

# PENGHALUSAN STRUKTUR SANGKAR KRISTAL MORDENIT DAN KLINOPTILOLIT ALAM DENGAN METODE RIETVELD

Supandi Suminta<sup>1</sup> dan Thamzil Las<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang

<sup>2</sup>Universitas Islam Negeri Syarif Hidayatullah

Jl. Ciputat Raya, Jakarta

## ABSTRAK

**PENGHALUSAN STRUKTUR SANGKAR KRISTAL MORDENIT DAN KLINOPTILOLIT ALAM DENGAN METODE RIETVELD.** Struktur sangkar kristal mineral zeolit alam campuran fasa klinoptilolit dan mordenit dari daerah Bayah (Banten) telah berhasil dianalisis dengan metode Rietveld. Data intensitas difraksi cuplikan zeolit tersebut diukur dengan Difraktometer Sinar-X (XRD) di PTBIN-BATAN. Penghalusan parameter struktur sangkar fasa klinoptilolit dan mordenit dalam zeolit telah dilakukan dengan RIETAN. Hasil penghalusan kedua fasa tersebut menunjukkan bahwa zeolit Bayah mempunyai struktur sangkar fasa klinoptilolit bentuk poli kation K-Mg, dengan simetri grup ruang C2/m No. 12, sistem kristal monoklinik dan struktur sangkar fasa mordenit bentuk poli kation Ca-Na, dengan simetri grup ruang Cmcm No. 63, sistem kristal ortorombik. Rumus kimia kristalografi fasa klinoptilolit dan mordenit dalam sel satuan berturut-turut adalah :  $(K_{5,17} Mg_{0,16}) (Al_6Si_{30}O_{72}) 24 H_2O$  dan  $(Na_{5,63} Ca_{1,13}) (Al_8Si_{40}O_{96}) 22 H_2O$ . Kualitas kesesuaian (*goodness-of-fit*) berhasil dicapai sebesar  $R_{wp} = 10,34\%$ .

**Kata kunci :** Struktur sangkar, mordenit, klinoptilolit, penghalusan, metode Rietveld

## ABSTRACT

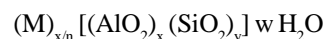
**THE REFINEMENT OF FRAMEWORK STRUCTURES FOR NATURAL MORDENITE AND KLINOPTILOLITE CRYSTALS BY RIETVELD METHOD.** Framework structures of clinoptilolite and mordenite phases in natural zeolit from Bayah have been successfully analysed using Rietveld Method. The diffraction intensity data were collected using X-Ray Diffractometer (XRD) at PTBIN-BATAN. The refinement of clinoptilolite and mordenite phases have been carried out and the results show that there are poly cation K-Mg clinoptilolite phase, with space group symmetry of C2/m No.12, monoclinic crystal system and poly cation Ca-Na mordenite phase, with space group symmetry of Cmcm No.63, orthorombic crystal system. Chemical formulas of clinoptilolite and mordenite phases are  $(K_{5,17} Mg_{0,16}) (Al_6Si_{30}O_{72}) 24 H_2O$  and  $[(Na_{5,63} Ca_{1,13}) (Al_8Si_{40}O_{96}) 22 H_2O$  per unit cell, respectively. Fitting quality (*goodness-of-fit*) gave a value of  $R_{wp} = 10.34\%$ .

**Key words :** Framework Structures, Mordenite, Clinoptilolite, Refinement, Rietveld Methods

## PENDAHULUAN

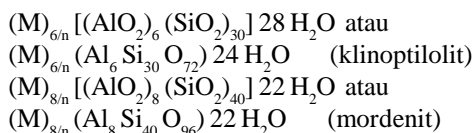
Sejak tahun 1984 para ahli mineralogi [1] telah mengklasifikasikan zeolit ke dalam golongan tersendiri. Mineral ini mempunyai bentuk struktur sangkar (*framework*) disertai rongga (*cavity*) dan saluran (*channel*) yang biasanya ditempati oleh air dan logam alkali atau alkali tanah dan terbentuk di alam secara alamiah atau dapat pula disintesis. Bentuk struktur yang unik ini memungkinkan zeolit mempunyai sifat utama yaitu ; sebagai adsorber, penukar ion, penyaring molekul dan katalis. Sifat penukar ion disebabkan oleh struktur sangkar zeolit mengandung atom Al dan Si ( $Al^{3+}$  dan  $Si^{4+}$ ), berkoordinasi dengan atom O (oksigen) dalam bentuk  $(AlO_4)^5-$  dan atau  $(SiO_4)^4-$

(tetrahedra alumina silikat), sehingga atom Al akan bermuatan negatif dan selalu dinetralkan oleh logam alkali atau alkali tanah yang akhirnya dapat bersifat *exchangers*. Rumus kimia zeolit dalam kristalografi dalam sel satuan Dyer A [2] :



dimana n adalah valensi logam (M), x dan y adalah jumlah tetrahedra alumina silikat dalam sel satuan, sedangkan rasio x/y atau  $SiO_2/Al_2O_3$  nilainya bervariasi mulai dari 1 hingga 5, dan w adalah jumlah molekul air.

