

# PENGARUH JENIS SPESIES PILLARING AGENT LOGAM SI DALAM PROSES PILARISASI BENTONIT ALAM

Restu Kartiko Widi<sup>\*1</sup>, Emma Savitri<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Surabaya  
Gedung TG lantai 5, Jalan Raya Kalirungkut, Surabaya, 60292, Indonesia

\* corresponding author: restu@staff.ubaya.ac.id

**Abstract**— The pillarization process of natural bentonite from Pacitan, East Java has been carried out using the metal species Si in Na-silicate and TEOS. The pillarization process is carried out using direct pillarization and indirect pillarization methods. In this research, the number of moles of metal pillaring agent used was 5 mmol/gram bentonite. The pillarization process is carried out by mixing the natural bentonite suspension and pillaring agent at a temperature of 80°C and stirring for 5 hours using a hot plate stirrer. Pillars were formed in the calcination and oxidation stages at a temperature of 500°C using N<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> gas flows for 1 hour and 5 hours respectively. The resulting material was characterized using the FTIR spectroscopy method, X-ray diffraction and N<sub>2</sub> gas adsorption using the BET method. The characterization results show that TEOS species can form better and more homogeneous pore structures compared to silicate species. The direct pillarization method provides better and more homogeneous pillar heights compared to the indirect pillarization method. However, the pore size obtained is still on the micropore size scale observed using the N<sub>2</sub> gas adsorption method with the BET method.

**Keywords:** Pillarization, Si, TEOS, bentonite

**Abstrak**— Telah dilakukan proses pilarisasi bentonit alam asal Pacitan, Jawa Timur menggunakan spesies logam Si dalam Na-silikat dan TEOS. Proses pilarisasi yang dilakukan menggunakan metode pilarisasi langsung dan pilarisasi tidak langsung. Pada penelitian ini jumlah mol logam *pillaring agent* yang digunakan adalah 5 mmol/gram bentonit. Proses pilarisasi dilakukan dengan mencampurkan suspensi bentonit alam dan *pillaring agent* pada suhu 80°C dan diaduk selama 5 jam menggunakan *hot plate stirrer*. Pilar dibentuk pada tahap kalsinasi dan oksidasi pada suhu 500°C menggunakan aliran gas N<sub>2</sub> dan O<sub>2</sub> masing-masing selama 1 jam dan 5 jam. Material yang dihasilkan dikarakterisasi menggunakan metode spektroskopi FTIR, difraksi sinar-X dan adsorpsi gas N<sub>2</sub> dengan metode BET. Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa spesies TEOS dapat membentuk struktur pori lebih baik dan lebih homogen dibandingkan dengan spesies silikat. Metode pilarisasi langsung memberikan tinggi pilar lebih baik dan lebih homogen dibandingkan dengan metode pilarisasi tidak langsung. Namun demikian ukuran pori yang diperoleh masih dalam skala ukuran mikropori yang diamati menggunakan metode adsorpsi gas N<sub>2</sub> dengan metode BET.

**Kata kunci:** Pilarisasi, Si, TEOS, bentonit

## PENDAHULUAN

Lempung adalah material alam yang terdiri dari polimer silika-alumina yang memiliki struktur lapisan-lapisan. Lapisan-lapisan ini tersusun dari unit tetrahedral silikat (SiO<sub>4</sub>) di bagian luar dan unit octahedral AlO<sub>6</sub> di bagian dalam. Struktur polimer silika-alumina ini menghasilkan muatan permukaan negatif, yang memungkinkan lempung untuk menangkap kation serta molekul air melalui interaksi elektrostatik. Selain itu, lempung juga dapat mengadsorpsi molekul organik melalui mekanisme penjerapan dan interaksi van der Waals. Namun, salah satu sifat bawaan dari struktur lapisan pada lempung adalah kemampuannya untuk mengalami *swelling*, di mana lapisan-lapisan tersebut membesar atau menyusut tergantung pada ukuran dan jenis molekul yang masuk, terutama air. Molekul air ini mudah diserap ke dalam lapisan dan dilepaskan kembali saat lempung dikalsinasi, sehingga mempengaruhi selektivitas lempung terhadap molekul lain, yang menyebabkan selektivitas adsorpsinya relatif rendah (Baloyi et al., 2018a; Cardona et al., 2022; Fatimah et al., 2022; Freitas et al., 2022). Seiring dengan berkembangnya penelitian di bidang material, berbagai upaya telah dilakukan untuk meningkatkan kemampuan adsorpsi dan stabilitas lempung, termasuk dengan metode interkalasi molekul organik seperti kationik, anionik, dan non-ionik yang dapat meningkatkan jarak antar lapisan, menciptakan pori-pori berukuran meso (20-60

Å), sehingga memungkinkan lempung untuk lebih selektif terhadap molekul organik besar (Ajduković et al., 2022; Liang et al., 2016).

