

**ANALISIS DATA DIFRAKSI SINAR-X (XRD) KALSIUM SILIKAT
HASIL KALSINASI PADA SUHU 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C
DENGAN TEKNIK RIETVELD**

(Skripsi)

Oleh

Nurhasiah



**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS LAMPUNG
BANDAR LAMPUNG
2024**

ABSTRAK

ANALISIS DATA DIFRAKSI SINAR-X (XRD) KALSIUM SILIKAT HASIL KALSINASI PADA SUHU 800°C, 900°C, 1000°C, 1100°C DENGAN TEKNIK RIETVELD

Oleh

Nurhasiah

Penelitian ini bertujuan untuk menentukan komposisi fasa kalsium silikat (β -CaSiO₃, α -CaSiO₃ dan CaSiO₃) hasil kalsinasi pada suhu 800 °C – 1100 °C yang diproses menggunakan teknik Rietveld. Analisis kualitatif untuk mengidentifikasi evolusi fasa kalsium silikat dilakukan melalui metode pencocokan data (*search match*) menggunakan *software* HSP (*High Score Plus*). Hasil analisis kualitatif menunjukkan bahwa kehadiran fasa kalsium silikat bergantung pada suhu kalsinasinya. Fasa β -CaSiO₃ dan α -CaSiO₃ muncul pada suhu 800 °C sebagai fasa mayor dan fasa CaSiO₃ mulai muncul pada suhu 1100 °C sebagai fasa minor. Analisis kuantitatif untuk menentukan komposisi fasa dilakukan menggunakan *software* Rietica. Komposisi relatif dalam persen berat (wt%) yang diperoleh menunjukkan bahwa komposisi fasa β -CaSiO₃ cukup stabil pada suhu 800 °C hingga 1000 °C dengan peningkatan sangat kecil dengan komposisi antara 50,08 - 50,18 wt%. Pada suhu 1100 °C terjadi penurunan signifikan menjadi 39,71 wt%. Komposisi fasa α -CaSiO₃ stabil antara suhu 800 °C hingga 1000 °C dengan sedikit mengalami penurunan antara 49,92 - 49,82 wt%. Penurunan komposisi yang signifikan terjadi pada suhu 1100 °C sebesar 40,06 wt%. Terjadinya penurunan fasa α -CaSiO₃ dan β -CaSiO₃ bersamaan dengan munculnya fasa CaSiO₃ yang baru terbentuk pada suhu 1100 °C, di mana komposisi fasa CaSiO₃ sebesar 20,22 wt%.

Kata kunci: Difraksi sinar-X, teknik Rietveld, β -CaSiO₃, α -CaSiO₃ dan CaSiO₃.

ABSTRACT

ANALYSIS OF X-RAY DIFFRACTION (XRD) DATA ON CALCIUM SILICATE RESULTING FROM CALCINATION AT TEMPERATURES OF 800°C, 900°C, 1000°C, AND 1100°C USING THE RIETVELD METHOD

By

Nurhasiah

This research aims to determine the phase composition of calcium silicate (β -CaSiO₃, α -CaSiO₃, and CaSiO₃) resulting from calcination at temperatures between 800 °C and 1100 °C, processed using the Rietveld method. Qualitative analysis to identify the phase evolution of calcium silicate was conducted through a search-match method using HSP (High Score Plus) software. The qualitative analysis results showed that the presence of calcium silicate phases is dependent on the calcination temperature. The β -CaSiO₃ and α -CaSiO₃ phases appeared at 800 °C as major phases, while the CaSiO₃ phase started to form at 1100 °C as a minor phase. Quantitative analysis to determine phase composition was performed using Rietica software. The relative weight percentages (wt%) obtained indicated that the β -CaSiO₃ phase remained relatively stable from 800 °C to 1000 °C with a slight increase, with compositions ranging from 50.08 to 50.18 wt%. However, a significant decrease occurred at 1100 °C, with a composition of 39.71 wt%. The α -CaSiO₃ phase also remained stable between 800 °C and 1000 °C, with a slight decrease from 49.92 to 49.82 wt%. A substantial decline in the α -CaSiO₃ phase was observed at 1100 °C, with a composition of 40.06 wt%. The decrease in both α -CaSiO₃ and β -CaSiO₃ phases coincided with the formation of a new CaSiO₃ phase at 1100 °C, with a composition of 20.22 wt%.

Keywords: X-ray diffraction, Rietveld method, β -CaSiO₃, α -CaSiO₃, CaSiO₃.

**ANALISIS DATA DIFRAKSI SINAR-X (XRD) KALSIUM SILIKAT
HASIL KALSINASI PADA SUHU 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C
DENGAN TEKNIK RIETVELD**

Oleh

Nurhasiah

Skripsi

**Sebagai Salah Satu Syarat untuk Mencapai Gelar
SARJANA SAINS**

Pada

**Jurusan Fisika
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam**



**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS LAMPUNG
BANDAR LAMPUNG
2024**

Judul Skripsi : Analisis Data Difraksi Sinar-X (XRD) Kalsium Silikat Hasil Kalsinasi Pada Suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dengan Teknik Rietveld

Nama Mahasiswa : Nurhasiah

Nomor Pokok Mahasiswa : 1817041050

Jurusan : Fisika

Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam



Pembimbing I

Dra. Dwi Asmi, M. Si., PhD.
NIP. 196312281986102001

Pembimbing II

Dr. Yanti Yulianti, S.Si., M.Si.
NIP. 197512192000122003

2. Ketua Jurusan Fisika FMIPA

Arif Surtono, S.Si., M.Si., M.Eng.
NIP. 197109092000121001

MENGESAHKAN

1. Tim Penguji

Ketua

Dra. Dwi Asmi, M.Si., Ph.D.



Sekretaris

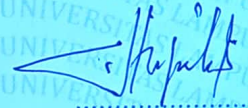
Dr. Yanti Yulianti, S.Si., M.Si.



Penguji

Bukan Pembimbing

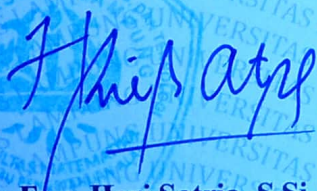
Suprihatin, S.Si., M.Si.



2. Dekan Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam

Dr. Eng. Heri Satria, S.Si., M.Si.

NIP. 197110012005011002



Tanggal Lulus Ujian Skripsi : 11 Desember 2024

PERNYATAAN

Dengan ini saya menyatakan bahwa dalam skripsi ini tidak terdapat karya yang sama persis dengan yang pernah dilakukan oleh orang lain dan sepanjang pengetahuan saya tidak terdapat karya atau pendapat yang ditulis dan diterbitkan orang lain, kecuali yang secara tertulis diacu dalam naskah ini sebagaimana disebutkan dalam daftar Pustaka. Selain itu, saya menyatakan skripsi ini dibuat oleh saya sendiri.

Apabila pernyataan saya tidak benar, maka saya bersedia dikenai sanksi sesuai dengan hukum yang berlaku.



Nurhasiah
NPM. 1817041050

RIWAYAT HIDUP



Penulis bernama lengkap Nurhasiah, dilahirkan di Kota Bandar Lampung pada tanggal 15 Juli 1999. Penulis merupakan anak ketiga dari pasangan Husni (Alm) dan Mutia. Penulis memulai pendidikan pada Sekolah Dasar (SD) di SD Negeri 1 Sukamaju Bandar Lampung dan diselesaikan pada tahun 2012. Kemudian melanjutkan ke Sekolah Menengah Pertama (SMP) di SMP Negeri 27 Bandar Lampung dan diselesaikan pada tahun 2015. Selanjutnya penulis ke Sekolah Menengah Atas (SMA) di SMA Negeri 11 Bandar Lampung dan diselesaikan pada tahun 2018.

Penulis terdaftar sebagai mahasiswa Jurusan Fisika Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam (FMIPA) melalui jalur Seleksi Bersama Masuk Perguruan Tinggi (SBMPTN) pada tahun 2018. Pada tahun 2021 penulis melaksanakan Praktik Kerja Lapangan (PKL) di PT. PLN (Persero) P3B Sumatera UPT Tanjung Karang dengan judul “Analisis Gangguan Sistem Transmisi Listrik SUTT 150 KV Menggunakan Metode *Root Cause Analysis* (RCA) PT. PLN (Persero) P3B UPT Tanjung Karang”. Penulis memilih bidang keilmuan material sebagai bidang yang terdapat di jurusan Fisika FMIPA.

Selama menjadi mahasiswa, penulis mengikuti berbagai kegiatan baik akademik maupun non akademik. Pada tahun 2018 penulis menjadi anggota magang bidang minat dan bakat Himpunan Mahasiswa Fisika (HIMAFI). Pada tahun 2019 penulis menjadi anggota bidang dana usaha HIMAFI, sekretaris bidang dana usaha rohis FMIPA Unila, dan anggota biro kemuslimahan FMIPA Unila. Pada tahun 2020 penulis menjadi peserta penerima pendanaan Program Kreatif Mahasiswa (PKM-RE) Kementerian Pendidikan, Budaya, Riset, dan Teknologi.

Pada tahun 2022 menjadi peserta Program Mahasiswa Wirausaha (PMW) Universitas Lampung dan P2MW Direktorat Pembelajaran dan Kemahasiswaan (Belmawa) Kementerian Pendidikan, Budaya, Riset, dan Teknologi. Pada tahun 2021 penulis melaksanakan Kuliah Kerja Nyata (KKN) di Kelurahan Sukamaju, Kecamatan Teluk Betung Timur, Kota Bandar Lampung. Kemudian penulis melakukan penelitian di Laboratorium Fisika Material dengan judul “Analisis Data Difraksi Sinar-X (XRD) Kalsium Silikat Hasil Kalsinasi Pada Suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dengan Teknik Rietveld”. Sebagai Tugas Akhir di Jurusan Fisika FMIPA Universitas Lampung.

MOTTO

~ A narrative in art ~

PERSEMBAHAN

Dengan penuh rasa syukur kepada Allah Subhanahu Wa Ta'ala
Kupersembahkan karya ini untuk orang-orang yang aku cintai dan yang telah
memberikan kasih sayang tulusnya selama hidupku,

Teristimewa Ayahanda (Alm)

Dengan segala ketulusan, kuucapkan terimakasih atas pesan dan nasehat
yang pernah diberikan, sekaligus menjadi motivasi terbesarku untuk dapat
menyelesaikan pendidikan ditingkat universitas.

Tersayang Ibunda

Tiada kata yang bisa kuucapkan selain terimakasih dan terimakasih
atas kepercayaan yang diberikan, terimakasih untuk seluruh pengorbanan
dan kerja keras yang tanpa batas, dan terimakasih untuk segala doa
yang tidak pernah hentinya selalu dilangitkan.

Bapak/ibu guru dan dosen

Terimakasih telah memberikan pengetahuan dan kesempatan untuk terus belajar.

FISIKA FMIPA 2018

Serta

Almamter Tercinta
Universitas Lampung

KATA PENGANTAR

Puji syukur kepada Allah SWT yang telah memberikan kemudahan, kelancaran dan berkat karunia-Nya penulis dapat menyelesaikan proposal penelitian ini yang bertempat di Laboratorium Fisika Material Jurusan Fisika Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Lampung dengan judul “**Analisis Data Difraksi Sinar-X (XRD) Kalsium Silikat Hasil Kalsinasi Pada Suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dengan Teknik Rietveld**”. Proposal Penelitian ini disusun untuk memenuhi salah satu persyaratan dalam menyelesaikan Tugas Akhir dan syarat memenuhi salah satu mata kuliah wajib di Universitas Lampung.

Penulis menyadari bahwa dalam penyusunan laporan ini masih banyak kekurangan Oleh karena itu, penulis mengharapkan kritik dan saran yang membangun guna dalam penulisan berikutnya yang lebih baik. Semoga laporan ini bermanfaat bagi penulis maupun pembaca.

Bandar Lampung, Desember 2024

Nurhasiah

SANWACANA

Puji syukur penulis panjatkan kehadiran Allah SWT, karena atas kuasa-Nya penulis masih diberikan kesempatan untuk mengucapkan terima kasih kepada pihak yang telah banyak membantu dalam menyelesaikan penelitian dan skripsi ini, terutama kepada:

1. Ibu Drs. Dwi Asmi, M.Si., Ph.D. sebagai Pembimbing I penelitian yang telah bersedia meluangkan waktu, dan atas segala ilmu, saran serta bimbingannya untuk mendukung penulis selama melakukan penelitian dan penulisan skripsi dari awal sampai akhir;
2. Ibu Dr. Yanti Yulianti, S.Si., M.Si. sebagai Pembimbing II yang senantiasa sabar dalam mengoreksi skripsi dan memberikan masukan-masukan untuk menyelesaikan skripsi ini dari awal sampai akhir penulisan;
3. Ibu Suprihatin, S.Si., M.Si. sebagai penguji yang telah mengoreksi kekurangan, memberikan kritik dan saran yang sangat membantu penulis;
4. Kedua orang tua, Ayahanda (alm) dan Ibunda serta kakak-kakakku yang luar biasa selalu mendukung dan mendoakan;
5. Bapak Arif Surtono, S.Si., M.Si., M.Eng. selaku Ketua Jurusan Fisika FMIPA Universitas Lampung;
6. Seluruh Dosen Jurusan Fisika atas segala ilmu dan pengalamannya yang telah diberikan selama penulis menjadi mahasiswa di Universitas Lampung, para

staff dan karyawan Jurusan Fisika yang telah membantu memenuhi kebutuhan administrasi penulis.

