

## PENGARUH HOMOKATION PERMUKAAN BENTONIT TERHADAP PENYERAPAN KATION Cs DAN Sr

Adel Fisli, Saeful Yusuf dan Deswita

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN  
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang

### ABSTRAK

**PENGARUH HOMOKATION PERMUKAAN BENTONIT TERHADAP PENYERAPAN KATION Cs DAN Sr.** Dipelajari pengaruh modifikasi bentonit lokal dengan cara substitusi kation permukaan dengan kation Na dan Ca terhadap penyerapan kation Cs dan Sr. Proses substitusi kation dilakukan penjujukan bentonit dengan larutan garam NaCl (Na-bent) dan CaCl<sub>2</sub> (Ca-bent). Sedangkan penyerapan kation Cs dan Sr dilakukan dengan metode *batch* yang dikocok selama 24 jam dalam pH larutan antara 2 sampai dengan 10. Hasil yang diperoleh, terjadi kenaikan nilai rasio konstanta distribusi ( $K_d$ ) [ $K_d$  Na-bent/ $K_d$  Alam-bent] sekitar 1,9-2,8 kali untuk kation Cs dan 1,4-2,6 kali untuk unsur Sr. Nilai ratio  $K_d$  [ $K_d$  Ca-bent/ $K_d$  bent alam] juga naik sekitar 4,3-5,7 kali untuk kation Cs dan 2,0-4,5 kali untuk kation Sr. Disimpulkan bahwa homokation permukaan bentonit meningkatkan daya serap terhadap kation Cs dan Sr. Ca-bentonit menyerap Cs dan Sr lebih tinggi dari pada Na-bent.

**Kata kunci :** Bentonit, penyerapan, cesium, strontium, homokation

### ABSTRACT

**THE EFFECTS OF SURFACE HOMOCATION OF BETONITE TO Cs AND Sr CATION ADSORPTIONS.** The effects of modified local betonite on surface by substitution of Na and Sr cations to Cs and Sr cation adsorptions have been done. The process of homocations substitution was carried out by bentonite saturation with NaCl and CaCl<sub>2</sub>. Therefore, Cs and Sr cations adsorptions were done by batch method which shaken for 24 hours in pH solution between 2 to 10. The obtained result,  $K_d$  ratio value [ $K_d$  Na-bent/ $K_d$  Alam-bent] was increase 1.9-2.8 time for Cs cation and 1.4-2.6 time for Sr cation.  $K_d$  ratio value [ $K_d$  Ca-bent/ $K_d$  alam-bent alam] is also increase 4.3-5.7 time for Cs dan 2.0-4.5 time for Sr cation. It was concluded that homocation of bentonite surface increased adsorption of Cs and Sr cations. Ca-bent adsorped Cs and Sr cations higher than Na-bent.

**Key words :** Bentonite, adsorption, cesium, strontium, homocationic

### PENDAHULUAN

Pembentukan limbah radioaktif akibat kegiatan operasi fasilitas reaktor nuklir tidak bisa dihindari meskipun berbagai usaha untuk meminimalisasi limbah tersebut telah dilakukan. Bahan radioaktif ini terbentuk salah satunya sebagai akibat dari pembelahan inti bahan bakar yang digunakan, yaitu uranium membelah menjadi radioaktif transuranik (<sup>85</sup>Kr, <sup>89</sup>Sr dan <sup>137</sup>Cs). Khusus, <sup>89</sup>Sr ( $t_{1/2} = 50,55$  hari) dan <sup>137</sup>Cs ( $t_{1/2} = 30,17$  tahun) adalah radionuklida yang mempunyai waktu paro panjang [1,2]. Diusahakan radionuklida ini tidak terlepas ke lingkungan selama proses pengolahan limbah dan pada masa penyimpanan bahan bakar nuklir berlangsung .