Dalam sel satuan, rumus kimia struktur sangkar klinoptilolit dan mordenit berturut-turut adalah :



Bila fasa klinoptilolit dalam bentuk poli kation K-Mg, maka rumus struktur sangkar klinoptilolit dalam sel satuan menjadi :  $(K)_4 (Mg) (Al_6 Si_{30} O_{72}) 28 H_2O$  dan bila fasa mordenit dalam bentuk mono kation Na, maka rumus struktur sangkar mordenit dalam sel satuan menjadi  $Na_8 (Al_8 Si_{40} O_{96}) 22 H_2O$  [3].

Kedua jenis zeolit ini mengandung silikat tinggi dan membingungkan para peneliti, karena mempunyai profil pola struktur hampir mirip. Perbedaan kedua jenis zeolit ini terletak pada jumlah atom Si dan Al. Untuk klinoptilolit jumlah atom Si = 30, Al = 6 dan O = 72, grup ruang C2/m No. 12 dengan kisi Bravais *base-centered* monoklinik simbol kisi C. Sedangkan mordenit memiliki jumlah atom Si = 40, Al = 8 dan O = 96, grup ruang Cmcn No. 63 dengan kisi Bravais *base-centered* ortorombik, simbol kisi C.

Zeolit mordenit telah berhasil disintesis berkali-kali oleh Breck D.W. Zeolit ini menarik perhatian dengan ditemukan mempunyai sifat penyaring molekul (*molecular-sieving*) yang dikembangkan oleh D.W. Breck [3]. Sedangkan zeolit klinoptilolit sulit disintesis. Zeolit ini hanya didapatkan di alam dengan kemurnian yang tinggi. Berdasarkan sifat penukar ion zeolit klinoptilolit telah dikembangkan oleh D.W. Breck [3] yang diaplikasikan ke dalam penyerapan limbah radio aktif hasil fisi seperti : Cs-137 dan Sr-90. Sifat penukar ion dari zeolit telah dikembangkan pula oleh Thamzil Las [4] yang menginformasikan bahwa zeolit yang telah dimurnikan asal Bayah tergolong ke dalam jenis zeolit yang mengandung campuran dua fasa yakni fasa klinoptilolit dan mordenit dengan kemurnian  $\pm 78,19\%$  sisanya silikat, felspar dan pengotor lainnya  $\pm 21,81\%$ .

Penelitian sebelumnya melaporkan bahwa zeolit asal desa Suwakan kecamatan Bayah Selatan telah dikembangkan oleh Supandi dan Thamzil Las [5]. Dari penelitian tersebut diinformasikan bahwa zeolit Bayah merupakan campuran klinoptilolit dan mordenit dengan komposisi fraksi berat masing-masing 59,26 % (klinoptilolit) dan 40,74% (mordenit). Namun penelitian tersebut tidak mencerminkan daerah seluruh Bayah yang luas meliputi beberapa desa diantaranya desa Pasir Gombong Kecamatan Bayah Utara.

Penelitian ini bertujuan untuk mengidentifikasi jenis zeolit alam secara kualitatif dan kuantitatif dengan

metode *Rietveld* dan akan dicoba menggunakan sumber target Co-K $\alpha$   $\lambda = 1,788965 \text{ \AA}$ . Zeolit bentuk poli/mono kation setiap fasa akan ditentukan pula.

Dengan teridentifikasinya zeolit ini diharapkan para pengguna atau peneliti dapat memilih jenis zeolit yang sesuai dengan sifatnya untuk diaplikasikan pada percobaan selanjutnya, seperti jenis zeolit klinoptilolit baik untuk penukar ion dan mordenit untuk katalisator. Perlu diketahui bahwa tiap daerah di Indonesia memiliki cadangan jenis zeolit berbeda.

