p-ISSN : 2302-4216
e-ISSN : 2830-1765
Inovasi Fisika Indonesia
https://ejournal.unesa.ac.id/index.php/inovasi-fisika-indonesia
Published by: Program Studi Fisika Jurusan Fisika FMIPA Universitas Negeri Surabaya
Kampus Unesa Ketintang Jl. Ketintang Gd. C3 Lt. 1 Surabaya - Indonesia
ifi@unesa.ac.id

Jurnal Inovasi Fisika Indonesia (IFI) Volume 13 Nomor 2 Tahun 2024, hal 90-99

FENOMENA *THERMAL DIFFUSE SCATTERING* AKIBAT VARIASI SUHU SINTER PADA KERAMIK $Mg(Ti_{0,95}Cr_{0,05})O_3$

[1)]Mazaya Basmalah, [2*)]Frida U Ermawati

[1) 2)] Program Studi Fisika, FMIPA, Universitas Negeri Surabaya

[*]The Corresponding Author, Email: frida.ermawati@unesa.ac.id

Abstrak

Salah satu faktor yang berpotensi meningkatkan amplitudo vibrasi atom pada struktur kristalin adalah suhu sinter yang tinggi. Peristiwa meningkatnya amplitudo vibrasi atom tersebut selanjutnya dapat menyebabkan keteraturan atom pada keadaan setimbang menjadi terganggu sehingga difraksi sinar-X menjadi *diffuse*. Fenomena ini disebut dengan *Thermal Diffuse Scattering* (TDS) yang ditandai dengan menurunnya intensitas puncak difraksi dan meningkatnya intensitas *background*. Penelitian ini melaporkan fenomena TDS pada keramik $Mg(Ti_{0,95}Cr_{0,05})O_3$ (MTC005) yang disinter pada variasi suhu 1100, 1200, dan 1300 °C selama 4 jam berdasarkan data *X-Ray Diffraction* (XRD), ditinjau dari data vibrasi termal atom dan pergeseran posisi atom hasil penghalusan *Rietveld*. Hasil identifikasi fasa menunjukkan bahwa struktur ketiga sampel keramik MTC005 terdiri dari fasa utama $MgTiO_3$ dengan (82,73-96,56)%berat, sisanya berupa fasa TiO_2 *rutile,* dan MgO (ditemukan pada suhu sinter 1300 °C). Fenomena TDS diduga terjadi pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C. Hasil penghalusan *Rietveld* menunjukkan bahwa vibrasi termal atom (ΔB) telah berubah dari nilai *default*-nya (0,600, pada perangat lunak Rietica). Sebagai contoh pada suhu sinter 1300 °C, ΔB untuk masing-masing atom Mg, Ti, Cr, dan O = 7,243; 1,700; 0; dan 7,137. Demikian juga, posisi atom terhadap sumbu kristal x, y, dan z telah berubah dari posisi setimbangnya (berdasarkan data ICSD No. 65794), yaitu Δx=0; Δy=0; Δz=0,002 Å (Mg); Δx=0; Δy=0; Δz=0,001 Å (Ti = Cr); dan Δx=0,005; Δy=0,001; Δz=0,002 Å (O). Dampak dari perubahan ΔB dan $\Delta(x,y,z)$ pada kedua suhu sinter tersebut ditunjukkan dengan menurunnya intensitas difraksi utama milik $MgTiO_3$ pada hkl_{104}, yaitu $I_{Bragg\,(1100\,°C)}$=613,54 cts, $I_{Bragg\,(1200\,°C)}$=945,33 cts, dan $I_{Bragg\,(1300\,°C)}$=610,43 cts sehingga mengakibatkan meningkatnya intensitas *background*. Di samping itu, posisi puncak hkl_{104} mengalami pergeseran menuju 2θ yang lebih besar. Penurunan intensitas difraksi juga ditengarai dengan pelebaran puncak difraksi (FWHM) = 0,1171° (1100 °C); 0,1004° (1200 °C); dan 0,1338° (1300 °C). Penyebab ketiadaan perubahan ΔB dan $\Delta(x,y,z)$ pada suhu 1200 °C belum dapat diketahui. Namun demikian, fenomena TDS yang teridentifikasi pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C tersebut tampaknya tidak berpengaruh pada karakteristik struktur MTC005.

Kata Kunci: keramik MTC005, suhu sinter, struktur, *thermal diffuse scattering* (TDS).

Abstract

One of the factors that causes an increase in the amplitude of atomic vibrations in the crystalline structure is the sinter temperature. The increase the amplitude of atomic vibrations causes the order of atoms in an equilibrium state to be disturbed so that X-ray diffraction becomes scattered in several directions (or diffuse). This phenomenon is called the Thermal Diffuse Scattering (TDS) phenomenon which is indicated by a decrease in the intensity of the diffraction peak and an increase in background intensity. This study reports the phenomenon of TDS in $Mg(Ti_{0,95}Cr_{0,05})O_3$ (MTC005) ceramics sintered at temperature variations of 1100, 1200, and 1300°C for 4 hours based on X-Ray Diffraction (XRD) data, in terms of atomic thermal vibrations and atomic position shifts obtained from refinement Rietveld. The phase identification results show that the structure of the three MTC005 ceramic samples consists of the main phase of $MgTiO_3$ with (82.73-96.56)% weight, the remaining phases are TiO_2 rutile, and MgO (especially at 1300°C sinter temperature). The TDS phenomenon is suspected to occur in sample MTC005 with sinter temperatures of 1100 and 1300°C. The Rietveld smoothing results show that the atomic thermal vibrations (ΔB) have changed from their default value (0.600, in Rietica software). For example at a sinter temperature of 1300°C, ΔB on each of the Mg, Ti, Cr,

and O atoms is 7.243; 1.700; 0; and 7.137. There is a displacement of atomic positions to the x, y, and z crystal axes from their equilibrium positions (based on ICSD data No. 65794), which are Δx=0; Δy=0; Δz=0,002 Å (Mg); Δx=0; Δy=0; Δz=0,001 Å (Ti = Cr); and Δx=0,005; Δy=0,001; Δz=0,002 Å (O). While at a sinter temperature of 1200°C, the change in atomic thermal vibrations and the displacement of atomic positions are zero. The TDS phenomenon identified at sinter temperatures of 1100 and 1300 °C did not affect the structural characteristics of MTC005. The impact of the changes in ΔB and $\Delta x,y,z$ at both sinter temperatures is shown by the decrease in the main diffraction intensity of MgTiO3 at hkl 104, which are $I_{Bragg\ (1100\ °C)}$=613,54 cts, $I_{Bragg\ (1200\ °C)}$=945,33 cts, dan $I_{Bragg\ (1300\ °C)}$=610,43 cts, which resulted in an increase in the background intensity. In addition, the peak position has shifted towards a larger 2θ. The decrease in diffraction intensity is also indicated by the broadening of the diffraction peaks, which are 0.1171° (1100°C); 0.1004° (1200°C); and 0.1338° (1300°C). The reason for the absence of changes in ΔB and $\Delta x,y,z$ at 1200°C is unknown. However, the TDS phenomena identified at sinter temperatures of 1100 and 1300°C do not seem to affect the structural characteristics of MTC005.