Bentonit adalah bahan mineral alam yang serbaguna. Bahan ini telah digunakan dalam berbagai bidang pengguna [3]. Sebagai bahan penyerap (adsorben), bentonit telah digunakan sebagai pengambil kontaminan organik dalam air [4]. Sedangkan, melalui proses pertukaran ion, bentonit dapat menyerap bahan

kontaminan metalik dengan baik. Sifat pertukaran ini berasal dari muatan negatif yang ada dalam jaringan kristalin bentonit, yang dapat mengikat spesies kontaminan yang bermuatan positif seperti kation logam, baik yang bersifat radioaktif maupun non-radioaktif [5-7].

Bentonit mengandung mineral *montmorillonite* atau dikenal dengan mineral *phyllosilicate* 2:1, artinya silikat yang berbentuk lembaran yang strukturnya terdiri dari lapisan oktahedral yang disusun oleh Al(O,OH). Sedangkan kedua sisi lapisan oktahedral ini diapit oleh 2 (dua) lapisan tetrahedral yang disusun oleh Si(O,OH). Dengan adanya substitusi unsur dengan bilangan oksidasi lebih rendah, seperti; Si<sup>4+</sup> digantikan dengan Al<sup>3+</sup> (dalam lapisan tetrahedral) atau Al<sup>3+</sup> digantikan dengan Mg<sup>2+</sup> atau Fe<sup>2+</sup> (dalam lapisan oktahedral) maka strukturnya bermuatan negatif secara permanen. Untuk mengimbangi muatan negatif ini, bahan ini mengikat

kation-kation lain seperti kation monovalensi ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{H}^+$ ) dan kation divalensi ( $\text{Ca}^{2+}$  dan  $\text{Mg}^{2+}$ ). Kation-kation ini terikat secara longgar dan dapat dipertukarkan dengan kation-kation lain. Kemampuan pertukaran ion dari bentonit ini bergantung pada jenis dan kuantitas dari kation-kation pengimbang ini, faktor lain seperti bentuk kisi kristal dapat juga mempengaruhi meskipun nilainya rendah. Rumus kimia ideal dari *montmorillonite* ini adalah  $\text{Si}_8(\text{Al}_{3,34}\text{Mg}_{0,66})\text{O}_{20}(\text{OH})_4\text{M}_{0,66}\cdot\text{H}_2\text{O}$ , dimana M adalah (Na, Ca, H, Mg). Kelakuan sifat bentonit, juga bergantung pada kation M ini. Sebagai contoh, Na-bentonit dan Ca-bentonit dimana, Na-bentonit dalam air volumenya meningkat mencapai 14 kali, sedangkan Ca-bentonit praktis tidak mengalami perubahan [2,8]

Tujuan penelitian ini mempelajari sifat penyerapan bentonit setelah melalui proses penyeragaman kation permukaannya dengan kation Na dan Ca. Sedangkan uji penyerapan bahan ini dipelajari menggunakan kation Cs dan Sr yang terlarut dalam air. Sistem penyerapan dilakukan dengan sistem *batch* dengan variasi pH dari 2 sampai dengan 10. Data penyerapan ditampilkan dalam konstanta distribusi ( $K_d$ ) menggunakan rumus sebagai berikut.

$$K_d (\text{mLg}^{-1}) = \frac{\text{Jumlah kation terserap pada bentonit}}{\text{Jumlah kation dalam larutan}} \times \left(\frac{V}{M}\right)$$

V = Volume larutan (mL)

M = berat bentonit (g)

## METODE PERCOBAAN

### Bahan dan Alat

Dalam penelitian ini bahan yang diperlukan meliputi; bentonit lokal berasal dari daerah Sukabumi. Bahan ini diperoleh dari PT Krismalindo Primasakti. Bentonit diterima sudah dalam bentuk bubuk kering ukuran butir 200 *mesh*. Bahan kimia/standar yang diperlukan dalam penelitian ini adalah:  $\text{CsNO}_3$  (Merck),  $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  (Merck), NaCl dan  $\text{CaCl}_2$  teknis, NaOH 1M dan  $\text{HNO}_3$  1M. Sedangkan alat yang digunakan Kromatografi ion Shimadzu, sentrifuse, *magnetic stirrer*, pH meter dan *hot plate*.

