



## Preparasi Nanopartikel Mg/Al Hidrotalsit-Magnetit secara Kopresipitasi serta Aplikasinya sebagai Adsorben Ion Cr(VI)

Isponi Umayah<sup>✉</sup>, Triastuti Sulistyarningsih, dan Ella Kusumastuti

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Semarang  
Gedung D6 Kampus Sekaran Gunungpati Telp. (024)8508112 Semarang 50229

### Info Artikel

Diterima Mei 2018

Disetujui Juni 2018

Dipublikasikan Agustus  
2018

#### Keywords:

adsorbent  
chromium  
hydrotalcite  
magnetite  
nanoparticle

### Abstrak

Pembuangan limbah ion logam industri yang tidak diolah dengan cara yang benar telah mengakibatkan pencemaran lingkungan perairan. Pengolahan limbah logam berat dapat dilakukan dengan metode adsorpsi. Telah dilakukan penelitian yang bertujuan untuk mensintesis nanopartikel Mg/Al hidrotalsit-magnetit dengan metode kopresipitasi dan mengaplikasikannya sebagai adsorben ion logam Cr(VI), mengetahui kondisi pH optimum adsorpsi. Tahap awal yaitu sintesis nanopartikel Mg/Al hidrotalsit-magnetit secara kopresipitasi, diikuti karakterisasi dengan FT-IR dan XRD. Tahap akhir yaitu proses adsorpsi. Analisis kandungan ion Cr(VI) yang teradsorpsi dilakukan dengan metode AAS. Nanopartikel Mg/Al hidrotalsit-magnetit berhasil disintesis dengan metode kopresipitasi, dengan ukuran kristal rata-rata 18,98 nm. Kondisi optimum adsorpsi tercapai pada pH 4 dengan kapasitas adsorpsi sebesar 40,72 mg/g.

### Abstract

The disposal of industrial wastewaters that is not processed in the right way has resulted a pollution in waters. Adsorption is one method that can be used to remove heavy metals from waters. This study aim to synthesize nanoparticle Mg/Al-HT-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> using co-precipitation method and apply it to be an adsorbent of Cr(VI) ions. Various factors influencing the adsorption of Cr(VI) ex. pH. Sample of Mg/Al-HT-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> were characterized by FT-IR and XRD. Process of adsorption use batch method. Amount of Cr(VI) that nanoparticle. The average crystal size of Mg/Al-HT-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> was 18.98 nm. An optimum pH require for adsorption Cr(VI) ions by Mg/Al-HT-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> is 4 with  $q_e = 40.72$  mg/g.

© 2018 Universitas Negeri Semarang

✉Alamat korespondensi:  
Gedung D6 Lantai 2 Kampus Sekaran, Gunungpati, Semarang 50229  
E-mail: [isponiumayah@gmail.com](mailto:isponiumayah@gmail.com)

## Pendahuluan

Berkembangnya perindustrian di Indonesia memberikan dampak negatif terhadap lingkungan. Salah satu dampaknya yaitu menurunnya kualitas lingkungan perairan yang disebabkan oleh penanganan limbah yang tidak tepat terutama pencemaran logam berat, seperti Cr(VI). Kromium memiliki kadar maksimum 0,05 ppm dalam lingkungan (Zhang *et al.*, 2015).

Kromium (Cr) merupakan salah satu jenis logam berat yang dapat mencemari lingkungan. Krom memiliki 3 valensi, yakni 2, 3, dan 6, tapi yang paling stabil adalah trivalen (Cr(III)) dan heksavalen (Cr(VI)). Ion Cr(VI) mendapat perhatian lebih karena sifatnya lebih beracun. Ion Cr(VI) biasanya berasal dari industri pelapisan logam, industri cat/pigmen dan industri penyamakan kulit. Ion Cr(VI) bersifat labil, beracun, dan karsinogenik untuk makhluk hidup (Palar, 1994). Ion Cr(VI) lebih mudah diserap oleh tubuh dibandingkan dengan Ion Cr(III).

Adsorpsi merupakan salah satu metode yang paling populer dan efektif untuk menanggulangi pencemaran logam berat, karena proses adsorpsi menawarkan fleksibilitas dalam desain dan operasinya (Pang *et al.*, 2011).