Keywords: MTC005 ceramics, sinter temperature, structure, thermal diffuse scattering (TDS).

I. PENDAHULUAN

Keramik $MgTiO_3$ adalah material dielektrik yang memiliki peranan penting dalam berbagai sistem dan industri modern seperti filter dielektrik, antenna, resonator, dan radar untuk sistem komunikasi pada frekuensi gelombang mikro [1]–[4]. $MgTiO_3$ memiliki struktur kristal *ilmenite rhombohedral*, *space group* R-3, dan parameter kisi a = b ≠ c.

Fabrikasi keramik $MgTiO_3$ telah banyak dilaporkan. Pertama, fabrikasi keramik $(Mg_{1-x}Zn_x)TiO_3$ (x = 0,01-0,07) menggunakan bahan awal berupa serbuk oksida MgO, ZnO, dan TiO_2, selanjutnya keramik disinter pada suhu 1225-1350 °C menghasilkan fasa $MgTiO_3$ dan $MgTi_2O_5$ [5]. Kedua, $Mg(Ti_{1-x}Sn_x)O_3$ (x = 0,01-0,09) dengan serbuk $Mg(OH)_2$, SnO_2, dan TiO_2 sebagai bahan awal, dimana fasa $MgTiO_3$, TiO_2, dan $MgTi_2O_5$ teridentifikasi pada suhu sinter 1330-1450 °C [6]. Ketiga, fabrikasi keramik $MgTiO_3$ dan $Mg(Ti_{0,95}Sn_{0,05})O_3$ menggunakan bahan awal MgO dan $Mg(OH)_2$ menghasilkan fasa $MgTiO_3$ dan $MgTi_2O_5$ [7]. Keempat, keramik $MgTiO_3$ - 3wt% MgF_2 dengan menggunakan bahan awal berupa serbuk MgO, TiO_2, dan MgF_2 menghasilkan fasa $MgTiO_3$, $MgTi_2O_5$, dan Mg_2TiO_4 ketika disinter pada suhu 1250-1350 °C [8]. Kelima, fabrikasi keramik $MgTiO_3$-$CaTiO_3$ dengan bahan awal berupa MgO, $CaCO_3$, dan TiO_2, dimana fasa $MgTiO_3$, $CaTiO_3$, dan $MgTi_2O_5$ teridentifikasi pada suhu sinter 1300 °C [9]. Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilaporkan [5]–[9] tersebut menunjukkan bahwa kehadiran fasa intermediat berupa $MgTi_2O_5$ maupun Mg_2TiO_4 ternyata mampu memengaruhi struktur dan mikrostruktur keramik sehingga menurunkan sifat dielektrik pada keramik.

Sebagai alternatif, guna meniadakan kehadiran fasa intermediat tersebut, beberapa peneliti telah melaporkan fabrikasi keramik $MgTiO_3$ dengan suhu sinter yang lebih rendah yaitu ≤ 1300 °C, seperti fabrikasi keramik pada sistem $Mg(Ti_{0,6}Zn_{0,4})TiO_3 + x$ wt.% Bi_2O_3 yang disinter pada suhu 1000 °C menghasilkan fasa $MgTiO_3$ sebagai fasa dominan dengan disertai kehadiran fasa MgO [10]; $(1\text{-}x)MgTiO_3$-$xCa_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ dimana fasa $MgTiO_3$ dan $Ca_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ teridentifikasi ketika keramik disinter pada suhu 1275 °C [11]; $Mg(Ti_{0,6}Zn_{0,4})TiO_3$ yang disinter pada suhu 1300 °C menghasilkan fasa $MgTiO_3$ sebagai fasa dominan disertai kehadiran fasa TiO_2 dan MgO [12]; serta fabrikasi keramik pada sistem $(Mg_{0,8}Zn_{0,2})(Ti_{0,99}Sn_{0,01})O_3$ yang disinter pada suhu 1100 °C menghasilkan fasa $MgTiO_3$, TiO_2, dan MgO [13].

Struktur kristalin didefinisikan sebagai hamparan atom dimana basis menghuni semua titik kisi secara teratur dan periodik di suatu ruang [14], [15]. Atom-atom tersebut mengalami vibrasi termal atom secara ideal yang dinyatakan dalam Persamaan (1), dimana amplitudo vibrasi atom diketahui semakin meningkat seiring dengan meningkatnya suhu [16], [17].

$$I = \exp(-2M)\, I_{Bragg} + I_{TBG} \qquad (1)$$

dimana I adalah intensitas puncak terukur, I_{Bragg}adalah intensitas puncak Bragg, dan I_{TBG} adalah intensitas *thermal background*, serta $\exp(-2M)$ merupakan faktor temperatur. Dapat diamati pada Persamaan (1), peningkatan amplitudo vibrasi termal atom sebagai akibat peningkatan suhu ($\exp(-2M)$) yang disebut sebagai agitasi termal dapat memberikan efek utama yaitu berkurangnya intensitas puncak Bragg sehingga meningkatkan intensitas *background* [18]. Penyebab terjadinya kedua efek tersebut dijelaskan di paragraf berikut.

Peristiwa agitasi termal dapat mengakibatkan perubahan posisi atom dari posisi setimbangnya sehingga diduga dapat mengakibatkan terganggunya keteraturan atom secara ideal [17]. Dengan demikian,

berkas terdifraksi yang tersebar pada sudut Bragg tidak sesempurna seperti ketika kristal mengalami vibrasi termal atom secara ideal. Hal tersebut menyebabkan difraksi sinar-X tidak terfokus pada satu arah melainkan terhambur ke beberapa arah (atau *diffuse*) sehingga intensitas puncak difraksi menurun. Fenomena ini disebut dengan fenomena *Thermal Diffuse Scattering* (TDS) [16]–[19].

