

LEMPUNG TERPILAR SILIKA UNTUK PENGHILANGAN FENOL DALAM AIR

Adi Darmawan, Choiril Azmiyawati dan Pulojuliadi Nababan

Laboratorium Kimia Anorganik Universitas Diponegoro

ABSTRAK

Limbah fenol dapat mencemari lingkungan, namun pengolahan limbah fenol masih memiliki banyak kendala. Kendala disebabkan proses pengolahan yang menggunakan prinsip flokulasi dan koagulasi dengan biaya instalasi dan operasional yang mahal. Menanggapi kendala tersebut lempung terpillar SiO_2 mampu digunakan sebagai katalis oksidasi fenol dalam air limbah.

Lempung terpillar SiO_2 memiliki basal spacing, luas permukaan besar, dan stabil pada temperatur tinggi. Sintesis lempung terpillar SiO_2 melalui proses interkalasi TEOS (tetraetilortosilikat) dan surfaktan dodesilamin pada daerah antarlapis lempung. Lempung terpillar SiO_2 diimpregnasi dengan menggunakan logam nikel. Proses sintesis lempung terpillar SiO_2 dikarakterisasi menggunakan metode difraktometer sinar X dalam menentukan kenaikan basal spacing dan kristalinitas. Penentuan aktivitas katalis lempung terpillar SiO_2/Ni terhadap konversi oksidasi fenol dalam air limbah menggunakan spektrofotometri UV-Visible.

Lempung terpillar tanpa kalsinasi menghasilkan basal spacing 28,55 Å sedangkan lempung terpillar SiO_2 kalsinasi 600 OC menghasilkan basal spacing 27,77 Å. Aplikasi lempung terpillar SiO_2/Ni sebagai katalis oksidasi fenol dalam air limbah mampu mengkonversi limbah fenol hingga mencapai 70 %. Aktivitas katalis SiO_2 optimalisasi pada konsentrasi nikel yang teremban 4 %, dimana semakin banyak nikel yang teremban pada lempung terpillar SiO_2 maka aktivitas katalisisnya semakin meningkat

Kata Kunci: Lempung Terpillar SiO_2 , fenol, adsorpsi

PENDAHULUAN

Proses kimia yang menghasilkan limbah fenol sangat berbahaya bagi lingkungan sekitarnya, karena fenol merupakan senyawa organik yang toksik. Kadar fenol dalam air limbah perlu diminimalkan untuk mengurangi pencemaran terhadap lingkungan. Pengolahan terhadap limbah fenol yang pernah dilakukan adalah melalui proses filtrasi dan proses adsorpsi dengan prinsip flokulasi dan koagulasi menggunakan karbon aktif untuk menyisihkan senyawa aromatik seperti fenol dan senyawa organik terlarut lainnya. Pengolahan limbah melalui proses filtrasi tersebut menggunakan teknologi membran atau *reverse osmosis* dan menggunakan reaktor yang membutuhkan biaya instalasi dan operasional yang sangat mahal (Warlina, 1985).

Lempung sebagai material yang mempunyai lapisan yang dapat mengembang sampai saat ini belum optimal dalam pemanfaatannya. Pada dasarnya struktur pori dari material lempung tidak permanen sehingga perlu dilakukan pemiliran pada daerah antarlapis lempung. Lempung terpillar dapat diperoleh dengan menginterkalasikan oksida logam, kation organik, atau surfaktan pada daerah antarlapis lempung yang akan menghasilkan pilar dan struktur pori yang stabil sehingga dapat digunakan sebagai adsorben ataupun katalis (Vansant dan Cool, 1997).

Sintesis lempung terpillar melalui interkalasi pada daerah antarlapis lempung yang telah dibuat antara lain adalah sintesis lempung terpillar SiO_2/Ni dengan basal spacing 29,31 Å, luas permukaan 336,52 m²/g, dan karakter

keasaman pada permukaan lapisan mencapai $400 - 800 \text{ cm}^{-1}$, sehingga mampu digunakan sebagai katalis dalam reaksi reformasi gas CO_2 . Katalis lempung terpillar SiO_2/Ni mampu mempercepat reaksi reformasi CO_2 dengan persentase kecepatan pembentukan mencapai $78,63 \% - 92,48 \%$ relatif terhadap reaksi tanpa katalis lempung terpillar (Gozan, 2001).