Salah satu metode modifikasi yang sangat efektif dalam meningkatkan sifat fisik dan kimia lempung adalah pilarisasi. Proses pilarisasi dilakukan dengan menambahkan ion logam atau senyawa tertentu ke dalam rongga di antara lapisan-lapisan lempung. Penambahan ion logam ini menghasilkan struktur pilar yang dapat mencegah kolapsnya lapisan ketika material tersebut dipanaskan, sehingga meningkatkan stabilitas termalnya. Selain itu, pilarisasi juga meningkatkan luas permukaan dan volume pori lempung, menjadikannya lebih efektif sebagai katalis atau adsorben. Dengan peningkatan porositas ini, lempung hasil pilarisasi memiliki kemampuan yang lebih baik untuk menangkap molekul organik besar dan kontaminan, menjadikannya cocok untuk berbagai aplikasi seperti katalisis reaksi kimia, adsorpsi polutan, dan pemisahan gas (Georgescu et al., 2018; Kumararaja et al., 2017). Di Indonesia, bentonit yang sebagian besar berupa Ca-montmorillonit secara alami memiliki sifat dasar adsorpsi yang relatif rendah, sehingga memerlukan modifikasi lebih lanjut untuk meningkatkan performanya. Potensi bentonit alam Indonesia yang belum dimanfaatkan secara optimal ini menjadi dasar bagi berbagai penelitian yang bertujuan untuk meningkatkan sifat dasar material tersebut, khususnya dalam hal distribusi ukuran pori dan kapasitas adsorpsi (Ilic et al., 2019; Widi et al., 2020).

Dalam penelitian yang dilakukan oleh Widi dan rekan-rekannya, modifikasi bentonit alam melalui proses pilarisasi menunjukkan peningkatan signifikan dalam kemampuan adsorpsi serta aktivitas fotokatalitik material tersebut dibandingkan dengan bentonit alami (*fresh bentonite*) (Widi et al., 2010, 2014, 2015). Hasil dari pilarisasi ini menunjukkan bahwa bentonit yang telah dimodifikasi memiliki stabilitas termal yang lebih baik dan peningkatan aktivitas katalitik dalam berbagai reaksi kimia, termasuk fotokatalisis untuk degradasi polutan organik. Studi ini juga menunjukkan bahwa pilarisasi mampu meningkatkan luas permukaan material secara signifikan, yang merupakan faktor kunci dalam meningkatkan efisiensi katalis dan adsorben. Namun, salah satu kelemahan dari lempung yang telah dimodifikasi dengan molekul organik atau logam adalah stabilitas termalnya yang masih relatif rendah, terutama pada suhu tinggi sekitar 400-500°C (Marković et al., 2019; Yu et al., 2008). Oleh karena itu, tantangan ke depan adalah mengembangkan metode modifikasi yang tidak hanya meningkatkan luas permukaan dan kemampuan adsorpsi, tetapi juga mempertahankan stabilitas struktural pada suhu yang lebih tinggi, sehingga lempung dapat digunakan dalam aplikasi yang lebih luas seperti industri kimia dan lingkungan. Penelitian-penelitian ini menunjukkan potensi besar dalam pemanfaatan bentonit alam Indonesia sebagai material multifungsi yang lebih efektif, baik sebagai adsorben maupun sebagai katalis untuk berbagai proses industri (Savitri et al., 2015; Widi et al., 2017).

Secara keseluruhan, kombinasi antara sifat alamiah lempung yang memiliki kapasitas adsorpsi dan *swelling*, serta proses pilarisasi yang meningkatkan porositas dan stabilitas termal, menjadikan bentonit hasil modifikasi ini sebagai material yang sangat potensial untuk berbagai aplikasi di bidang lingkungan dan industri. Selain itu, metode pilarisasi dengan ion logam atau molekul organik memberikan peluang untuk memperluas aplikasi material ini dalam pengolahan limbah, katalisis, dan pemisahan gas, dengan performa yang jauh lebih unggul dibandingkan lempung alami yang belum dimodifikasi. Penelitian lebih lanjut diperlukan untuk mengatasi tantangan-tantangan terkait stabilitas termal dan reaktivitas material ini dalam lingkungan suhu tinggi, sehingga aplikasinya dapat diperluas di masa mendatang (Widi et al., 2020).

Pada artikel ini akan dipaparkan modifikasi bentonit alam Pacitan melalui proses pilarisasi dengan logam Si dari spesies Na-silikat dan TEOS, baik menggunakan metode pilarisasi langsung dan metode tidak langsung. Metode pilarisasi langsung merupakan proses pilarisasi bentonit alam tanpa adanya proses interkalasi molekul organik atau surfaktan, sedangkan metode pilarisasi langsung akan digunakan molekul organik atau surfaktan sebagai agen penginterkalasi (*intercalating agent*) untuk membuka struktur *interlayer* lempung lebih besar. Karakterisasi yang digunakan adalah metode spektroskopi FTIR, Difraksi sinar-X dan

adsorpsi gas N<sub>2</sub> dengan BET, untuk menentukan perubahan struktur bentonit alam setelah proses pilarisasi. Proses pilarisasi bentonit dengan menggunakan logam Si (silikon) merupakan studi yang relatif baru dalam modifikasi lempung karena umumnya, logam seperti Al (aluminium), Ti (titanium), atau Zr (zirkonium) digunakan sebagai agen pilar. Penggunaan logam Si dalam pilarisasi memberikan potensi keunggulan tambahan dalam hal modifikasi sifat kimia bentonit, seperti peningkatan stabilitas termal dan porositas. Logam Si dapat memperkaya sifat hidrofilik dan reaktivitas permukaan, membuat material hasil pilarisasi ini lebih cocok untuk aplikasi yang lebih luas, termasuk katalisis dan adsorpsi. Beberapa studi terbaru telah mengeksplorasi pilarisasi dengan logam-logam lain, menunjukkan bahwa proses ini dapat menghasilkan bentonit yang lebih stabil, memiliki luas permukaan yang lebih besar, dan porositas yang lebih baik untuk aplikasi dalam reaksi katalitik atau sebagai adsorben. Salah satu contoh studi menunjukkan pilarisasi bentonit dengan menggunakan sonikasi, yang mempercepat proses dan meningkatkan keefektifan material untuk katalis solid acid dalam reaksi esterifikasi (Rinaldi et al., 2022). Studi lain juga menunjukkan potensi bentonit pilar dalam adsorpsi surfaktan anionik, di mana peningkatan struktur kristal terjadi setelah pilarisasi dengan natrium (Mohadi et al., 2023).