7. Sahabat, teman terbaik, dan terkeren Wayan Putri Yanti, dan spesial teman di balik layar Adrian Reza. *Thats worth showing off, isn't it?*;
8. Civitas akademika Fisika 2018.

Serta bagi pihak yang tidak dapat penulis sebutkan satu persatu. Semoga Allah SWT memberikan balasan berlipat dan memudahkan langkah semua pihak yang membantu penulisan dalam menyelesaikan skripsi ini. Aamiin Ya Robbal'alamin.

Bandar Lampung, Desember 2024
Penulis

Nurhasiah

DAFTAR ISI

	Halaman
ABSTRAK	i
ABSTRACT	ii
HALAMAN JUDUL	iii
HALAMAN PERSETUJUAN	iv
HALAMAN PENGESAHAN	v
HALAMAN PERNYATAAN	vi
RIWAYAT HIDUP	vii
MOTTO	ix
PERSEMBAHAN	x
KATA PENGANTAR	xi
SANWACANA	xii
DAFTAR ISI	xiv
DAFTAR GAMBAR	xvii
DAFTAR TABEL	xix

I. PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	3
1.3 Tujuan Penelitian.....	4
1.4 Batasan Masalah.....	4
1.5 Manfaat Penelitian.....	4

II. TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Kalsium Silikat.....	5
2.2 Difraksi Sinar-X	8
2.2.1.Prinsip Terjadinya Sinar-X.....	8

2.2.2 Pola Sinar-X untuk Difraksi Bubuk (<i>Powder Diffraction</i>).....	12
2.3 Kristalografi Difraksi Sinar-X.....	14
2.3.1 Struktur Kristal	14
2.3.2 Kisi dan Sistem Kristal	14
2.3.3 <i>Point and Space Group</i>	18
2.4 Analisis Rietveld	18
2.4.1 Parameter Nilai pada Analisis Rietveld.....	19
2.4.2 Masukan dan Penghalusan	19
2.4.3 Fungsi <i>Peak Profile</i>	20
2.4.4 Keluaran (<i>Output</i>).....	21
2.5 <i>Software Rietica</i>	22

III. METODE PENELITIAN

3.1 Waktu dan Tempat Penelitian	32
3.2 Alat dan Bahan Penelitian	32
3.3 Prosedur Penelitian.....	32
3.3.1 Preparasi Sampel	33
3.3.2 Analisis Kualitatif dengan HSP	34
3.3.3 Analisis Kuantitatif dengan Rietica.....	34
3.4 Diagram Alir Penelitian	36

IV. HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Analisis Kualitatif Kalsium Silikat dengan <i>High Score Plus</i>	39
4.1.1 Sampel Hasil Kalsinasi pada Suhu 800 °C.....	39
4.1.2 Sampel Hasil Kalsinasi pada Suhu 900 °C.....	41
4.1.3 Sampel Hasil Kalsinasi pada Suhu 1000 °C	43
4.2 Analisis Kuantitatif Kalsium Silikat dengan Rietica.....	49
4.2.1 Hasil Analisis Kuantitatif XRD Kalsium Silikat pada Suhu 800°C.....	50
4.2.3 Hasil Analisis Kuantitatif XRD Kalsium Silikat pada Suhu 900°C.....	51
4.2.3 Hasil Analisis Kuantitatif XRD Kalsium Silikat pada Suhu 1000 °C...52	
4.2.4 Hasil Analisis Kuantitatif XRD Kalsium Silikat pada Suhu 1100 °C...54	

V. KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan.....60
5.2 Saran.....61

DAFTAR PUSTAKA

LAMPIRAN

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Struktur kristal <i>pseudowollastonite</i> (α -CaSiO ₃) menggunakan program VESTA.....	7
Gambar 2.2. Struktur kristal <i>parawollastonite</i> (β -CaSiO ₃) menggunakan program VESTA.....	7
Gambar 2.3. Struktur kristal kalsium silikat CaSiO ₃ menggunakan program VESTA.	7
Gambar 2.4. Skema kerja <i>X-Ray Diffraction</i>	9
Gambar 2.5. Diagram sudut pada Hukum Bragg.	10
Gambar 2.6. Beberapa efek yang dihasilkan ketika sinar-X melewati bahan.	13
Gambar 2.7. Sumbu dan sudut antara sumbu krista	15
Gambar 3.1. Diagram alir analisis kualitatif XRD kalsium silikat dengan menggunakan <i>software High Score Plus</i>	37
Gambar 3.2. Diagram alir analisis kuantitatif XRD kalsium silikat dengan metode Rietveld menggunakan <i>software Rietica</i>	38
Gambar 4.1. Grafik XRD kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 800 °C dengan simbol B = β -CaSiO ₃ , A = α - CaSiO ₃	40
Gambar 4.2. Grafik XRD kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 900 °C dengan simbol B = β -CaSiO ₃ , A = α - CaSiO ₃	42
Gambar 4.3. Grafik XRD kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 1000 °C dengan simbol B = β -CaSiO ₃ , A = α - CaSiO ₃ , W = CaSiO ₃	46
Gambar 4.4. Grafik XRD kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 1100 °C dengan simbol B = β -CaSiO ₃ , A = α - CaSiO ₃ , W = CaSiO ₃	46
Gambar 4.5. Hasil penghalusan pola difraksi sinar-X sampel kalsium silikat dengan suhu kalsinasi 800 °C.....	50

Gambar 4.6. Hasil penghalusan pola difraksi sinar-X sampel kalsium silikat dengan suhu kalsinasi 900 °C.....	52
Gambar 4.7. Hasil penghalusan pola difraksi sinar-X sampel kalsium silikat dengan suhu kalsinasi 1000 °C.....	53
Gambar 4.8. Hasil penghalusan pola difraksi sinar-X sampel kalsium silikat dengan suhu kalsinasi 1100 °C.....	54

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1. Sistem Kristal dan Kisi Bravais.....	17
Tabel 4.1. Data puncak pola difraksi sinar-X pada sampel kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 800 °C.	41
Tabel 4.2. Data puncak pola difraksi sinar-X pada sampel kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 900 °C.	43
Tabel 4.3. Data puncak pola difraksi sinar-X pada sampel kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 1000 °C.	45
Tabel 4.4. Data puncak pola difraksi sinar-X pada sampel kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 1100 °C.	47
Tabel 4.5. Reabilitas hasil penghalusan dengan metode Rietveld sampel kalsium silikat hasil kalsinasi pada suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C selama 3 jam.....	55
Tabel 4.6. Komposisi relatif fasa dalam persen berat (wt %) hasil penghalusan sampel kalsium silikat.	56
Tabel 4.7. Perbandingan parameter kisi <i>input</i> dan <i>output</i> sampel kalsium silikat pada suhu 800 °C.	57
Tabel 4.8. Perbandingan parameter kisi <i>input</i> dan <i>output</i> sampel kalsium silikat pada suhu 900 °C.	57
Tabel 4.9. Perbandingan parameter kisi <i>input</i> dan <i>output</i> sampel kalsium silikat pada suhu 1000 °C.....	58
Tabel 4.10. Perbandingan parameter kisi <i>input</i> dan <i>output</i> sampel kalsium silikat pada suhu 1100 °C.....	58

I. PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Kalsium Silikat adalah mineral yang diperoleh dengan mereaksikan kalsium karbonat (CaCO_3) dan silika (SiO_2) (Tulayaganov *et al.*, 2023). Kalsium silikat atau juga disebut *wollastonite* yang merupakan suatu model silikat alami memiliki rumus kimia CaSiO_3 (Plattenberger *et al.*, 2018), telah mendapatkan perhatian yang luas dalam penerapannya di berbagai bidang baik tradisional maupun teknologi tinggi karena sifat yang dimiliki menunjukkan stabilitas kimia, isolasi termal yang sangat baik, konduktivitas termal rendah, susut masa kecil, biokompatibilitas tinggi, porositas tinggi, dan sifat dielektrik yang rendah (Gineika *et al.*, 2021). Karena karakteristiknya tersebut, membuat kalsium silikat banyak digunakan untuk kepentingan produksi material biokeramik seperti produksi beton (Mao and Ai, 2023), bahan tambahan semen (Ashraf *et al.*, 2018), pengisi cat (Somturk *et al.*, 2016). Selain itu, kalsium silikat digunakan sebagai biomaterial dalam rekayasa jaringan tulang karena memiliki sifat biokativitas, biokompatibilitas, dan osteokonduktivitas yang baik sehingga memenuhi persyaratan untuk aplikasi biologis (Liu *et al.*, 2023).

Kalsium silikat terbentuk melalui proses campuran dengan komposisi teoritis dari 48 wt% CaO dan 52 wt% SiO_2 sehingga membentuk golongan senyawa stoikiometri CaSiO_3 yang memiliki struktur kristal yang baik (Dahmani and Tanji, 2024). Terdapat dua jenis struktural utama kalsium silikat yang terbentuk akibat perubahan suhu, yaitu *pseudo-wollastonite* ($\alpha\text{-CaSiO}_3$) dan *beta-wollastonite* ($\beta\text{-CaSiO}_3$), $\alpha\text{-CaSiO}_3$ terbentuk pada fase stabil di atas 1125-1436 °C sedangkan $\beta\text{-CaSiO}_3$ terbentuk pada suhu di bawah 1125 °C (Ismail and Mohamad, 2021).

Pembentukan kalsium silikat dapat dilakukan melalui sintesis berbagai metode seperti metode sol-gel (Adams *et al.*, 2018), metode hidrotermal (Mao and Ai, 2023), dan metode reaksi padatan (Mardiana *et al.*, 2021). Dari beberapa metode tersebut metode sol-gel merupakan metode yang mudah dan sederhana untuk menghasilkan komposisi lebih homogen (Mahato *et al.*, 2023). Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan oleh Syifa (2019), kalsium silikat berbahan dasar silika abu sekam padi dengan kemurnian silika 96,41% dan kalsium nitrat tetrahidrat ($\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) dengan kemurnian 99% berhasil disintesis menggunakan proses sol-gel. Dalam penelitiannya, sampel kalsium silikat dikalsinasi pada suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C dan 1100 °C untuk kemudian dikarakterisasi menggunakan difraksi-X atau *X-Ray Diffractometer* (XRD). Hasilnya menunjukkan fasa β - CaSiO_3 dan α - CaSiO_3 terbentuk pada suhu 800 °C sampai 1000 °C, sementara pada suhu 1100 °C mulai terlihat fasa CaSiO_3 sebagai fasa minor (Syifa, 2019).

Analisis difraksi sinar-X (XRD) merupakan teknik yang banyak digunakan untuk karakterisasi material kristal, dan memberikan informasi mengenai struktur kristal, fasa kristal, tekstur kristal, dan parameter struktur lainnya seperti ukuran kristalit (Bunaciu *et al.*, 2015). Hal ini berdasarkan pada puncak difraksi sinar-X yang dihasilkan dari interferensi konstruktif berkas sinar-X monokromatik yang tersebar pada sudut tertentu dari setiap rangkaian bidang kisi dalam suatu sampel kristal, dan intensitas puncak difraksi yang ditentukan oleh distribusi atom dalam kisi diplot untuk menampilkan pola difraksi (Connolly, 2007). Pola difraksi sinar-X merupakan susunan atom periodik suatu material tertentu (Bunaciu *et al.*, 2015), dimana dalam teknik difraksi sinar-X menggunakan perbandingan pola data difraksi kristal dengan database kristalografi standar, dengan hubungan antara sudut difraksi (2θ) dan intensitas relatif mempengaruhi bentuk pola difraksinya (Cullity, 1978). Perhitungan pola difraksi yang dihasilkan memberikan informasi tentang (1) jumlah fasa kristal yang terkandung pada sampel, (2) posisi setiap atom dalam sel, (3) ukuran dan bentuk kristal dari masing-masing fasa, (4) sifat termal kristal, (5) akurasi tegangan makro dan regangan mikro (Kisi, 1994; Will, 2006). Perkembangan teknik difraksi sinar-X

selama beberapa tahun terakhir telah diperluas penerapannya untuk analisis fasa kuantitatif campuran multifasa menggunakan data difraksi sinar-X dengan metode penyempurnaan dari program komputer Rietveld (Bish and Howard, 1988).

Analisis Rietveld yang dikonsep oleh Hugo M. Rietveld memperkenalkan suatu teknik pemodelan komputer dengan mencocokkan pola data difraksi yang dihitung dari kristalografi *database* ICSD (*Inorganic Crystal Structure Database*) terhadap data yang diamati sehingga diperoleh kesesuaian nilai ketika proses pendekatan telah mencapai selisih kuadrat minimal (*least square*) (Young, 1993). Pada awal perkembangan di tahun 1960 teknik Rietveld mulai-mula digunakan hanya sebatas metode untuk tujuan penentuan struktur kristal deskriptif bahan campuran oksida uranium dan material padat lain yang bersifat anorganik dari pola difraksi neutron, hingga akhirnya diperluas mencakup informasi lebih rinci menggunakan pola algoritma Rietveld. Hal ini mengakibatkan semua garis pada masing-masing fasa dapat diperhitungkan secara jelas dan menjadi solusi untuk masalah tumpang tindih puncak (*overlapping*) yang sebelumnya dipertimbangkan (Rietveld, 1969).