## METODE PERCOBAAN

### Bahan

Sampel yang dipilih untuk diteliti adalah beberapa sampel dari daerah Bayah dan standar zeolit. Dalam penelitian ini digunakan serbuk standar zeolit mordenit (USA) dan zeolit alam diperoleh dari PT. Prodminter Nusa pada lokasi desa Pasir Gombong, Kecamatan Bayah Utara, Kabupaten Lebak Propinsi Banten. Bongkahan sampel zeolit ini sebelum dianalisis, dilakukan peremukan, penghalusan, pengayakan dan pemanasan sampai dengan suhu 200 °C selama 3 jam. Kemudian dilakukan pencucian dengan cara *refluks* selanjutnya dimurnikan dengan metode ekstraksi menggunakan metil iodida [4]. Bahan yang telah dimurnikan kemudian disebut zeolit Bayah murni.

### Alat dan Pengambilan data

Difraktometer Sinar-X (XRD) P3IB-BATAN yang digunakan adalah buatan Shimadzu Type ZD-610 yang dilengkapi : Generator Sinar-X, Goniometer jenis VG-100 R type horizontal, Sistem pencacah dan Sistem pemroses data yang berisi program dalam komputer (sistem DP-610). Kurang lebih 1 gram sampai dengan 2 gram serbuk zeolit murni dan standar mordenit diletakkan di atas *sample holder* dari pelat aluminium dengan ukuran 2 cm x 1,2 cm, diratakan dan sesekali ditekan pelan-pelan dengan spatula. Setelah sampel nampak merata dan kompak, kemudian *sample holder* tersebut diletakkan di atas dudukan sampel pada alat XRD. Pengambilan data dilakukan pada kondisi *mode step* (untuk analisis program *RIETAN*) dengan parameter operasi seperti pada Tabel 1 berikut ini :

Selanjutnya data intensitas difraksi dari sampel tersebut dianalisis dengan metode *Rietveld* menggunakan program *RIETAN* yang dipasang pada komputer *Macintosh*.

**Tabel 1.** Data parameter operasi XRD Shimadzu type XD-610.

X-Ray Tube	SLIT	Scanning
Target = Co-K $\alpha$	Divergence slit = 1 deg	Scan mode = step
Voltage = 30 Kv	Scattered slit = 1 deg	Scan speed = 0.06 deg
Current = 30 mA	Receiving slit = 0,06 mm	Sampling pitch = 0.05 deg
$\lambda = 1,788965 \text{ \AA}$	Full scale = 1 kcps	Sudut 2 $\theta$ = 5 - 55 deg

### Analisis Rietveld

Analisis penghalusan (*refinement*) dengan Program *RIETAN* dilakukan dengan cara memasukkan dua jenis data yakni data parameter struktur dan intensitas difraksi sinar-X. Data parameter struktur adalah data masukan model perhitungan yang diambil dari referensi sebagai acuan. Sedangkan data intensitas berasal dari intensitas difraksi sinar-X cuplikan zeolit alam dan standar mordenit. Kemudian kedua data parameter struktur dan intensitas difraksi sinar-X dari cuplikan tersebut dianalisis dengan metode *Rietveld* menggunakan Program *RIETAN*. Penghalusan dilakukan dengan menggunakan cara *Nonlinear Least-Squares Fitting by the Maquardt Method* [6].

### Analisis Crystal Maker

Gambar struktur 3D, panjang dan sudut ikatan hasil analisis penghalusan (*refinement*) dengan Program *RIETAN* diperoleh dengan cara memasukkan dua jenis data yakni data hasil akhir parameter struktur dan grup ruang (*space group*) kisi *Bravais*. Data parameter struktur adalah data parameter kisi, geometri sudut, posisi atom yang diambil dari data hasil penghalusan *RIETAN*. Sedangkan grup ruang berasal dari referensi sebagai acuan. Kemudian kedua data tersebut dianalisis dengan program *Crystal Maker* menggunakan komputer *Macintosh 7100/80 w* [7].

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Berdasarkan hasil percobaan analisis komposisi kimia zeolit Bayah Utara dengan XRF dan AAS oleh Thamzil Las [8] disajikan pada Tabel 2. Dari Tabel 2 dapat disusun kandungan unsur alkali dan alkali tanah berturut-turut adalah :  $K > Ca > Fe > Mg > Na > Mn$ . Dengan demikian zeolit Bayah tersebut diasumsikan sebagai zeolit dalam bentuk poli kation dan mengandung alkali dan alkali tanah, kadar K tertinggi, diikuti Ca, Mg, Na dan terendah Mn. Hal ini sesuai dengan masukan data kristal *X-Ray Single Crystal Refinement* dan posisi atom hasil penelitian Gramlich V. [9], Koyama K. dan Takeuchi Y [10].