## METODE

### *Material*

Bahan Kimia yang dipergunakan dalam penelitian ini memiliki kadar kemurnian pro analisis (p.a.), seperti TEOS (*Tetra Ethyl Ortho Silicate, E. Merck*), HDTMA-Br (*Hexadecyltrimethylammonium bromide, Sigma-Aldrich*), Na-silikat (*E. Merck*). Bentonit yang dipergunakan adalah bentonit alam yang diperoleh dari Pacitan, Jawa Timur.

### *Pilarisasi bentonit*

Pilarisasi dilakukan menggunakan logam Si dengan spesies yang berbeda yaitu Na-silikat dan TEOS. Metode pilarisasi yang dilakukan menggunakan dua metode yaitu metode pilarisasi langsung, dimana bentonit alam langsung dipilar menggunakan sol logam Na-silikat dan TEOS. Kedua menggunakan metode pilarisasi tidak langsung, dimana sebelum dilakukan proses pilarisasi dengan sol *pilaring agent*, didahului dengan proses interkalasi menggunakan surfaktan terhadap bentonit alam. Jenis surfaktan yang digunakan adalah HDTMA-Br dengan konsentrasi 0,75% b/v. Kedua metode ini dikembangkan sendiri berdasar penelitian sebelumnya Widi, dkk (2010); Widi, dkk (2014); Widi, dkk (2017).

Pada metode pilarisasi langsung, *pillaring agent* dicampur dengan suspensi bentonit alam dengan rasio bentonit:akuades = 1 gram/50 ml, dengan jumlah mol *pillaring agent* 5 mmol. Campuran kemudian diaduk dan pada suhu 80°C selama 5 jam. Larutan yang dihasilkan didinginkan dan dibiarkan selama 24 jam. Padatan yang dihasilkan kemudian dicuci hingga pH filtrat netral dan dikeringkan dalam oven pada suhu 100°C selama 24 jam.

Pada metode pilarisasi tidak langsung dilakukan proses interkalasi bentonit alam dengan surfaktan HDTMA-Br 0,75% b/v. Dalam proses ini interkalasi dilakukan dengan mencampur larutan surfaktan dan suspensi bentonit, dimana rasio bentonit:volume larutan surfaktan = 1gr:50 ml. Campuran diaduk selama 5 jam, kemudian dicuci hingga bebas ion Br. Padatan hasil interkalasi ini kemudian dipilarisasi dengan *pilaring agent* spesies Si (Na-silikat dan TEOS) seperti pada metode pilarisasi langsung.

Padatan yang dihasilkan yang telah kering kemudian digerus dengan ukuran 140 mesh kemudian dikalsinasi pada suhu 500°C selama 1 jam dengan aliran gas N<sub>2</sub> dan selama 5 jam aliran gas O<sub>2</sub>. Laju alir masing-masing gas yang digunakan adalah 250 ml/menit. Padatan yang dihasilkan kemudian dikarakterisasi dengan metode spektroskopi FTIR, Difraksi sinar-X dan adsorpsi gas N<sub>2</sub> dengan BET.

Variabel-variabel yang dikaji dalam sintesis material fotokatalis ini adalah rasio mol Fe dan Ti yang digunakan pada saat proses pencampuran, yaitu rasio mol Ti : mol Fe yaitu 12,5:25 mmol; 25:25 mmol; 50:25 mmol; 75:25 mmol dan 100:25 mmol.

### *Karakterisasi bentonit terpillar*

Dalam penelitian ini untuk menentukan keberhasilan sintesis fotokatalis, maka padatan yang diperoleh dikarakterisasi menggunakan Spektroskopi Inframerah (FTIR), XRD difraktometer, dan adsorpsi gas nitrogen (dengan metode BET).

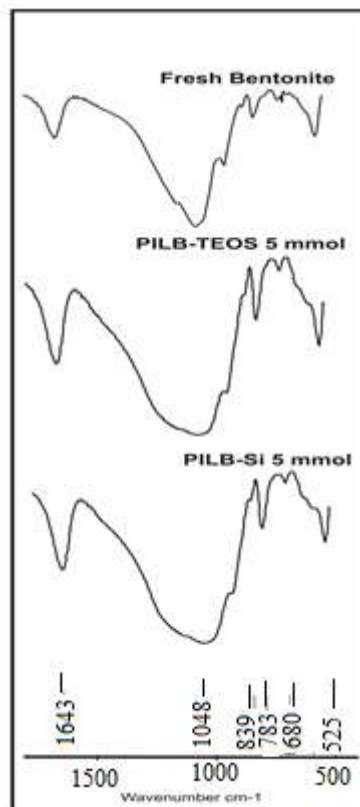
Spektroskopi Inframerah (FTIR) dilakukan menggunakan spektrometer FTIR Nicolet 710 dalam sel vakum. Pengukuran dilakukan dalam *self-supported wafer*  $10 \text{ mg cm}^{-2}$  yang dihilangkan gasnya dalam kondisi vakum ( $10^{-4}$  hingga  $10^{-5}$  Pa) pada suhu  $400^\circ\text{C}$ . Luas permukaan katalis padat dihitung menggunakan metode adsorpsi Brunauer-Emmett-Teller (BET) yang dilakukan menggunakan Instrumen Mikromeritik Tristar II 3020 melalui isotherm adsorpsi-desorpsi nitrogen yang bekerja pada  $77,3 \text{ K}$  pada nitrogen cair setelah *degassing* sampel pada  $473 \text{ K}$  selama 2 jam. Difraktometer Sinar-X Benchtop (XRD) bentonit terpillar dilakukan menggunakan difraktometer AERIS PANalytical, dengan radiasi  $\text{Cu K}\alpha$  pada  $40 \text{ kV}$  dan  $15 \text{ mA}$ , dan monokromator grafit sekunder untuk mendapatkan struktur oksida dan ukuran jarak basal.

