulfat (III=1M, IV=2M dan V=3M)



**Gambar 6** Histogram *basal spacing* dari Na-montmorilonit dan komposit setelah penambahan asam sulfat

### Pengaruh Asam Sulfat terhadap Kestabilan Struktur Montmorilonit Terpillar Oksida Besi.

Untuk mempelajari pengaruh asam terutama asam sulfat terhadap kestabilan struktur komposit khususnya bidang 001, maka dilakukan proses perendaman komposit dalam larutan asam sulfat dengan konsentrasi 1M, 2M, serta 3M masing-masing selama 24 jam. Pada proses penambahan asam sulfat ini, bahan-bahan anorganik seperti magnesium, aluminium, maupun besi yang terdapat dalam montmorilonit terpillar akan larut sehingga kestabilan bidang 001 terganggu. Untuk mengetahui pengaruh penambahan asam pada komposit maka hasil yang diperoleh dari proses perendaman dengan menggunakan asam sulfat ini selanjutnya dianalisis menggunakan spektroskopi inframerah untuk mengetahui keberadaan gugus-gugus fungsional utama di dalam struktur senyawa yang sedang diidentifikasi. Metode difraksi sinar-X juga digunakan untuk mengetahui perubahan bidang 001 pada antar lapis silikat komposit akibat penambahan asam sulfat, karena telah diketahui bahwa pada konsentrasi asam yang tinggi, struktur montmorilonit dapat hancur dengan ditandai oleh hilang atau rusaknya refleksi bidang 001.

#### Analisis dengan difraksi sinar-X

Hasil analisis difraksi sinar-X Na-montmorilonit, komposit dan komposit setelah penambahan asam sulfat pada konsentrasi 1M, 2M, dan 3M selama 24 jam ditunjukkan pada Gambar 5.

Dari Gambar 6 terlihat bahwa dengan adanya penambahan asam sulfat baik pada konsentrasi 1M, 2M maupun 3M pada komposit menyebabkan perubahan yang drastis dari puncak-puncak difraktogram, yaitu munculnya kembali refleksi bidang 001 sehingga harga *basal spacing* dan tinggi pilar oksida logam dapat dihitung dari harga  $\Delta d = (d_{001} - 9,6) \text{ \AA}$ . Munculnya kembali refleksi bidang 001 ini kemungkinan disebabkan karena adanya kation  $H^+$  dari asam sulfat yang melarutkan pilar oksida besi pada antar lapis silikat

montmorilonit sehingga ada sebagian pilar oksida yang larut. Kemungkinan lain adalah tertata ulangnya kembali struktur montmorilonit yaitu dari struktur rumah kartu (*house of card*) menjadi *face to face arrangement* yang teratur.

Dari Tabel 3 terlihat adanya perubahan harga *basal spacing* maupun tinggi pilar oksida besi yang tidak signifikan pada antar lapis silikat montmorilonit setelah mengalami penambahan asam sulfat pada konsentrasi 1M, 2M maupun 3M.

Fenomena struktur rumah kartu (*house of card*) yang tertata ulang mungkin sekali terjadi pada penelitian ini. Hal ini didasarkan pada difraktogram hasil difraksi sinar-X dimana terlihat bahwa difraktogram montmorilonit termodifikasi oksida besi tampak melebar dan intensitasnya relatif rendah sebagai akibat dari terbentuknya struktur rumah kartu yang menyebabkan struktur montmorilonit termodifikasi oksida besi tidak teratur. Tetapi penambahan asam sulfat dengan konsentrasi 1M, 2M dan 3M pada difraktogram terlihat mulai muncul refleksi bidang 001 pada daerah  $2\theta = 5-10^\circ$ .

#### Analisis spektroskopi inframerah

Hasil analisis spektroskopi inframerah terhadap oksida besi-montmorillonit serta oksida besi-montmorillonit dengan penambahan asam sulfat adalah seperti disajikan pada Gambar 7.