**Tabel 2.** komposisi kimia zeolit Bayah Utara hasil analisis XRF dan AAS.

Oksida	% w/w	Unsur	% w/w
SiO <sub>2</sub>	62,81	Si	29,31
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14,25	Al	7,54
K <sub>2</sub> O	2,81	K	2,33
CaO	2,36	Ca	1,69
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,46	Fe	1,02
MgO	1,17	Mg	0,71
Na <sub>2</sub> O	0,20	Na	0,15
MnO <sub>2</sub>	0,07	Mn	0,04
H <sub>2</sub> O	14,89	-	14,89
Rasio : SiO <sub>2</sub> / Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> = 4,41			

### Penghalusan Fasa Mordenit dan Klinoptilolit

Penghalusan dilakukan dengan cara mengasumsikan bahwa zeolit Bayah mengandung campuran dua fasa yakni fasa mordenit bentuk poli kation memiliki data parameter struktur [9] : simetri grup ruang = *Cmcm* (No. 63), sistem kristal = Ortorombik, parameter kisi  $a = 18,11$ ,  $b = 20,53$ ,  $c = 7,528 \text{ \AA}$ , sudut antar sumbu  $\alpha = 90,0^\circ$ ,  $\beta = 90,0^\circ$ ,  $\gamma = 90,0^\circ$ , dan klinoptilolit bentuk poli kation dengan parameter struktur [9] : simetri grup ruang = *C12/m1* (No. 12), sistem kristal = Monoklinik, parameter kisi  $a = 17,662$ ,  $b = 17,911$ ,  $c = 7,407 \text{ \AA}$ , sudut antar sumbu  $\alpha = 90,0^\circ$ ,  $\beta = 116,4^\circ$ ,  $\gamma = 90,0^\circ$ .

Tahapan penghalusan (*refinement*) dilakukan dengan cara memasukan *species* atom dari urutan kadar unsur tertinggi dalam zeolit pada masing-masing fasa secara *trial and error* hingga diperoleh nilai konvergen. Dari hasil akhir penghalusan dengan *RIETAN* secara *trial and error* ternyata diperoleh fasa mordenit dalam bentuk poli kation Ca-Na dan fasa klinoptilolit bentuk poli kation K-Mg.

Data parameter struktur zeolit Bayah hasil penghalusan akhir *RIETAN* disajikan pada Tabel 3. Dimana  $g$  = faktor hunian,  $W_{cf}$  = posisi *Wyckoff*,  $x,y,z$  = koordinat atom,  $R$  = indeks reliabilitas,  $R_{wp}$  = R- bobot pola difraksi,  $R_l$  = R-intensitas *Bragg*,  $R_f$  = R-faktor struktur truktur dan  $S$  = *goodness-of-fit*.

Data parameter struktur tersebut menggambarkan data posisi atom, parameter kisi, fraksi massa dan lain-lain hasil penghalusan *RIETAN* dari struktur sangkar zeolit Bayah. Dari hasil analisis diperoleh konfirmasi bahwa zeolit alam Bayah mengandung campuran dua fasa yakni fasa klinoptilolit grup ruang *C2/m* bersistem kisi *Bravais base-centered* monoklinik dan mordenit grup ruang *Cmcm* bersistem kisi *Bravais base-centered* ortorombik dengan perbandingan 33,13 % : 66,87 %. Ternyata bahwa pada daerah lokasi ini didominasi oleh fasa mordenit, sedangkan hasil penelitian sebelumnya pada daerah lokasi Desa Suwakan Bayah Selatan mengandung fraksi berat sebaliknya, yakni didominasi oleh fasa klinoptilolit [4,5]. Kualitas *fitting (criteria-of-fit)* diperoleh  $R_{wp} = 10,34 \%$  dan *goodness-of-fit*,  $S = 1,5904$ .

Dari Tabel 3 terlihat bahwa data parameter struktur fasa klinoptilolit pada atom Mg dan K (K1 dan K2), diperoleh faktor hunian untuk atom Mg,  $g = 0,04(3)$  dan K : K1,  $g = 1,04(4)$  dan K2,  $g = 0,5(\text{fix})$  dengan jumlah atom dalam sel satuan berturut-turut adalah 0,1592 (atom Mg) dan 5,1687 (atom K), sehingga diperoleh rumus kimia kristalografi dalam sel satuan adalah  $K_{5,17} Mg_{0,16} (Al_6 Si_{30} O_{72}) 24 H_2O$ . Sedangkan data parameter struktur fasa mordenit pada atom Ca dan Na (Na1 dan Na2), diperoleh faktor hunian ( $g$ ) untuk atom Ca = 0,28(2) ( dan Na (Na1 = 1,00 dan Na2 = 0,41(3) dengan jumlah atom dalam sel satuan berturut-turut adalah 1,1310 (atom Ca) dan 5,6268 (atom Na), sehingga fasa mordenit