### **HASIL**

Karakterisasi bentonit alam hasil pilarisasi menggunakan metode pilarisasi langsung dilakukan menggunakan Spektroskopi Inframerah (FTIR), XRD difraktometer dan adsorpsi gas nitrogen dengan metode BET.

### *Karakterisasi menggunakan FTIR*

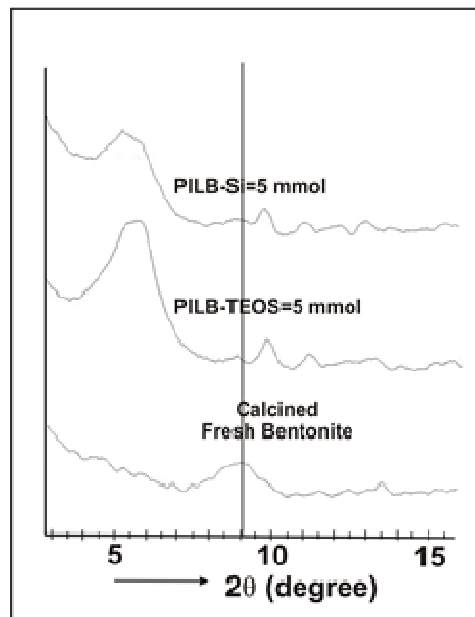
Untuk mendapatkan informasi berharga tentang struktur kimia dan gugus fungsi yang terdapat dalam material hasil sintesis digunakan spektroskopi FTIR. Hasil spektrogramnya ditunjukkan pada gambar 1.



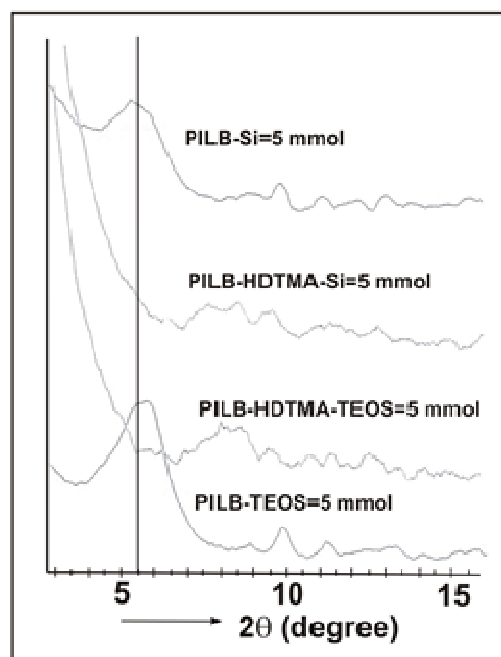
*Gambar 1.* Spektrogram FTIR bentonit terpillar Si menggunakan Na-silikat (PILB-Si) dan TEOS (PILB-TEOS)

*Karakterisasi menggunakan XRD difraktometer*

Untuk mendapatkan struktur oksida dan ukuran jarak basal dipergunakan XRD difraktometer. Hasil karakterisasi berupa difraktogram ditunjukkan pada gambar 2 dan gambar 3.



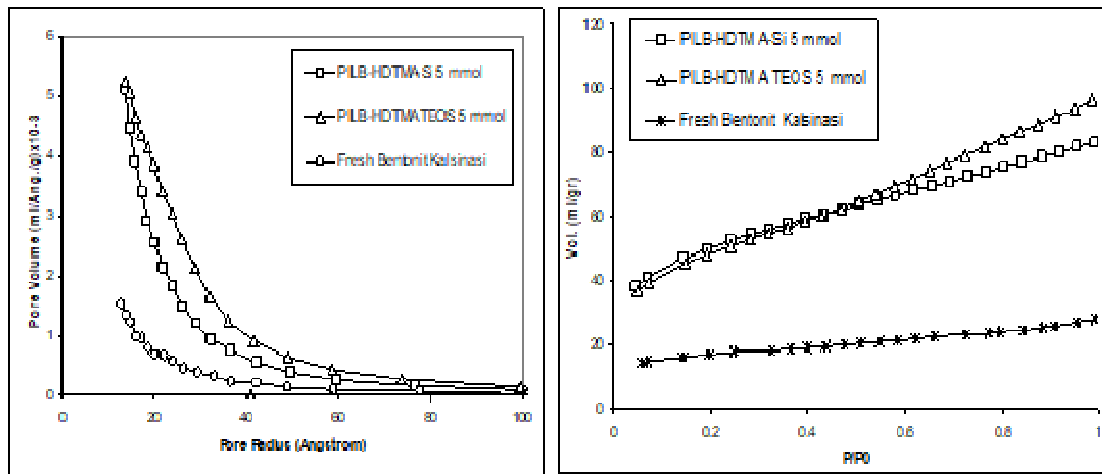
Gambar 2. Difraktogram XRD bentonit terpillar



Gambar 3. Difraktogram XRD bentonit terpillar secara langsung oleh Si (PILB-Si), TEOS (PILB-TEOS), dan secara tidak langsung (PILB-HDTMA-Si dan PILB-HDTMA-TEOS)

*Karakterisasi adsorpsi gas nitrogen menggunakan metode BET*

Untuk mendapatkan informasi luas permukaan katalis padat dihitung menggunakan metode adsorpsi Brunauer-Emmett-Teller (BET). Hasil karakterisasi ditunjukkan pada gambar 4.