### Cara Kerja

#### Pemurnian Bentonit (Alam-bent)

500 gram serbuk bentonit diletakkan dalam gelas piala 1L, kemudian dipanaskan dalam oven pada suhu 105 °C selama 3 jam. Bentonit kering ini disimpan dalam desikator. 40 gram serbuk bentonit kering dimasukkan kedalam 2 L air destilasi. Untuk memecah gumpalan-gumpalan partikel bentonit diberi gelombang *ultra sonic* selama 15 menit pada daya 750W. Suspensi dibiarkan selama 3 hari. Fraksi yang melayang diambil dengan cara menuang ke wadah lain, selanjutnya diuapkan sampai

kering. Padatan yang diperoleh dikeringkan dalam oven pada suhu 105 °C selama 4 jam sampai dengan 5 jam. Padatan digerus sampai menjadi bubuk dan disimpan dalam desikator. Sampel ini diberi kode (Alam-bent).

#### Pembuatan Na-bentonit (Na-bent) dan Ca-bentonit (Ca-bent)

Sejumlah 40 gram serbuk bentonit kering dimasukkan kedalam 2 L air destilasi dan diperlakukan *ultra sonic* selama 15 menit pada daya 750W. Suspensi ini dibiarkan selama 3 hari. Fraksi yang melayang dituang ke wadah lain dan ditambahkan garam NaCl. Jumlah NaCl yang ditambahkan diperhitungkan sehingga membentuk larutan NaCl 1 M dalam suspensi bentonit. Campuran ini diaduk dengan menggunakan alat *magnetic stirrer* selama 24 jam pada suhu kamar. Setelah itu, suspensi bentonit disentrifugasi selama 15 menit pada kecepatan 4000 rpm. Endapan yang terbentuk dicuci dengan air demineralisasi sampai air cucian endapan ini konduktivitasnya sekitar 100 mS/cm. Endapan dikeringkan pada suhu 105 °C selama 4 jam sampai dengan 5 jam, selanjutnya digerus sampai menjadi bubuk dan disimpan dalam desikator vakum. Sampel ini diberi kode (Na-bent). Sedangkan pembuatan sampel Ca-bentonit sama dengan pembuatan sampel Na-bentonit, tetapi garam yang digunakan adalah  $\text{CaCl}_2$ , sampel ini diberi kode (Ca-bent).

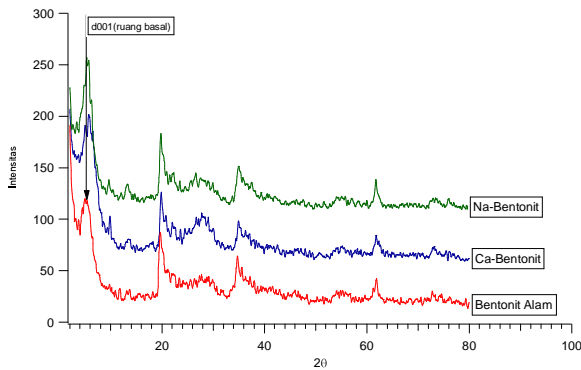
#### Penyerapan Logam Cs dan Sr

Sejumlah 0,3 gram masing-masing jenis bentonit (Alam-bent, Na-Bent dan Ca-Bent) dilarutkan dalam 45 mL air demin. Campuran ini (suspensi) diaduk selama 15 menit dengan bantuan *magnetic stirrer* pada suhu kamar 5 mL larutan standar  $\text{Cs}^+$  10.000 mg/L atau  $\text{Sr}^{2+}$  10.000 mg/L dimasukkan kedalam suspensi bentonit. Setelah itu pH larutan diatur pada rentang 2 sampai dengan 10. Untuk mengatur larutan kearah asam digunakan larutan  $\text{HNO}_3$  0,1 M dan kearah basa digunakan larutan NaOH 0,1 M. Kemudian suspensi di kocok dengan bantuan alat *Shaker* selama 24 jam pada suhu kamar dengan kecepatan 70 rpm. Setelah itu suspensi disentrifugasi dengan kecepatan 4.000 rpm selama 15 menit. Ion  $\text{Cs}^+$  atau  $\text{Sr}^{2+}$  yang tidak terserap pada bentonit yang berada dalam larutan sisa sentrifugasi diukur konsentrasinya dengan alat kromatografi ion.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

