

## INTERCALATION OF CLAY BY SURFACTANT AND ITS APPLICATION AS ADSORBENT OF LEAD ION ( $Pb^{2+}$ )

### Interkalasi Surfaktan terhadap Lempung dan Pemanfaatannya sebagai Adsorben Ion $Pb^{2+}$

Serly. J. Sekewael<sup>1</sup>, Helna. Tehubijuluw<sup>1</sup>, Isabella Carolina Lefmanut<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Chemistry Department, Faculty of Mathematics and Natural Sciences  
Pattimura University, Kampus Poka, Jl. Ir. M. Putuhena, Ambon 97134

Received: June 2015 Published: July 2015

#### ABSTRACT

Research on natural clay intercalation with a surfactant has been done. The surfactant used is a quaternary ammonium salt type is cetyl trimethyl ammonium bromide (CTAB). Intercalation process is carried out by stirring a suspension of clay and quaternary ammonium salt for 24 hours. After the intercalation process, palmitic acid are added, then the intercalated clay is used as an adsorbent ion  $Pb^{2+}$  distance between layers of clay after intercalated can be analyzed using X-ray diffraction. The distance between the layers increases from 15.99 to 19.45Å. Intercalated surfactant used to adsorb metals  $Pb^{2+}$  ions in solution with a variety of conditions such as contact time and concentration. The results of the analysis indicated using AAS then used to determine the adsorption capacity based on the optimum contact time optimum concentration and absorption. Adsorption capacity is equal to 8.092 mg/g.

**Keywords:** adsorption, CTAB, intercalation, clay, surfactan.

#### PENDAHULUAN

Salah satu daerah di Indonesia yang memiliki potensi lempung cukup besar adalah di Maluku. Di Pulau Ambon, banyak terdapat di Desa Latuhalat dan Desa Tawiri yang sering dimanfaatkan untuk pembuatan batu bata. Selain itu juga tersebar di Desa Ouw (Pulau Saparua) yang sering dimanfaatkan oleh masyarakat untuk kerajinan keramik (pembuatan sempe).

Tanah lempung ditinjau dari komposisi penyusunnya adalah tanah dengan kandungan liat 7-12%, debu 28-50% dan pasir kurang dari 52%. Lempung adalah material yang diameter butirannya < 0.002 mm (Hanafiah, 2007).

Dalam bidang industri, mineral lempung digunakan sebagai bahan pembantu katalis, adsorben dan sebagai resin untuk pertukaran ion. Butiran lempung, merupakan kumpulan butiran mineral yang bersifat mikroskopis dan berbentuk serpihan atau pelat-pelat. Mineral ini bersifat plastis, kohesif dan mempunyai kemampuan menyerap ion-ion.

Sifat-sifat tersebut sangat dipengaruhi oleh kandungan air dalam tanah. Gukler menyatakan bahwa mineral lempung adalah batuan halus dari karang yang menjadi plastis bila lembab, keras seperti karang bila kering, dan jika dipanaskan keras seperti karang permanen (Gondok, 2000). Mineral lempung dalam keadaan awalnya, memiliki daya serap yang rendah. Tetapi bila dimodifikasi akan meningkatkan luas permukaan lempung, sehingga lebih efektif sebagai bahan penyerap (adsorben).

Mineral lempung di alam memiliki kelemahan yaitu rusaknya struktur lapis dan hilangnya porositas karena pemanasan pada suhu tinggi. Hal ini dapat diatasi dengan melakukan proses penyisipan ion atau molekul ke dalam *interlayer* yang dikenal dengan proses interkalasi. Berbagai macam kation dapat digunakan sebagai agen, antara lain ion-ion alkil ammonium, kation amina bisiklis, dan beberapa kation kompleks seperti khelat serta kation hidroksi logam polinuklir dari Al, Zr, Ti, Fe, dan lain-lain. Lempung terinterkalasi memiliki beberapa kelebihan, antara lain stabilitas termal

yang lebih tinggi, volume pori dan luas permukaan yang lebih besar (Sunarso, 2007).

Salah satu metode modifikasi lempung secara kimia yaitu interkalasi surfaktan ionik ke dalam rongga antarlapis lempung. Penambahan surfaktan bertujuan untuk membuka rongga pada antarlapis lempung sehingga mudah untuk diinterkalasi lebih lanjut dengan kation logam. Dengan adanya surfaktan diharapkan akan mampu meningkatkan porositas serta luas permukaan dibandingkan dengan lempung tanpa surfaktan (Sunarso, 2007).