Gambar 4. (A) Kurva distribusi ukuran pori, (B) Kurva adsorpsi gas  $N_2$  bentonit alam (*fresh bentonite*), bentonit terpillar Si secara tidak langsung (PILB-HDTMA-Si), bentonit terpillar TEOS secara tidak langsung (PILB-HDTMA-TEOS)

## BAHASAN

Keberhasilan proses pilarisasi bentonit menggunakan Si terkonfirmasi oleh spektrogram FTIR dengan pita absorpsi seperti diberikan pada Gambar 1. Dari gambar tersebut tampak adanya perubahan bentuk puncak serapan pada daerah  $900 - 1200 \text{ cm}^{-1}$ , hal ini menunjukkan adanya vibrasi stretching asimetri ikatan O-T-O dari unit-unit tetrahedral  $TO_4$  (T = Si dan Al).

Puncak serapan ini tampak semakin lebar dibandingkan *fresh bentonit*, hal ini mengindikasikan semakin banyak jumlah tetrahedral yang terbentuk sebagai unit-unit dari polimer silika-alumina. Fenomena ini berarti menunjukkan adanya pilar yang terbentuk dalam struktur *inter layer* bentonit alam tersebut setelah proses pilarisasi baik dengan Na-silikat maupun TEOS.

Puncak serapan pada daerah ini berkaitan dengan getaran dari ikatan silika (Si-O) dan alumina (Al-O) yang membentuk struktur tetrahedral. Ketika bentonit mengalami proses pilarisasi, terutama dengan agen pilar seperti Na-silikat atau tetraethyl orthosilicate (TEOS), terjadi peningkatan jumlah tetrahedral  $TO_4$  yang terbentuk sebagai bagian dari kerangka polimer silika-alumina. Hal ini menyebabkan puncak serapan tampak semakin lebar pada spektrum FTIR, yang mengindikasikan bahwa lebih banyak unit tetrahedral terbentuk dibandingkan dengan bentonit segar (*fresh bentonite*). Proses pilarisasi mengarah pada pembentukan struktur pilar yang terbentuk di antara lapisan-lapisan bentonit, meningkatkan stabilitas strukturalnya serta memperluas jarak antar lapisan, yang pada akhirnya meningkatkan area permukaan dan porositas material. Pilar ini terbentuk dari polimerisasi silika-alumina, yang dapat dideteksi melalui spektrum FTIR sebagai perubahan bentuk dan pelebaran puncak pada daerah serapan ini. Kehadiran pilar-pilar ini mengubah karakteristik material secara signifikan, memberikan stabilitas termal dan mekanis yang lebih baik serta meningkatkan kinerja bentonit dalam berbagai aplikasi, seperti katalisis dan adsorpsi (Widi et al., 2010; Baloyi et al., 2018a). Fenomena pembentukan pilar tersebut semakin diperkuat dengan data difraksi sinar-X pada Gambar 2.

Pada Gambar 2 tampak puncak utama difraksi sinar-X *fresh bentonit* pada  $2\theta = 9$  derajat berubah menjadi  $2\theta = 5,5$  derajat pada PILB-Si 5 mmol dan  $2\theta = 5,75$  derajat pada PILB-TEOS 5 mmol. Hal ini berarti semakin kecil harga  $2\theta$  semakin besar jarak *inter layer*nya. Peningkatan jarak *inter layer* ini disebabkan adanya pilar yang terbentuk oleh adanya polimerisasi oksida Si ( $SiO_2$ ) baik dari Na-silikat maupun dari TEOS. Namun dari kedua spesies

tersebut sebagai *pillaring agent* tampak intensitas puncak difraksi yang diberikan oleh PILB-TEOS 5 mmol lebih tinggi dari PILB-Si 5 mmol. Hal ini berarti struktur pori bentonit alam terpillar spesies Si (TEOS) lebih homogen dibandingkan oleh *pillaring agent* Na-silikat. Hal ini disebabkan struktur spesies Si (TEOS) memiliki kemampuan untuk menukar kation Ca dalam bentonit alam. Akibatnya jumlah pilar yang terbentuk dengan ukuran yang sama akan semakin banyak terbentuk sehingga struktur pori atau jarak *interlayer* bentonit alam semakin homogen. Untuk spesies Si (Na-silikat) diperkirakan kation polioksi yang terbentuk sangat besar yang berakibat tidak optimalnya orientasi polioksi kation tersebut masuk ke dalam struktur *interlayer* bentonit alam. Akibatnya ukuran pilar yang terbentuk relatif rendah dibandingkan pilar yang dibentuk oleh Si spesies TEOS (Harrington and Santiso, 2021).