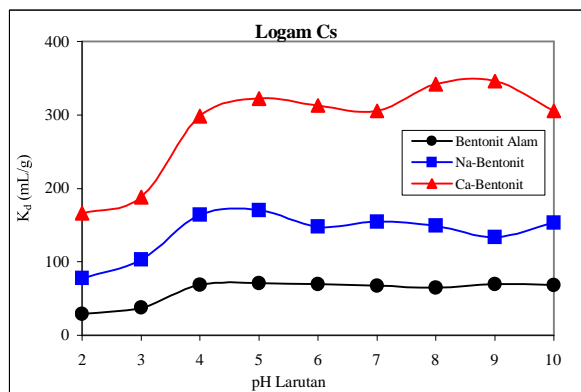
Karakterisasi dengan pemeriksaan dengan difraksi sinar-x dari sampel bentonit alam, Ca-bentonit dan Na-bentonit dapat dilihat dalam Gambar 1. Berdasarkan pola difraksi sinar-x, pengaruh perubahan pertukaran kation permukaan bentonit dengan cara penjujukan dengan NaCl dan  $\text{CaCl}_2$  secara umum tidak mempengaruhi bentuk struktur kristal dari bentonit. Hal ini dapat dilihat pola difraksi untuk ketiga jenis sampel

adalah mirip pada sudut  $2\theta > 10$ . Tetapi ruang basal (jarak antara dua lembaran) bentonit yang ditunjukkan dalam indeks miller  $d_{001}$ , terjadi sedikit pergeseran ke arah  $2\theta$  lebih besar dan juga intensitasnya meningkat dengan tajam setelah bentonit dilakukan perubahan kation permukaannya. Puncak  $d_{001}$  Na-bent intensitasnya lebih ramping dan lebih tinggi bila dibandingkan dengan Ca-bent. Perubahan ini akibat dari pertukaran kation permukaan dari bentonit sehingga mempengaruhi bentuk fisis dari ruang basal bentonit.



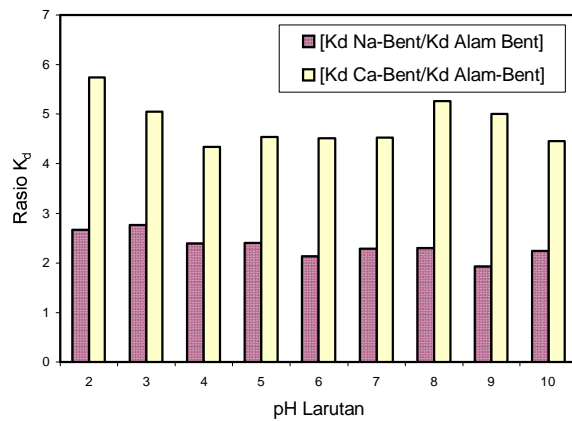
Gambar 1. Pola difraksi sinar-X dari sampel bentonit alam, Ca-bentonit dan Na-bentonit.

Hasil penyerapan ion logam Cs oleh Alam-bent, Na-bent dan Ca-bent dapat dilihat dalam Gambar 2. Dari hasil ini terlihat dengan jelas, bahwa dalam rentang pH 2 sampai dengan pH 4 untuk semua jenis sampel, semakin meningkat pH larutan nilai  $K_d$ -nya juga meningkat. Pada pH rendah nilai  $K_d$  juga rendah, hal ini disebabkan ada persaingan kation Cs dengan kation H dalam larutan untuk berikatan dengan adsorben.



