

KALSINASI Ca-Mg-Al HYDROTALCITE DARI BRINE WATER DAN KARAKTERISASINYA
CALCINATION ON Ca-Mg-Al HYDROTALCITE FROM BRINE WATER AND ITS CHARACTERIZATION

Eddy Heraldly^{a*}, Khoirina Dwi Nugrahaningtyas^a, Heriyanto Heriyanto^b

^aProgram Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Sebelas Maret.

^bProgram Magister Kimia, Fakultas Pascasarjana, Universitas Sebelas Maret.

Jl. Ir. Sutami 36A Surakarta, 57126, Jawa Tengah, Indonesia.

* email : eheraldly@mipa.uns.ac.id

DOI : 10.20961/alchemy.v13i2.5606

Received 07 March 2017, Accepted 6 June 2017, Published online 1 September 2017

ABSTRAK

Studi kalsinasi pada suhu 450 °C terhadap Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang dibuat dari *brine water* telah dilakukan. Hasil karakterisasi XRD terhadap Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menunjukkan adanya fasa *hydrotalcite* dan fasa lain seperti Mg(OH)₂, Al(OH)₃ dan CaCO₃. Hasil ini diperkuat dengan adanya gugus hidroksil (-O-H), gugus M-OH dan M-O (M adalah Mg, Ca dan Al) pada daerah bilangan gelombang 3463,34 cm⁻¹; 447,50 cm⁻¹; 536,62 cm⁻¹ dan 786,99 cm⁻¹. Kalsinasi 450 °C pada Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menyebabkan perubahan strukturnya menjadi oksida logam seperti MgO, CaO, Al₂O₃, MgAl₂O₄ dan CaCO₃. Hasil tersebut diperkuat dengan adanya penurunan serapan gugus M-OH pada bilangan gelombang 536,62 cm⁻¹ dan 786,99 cm⁻¹ dan pelebaran serapan pada daerah 447,5 - 857,4 cm⁻¹. Perlakuan kalsinasi menyebabkan luas permukaan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* bertambah luas dari 97,4 m²/g menjadi 156,8 m²/g. Morfologi Ca-Mg-Al *hydrotalcite* mengalami perubahan bentuk dari bongkahan besar menjadi bongkahan kecil. Hasil analisis termal menunjukkan perubahan struktur Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menjadi oksida dimulai pada suhu 210 °C dan mulai menjadi oksida seutuhnya setelah suhu 420 °C.

Kata kunci : *brine water*, Ca-Mg-Al *hydrotalcite*, kalsinasi.

ABSTRACT

The study of calcination at 450 °C on Ca-Mg-Al-hydrotalcite synthesized from brine water has been investigated. Characterization by XRD shows that Ca-Mg-Al hydrotalcite compound has found hydrotalcite phase and another phase such as Mg(OH)₂, Al(OH)₃ and CaCO₃. These results are confirmed by the presence of hydroxyl groups (-O-H), M-O and M-OH groups (M is Mg, Ca and Al) at wavenumber region around 3463,34 cm⁻¹; 447,50 cm⁻¹; 536,62 cm⁻¹ and 786,99 cm⁻¹. The calcination on Ca-Mg-Al hydrotalcite at 450 °C affected change in the structure become a metal oxide such as MgO, CaO, Al₂O₃, MgAl₂O₄, and CaCO₃. These results are confirmed from decreasing on the absorption peak of M-OH group at wavenumbers around 536,62 cm⁻¹ and 786,99 cm⁻¹ and

widening of the absorption region at 447,5 - 857,4 cm^{-1} . Consequently, the calcination treatment successfully increased the surface area of Ca-Mg-Al hydrotalcite compounds from 97.4 m^2/g to 156.826 m^2/g . Morphology of Ca-Mg-Al hydrotalcite underwent changes the shape from a big to be a small form. Thermal analysis results showed changes in the structure of Ca-Mg-Al hydrotalcite into oxides begin at a temperature of 210 °C and become oxide completely after the temperature reaches 420 °C.

Keywords: brine water, calcination, Ca-Mg-Al hydrotalcite.

PENDAHULUAN

Brine water adalah air limbah hasil samping proses desalinasi air laut dengan konsentrasi garam yang tinggi. Menurut Heraldly *et al.* (2015, 2017a, 2017b), *brine water* yang mengandung logam Mg^{2+} dan Ca^{2+} dapat dimanfaatkan untuk pembuatan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang merupakan hasil modifikasi senyawa *hydrotalcite*.

Hydrotalcite adalah senyawa yang terdiri dari lapisan bermuatan positif dengan anion penyeimbang dan molekul air dalam daerah *interlayer* atau dikenal pula sebagai *layered double hydroxides* (LDH) (Cavani *et al.*, 1991). Secara umum, *hydrotalcite* memiliki formula: $[\text{M}^{2+}_{1-x}\text{M}^{3+}_x(\text{OH})_2]^{x+}(\text{A}^{n-})_{x/n} \cdot y\text{H}_2\text{O}$, dimana M^{2+} sebagai kation divalen, M^{3+} sebagai kation trivalen, A^{n-} sebagai anion penyeimbang, rasio molar (x) antara 0,2 – 0,33 dan y adalah jumlah H_2O pada *interlayer*. Dengan formula ini, sangat dimungkinkan untuk membuat senyawa *hydrotalcite* dengan dua logam seperti Mg/Al *hydrotalcite* (Heraldly *et al.*, 2015), Zn/Al *hydrotalcite* (Heraldly *et al.*, 2016) atau dengan tiga logam seperti Mg-Co-Al *hydrotalcite* (Thao and Trung, 2014) dan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* (Heraldly *et al.*, 2017a).