Berdasarkan uraian di atas, pada makalah ini, Peneliti melaporkan hasil fabrikasi keramik $Mg(Ti_{0,95}Cr_{0,05})O_3$ (disingkat MTC005) dengan memvariasi suhu sinter 1100, 1200, dan 1300 °C selama 4 jam. Tujuannya adalah untuk menganalisis indikasi terjadinya *Thermal Diffuse Scattering* pada sampel MTC005 sebagai akibat variasi suhu sinter tersebut berdasarkan data *X-Ray Diffraction* (XRD), ditinjau dari vibrasi termal atom dan pergeseran posisi atom yang diperoleh dari penghalusan *Rietveld*.

II. METODE

A. Rancangan Penelitian

Penelitian ini terdiri dari beberapa tahapan yang meliputi sintesis serbuk dan kalsinasi, fabrikasi keramik (kompaksi dan sinter), karakterisasi sampel uji serta analisisnya.

1. Sintesis Serbuk MTC005

Kegiatan sintesis dimulai dengan menimbang bahan awal, yaitu serbuk logam Mg, Ti, dan Cr dengan kemurnian tinggi (>98%) berdasarkan stoikiometri serbuk MTC005. Stoikiometri yang dimaksud adalah Mg : (Ti + Cr) = 1 : (0,95 + 0,05). Bahan-bahan awal tersebut masing-masing dilarutkan dalam HCl 12 M (37%) sehingga membentuk larutan $MgCl_2$, $0{,}95TiCl_4$, dan $0{,}05CrCl_4$. Ketiga larutan prekursor tersebut selanjutnya dicampur menjadi satu dan diaduk hingga homogen pada suhu ruang, kemudian dipanaskan pada suhu 100-110 °C hingga membentuk *slurry* dan berubah menjadi kerak kering. Kerak kering tersebut selanjutnya dihaluskan menggunakan mortal dan alu hingga homogen untuk memperoleh serbuk *amorf* MTC005. Selanjutnya serbuk *amorf* tersebut dikalsinasi pada suhu 800 °C selama 4 jam sehingga membentuk struktur kristalin.

2. Fabrikasi Keramik MTC005 dan Karakterisasinya

Serbuk kristalin MTC005 dikompaksi dengan menggunakan *die press* berbentuk silinder berdiameter 8 mm dan *hydraulic hand press*. Tekanan yang diberikan adalah 8 MPa hingga menghasilkan padatan kristalin berupa pelet. Pelet hasil kompaksi tersebut, selanjutnya disinter pada variasi suhu 1100, 1200, dan 1300 °C dengan waktu tahan 4 jam sehingga diperoleh keramik MTC005. Ketiga sampel keramik tersebut selanjutnya dilakukan karakterisasi struktur menggunakan Teknik *X-Ray Diffraction* (XRD). Pola XRD hasil karakterisasi selanjutnya dianalisis secara kualitatif dan kuantitatif.

B. Variabel Operasional Penelitian

Variabel kontrol yang digunakan dalam penelitian ini yaitu bahan awal (serbuk logam Mg, Ti, dan Cr sesuai stoikiometri), suhu dan waktu tahan kalsinasi (800 °C selama 4 jam), waktu tahan sinter (4 jam), dan uji XRD. Sedangkan variabel manipulasi yang digunakan berupa suhu sinter (1100, 1200, dan 1300 °C). Variabel respon berupa data perubahan vibrasi termal atom, perubahan posisi atom, %molar, %berat, densitas atom, parameter kisi, dan volume sel satuan.

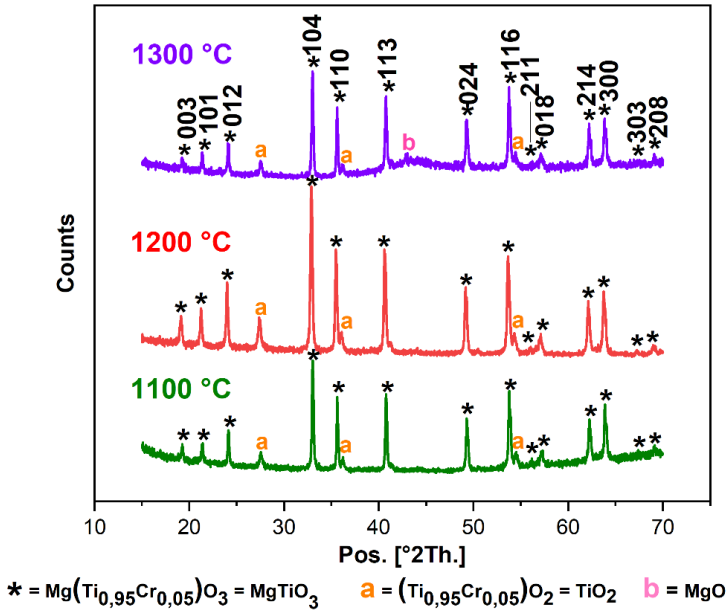
C. Teknik Pengumpulan dan Pengolahan Data

Uji XRD dilakukan dengan menggunakan *PanAnalytical X'Pert Pro* dengan radiasi Cu-Kα, λ = 1,54056 Å pada rentang sudut difraksi (2θ) = 15-70°, dan *data step detector* = 0,02 °/menit. Pola XRD hasil karakterisasi selanjutnya dianalisis secara kualitatif dan kuantitatif. Analisis secara kualitatif dilakukan menggunakan metode *Search and Match* dengan perangkat lunar *Match!* untuk mengidentifikasi fasa-fasa yang terbentuk pada sampel uji. Kemudian dilakukan analisis kuantitatif menggunakan metode penghalusan (*Refinement*) *Rietveld* pada perangkat lunak *Rietica*. Analisis kuantitatif ini digunakan untuk mendapatkan data perubahan vibrasi termal atom dan perubahan posisi atom untuk mengidentifikasi terjadinya fenomena TDS pada sampel MTC005. Selain itu, *output Refinement Rietveld* juga menampilkan data komposisi fasa, yaitu %molar, %berat, densitas atom, parameter kisi, dan volume sel satuan.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Analisis Kualitatif (Identifikasi Fasa)

Gambar 1 menunjukkan pola XRD dari sampel keramik MTC005 setelah disinter pada variasi suhu 1100, 1200, dan 1300 °C selama 4 jam beserta hasil identifikasi fasa-fasa yang terbentuk (hasil analisis kualitatif) yang dilakukan dengan menggunakan perangkat lunak *Match!*.