**Tabel 3.** Data parameter struktur campuran zeolit Bayah, hasil penghalusan RIETAN.

Fasa Klinoptilolit : R <sub>I</sub> = 2,47, R <sub>F</sub> = 1,05, dan Fraksi berat = 3,13 %						Fasa Mordenit : R <sub>I</sub> = 2,68, R <sub>F</sub> = 1,23, dan Fraksi berat = 66,87 %					
Atom	Wcf	g	x	y	z	Atom	Wcf	g	x	y	Z
Mg	4	0,04(3)	0,2(5)	0,50	0,7(3)	Ca	4	0,28(2)	0,00	0,50	0,00
K1	4	1,04(4)	0,24(4)	0,50	0,33(5)	Na1	4	1,00(fix)	0,00	0,50	0,00
K2	2	0,05(fix)	0,00	0,50	0,00	Na2	4	0,41(3)	0,00	0,37(2)	0,75
Al1	2	1	0,00	0,50	0,50	Al1	4	1	0,00	0,32(1)	0,25
Al2	4	1	0,00	0,25	0,00	Al2	4	1	0,00	0,18(4)	0,25
O1	4	1	0,31(5)	0,50	0,2(1)	O1	16	1	0,14(1)	0,440(5)	0,33(1)
O2	8	1	0,28(7)	0,18(7)	0,6(1)	O2	16	1	0,12(2)	0,156(7)	0,45(1)
O3	8	1	0,2(1)	0,2(1)	0,3(2)	O3	16	1	0,30(4)	0,415(6)	0,43(1)
O4	8	1	0,27(9)	0,1(1)	0,33(6)	O4	8	1	0,08(3)	0,30(2)	0,25
O5	4	1	0,00	0,23(8)	0,50	O5	8	1	0,18(3)	0,15(1)	0,75
O6	8	1	0,03(5)	0,09(2)	-0,2(1)	O6	8	1	0,17(2)	0,307(8)	0,75
O7	8	1	0,22(5)	0,12(3)	0,7(1)	O7	8	1	0,41(2)	0,50	0,50
O8	8	1	0,01(7)	0,3(2)	0,3(2)	O8	8	1	0,25	0,25	0,50
O9	8	1	0,31(7)	0,25(7)	0,3(2)	O9	4	1	0,00	-0,01(1)	0,25
O10	8	1	0,01(8)	0,3(2)	0,3(2)	O10	4	1	0,00	0,13(1)	0,25
Si1	8	1	0,25(8)	0,42(8)	0,7(1)	Si1	16	1	0,268(7)	0,416(3)	0,543(8)
Si2	8	1	0,26(5)	0,21(7)	0,8(1)	Si2	16	1	0,19(1)	0,198(3)	0,545(8)
Si3	8	1	0,03(3)	0,42(2)	0,26(2)	Si3	8	0,5	0,08(1)	0,38(1)	0,25
Si4	2	1	0,00	0,00	0,46(2)	Si4	8	0,5	0,08(1)	0,19(4)	0,25
Si5	4	1	0,52(5)	0,26(4)	0,00	-	-	-			

Kualitas fitting : Sumber Target : Co-K $\alpha$ ,  $\lambda = 1,788965 \text{ \AA}$ . Memeberikan tingkat reliabilitas R<sub>wp</sub> = 10,34 % dan S = 1,5904, dengan data parameter kisi :

Fasa klinoptilolite : a = 18,01(3)  $\text{ \AA}$ , b = 17,93(3)  $\text{ \AA}$  dan c = 7,44(3)  $\text{ \AA}$ , grup ruang C2/m, monoklinik, jumlah atom dalam sel satuan : Mg = 0,159, K = 5,168, Al = 6, Si = 30 dan O = 72

Fasa Mordenit : a = 18,115(8)  $\text{ \AA}$ , b = 20,520(9)  $\text{ \AA}$  dan c = 7,515(2)  $\text{ \AA}$ , grup ruang Cmc, ortorombik, jumlah atom dalam sel satuan : Ca = 1,13, Na = 5,63, Al = 8, Si = 40 dan O = 96

diperoleh rumus kimia kristalografi dalam sel satuan adalah Na<sub>5,63</sub>Ca<sub>1,13</sub>(Al<sub>8</sub>Si<sub>40</sub>O<sub>96</sub>) 22 H<sub>2</sub>O. Jumlah atom n dari kedua fasa zeolit tersebut adalah hasil dari perkalian *Wyckoff position* dengan faktor hunian (g) seperti yang terlihat data parameter struktur pada Tabel 3.