Secara garis besar analisis Rietveld merupakan teknik penghalusan data (*refinement*) dengan cara kuantitatif yang dapat dilakukan baik pada bahan multifasa kristalin penuh maupun ketika terdapat fasa amorf tambahan untuk memperoleh hasil karakterisasi fasa kristal yang lebih komprehensif (Gualtieri *et al.*, 2019). Berdasarkan hal tersebut, maka penulis tertarik untuk melakukan penelitian dengan menganalisis secara kuantitatif data difraksi sinar-X material keramik kalsium silikat hasil kalsinasi suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, dan 1100 °C menggunakan metode Rietveld dengan bantuan perangkat lunak Rietica.

1.2 Rumusan Masalah

Rumusan masalah pada penelitian ini adalah bagaimana menentukan komposisi fasa pada material keramik kalsium silikat hasil kalsinasi suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, dan 1100 °C menggunakan teknik Rietveld melalui *software* Rietica?

1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui komposisi fasa pada bahan material kalsium silikat berdasarkan data pola difraksi sinar-X hasil kalsinasi suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, dan 1100 °C menggunakan teknik Rietveld melalui *software* Rietica.

1.4 Batasan Masalah

1. Analisis kuantitatif data difraksi sinar-X kalsium silikat hasil kalsinasi suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, dan 1100 °C menggunakan metode Rietveld.
2. Analisis Rietveld dilakukan dengan bantuan perangkat lunak Rietica.

1.5 Manfaat Penelitian

1. Memberikan informasi mengenai analisis Rietveld dalam menentukan komposisi fasa material keramik kalsium silikat hasil kalsinasi suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, dan 1100 °C.
2. Penelitian ini penting untuk dilakukan karena dapat membuka implementasi teknik analisis data difraksi sinar-X secara kuantitatif.

II. TINJAUAN PUSTAKA

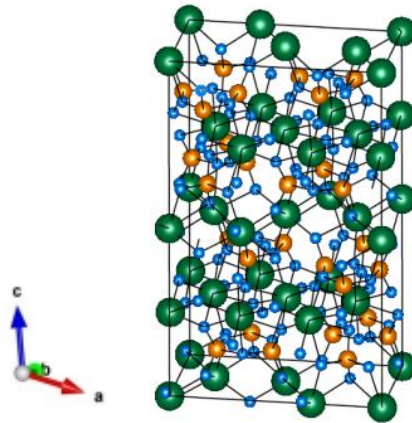
2.1 Kalsium Silikat

Kalsium silikat merupakan senyawa sebagai hasil reaksi dari kalsium karbonat (CaO) dan silika (SiO₂) (Jacob, 1976; Kaou *et al.*, 2022). Kalsium silikat dengan rumus kimia CaSiO₃ memiliki komposisi massa teoritis sebesar 48% CaO dan 52% SiO₂ (Gineika *et al.*, 2021). Kalsium silikat mengandung kalsium (Ca), silikon (Si) dan oksigen (O₂) (Phuttawong *et al.*, 2015), dan secara alami ditemukan dalam dua bentuk polimorfik yaitu pada suhu rendah triklinik (1T) dan monoklinik atau biasa disebut *parawollastonite* (2M) dan pada suhu tinggi berupa *pseudo-wollastonite* yang terbentuk ke dalam Pseudo-heksagonal (Wenk, 1969). Terdapat dua tipe (*polytypes*) yang dimiliki kalsium silikat yang disebut *β-wollastonite* atau *wollastonite*, masing-masing tipe dilambangkan dengan simbol *T* dan *M*, dimana *T* adalah singkatan dari simetri triklinik dan *M* simetri monoklinik (Hesse, 1984). Pembentukan kalsium silikat secara sederhana dapat dilihat pada reaksi berikut:



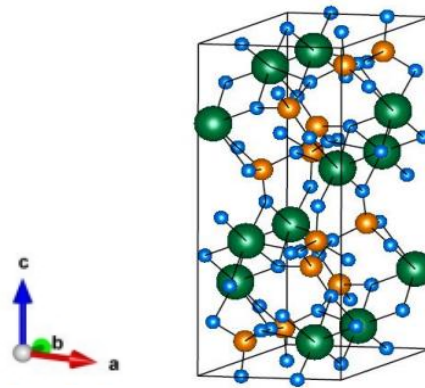
Konversi kenaikan suhu dari suhu rendah ke suhu tinggi menggunakan metode reaksi padatan dengan rasio perbandingan molekul CaCO₃:SiO₂ adalah 1:1 terjadi pada suhu 870 °C membentuk fasa *β*-CaSiO₃. Pada suhu 1125 °C fasa *α*-CaSiO₃ baru terbentuk sebagai akibat dari proses transformasi fasa *β*-CaSiO₃ menjadi fasa *α*-CaSiO₃, dan mencapai titik leleh ketika suhu panas 1544 °C (Kotsis and Balogh, 1989).

Kalsium silikat memiliki tiga jenis struktur kristal yang secara umum tersusun atas atom-atom kalsium (Ca), silikon (Si), dan oksigen (O) diantaranya CaSiO_3 (Trojer, 1968), *pseudowollastonite* ($\alpha\text{-CaSiO}_3$) (Yang and Prewitt, 1999), *parawollastonite* ($\beta\text{-CaSiO}_3$) (Hesse, 1984), dimana perubahan *wollastonite* menjadi $\alpha\text{-CaSiO}_3$ terjadi pada rentang suhu 1150 °C hingga 1450 °C (Phuttawong *et al.*, 2015). Sementara $\beta\text{-CaSiO}_3$ akan terbentuk ketika suhu 900 °C hingga 1100 °C (Zhang *et al.*, 2010). Gambar 2.1 menunjukkan struktur kristal *pseudowollastonite* dari program VESTA.



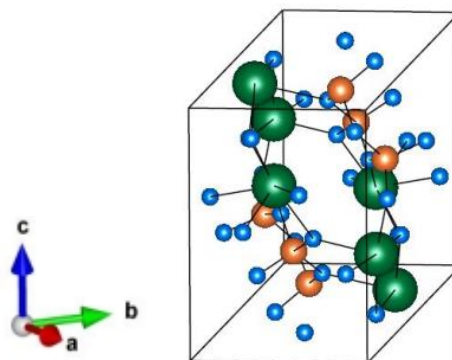
Gambar 2.1. Struktur kristal *pseudowollastonite* ($\alpha\text{-CaSiO}_3$) menggunakan program VESTA (Momma and Izumi, 2011).

Pseudowollastonite ($\alpha\text{-CaSiO}_3$) yang secara umum ditemukan pada terak, semen, dan bahan keramik lainnya memiliki sistem kristal *monoclinic* dengan data struktural dan sel satuan yang menunjuk nomor group 15, space group P2/c, tipe pola C, jari-jari ionik Ca yaitu 2,15Å, Si yaitu 1,75 Å, dan O yaitu 1,05 Å. Parameter kisi $a = 6,83900 \text{ \AA}$, $b = 11,87000 \text{ \AA}$, $c = 19,63100 \text{ \AA}$, serta nilai sudut $\alpha = 90,00^\circ$, $\beta = 90,67^\circ$, dan $\gamma = 90,00^\circ$ (Yang and Prewitt, 1999). Terdiri atas susunan atom-atom Ca (kalsium) berwarna hijau, Si (silikon) *orange*, dan O (oksigen) yang berwarna biru. Selain itu, *Pseudowollastonite* ($\alpha\text{-CaSiO}_3$) yang merupakan bagian CaSiO_3 baru dapat terbentuk pada suhu tinggi yaitu di atas ~1125 °C.



Gambar 2.2. Struktur kristal parawollastonite (β -CaSiO₃) menggunakan program VESTA (Momma and Izumi, 2011).

Parawollastonite memiliki struktur kristal *monoclinic* dengan nomor group 14, space group P21/a, tipe pola P, jari-jari ionik Ca yaitu 2,25 Å, Si yaitu 2,05 Å, dan O yaitu 1,15 Å. Parameter kisi $a = 15,409$ Å, $b = 7,322$ Å, $c = 7,063$ Å, serta nilai sudut $\alpha = 90,00^\circ$, $\beta = 95,30^\circ$, dan $\gamma = 90,00^\circ$ (Hesse, 1984). Tersusun atas atom-atom Ca (kalsium) berwarna hijau, Si (silikon) berwarna *orange*, dan O (oksigen) biru.



Gambar 2.3. Struktur kristal kalsium silikat CaSiO₃ menggunakan program VESTA (Momma and Izumi, 2011).

Struktur kristal CaSiO₃ adalah *triclinic* dengan nama dan nomor space group P-1 dan 2, tipe pola P, volume sel satuan = 377,723481 Å³ serta parameter kisi $a = 6,69500$ Å, $b = 9,25700$ Å, $c = 6,66600$ Å dan nilai sudut $\alpha = 86,500^\circ$, $\beta = 76,133^\circ$, $\gamma = 70,383^\circ$ (Trojer, 1968). Terdiri atas atom-atom Ca (kalsium) hijau, Si (silikon) yang berwarna *orange*, dan O (oksigen) berwarna biru.

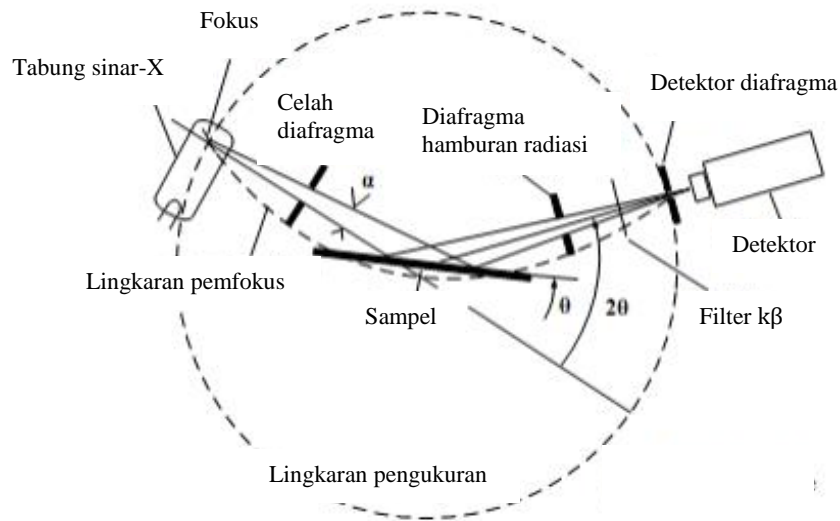
Untuk mensintesis kalsium silikat dapat dilakukan dengan berbagai metode, diantaranya adalah reaksi padatan (Istiyati and Asmi, 2013), hidrotermal (Yazdani *et al.*, 2010), metode pengendapan atau presipitasi (Saravanan *et al.*, 2015), dan sol-gel (Wang *et al.*, 2008; Adams *et al.*, 2018).

2.2 Difraksi Sinar-X

2.2.1 Prinsip Terjadinya Sinar-X

Difraksi sinar-X memanfaatkan gelombang elektromagnetik dari sinar-X yang berinteraksi dengan atom untuk mengidentifikasi material yang tersusun dalam sistem kristalit maupun non kristalit. Sinar-X awal mula ditemukan pada tahun 1895 oleh fisikawan Jerman William Roentgen, untuk penemuannya pertama kali tidak memperlihatkan cahaya seperti biasa dimana sinar tersebut tidak terlihat, namun merambat dalam garis lurus dan mempengaruhi film fotografi dengan cara yang sama seperti cahaya pada umumnya. Dengan kata lain sinar-X dapat terpolarisasi, akan tetapi tidak dapat terbiaskan atau refraksi yang kemudian mendorong kontroversi tentang sinar-X apakah bagian dari partikel atau gelombang, Max Van Laue melalui teorinya berhasil membuktikan bahwa sinar-X adalah gelombang dimana dikatakan sinar-X dapat didifraksikan ketika melewati celah yang sempit (*slitt*) dan hal ini merupakan sifat gelombang (Cullity, 1978).

Meskipun demikian, Lawrence Bragg bersama ayahnya W.H. Bragg menggunakan teori Van Laue untuk radiasi monokromatik yang mendasari bahwa difraksi secara geometri mirip seperti refleksi yang dalam perkembangannya telah menyebabkan beberapa kegunaan utama yaitu, radiografi sinar-X yang dimanfaatkan dalam pembuatan gambar suatu material yang tidak tembus cahaya ini berkaitan pada hubungan antara densitas material dan penyerapan sinar-X, kristalografi sinar-X untuk menemukan informasi tentang struktur material kristal yang bergantung pada sifat gelombang ganda atau partikel sinar-X, spektrometri fluoresensi sinar-X digunakan dalam menentukan sejumlah unsur tertentu suatu material (Connolly, 2005). Adapun skema kerja perangkat alat XRD dapat dilihat pada Gambar 2.4.