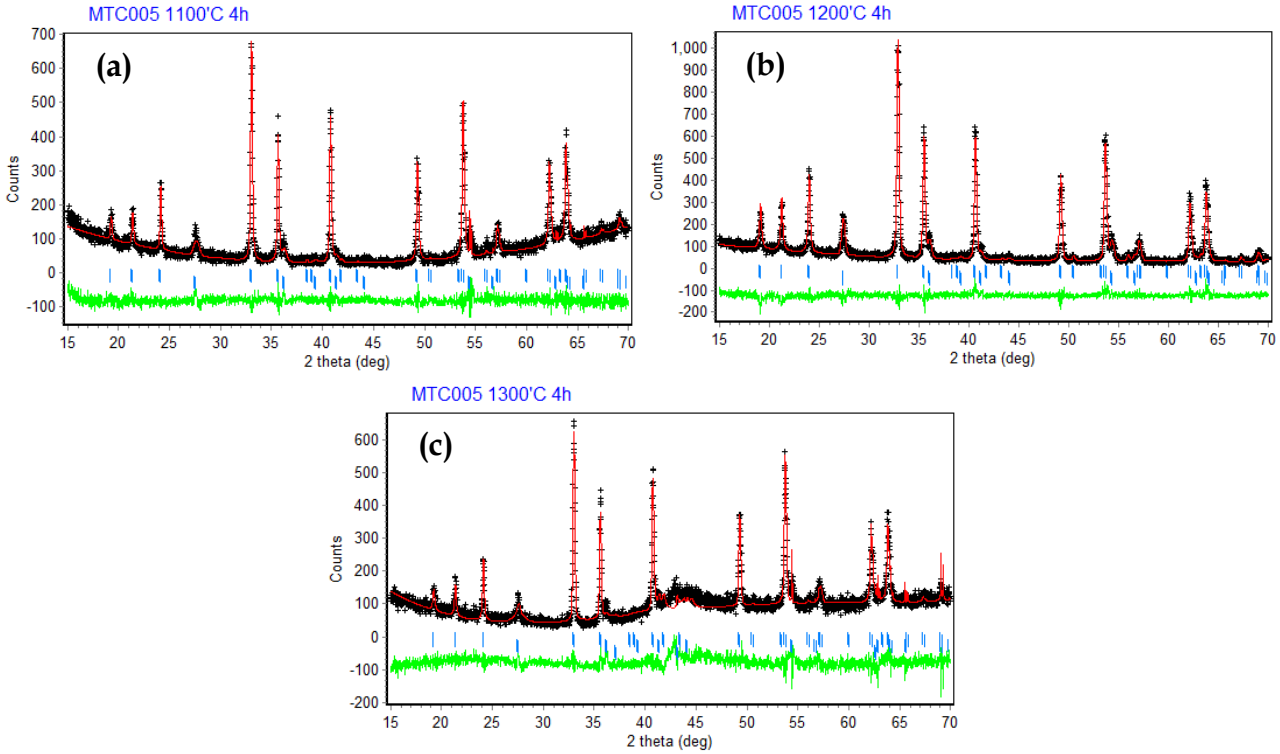


Gambar 1. Pola XRD keramik MTC005 pada variasi suhu sinter 1100, 1200, dan 1300 °C waktu tahan 4 jam

Seperti terlihat pada **Gambar 1**, dapat diketahui bahwa variasi suhu sinter dari 1100 hingga 1300 °C menghasilkan Mg($Ti_{0,95}Cr_{0,05}$)O_3 sebagai fasa utama atau dapat diindeks sebagai fasa $MgTiO_3$ (puncak-puncak dengan indeks "*") dan disertai adanya fasa *impurity* ($Ti_{0,95}Cr_{0,05}$)O_2 atau dapat diindeks sebagai fasa TiO_2 *rutile* (puncak-puncak dengan indeks "a"). Selain itu, pola XRD dengan label 1300 °C pada posisi 2θ = 42,99° menunjukkan terbentuknya puncak minor yang terdeteksi sebagai fasa MgO (puncak dengan indeks "b", PDF No. 45-0946).

B. Analisis Komposisi Fasa

Gambar 2 menampilkan hasil *refinement* terhadap ketiga pola XRD pada **Gambar 1** dengan metode *Rietveld* menggunakan *software Rietica*. **Tabel 1** merangkum parameter kesesuaian (*Figure-of-Merit*, *FoM*) dari proses *refinement* pola XRD pada **Gambar 2**.



Gambar 2. Hasil *refinement* ketiga pola XRD pada Gambar 1 dengan metode *Rietveld* menggunakan *software Rietica* pada suhu sinter **(a)** 1100 °C, **(b)** 1200 °C, dan **(c)** 1300 °C dengan waktu tahan 4 jam

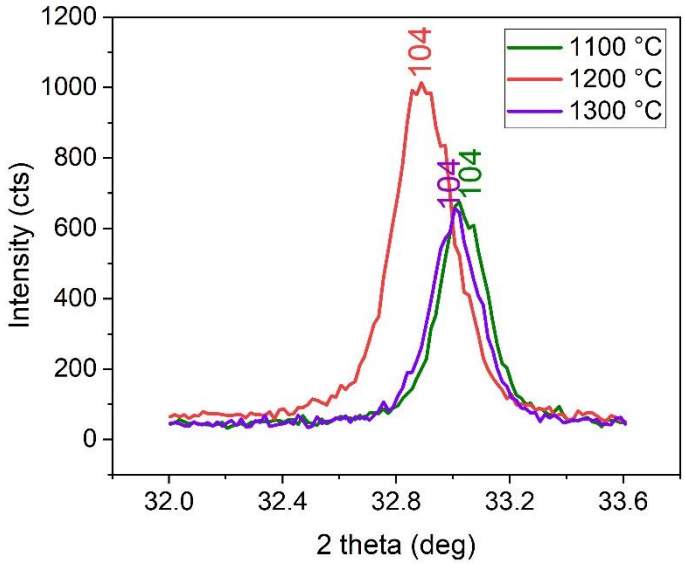
Tabel 1. Nilai parameter kesesuaian (*Figure-of-Merit, FoM*) sebagai *output refinement* pola XRD pada **Gambar 2**