Hydrotalcite hasil sintesis, selain dapat digunakan secara langsung dalam berbagai aplikasi seperti sebagai adsorben (Heraldly *et al.*, 2015), penukar ion (Radha *et al.*, 2005), katalis (Gao *et al.*, 2010), penghambat panas (Karina *et al.*, 2016), dan bahan aktif dalam obat (Heraldly *et al.*, 2012), dapat juga dilakukan proses kalsinasi terlebih dahulu terhadap *hydrotalcite*. Dengan adanya proses kalsinasi terhadap *hydrotalcite*, diharapkan terjadi perubahan sifat yang sangat menarik dari *hydrotalcite* seperti luas permukaannya menjadi lebih besar dan stabil terhadap perubahan suhu.

Misra dan Perrotta (1992) telah berhasil melakukan kalsinasi *hydrotalcite* pada suhu 400 °C sehingga dapat memperbesar luas permukaan *hydrotalcite* dari 21 m^2/g menjadi 255 m^2/g . Begitu pula dengan Occelli *et al.* (2003) yang telah mampu memperbesar luas permukaan *hydrotalcite* menjadi 293 m^2/g pada suhu 500 °C. Sementara Mokhtar *et al.*

(2010) mengatakan bahwa oksida mulai terbentuk saat suhu 300 °C dan akhirnya pada saat suhu 500 °C *hydrotalcite* berubah menjadi oksida seutuhnya dengan ukuran kristal yang kecil. Pengaruh kalsinasi juga memberikan kestabilan termal pada struktur *hydrotalcite* yang terjadi pada suhu 200 °C (Selvam *et al.*, 2014). Berdasarkan pengalaman peneliti terdahulu, maka untuk meningkatkan luas permukaan dan kestabilan termal Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang telah dibuat ini dilakukan proses kalsinasi pada suhu 450 °C.

METODOLOGI PENELITIAN

Sintesis Ca-Mg-Al *hydrotalcite* dari *brine water*

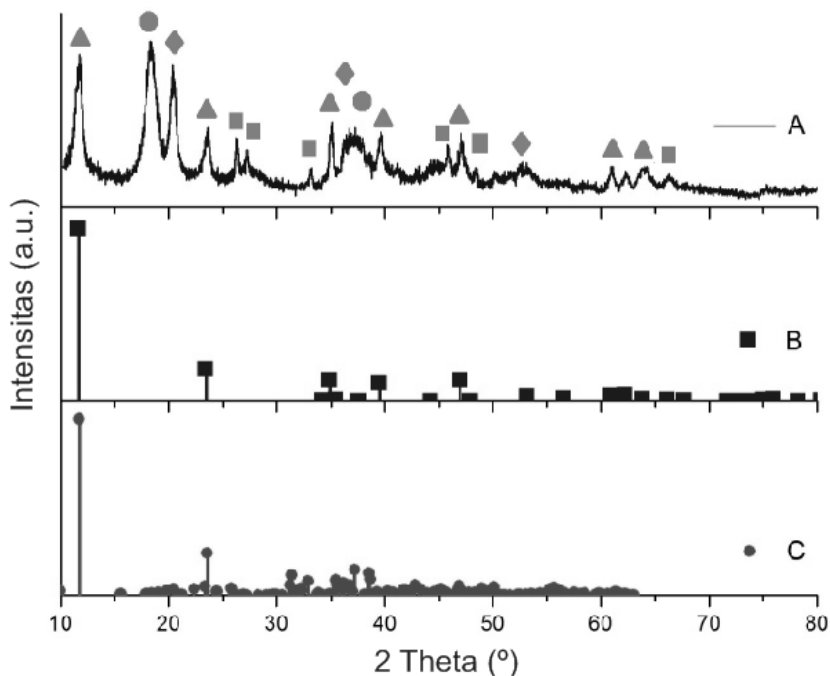
Ke dalam labu leher tiga yang telah mengandung *brine water* ditambahkan $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dengan perbandingan mol $(\text{Ca}+\text{Mg})/\text{Al} = 2$. Kemudian ditambahkan larutan Na_2CO_3 0,1 M hingga pH campuran mencapai ± 10 . Sambil tetap diaduk, lalu campuran dipanaskan selama 60 menit dengan suhu 70 °C. Setelah itu, proses reaksi dihentikan. Dengan campuran tetap dalam keadaan diaduk, dilakukan proses pendinginan sampai mencapai suhu kamar. Kemudian, hasil Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang masih dalam bentuk *slurry* dicuci dengan akuades hingga bebas dari ion Cl^- . Keberadaan ion Cl^- diketahui dengan menguji filtrat pencucian dengan AgNO_3 0,1 M. *Slurry* yang bebas ion Cl^- di *sentrifuge* dengan kecepatan 2000 rpm selama 15 menit, lalu dioven pada suhu 105 °C selama 24 jam. Kemudian, *slurry* kering (padatan) yang diperoleh digerus hingga halus, lalu padatan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* dikalsinasi pada suhu 450 °C selama 4 jam.