Hidrotalsit (HT) merupakan suatu lempung anionik yang dapat terbentuk secara alami, namun dapat disintesis dengan mudah menggunakan metode ko-presipitasi (Sulistyaningsih *et al.*, 2013). Struktur HT dapat diturunkan dari *brucite* ( $\text{Mg}(\text{OH})_2$ ), formula umum HT sebagai lempung anionik adalah  $[\text{M}_{1-x}^{2+} \text{M}_x^{3+} (\text{OH})_2]^{b-} [\text{A}^{n-}]^{b/n} \cdot m\text{H}_2\text{O}$ , dimana  $\text{M}_{1-x}^{2+}$  adalah kation logam divalen (bervalensi dua) dan  $\text{M}_x^{3+}$  adalah kation logam trivalen (bervalensi tiga), serta  $\text{A}^{n-}$  adalah anion, dan  $m$  menunjukkan kandungan air dalam daerah *interlayer* (Ardhayanti dan Santosa, 2016).

Menurut Heraldly (2011), lempung anionik seperti HT yang mempunyai muatan negatif pada lapisan antar lapisannya efektif digunakan sebagai adsorben untuk senyawa yang bermuatan negatif (anionik). Material hidrotalsit memiliki kelemahan sebagai adsorben yaitu sulit untuk dipisahkan dari larutan. Untuk memaksimalkan material hidrotalsit sebagai adsorben, maka beberapa peneliti melakukan modifikasi material hidrotalsit dengan magnetit yang memiliki sifat dapat menarik (Zhang *et al.*, 2015). Diharapkan dengan menggabungkan magnetit dan hidrotalsit akan mempermudah dalam pemisahan material dari larutan menggunakan medan magnet eksternal, lebih jauhnya meningkatkan kemampuan adsorpsi terhadap anion maupun senyawa parsial negatif yang lebih besar dibandingkan hidrotalsit maupun magnetit secara terpisah (Sulistyaningsih *et al.*, 2013).

Aplikasi HT-M sebagai material adsorben sangat terbatas. Beberapa penelitian yang mengaplikasikan material HT-M sebagai adsorben adalah Yan *et al.* (2015) menggunakan HT-M sebagai adsorben fosfat, Ardhayanti dan Santosa (2016) menggunakan HT-M sebagai adsorben *Navy blue* dan *Yellow F3G Dyes*, Sulistyaningsih *et al.* (2016) menggunakan HT-M sebagai adsorben  $[\text{AuCl}_4]^-$ , dan Shan *et al.* (2015) menggunakan HT-M sebagai adsorben ion Cd(II). Penelitian ini difokuskan untuk mensintesis HT-M dengan metode kopresipitasi dan mengaplikasikan untuk adsorben ion Cr(VI).

## Metode

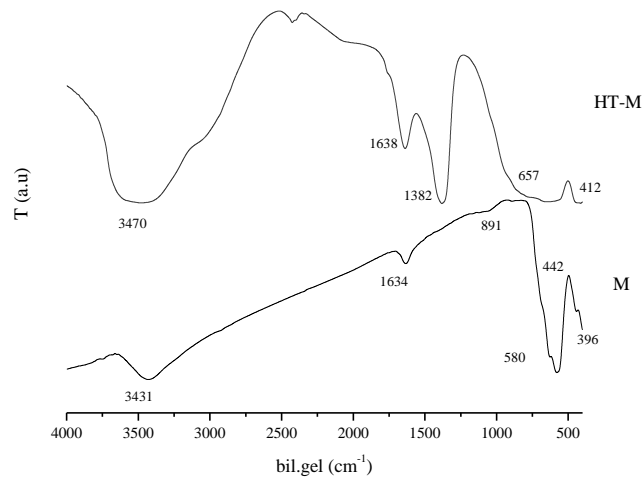
Alat yang digunakan pada penelitian ini adalah *hotplate*, *shaker*, oven, neraca analitik, pH meter, termometer, *vacuum Buchner*, magnet eksternal, FT-IR *PerkinElmer Frontier*, XRD *Shimadzu 6000*, dan Spektrofotometer serapan atom *PerkinElmer Analyst 400*. Bahan yang diperlukan dalam penelitian ini adalah  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ ,  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , NaOH,  $\text{HNO}_3$  dengan *grade pro analys* buatan *Merck* dan kertas *whattman-42*.