Pada proses pilarisasi bentonit alam menggunakan logam Si dengan metode pilarisasi tidak langsung, digunakan molekul surfaktan kationik HDTMA-Br sebagai agen penginterkalasi (*intercalating agent*). Proses interkalasi ini bertujuan untuk membuka struktur *interlayer* bentonit menjadi lebih tinggi. Hal ini bertujuan agar kation polioksi dapat masuk dengan mudah ke dalam struktur *interlayer* bentonit dan dalam orientasi yang optimal untuk membentuk pilar yang tinggi. Data pola difraksi sinar-X material hasil pilarisasi bentonit alam dengan metode tidak langsung diberikan pada Gambar 3.

Pada data tersebut tampak bahwa puncak utama difraksi sinar-X bentonit alam terpillar logam Si (Na-silikat dan TEOS) memberikan harga  $2\theta$  yang cukup besar dibandingkan dengan metode pilarisasi langsung. Harga sudut difraksi  $2\theta$  tersebut pada kisaran 7,5 derajat dengan intensitas yang sangat rendah bahkan hampir membentuk *amorph*. Hal ini menunjukkan jarak *interlayer* bentonit relatif kecil, yang diakibatkan tidak optimalnya kation polioksi masuk ke dalam struktur *interlayer* bentonit. Fenomena tersebut diakibatkan kation polioksi yang akan masuk ke dalam struktur *interlayer* bentonit terhalang oleh molekul surfaktan yang kemungkinan jumlahnya sangat banyak. Akibatnya pilar yang terbentuk menjadi sangat rendah bahkan sama dengan puncak difraksi sinar-X bentonit alam terkalsinasi. Data tersebut semakin meyakinkan tidak optimalnya kation polioksi tersebut masuk ke dalam struktur *interlayer* bentonit (Yang, et al., 2020).

Selain itu diberikan data distribusi ukuran atom bentonit terpillar logam Si spesies Na-silikat dan TEOS dengan metode pilarisasi tidak langsung, seperti pada gambar 4. Pada data Gambar 4 tersebut tampak distribusi ukuran pori masih berada pada daerah kisaran mikropori. Ukuran mikropori tersebut semakin diperkuat dengan pola adsorpsi gas  $N_2$  pada Gambar 4B yang merupakan pola adsorpsi khas untuk material mikropori dengan bentuk kurva adsorpsi tipe I. Namun homogenitas strukturnya lebih baik dibandingkan dengan *fresh* bentonit terkalsinasi. Hal ini ditunjukkan dengan poros kurva yang berada di atas kurva adsorpsi *fresh* bentonit terkalsinasi. Studi terkait juga menunjukkan bahwa penggunaan TEOS sebagai agen pemillar dapat menghasilkan struktur dengan pori yang lebih seragam dan mikropori yang dominan, dibandingkan dengan Na-silikat, yang cenderung menghasilkan distribusi ukuran pori yang lebih bervariasi (Yang, et al., 2020). Proses pilarisasi tidak langsung melibatkan pengikatan spesies logam Si ke dalam struktur bentonit, yang kemudian membentuk pilar yang meningkatkan stabilitas dan kapasitas adsorpsi.

## SIMPULAN

Dari penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa spesies logam Si dalam TEOS berfungsi sebagai *pillaring agent* lebih baik dibandingkan spesies logam Si dalam Na-silikat. Hal ini ditunjukkan dengan intensitas pola difraksi yang lebih tinggi pada bentonit terpillar TEOS. Adapun metode pilarisasi langsung memberikan jarak *interlayer* lebih besar dibandingkan metode pilarisasi tidak langsung.

Untuk meningkatkan hasil pilarisasi dengan metode tidak langsung perlu dilakukan optimasi pada proses interkalasi bentonit alam dengan molekul surfaktan HDTMA-Br. Hal-hal tersebut seperti konsentrasi HDTMA-Br, waktu interkalasi dan pH interkalasi. Diharapkan dengan perbaikan tersebut jarak *interlayer* yang dihasilkan lebih tinggi.

## PUSTAKA ACUAN

- Ajduković, M., Jović-Jovičić, N., Milutinovic-Nikolic, A., Banković, P., Mojović, Z., 2022. The influence of clay modification on electrochemical behavior of quinhydrone. *Tehnika* 77, 9–14. <https://doi.org/10.5937/tehnika2201009A>
- Baloyi, J., Ntho, T., Moma, J., 2018a. Synthesis and application of pillared clay heterogeneous catalysts for wastewater treatment: a review. *RSC Adv* 8, 5197–5211. <https://doi.org/10.1039/C7RA12924F>
- Baloyi, J., Ntho, T., Moma, J., 2018b. A Novel Synthesis Method of Al/Cr Pillared Clay and its Application in the Catalytic Wet Air Oxidation of Phenol. *Catal Letters* 148, 3655–3668. <https://doi.org/10.1007/s10562-018-2579-x>
- Budhyantoro, A., & Widi, R. K. (2013). Effect of the Surfactant Molecule as Intercalating Agent toward Natural Bentonite Structure. 8(2), 91–96.
- Cardona, Y., Węgrzyn, A., Miśkowiec, P., Korili, S.A., Gil, A., 2022. Catalytic photodegradation of organic compounds using TiO<sub>2</sub>/pillared clays synthesized using a nonconventional aluminum source. *Chemical Engineering Journal* 446, 136908. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.cej.2022.136908>
- Fatimah, I., Fadillah, G., Yanti, I., Doong, R., 2022. Clay-Supported Metal Oxide Nanoparticles in Catalytic Advanced Oxidation Processes: A Review. *Nanomaterials*. <https://doi.org/10.3390/nano12050825>
- Freitas, W., Trigueiro, P., Marinho, T., Honorio, L.M., Silva-Filho, E.C., Furtini, M.B., Cecília, J.A., Fonseca, M.G., Osajima, J., 2022. The Role of Clay Mineral-Derived Photocatalysts in Insights of Remediation. *Ceramics*. <https://doi.org/10.3390/ceramics5040063>
- Georgescu, A.-M., Nardou, F., Zichil, V., Nistor, I.D., 2018. Adsorption of lead(II) ions from aqueous solutions onto Cr-pillared clays. *Appl Clay Sci* 152, 44–50. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.clay.2017.10.031>
- Harrington, G.F., Santiso, J., 2021, Back-to-Basics tutorial: X-ray diffraction of thin films. *J Electroceram* 47, 141–163. <https://doi.org/10.1007/s10832-021-00263->
- Ilic, I., Jovic-Jovicic, N., Bankovic, P., Mojović, Z., Loncarevic, D., Gržetić, I., Milutinovic-Nikolic, A., 2019. Adsorption of nicotine from aqueous solutions on montmorillonite and acid-modified montmorillonite. *Science of Sintering* 51, 93–100. <https://doi.org/10.2298/SOS1901093I>
- Jiang, T., Zhang, W., Ilango, A.K., Feldblyum, J.I., Wei, Z., Efstathiadis, H., Yigit, M. V, Liang, Y., 2023. Surfactant-Modified Clay for Adsorption of Mixtures of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) in Aqueous Solutions. *ACS Applied Engineering Materials* 1, 394–407. <https://doi.org/10.1021/acsaenm.2c00096>
- Kalmakhanova, M.S., Diaz de Tuesta, J.L., Massalimova, B.K., Gomes, H.T., 2020. Pillared clays from natural resources as catalysts for catalytic wet peroxide oxidation: Characterization