Karakterisasi

Analisis logam Ca dan Mg pada *brine water* dilakukan menggunakan *Atomic Absorption Spectrophotometer* (AAS) Shimadzu AA 630-12 dengan mengacu prosedur dari SNI 06-6989.55-2005 dan SNI 06-6989.56-2005. Padatan *hydrotalcite* dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) Bruker D8 Advance dengan radiasi sinar Cu $\text{K}\alpha$ ($\lambda=1,5406 \text{ \AA}$) 2θ antara 10-80°. Analisis gugus fungsi menggunakan *Fourier Transform Infra Red* (FT-IR) Shimadzu IR Prestige-21 metode KBr dengan batas panjang gelombang 400 - 4000 cm^{-1} , resolusi 2 cm^{-1} dan pembacaan sebanyak 45 kali. Analisis luas permukaan dan ukuran pori dengan *Surface Area Analyzer* (SAA) Quantachrome Nova Win 1200e dengan *degassing* selama 30 menit suhu 300 °C. Analisis morfologi kristal pada material menggunakan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) Phenom Pure dengan perbesaran sampai 24.000 kali. Analisis termal dengan *Thermal Gravimetric/Differential Thermal Analysis* (TG/DTA) Linseis PT-1600 dengan pemanasan dari suhu 27 °C hingga 600 °C dan laju pemanasan 20 °C min^{-1} .

PEMBAHASAN

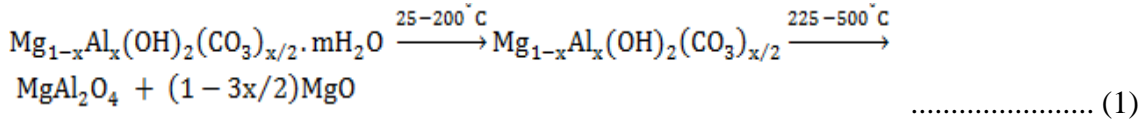
Kandungan fase *hydrotalcite* dari padatan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* dianalisis dengan membandingkan data difraktogram XRD dari sintesis Ca-Mg-Al *hydrotalcite* dengan data JCPDS Mg-Al *hydrotalcite* (#350964) dan Ca-Al *hydrotalcite* (#870493). Ciri utama dari Ca-Mg-Al *hydrotalcite* adalah adanya sudut difraksi pada 11,50°; 23,45° dan 34,57°, sedangkan sudut difraksi dari anion antar lapisan berupa CO₃²⁻ adalah 61,9° (Heraldly *et al.*, 2015). Pada Gambar 1 terlihat bahwa difraktogram Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menunjukkan puncak penciri *hydrotalcite* yang terletak pada sudut difraksi yang mendekati JCPDS Ca-Al *hydrotalcite* dan JCPDS Mg-Al *hydrotalcite* yaitu 11,72°; 23,57°; 34,82°, 39,62° dan 62,28°. Akan tetapi pada difraktogram Ca-Mg-Al *hydrotalcite*, selain terdapat puncak *hydrotalcite*, terdapat pula puncak dari fasa lain seperti Mg(OH)₂, Ca(OH)₂, Al(OH)₃ dan CaCO₃. Munculnya puncak-puncak baru pada Ca-Mg-Al *hydrotalcite* diduga akibat ukuran jari-jari ion Ca²⁺ yang sangat besar dibandingkan dengan ion Mg²⁺, sehingga beberapa ion Ca²⁺ sulit untuk menggantikan Mg²⁺ pada lapisan *hydrotalcite* (Zhang *et al.*, 2011). Selain itu, dapat dimungkinkan pada saat proses sintesis, logam kation Mg, Ca dan Al tidak bercampur secara sempurna, sehingga beberapa logam kation mengalami pengendapan dan membentuk fasa lain selain *hydrotalcite* seperti Mg(OH)₂, Ca(OH)₂, Al(OH)₃ dan CaCO₃ (Gao *et al.*, 2010).



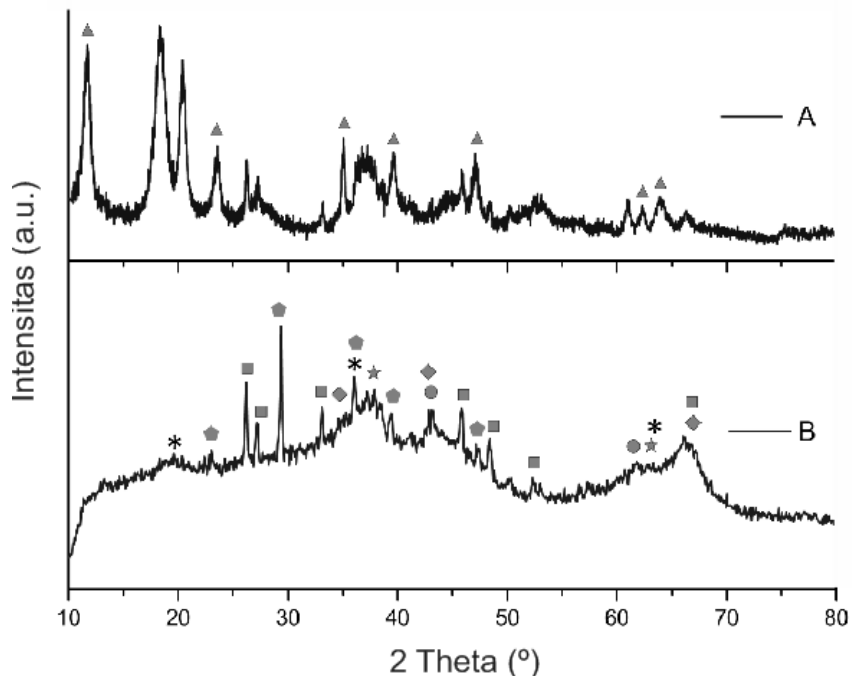
Gambar 1. Difraktogram (A) Ca-Mg-Al *hydrotalcite*, (B) standar JCPDS Mg-Al *hydrotalcite* (#350964) dan (C) standar JCPDS Ca-Al *hydrotalcite* (#870493).

Keterangan: ▲ = fasa *hydrotalcite*, ● = fasa Mg(OH)₂, ◆ = fasa Al(OH)₃, ■ = fasa CaCO₃.