Sintesis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (Magnetit) dilakukan dengan menimbang  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  (6,9505 g) dan (10,14 g)  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dilarutkan dalam 25 mL aquades. Campuran dititrasi dengan  $\text{NH}_3$  (3,5 M) pada suhu  $55^\circ\text{C}$ , titrasi dihentikan pada pH 11. Campuran disaring dengan *vacuum* kemudian endapan dicuci sampai pH netral dan dikeringkan dalam oven suhu  $65^\circ\text{C}$  selama 6 jam.

Sintesis Mg/Al Hidrotalsit-Magnetit (HT-M) dilakukan dengan menimbang  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (0,65 g) didispersikan dalam 50 mL aquades.  $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  (12,8205 g) dan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  (9,521 g) dengan rasio molar 2:1, dilarutkan dalam 100 mL aquades. Campuran dititrasi dengan NaOH (1,65 M) pada suhu  $55^\circ\text{C}$  sampai pH 12. Campuran didiamkan 12 jam pada suhu  $65^\circ\text{C}$  kemudian dihidrotermal pada suhu  $120^\circ\text{C}$  selama 5 jam. Campuran disaring dengan *vacuum* dan residunya dicuci sampai pH netral kemudian dikeringkan dalam oven suhu  $80^\circ\text{C}$ . HT-M hasil sintesis dikarakterisasi dengan FT-IR untuk menganalisis gugus fungsi dan XRD untuk analisa fasa dan ukuran kristal.

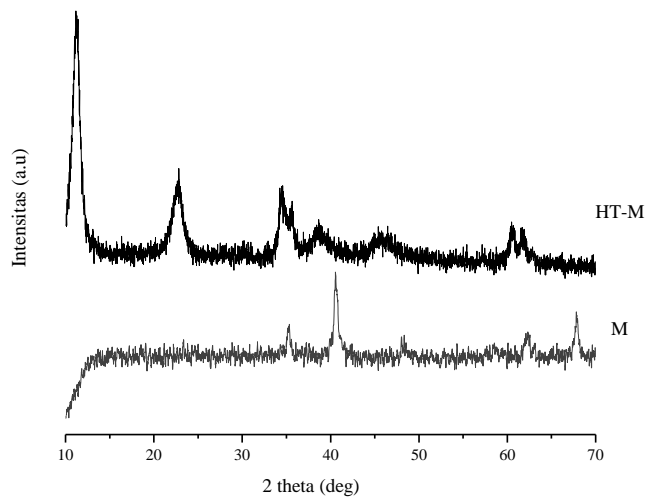
Adsorpsi Ion Cr(VI) dengan HT-M dilakukan untuk mengetahui kondisi pH optimum. Variasi pH dilakukan dengan menginteraksikan larutan Cr 50 ppm pada pH 3,4,5,6, dan 7. Kemudian ditambahkan 10 mg adsorben HT-M dan diputar selama 60 menit pada 200 rpm. Setelah itu larutan disaring dan diukur absorbansi filtratnya menggunakan AAS.

## Hasil dan Pembahasan



**Gambar 1.** Spektra FT-IR magnetit dan HT-M hasil sintesis

Spektra FT-IR dari magnetit dan HT-M dapat dilihat pada Gambar 1. Spektra pada  $3469,87\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur gugus hidroksil dari ikatan logam-hidroksil (Mg-OH, Al-OH, dan Fe-OH), spektra pada  $1638,03\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi tekuk hidrogen molekul  $\text{H}_2\text{O}$  daerah antar lapis. Kemudian spektra pada  $1382,07\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur ikatan  $-\text{NO}$  dari ion nitrat pada daerah antar lapis. Spektra  $412,46\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi tekuk Fe-O magnetit. Munculnya spektra  $580,51\text{ cm}^{-1}$  yang merupakan vibrasi tekuk Fe-O pada magnetit, menyebabkan bergesernya serapan milik vibrasi tekuk ikatan Al-O dan Mg-O pada  $657,17$  dan  $412,46\text{ cm}^{-1}$ .