Dalam penelitian ini akan dikaji proses sintesis lempung terpillar SiO_2 dari lempung alam dan uji aktivitasnya sebagai katalis oksidasi fenol dalam air limbah. Lempung diinterkalasi menggunakan TEOS dengan bantuan kosurfaktan dodesilamin yang bertujuan untuk memperbesar jarak daerah antarlapis lempung, sehingga akan dihasilkan lempung terpillar SiO_2 yang stabil (Pinnavaia dan Poleverjan, 2000). Dalam penelitian ini dilakukan impregnasi logam nikel dengan variasi konsentrasi $0,5 \%$, 1% , 2% , dan 4% (b/b) yang diharapkan dapat terdistribusi merata pada daerah antarlapis lempung untuk meningkatkan aktivitas katalis.

Sintesis lempung terpillar SiO_2/Ni diharapkan dapat digunakan sebagai katalis dalam proses oksidasi fenol dalam air limbah serta mampu memberikan solusi baru metode pengolahan limbah fenol, sehingga dapat meminimalkan pencemaran terhadap lingkungan.

METODE PENELITIAN

Peralatan: Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah peralatan gelas, *magnetic stirrer/hot plate*, oven, *furnace* atau tungku kalsinasi, ayakan material 200 mesh, timbangan analitis, vibrator aliran udara, difraktometer sinar X Shimadzu X-2700, dan spektrofotometri UV-Visible Secoman 1500 PC.

Bahan: Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah lempung alam yang telah lolos ayakan 200 mesh, dodesilamina, amonium hidroksida, akuades, $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, amonium klorida, 4-AAP (4-aminoantipirin), kloroform, kalium ferrisianida, sampel limbah fenol, etanol, dan TEOS (tetraetilortosilikat).

Prosedur Kerja

Sintesis Lempung Terpillar: Lempung sebanyak 5 gram dilarutkan dalam campuran TEOS-dodesilamin dengan perbandingan molar TEOS:dodesilamin adalah 10:2. Volume TEOS dan dodesilamin yang digunakan masing-masing adalah 25 mL dan 5 mL. Campuran diaduk pada temperatur kamar ($\pm 27^\circ\text{C}$) selama 5 jam, kemudian lempung terinterkalasi yang diperoleh disaring dan dicuci dengan etanol untuk menghilangkan sisa surfaktan. Lempung terinterkalasi dikeringkan di udara terbuka pada temperatur kamar sebelum dikalsinasi pada temperatur 600°C dengan kecepatan kenaikan temperatur $2^\circ\text{C}/\text{menit}$, selama 2 jam untuk memperoleh lempung terpillar SiO_2 .

Impregnasi Nikel pada Lempung Terpillar

Larutan impregnasi dibuat dengan melarutkan $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dalam 10 mL air dengan variasi kandungan logam nikel $0,5\%$; 1% ; 2% ; 4% dari berat lempung terpillar yang akan diimpregnasi.

Lempung terpillar ditambahkan dalam larutan impregnasi $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dan diaduk selama 2,5 jam pada temperatur kamar. Lempung dikeringkan dalam oven pada temperatur 110°C selama 30 menit. Lempung yang diperoleh dikalsinasi pada temperatur 400°C dengan kecepatan kenaikan temperatur $2^\circ\text{C}/\text{menit}$, selama 2 jam untuk memperoleh katalis lempung terpillar SiO_2 teremban nikel (SiO_2/Ni).

Karakterisasi Lempung Terpillar dengan Penentuan *Basal Spacing*

Penentuan *basal spacing* dilakukan dengan menggunakan difraktometer sinar X Shimadzu X-2700 dengan metode bubuk menggunakan target Cu dan kecepatan pengukuran 2°/menit. Lempung asli, lempung terpillar, dan lempung tanpa kalsinasi dilakukan pengukuran pada daerah $2\theta = 2^\circ - 15^\circ$.