Sementara pengaruh kalsinasi terhadap struktur Ca-Mg-Al *hydrotalcite* ditunjukkan oleh Difraktogram XRD seperti tertera pada Gambar 2. Menurut Kanezaki (1998a, 1998b, 1998c, 1998d), pengaruh kalsinasi terhadap struktur *hydrotalcite* adalah terbentuknya oksida seperti MgO, CaO, MgAl₂O₄ dan Al₂O₃ sesuai reaksi berikut :



Sementara Bera *et al.* (2000) menyebutkan bahwa ketika Mg-Al *hydrotalcite* dipanaskan hingga suhu 500 °C terbentuk MgAl₂O₄ dan MgO. Begitu pula Mokhtar *et al.* (2010) mengatakan bahwa saat pemanasan mencapai suhu 300 °C, mulai terbentuk oksida dan oksida seutuhnya diperoleh setelah mencapai suhu 500 °C.

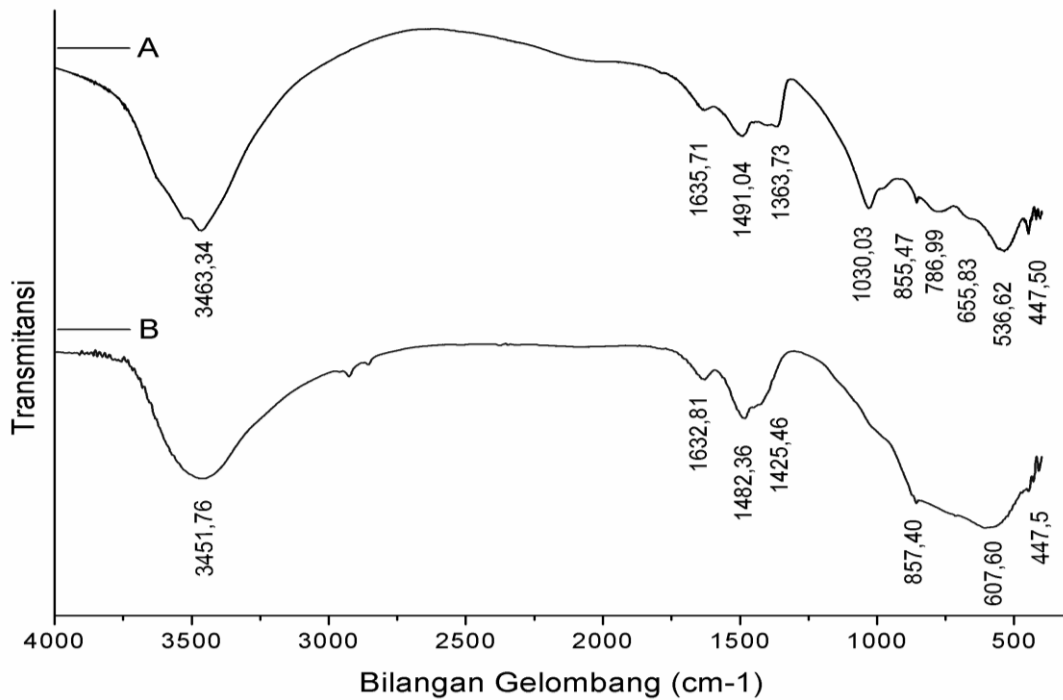


Gambar 2. Difraktogram Ca-Mg-Al *hydrotalcite* (A) sebelum dan (B) setelah dikalsinasi 450 °C.

Keterangan: ▲ = fasa *hydrotalcite*, ● = fasa MgO, ◆ = fasa Al₂O₃, ■ = fasa CaCO₃, * = fasa MgAl₂O₄, ⬠ = fasa MgOCaOCO₃, ★ = fasa CaO.

Gambar 2 menunjukkan adanya penurunan puncak-puncak dari penciri *hydrotalcite* pada Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang terletak pada sudut difraksi 11,72°; 23,57 °; 34,82°. Hal ini mengindikasikan bahwa Ca-Mg-Al *hydrotalcite* sudah bertransformasi menjadi oksida. Kondisi perubahan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menjadi oksidanya juga dibuktikan dengan adanya penguatan puncak pada sudut difraksi 37°; 43° dan 62° yang diduga merupakan puncak MgO (JCPDS #772364); puncak CaO (JCPDS #821691); puncak Al₂O₃ (JCPDS #461212) dan puncak MgAl₂O₄ (JCPDS #211152). Sementara pada sudut 29° dan 43°

diduga merupakan puncak dari CaCO_3 (JCPDS #760606). Akan tetapi, pada Gambar 2B masih muncul puncak khas penciri fasa *hydrotalcite* yang sangat rendah. Hal ini mengindikasikan bahwa tidak semua fasa *hydrotalcite* pada Ca-Mg-Al *hydrotalcite* telah berubah menjadi fase oksidannya. Puncak dari CaCO_3 yang masih tinggi pada difraktogram Ca-Mg-Al *hydrotalcite* sebelum dan setelah dikalsinasi 450°C karena CaCO_3 mulai terdekomposisi pada suhu 825°C (Patnaik, 2003).



Gambar 3. Spektra FTIR Ca-Mg-Al-*hydrotalcite* (A) sebelum dan (B) setelah dikalsinasi 450°C .