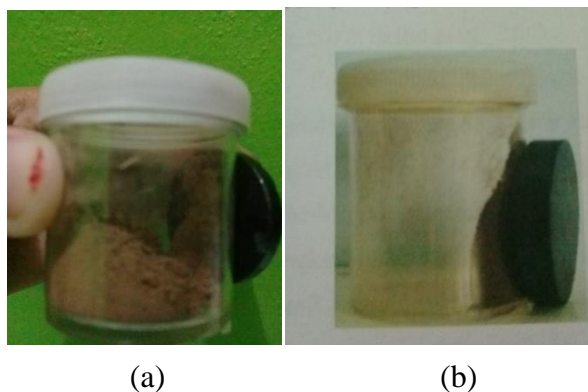
**Gambar 2.** Difraktogram XRD magnetit dan HT-M hasil sintesis

Difraktogram XRD dari magnetit dan HT-M dapat dilihat pada Gambar 2. Difraktogram magnetit hasil sintesis muncul pada  $2\theta : 30,27; 35,55; 43,29; 57,26; \text{ dan } 62,88^\circ$  yang menunjukkan kristal magnetit berbentuk kubik. Berdasarkan grafik difraktogram dapat dihitung ukuran material magnetit hasil sintesis dengan menggunakan persamaan *Debye-Scherrer* diperoleh bahwa magnetit hasil sintesis memiliki ukuran kristal nano yaitu  $25,2514\text{ nm}$ .

Difraktogram HT-M hasil sintesis muncul pada  $2\theta : 10,16; 11,30; 22,82; 34,41; 35,64; 60,56; \text{ dan } 61,93^\circ$ . Berdasarkan data difraktogram pada  $2\theta 10,16^\circ$  diketahui harga *d-spacing* HT-M hasil sintesis sebesar  $8,71\text{ \AA}$ . Berdasarkan grafik difraktogram dapat dihitung ukuran material HT-M hasil sintesis

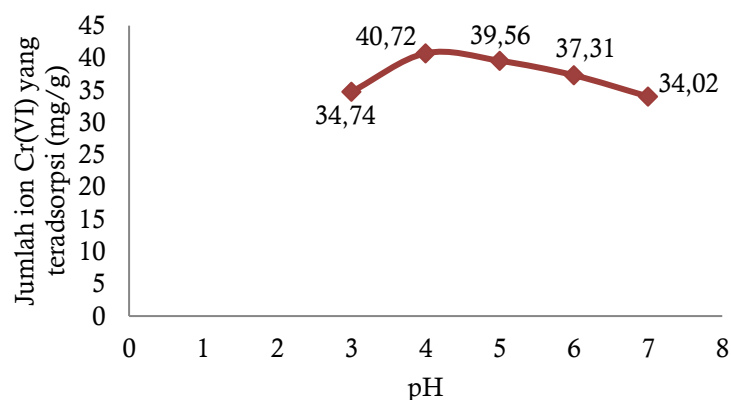
dengan menggunakan persamaan *Debye-Scherrer* diperoleh bahwa HT-M hasil sintesis memiliki ukuran kristal nano yaitu 18,9822 nm.

Selain karakterisasi menggunakan instrumen, untuk mengetahui keberhasilan sintesis HT-M dapat dilakukan dengan magnet eksternal seperti pada Gambar 3.



**Gambar 3.** HT-M dapat ditarik magnet (a) Hasil sintesis penelitian ini (b) Hasil sintesis Ardhayanti dan Santosa (2016)