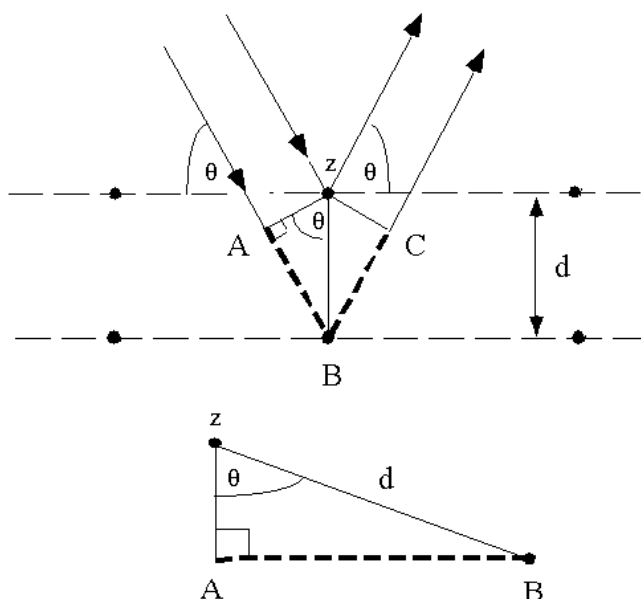


Gambar 2.4. Skema kerja *X-Ray Diffraction* (Connolly, 2005).

Dalam Gambar 2.4 menunjukkan sampel padatan kristal yang memiliki diameter butir antara $10^{-7} - 10^{-4}$ m ditempatkan pada suatu plat kaca, tabung sinar-X mengeluarkan sinar-X yang difokuskan dan mengenai sampel oleh pemfokus kemudian detektor segera bergerak sepanjang lintasannya untuk merekam pola difraksi sinar-X, sinar-X yang telah melewati sampel akan terdifraksi ke segala arah dengan memenuhi hukum Bragg. Detektor bergerak pada kecepatan sudut yang konstan untuk mendeteksi sinar-X yang didifraksikan oleh sampel. Sampel bubuk atau padatan kristalin memiliki bidang-bidang kisi yang tersusun secara acak dengan berbagai kemungkinan orientasi, begitu pula partikel-partikel kristal yang terdapat di dalamnya. Setiap kumpulan bidang kisi tersebut memiliki beberapa sudut orientasi sudut tertentu, sehingga difraksi sinar-X memenuhi Hukum Bragg, difraksi sinar-X oleh kisi kristal juga menghasilkan pola interferensi konstruktif (sefase) dan destruktif (berlawanan fase) (Cullity, 1978).

Hukum Bragg dapat menentukan sudut hamburan koheren dan inkoheren dari kisi kristal yang diperkenalkan oleh William Lawrence Bragg. Hukum Bragg menyatakan: “Ketika sinar-X mengenai permukaan kristal, sudut datangnya, akan dipantulkan dengan sudut hamburan yang sama, dan ketika beda lintasan, d sama dengan bilangan bulat, n dengan panjang gelombang, interferensi konstruktif akan

terjadi” (Cullity, 1978). Persamaan Hukum Bragg dapat dituliskan sebagai berikut:



Gambar 2.5. Diagram sudut pada Hukum Bragg (Schiels, 2004).

$$n\lambda = AB + BC \quad (2.2)$$

Dimana $AB = BC$, maka

$$n\lambda = 2AB \quad (2.3)$$

d adalah hipotenusa segitiga siku-siku ABZ .

$$AB = d \sin\theta \quad (2.4)$$

Persamaan 2.3 disubstitusi ke persamaan 2.4

$$n\lambda = 2d \sin\theta \quad (2.5)$$

Dengan n adalah bilangan bulat (1,2,3,...) yang disebut orde pantulan, λ adalah panjang gelombang sinar-X, d adalah jarak kisi antara bidang kristal, θ adalah sudut difraksi atau sudut antara berkas datang dan garis normal bidang kisi pantul (Ramachandran *et al.*, 2001).

Metode analisis XRD merupakan suatu metode yang mampu mengidentifikasi karakteristik material kristalit yang dilihat dari struktur (kualitatif), fasa (kuantitatif), ataupun ukuran butir dari sebuah sampel dengan menggunakan radiasi gelombang elektromagnetik sinar-X. Analisis XRD adalah contoh metode yang digunakan untuk mengidentifikasi keberadaan suatu senyawa dengan mengamati pola pembiasan cahaya sebagai akibat dari berkas cahaya yang dibiaskan oleh material yang memiliki susunan atom pada kisi kristalnya. Sinar-X yang mengacu pada radiasi elektromagnetik memiliki rentang panjang gelombang 10^{-3} nm hingga 10 nm, penerapan sinar-X dapat mengungkapkan informasi mengenai struktur kristal, transisi fasa, dan orientasi material (Lee, 2016).

Tidak hanya digunakan dalam penentuan struktur kristal, dengan melalui tahapan yang dikembangkan difraksi sinar-X diterapkan untuk beragam permasalahan seperti menganalisis kimia dan pengukuran tegangan, studi kesetimbangan fasa dan mengukur ukuran partikel, menentukan orientasi sebuah kristal atau kumpulan orientasi dalam agregat polikristalin (Cullity, 1978). Secara umum teknik difraksi sinar-X yang mempelajari struktur kristal dan jarak atom didasarkan pada interferensi konstruktif pancaran sinar-X monokromatik dan sampel kristal. Berkas sinar yang dihasilkan berasal dari tabung katoda yang kemudian di *filter* untuk menghasilkan radiasi monokromatik, yang diteruskan ke arah sampel setelah melalui proses kolimasi hingga dikonsentrasi (Bunaciu *et al.*, 2015).

Difraksi sinar-X merupakan metode analisis mineralogi yang mampu mengidentifikasi, mengukur, dan mengkarakterisasi sebuah material dalam kumpulan sistem yang kompleks (Stanjek *et al.*, 2004). Keberadaan senyawa dari material yang dianalisis dapat diamati melalui pola pembiasan cahaya karena berkas cahaya dari material yang dibiaskan memiliki susunan atom-atom pada kisi kristalnya. Sinar-X merupakan radiasi elektromagnetik transversal mirip cahaya tampak namun memiliki panjang gelombang jauh lebih pendek yang digunakan untuk mengetahui fase material dan struktur kristal (Setianingsih *et al.*, 2018). Terjadinya interaksi antara sinar-X dan material kristalit ketika sinar-X dengan

panjang gelombang λ ditumbukkan tepat kearah permukaan kristal dengan energi tinggi antara 200 eV sampai 1 MeV membentuk sudut datang sehingga berkas cahaya terhamburkan dan mengeksitasi elektron-elektron pada bidang atom dalam kristal. Berkas tersebut langsung menyebar ke segala arah dimana ketika berkas cahaya yang tidak sefase akan saling melemahkan sedangkan berkas cahaya yang sefase akan saling menguatkan dan menghasilkan puncak-puncak difraksi yang dapat diamati oleh komponen *X-Ray Diffraction* (XRD) (Cullity,1978).

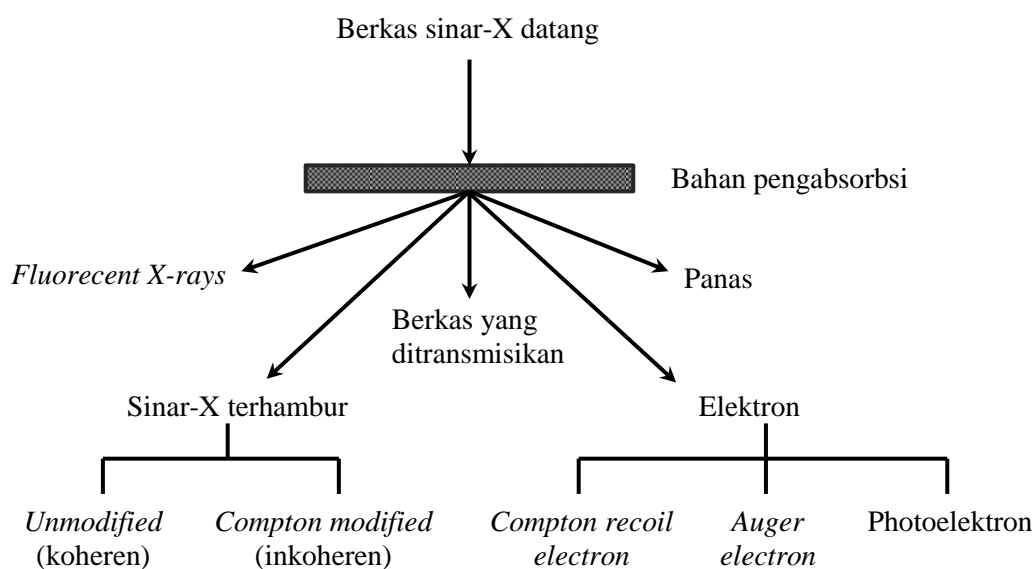
2.2.2 Pola Sinar-X untuk Difraksi Bubuk (Powder Diffraction)

Ketika bubuk dengan sejumlah besar kristalit yang memiliki orientasi acak ditempatkan dalam berkas sinar-X, berkas tersebut akan mendeteksi dan menghasilkan pola difraksi yang terdiri atas puncak-puncak Bragg dan struktur kristal secara keseluruhan. Dalam memperoleh bentuk yang akurat akan struktur kristal suatu material, diperlukan radiasi sinar-X dengan spektrum monokromatik yang koheren dan panjang gelombang diketahui. Panjang gelombang sinar-X pendek sementara energi radiasi elektromagnetik yang dimiliki tinggi. Untuk menghasilkan sinar-X dengan intensitas tinggi dalam frekuensi tertentu dilakukan melalui tabung sinar-X. Semakin dekat radiasi monokromatik dengan berkas sinar-X maka akan semakin baik hasil yang diperoleh. Interaksi antara sinar-X dan bubuk sampel dapat menciptakan sinar difraksi sekunder atau difraksi yang sebenarnya membentuk kerucut. Puncak difraksi maksimum dihitung sepanjang lingkaran difraktometer 2θ dan intensitas maksimum difraksi berkaitan dengan kekuatan difraksi tersebut pada sebuah spesimen. Spesimen adalah serbuk yang berorientasi acak dalam jumlah tak terhingga secara statistik dengan ukuran kristalit kurang dari 10 μm (Connolly, 2005).

Keluaran dari difraktometer berbentuk rekaman data analog yang berupa grafik garis-garis yang terekam per menit sinkron, dengan detektor dalam sudut 2θ per menit, sehingga sumbu-X setara dengan sudut 2θ . Dan rekaman digital yang berisi informasi tentang intensitas sinar-X terhadap jumlah intensitas cahaya per detik.

Adapun pola difraktogram yang dihasilkan adalah berupa deretan puncak-puncak difraksi yang unik dengan intensitas relatif bervariasi sepanjang nilai 2θ . Besarnya intensitas relatif dari deretan puncak-puncak tersebut bergantung pada jumlah atom atau ion yang digunakan, dan distribusinya di dalam sel satuan material tersebut (Warren, 1969).

Sinar-X yang datang pada sampel dianggap memiliki energi cukup tinggi yang dapat menimbulkan emisi *photoelectron* dan karakteristik sifat radiasi *fluorencent*. Ketika sinar-X melewati suatu bahan maka akan menghasilkan keluaran berupa efek-efek yang ditunjukkan dalam Gambar 2.6. Terlihat bahwa elektron *recoil Compton* merupakan kumpulan elektron dengan ikatan lemah yang terlempar keluar dari atom oleh kuantum sinar-X, dimana interaksinya dapat menaikkan radiasi Compton termodifikasi. Selanjutnya, elektron-elektron Auger juga dikeluarkan dari atom oleh sinar-X dari dalam atom (Cullity, 1978).



Gambar 2.6. Beberapa efek yang dihasilkan ketika sinar-X melewati bahan (Cullity, 1978).

2.3 Kristalografi Difraksi Sinar-X

Kristalografi adalah cabang ilmu yang mempelajari bentuk makroskopik kristal. Pengetahuan tentang kristalografi menjadi sangat penting seiring berkembangnya teknik difraksi sinar-X, karena mencakup bahasan terkait susunan atom suatu material kristal. Kristal dapat didefinisikan sebagai kumpulan atom-atom, molekul, atau ion tiga dimensi yang tersusun secara periodik (Connolly, 2007).

2.3.1 Struktur Kristal

Struktur kristal digambarkan sebagai kisi tiga dimensi dari susunan atom atau molekul yang disebut basis (motif) yang dirancang dalam pola berulang (Degraef and Mchenry, 2007). Basis ditempatkan pada titik-titik kisi yang disebut sel satuan dan dianggap sebagai kotak-kotak kecil yang memiliki wilayah identik. Titik-titik (*points*) kisi adalah bersifat invarian sehingga jika titik dioperasikan berkali-kali maka titik kisi tersebut harus kembali ke posisi semula (Omar, 1975). Dalam proses mengubah kisi menjadi struktur kristal, penentuan posisi atom-atom menjadi sangat penting untuk diketahui keberadaannya pada titik kisi. Atom-atom yang ditempatkan disetiap titik-titik imajiner kisi disebut basis. Proses pembentukan basis (motif) tersebut melibatkan tiga operasi kelompok titik (*point-group operation*) yaitu, rotasi, refleksi, dan inversi. Selain itu, operasi translasi juga dilibatkan dalam pembuatan motif (dengan atau tanpa rotasi atau refleksi) sehingga akan terbentuk struktur lengkap yang disebut kisi. Berdasarkan hal ini, struktur kristal sebenarnya adalah berbentuk struktur kisi sederhana, atau gabungan dari kisi untuk menciptakan molekul kristal yang kompleks (Connolly, 2007).