Analisis terhadap spektrogram FTIR seperti tertera dalam Gambar 3 dilakukan untuk mendukung adanya pengaruh kalsinasi terhadap perubahan fase *hydrotalcite* menjadi fase oksidannya pada Ca-Mg-Al *hydrotalcite*. Pada Gambar 3A (sebelum kalsinasi) menunjukkan bahwa serapan pada bilangan gelombang $3463,34\text{ cm}^{-1}$ diduga merupakan gugus fungsi dari hidroksi (-OH). Serapan tersebut menunjukkan vibrasi antara hidroksi yang berasal dari H_2O didalam *interlayer hydrotalcite*. Selain itu, pada bilangan gelombang $1635,71\text{ cm}^{-1}$ merupakan serapan dari tekukan -OH pada lapisan *hydrotalcite* serta serapan dari karbonil ikatan rangkap C=O pada anion karbonat (CO_3^{2-}). Menurut Brady (2011) serapan pada bilangan gelombang $3463,34\text{ cm}^{-1}$ dan $1612,56\text{ cm}^{-1}$ diduga sebagai penyerap air dalam material *interlayer* dan dapat bertindak sebagai jembatan yang menghubungkan anion karbonat (CO_3^{2-}) dengan lapisan logam hidroksi. Serapan pada bilangan gelombang $3463,34\text{ cm}^{-1}$ tidak hanya menunjukkan gugus hidroksi yang berasal dari H_2O , namun

diduga berasal dari M-OH pada lapisan *hydrotalcite* (M adalah logam Mg, Ca dan Al) (Kagunya *et al.*, 1998). Hal ini dibuktikan dengan adanya serapan yang muncul pada bilangan gelombang $447,50\text{ cm}^{-1}$, $536,62\text{ cm}^{-1}$ dan $786,99\text{ cm}^{-1}$ untuk serapan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang diduga merupakan vibrasi dari M-O dan M-OH (Plank *et al.*, 2006).

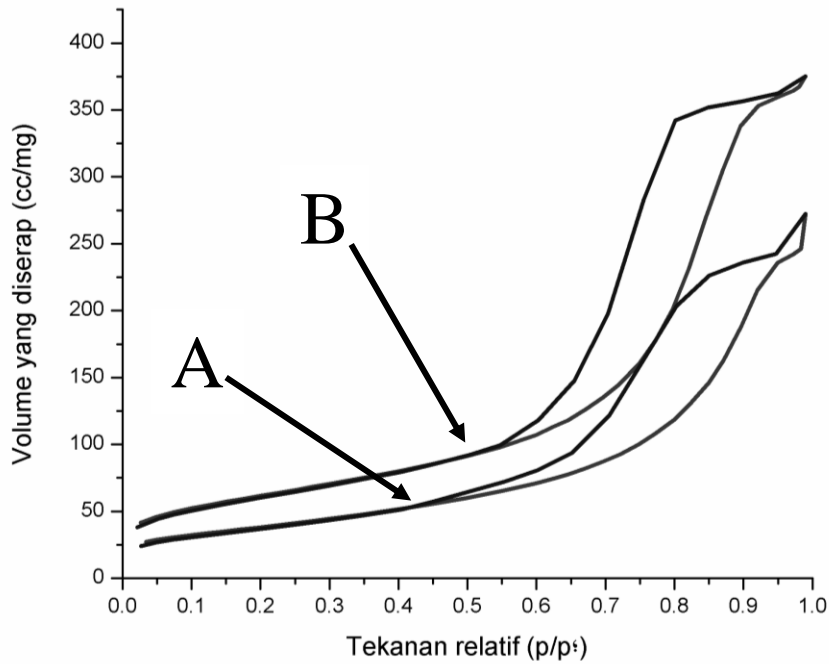
Pengaruh kalsinasi dengan suhu $450\text{ }^{\circ}\text{C}$ terhadap Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menyebabkan terbentuknya oksida logam dengan gugus fungsi M-O seperti MgO, CaO, Al_2O_3 , MgAl_2O_4 dan CaCO_3 . Pada Gambar 3B menunjukkan terjadi penurunan serapan pada daerah gugus fungsi karbonil (CO_3^{2-}). Hal ini terjadi karena pada saat kalsinasi gugus karbonil yang terdapat pada *interlayer* mengalami perubahan bentuk dari CO_3^{2-} menjadi CO_2 dalam bentuk gas (Kanezaki, 1998b) yang kemudian dilepaskan ke atmosfer sehingga struktur *hydrotalcite* menjadi runtuh akibat kehilangan anion penyeimbang (Mokhtar *et al.*, 2012). Serapan yang melebar pada bilangan gelombang $447,5 - 857,4\text{ cm}^{-1}$ menandakan ikatan yang terjadi pada gugus fungsi oksida menjadi sangat lemah (Silverstein *et al.*, 2005), karena pada saat pemanasan, lapisan *hydrotalcite* mengalami pemutusan ikatan antara satu lapisan dengan lapisan lainnya dan membentuk oksida.

Hasil perhitungan BET dari Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang dikalsinasi disajikan dalam Tabel 1, sedangkan profil *isotherm* adsorpsi-desorpsi seperti tampak dalam Gambar 4. Hasil analisis Gambar 4 menunjukkan bahwa profil *isotherm* adsorpsi-desorpsi adalah tipe IV menurut klasifikasi IUPAC (Lowell *et al.*, 2004), yaitu material yang memiliki ukuran mesopori. Selain itu, Ca-Mg-Al *hydrotalcite* memiliki kurva *hysteresis loop* dengan tipe H2, yang diinterpretasikan adanya pori yang berukuran sempit dan memiliki cabang secara acak atau memiliki bentuk pori yang asimetris (Sing, 1982).