Aplikasi dan Uji Aktivitas Katalis

Fenol sebanyak 5 mg dilarutkan dalam 100 mL air dan dimasukkan dalam tabung gelas, kemudian untuk proses oksidasi ditambahkan 0,2 gram bubuk katalis lempung terpillar SiO₂ dengan variasi nikel teremban 0,5%; 1%; 2%; 4%. Sebagai standar pembanding oksidasi fenol dilakukan tanpa menggunakan katalis. Proses oksidasi dilakukan dengan menggunakan aliran udara dari vibrator selama 4 jam. Konversi oksidasi fenol dianalisis dengan menggunakan spektrofotometri UV-Visible Secoman 1500 PC.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis Lempung Terpillar Silika

Proses sintesis lempung terpillar SiO₂ dari lempung alam melalui dua tahap reaksi. Tahap pertama adalah interkalasi TEOS-dodesilamin pada daerah antarlapis lempung, dan tahap kedua merupakan proses kalsinasi lempung terinterkalasi untuk mengubah TEOS menjadi pilar silika. Proses interkalasi TEOS pada daerah antarlapis lempung dibantu dengan penambahan surfaktan dodesilamin. Penambahan surfaktan dodesilamin pada daerah antarlapis lempung bertujuan untuk memperbesar jarak antarlapis lempung, sehingga akan mempermudah proses

interkalasi TEOS pada daerah antarlapis lempung.

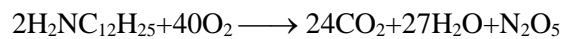
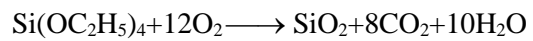
Semakin besar jarak antarlapis lempung maka akan semakin mudah TEOS yang masuk pada daerah antarlapis lempung, sehingga akan berpengaruh terhadap perubahan *basal spacing* yang dihasilkan. Proses interkalasi TEOS-dodesilamin pada daerah antarlapis lempung menghasilkan cairan kental berwarna keabuan yang menunjukkan bahwa proses interkalasi TEOS dan dodesilamin pada daerah antarlapis lempung berlangsung secara spontan pada temperatur kamar (Kwon dkk., 2000). Penggunaan TEOS berlebihan dengan perbandingan TEOS:dodesilamin adalah 10:2, bertujuan untuk dapat melarutkan surfaktan dodesilamin serta menyediakan sumber silika yang cukup dalam pembentukan pilar siloksan yang stabil pada temperatur tinggi. Dodesilamin yang terlarut dalam TEOS akan mempermudah interkalasi TEOS, karena dodesilamin tersebut membantu memperbesar jarak antar lapis lempung. Jika konsentrasi TEOS yang digunakan kecil maka pilar siloksan yang terbentuk akan lemah, karena jumlah TEOS yang digunakan tidak sebanding dengan surfaktan dodesilamin, sehingga akan mempengaruhi terhadap pergeseran jarak antarlapis lempung.

Kalsinasi pada temperatur tinggi bertujuan untuk menghilangkan surfaktan dan pilar siloksan tersebut, sehingga pada daerah antarlapis lempung tidak terbentuk pilar (Kwon dkk., 2000). Kalsinasi pada temperatur 600°C bertujuan untuk menghilangkan sisa-sisa surfaktan yang digunakan selama proses pemiliran dan menyempurnakan reaksi dehidrosilasi siloksan menjadi pilar oksida

silika (SiO_2) yang stabil dan permanen. TEOS pada temperatur 600°C teroksidasi menjadi oksida silika SiO_2 dengan disertai pelepasan molekul air.