2.3.2 Kisi dan Sistem Kristal

Kisi (*lattice*) merupakan sekumpulan titik imajiner yang tak terhingga dimana titik-titiknya tersusun secara berulang (periodik) dalam suatu ruang tiga dimensi dengan setiap titik memiliki lingkungan yang identik pada pola tertentu. Setiap titik dengan titik yang lain dihubungkan melalui *point group operation* atau

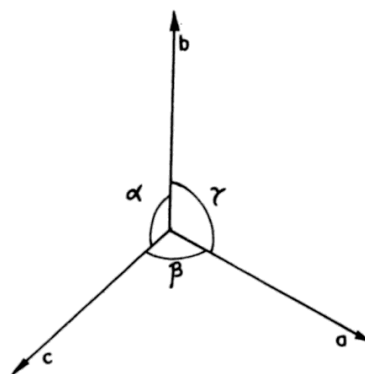
operasi simetri yang melibatkan rotasi, refleksi dan translasi atau kombinasi dari ketiganya. Adapun simetri kisi inversi yang hanya dapat diterapkan dalam kisi tiga dimensi (Babbar, 2008). Pembentukan atom-atom dengan simetri kisi translasi dilakukan tanpa atau melibatkan rotasi atau refleksi untuk membentuk struktur kristal yang kompleks (Connolly, 2007). Kisi dalam ruang tiga dimensi didefinisikan dengan tiga vektor translasi \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} yaitu,

$$\vec{T} = n_1\vec{a} + n_2\vec{b} + n_3\vec{c} \quad (2.6)$$

dimana n_1, n_2, n_3 adalah bilangan bulat sembarang dan vektor \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} disebut vektor translasi primitif atau fundamental, dan berlaku persamaan sebagai berikut:

$$r' = r + T = r + n_1a + n_2b + n_3c \quad (2.7)$$

Pada persamaan 2.6 berlaku untuk memperoleh kisi kristal yang sempurna dengan membiarkan n mengasumsikan semua nilai integral sehingga tercapai susunan unit berulang dan tak terhingga. Selain itu, vektor translasi \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} biasa disebut sumbu kristal atau vektor basis yang memiliki arah sepanjang sepanjang sumbu sel satuan primitif. Sedangkan persamaan 2.7 berlaku apabila titik r' yang diperoleh dari titik awal r harus identik dengan penerapan operasi T terhadap semua titik material kristal, karena apabila tidak identik dengan bilangan bulat sembarang n_1, n_2, n_3 maka vektor \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} tidak mungkin ditemukan dan bukan vektor translasi (Keer, 1993). Gambar 2.7 menunjukkan titik sumbu dan sudut antara sumbu kristal.



Gambar 2.7. Sumbu dan sudut antara sumbu kristal (Keer, 1993)

Menunjukkan vektor \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} dianggap mewakili sumbu kristal yang diambil dari salah satu kisi dalam menentukan ukuran dan bentuk sel satuan. Sudut α adalah sudut antara vektor \vec{b} dan \vec{c} , sudut β antara \vec{c} dan \vec{a} serta γ sudut antara \vec{a} dan \vec{b} . Secara kolektif panjang \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} dan sudut α, β, γ diketahui sebagai parameter kisi atau konstanta kisi sel satuan (Babbar, 2008).

Kombinasi pemusatan dan hubungan antara sudut dengan arah kisi dan panjang sumbu menentukan 14 jenis kisi dalam 7 sistem kristal (Connolly, 2007). Sistem kristal merupakan kumpulan struktur kristal yang bersesuaian dengan sistem simetri yang digunakan untuk menggambarkan kisinya. Setiap sistem terdiri dari rangkaian tiga sumbu dalam susunan geometris tertentu (Owens, 2019), yang tergabung dalam parameter kisi struktur kristal diantaranya, tiga sisi panjang a, b, c dan tiga sudut interaksial α, β, γ yang masing-masing mewakili sistem kristal berbeda (Callister, 2018). Kombinasi tersebut menghasilkan 7 sistem kristal yaitu berbentuk kubik yang memiliki simetri kubus, heksagonal, tetragonal, rhomboherdral (triagonal), orthorhombik, monoklinik, dan triklinik dengan sistem simetri terkecil (Owens, 2019).

Tahun 1948 Bravais menunjukkan bahwa kristal dibagi menjadi 14 kisi yang dapat mendeskripsikan semua kristal, kisi tersebut dikenal sebagai kisi bravais (kisi ruang) yang dapat dilihat pada Tabel 2.1. Ini ditentukan oleh operasi simetri translasi kisi dua dimensi ke dimensi ketiga yang dikombinasikan dengan penempatan atom-atom. Kisi bravais dikategorikan ke dalam beberapa simbol kisi antara lain, kisi primitif (P); kisi berpusat pada tubuh (I); kisi berpusat pada muka (F); dan kisi berpusat pada alas (C) (Mani, 2010).

Tabel 2.1. Sistem Kristal dan Kisi Bravais (Cullity, 1978)

Sistem	Panjang sumbu dan sudut	Kisi Bravais	Simbol kisi
Kubik	$a = b = c$	<i>Simple</i>	<i>P</i>
	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	<i>Body-Centered</i>	<i>I</i>
		<i>Face-Centered</i>	<i>F</i>
Tetragonal	$a = b \neq c$	<i>Simple</i>	<i>P</i>
	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	<i>Body-Centered</i>	<i>I</i>
Orthorhombik	$a \neq b \neq c$	<i>Simple</i>	<i>P</i>
	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	<i>Body-Centered</i>	<i>I</i>
		<i>Base-Centered</i>	<i>C</i>
		<i>Face-Centered</i>	<i>F</i>
Rhombohedral	$a = b = c$	<i>Simple</i>	<i>P</i>
	$\alpha = \beta \neq \gamma = 90^\circ$		
Hexagonal	$a = b \neq c$	<i>Simple</i>	<i>P</i>
	$\alpha = \beta = 90^\circ, \gamma = 120^\circ$		
Monoklinik	$a \neq b \neq c$	<i>Simple</i>	<i>P</i>
	$\alpha \neq \gamma = 90^\circ, \neq \beta$	<i>Body-Centered</i>	<i>I</i>
Triklinik	$a \neq b \neq c$	<i>Simple</i>	<i>P</i>
	$\alpha \neq \gamma \neq \beta = 90^\circ$		

Terdapat dua kelas kisi yaitu bravais dan non-bravais, dalam kisi bravais semua titik kisi adalah ekuivalen sementara kisi non-bravais berlaku sebaliknya, beberapa titik kisinya tidak ekuivalen dan kisi non-bravais dapat dianggap sebagai kombinasi dua atau lebih kisi bravais yang saling menembus dengan orientasi tetap relatif antara satu sama lain (Omar, 1975). Kisi kristal terbagi dalam sel satuan (*unit cell*) yang merupakan bagian terkecil kristal. Sel satuan memiliki volume terbatas dan masing-masing mempunyai kesamaan ciri dengan kristal secara keseluruhan. Sel satuan memiliki parameter sel yang dapat menentukan ukuran dan bentuk sebenarnya. Selain itu tipe sel satuan yang hanya diisi satu titik kisi disebut sel satuan primitif, namun apabila sel satuan yang diisi lebih dari satu titik kisi maka disebut sel non-primitif (Mani, 2010). Adapun parameter kisi adalah jarak berulang yang dihasilkan dari koordinasi atom dalam kristal (Omar, 1975).

2.3.3 Point and Space Group

Pada prinsipnya grup ruang (*space group*) dibangun dengan menggabungkan semua unsur elemen-elemen operasi simetri terhadap operasi grup titik suatu struktur kristal untuk menentukan tipe tingkat simetrinya secara keseluruhan, misalnya grup titik $mm2$ digabungkan melalui *body-centring* untuk memperoleh $Imm2$ atau $2/m$ dengan kisi primitif maka diperoleh $P2/m$. Melalui kombinasi 32 grup titik kristalografi dan 14 kisi Bravais menghasilkan 230 grup ruang (Glazer, 2017). Operasi simetri yang meninggalkan satu titik disebut grup titik (*point group*), dalam ruang dua dimensi terdapat 10 grup titik berbeda sebagai hasil gabungan dari simetri rotasi dan refleksi, namun dalam ruang tiga dimensi terdapat total 32 grup titik karena adanya operasi titik tambahan seperti simetri inversi (Babbar, 2008). Biasanya penamaan grup ruang (*space group*) diambil berdasarkan tipe kisi yang diletakkan pada awal huruf dan seterusnya mewakili kesimetrian kristal, seperti $P222$ dimana P menunjukkan kisi primitif dan tiga angka berikutnya adalah tiga sumbu kristalografi (Verma and Srivastawa, 1991).

2.4 Analisis Rietveld

Analisis Rietveld yaitu membaca kembali secara detail struktur dan komposisi sampel polikristalin dari data difraksi sinar-X. Analisis Rietveld telah banyak digunakan sebagai alat untuk memperhalus struktur kristal berdasarkan data difraksi bubuk. Penyempurnaan Rietveld merupakan metode *refinement* yang secara detail untuk keperluan karakterisasi material kristal yaitu menganalisis struktur dan komposisi sampel polikristalin dari data sinar-X atau *neutron diffraction* melalui proses penghalusan (*refinement*) menggunakan algoritma Newton-Raphson untuk meminimalisir prosedur kuadrat terkecil (*least square procedure*) dengan meminimumkan selisih antara data intensitas perhitungan dan data intensitas pengamatan melalui seluruh pola difraksi sehingga data pengamatan dan pola perhitungan bernilai minimum. Metode Rietveld dapat memberikan parameter kisi, koordinat atom, parameter termal, faktor okupansi, ukuran partikel dan perkiraan regangan mikro (Kisi, 1994).

2.4.1 Parameter Nilai pada Analisis Rietveld

Berdasarkan perbandingan antara intensitas difraksi yang dihitung dengan data intensitas difraksi hasil pengamatan yang diperhalus menggunakan metode kuadrat terkecil, analisis Rietveld akan menghasilkan parameter-parameter baru yang nilainya lebih baik daripada parameter kristal pada model awal dari bahan yang digunakan untuk seluruh pola difraksi. (Young, 1993). Untuk memperoleh hasil yang sesuai metode Rietveld menerapkan sejumlah tahapan yang berdekatan dalam proses analisisnya. Hal tersebut mempertimbangkan kesesuaian data yang dikumpulkan, mempelajari karakteristik material dari awal data analisis yang didapatkan dimana parameter awal yang dimasukkan adalah data normal difraksi serta grup ruang bernilai mutlak. Proses penghalusan kuadrat terkecil (*least square*) kemudian dilakukan pada model yang dioptimalkan secara berulang dari variabel-variabel parameter hingga diperoleh kecocokan antara data intensitas difraksi data pengamatan dan intensitas difraksi teoritis (pola terhitung). Berikutnya, perhatian pada data yang dikumpulkan oleh perangkat instrumentasi yang mempunyai panjang gelombang tertentu, sebagian karena data hasil melebihi TOF (*Time-Off Flight*) dari instrumen (Kisi, 1994).

2.4.2 Masukan dan Penghalusan

Masukan (*Input*) Struktur model yang spesifik adalah kira-kira dalam bentuk parameter unit sel, grup ruang (*space group*), dan set koordinat awal atom yang mana paling sedikit 78 - 80% benar. Metode ini juga memerlukan masukan yang terbatas dari data yang dikumpulkan (dalam 2θ atau d) atau panjang gelombang tertentu atau TOF dan lain-lain. Selanjutnya diperlukan perkiraan awal dari bentuk parameter puncak dan lebar untuk instrumen. Semuanya ini sudah didapat menggunakan data yang dikumpulkan dari spesimen standar pada kondisi yang sama. Penghalusan (*Refinement*) merupakan tahapan yang sangat penting untuk memperhalus atau untuk mengoptimasi model dengan metode kuadrat terkecil (*least square*) dari variabel-variabel parameter hingga cukup cocok antara data pengamatan dan pola perhitungan yang diperoleh (Smith, 1996).

Suatu model dianggap optimum bila jumlah kuadrat selisih pengamatan dengan perhitungan adalah minimum jika:

$$R = \sum_i w_i [y_{io} - y_{ic}]^2 \quad (2.8)$$

Dari persamaan di atas diketahui bahwa analisis Rietveld adalah untuk meminimalisir fungsi R yang merupakan selisih dari y_{io} adalah tahap intensitas pengamatan, y_{ic} adalah intensitas perhitungan dan w_i adalah bobot statistik yang diperoleh dari proses pengamatan. Pada tahap penghalusan parameter yang dilakukan secara iterasi atau terus menerus akan diperoleh model yang optimal dengan semua parameter yang dihaluskan harus konvergen secara simultan (Kisi, 1994).