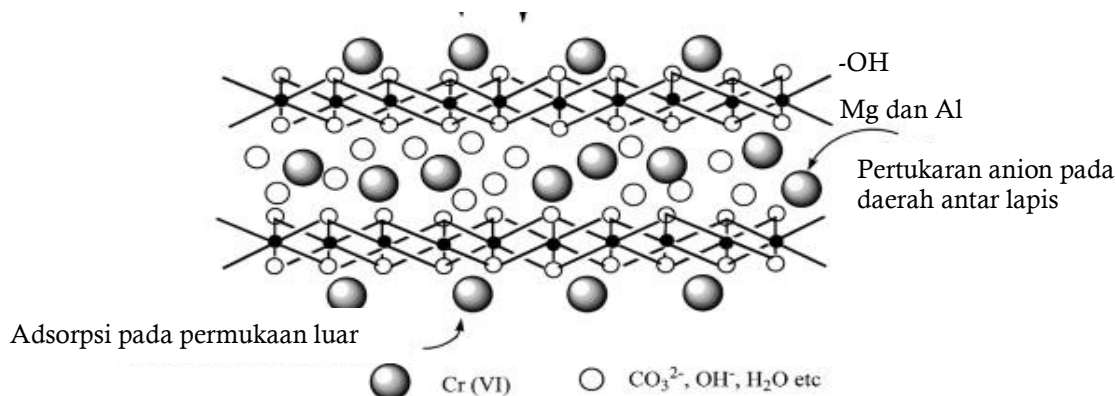
Keasaman medium sangat mempengaruhi proses adsorpsi oleh adsorben HT-M karena keberadaan gugus fungsi -OH pada permukaan adsorben yang berasal dari ikatan logam-hidroksil (Al-OH, Mg-OH, dan Fe-OH) pada lapisan HT-M. Gugus fungsi -OH dapat berubah berdasarkan kondisi pH tertentu yaitu pada kondisi asam akan terprotonasi menjadi  $-OH_2^+$  sedangkan pada kondisi basa akan terdeprotonasi menjadi  $-O^-$ . Pada penelitian ini digunakan variasi pH 3, 4, 5, 6, dan 7. Tidak dilakukannya interaksi pada  $pH < 3$  karena pada kondisi yang terlalu asam akan berdampak pada semakin besarnya HT yang terlarut. HT pada kondisi asam akan melarut karena melarutnya kation logam (Mg dan Al) sebagai akibat gugus hidroksil yang terprotonasi. Tidak dilakukan proses adsorpsi pada  $pH > 8$  karena pada pH 8 ion Cr(VI) akan mengendap dengan penambahan basa, sehingga berkurangnya ion Cr(VI) yang teradsorpsi oleh adsorben HT-M. Grafik pengaruh pH terhadap adsorpsi ion Cr(VI) menggunakan HT-M disajikan dalam Gambar 4.



**Gambar 4.** Pengaruh pH terhadap proses adsorpsi ion Cr(VI) menggunakan adsorben HT-M

Berdasarkan hasil penelitian, diperoleh kondisi optimum adsorpsi menggunakan HT-M untuk ion Cr(VI) adalah pada pH 4, sedangkan pada kondisi yang lebih tinggi terjadi penurunan kapasitas adsorpsi. Hasil yang sama juga diperoleh Chaidir *et al.* (2015) melaporkan Penyerapan ion logam Cr(III) dan Cr(VI) dalam larutan dengan menggunakan kulit buah jengkol (*Pithecellobium jiringa* (JACK) PRAIN.) optimum pada pH 4 untuk ion Cr(VI). Berdasarkan hasil tersebut, spesies Cr(VI) yang teradsorpsi dalam bentuk  $HCrO_4^-$  karena pH optimum yang diperoleh pada pH 4, sedangkan pada kondisi lebih (pH 5-6) spesies Cr(VI) yang dominan adalah  $CrO_4^{2-}$  dan  $Cr_2O_7^{2-}$  (Parlayici *et al.*, 2015).

Berdasarkan hasil penelitian, diperoleh kondisi optimum adsorpsi menggunakan HT-M untuk ion Cr(VI) adalah pada pH 4, sedangkan pada kondisi yang lebih tinggi terjadi penurunan kapasitas adsorpsi. Semakin tinggi pH konsentrasi ion OH<sup>-</sup> dalam larutan meningkat sehingga permukaan adsorben perlahan menjadi bermuatan negatif. Hal ini menyebabkan kekuatan untuk mengikat ion Cr(VI) semakin kecil sehingga mengurangi kemampuan adsorpsi. Interaksi elektrostatis antara ion Cr(VI) dengan adsorben HT-M pada Gambar 5.



**Gambar 5.** Interaksi elektrostatis antara adsorbat (ion Cr(VI)) dengan adsorben HT (Xiao *et al.*, 2013)

Menurut mekanisme adsorpsi antara ion Cr(VI) oleh adsorben HT-M dapat dimungkinkan terjadi 2 mekanisme adsorpsi: (a) adsorpsi pada permukaan luar adsorben HT-M yang merupakan interaksi elektrostatis antara OH<sub>2</sub><sup>+</sup> (yang merupakan gugus terprotonasi OH<sup>-</sup>) pada permukaan adsorben dengan HCrO<sub>4</sub><sup>-</sup> dari adsorbat. (b) Pertukaran anion pada daerah antar lapis adsorben HT-M, dimana terjadi pertukaran anion antara ion NO<sub>3</sub><sup>-</sup> dari adsorben HT-M dengan anion HCrO<sub>4</sub><sup>-</sup> dari adsorbat. Mekanisme adsorpsi ion Cr(VI) oleh adsorben HT-M diperkirakan tidak hanya terjadi pada permukaan luar adsorben HT-M, tetapi juga terjadi pertukaran anion pada daerah antar lapis.