- and kinetic insights. *Environmental Engineering Research* 25, 186–196.  
<https://doi.org/10.4491/eer.2018.402>
- Kartiko Widi, R., Suciani, I., Savitri, E., Reynaldi, R., & Budhyantoro, A. (2020). Photocatalytic decolorization of Basic Blue 41 using TiO<sub>2</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-bentonite coating applied to ceramic in continuous system. *Chemical Engineering Communications*, 207(2), 203–212.  
<https://doi.org/10.1080/00986445.2019.1578756>
- Kotal, M., Bhowmick, A.K., 2015. Polymer nanocomposites from modified clays: Recent advances and challenges. *Prog Polym Sci* 51, 127–187.  
<https://doi.org/10.1016/J.PROGPOLYMSCI.2015.10.001>
- Kumararaja, P., Manjaiah, K.M., Datta, S.C., Sarkar, B., 2017. Remediation of metal contaminated soil by aluminium pillared bentonite: Synthesis, characterisation, equilibrium study and plant growth experiment. *Appl Clay Sci* 137, 115–122.  
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.clay.2016.12.017>
- Liang, X., Qi, F., Liu, P., Wei, G., Su, X., Ma, L., He, H., Lin, X., Xi, Y., Zhu, J., Zhu, R., 2016. Performance of Ti-pillared montmorillonite supported Fe catalysts for toluene oxidation: The effect of Fe on catalytic activity. *Appl Clay Sci* 132–133, 96–104.  
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.clay.2016.05.022>
- Ma, L., Zhu, J., He, H., Tao, Q., Zhu, R., Shen, W., Theng, B.K.G., 2014. Al<sub>13</sub>-pillared montmorillonite modified by cationic and zwitterionic surfactants: A comparative study. *Appl Clay Sci* 101, 327–334. <https://doi.org/10.1016/J.CLAY.2014.08.023>
- Ma, L., Zhu, J., Xi, Y., Zhu, R., He, H., Liang, X., Ayoko, G.A., 2015. Simultaneous adsorption of Cd(II) and phosphate on Al<sub>13</sub> pillared montmorillonite. *RSC Adv* 5, 77227–77234.  
<https://doi.org/10.1039/C5RA15744G>
- Macías-Quiroga, I., Perez, A., Arcila, J.S., Giraldo-Gómez, G., Sanabria-Gonzalez, N., 2022. Synthesis and Characterization of Co/Al-PILCs for the Oxidation of an Azo Dye Using the Bicarbonate-Activated Hydrogen Peroxide System. *Catal Letters* 152.  
<https://doi.org/10.1007/s10562-021-03788-1>
- Macías-Quiroga, I.F., Rengifo-Herrera, J.A., Arredondo-López, S.M., Marín-Flórez, A., Sanabria-González, N.R., 2022. Research Trends on Pillared Interlayered Clays (PILCs) Used as Catalysts in Environmental and Chemical Processes: Bibliometric Analysis. *The Scientific World Journal* 2022, 5728678. <https://doi.org/10.1155/2022/5728678>
- Marković, M., Marinović, S., Mudrinić, T., Ajduković, M., Jović-Jovičić, N., Mojović, Z., Orlić, J., Milutinović-Nikolić, A., Banković, P., 2019. Co(II) impregnated Al(III)-pillared montmorillonite—Synthesis, characterization and catalytic properties in Oxone® activation for dye degradation. *Appl Clay Sci* 182, 105276.  
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.clay.2019.105276>
- Mnasri-Ghnimi, S., Frini-Srasra, N., 2019. Removal of heavy metals from aqueous solutions by adsorption using single and mixed pillared clays. *Appl Clay Sci* 179, 105151.  
<https://doi.org/10.1016/J.CLAY.2019.105151>