Surfaktan kationik seperti garam amonium kuarterner merupakan senyawa organik yang dapat digunakan dalam modifikasi lempung yang akan membentuk kompleks lempung-surfaktan yang dapat digunakan sebagai adsorben logam berat dalam larutan encer. Senyawa kationik ini akan menggantikan kation-kation permukaan lempung dan mengubah permukaan lempung menjadi sangat hidrofobik. Modifikasi permukaan lempung lebih lanjut digunakan untuk menjangkar ligan-ligan seperti asam palmitat melalui interaksi hidrofobik. Asam palmitat atau ligan tersebut akan membentuk senyawa kompleks dengan ion  $Pb^{2+}$  yang teradsorpsi (Widihati, 2009).

Adanya sifat unggul dari lempung terinterkalasi menjadikan material tersebut potensial untuk digunakan sebagai adsorben. Beberapa senyawa lempung termodifikasi montmorilonit terpillar besi-oksida, montmorilonit terinterkalasi tetraetil ortosilikat, lempung terinterkalasi surfaktan, serta lempung termodifikasi lainnya telah dibuat untuk mengadsorpsi logam-logam berat melalui proses pertukaran kation. Modifikasi lempung dengan senyawa-senyawa organik menghasilkan kompleks yang dapat digunakan sebagai adsorben, salah satunya sebagai adsorben ion  $Pb^{2+}$ .

Timbal (Pb) merupakan salah satu logam berat yang berbahaya bagi kesehatan manusia. Logam ini perlu mendapat perhatian khusus karena sifatnya yang toksik (beracun) terhadap manusia. Timbal banyak digunakan dalam kehidupan sehari-hari. Timbal digunakan dalam bensin untuk menaikkan bilangan oktan. Selain itu juga timbal digunakan dalam cat, baterai, pembungkus kabel, pipa air, serta lapisan mangkuk atau panci. Sehingga kontaminasi

timbal dapat terjadi melalui konsumsi makanan, minuman, udara, air, serta debu yang tercemar Pb. Keracunan yang disebabkan oleh logam Pb dalam tubuh dapat mempengaruhi organ-organ tubuh antara lain sistem saraf, ginjal, sistem reproduksi, dan jantung. Logam Pb dapat menyebabkan gangguan pada otak, sehingga anak mengalami gangguan kecerdasan dan mental.

Untuk mengoptimalkan fungsi lempung sebagai adsorben, maka dilakukan penelitian untuk menginterkalasi lempung menggunakan surfaktan. Lempung yang digunakan berasal dari Desa Ouw (Pulau Saparua). Menurut penelitian Bijang (2009) lempung asal Desa Ouw mengandung mineral montmorilonit sehingga baik untuk diinterkalasi dan selanjutnya diaplikasikan untuk proses adsorpsi logam.

## METODOLOGI

### Bahan

Bahan-bahan yang digunakan adalah Lempung asal Desa Ouw, Kabupaten Maluku Tengah; Asam palmitat; Garam amonium kuartener jenis N-cetyl trimetil ammonium bromida ( $(C_{16}H_{33})N(CH_3)_3Br$ ); Akuabides; Akuades; Kertas saring Whatman 42; Larutan  $Pb(NO_3)_2$ .

### Alat

Alat-alat yang digunakan adalah Spektrofotometer Serapan Atom (SSA); X-ray difractometer (XRD); Ayakan 100 mesh; Batang pengaduk; Lumpang dan alu; *Shaker*; Oven; Penyaring Buchner; Pompa vakum; Timbangan analitik; Seperangkat alat gelas;

### Prosedur Kerja

#### Persiapan lempung

Lempung diambil, dicuci dengan air beberapa kali, kemudian disaring hingga didapatkan lempung yang benar-benar bebas dari pengotor seperti pasir, kerikil dan akar tanaman. Setelah pencucian, lempung dikeringkan selama 2 jam dalam oven dengan suhu  $120\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Sampel yang sudah kering digerus dan diayak dengan ukuran 100 mesh. Kemudian dianalisis dengan XRD.