Menurut Pinnavaia, dkk., (1997), perubahan TEOS menjadi oksida silika SiO_2 dapat berlangsung pada temperatur $300\text{-}550^\circ\text{C}$. Namun kalsinasi pada temperatur 550°C masih menyisakan senyawa organik yang ditandai dengan terbentuknya warna hitam dari lempung yang telah terkalsinasi. Masih tersisanya senyawa organik tersebut disebabkan karena penggunaan TEOS dan dodesilamin yang berlebihan. Penggunaan TEOS dan dodesilamin yang berlebihan menyebabkan semakin banyak zat organik pada daerah antarlapis yang berasal dari produk samping reaksi dehidrosilasi TEOS dan surfaktan yang digunakan, sehingga diperlukan pemanasan yang lebih tinggi untuk menghilangkan sisa-sisa zat organik tersebut. Keberadaan senyawa organik di dalam pori mempengaruhi aktivitas katalis karena pori yang terbentuk akan terisi oleh senyawa-senyawa organik dari sisa-sisa surfaktan maupun produk samping reaksi dehidrosilasi TEOS. Semakin tinggi temperatur kalsinasi, maka akan semakin menyempurnakan proses dehidrosilasi TEOS dan menghilangkan semua sisa-sisa surfaktan yang digunakan, sehingga luas permukaan yang dihasilkan semakin besar (Pinnavaia dkk., 1997).

Kalsinasi lempung terpillar SiO_2 pada temperatur 600°C mengakibatkan TEOS teroksidasi menjadi oksida silika yang disertai dengan pelepasan molekul air serta menghilangkan sisa surfaktan dodesilamin yang digunakan sehingga akan memperbesar permukaan pada daerah antarlapis lempung.



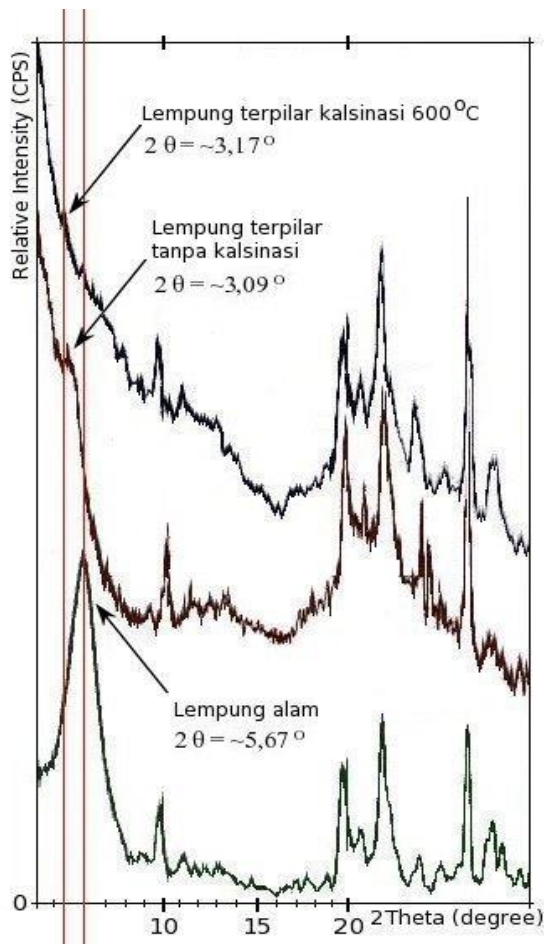
Pada reaksi tersebut, ion H^+ yang dibebaskan selama proses kalsinasi lempung terpillar pada temperatur 600°C mampu menyeimbangkan pada lapisan lempung sehingga menghasilkan pilar yang lebih stabil pada temperatur tinggi (Pinnavaia dkk., 1997).

Karakterisasi Lempung Terpillar SiO_2 meliputi *basal spacing* dan kristalinitas

Proses pemiliran TEOS dan dodesilamin pada daerah antarlapis lempung akan menghasilkan pilar silika SiO_2 . Perubahan yang terjadi pada daerah antarlapis lempung dengan terbentuknya pilar SiO_2 meliputi pertambahan *basal spacing* dan kristalinitas permukaan yang diidentifikasi menggunakan difraktometer sinar X shimadzu X2700. Pola perubahan difraktogram menggunakan XRD ditentukan pada pergeseran puncak pada daerah $2\theta = 2^\circ\text{-}15^\circ$. Pola difraktogram pergeseran puncak dari lempung alam, lempung terpillar SiO_2 tanpa kalsinasi, dan lempung terpillar SiO_2 kalsinasi pada temperatur 600°C yang muncul pada analisa XRD dapat dijelaskan pada Gambar 1 sebagai berikut.