Untuk lebih meyakinkan dan kesempurnaan penelitian ini, pada tahap awal diukur data intensitas difraksi dari standar mordenit. Kondisi parameter operasi instrumen sama dengan cuplikan zeolit Bayah. Pengukuran standar mordenit ini bertujuan untuk membandingkan pola difraksi fasa mordenit dalam zeolit alam Bayah. Profil pola difraksi mordenit dan zeolit alam Bayah hasil penghalusan RIETAN disajikan pada Gambar 1.

Hasil akhir penghalusan RIETAN fasa klinoptilolit bentuk poli kation K, Mg dan mordenit bentuk poli kation Ca, Na, terlihat bahwa puncak-puncak hasil perhitungan garis malar (3/4) mendekati kesesuaian dengan puncak-puncak hasil pengamatan *marker (+)*, berarti bahwa proses penghalusan telah mendekati kesempurnaan yang telah memberikan nilai kesesuaian (*criteria-of-fit*), *goodness-of-fit*, S = 1,5904.

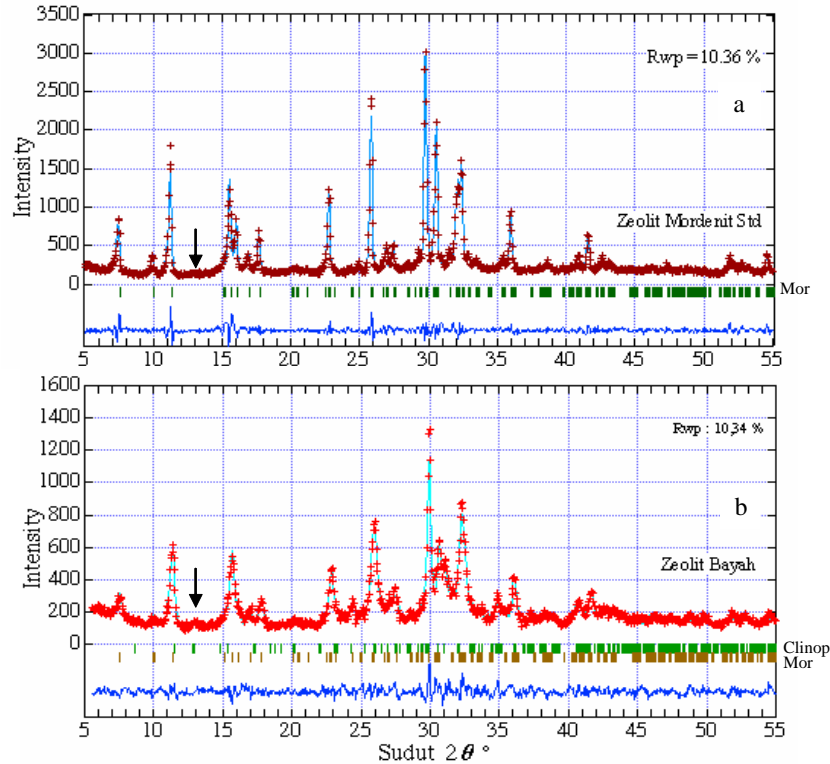
### Profil Pola Difraksi Hasil Penghalusan RIETAN

Pada Gambar 1 terlihat bahwa tiga puncak *Bragg* indeks *Miller* tunggal dengan intensitas cukup tinggi

pada daerah skala sudut  $2\theta = 5^\circ - 15^\circ$  yang dapat memberikan ciri yang nyata untuk membedakan milik fasa mordenit dan klinoptilolit, sedangkan di atas sudut  $2\theta = 15^\circ$  memiliki puncak *Bragg* ganda yang lebar, indeks fasa (indeks *Miller*) ganda dan menumpuk, sehingga sulit teridentifikasi dan dengan *Background* yang tinggi. 3 (tiga) puncak *Bragg* milik fasa mordenit (Gambar 1a) pada bidang (110) (020) dan (200) masing-masing terletak pada sudut  $2\theta = 7,553^\circ, 10,003^\circ$  dan  $11,335^\circ$  yang berimpit dengan puncak *Bragg* milik fasa klinoptilolit terletak pada sudut  $2\theta = 11,451^\circ$  bidang (020) dan 2 (dua) puncak *Bragg* milik fasa klinoptilolit terletak pada sudut  $2\theta = 8,603^\circ$  bidang (110) dan puncak yang dapat membedakan dengan jelas antara fasa klinoptilolit dan mordenit terletak pada sudut  $2\theta = 12,865^\circ$  (lihat tanda panah), bidang (200) milik fasa klinoptilolit (Gambar 1b).