- Mohadi., R., Yusuf, Mathiinul, Hakim., Rahma, Dinta, Astuti., Idha, Royani., Mardiyanto, Mardiyanto. (2023). Pillarization of Sumatera Bentonite by Sodium-assisted As Effective Adsorbent of Anionic Surfactants Sodium Lauryl Sulphate (SLS) Waste. *Bulletin of Chemical Reaction Engineering & Catalysis*, 18(1):48-58. doi: 10.9767/bcrec.16500
- Mohamed, M.E., Saad, G.R., Eid, A.I., Abou El-Khair, M.T., 2019. Modification of Egyptian clay by different organic cations. *Egypt J Chem* 62, 1761–1769. <https://doi.org/10.21608/EJCHEM.2019.10855.1697>
- Qian, W., Su, Y., Yang, X., Yuan, M., Deng, W., Zhao, B., 2017. Experimental study on selective catalytic reduction of NO with propene over iron based catalysts supported on aluminum pillared clays. *Journal of Fuel Chemistry and Technology* 45, 1499–1507. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1872-5813\(17\)30067-1](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S1872-5813(17)30067-1)
- Rinaldi., N., Novi, Liana, Sari., S., Sumari., Anis, Kristiani., Egi, Agustian., Robert, Ronald, Widjaya., Adep, DwiatiMoko. (2024). Performance of sulfided NiMo catalyst supported on pillared bentonite Al and Ti under hydrodeoxygenation reaction of guaiacol. *International Journal of Renewable Energy Development*, doi: 10.61435/ijred.2024.60060
- Savitri, E., Widi, R. K., & Budhyantoro, A. (2015). The effect of the calcinations temperature during synthesis of TiO<sub>2</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-bentonite as photocatalyst material. *Journal of Chemical and Pharmaceutical Research*, 7(9), 70–75.
- Seydibeyoglu, M.O., Demiroglu, S., Atagur, M., Ocaktan, S.Y., 2017. Modification of Clay Crystal Structure with Different Alcohols. *Natural Resources* 08, 709–715. <https://doi.org/10.4236/nr.2017.811044>
- Widi, R. K., & Budhyantoro, A. (2014). Catalytic performance of TiO<sub>2</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> supported bentonite for photocatalytic degradation of phenol. *International Journal of Applied Engineering Research*, 9(23), 18753–18758.
- Widi, R. K., Budhyantoro, A., & Christianto, A. (2017). Phenol hydroxylation on Al-Fe modified-bentonite: Effect of Fe loading, temperature and reaction time. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 273(1), 1–7. <https://doi.org/10.1088/1757-899X/245/1/012007>
- Widi, R. K., Budhyantoro, A., & Riadi, L. (2010). Esterification of palmitic acid over acid catalyst from modified bentonite. *International Journal of Applied Chemistry*, 6(1), 11–18.
- Widi, R. K., Budhyantoro, A., & Savitri, E. (2014). Catalytic performance of Al-HDTMA bentonite impregnated Fe on phenol hydroxylation. *International Journal of Applied Engineering Research*, 9(20), 7521–7529.
- Widi, R. K., Budhyantoro, A., & Savitri, E. (2015). Use of TiO<sub>2</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> pillared bentonite as photocatalyst in photodegradation of basic blue. *Journal of Chemical and Pharmaceutical Research*, 7(9), 183–188.
- Widi, R. K., Chrisnasari, R., Budhyantoro, A., & Christie, S. D. (2020). Immobilization of glucose oxidase on acid activated-bentonite and its performance examination. *UPB Scientific Bulletin, Series B: Chemistry and Materials Science*, 82(3), 113–124.

- Widi, R. K., Savitri, E., Angelina, O., Caroline, O. J. S., & Budhyantoro, A. (2018). Antibacterial inactivation of *Escherichia coli* after TiO<sub>2</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Bentonite photocatalytic treatment. *International Journal on Advanced Science, Engineering and Information Technology*, 8(6), 2367–2373. <https://doi.org/10.18517/ijaseit.8.6.3884>
- Widi, R. K., Savitri, E., Budhyantoro, A., Yasaputera, R., & Gunardi, J. (2020). Application of Photocatalyst Material Bentonite Ti Based as Antimicrobial Paint. *International Journal on Advanced Science, Engineering and Information Technology*, 10(6), 2498–2503. <https://doi.org/10.18517/ijaseit.10.6.9877>
- Widi, R. K., Trisulo, D. C., Budhyantoro, A., & Chrisnasari, R. (2017). Preparation of immobilized glucose oxidase wafer enzyme on calcium-bentonite modified by surfactant. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 223(1). <https://doi.org/10.1088/1757-899X/223/1/012050>
- Yang, Y., Li, F., Xiao, M. et al., 2020, TEOS and Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> as silica sources: study of synthesis and characterization of hollow silica nanospheres as nano thermal insulation materials. *Appl Nanosci* 10, 1833–1844. <https://doi.org/10.1007/s13204-020-01330-0>
- Ye, W., Zhao, B., Gao, H., Huang, J., Zhang, X., 2016. Preparation of highly efficient and stable Fe,Zn,Al-pillared montmorillonite as heterogeneous catalyst for catalytic wet peroxide oxidation of Orange II. *Journal of Porous Materials* 23, 301–310. <https://doi.org/10.1007/s10934-015-0082-y>
- Yu, R., Wang, S., Wang, D., Ke, J., Xing, X., Kumada, N., Kinomura, N., 2008. Removal of Cd<sup>2+</sup> from aqueous solution with carbon modified aluminum-pillared montmorillonite. *Catal Today* 139, 135–139. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.cattod.2008.08.015>