Pada Gambar 4A terlihat mulai terbentuknya percabangan pada profil *isotherm* adsorpsi-desorpsi dimulai pada tekanan relatif sekitar 0,4; sedangkan pada Gambar 4B yang merupakan profil *isotherm* adsorpsi-desorpsi dari Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang terkalsinasi mulai terbentuk percabangan pada tekanan relatif sekitar 0,6. Hal ini dapat diindikasikan bahwa Ca-Mg-Al *hydrotalcite* memiliki struktur mesopori dengan ukuran yang lebih besar dibandingkan dengan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* terkalsinasi (Ocelli *et al.*, 2003). Begitu pula dengan volume yang diserap oleh Ca-Mg-Al-*hydrotalcite* terkalsinasi lebih besar dibandingkan dengan Ca-Mg-Al *hydrotalcite*. Hal ini menunjukkan bahwa luas permukaan Ca-Mg-Al *hydrotalcite* terkalsinasi lebih luas.

Profil morfologi Ca-Mg-Al *hydrotalcite* sebelum dan sesudah kalsinasi disajikan dalam Gambar 5. Pada Gambar 5A terlihat bahwa material Ca-Mg-Al *hydrotalcite* memiliki bentuk seperti bongkahan besar dan ukuran yang tidak teratur. Dengan adanya perlakuan

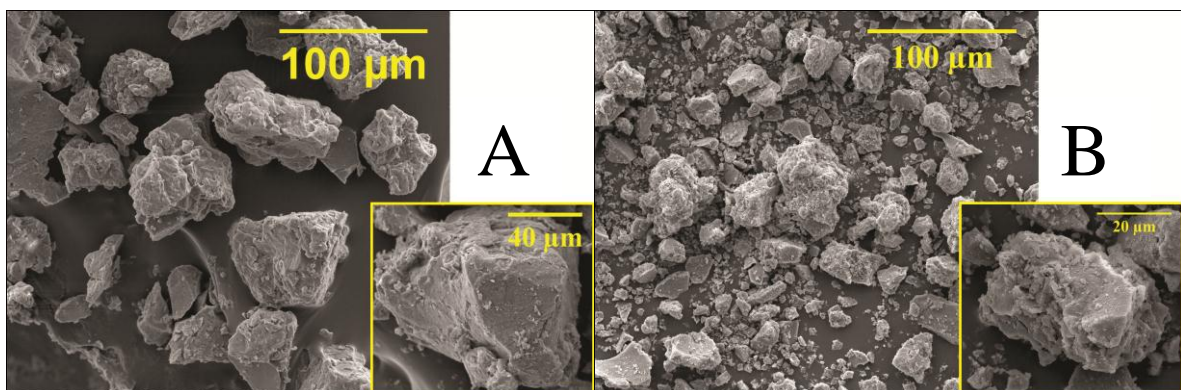
kalsinasi menyebabkan perubahan bentuk dan ukuran Ca-Mg-Al *hydrotalcite* dari bongkahan yang besar menjadi bongkahan yang kecil (Gambar 5B). Bentuk bongkahan yang besar pada Ca-Mg-Al *hydrotalcite* diduga karena anion penyeimbangnya masih mengikat lapisan satu dengan lapisan lainnya. Namun setelah Ca-Mg-Al *hydrotalcite* dikalsinasi, anion penyeimbang ini menjadi hilang dan struktur Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menjadi hancur.



Gambar 4. *Isotherm* adsorpsi-desorpsi Ca-Mg-Al-*hydrotalcite* (A) sebelum dan (B) setelah dikalsinasi 450 °C.

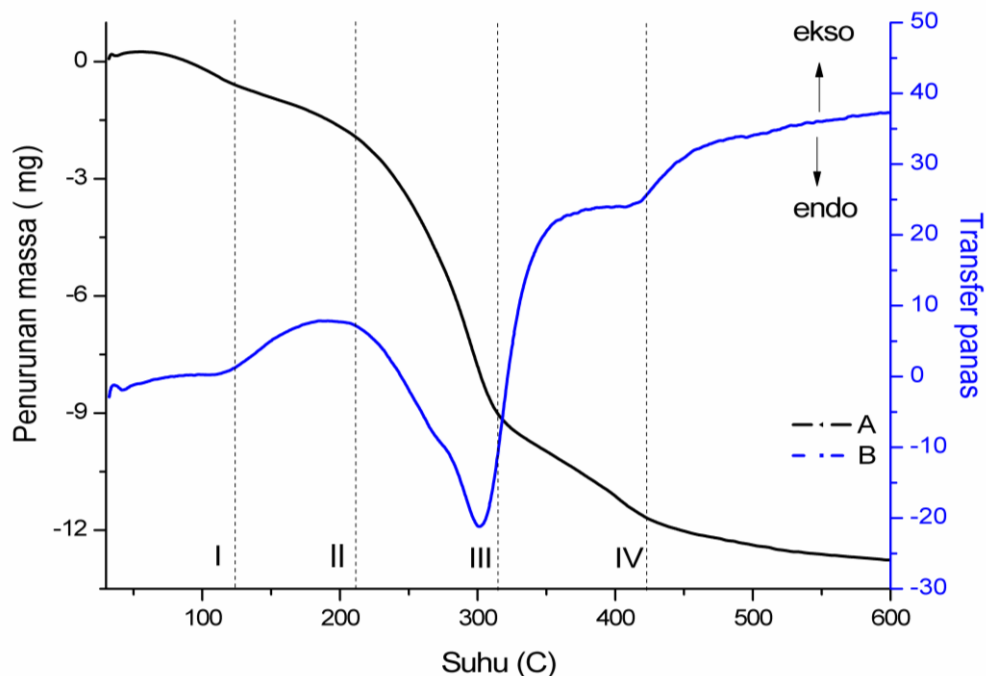
Tabel 1. Data perbandingan luas permukaan dan ukuran pori Ca-Mg-Al-*hydrotalcite* yang sebelum dan setelah kalsinasi 450 °C.