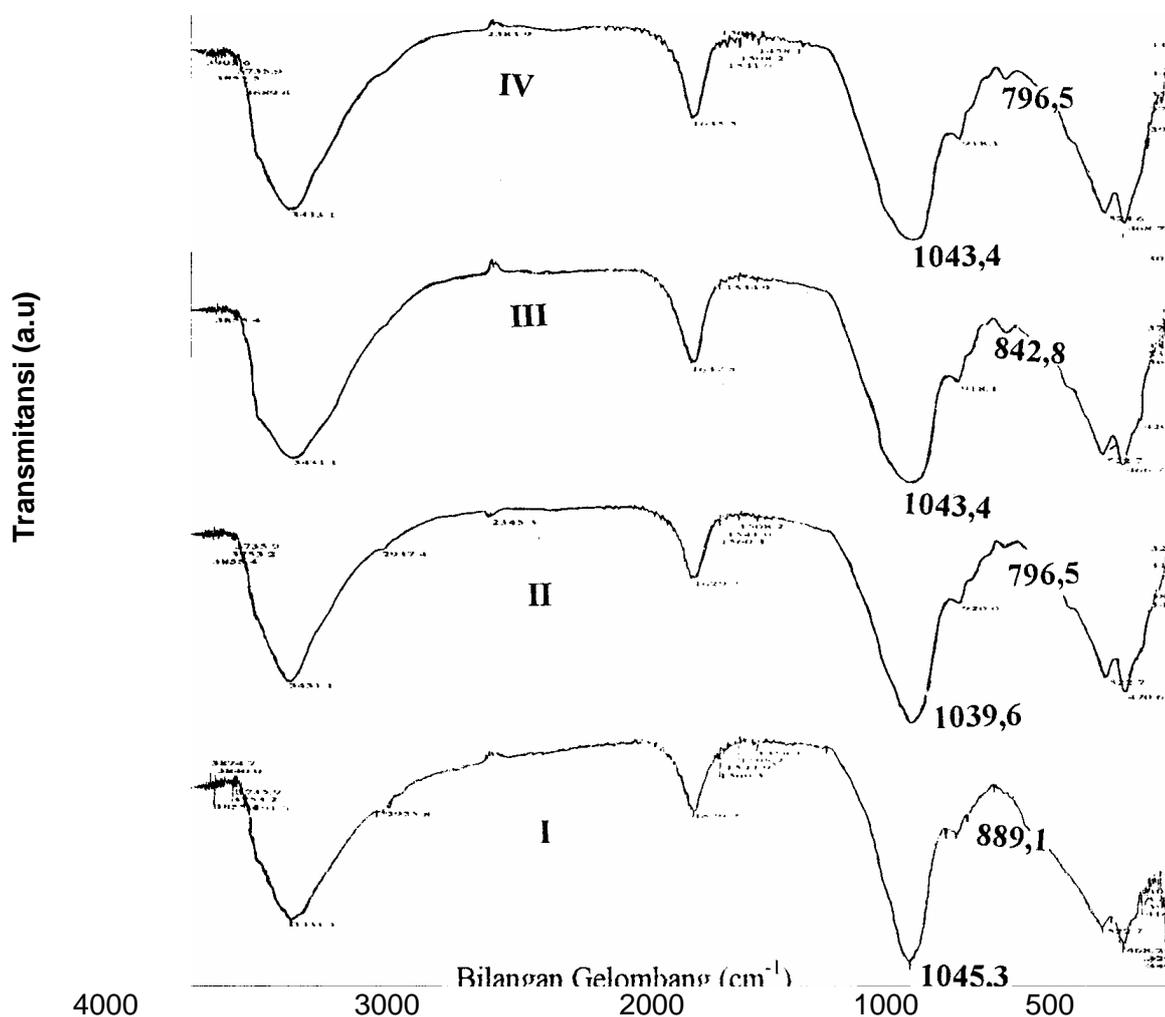
#### Analisis pengaktifan neutron

Hasil analisis pengaktifan neutron digunakan untuk mengetahui kandungan Fe dari komposit serta komposit setelah perlakuan asam sulfat 1M, 2M dan 3M selama 24 jam ditunjukkan pada Gambar 8.

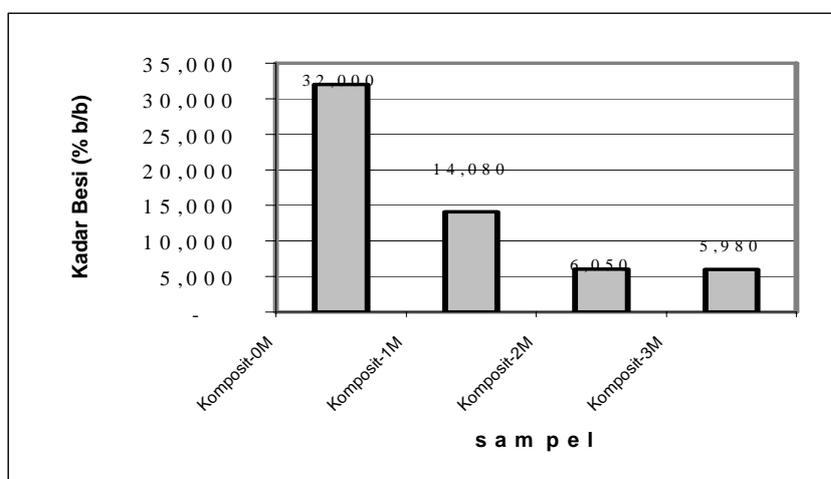
Hasil analisis kandungan besi pada komposit serta komposit setelah perlakuan asam sulfat menggunakan analisis pengaktifan neutron di atas menunjukkan bahwa pengasaman dapat menyebabkan berkurangnya kandungan besi pada komposit. Hal ini disebabkan karena asam sulfat merupakan asam kuat sehingga kation  $H^+$  mampu melarutkan sebagian pilar oksida besi.