Dari Gambar 1 dapat dilihat pola difraktogram yang dihasilkan terjadi pergeseran puncak pada lempung alam, terhadap lempung terpillar tanpa kalsinasi, dan lempung terpillar kalsinasi 600°C . Pergeseran puncak pada lempung alam dari $2\theta \sim 5,67^\circ$ menjadi $2\theta \sim 3,09^\circ$ pada lempung terpillar tanpa kalsinasi, sedangkan pada lempung terpillar kalsinasi 600°C pergeseran puncak terjadi pada $2\theta \sim 3,17^\circ$. Pergeseran puncak dari $2\theta \sim 5,67^\circ$ pada lempung alam menunjukkan terbentuknya pilar SiO_2 pada daerah antarlapis lempung yang diperlihatkan

penurunan $2\theta \sim 3,17^\circ$ pada lempung terpillar SiO_2 kalsinasi 600°C .



Gambar 1. Pola difraktogram lempung alam, lempung terpillar SiO_2 tanpa kalsinasi, dan lempung terpillar SiO_2 kalsinasi 600°C

Pemanasan pada temperatur yang tinggi menyebabkan proses dekomposisi sebagian pilar silika yang telah terbentuk, sehingga menyebabkan sebagian puncak tidak muncul, disamping itu penambahan TEOS dan surfaktan dodesilamin yang berlebihan menyebabkan lemahnya puncak yang dihasilkan dimana TEOS dan dodesilamin yang berlebihan menyebabkan tertutupnya daerah antarlapis lempung karena molekul TEOS dan dodesilamin tidak tersusun secara teratur pada daerah antarlapis lempung (Pinnavaia dkk., 1997). Perubahan *basal spacing* pada lempung alam, lempung terpillar tanpa kalsinasi SiO_2 , dan lempung terpillar SiO_2

kalsinasi 600°C dapat dilihat pada Tabel 1 sebagai berikut.

Tabel 1. *Basal spacing* pada lempung alam, lempung terpillar tanpa kalsinasi SiO_2 , dan lempung terpillar SiO_2 kalsinasi 600°C

Jenis material	<i>Basal spacing</i> (Å)
Lempung alam	15,54
Lempung terpillar tanpa kalsinasi SiO_2	28,55
Lempung terpillar SiO_2 kalsinasi 600°C	27,77

Diperoleh data bahwa *basal spacing* lempung alam meningkat sebesar 13 \AA , sedangkan penurunan *basal spacing* terjadi pada lempung terpillar SiO_2 kalsinasi pada temperatur 600°C menurun sebesar $0,78\text{-}1 \text{ \AA}$ terhadap lempung terpillar SiO_2 tanpa kalsinasi. Penurunan *basal spacing* pada lempung terpillar dapat dipengaruhi oleh reaksi stoikiometri terhadap perbandingan TEOS dan surfaktan dodesilamin.

Penurunan *basal spacing* juga dipengaruhi dengan hilangnya sisa-sisa senyawa organik sebagai produk samping reaksi dehidrosilasi TEOS dan surfaktan dodesilamin sebagai cetakan *misel* selama proses kalsinasi. Pernyataan ini sesuai dengan penelitian Kwon dkk., (2000) yang menyatakan bahwa penurunan *basal spacing* untuk lempung terpillar antara $3\text{-}5 \text{ \AA}$ pada kalsinasi temperatur 538°C .

Perbedaan temperatur kalsinasi mempengaruhi pergeseran *basal spacing* dan kristalinitas dari lempung terpillar yang dihasilkan. Perbedaan tingkat ketajaman puncak yang dihasilkan antara lempung alam yaitu $15,54 \text{ \AA}$ dengan lempung terpillar SiO_2 kalsinasi 600°C pada yaitu $27,77 \text{ \AA}$ memperlihatkan perubahan kristalinitas selama proses pilarisasi pada daerah antarlapis lempung.