2.4.3 Fungsi *Peak Profile*

Dalam sebuah program pemasangan profil apapun fungsi profil harus diketahui. Pada metode Rietveld terdapat beberapa bentuk puncak yang dapat digunakan untuk melakukan *refinement* seperti Gaussian, Lorentzian, *double exponential*, Voigt, dan Pseudo-Voigt yang merupakan konvolusi atau gabungan linier dari fungsi Gaussian (G) dan Lorentzian (L). Fungsi Gaussian secara sistematis menggambarkan dengan sangat baik bentuk puncak utama pada bagian atas namun bagian puncak refleksi tidak terpasang maksimal sehingga memberikan nilai profil R kurang baik, sedangkan fungsi Lorentzian memberikan perilaku asimtotik yang benar pada bagian puncak refleksi tetapi pumcak maksimumnya terlalu rendah. Hal tersebut menunjukkan pentingnya penentuan dan pengurangan latar belakang (*background*) sebelum pemasangan profil. Intensitas di bagian puncak refleksi yang ditemukan akan mempengaruhi parameter termal secara substansial. Di dalam penerapannya fungsi Voigt atau Pearson VII terbilang sebagai fungsi terbaik dalam menggambarkan profil hasil pengamatan, akan tetapi fungsi ini sulit diimplementasikan ke dalam program penyesuaian profil karena tidak ditemukan pada program manapun saat ini. Hasil lain yang dapat dicapai lebih baik diperoleh dari fungsi Pseudo-Voigt sebagai superposisi aditif Gaussian

dan Lorentz dengan parameter pecahan η yang menghubungkan rasio intensitas puncak G dan L .

$$PSV = G + \eta L \quad (2.9)$$

Nilai η harus ditentukan sebelum pemasangan profil (analisis Rietveld) (Will, 2006). Pseudo-Voigt (P) menggunakan dua atau sebagian set parameter bentuk puncak secara terpisah untuk mempresentasikan sisi berlawanan dari setiap puncak dimana sisi kiri dan sisi kanan maksimum diperlakukan sesuai parameter FWHM terpisah sehingga menghasilkan kesesuaian hasil yang sangat baik. Selain itu dalam implemementasi lanjutan dari fungsi Pseudo-Voigt yang dimodifikasi bentuk puncak asimetris dapat dibangun sebagai konvolusi puncak simetris dan fungsi asimetris tertentu berdasarkan sifat empiris dan parameter instrumental nyata (Pecharsky, 2009).

Deskripsi akurat tentang bentuk puncak menjadi aspek penting untuk keberhasilan penyempurnaan Rietveld, jika puncaknya dideskripsikan dengan buruk maka hasil penyempurnaan tidak akan memuaskan. Terlepas dari jenis fungsi yang dipilih, rentang puncak harus ditetapkan yang berarti perlu mengetahui kapan puncak tersebut memberikan kontribusi intensitas yang signifikan terhadap pola difraksi.

2.4.4 Keluaran (*Output*)

Keluaran (*Output*) Indeks kecocokan atau R adalah sangat luas digunakan dalam kristalografi untuk menilai sukses atau tidaknya prosedur penghalusan. Fungsi profil R tersebut adalah:

$$R_P = \frac{\sum W_i (Y_{io} - Y_{ic})}{\sum Y_{io}} \quad (2.10)$$

dimana Y_{io} adalah intensitas yang diamati, Y_{ic} adalah intensitas yang dihitung, dan W_i adalah bobot ke- i .

Fungsi profil dengan pembebanan (R_{wp}) *weighted*,

$$R_{WP} = \left[\frac{\sum W_i (Y_{io} - Y_{ic})^2}{\sum W_i Y_{io}^2} \right]^{1/2} \quad (2.11)$$

Fungsi Bragg untuk integrasi intensitas refleksi,

$$R_B = \frac{\sum |I_{ko} - I_{kc}|}{\sum I_{ko}} \quad (2.12)$$

Nilai harap (*expected*) untuk pencocokan,

$$R_{exp} = \left[\frac{N - P}{\sum W_i Y_{io}^2} \right]^{1/2} \quad (2.13)$$

dimana N adalah jumlah observasi dan P adalah jumlah parameter.

Nilai pencocokan terbaik χ^2 atau *Goodness Of Fitting* (GOF).

$$\chi^2 = \frac{\sum W_i (Y_{io} - Y_{ic})^2}{N - P} = \left[\frac{R_{WP}}{R_{exp}} \right]^2 \quad (2.14)$$

Semakin kecil faktor R maka kecocokan antara pola difraksi dengan hasil perhitungan semakin baik. Faktor χ^2 juga menentukan nilai kesesuaian antara model dengan hasil pengamatan. Harga χ^2 idealnya haruslah satu. Setelah proses penghalusan nilai χ^2 dapat lebih dari satu (1), tapi dalam kasus analisis fasa menurut Kisi, (1994) menyarankan agar nilai $\chi^2 < 4$ (David, 2004; Young, 1993).

2.5 Software Rietica

Dalam melakukan penghalusan (*refinement*) untuk menganalisis data difraksi berdasarkan pendekatan Rietveld ada berbagai macam program komputer yang dapat digunakan salah satunya adalah *software* Rietica. Rietica merupakan salah satu perangkat lunak untuk membantu dalam proses refinement berdasarkan metode Rietveld. *Software* ini disusun oleh B. Hunter, yaitu seorang peneliti dari *Australian Nuclear Science and Technology Organization* (ANSTO), menggunakan antarmuka berbasis *Graphical User Interface* (GUI) berdasarkan pengembangan kode LHPM Rietveld Fortran. Secara sistematis Rietica dapat digunakan untuk melakukan refinement untuk mengetahui jenis kristal dari suatu data difraksi sinar-X. Oleh karenanya, dengan memanfaatkan parameter keluaran *software* tersebut akan dapat menganalisis komposisi fase dan perhitungan data difraksi lebih absolut. Pada proses *refinement* menggunakan *software* Rietica adalah tersedianya data sampel hasil pengukuran difraksi sinar-X dengan

pengaturan format data yang didukung atau dapat dibaca oleh sistem seperti data xy, GSAS, STD, CPI, dan sebagainya. Dalam melakukan uji secara kuantitatif menerapkan metode *Le Bail* karena lebih efisien dan sederhana untuk diintegrasikan dengan metode Rietveld. Berdasarkan prosesnya metode *Le Bail* bekerja untuk memperoleh jenis intensitas yang cocok sehingga dapat digunakan untuk menentukan suatu fasa kristal dan melakukan proses *refine* beberapa parameter terkait unit sel, dengan cara mengekstrak intensitas dari data difraksi sehingga intensitas puncak hasil kalkulasi dapat sesuai dengan pola hasil difraksi sinar-X (Hunter and Howard, 1997).

Program Rietica disebut juga sebagai program LHPM, yang berdasarkan pada program dari D.B Wiles dan R.A. Young (Program DBW3.2, *School of Physics and Engineering Experimental Station*, Atlanta, Georgia 30332, USA) yang tertulis dalam bahasa pemrograman Fortran 77/90. Adapun keunggulan yang dimiliki program Rietica adalah sebagai berikut:

1. Kemampuan untuk membaca format data baru, termasuk presisi nilai 2θ yang lebih tinggi dalam file input dan data serta format mentah data file berisi 2θ .
2. Kemampuan multi histogram (dataset) sinar-X dan neutron mengizinkan skala perbedaan, zero, tipe dan nilai profil puncak, latar belakang (background), panjang gelombang, orientasi utama dari setiap histogram yang diperluas.
3. Kemampuan untuk menghitung dan memperluas data TOF neutron.
4. Setiap histogram dapat memiliki bentuk faktor hamburan/panjang, sehingga dapat digunakan dalam perluasan eksperimen anomaly (janggal).
5. Dapat menginterpolasi faktor bentuk sinar-X dari serangkaian $(\sin(\theta)/\lambda, f)$, sehingga beberapa bentuk profil dapat diterapkan.
6. Perluasan puncak Gaussian *anisotropic* untuk semua tipe bentuk puncak.
7. Kemampuan untuk memperluas panjang gelombang (λ).
8. Fungsi latar belakang yang baru berhasil dengan kontribusi latar belakang yang amorphous.
9. Beberapa perubahan teknik termasuk: perhitungan kontribusi dari puncak pada sudut 2θ yang rendah di luar batas data pengamatan dan perubahan dalam perhitungan U, V, W .

10. Kemampuan untuk menghentikan perhitungan puncak yang lemah, misalnya untuk sel monoklinik yang besar pada sistem multifasa.
11. Penambahan bentuk puncak baru yang khusus untuk TOF berdasarkan pada pembelokan pasangan eksponensial terpisah dengan fungsi Pseudo-Voigt.
12. Mengijinkan fasa dihitung dari informasi posisi atom (metode normal) atau intensitas dapat diekstrak menggunakan metode ekstraksi Le Bail.
13. Penambahan koreksi asimetris *Finger*, *Cox* dan *Jepchoat* untuk bentuk puncak Pseudo-Voigt.
14. Memiliki pilihan untuk menggunakan algoritma Marquardt untuk penghalusan kuadrat terkecil. Peningkatan secara dramatis peluang dari konvergensi pada penghalusan yang tidak stabil (Hunter, 2000).

III. METODE PENELITIAN

3.1 Waktu dan Tempat Penelitian

Proses penelitian dilakukan pada bulan Januari sampai dengan April 2024 bertempat di Laboratorium Fisika Material, Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Lampung.

3.2 Alat dan Bahan Penelitian

Adapun alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah Logbook, PC (*Personal Computer*) sebagai penunjang data program yang diolah, perangkat lunak HSP (*High Score Plus*) versi 3.0 (3.0.0) digunakan untuk melakukan analisis data secara kualitatif dan perangkat lunak Rietica versi 4.0.5929.62851 untuk analisis data secara kuantitatif. Sedangkan bahan yang digunakan dalam penelitian ini berupa data XRD kalsium silikat hasil kalsinasi suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, dan 1100 °C dari bahan abu sekam padi dan kalsium nitrat nitrat tetrahidrat ($\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$).

3.3 Prosedur Penelitian

Dalam prosedur penelitian ini terdiri dari beberapa tahapan antara lain: preparasi sampel, karakterisasi XRD, analisis kualitatif menggunakan *software* HSP (*High Score Plus*), dan analisis kuantitatif dengan metode Rietveld menggunakan *software* Rietica.

2.1.1 Preparasi Sampel

Preparasi sampel pada penelitian ini sebelumnya telah dilakukan Syifa (2019) sebagai syarat pemenuhan tugas akhir. Dari preparasi sampel yang telah dilakukan diperoleh 4 sampel kalsium silikat hasil ekstraksi pada suhu sintering 800 °C, 900 °C, 1000 °C, 1100 °C selama 3 jam. Sampel tersebut dikarakterisasi dengan menggunakan alat XRD (*X'Pert Powder PANalytical*) yang bertujuan untuk mengetahui struktur fasa pada kalsium silikat. Adapun langkah-langkah yang dilakukan adalah sebagai berikut:

1. Menyiapkan sampel yang akan dianalisis, kemudian merekatkannya pada kaca dan memasang pada tempatnya berupa lempeng tipis berbentuk persegi panjang (sampel *holder*) dengan lilin perekat.
2. Memasang sampel yang telah disimpan pada sampel *holder* kemudian meletakkannya pada sampel *Stand* di bagian goniometer.
3. Memasukkan parameter pengukuran pada *software* pengukuran melalui komputer pengontrol, yaitu meliputi penentuan *Scan mode*, penentuan rentang sudut, kecepatan *Scan* cuplikan, memberi nama cuplikan dan memberi nomor urut file data.
4. Mengoperasikan alat difraktometer dengan perintah “*start*” pada menu komputer, dimana sinar-X akan meradiasi sampel yang terpancar dari target Cu dengan panjang gelombang 1,5406 Å.
5. Melihat hasil difraksi pada komputer dan intensitas difraksi pada sudut 2θ tertentu dapat dicetak oleh mesin printer.
6. Data yang terekam berupa sudut difraksi (2θ), besarnya intensitas (I), dan waktu pencatatan perlangkah (t).
7. Setelah data diperoleh analisis kualitatif dengan menggunakan search match analysis, yaitu membandingkan data yang diperoleh dengan data standar (*Power Diffraction File database = database PDF*).

3.3.2 Analisis Kualitatif dengan HSP

Dalam menentukan fasa dan struktur kristal yang terbentuk maka dilakukan analisis kualitatif terhadap hasil XRD yang diperoleh dengan cara melakukan *search match analysis* atau pencocokan data menggunakan data acuan yang diperoleh dengan data standar (data base PDF atau *powder diffraction file data base*). Aplikasi yang digunakan untuk mengolah hasil data sampel adalah HSP (*High Score Plus*) versi 3.0 (3.0.0).

Adapun prosedur yang dilakukan sebagai berikut:

1. Membuka aplikasi HSP (*High Score Plus*) versi 3.0 (3.0.0) yang sudah terdownload pada layar PC.
2. Mencari data sampel yang disimpan format xy.
3. Memasukkan satu persatu sampel kalsium silika (CaSiO_3) dengan variasi suhu 800 °C, 900 °C, 1000 °C, dan 1100 °C.
4. Klik “*open*” untuk menampilkan gambar difraktogram pada layar.
5. Mengeluarkan daftar puncak dengan klik “*search peaks*” di bagian *analysis*.
6. Kemudian mencocokkan data dengan klik “*search match analysis*”.
7. Data *output* siap digunakan.

2.3.3 Analisis Kuantitatif dengan Rietica

Analisis kuantitatif XRD menggunakan metode Rietveld dilakukan untuk mengetahui fasa dan struktur kristal yang terbentuk baik dari sampel multi-fasa atau fasa tunggal. Aplikasi yang digunakan untuk melakukan analisis data sampel adalah perangkat lunak Rietica versi 4.0.5929.62851. Dalam penggunaan program Rietica diperlukan file masukan dengan format **sampel.xy** untuk file masukan data difraksi dan format **sampel.inp** untuk file masukan parameter.