### Proses interkalasi

Lempung sebanyak 10 g dilarutkan ke dalam 1000 mL akuabides, diaduk selama 5 jam untuk membuat suspensi lempung. Setelah 5 jam suspensi lempung dimasukkan garam amonium kuartener jenis N-cetyl trimetil amonium bromida sebanyak 4,0049 g dan diaduk selama 24 jam. Selanjutnya asam palmitat sebanyak 4,0062 g dimasukkan ke dalam suspensi tersebut, diaduk selama 48 jam. Kemudian campuran disaring dengan penyaring Buchner, dicuci dengan akuades dan dikeringkan dalam oven pada suhu 120 °C. Setelah kering lempung termodifikasi tersebut digerus dan diayak dengan ukuran 100 mesh kemudian dianalisis dengan XRD.

### Pembuatan larutan standar Pb

Larutan  $Pb(NO_3)_2$  dengan konsentrasi 40 ppm, 60 ppm, 80 ppm, 100 ppm, dan 120 ppm dibuat dengan mengambil masing-masing 4, 6, 8, 10, dan 12 mL larutan  $Pb(NO_3)_2$  1000 ppm dan diencerkan dengan akuades pada labu takar 100 mL.

### Penentuan waktu optimum

Ke dalam 5 buah erlenmeyer 100 ml masing-masing dimasukkan 0,25 g lempung yang terinterkalasi. Kemudian ke dalam masing-masing erlenmeyer tersebut ditambahkan adsorbat 25 mL  $Pb(NO_3)_2$  80 ppm. Campuran diaduk dengan waktu yang berbeda-beda yaitu selama 10, 20, 40, 80, dan 120 menit. Selanjutnya disaring dan filtratnya diukur dengan SSA. Absorbansi yang terbaca kemudian dimasukkan ke dalam persamaan regresi untuk menghitung konsentrasi  $Pb(II)$  dalam filtrat. Untuk mengetahui waktu optimum dibuat grafik antara banyaknya  $Pb(II)$  yang teradsorpsi per gram adsorben dan waktu yang diberikan. Waktu optimum ditentukan dari grafik di mana waktu memberikan konsentrasi  $Pb(II)$  tertinggi yang teradsorpsi.

### Penentuan konsentrasi optimum serapan

Lempung terinterkalasi sebanyak 0,25 g dimasukkan ke dalam 25 mL larutan  $Pb(II)$  dengan konsentrasi awal larutan masing-masing 40 ppm, 60 ppm, 80 ppm, 100 ppm, dan 120 ppm. Kemudian dikocok dengan *shaker* pada kecepatan 200 rpm. Perlakuan ini dilakukan pada

waktu kontak optimum selanjutnya disaring dan filtratnya diukur dengan SSA. Konsentrasi  $Pb(II)$  optimum yang diserap diperoleh dengan cara membuat kurva antara jumlah  $Pb(II)$  yang teradsorpsi oleh adsorben (mg/g) dan konsentrasi ion  $Pb(II)$  dalam larutan.

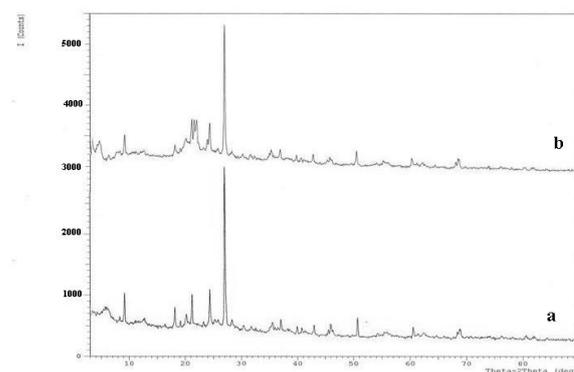
### Penentuan kapasitas adsorpsi

Lempung terinterkalasi sebanyak 0,25 g dimasukkan ke dalam erlenmeyer 100 mL. Kemudian ditambahkan 25 mL larutan  $Pb(II)$  dengan konsentrasi optimum yang didapat dan diaduk selama waktu optimum adsorpsi. Selanjutnya disaring dan filtratnya diukur dengan SSA.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Pengayakan lempung dengan ukuran 100 mesh dibutuhkan untuk selanjutnya dianalisis dengan XRD. Analisis dengan XRD dilakukan terhadap lempung sebelum diinterkalasi dan sesudah diinterkalasi surfaktan (Gambar 1).

Proses interkalasi dilakukan dengan menambahkan surfaktan kationik ke dalam suspensi lempung.



Gambar 1. (a) Difraktogram lempung alam sebelum diinterkalasi surfaktan. (b) Difraktogram lempung alam setelah diinterkalasi surfaktan

Dalam penelitian ini, surfaktan yang digunakan adalah jenis garam ammonium kuartener *Cetyl Trimethyl Ammonium Bromide* (CTAB). Campuran diaduk selama 24 jam.