Suhu Sinter (°C)	R_p	R_{wp}	χ^2	R_{exp}	R_B		
					$MgTiO_3$	TiO_2	MgO
1100	10,25	13,72	1,56	10,97	1,25	5,01	-
1200	10,31	13,43	1,49	11,01	4,60	4,71	-
1300	11,31	14,67	2,27	9,75	3,20	7,01	7,95

Pada **Gambar 2**, simbol '+' berwarna hitam menunjukkan pola difraksi terukur (eksperimen), sedangkan garis merah menggambarkan pola difraksi terhitung (model). Pola merah tersebut dibangkitkan dengan cara mengumpankan data-data kristalografi dari semua fasa yang telah teridentifikasi pada **Gambar 1**, yaitu $MgTiO_3$, TiO_2 *rutile*, dan MgO. Data-data kristalografi tersebut diperoleh dari basis data *Powder Diffraction File* (PDF) No. 06-0494 untuk fasa $MgTiO_3$, No. 21-1276 untuk fasa TiO_2 *rutile*, dan No. 45-0946 untuk fasa MgO, serta basis data *Inorganic Crystal Structure Database* (ICSD) No. 65794 untuk $MgTiO_3$, No. 64987 untuk TiO_2 *rutile*, dan No. 9863 untuk MgO. Garis vertikal berwarna biru di bawah pola difraksi terukur dan terhitung menyatakan posisi puncak-puncak Bragg milik ketiga fasa yang teridentifikasi tersebut. Sedangkan garis hijau menyatakan selisih tinggi intensitas antara puncak terukur dan puncak terhitung. Seperti terlihat, garis hijau tersebut berupa garis horizontal dengan sedikit selisih puncak (*less peaks*) pada beberapa posisi 2θ, yang menunjukkan proses *refinement* tersebut telah berhasil dengan ditandai hampir tidak adanya perbedaan tinggi intensitas antara pola terhitung dan terukur.

Seperti terlihat pada **Tabel 1**, nilai-nilai parameter kesesuaian (*Figure-of-Merit, FoM*) sebagai *output refinement* pola XRD pada **Gambar 2** menunjukkan bahwa nilai faktor profil (R_p), faktor profil terbobot (R_{wp}), dan *expected R-Factor* (R_{exp}) memiliki nilai dibawah 12%. Selain itu, faktor bragg (R_B) bernilai kurang dari 8% dan indeks *chi squared* (χ^2) menunjukkan nilai kurang dari 3%. Output *refinement* tersebut telah sesuai dengan parameter-parameter yang dinyatakan *acceptable* dalam [20]–[22], dimana parameter-parameter kesesuaian R_p, R_{wp}, dan R_{exp} kurang dari 20%, R_B kurang dari 10%, serta nilai χ^2 kurang dari 4%. Dengan demikian, output analisis dari *refinement* dengan perangkat lunak *Rietveld* pada **Tabel 1** berhasil dilakukan dan dapat digunakan untuk analisis lebih lanjut.

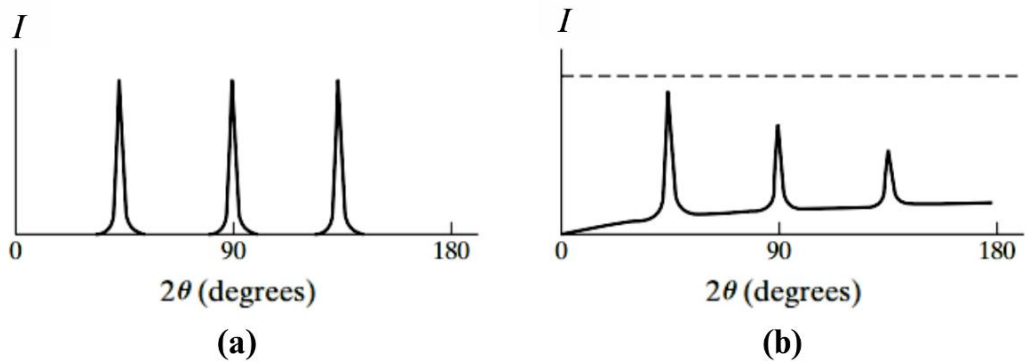
Terdapat fenomena menarik yang dapat ditemukan pada **Gambar 2** diatas, yaitu terjadinya peningkatan intensitas *background* pola XRD MTC005 suhu sinter 1100 °C pada posisi 2θ = 15,00 - 28,50° dan 2θ = 52,50-70,00° (lihat **Gambar 2(a)**) dan suhu sinter 1300 °C pada posisi 2θ = 38,50- 49,00° (lihat **Gambar 1(c)**). Selain itu, terjadi penurunan intensitas difraksi utama milik $MgTiO_3$ dengan *hkl* 104 pada kedua suhu sinter tersebut (yaitu 1100 dan 1300 °C) (lihat **Gambar 3**).



Gambar 3. Intensitas puncak difraksi pada $hkl_{(104)}$ Gambar 2

Sebelum membahas mengenai kedua fenomena tersebut, sebagaimana yang telah dijelaskan pada pendahuluan sebelumnya bahwa struktur kristalin terdiri dari atom-atom dengan susunan yang teratur dan periodik di suatu ruang, dimana atom-atom tersebut mengalami vibrasi termal secara ideal [17]. Namun amplitudo vibrasi termal atom tersebut dapat meningkat seiring dengan meningkatnya suhu selama proses

sinter, hal tersebut mengakibatkan terjadinya perubahan posisi atom dari posisi normalnya sehingga dapat mengganggu keteraturan atom. Ketidakteraturan posisi atom tersebut dapat mengakibatkan difraksi sinar-X tidak terfokus pada satu arah melainkan meyebar ke segala arah (*diffuse*). Fenomena ini disebut dengan fenomena *thermal diffuse scattering* (TDS) [16]–[19] yang diilustrasikan pada **Gambar 4**.



Gambar 4. Ilustrasi perbandingan pola XRD **(a)** tanpa fenomena TDS **(b)** adanya fenomena TDS (Sumber: [17]).

Seperti terlihat pada **Gambar 4(a)**, ketika atom dalam keadaan normal (mengalami vibrasi termal atom secara ideal), maka intensitas puncak-puncak difraksi adalah sama dan tidak memiliki intensitas *background.* Sementara itu, seperti terlihat pada **Gambar 4(b)**, puncak-puncak difraksi yang sama dengan **Gambar 4(a)** mengalami peningkatan intensitas *background* akibat terjadinya perubahan vibrasi termal atom seiring dengan meningkatnya suhu selama proses sinter. Peningkatan intensitas *background* tersebut menyebabkan penurunan intensitas difraksi yang disebut sebagai fenomena TDS. Dengan demikian, melalui data vibrasi termal atom dan data posisi atom pada ketiga sampel keramik maka fenomena TDS yang diduga menjadi penyebab meningkatnya intensitas background dan menurunnya intensitas difraksi dapat dideteksi.