Gambar 2. Hasil penyerapan ion Cs oleh Alam-bent alam, Na-bent dan Ca-bent

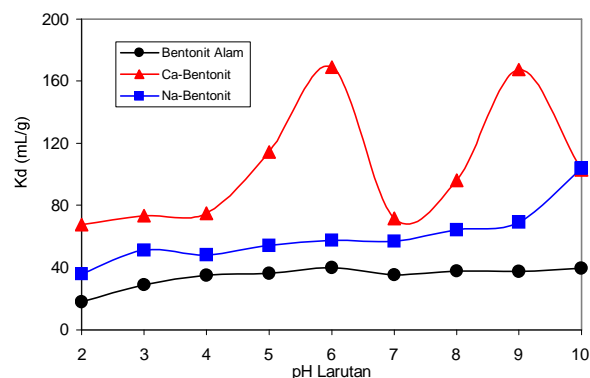
Tetapi pH larutan di atas 4, peningkatan pH larutan tidak banyak berpengaruh terhadap penyerapan kation Cs. Dari data ini juga terlihat dengan jelas bahwa adanya pengaruh homokation permukaan bentonit terhadap penyerapan kation Cs. Dalam pH larutan yang sama, bentonit yang telah mengalami homokation permukaan terjadi peningkatan penyerapan kation Cs bila dibanding bentonit tanpa perlakuan. Sampel Ca-bent menyerap kation Cs lebih tinggi dari pada sampel



Gambar 3. Rasio  $[K_d \text{ Na-bent}/K_d \text{ alam-bent}]$  dan  $[K_d \text{ Ca-bent}/K_d \text{ alam-bent}]$  dari kation Cs.

Na-Bent. Kenaikan  $K_d$  yang dihitung berdasarkan dari rasio  $[K_d \text{ Na-Bent}/K_d \text{ Alam-bent}]$  dan  $[K_d \text{ Ca-bent}/K_d \text{ Alam-bent}]$  dapat dilihat dalam Gambar 3. Kenaikan  $K_d$  dari Alam-bent ke Na-bent dalam pH larutan yang sama berkisar antara 1,9 sampai dengan 2,8 kalinya dengan kenaikan rata-rata  $2,35 \pm 0,26$ . Sedangkan kenaikan  $K_d$  dari Alam-bent alam ke Ca-bent dalam pH larutan yang sama berkisar antara 4,3 sampai dengan 5,7 kalinya dengan kenaikan rata-rata  $4,83 \pm 0,47$ . Untuk kedua sampel, meskipun kenaikannya tertinggi pada pH dibawah empat, tetapi harga  $K_d$ -nya rendah bila dibandingkan dengan pH diatas 4.

Sementara, penyerapan ion  $\text{Sr}^{2+}$  oleh Na-bent dan Ca-bent pada variasi pH 2-10 dapat dilihat dalam Gambar 4. Pada Alam-bent dan Na-bentonit nilai  $K_d$  ada sedikit peningkatan dengan meningkat pH larutan. Lain halnya dengan sampel Ca-bent nilai  $K_d$ -nya berfluktuaksi dalam rentang pH larutan 5-10. Berdasarkan jenis adsorben yang digunakan, sama seperti yang terjadi pada kation Cs, dimana Ca-bent menyerap kation Sr paling tinggi, kemudian diikuti dengan Na-bent dan Alam-bent dalam pH larutan yang sama. Tetapi kenaikan kd pada kation Sr lebih kecil bila dibandingkan dengan kation Cs. Rasio  $[K_d \text{ Na-bent}/K_d \text{ alam-bent}]$  dan  $[K_d \text{ Ca-bent}/K_d \text{ alam-bent}]$  untuk kation Sr dapat dilihat dalam Gambar 4. Kenaikan Kd dari alam-bent ke Na-bent dalam pH larutan yang sama berkisar antara 1,38 sampai