### Crystal Maker

Gambar 2 adalah bentuk struktur sangkar zeolit mordenit dalam ruang tiga dimensi (3D) hasil penghalusan (*refinement*) dengan RIETAN. Data parameter struktur : simetri grup ruang : Cmc (No. 63), sistem kristal : Ortotorombik, parameter kisi : a = 18,11  $\text{ \AA}$ , b = 20,53  $\text{ \AA}$ , c = 7,528  $\text{ \AA}$ , sudut antar sumbu :  $\alpha = 90,0^\circ, \beta = 90,0^\circ, \gamma = 90,0^\circ$ , koordinat atom Mordenit dalam unit sel hasil percobaan Gramlich V, dan Meier W.M [9,10,11] adalah sebagai



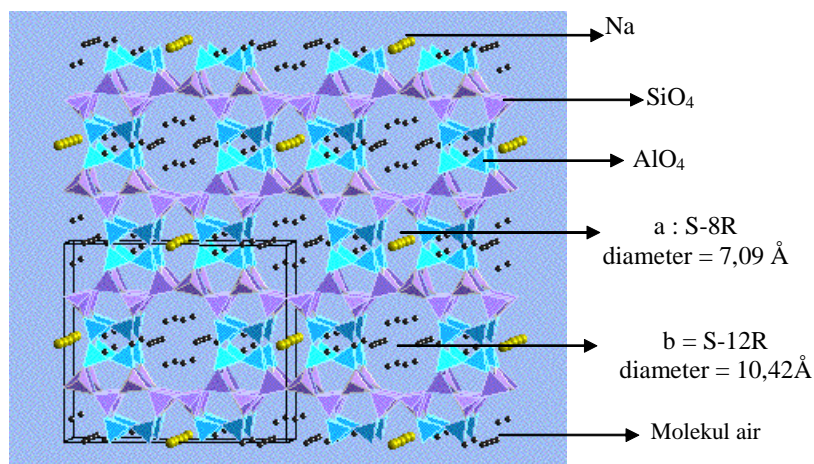
**Gambar 1.** Profil pola difraksi zeolit alam hasil penghalusan RIETAN a) Zeolit mordenit standar dan b) Zeolit alam Bayah (sumber target Co-K $\alpha$ ,  $\lambda = 1,788965 \text{ \AA}$ ).

data masukan untuk menggambar bentuk struktur sangkar dengan menggunakan program *Crystal Maker*. Pada gambar tersebut terlihat bahwa struktur sangkar mordenit mempunyai kelas *Secondary Building Units*, SBU : 5-1 yang memiliki 2 (dua) saluran utama. Saluran pertama dibatasi 8 oksigen (S-8R), berdiameter 7,09  $\text{\AA}$ , ditempati oleh atom Al sebagai rantai *tetrahedra alumino silicat*  $[\text{SiO}_4]^{4-}/[\text{AlO}_4]^{5-}$  mengikat atom ( $\text{Ca} > \text{Na}$ ), saluran ke dua lebih besar dibatasi

12 oksigen (S-12R), berdiameter 10,42  $\text{\AA}$ , mengandung atom Si sebagai rantai *Tetrahedra Silica*  $[\text{SiO}_4]^{4-}$  hanya ditempati oleh molekul air, seperti terlihat pada Gambar 2.

## KESIMPULAN

Hasil akhir penghalusan dengan RIETAN memberikan tingkat reliabilitas  $R_{wp}$  sebesar 10,34%



**Gambar 2.** Struktur sangkar mordenit dalam ruang tiga dimensi hasil program *Crystal Maker* a) rongga pertama S-8R ditempati oleh logam alkali dan b) rongga kedua S-12R lebih besar ditempati oleh molekul air.

dan  $S = \text{goodness-of-fit}$ ,  $S = 1,5904$  dan dapat disimpulkan :