Fenomena TDS tersebut diduga terdeteksi dalam penelitian ini. Hal tersebut dapat diindikasi dengan adanya penurunan intensitas puncak difraksi utama milik $MgTiO_3$ dengan *hkl* 104 pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C (lihat kembali **Gambar 3**). Seperti terlihat pada **Gambar 3**, intensitas puncak difraksi pada suhu sinter 1100 (613,54 cts) dan 1300 °C (610,43 cts) lebih rendah dibandingkan dengan intensitas puncak difraksi pada suhu sinter 1200 °C (945,33 cts). Penurunan intensitas difraksi juga ditengarai dengan terjadinya pelebaran puncak-puncak difraksi untuk semua orientasi (*hkl*) milik fasa $MgTiO_3$ pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C. **Tabel 2** merangkum data nilai *Full Width at Half Maximum* atau FWHM (β) pada setiap posisi puncak (2θ) untuk variasi suhu sinter 1100, 1200, dan 1300 °C.

Tabel 2. Data posisi puncak (2θ) dan nilai FWHM (β) untuk setiap orientasi bidang *hkl* fasa $MgTiO_3$ pada keramik MTC005 dengan variasi suhu sinter 1100, 1200, dan 1300 °C waktu tahan 4 jam

hkl	1100°C		1200°C		1300°C	
	2θ (°)	**β (°)**	**2θ (°)**	**β (°)**	**2θ (°)**	**β (°)**
003	19.2651	0.2007	19.1423	0.1338	19.2358	0.1673
101	21.3959	0.1673	21.2577	0.1338	21.3827	0.1338
012	24.1855	0.1171	24.0313	0.1673	24.1186	0.1338
104	33.0060	0.1171	32.8616	0.1004	33.0144	0.1338
110	35.6303	0.1004	35.4696	0.1338	35.6033	0.1338
113	40.7536	0.1171	40.6074	0.1004	40.7285	0.1004
024	49.2765	0.0836	49.1581	0.0669	49.2681	0.2342
116	53.7524	0.1171	53.5865	0.1506	53.7335	0.0836
018	57.1825	0.2676	56.9567	0.2676	57.1295	0.3346
214	62.2100	0.1338	62.1317	0.1338	62.1895	0.1673
300	63.8597	0.1004	63.7272	0.0836	63.8203	0.1338

Seperti terlihat pada **Gambar 3** dan **Tabel 2**, dapat diamati bahwa nilai FWHM pada $hkl_{(104)}$ untuk ketiga variasi suhu sinter (1100, 1200, dan 1300 °C) masing-masing sebesar 0,1171°; 0,1004°; dan 0,1338°. Adanya pelebaran puncak $hkl_{(104)}$ pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C tersebut diduga disebabkan oleh peningkatan intensitas *background* dan penurunan intensitas difraksi akibat fenomena TDS, dimana FWHM untuk variasi suhu sinter 1100 dan 1300 °C memiliki nilai yang lebih besar dibandingkan dengan nilai FWHM pada suhu

sinter 1200 °C. Dengan demikian, peristiwa penurunan intensitas difraksi dan pelebaran puncak pada variasi suhu sinter 1100 dan 1300 °C tersebut mengindikasikan terjadinya fenomena TDS pada keramik MTC005 dengan variasi suhu sinter 1100 dan 1300 °C.

Selanjutnya, data perubahan vibrasi termal atom seiring dengan meningkatnya suhu sinter dapat diperoleh melalui analisis kuantitatif menggunakan metode *Rietveld*, dimana terjadi perubahan nilai vibrasi termal atom (parameter B) pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C dari nilai normal (teoritik) yaitu 0,60 yang ditunjukkan pada **Tabel 3** berikut.

Tabel 3. Perubahan nilai vibrasi termal atom-atom (B) fasa $MgTiO_3$ berdasarkan hasil *Refinement*

Nilai teoritik Parameter B pada *Rietica*	**Atom**	**Parameter B berdasarkan hasil *Refinement***			**ΔB**		
		Suhu Sinter (°C)			**Suhu Sinter (°C)**		
		1100	**1200**	**1300**	**1100**	**1200**	**1300**
0,600	Mg	6,687	0,600	7,843	6,087	0	7,243
	Ti	2,079	0,600	2,300	1,479	0	1,700
	Cr	0,600	0,600	0,600	0	0	0
	O	2,270	0,600	7,737	1,670	0	7,137

Seperti terlihat pada **Tabel 3**, terjadi perubahan nilai vibrasi termal atom (ΔB) dari nilai teoritiknya yaitu pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C. Sedangkan nilai B berdasarkan hasil *refinement* pada suhu sinter 1200 °C tidak mengalami perubahan dari nilai teoritiknya, artinya ΔB bernilai nol. Dengan demikian, data perubahan vibrasi termal atom tersebut mengindikasikan terjadinya fenomena TDS pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C.

Sebagaimana yang telah dijelaskan sebelumnya, perubahan vibrasi termal atom seiring dengan meningkatnya suhu sinter mengakibatkan terjadinya penurunan periodisitas kisi. Hal tersebut ditandai dengan adanya ketidakteraturan atom (*atomic disorder*) yaitu perpindahan atom dari posisi setimbangnya [17], [23] yang ditunjukkan pada **Tabel 4**.