### Simpulan

Material HT-M berhasil disintesis dengan metode kopresipitasi dengan ukuran rata-rata kristal 18,98 nm dan diaplikasikan sebagai adsorben ion Cr(VI) dengan hasil pH optimum yaitu pH 4 dengan kapasitas adsorpsi sebesar 40,27 mg/g.

### Daftar Pustaka

- Ardhayanti, L.I., dan Santoso, S.J. 2016. Synthesis of Magnetite-Mg/Al Hydrotalcite and Its Application as Adsorbent for Navy Blue and Yellow F3G Dyes. *4th Internasional Conference on Process Engineering and Advanced Materials*, 148: 1380-1387
- Chaidir, Z., Hasanah, Q., dan Zein, R. 2015. Penyerapan Ion Logam Cr(III) dan Cr(VI) dalam Larutan Menggunakan Kulit Buah Jengkol (*Pithecellobium jiringa* (JACK) PRAIN.). *Jurnal Riset Kimia*, 8(2): 189-199
- Heraldry, E., Triyono, S.J. Santosa, K. Wijaya. 2011. Synthesis of Mg/Al Hydrotalcite-Like from Brine Water and Its Application for Methyl Orange Removal a Preliminary Study. *Makara Sains*, 15(1): 9-15
- Palar, H. 1994. *Pencemaran dan Toksikologi Logam Berat*. Jakarta: Rineka Cipta
- Pang, Y., G. Zeng, L. Tang, Y. Zhang, Y. Liu, X. Lei, Z. Li, dan G. Xie. 2011. PEI-Grafted Magnetic Porous Powder for Highly Effective Adsorption of Heavy Metals Ions. *Desalination*, 281(1): 278-284
- Parlayici, S., V. Eskizeybek, A. Avci, dan Pehlivan, E. 2015. Removal of Chromium (VI) using Activated Carbon-Supported-Functionalized Carbon Nanotubes. *Journal Nanostructure Chemistry*, 5: 255-263
- Shan, Ran-ran, L. Yan, K. Yang, Y. Hao, B. Du. 2015. Adsorption of Cd(II) by Mg-Al-CO<sub>3</sub> and Magnetic Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Mg-Al-CO<sub>3</sub>-Layered Double Hydroxides: Kinetic, Isothermal, Thermodynamic and Mechanistic Studies. *Journal of Hazardous Materials*, 229: 42-49
- Sulisyaningsih, T., S.J. Sntoso, D. Siswanta., dan B. Rusdiarso. 2016. Adsorption of [AuCl<sub>4</sub>]<sup>-</sup> on Ultrasonically and Mechanical-Stirring Asisted Mg/Al-NO<sub>3</sub> Hydrotalcite-Magnetite. *Indonesian Journal of Chemistry*, 16(3): 268-276

- Sulistyaningsih, T., S.V.S. Dame, S.J. Santoso, D. Siswanta, dan B. Rusdiarso. 2013. Synthesis and Characterization of Magnetic MgAl-NO<sub>3</sub>-HT Composite via the Chemical Co-precipitation Method. *4th International Proceeding Conference on Biology, Environment and Chemistry IPCBEE*, Vol. 58
- Xiao, L., Wei, M., Mei, H., and Zihong, C. 2011. The Influence of Ferric Iron in Calcined Nano-Mg/Al Hydrotalcite on Adsorption of Cr(VI) from Aqueous Solution. *Journal of Hazardous Material*, 186: 690-698.
- Yan, L., K. Yang, R. Shan, T. Yan, J. Wei, S. Yu, dan B. Du. 2015. Kinetic, Isoterm, and Thermodynamic Investigation of Phosphate Adsorption onto Core-Shell Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@LDHs Composites with Easy Magnetic Separation Assistance. *Journal of Colloid and Interface Science*, 448: 508-516
- Zhang, H., F. Huang, D.L. Liu, P. Shi. 2015. Highly Efficient Removal of Cr(VI) from Wastewater via Adsorption with Novel Magnetic Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@C@MgAl-Layered Double-Hydroxide. *Chinese Chemical Letters*, 26(1): 1137-1143