Setelah melakukan input sampel pada menu file, selanjutnya masuk ke menu model yang berisi submenu general, phases, histograms, dan sample. Pada bagian submenu general perlu diisi nama sampel, jumlah siklus penghalusam, dan format

data yang akan digunakan, sedangkan pilihan lainnya mengikuti yang telah ada. Kemudian mengisi judul fasa, *space group*, faktor skala, parameter kisi, *overall thermal*, nama-nama atom, nilai x, y, z dan *occupancy* pada submenu *phases*. Langkah berikutnya yang harus dilakukan yaitu masuk ke submenu Histogram lalu mengisi nilai sudut 2θ awal dan akhir, *zero*, panjang gelombang 1 dan 2, *ratio*, *base width*, bobot histogram (*histogram weighting*), polarisasi, dan background atau latar belakang. Langkah terakhir yaitu dengan memasukkan parameter pada submenu *sample*. Pada submenu ini akan terdapat pilihan berupa bentuk puncak yang meliputi $U, V, W, \gamma_0, \gamma_1, \gamma_2$, nilai orientasi terarah dan pilihan lainnya. Setelah itu menyimpan input parameter ke dalam format **sampel.inp**.

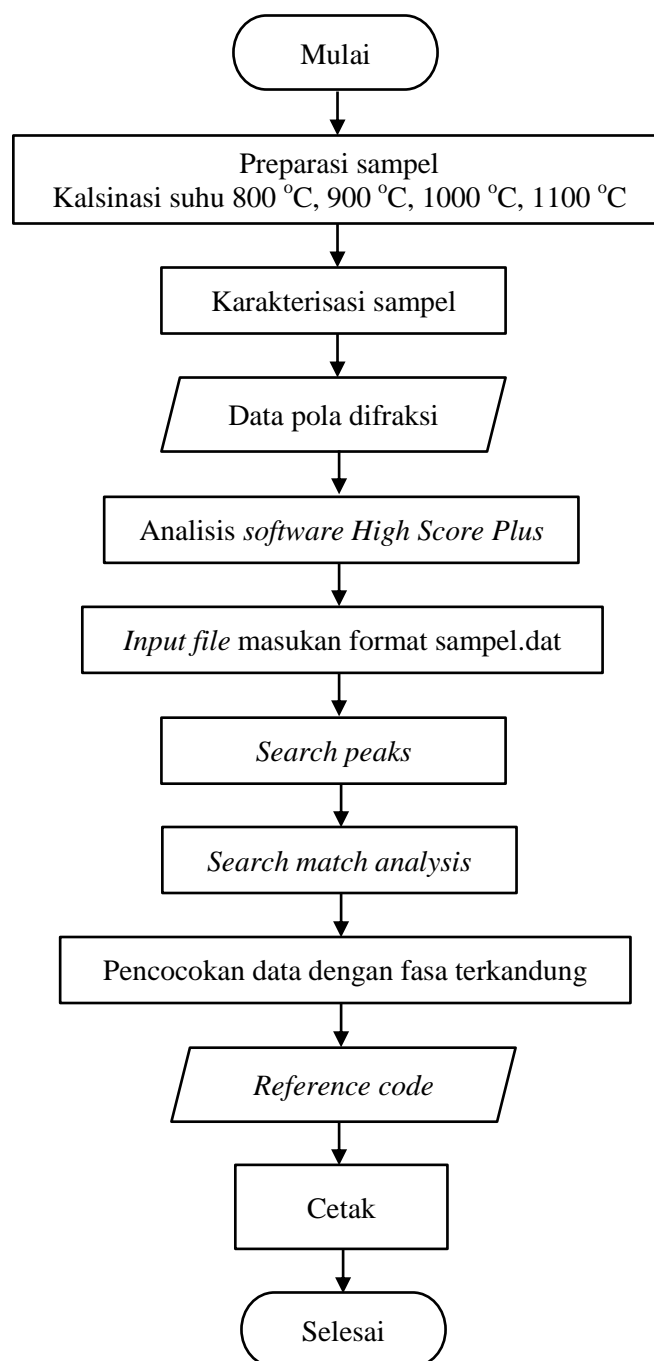
Untuk selanjutnya adalah memulai proses penghalusan dengan masuk ke menu Rietveld pada bagian submenu *Refine*, input parameter (*sampel.inp*) dan input hasil data difraksi (*sampel.xy*) yang berhasil disimpan sebelumnya dibuka. Kemudian mengisi *step*, mengklik *dynamic plotting*, *start* dan *step*. Jika input parameter yang terisi sudah yakin benar maka akan muncul pola difraksi pada layar monitor yang akan menampilkan nilai R_p , R_{wp} , dan χ^2 apabila mengikuti teori maka nilai GOF (*goodness of fitting*) χ^2 harus 1, akan tetapi terdapat pengecualian ketika ternyata format input parameter yang diisikan belum benar maka menimbulkan *unstable* dan mengakibatkan pola difraksi tidak teramati.

Di dalam proses penghalusan terdapat beberapa hal yang harus diperhatikan diantaranya (1) jika intensitas pola difraksi perhitungan masih berbeda jauh atau selisihnya masih besar jika dibandingkan intensitas data pengamatan, maka langkah yang perlu dilakukan adalah mengubah faktor skala dengan skala yang sesuai sehingga memperoleh nilai intensitas yang paling mendekati, (2) jika posisi pola difraksi perhitungan kurang tepat dengan posisi pola difraksi data pengamatan, maka perlu adanya perubahan pada nilai parameter kisi dengan nilai yang sesuai, (3) jika lebar puncak pola difraksi perhitungan belum sesuai dengan puncak pola difraksi pengamatan maka perlu mengubah parameter profilnya. Jika telah didapatkan pola difraksi perhitungan dan data pengamatan yang sesuai, selanjutnya dilakukan proses penghalusan.

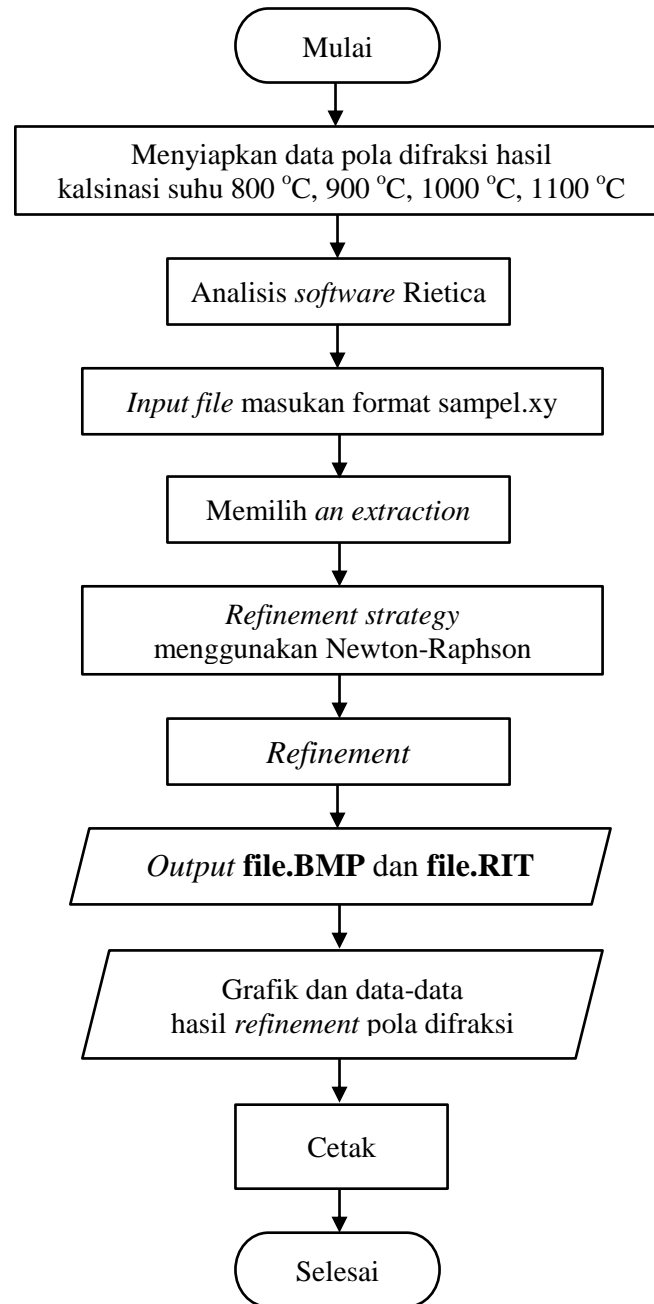
Proses penghalusan lebih dulu diawali dengan memperhalus parameter global, faktor skala, parameter kisi, parameter FWHM (*Full Width Half Maximum*), parameter struktur kristal dan orientasi utama. Penghalusan dilakukan secara bertahap dengan memastikan klik update pada setiap tahap akhir. Setelah parameter selesai diperhalus secara keseluruhan maka akan diperoleh nilai GOF yang sesuai yaitu harus lebih kecil dari 4 ($\chi^2 < 4$), terakhir adalah mengklik finish dan apabila ingin melihat hasil penghalusan yang berisi nilai-nilai hasil *refinement* dapat beralih ke menu information lalu pilih *view output*. *Output* yang dihasilkan adalah parameter-parameter yang berhasil diperhalus berbentuk File.Rit dan grafik intensitas perhitungan berupa File.BMP yang keduanya dapat dicetak melalui printer.

3.4 Diagram Alir Penelitian

Secara garis besar, tahapan yang dilakukan pada penelitian ini disajikan dalam diagram alir pada Gambar 3.1 dan Gambar 3.2.



Gambar 3.1. Diagram alir analisis kualitatif XRD kalsium silikat dengan menggunakan *software High Score Plus* (Speakman, 2012).



Gambar 3.2. Diagram alir analisis kuantitatif XRD kalsium silikat dengan metode Rietveld menggunakan *software* Rietica (Rusli, 2011).

V. KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan uraian pembahasan maka dapat diperoleh beberapa kesimpulan yaitu sebagai berikut:

1. Analisis Rietveld fasa β -CaSiO₃, α -CaSiO₃ dan CaSiO₃ dengan teknik Rietveld berdasarkan data difraksi sinar-X sampel kalsium silikat telah berhasil dilakukan.
2. Keberadaan fasa dan komposisi fasa β -CaSiO₃, α -CaSiO₃ dan CaSiO₃ pada sampel kalsium silikat bergantung pada suhu kalsinasinya.
3. Komposisi persen berat (wt%) fasa β -CaSiO₃ relatif stabil pada suhu 800 °C hingga 1000 °C dengan peningkatan sangat kecil dengan komposisi antara 50,08 - 50,18 wt%. Pada suhu 1100 °C terjadi penurunan signifikan menjadi 39,71 wt%.
4. Komposisi fasa α -CaSiO₃ berdasarkan persen beratnya cukup stabil antara suhu 800 °C hingga 1000 °C dengan sedikit mengalami penurunan antara 49,92 - 49,82 wt%. Penurunan komposisi yang signifikan terjadi pada suhu 1100 °C sebesar 40,06 wt%. Pada suhu 1100°C fasa CaSiO₃ yang baru terbentuk memiliki komposisi fasa sebesar 20,22 wt%.
5. Nilai GOF (*Goodness of Fitting*) atau χ^2 dari proses penghalusan (*refinement*) pola XRD memperoleh hasil yang cukup akurat dan dapat diterima dengan nilai χ^2 pada suhu 800 °C sebesar 0,24, pada suhu 900 °C sebesar 0,28, suhu 1000 °C sebesar 0,36, dan suhu 1100 °C sebesar 0,38.

5.2 Saran

Untuk penelitian lebih lanjut dapat dilakukan analisis kuantitatif terhadap sampel kalsium silikat dengan suhu kalsinasi yang lebih tinggi untuk melihat perkembangan fasa terkandung. Selanjutnya perlu dilakukan kajian yang lebih detail hasil penghalusan mengenai parameter struktur, detail posisi atom, densitas dan lain-lain.