Proses pemiliran akan menurunkan kristalinitas daripada lempung alam, sebagai asumsi bahwa kristalinitas lempung alam adalah sebesar 100%. Kristalinitas dari lempung terpillar SiO₂ tanpa kalsinasi adalah sebesar 56,61% relatif terhadap lempung alam, sedangkan kristalinitas dari lempung terpillar SiO₂ kalsinasi 600°C adalah sebesar 47,19% relatif terhadap lempung alam. Perbandingan persentase kristalinitas terjadi penurunan dari lempung terpillar SiO₂ tanpa kalsinasi terhadap lempung terpillar SiO₂ kalsinasi 600°C adalah sebesar 9,42%, terjadinya penurunan kristalinitas dipengaruhi pemanasan pada temperatur yang tinggi sehingga yang menyebabkan terjadi penataulangan struktur pilar silika yang terbentuk selama kalsinasi berlangsung.

Berkurangnya ketajaman puncak pada lempung terpillar SiO₂ kalsinasi pada temperatur 600°C menunjukkan terjadi penurunan kristalinitas pada daerah antarlapis lempung terpillar SiO₂. Perubahan jarak daerah antarlapis lempung terhadap pembentukan pilar silika (SiO₂) pada daerah antarlapis adalah sebesar ~12,23 Å. Peningkatan jarak daerah antarlapis yang cukup signifikan jika dibandingkan terhadap lempung alam. Peningkatan jarak antarlapis lempung tersebut dimungkinkan karena perbandingan rasio antara pemilar TEOS dan surfaktan dodesilamin mampu melakukan pembentukan misel pada daerah antarlapis lempung dan memperbesar jarak antarlapis lempung (Kwon dkk., 1998).

Aplikasi Lempung Terpillar SiO₂/Ni Katalis Oksidasi Fenol dalam Air Limbah

Aplikasi katalis lempung terpillar SiO₂/Ni dioptimalkan pada pemanfaatan

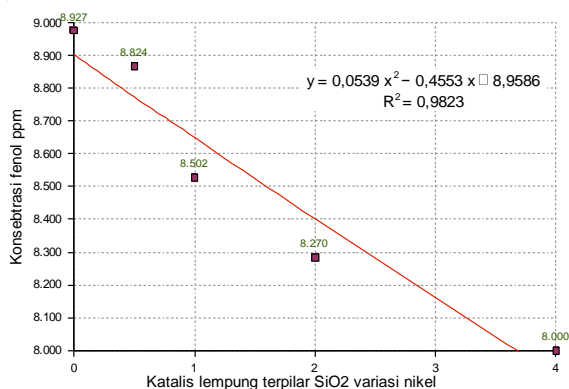
terhadap oksidasi fenol dalam air limbah. Kemampuan konversi katalis lempung terpillar SiO₂/Ni untuk mengoksidasi fenol dalam air limbah dengan variasi impregnasi logam nikel yang teremban dapat dilihat pada Tabel 2 sebelum dan sesudah oksidasi sebagai berikut.

Tabel 1. Hasil perhitungan oksidasi fenol dalam air limbah variasi katalis

Katalis SiO ₂ /Ni	Konsentrasi fenol awal (ppm)	Konsentrasi fenol hilang (ppm)	Konsentrasi fenol sisa (ppm)	Absorbansi (Å)
0	50	41,073	8,927	0,720
0,5%	50	41,176	8,824	0,712
1%	50	41,498	8,502	0,687
2%	50	41,730	8,270	0,669
4%	50	42,000	8,000	0,640