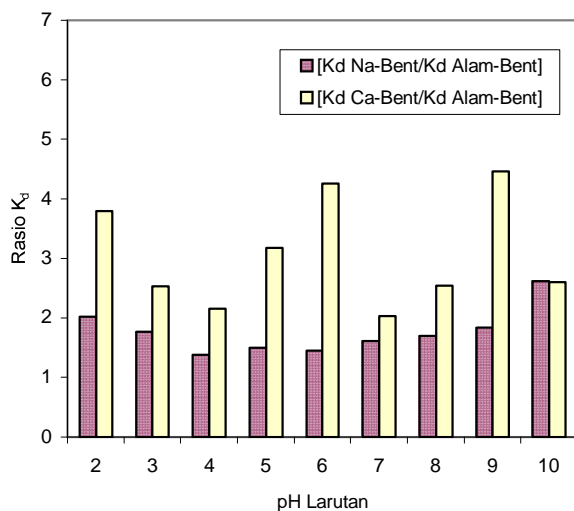


Gambar 4. Hasil penyerapan ion Sr oleh bentonit alam, Na-bent dan Ca-bent.

dengan 2,62 kali dengan rata-rata  $1,76 \pm 0,379$  kali, sedangkan kenaikan dari alam-bent ke Ca-bent berkisar antara 2,0 sampai dengan 4,3 kali dengan kenaikan rata-rata adalah  $3,06 \pm 0,908$  kali.

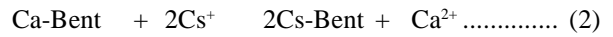
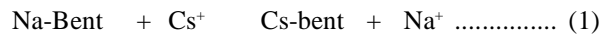
Dari data tersebut diatas diperoleh bahwa homokation pada permukaan bentonit akan mempengaruhi adsorpsi kation dalam larutan. Muatan negatif bentonit tidak hanya berada pada lapisan tetrahedral tetapi juga berada dalam lapisan oktahedral [8]. Pada saat proses homokation permukaan bentonit, ion  $\text{Na}^+$  berikatan hanya pada muatan negatif pada lapisan tetrahedral bentonit (lapisan luar lembaran bentonit) sedangkan kation Ca dapat berikatan tidak hanya pada muatan negatif lapisan tetrahedral tetapi juga muatan negatif yang berada dalam lapisan oktahedral [9]. Kemampuan kation Ca ini masuk kedalam jaringan kristal sampai ke lapisan oktahedral ini disebabkan oleh Ca mempunyai afinitas ikatan yang lebih besar dari kation Na. Sehingga muatan negatif yang berada dalam jaringan kristal lapisan oktahedral mampu menarik ion Ca, sedangkan Na tidak mampu ditarik karena mempunyai afinitas ikatan yang lebih kecil [10]. Secara kuantitas Ca lebih banyak terikat pada bentonit dari pada kation Na. Penelitian yang telah dilakukan [11], penyerapan  $^{137}\text{Cs}$  Illite yang dijenuhkan  $\text{CaCl}_2$  mempunyai  $K_d$  yang lebih tinggi bila dibandingkan dengan illite yang dijenuhkan dengan  $\text{NaCl}$ , tetapi penyerapan  $^{137}\text{Cs}$  oleh montmorillonit yang dijenuhkan dengan  $\text{NaCl}$  lebih tinggi dari pada dijenuhkan dengan  $\text{CaCl}_2$ . Hasil ini kebalikan dari hasil penelitian tersebut diatas. Hal ini mungkin disebabkan oleh faktor dari jenis montmorillonite yang digunakan. Jenis dan sifat kimia montmorillonite sangat tergantung pada lingkungan natural depositnya.