Selanjutnya, lempung terinterkalasi tersebut ditambahkan asam palmitat dan diaduk selama 48 jam. Asam palmitat masuk melalui interaksi

hidrofobik dan berperan sebagai ligan yang akan membentuk kompleks dengan ion Pb (II) yang diadsorpsi melalui ikatan koordinasi.

Perubahan jarak dasar antar lapis dari mineral-mineral yang terkandung dalam lempung alam disajikan dalam Tabel 1 berikut ini. Berdasarkan Tabel 1 dapat dilihat bahwa yang mengalami peningkatan jarak dasar hanya kaolinit dan montmorilonit. Peningkatan yang cukup besar terjadi pada montmorilonit yaitu sebesar 3,46 Å. Hal ini disebabkan oleh kemampuan *swelling* pada saat interkalasi. Lapisan-lapisan silikat pada montmorilonit dapat terbuka semakin lebar ketika kation-kation yang Peningkatan jarak dasar dan luas permukaan ini

sangat berpengaruh terhadap peningkatan daya adsorpsi lempung alam.

#### Waktu Optimum Adsorpsi

Waktu optimum adsorpsi dapat ditentukan berdasarkan konsentrasi sisa adsorbat di dalam larutan dengan menggunakan metode SSA. Dari konsentrasi sisa (konsentrasi pada kesetimbangan,  $C_e$ ) kemudian dihitung konsentrasi adsorpsinya ( $C_{ads}$ ) Hasil analisisnya disajikan dalam Tabel 2.

Salah satu variabel yang penting dalam adsorpsi adalah waktu kontak. Variasi waktu kontak dilakukan untuk menentukan waktu kontak optimum di mana diperoleh kesetimbangan antara adsorben dengan adsorbat

Tabel 1. Data pergeseran jarak dasar  $d_{001}$  pada mineral lempung

Mineral yang terkandung dalam lempung alam	Nilai 2θ spesifik	Jarak dasar $d_{001}$ ( Å )	
		Sebelum diinterkalasi	Setelah diinterkalasi
Kuarsa	26,73 <sup>0</sup>	3,33	3,32
	20,94 <sup>0</sup>	4,24	4,15
Kaolinit	20,94 <sup>0</sup>	3,69	4,23
Ilit	8,96 <sup>0</sup>	9,86	9,79
Gibsit	17,87 <sup>0</sup>	4,96	4,93
Montmorilonit	5,52 <sup>0</sup>	15,99	19,45

Tabel 2. Data adsorpsi ion Pb<sup>2+</sup> dengan variasi waktu kontak oleh lempung terinterkalasi surfaktan dengan menggunakan metode SSA

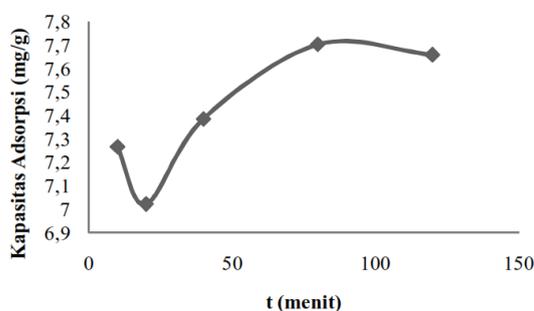
t (menit)	$C_e$ (ppm)	$C_{ads}$ (ppm)	Kapasitas Adsorpsi (mg/g)
10	7,353	72,647	7,265
20	9,787	70,213	7,021
40	6,159	73,841	7,384
80	2,978	77,022	7,702
120	3,424	76,576	7,658

ada tertukar oleh spesies pemilar yang ukurannya lebih besar. Hal ini menunjukkan bahwa garam ammonium kuarterner sebagai interkalat telah masuk dan mengisi rongga antar lapis lempung sehingga memperbesar luas permukaannya.

di mana lempung terinterkalasi bersifat jenuh terhadap ion Pb(II). Pengaruh waktu kontak terhadap adsorpsi dapat dilihat pada Gambar 2.