Tabel 4. Posisi atom *x*, *y*, dan *z* pada MTC005 dengan variasi suhu sinter 1100, 1200, 1300 °C waktu tahan 4 jam

Posisi Atom Teoritis (Data ICSD)				**Posisi Atom Eksperimen (Hasil *Refinement*)**					**Selisih Pergeseran Posisi Atom**		
	***x* (Å)**	***y* (Å)**	***z* (Å)**		**Suhu Sinter (°C)**	***x* (Å)**	***y* (Å)**	***z* (Å)**	**Δ*x* (Å)**	**Δ*y* (Å)**	**Δ*z* (Å)**
Mg	0,000	0,000	0,356	**Mg**	1100	0,000	0,000	0,355	0,000	0,000	0,001
					1200	0,000	0,000	0,356	0,000	0,000	0,000
					1300	0,000	0,000	0,354	0,000	0,000	0,002
Ti	0,000	0,000	0,145	**Ti**	1100	0,000	0,000	0,144	0,000	0,000	0,001
					1200	0,000	0,000	0,145	0,000	0,000	0,000
					1300	0,000	0,000	0,144	0,000	0,000	0,001
				Cr	1100	0,000	0,000	0,144	0,000	0,000	0,001
					1200	0,000	0,000	0,145	0,000	0,000	0,000
					1300	0,000	0,000	0,144	0,000	0,000	0,001
O	0,316	0,021	0,246	**O**	1100	0,312	0,019	0,245	0,004	0,002	0,001
					1200	0,316	0,021	0,246	0,000	0,000	0,000
					1300	0,311	0,020	0,244	0,005	0,001	0,002

Seperti terlihat pada **Tabel 4**, hasil *refinement* tersebut menunjukkan bahwa terjadi perpindahan posisi atom dari posisi setimbangnya (secara teoritis dari data ICSD). Hal tersebut dibuktikan dengan terjadinya pergeseran posisi atom Mg, Ti, dan O terhadap sumbu kristal *x*, *y*, dan *z* pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C dari posisi teoritiknya berdasarkan data ICSD. Sedangkan pada suhu sinter 1200 °C posisi atom-atom tersebut tidak mengalami perubahan dari posisi setimbangnya, artinya Δ*x*, Δ*y*, dan Δ*z* bernilai nol. Berdasarkan data-data pergeseran posisi atom tersebut semakin menguatkan dugaan terjadinya fenomena TDS pada MTC005 dengan suhu sinter 1100 dan 1300 °C. Akan tetapi, dibutuhkan penelitian lebih lanjut untuk mengetahui alasan tidak ditemukannya fenomena TDS pada suhu sinter 1200 °C.

Selain data-data diatas, **Tabel 5** berikut merangkum *output refinement* pola XRD pada **Gambar 2** berupa data % berat, % molar, densitas atom, parameter kisi, dan volume sel satuan milik semua fasa yang telah teridentifikasi.

Tabel 5. *Output refinement* pola XRD pada **Gambar 2**

Suhu Sinter (°C)	Fasa	% Berat	% Molar	Densitas Atom (gr/cm³)	Parameter Kisi (x 10^{-2}) nm		Volume Sel Satuan (x 10^{-2}) nm³
1100	$MgTiO_3$	82,73 ± 6,87	77,52 ± 6,48	3,78	a=b	50,49 ± 0,00	3064,52 ± 0,03
					c	138,79 ± 0,00	
	TiO_2	17,27 ± 2,63	22,48 ± 3,44	3,99	a=b	45,92 ± 0,00	623,51 ± 0,06
					c	29,57 ± 0,00	
1200	$MgTiO_3$	89,42 ± 0,72	84,86 ± 0,69	3,81	a=b	50,52 ± 0,00	3069,43 ± 0,10
					c	138,87 ± 0,00	
	TiO_2	10,58 ± 0,20	15,14 ± 0,29	4,25	a=b	45,94 ± 0,00	624,56 ± 0,01
					c	29,59 ± 0,00	
1300	$MgTiO_3$	96,56 ± 3,48	91,24 ± 3,40	3,85	a=b	50,54 ± 0,00	3073,93 ± 0,03
					c	138,89 ± 0,00	
	TiO_2	1,10 ± 0,16	0,04 ± 0,01	4,83	a=b	45,96 ± 0,00	625,14 ± 0,03
					c	29,60 ± 0,00	
	MgO	2,34 ± 0,35	8,72 ± 1,30	3,60	a=b=c	42,02 ± 0,03	742,24 ± 0,26

Seperti terlihat pada **Tabel 5**, terjadi peningkatan %berat dan %molar milik fasa $MgTiO_3$ dari keramik MTC005 yang disinter pada suhu 1100, 1200, dan 1300 °C dengan waktu tahan 4 jam. Hal tersebut ditunjukkan dengan nilai parameter %berat dan %molar masing-masing adalah sebesar 82,73% dan 77,52% (1100 °C), kemudian meningkat seiring kenaikan suhu sinter yaitu 89,42% dan 84,86% (1200 °C) serta 96,56% dan 91,24% (1300 °C), sehingga nilai parameter %berat dan %molar milik fasa TiO_2 semakin menurun seiring dengan semakin tingginya suhu sinter. Apabila ditinjau dari nilai %berat dan %molar dari fasa $MgTiO_3$, maka dapat diketahui bahwa pada suhu sinter 1300 °C nilai kedua parameter tersebut paling besar dan dapat dikatakan sebagai suhu optimal pembentukan fasa $MgTiO_3$ pada penelitian ini. Namun, nilai %molar tersebut lebih rendah 5,08% dari sampel $(Mg_{0,95}Zn_{0,5})TiO_3$ yang dilaporkan oleh [3] dengan menggunakan metode sintesis serbuk dan fabrikasi keramik yang sama, dimana sampel keramik yang disinter pada suhu 1300 °C menghasilkan fasa $MgTiO_3$ dengan %molar sebesar 96,32%. Hal tersebut dimungkinkan ada kaitannya dengan tingkat kemiripan jari-jari ion dopan dan ion host. Dalam hal ini, kemiripan antara jari-jari ion Cr^{4+} (0,055 nm) dan ion Ti^{4+} (0,061 nm) (pada penelitian ini) lebih rendah daripada kemiripan jari-jari ion Zn^{2+} (0,074 nm) dan ion Mg^{2+} (0,072 nm) (pada penelitian [3]) [24].

Trend yang sama ditunjukkan oleh nilai densitas atom milik fasa $MgTiO_3$, dimana naiknya suhu sinter dapat meningkatkan densitas atom dari 3,78 g/cm³ (1100 °C) menjadi 3,81 g/cm³ (1200 °C) dan 3,85 g/cm³ (1300 °C). Selain itu, data parameter kisi dan volume sel satuan juga memiliki *trend* yang sama, dimana peningkatan parameter kisi dan volume sel satuan dipengaruhi oleh semakin meningkatnya suhu sinter. Data volume sel satuan dari fasa $MgTiO_3$ mengalami kenaikan dari $3064{,}52 \times 10^{-2} \pm 0{,}03$ nm (1100 °C) menjadi $3069{,}43 \times 10^{-2} \pm 0{,}10$ nm (1200 °C) dan $3073{,}93 \times 10^{-2} \pm 0{,}03$ nm (1300 °C). *Trend* tersebut juga didukung oleh *trend* yang sama pada data parameter kisi (a=b, c), dimana parameter kisi milik fasa $MgTiO_3$ meningkat seiring dengan bertambahnya suhu sinter, yaitu dari a = b = (50,49 ± 0,00) x 10^{-2} nm dan c = (138,79 ± 0,00) x 10^{-2} nm (suhu sinter 1100 °C), a = b = (50,52 ± 0,00) x 10^{-2} nm dan c = (138,87 ± 0,00) x 10^{-2} nm (suhu sinter 1200 °C), hingga a = b = (50,54 ± 0,00) x 10^{-2} nm dan c = (138,89 ± 0,00) x 10^{-2} nm (suhu sinter 1300 °C).