Penyerapan terjadi karena pertukaran ion, dimana suatu ion yang terikat secara elektrostatis pada suatu gugus fungsi bermuatan yang berada pada suatu matrik ditukar dengan ion lain yang berada dalam larutan. Proses pertukaran ion berlangsung akibat dari perbedaan

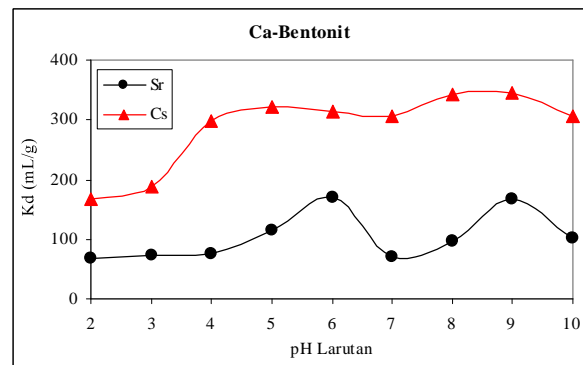
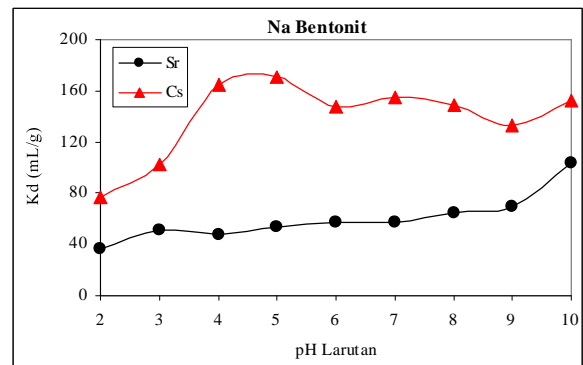
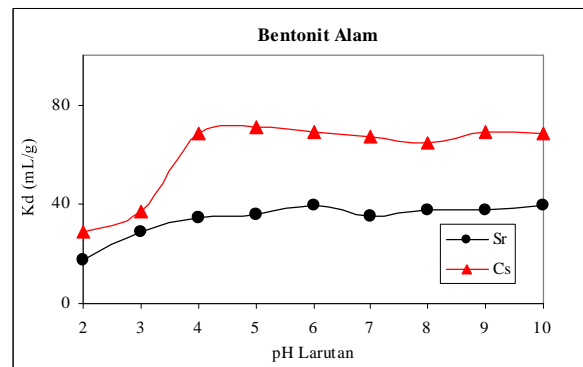


Gambar 5. Rasio [Kd Na-bent/Kd alam-bent] dan [Kd Ca-bent]/Kd alam-bent] dari kation Sr.

afinitas ikatan antara kation yang terikat pada matrik (adsorben) dengan kation yang berada dalam larutan. Reaksi pertukaran ion dari Na-bentonit dan Ca-bentonit dengan kation Cs dan Sr adalah sebagai berikut;



Sebelum proses pertukaran kation terjadi, bentonit mengandung ion negatif mengikat kation Na (Na-bent) atau kation Ca (Ca-bent) secara elektrostatis dan Cs atau Sr adalah kation lain yang berada dalam larutan. Kation Cs dan Sr mempunyai afinitas ikatan lebih besar dari pada kation Na maka Ca maka proses pertukaran dapat berlangsung dengan hasil kation Cs dan Sr menjadi terikat dengan bentonit dan kation Na atau Ca menjadi terbebas di dalam air. Ada beberapa faktor



Gambar 6. Perbandingan penyerapan antara kation Cs dan Sr dalam alam-bent, Na-bent dan Ca-bent.

yang mempengaruhi proses pertukaran ion ini, diantaranya; sifat matriks adsorben (kekuatan asam basanya), afinitas ikatan kation dan pH larutan. Afinitas ikatan kation terhadap adsorben tergantung pada muatan kation dan jari-jari ionik terhidrat dari kation. Muatan semakin besar atau jari-jari ionik terhidrat semakin besar maka afinitas ikatan kation juga semakin besar. Urutan afinitas ikatan terhadap montmorillonite yang dihitung berdasarkan jari-jari terhidrat ionnya adalah;  $\text{Na}^+$  (95 pm) <  $\text{Ca}^{2+}$  (99 pm) <  $\text{Sr}^{2+}$  (113 pm) <  $\text{Cs}^+$  (169 pm) [2,3].