Dari Tabel 2 dan Gambar 2 menunjukkan pada waktu kontak 20 menit terjadi penurunan kapasitas adsorpsi. Menurunnya kapasitas adsorpsi kemungkinan disebabkan lempung tidak

menjerap adsorbat dengan baik. Hal ini diperkirakan karena adanya kesalahan dalam penelitian yang disebabkan oleh beberapa faktor. Hasil analisis dengan SSA menunjukkan bahwa waktu optimum adsorpsi ada pada 80 menit waktu kontak, dengan ion Pb (II) teradsorpsi 77,022 ppm dengan kapasitas adsorpsi sebesar 7,702 mg/g. Sedangkan pada waktu kontak 120 menit, kapasitas adsorpsinya menurun menjadi 7,658 mg/g. Kondisi kesetimbangan diperkirakan tercapai setelah waktu kontak 40 menit, dan mencapai adsorpsi maksimalnya pada waktu kontak 80 menit. Setelah kondisi kesetimbangan, daya serapnya menurun, yang menunjukkan bahwa lempung telah jenuh terhadap ion  $Pb^{2+}$  sehingga meskipun waktu kontak ditambah, tidak meningkatkan jumlah ion  $Pb^{2+}$  yang teradsorpsi. Dapat disebabkan pula karena terjadinya desorpsi ion  $Pb^{2+}$  dari permukaan lempung.



Gambar 2. Kurva kapasitas adsorpsi vs t untuk penentuan waktu kontak optimum

### Konsentrasi Maksimum Serapan

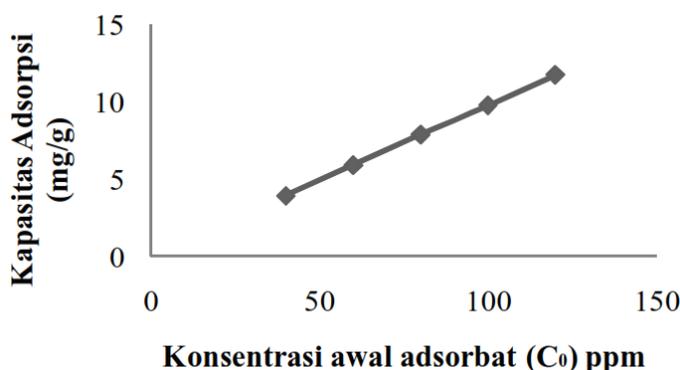
Variasi konsentrasi dilakukan untuk menentukan konsentrasi maksimum serapan selama waktu kontak optimum. Konsentrasi mula-mula Pb (II) yang digunakan adalah 40, 60, 80, 100, dan 120 ppm. Berikut ini adalah data hasil analisis dengan metode SSA yang ditunjukkan pada Tabel 3.

Dengan variasi konsentrasi dapat ditentukan konsentrasi maksimum serapan selama waktu kontak optimum yang diperoleh, yaitu 80 menit. Penjerapan meningkat pada setiap variasi konsentrasi dan peningkatan penjerapan mencapai nilai maksimum pada 120 ppm.

Hubungan konsentrasi awal adsorbat dengan kapasitas adsorpsi yang diperoleh ditunjukkan pada Gambar 3. Gambar 3 memperlihatkan bahwa konsentrasi maksimum serapan selama waktu optimum 80 menit adalah 120 ppm dengan kapasitas adsorpsi sebesar 11,737 mg/g. Konsentrasi serapan yang diperoleh belum mencapai titik optimum sehingga belum dapat diketahui kapasitas optimum lempung terinterkalasi surfaktan dalam menjerap ion  $Pb^{2+}$ . Kurva yang diperoleh belum menunjukkan titik kesetimbangan di mana lempung mencapai kejenuhan dalam menjerap yang ditandai dengan menurunnya kapasitas serapan. Tetapi kapasitas adsorpsi yang diperoleh cukup besar. Hal ini disebabkan luas permukaan lempung yg semakin besar akibat peningkatan jarak dasar antar lapis lempung setelah diinterkalasi dengan surfaktan.

Tabel 3. Data adsorpsi ion logam  $Pb^{2+}$  dengan variasi konsentrasi oleh lempung terinterkalasi surfaktan dengan menggunakan metode SSA

$C_0$ (ppm)	$C_c$ (ppm)	$C_{ads}$ (ppm)	Kapasitas adsorpsi (mg/g)
40	0,807	39,193	3,919
60	1,026	58,974	5,897
80	1,263	78,737	7,873
100	2,386	97,614	9,761
120	2,632	117,368	11,737



Gambar 3. Kurva kapasitas adsorpsi vs C<sub>0</sub> untuk penentuan konsentrasi maksimum serapan