1. Zeolit Bayah Desa Pasir Gombang Kecamatan Bayah Utara mengandung campuran 2 (dua) fasa yang didominasi oleh fasa mordenit yakni :
  - fasa mordenit bentuk poli kation Ca-Na dengan fraksi berat 66,87 % dan komposisi rumus kimia adalah  $\text{Na}_{5,63}\text{Ca}_{1,13}(\text{Al}_8\text{Si}_{40}\text{O}_{96})_{22}\text{H}_2\text{O}$ .
  - fasa klinoptilolit bentuk poli kation K-Mg dengan fraksi berat 33,13 % dan komposisi rumus kimia adalah :  $\text{K}_{5,17}\text{Mg}_{0,16}(\text{Al}_6\text{Si}_{30}\text{O}_{72})_{24}\text{H}_2\text{O}$
2. Berdasarkan hasil penelitian ini dan dibandingkan dengan penelitian terdahulu, dikonfirmasi bahwa zeolit berasal dari daerah Kecamatan Bayah Kabupaten Lebak Propinsi Banten mengandung fasa zeolit dan fraksi berat berbeda pada setiap lokasi.
3. Manfaat zeolit mordenit baik untuk katalisator, penyaring molekul dan pengering, karena pada saluran (*channel*) pertama lebih kecil dibatasi 8 oksigen berdiameter 7,09 Å, mengandung atom Al sebagai rantai *tetrahedra alumino silicat*  $[\text{SiO}_4]^{4-}/[\text{AlO}_4]^{5-}$  sehingga memiliki sifat penukar ion lebih rendah dibanding zeolit klinoptilolit, saluran (*channel*) ke dua lebih besar dibatasi 12 oksigen berdiameter 10,42 Å, mengandung atom Si sebagai rantai *tetrahedra silicat* hanya ditempati oleh molekul air.

- [6]. IZUMI F., *Rietveld Analysis System*, RIETAN Part I. A Software Package for the Rietveld Analysis and Simulation of X-Ray and Neutron Diffraction Patterns, Rigaku J-6, No. 1, 10 (1989)
- [7]. D.PALMER., *Crystal Maker Interactive Crystallography for Macintosh*, Version 1-1 – User Manual, Lynxvale Ltd, 20 Trumpington Street, Cambridge, England (1995)
- [8]. THAMZIL LAS., *Use of Natural Zeolite for Nuclear Waste Treatment*, *PhD Thesis*, Dept. Applied Chemistry, University of Salford, England (1989)
- [9]. V.GRAMLICH, *PhD Dissertation*, ETH, Zurich (1971)
- [10]. K.KOYAMA and Y.TAKEUCHI Z., *Kristallogr.* **145** (1977) 216-239
- [11]. MEIER W.M., *The Crystal Structure of Mordenit (ptilolite)*, California Institute of Technology, Pasadena, California, Bd. 115, S 439-449 (1961)
- [12]. TSITSISHVILI G.V., et. al., *Natural Zeolit*, Ellis Horwood Limited (1992)
- [13]. ALBERTI A., DAVOLI P., and VEZZALINI., *The Crystal Structure Refinement of a Natural Mordenit*, *Zeitschrift Kristallographie*, **175** (1986)
- [14]. KARL.F. FISCHER, *Zeolite Structure Refinement*, Institute fuer Kristallographie, Universitaet des Saarlandes, Saarbruecken, Germany.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis menyampaikan terima kasih kepada Kepala PTBIN, Kepala Bidang Spektrometer yang telah membantu sepenuhnya dan membina serta mengoreksi demi kesempurnaan makalah ini. Penulis juga menyampaikan terima kasih kepada Kepala Kelompok, staf dan teknisi, ketua dan anggota KPTF serta semua pihak yang telah membantu dan memberikan dorongan hingga selesainya penelitian ini.

## DAFTARACUAN

- [1]. SMITH. J. V., *Topochemistry of Zeolites and Related Material I, Topology and Geometry*, *Chem. Rev.*, **88** (1988) 149-182
- [2]. DYER. A., *An Introduction to Zeolite Molecular Sieve*, John Weley & Sons Ltd, Chchester (1988).
- [3]. BRECK. D. W., *Zeolite Molecular Sieves*, John Wiley Interscience, New York (1974)
- [4]. THAMZIL LAS, *Pemanfaatan Zeolit Untuk Pengolahan Limbah Radioaktif*, Presentasi Ilmiah Hasil Studi Program Doktor (S-3), *Risalah Presentasi Ilmiah*, Badan Tenaga Atom Nasional, Jakarta (1993) 525 – 547
- [5]. SUPANDI, dan THAMZIL LAS, *Analisis Struktur Zeolit Alam Bayah dengan Metode RIETAN*, *Prosiding Pertemuan Ilmiah Sains Materi* (1998), Serpong (1988)