Parameter	Tanpa kalsinasi	Kalsinasi
Luas permukaan (m ² /g)	97,4	156,826
Ukuran Pori (nm)	6,122	5,33



Gambar 5. Morfologi Ca-Mg-Al *hydrotalcite* (A) sebelum dan (B) setelah dikalsinasi 450 °C.

Perlakuan analisis termal terhadap Ca-Mg-Al *hydrotalcite* dimaksud untuk mendeteksi perubahan massa Ca-Mg-Al *hydrotalcite* akibat panas yang diberikan pada material *hydrotalcite* yang berjalan secara eksotermik dan endotermik. Pada Gambar 6 tampak bahwa perubahan termal terjadi dalam empat tahap. Tahap pertama pada suhu 30 - 130 °C, terjadi penurunan termal secara perlahan. Pada tahap ini, diduga terjadi dekomposisi air pada *interlayer* Ca-Mg-Al *hydrotalcite* (Kanezaki, 1998b, 1998c). Dalam dekomposisi pertama ini disertai dengan adanya puncak endotermik pada suhu 120 °C, mengindikasikan bahwa terjadi pelepasan air yang berasal dari air pada *interlayer* Ca-Mg-Al *hydrotalcite* (Mokhtar *et al.*, 2010). Penurunan massa yang kedua terjadi pada suhu 130 - 210 °C yang disertai adanya puncak eksotermik. Munculnya puncak eksotermik pada tahap ini menandakan bahwa senyawa air sudah terlepas seutuhnya dan struktur *hydrotalcite* mulai mengalami penataan ulang. Penurunan massa yang ketiga terjadi pada suhu 210 - 315 °C di mana terdapat puncak endotermik, yang diduga adanya pelepasan gugus hidroksil yang berikatan dengan kation Ca, Mg dan Al (Selvam *et al.*, 2014). Pada penurunan massa yang keempat, yaitu pada suhu 315 - 420 °C, muncul puncak eksotermik yang diduga gugus hidroksil mulai berikatan dengan kation Ca dan Mg. Selain itu ditemukan juga puncak endotermik, yang mengindikasikan telah terjadi pelepasan gugus hidroksil yang berikatan dengan kation Ca dan Mg (Kanezaki, 1998c).



Gambar 6. Termogram Ca-Mg-Al *hydrotalcite* (A) TGA dan (B) DTA.

KESIMPULAN

Pengaruh kalsinasi terhadap Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menyebabkan perubahan struktur *hydrotalcite* menjadi oksida seperti MgO, CaO, Al₂O₃ dan MgAl₂O₄. Adanya perubahan struktur Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menjadi oksida menyebabkan luas permukaannya meningkat dari 97,4 m²/g menjadi 156,8 m²/g. Hal ini juga dibuktikan dari morfologi Ca-Mg-Al *hydrotalcite* yang mengalami perubahan bentuk dari bongkahan besar menjadi kecil. Analisis termal menunjukkan adanya perubahan struktur Ca-Mg-Al *hydrotalcite* menjadi oksidanya dimulai pada suhu 210 °C dan mulai menjadi oksida seutuhnya pada suhu 420 °C.

DAFTAR PUSTAKA

- Bera, P., Rajamathi, M., and Hegde, M.S., 2000. Thermal Behaviour of Hydroxides, Hydroxysalts and Hydrotalcites. *Bulletin of Material Science* 23, 141–145.
- Brady, J.P., 2011. *An Examination of the Applicability of Hydrotalcite for Removing Oxalate Anions from Bayer Precess Solutions*. Queensland.
- Cavani, F., Trifirò, F., and Vaccari, A., 1991. Hydrotalcite-type Anionic Clays: Preparation, Properties and Applications. *Catalysis Today* 11, 173–301. doi:10.1016/0920-5861(91)80068-K
- Gao, L., Teng, G., Xiao, G., and Wei, R., 2010. Biodiesel from palm oil via loading KF/Ca-Al hydrotalcite catalyst. *Biomass & Bioenergy* 34, 1283–1288. doi:10.1016/j.biombioe.2010.03.023
- Heraldly, E., Nurcahyo, I.F., and Ainurofiq, A., 2012. Pembuatan Senyawa Hydrotalcite-Like dari Brine Water untuk Eksipien Industri Farmasi, in: *Prosiding InSINas 2012*. pp. 37–44.
- Heraldly, E., Santosa, S.J., Triyono, and Wijaya, K., 2015. Anionic and Cationic Dyes Removal from Aqueous Solutions by Adsorption onto Synthetic Mg/Al Hydrotalcite-like Compound. *Indonesian Journal of Chemistry* 15, 234–241.
- Heraldly, E., Suprihatin, R.W., and Pranoto, 2016. Intercalation of Diclofenac in Modified Zn / Al Hydrotalcite-like Preparation, in: *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*. Surakarta. doi:10.1088/1757-899X/107/1/012026
- Heraldly, E., Nugrahaningtyas, K.D., and Heriyanto, 2017a. X-ray Diffraction Analysis on Post Treatment of Ca-Mg-Al-Layered Double Hydroxide Slurry. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 176, 12020. doi:10.1088/1757-899X/176/1/012020
- Heraldly, E., Rahmawati, F., Heriyanto, and Putra, D.P., 2017b. Preparation of Struvite from Desalination Waste. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 5(2), 1666-1675. doi:10.1016/j.jece.2017.03.005
- Kagunya, W., Baddour-Hadjean, R., Kooli, F., and Jones, W., 1998. Vibrational Modes in Layered Double Hydroxides and Their Calcined Derivatives. *Chemical Physics* 236, 225–234. doi:10.1016/S0301-0104(98)00234-1