Gambar 3 memperlihatkan bahwa konsentrasi maksimum serapan selama waktu optimum 80 menit adalah 120 ppm dengan kapasitas adsorpsi sebesar 11,737 mg/g. Konsentrasi serapan yang diperoleh belum mencapai titik optimum sehingga belum dapat diketahui kapasitas optimum lempung terinterkalasi surfaktan dalam menjerap ion Pb<sup>2+</sup>. Kurva yang diperoleh belum menunjukkan titik kesetimbangan di mana lempung mencapai kejenuhan dalam menjerap yang ditandai dengan menurunnya kapasitas serapan. Tetapi kapasitas adsorpsi yang diperoleh cukup besar. Hal ini disebabkan luas permukaan lempung yg semakin besar akibat peningkatan jarak dasar antar lapis lempung setelah diinterkalasi dengan surfaktan.

### Kapasitas Adsorpsi

Penentuan kapasitas adsorpsi dilakukan untuk mengetahui kemampuan lempung terinterkalasi surfaktan dalam mengadsorpsi ion logam Pb<sup>2+</sup>. Pada tahap ini proses adsorpsi dilakukan selama waktu optimum yaitu 80 menit dengan konsentrasi adsorbat 120 ppm dan konsentrasi sisa adsorpsi sebesar 39,079 ppm. Kapasitas adsorpsi diperoleh melalui Persamaan 1.

$$A = \frac{C_1 - C_2}{1000} \times V \times \frac{1}{B} \dots\dots\dots(\text{Pers. 1})$$

Keterangan:

A = Jumlah Pb (II) yang teradsorpsi oleh lempung (mg/g).

C<sub>1</sub> = Konsentrasi awal Pb(II) (ppm)

C<sub>2</sub> = Konsentrasi Pb(II) yang tersisa di dalam filtrat (ppm)

V = Volume yg digunakan (mL)

B = Berat lempung yang digunakan (g).

Dengan menggunakan Persamaan 1, diperoleh kapasitas adsorpsinya sebesar 8,092 mg/g. Kapasitas adsorpsi yang diperoleh setelah lempung diinterkalasi dengan surfaktan cukup baik. Hal ini dapat dibandingkan dengan hasil penelitian Widihati (2009) yang menunjukkan bahwa lempung tanpa interkalasi memiliki kapasitas adsorpsi yang lebih kecil dibandingkan dengan lempung terinterkalasi surfaktan, yaitu hanya 1,9565 mg/g. Peningkatan kapasitas adsorpsi disebabkan karena lempung terinterkalasi telah membentuk senyawa kompleks dengan garam ammonium kuartener yang menjadi interkalatnya yang kemudian menjangkar asam palmitat sebagai ligan-nya melalui interaksi hidrofob. Ligan-ligan tersebut kemudian akan mengikat ion Pb(II). Peningkatan kapasitas adsorpsi juga disebabkan karena meningkatnya jarak antar lapis lempung yang dengan sendirinya juga meningkatkan luas permukaan lempung (Widihati, 2009).

### KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian, maka dapat disimpulkan sebagai berikut:

1. Interkalasi garam ammonium kuartener ke dalam antar lapis lempung meningkatkan jarak dasar sebesar 3,46 Å.
2. Waktu kontak optimum adsorpsi ion Pb<sup>2+</sup> oleh lempung terinterkalasi surfaktan diperoleh selama waktu kontak 80 menit, konsentrasi maksimum serapan 120 ppm, dan kapasitas adsorpsi sebesar 8,092 mg/g.

**DAFTAR PUSTAKA**

- Bijang, C. M., 2009. Karakterisasi Lempung Asal Desa Ouw-Saparua Maluku. Seminar Nasional FMIPA UNPATTI, Ambon
- Gondok, Y., 2000, Penyerapan Kation Logam Berat Timbal, Nikel dan Kobalt dengan menggunakan Mineral Clay Abu-Abu dan Merah-Kuning, *Sainstek (III)*, 1-7.
- Hanafiah, K.A., 2007, *Dasar-dasar Ilmu Tanah*, Divisi Buku Perguruan Tinggi, PT. Raja Grafindo: Jakarta.
- Sunarso, 2007, *Lempung Kita yang Terlupakan*, <http://ppsdms.org/lempung-kita-yang-terlupakan-2.htm> (akses tanggal 18 November 2010).
- Widihati, I. A. G., 2009, Adsorpsi Ion Pb<sup>2+</sup> oleh Lempung Terinterkalasi Surfaktan, *Jurnal Kimia*, FMIPA, Universitas Udayana, Bukit Jimbaran.