DAFTAR PUSTAKA

- Adams, L. A., Essien, E. R. and Kaufmann, E. E. 2018. A New Route to Sol-Gel Crystalline Wollastonite Bioceramic. *Journal of Asian Ceramic Societies*. Vol. 6. No. 2. Pp. 132–138.
- Almasri, K. A., Ab Aziz, S. H., Matori, K. A., and Zaid, M. H. M. 2017. Effect of Sintering Temperature on Physical, Structural and Optical Properties of Wollastonite Based Glass-Ceramic Derived from Waste Soda Lime Silica Glasses. *Result in Physics*. Vol. 7. Pp. 2242–2247.
- Ashraf, W., and Olek, J. 2018. Carbonation Activated Binders from Pure Calcium Silicates: Reaction Kinetics and Performance Controlling Factors. *Cement and Concrete Composites*. Vol. 93. Pp. 85–98.
- Babbar, V. K. 2008. *Solid State Physics and Electronics*. S. Chand Publishing. New Delhi
- Barnick, M. 1936. *Strukturuntersuchungen Des Natuerlichen Wollastonits*. Diss. Univ. Pp. 1–43. Berlin.
- Bish, D.L. and Howard, S.A. (1988). Quantitative Phase Analysis Using the Rietveld Method. *Journal of Applied Crystallography*. Vol. 21. Pp 86-91.
- Buerger, M.J., and Prewitt, C.T. 1961. The Crystal Structures of Wollastonite and Pectolite. *Proceedings of the National Academy of Sciences*. Vol. 47. Pp. 1884–1888.
- Bunaciu, A. A., Udriștioiu, E., Aboul-enein, H. Y., Bunaciu, A. A., Udriștioiu, E., Aboul-Enein, H. Y., Bunaciu, A. A., & S, E. G. U. 2015. Critical Reviews in Analytical Chemistry X-Ray Diffraction : Instrumentation and Applications X-Ray Diffraction. *Instrumentation and Applications*. Vol. 45. Pp. 289-299.
- Connolly, J. R. 2005. *Introduction to X-Ray Diffraction*, for EPS400-01. Spring. Pp. 1-9.
- Connolly, J. R. 2007. *Elementary Crystallography for X-Ray Diffraction*, for EPS400-1. Spring. Pp. 1-13.

- Cullity, B. D. 1978. *Element of X-Ray Diffraction 2 Edition*. Addison Wesley Publishing Company, Inc. Phillipines.
- Dahmani, J., and Tanji, K. 2024. Comparative Study of Three Synthesis Methods of Wollastonite : Synthesis, Characterization and CO₂ Mineral Sequestration Efficiency. *Research Square*. Vol. 4. Pp. 1–25.
- David, W. I. F. 2004. Powder Diffraction: Least-Squares and Beyond. *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*. Vol. 109. Pp. 107–123.
- De Graef, M., and McHenry, M. E. 2007. *Structure of Materials: An Introduction to Crystallography, Diffraction and Symmetry*. Cambridge University Press. United States of America.
- Gineika, A., Dambrauskas, T., and Baltakys, K. 2021. Synthesis and Characterisation of Wollastonite with Aluminium and Fluoride Ions. *Ceramics International*. Vol. 47. No. 16. Pp. 22900–22910.
- Glazer, A. M. 2017. *A Journey Into Reciprocal Space. In A crystallographer's Perspective*. Morgan & Claypool Publishers. USA.
- Gualtieri, A. F., Gatta, G. Di., Arletti, R., Artioli, G., Ballirano, P., Cruciani, G., Guagliardi, A., Malferrari, D., Masciocchi, N., and Scardi, P. 2019. Quantitative Phase Analysis Using The Rietveld Method: Towards A Procedure for Checking The Reliability and Quality of The Results. *Periodico Di Mineralogia*. Vol. 88. No. 2. Pp. 147–151.
- Hesse, K.F. 1984. Refinement of The Crystal Structure of Wollastonite-2m (Parawollastonite). *Journal Zeitschrift Fur Kristallographie*. Vol. 168. Pp. 93-98.
- Hossain, S.K. S., Mathur, Lakshya., and Roy, P.K. 2018. Rice Husk/Rice Husk Ash As An Alternative Source of Silica In Ceramics: A Review. *Journal of Asian Ceramic Societies*. Vol. 6. No. 4. Pp. 1-34.
- Hossain, S. K. S., and P. K. Roy. 2018. Study of Physical and Dielectric Properties of Bio Waste Derived Synthetic Wollastonite. *Journal of Asian Ceramic Societies*. Vol. 6. No. 3. Pp. 289-298.
- Hunter, B.A. 2000. Rietica - A Visual Rietveld Program. 2nd AINSE Symposium on Neutron Scattering Powder Diffraction and Australian Neutron Beam Users group Meeting Symposium Handbook. *Australian Nuclear Science and Technology Organisation*. Vol. 31. No. 48. Pp. 2-24.

- Hunter, B. A. and C.J. Howard. 1997. *LHPM Manual, A Computer Program for Rietveld Analysis of X-Ray and Neutron Powder Diffraction Patterns*. Lucas Height Research Laboratories. Australian Nuclear Science and Technology Organization. Australia.
- Ismail, H., and Mohamad, H. 2021. Bioactivity and Biocompatibility Properties of Sustainable Wollastonite Bioceramics from Rice Husk Ash/Rice Straw Ash: A Review. *Materials*. Vol. 14. No. 18. Pp. 1-27.
- Jacob, C. J. 1976. Synthesis of Wollastonite from Natural Materials Without Fusion. *U.S Patent*. No. 3.966.884.
- Kaou, M. H., Horváth, Z. E., Balázs, K., and Balázs, C. 2023. Eco-Friendly Preparation and Structural Characterization of Calcium Silicates Derived from Eggshell and Silica Gel. *International Journal of Applied Ceramic Technology*. Vol. 20. No. 2. Pp. 689–699.
- Keer, H. V. 1993. *Principles of The Solid State*. New Age International. New Delhi.
- Keller, L., Rask, J., and Buseck, P. 1989. Tschermaks Mineral ICDD Grant-In-Aid. *Arizona State Univ., Tempe. AZ, USA*.
- Kisi, E. H. 1994. Rietveld Analysis of Powder Diffraction Pattern. *Material Forum*. Vol. 18. Pp 135-153.
- Kotsis, I. and Balogh, A. 1989. Synthesis of Wollastonite. *Ceramics International*. Vol. 15. No. 2. Pp. 79–85.
- Kumar, A. 2015. *Introduction to Solid State Physics, Second Edition*. Prentice Hall India Pvt., Limited. Delhi.
- Lee, M. 2016. *X-Ray Diffraction for Materials Research: From Fundamentals to Applications (1st ed)*. Apple Academic Press. New York.
- Liu, Z., He, X., Chen, S., and Yu, H. 2023. Advances In The Use of Calcium Silicate-Based Materials In Bone Tissue Engineering. *Ceramics International*. Vol. 49(11). Pp. 19355–19363.
- Mahato, S. S., Mahata, D., Panda, S., and Mahata, S. 2023. *Perspective Chapter: Sol-Gel Science and Technology in Context of Nanomaterials-Recent Advances*. IntechOpen. Vol. 2. Pp.1-13.
- Mani, N. S. 2010. *Engineering Physics I: For WBUT*. Pearson Education. India.
- Mardina, D., Asmi, D., Badaruddin, M., and Syahrial, A. Z. 2021. Preparation of Synthetic β -Wollastonite Produced from Amorphous SiO_2 Bamboo Leaf Ash and Meretix Shell. *Materials Science Forum*. Vol. 1029. Pp. 167–173.

- Mao, F., and Ai, H. 2023. A Study on The Hydrothermal Synthesis of Calcium Silicate Products by Calcination of Full-Component Waste Concrete. *Sustainability*. Vol. 15. No. 23. Pp. 1-13.
- Momma, K. and Izumi F. 2011. VESTA 3 for Three-Dimensional Visualization of Crystal, Volumetric and morphology Data. *Journal of Applied Crystallography*. Vol. 44. Pp. 1272-1276.
- Ohashi Y, Finger L W. 1978. The Role of Octahedral Cations In Pyroxenoid Crystal Chemistry. I. Bustamite, Wollastonite, and The Pectolite–Schizolite–Serandite Series. *American Mineralogist*. Vol. 63. Pp. 274-288.
- Omar, M.A. 1975. *Elementary Solid State Physics*. Addison-Wesley Publishing Company Inc. New York.
- Owens, A. 2019. *Semiconductor Radiation Detectors*. CRC Press. U.S.
- Pecharsky, V., and Zavalij, P. 2009. *Fundamentals of Powder Diffraction and Structural Characterization of Materials, Second Edition*. Springer. Jerman.
- Phuttawong, R., Chantaramee, N., Pookmanee, P., and Puntharod, R. 2015. Synthesis and Characterization of Calcium Silicate from Rice Husk Ash and Shell of Snail Pomacea Sanaliculata by Solid State Reaction. *Advanced Materials Research*. Vol. 1103. Pp. 1–7.
- Plattenberger, D. A., Ling, F. T., Tao, Z., Peters, C. A., and Clarens, A. F. 2018. Calcium Silicate Crystal Structure Impacts Reactivity with CO₂ and Precipitate Chemistry. *Environmental Science and Technology Letters*. Vol. 5(9). Pp. 558–563.
- Ramachandran, V.S., and Beaudoin, J.J. 2001. *Handbook of Analytical Techniques In Concrete Science and Technology : Principle, Techniques, and Application*. William Andrew Publishing, LLC. New York.
- Rietveld, H. M. 1969. Aprofile Refinement Method for Nuclear and Magnetics Structure. *Hill, Inc*. Vol. 2. No. 2. Pp. 65-71.
- Rusli, Rolan. 2011. *Petunjuk Refinement: Analisis Pola Difraksi Sinar-X Serbuk Menggunakan Metode Le Bail pada Program Rietica*. Diambil dari <http://rolanrusli.com/wpcontent/uploads/2011/03/Petunjuk-Refinement-Metode-Le-Bail-ProgramRietica.pdf>.
- Schiels, P. J. 2004. *Bragg's Law and Diffraction: How Waves Reveal the Atomic Structure of Crystal*. Center for High Pressure Research Department of Earth & Space Sciences State University of Stony Brook. New York.

- Syifa, S. A. 2019. Sintesis dan Karakterisasi Kalsium Silikat Dengan Menggunakan Metode Sol-Gel. *Skripsi*. Universitas Lampung. Lampung.
- Saravanan, S., Vimalraj, S., Vairamani, M., and Selvamurugan, N. 2015. Role of Mesoporous Wollastonite (Calcium Silicate) in Mesenchymal Stem Cell Proliferation and Osteoblast Differentiation: A Cellular and Molecular Study. *Journal of Biomedical Nanotechnology*. Vol. 11. No. 7. Pp. 1124–1138.
- Seryotkin, Y. V., Sokol, E. V., and Kokh, S. N. 2012. Natural Pseudowollastonite: Crystal Structure. *Associated Minerals and geological Context. Lithos*. Vol. 134. Pp. 75–90.
- Setianingsih, T., and Sutarno. 2018. *Prinsip Dasar dan Aplikasi Metode Difraksi Sinar-X Untuk Karakterisasi Material*. UB Press. Malang.
- Singh, R. J. 2012. *Solid State Physics*. New Age International. New Delhi.
- Smith, W. 1996. *Principles of Material and Sciences Engineering. Third Edition*. Mc Graw-hill. Inc. USA.
- Somtürk, S. M., Emek, İ. Y., Senler, S., Eren, M., Kurt, S. Z., and Orbay, M. 2016. Effect of Wollastonite Extender On The Properties of Exterior Acrylic Paints. *Progress in Organic Coatings*. Vol. 93. Pp. 34–40.
- Speakman, S. A. 2012. *Introduction to PANalytical X'Pert HighScore Plus v3.0*. MIT Center for Materials Science and Engineering. Massachusetts, Amerika Serikat. Pp. 1-19.
- Stanjek, H., and Hausler, W. 2004. Basics of X-ray Diffraction. *Hyperfine Interactions*. Vol. 154. Pp. 107–119.
- Tilley, R. J. D. 2005. *Understanding Solids: The Science of Materials*. Wiley. Jerman.
- Trojer, F. J. 1968. The Crystal Structure of Parawollastonite. *Zeitschrift fur Kristallographie*. Vol. 127. Pp. 291-308.
- Trojer, F. J. 1969. The Crystal Structure of A High-Pressure Polymorph of Ca Si O₃. *Zeitschrift fuer Kristallographie*. Vol. 130. Pp. 185–206.
- Tulyaganov, D. U., Dimitriadis, K., Agathopoulos, S., Baino, F., and Fernandes, H. R. 2023. Wollastonite-Containing Glass-Ceramics from The CaO–Al₂O₃–SiO₂ and CaO–MgO–SiO₂ Ternary Systems. *Open Ceramics*. Vol. 17. Pp 1-11.
- Verma, A. R., and Srivastava, O. N. 1991. *Crystallography Applied to Solid State Physics*. New Age International. New Delhi.

- Warren, B.E., 1969. *X-Ray Diffraction*. Addison-Wesley Publishing, Inc. New York.
- Wenk, H.R. 1969. Polymorphism of Wollastonite. *Contributions to Mineralogy and Petrology*. Vol. 22. Pp 238–247.
- Will, G. 2006. *Powder Diffraction: The Rietveld Method and The Two Stage Method to Determine and Refine Crystal Structures from Powder Diffraction*. Springer Berlin Heidelberg. Data. Jerman.
- Xia, W. and Chang, J. 2008. Preparation and The Phase Transformation Behavior of Amorphous Mesoporous Calcium Silicate. *Microporous and Mesoporous Materials*. Vol. 108. No 1–3. Pp. 345–351.
- Yang, H. and Prewitt, C. T. 1999. On The Crystal Structure of Pseudowollastonite (CaSiO₃). *Journal American Mineralogist*. Vol. 84. Pp. 929-932.
- Young, R. A. 1995. *The Rietveld Method*. Oxford University Press Inc. New York.
- Zhang, N., Molenda, J. A., Fournelle, J. H., Murphy, W. L., and Sahai, N. 2010. Effects of Pseudowollastonite (CaSiO₃) Bioceramic On In Vitro Activity of Human Mesenchymal Stem Cells. *Biomaterials*. Vol. 31. Pp. 7653-7665.