- Kanezaki, E., 1998a. Thermal Behavior of the Hydrotalcite-like Layered Structure of Mg and Al-layered Double Hydroxides with Interlayer Carbonate by Means of in Situ Powder HTXRD and DTA/TG. *Solid State Ionics* 106, 279–284. doi:10.1016/S0167-2738(97)00494-3
- Kanezaki, E., 1998b. A Thermally Induced Metastable Solid Phase of Mg a Al-layered Double Hydroxides by Means of in Situ High Temperature Powder X-ray Diffraction. *Journal of Materials Science Letters* 17, 371–374.
- Kanezaki, E., 1998c. Direct Observation of a Metastable Solid Phase of Mg / Al / CO₃ - Layered Double Hydroxide by Means of High Temperature in Situ Powder XRD and DTA / TG. *Inorganic Chemistry* 37, 2588–2590. doi:10.1021/IC971543L
- Kanezaki, E., 1998d. Effect of Atomic Ratio Mg/Al in Layers of Mg and Al Layered Double Hydroxide on Thermal Stability of Hydrotalcite-Like Layered Structure BY Means of In Situ High Temperature Powder X-Ray Diffraction. *Materials Research Bulletin* 33, 773–778. doi:10.1016/S0025-5408(98)00021-X
- Karina, W., Heraldly, E., Pramono, E., Heriyanto, and Astuti, S., 2016. The Influence of Ca-Mg-Al Hydrotalcite Synthesized from Brine Water on Thermal and Mechanical Properties of HTlc-EVA Composite, in: *AIP Conference Proceedings*. doi:10.1063/1.4941485
- Lowell, S., Shields, J.E., Thomas, M.A., and Thommes, M., 2004. *Characterization of Porous Solids and Powders: Surface Area, Pore Size and Density*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands.
- Misra, C. and Perrotta, A.J., 1992. Composition and Properties of Synthetic Hydrotalcites. *Clays and Clay Minerals* 40, 145–150. doi:10.1346/CCMN.1992.0400202
- Mokhtar, M., Inayat, A., O, J., and Schwieger, W., 2010. Thermal Decomposition, Gas Phase Hydration and Liquid Phase Reconstruction in the System Mg/Al Hydrotalcite/Mixed Oxide : A Comparative Study. *Applied Clay Science* 50, 176–181. doi:10.1016/j.clay.2010.07.019
- Mokhtar, M., Saleh, T.S., and Basahel, S.N., 2012. Mg – Al Hydrotalcites as Efficient Catalysts for aza-Michael Addition Reaction : A Green Protocol. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical* 353–354, 122–131. doi:10.1016/j.molcata.2011.11.015
- Occelli, M.L., Olivier, J.P., Auroux, A., Kalwei, M., and Eckert, H., 2003. Basicity and Porosity of a Calcined Hydrotalcite-Type Material from Nitrogen Porosimetry and Adsorption Microcalorimetry Methods. *Chemical Materials* 15, 4231–4238. doi:10.1021/cm030105b
- Patnaik, P., 2003. *Handbook of Inorganic Chemicals*. McGraw-Hill. McGraw-Hill Companies, Inc., New York.
- Plank, J., Dai, Z., and Andres, P.R., 2006. Preparation and Characterization of New Ca-Al-Polycarboxylate Layered Double Hydroxides. *Materials Letters* 60, 3614–3617. doi:10.1016/j.matlet.2006.03.070
- Radha, A. V., Kamath, P.V., and Shivakumara, C., 2005. Mechanism of the Anion Exchange Reactions of the Layered Double Hydroxides (LDHs) of Ca and Mg with Al. *Solid State Sciences* 7, 1180–1187. doi:10.1016/j.solidstatesciences.2005.05.004
- Selvam, T., Inayat, A., and Schwieger, W., 2014. Reactivity and Applications of Layered Silicates and Layered Double Hydroxides. *Dalton Transactions* 43, 10365–10387.

doi:10.1039/c4dt00573b

- Silverstein, M.R., Webster, F.X., and Kiemle, D.J., 2005. *Spectrometric Identification of Organic Compounds, Seventh. ed, Organic Chemistry*. John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Sing, K.S.W., 1982. Reporting Physisorption Data for Gas/Solid Systems with Special Reference to the Determination of Surface Area and Porosity (Provisional). P *Pure and Applied Chemistry* 54, 2201–2218. doi:10.1351/pac198254112201
- SNI 06-6989.55-2005, 2005. *Air dan air limbah – Bagian 55 : Cara Uji Kadar Magnesium (Mg) dengan Spektrofotometer Serapan Atom (SSA)*. Tangerang.
- SNI 06-6989.56-2005, 2005. *Air dan air limbah – Bagian 56 : Cara uji kadar kalsium (Ca) dengan Spektrofotometer Serapan Atom (SSA)*. Tangerang.
- Thao, N.T. and Trung, H.H., 2014. Selective Oxidation of Styrene Over Mg – Co – Al Hydrotalcite like-Catalysts using Air as Oxidant. *Catalysis Communications* 45, 153–157. doi:10.1016/j.catcom.2013.11.004
- Zhang, M.L., Gao, Y., and Li, L.F., 2011. Hydrothermal Synthesis and Characterization of Ca-Mg-Al Hydrotalcite-Like Compounds. *Advanced Materials Research* 287–290, 569–572. doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.287-290.569