Berkurangnya konsentrasi fenol dalam air limbah menunjukkan aktivitas dari katalis SiO₂/Ni tersebut. Perubahan konsentrasi fenol dalam air limbah sebelum dan sesudah proses oksidasi dapat ditingkatkan dengan adanya impregnasi logam nikel dalam pori lempung terpillar yang mampu meningkatkan aktivitas katalisisnya. Hal tersebut dapat terlihat dari oksidasi fenol dalam air limbah tanpa menggunakan katalis menghasilkan konsentrasi sisa fenol 8,927 ppm, dibandingkan dengan katalis teremban nikel 0,5% menghasilkan konsentrasi sisa fenol 8,824 ppm. Semakin banyak impregnasi logam nikel dalam pori lempung akan meningkatkan aktivitas katalis dalam mengoksidasi fenol dalam air limbah, hal ini dapat dilihat dari peningkatan konsentrasi sisa fenol yang dihasilkan terhadap katalis impregnasi nikel 0,5%, 1%, 2%, dan 4% dalam reaksi selama 4 jam pada temperatur kamar. Optimalisasi berada pada katalis SiO₂ teremban

4 % dimana menghasilkan sisa fenol 8,000 ppm, perbandingan katalis SiO_2/Ni variasi nikel teremban 0,5 %, 1 %, 2 %, dan 4 % mencapai $\approx 0,232$ ppm terhadap oksidasi fenol tanpa menggunakan katalis lempung terpillar SiO_2/Ni . Peningkatan aktivitas katalis SiO_2 variasi logam nikel teremban terhadap oksidasi fenol dalam air limbah dapat dilihat pada Gambar 4.1 sebagai berikut.



Gambar 2. Konversi fenol dalam air limbah terhadap variasi katalis SiO_2/Ni

Secara umum bertambahnya konsentrasi nikel yang teremban mampu meningkatkan aktivitas katalis tersebut. Pada kondisi lain aktivitas oksidasi tanpa menggunakan katalis relatif lebih rendah dibandingkan dengan oksidasi menggunakan katalis oksidasi lempung terpillar SiO_2/Ni dengan variasi nikel yang teremban. Konsentrasi impregnasi logam nikel yang berlebihan dapat menyebabkan distribusi nikel kurang merata jika dibandingkan terhadap jumlah pori dari lempung terpillar yang akan memungkinkan tertutupnya pori dan mengurangi aktivitas katalis tersebut.

KESIMPULAN

Sintesis lempung terpillar SiO_2 dari lempung alam dapat dilakukan melalui interkalasi TEOS-dodesilamin pada daerah antarlapis Lempung. Lempung terpillar yang dihasilkan memiliki

basal spacing 27,77 Å dan stabil pada temperatur 600°C. Lempung terpillar SiO_2 teremban nikel dapat digunakan sebagai katalis oksidasi fenol dalam air limbah. Semakin besar konsentrasi nikel yang teremban pada lempung terpillar SiO_2 maka aktivitas katalisisnya semakin bertambah dan optimum pada konsentrasi SiO_2/Ni 4 %.

DAFTAR PUSTAKA

- Gozan, M. S., 2001., *Aktivasi, Karakterisasi, Preparasi, dan Uji Aktivitas Lempung Terpillar SiO_2/Ni , AlPO_4 , Al_3Ti , dan TiO_2 Aplikasi Katalis Reaksi Reformasi Gas CO_2* , Departemen Teknik Gas dan Petrokimia, Fakultas Teknik Universitas Indonesia, tidak dipublikasikan, Depok 2, 16424, 442-524
- Kwon, Oh-Yun Shin., Hak-sik, Choi., Sang-Won., 2000, Preparations of Porous Silica Pillared Layered Phase; Simultaneous Intercalations of Amine Tetraethylorthosilicate into the H^+ -maganidi and Intragallery Amine Catalyzed Hydrolysis of Tetraethylorthosilicate, *Korean Chem. Matter.*, 12, 1273-1278
- Pinnavaia dan Poleverjan, 2000., Intercalated Clay Catalysts, *Chem. Matter* 13
- Vansant, E. F., Cool, P., 1997., Pillared Clay; Preparations, Characterizations, and Applications, *Catalyst. Rev. Sci. Eng Chem materials*, vol. 33. 265-285
- Warlina R., 1985., Removal treatment detoxifications of toxic aqueous solutions, geological material chem letters online, Heavy metal in the environment part I; Cycling and characterizations., Springer-Verlags, *Organometal Catalyst Letters*, Publishing akatsuka., Tokyo, Japan (1995), pp. 193-207