Apabila dibandingkan penyerapan kation  $\text{Cs}^+$  dengan  $\text{Sr}^{2+}$  dalam jenis adsorben yang sama juga jelas berbeda (Gambar 5). Penyerapan  $\text{Cs}^+$  selalu lebih tinggi dari  $\text{Sr}^{2+}$  untuk ketiga jenis bentonit yang digunakan dalam pH larutan yang sama. Kenaikannya bila dihitung berdasarkan nilai  $K_d$  rata-rata dari perbandingan  $K_d \text{Cs}^+ / K_d \text{Sr}^{2+}$  untuk Ca-bent ( $2,9 \pm 0,8$ ), diikuti oleh Na-bent ( $2,4 \pm 0,6$ ) dan Alam-bent ( $1,8 \pm 0,2$ ). Perbedaan ini diakibatkan oleh bilangan oksidasi Cs lebih kecil dari pada kation Sr. Sebagai gambaran dapat dilihat pada reaksi kimia (2) dan (3), dimana jumlah mol kation Cs yang terikat pada bentonit lebih banyak dari kation Sr. Dan juga afinitas ikatan kation Cs lebih tinggi dari pada Sr, sehingga kation Cs lebih mampu masuk ke dalam jaringan kristal yang lebih dalam sampai ke lapisan oktahedral sehingga secara kuantitatif, Cs lebih banyak terserap pada bentonit.

## KESIMPULAN

Dalam penelitian ini ada beberapa kesimpulan yang dapat diambil:

1. Memodifikasi bentonit dengan cara melakukan homokation permukaan terhadap bentonit akan memperbaiki sifat penukar kationnya.
2. Berdasarkan modifikasi permukaan yang diberikan, penjujukan dengan  $\text{CaCl}_2$  mempunyai penyerapan yang lebih tinggi bila dibandingkan penjujukan dengan NaCl.
3. Kation Cs lebih banyak terserap dibanding dengan kation Sr karena kation Cs disamping mempunyai bilangan oksidasi yang lebih kecil juga mempunyai afinitas ikatan yang lebih besar bila dibanding dengan kation Sr.

## DAFTARACUAN

- [1]. IAEA, *Handling and Processing of radioactive waste from nuclear Applications*, Technical Report Series No. 402, IAEA, Vienna, (2001)
- [2]. IAEA, *Application of Ion Exchange Processes for The Treatment of radioactive waste and management of spent ion exchangers*, Technical Reports Series no. 408, IAEA, Vienna, (2002)
- [3]. ANGELO VACCARI, *Preparation and catalytic properties of Cationic and Anionic Clays*, *Catalysis Today*, **41** (1998) 53-71

- [4]. RODRIQUEZ, J.M., LOPEZA. J., BROQUE S., *Clay and Clays Min.*, **36** (1998) 284-228
- [5]. STELLAT, EIRINI C., PARASKEVIN., *Clay and Clays Min.*, **47** (1999) 567-572
- [6]. A. BAUER, T. SCHAFFER, R.DOHRMANN, H.HOFFMANN, *Smectite Stability in acid salt solutions and the fate of Eu, Th and U in Solution*, *Clay Minerals*, **36** (2001) 93-103
- [7]. DAVID R. TURNER, ROBERTO T. PABALAN, F. PAUL BERTETTI, *Clay and Clays Minerals*, **46** (1998) 256-269
- [8]. NEWMAN A.C.D, *Chemistry of Clays and Clay Minerals*, Longman Scientific Technical, Mineralogical Society, London, (1987)
- [9]. I. SHAINBERG, N.I. ALPEROVITCH, R. KEREN, *Clays and Clay Minerals*, **35** (1987) 68-73.
- [10]. G RYWO, C. SEBAN, S. NIR, L. MARGULIES, *Clay and Clays Minerals*, **39** (1991) 551-555
- [11]. SIOBHAN S., MURIEL R, *Clays and Clay Min.*, **45** (1997) 251-260
- [12]. JAMES E. H, *Inorganic Chemistry Principles of structure and reactivity*, Happer International Edition, New York, (1978)