**Tabel 2** Data serapan spektroskopi inframerah komposit dengan penambahan asam sulfat 1M, 2M, 3M

Bilangan gelombang ( $cm^{-1}$ )			
Oksida besi-montmorilonit	Perlakuan dengan asam sulfat 1 M	Perlakuan dengan asam sulfat 2 M	Perlakuan dengan asam sulfat 3 M
522,7	522,7	522,7	524,6
889,1	796,5	842,8	796,5
920,0	920,0	918,1	918,1
1045,3	1039,6	1043,4	1043,4



**Gambar 7** Spektra inframerah komposit (oksida besi-montmorillonit) (I) serta Komposit dengan penambahan asam sulfat (II= 1M, III= 2M, dan IV= 3M)



**Gambar 8** Histogram kandungan Fe pada komposit serta komposit setelah perlakuan asam sulfat

**KESIMPULAN**

1. Pembentukan oksida besi di dalam antarlapis montmorillonit kemungkinan menyebabkan terbentuknya komposit dengan struktur rumah kartu.
2. Penambahan asam sulfat dengan konsentrasi 1M, 2M dan 3M selama 24 jam mengakibatkan sebagian besi dalam komposit melarut. Penambahan asam ini mengakibatkan pula tertatutangnya struktur komposit dari struktur rumah kartu menjadi *face to face arrangements*.
3. Penambahan asam sulfat sampai 3 M belum mengakibatkan kerusakan bidang 001 komposit oksida besi-montmorillonit.

**UCAPAN TERIMA KASIH**

Penelitian ini dapat terlaksana karena bantuan dana dari Kementrian Negara Riset dan Teknologi (KRT) Republik Indonesia melalui Proyek RUT X-2003 s/d 2004.

**DAFTAR PUSTAKA**

1. Baksh, M.S., Kikkides, E.S. and Yang, R.T., 1992, *Ind.Eng.Res.*, 31, 2181-2189.
2. Canizares, P., Valverde, J.L. and Sun Kou, M.R., 1999, *Microporous and Mesoporous Mater*, 29, 267-281.
3. Ding, Z., Kloprogge, J.T., Frost, R.L., Lu, G.Q. and Zhu, H.Y., 2002, *J. Porous Mater*, 8, 273-293.
4. Figueras, F., 1988, *Catal.Rev-Sci.Eng.*, 30, 457-499.
5. Gil, A. and Montes, M., 1994, *Langmuir*, 10, 291-297.
6. Gil, A., Vicente, M.A. and Gandia, L.M., 2000, *Microporous and Mesoporous Mater*, 34, 115-125.
7. Huston, N.D., Hoekstra, M.J. and Yang, R.T., 1999, *Microporous and Mesoporous Mater*, 28, 447-459.
8. Kumar, P. and Jasra, R.V., 1995, *Ind.Eng.Chem.Res.*, 34, 1440-1448.
9. Leonard, V.I., 1995, *Material Chemistry: An Emerging Discipline*, American Chemical Society, Washington.
10. Long, R.Q. and Yang, R.T., 1999, *J.of Catal*, 186, 254-268.
11. Lowell, S. and Shield, J.E., 1983, *Powder Surface Area and Porosity*, 2<sup>nd</sup> edition, London.
12. Pinnavaia, T.J., 1983, *Science*, 220, 4595.
13. Riyanto, A., 1994, *Bahan Galian Industri*, Direktorat Jendral Pertambangan
14. Umum Pusat Penelitian dan Pembangunan Teknologi Mineral, Bandung.
15. Widihati, I.A.G., 2002, *Sintesis Lempung Montmorilonit Terpillar Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Kajian Sifat-Sifat Kimia Fisiknya*, Tesis S2 Pascasarjana, UGM, Yogyakarta.
16. Wijaya, K., 2000, *Lempung Terpillar (Pillared Clay) sebagai Material Multiguna*, Eksata, 1, 2.
17. Yulianto, B., 2001, *Mempelajari Sintesis Lempung Terpillar and Uji Stabilitas pilar Terhadap Efek Panas*, Skripsi, FMIPA, UGM, Yogyakarta.
18. Zhu, H.Y., Xia, J.A., Vansant, E.F. and Lu, G.Q., 1997, *J.Porous Mater*, 4, 17-26.
19. Zulkarnaen, W.S dan Marmer, D.H., 1990, *Pengkajian, Pengolahan dan Pemanfaat Bentonit dari Kecamatan Pule, Kabupaten Trenggalek Propinsi Jawa Timur sebagai Bahan Penyerap Lumpur Bor*, Buletin PPTM, 12, 6, Bandung.