Dengan demikian, dapat diamati bahwa fenomena TDS yang teridentifikasi pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C ternyata tidak berpengaruh pada karakteristik %berat, %molar, densitas atom, parameter kisi, dan volume sel satuan (struktur) MTC005. Hal tersebut diduga disebabkan karena fenomena TDS hanya terjadi

secara lokal yaitu pada posisi 2θ = 15,00-28,50° dan 52,50-70,00° (1100 °C) serta pada posisi 2θ = 38,50-49,00° (1300 °C).

IV. PENUTUP

A. Simpulan

Fabrikasi keramik MTC005 telah berhasil dilakukan dengan variasi suhu sinter 1100, 1200, dan 1300 °C selama 4 jam. Ketiga variasi suhu sinter tersebut menghasilkan struktur yang terdiri dari fasa utama $MgTiO_3$ dengan disertai kehadiran fasa TiO_2 *rutile* dan MgO (ditemukan pada suhu sinter 1300 °C). Fenomena *thermal diffuse scattering* (TDS) diduga terjadi pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C. Hasil penghalusan *Rietveld* menunjukkan bahwa vibrasi termal atom (ΔB) telah berubah dari nilai *default*-nya (0,600, pada perangat lunak Rietica). Sebagai contoh pada suhu sinter 1300 °C, ΔB untuk masing-masing atom Mg, Ti, Cr, dan O = 7,243; 1,700; 0; dan 7,137. Demikian juga, posisi atom terhadap sumbu kristal x, y, dan z telah berubah dari posisi setimbangnya (berdasarkan data ICSD No. 65794), yaitu Δx=0; Δy=0; Δz=0,002 Å (Mg); Δx=0; Δy=0; Δz=0,001 Å (Ti = Cr); dan Δx=0,005; Δy=0,001; Δz=0,002 Å (O). Dampak dari perubahan ΔB dan $\Delta(x,y,z)$ pada kedua suhu sinter tersebut ditunjukkan dengan menurunnya intensitas difraksi utama milik $MgTiO_3$ pada hkl_{104}, yaitu $I_{Bragg\ (1100\,°C)}$=613,54 cts, $I_{Bragg\ (1200\,°C)}$=945,33 cts, dan $I_{Bragg\ (1300\,°C)}$=610,43 cts sehingga mengakibatkan meningkatnya intensitas *background*. Di samping itu, posisi puncak hkl_{104} mengalami pergeseran menuju 2θ yang lebih besar. Penurunan intensitas difraksi juga ditengarai dengan pelebaran puncak difraksi (FWHM) = 0,1171° (1100 °C); 0,1004° (1200 °C); dan 0,1338° (1300 °C). Penyebab ketiadaan perubahan ΔB dan $\Delta(x,y,z)$ pada suhu 1200 °C belum dapat diketahui. Namun demikian, fenomena TDS yang teridentifikasi pada suhu sinter 1100 dan 1300 °C tersebut tampaknya tidak berpengaruh pada karakteristik struktur MTC005.

B. Saran

Perlu dilakukan penelitian lebih lanjut untuk mengetahui alasan tidak ditemukannya fenomena TDS pada suhu sinter 1200 °C.

DAFTAR PUSTAKA

[1] Z. Fu, C. Chen, Y. She, Z. Yang, and C. Li, "A/B Site Modified $MgTiO_3$ Dielectric Ceramics for Microwave Application," *Integr. Ferroelectr.*, vol. 230, no. 1, pp. 78–84, Nov. 2022, doi: 10.1080/10584587.2022.2102800.

[2] A. Y. Hercuadi, Y. Sulaeman, and P. Adhi, "Dielectric resonance oscillator (DRO) 9.6 GHz for RADAR application," in *Proceedings of the 2015 IEEE 4th Asia-Pacific Conference on Antennas and Propagation, APCAP 2015*, 2016, pp. 549–551. doi: 10.1109/APCAP.2015.7374483.

[3] A. M. Muammar and F. U. Ermawati, "Characterization of $(Mg_{0.5}Zn_{0.5})TiO_3$ Ceramics As Material Candidates for Dielectric Resonator at Microwave Frequency," *Indones. Phys. Rev.*, vol. 5, no. 2, 2022, [Online]. Available: https://doi.org/10.29303/ip

[4] T. Shi *et al.*, "Fabrication, sinterability and microwave dielectric properties of $MgTiO_3$–$(Ca_{0.8}Sr_{0.2})TiO_3$ composite ceramics from nanosized powders," *Vacuum*, vol. 201, p. 111107, 2022, doi: https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2022.111107.

[5] P. Gogoi, L. R. Singh, and D. Pamu, "Characterization of Zn doped $MgTiO_3$ ceramics: an approach for RF capacitor applications," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 28, no. 16, pp. 11712–11721, 2017, doi: 10.1007/s10854-017-6975-6.

[6] Z. Gong, Z. Wang, L. Wang, Z. Fu, W. Han, and Q. Zhang, "Microwave dielectric properties of high-Q $Mg(Sn_xTi_{1-x})O_3$ ceramics," *Electron. Mater. Lett.*, vol. 9, no. 3, pp. 331–335, 2013, doi: 10.1007/s13391-013-2214-3.

[7] J. Singh and S. Bahel, "Rietveld refinements, crystal structure and UV-Vis spectroscopy of MgO and $Mg(OH)_2$-based undoped and Sn^{4+}-doped $MgTiO_3$ ceramics," *Mater. Today Proc.*, vol. 45, pp. 5249–5254, 2021, doi: 10.1016/j.matpr.2021.01.827.

[8] Z. Xu, L. Li, S. Yu, M. Du, and W. Luo, "Magnesium fluoride doped $MgTiO_3$ ceramics with ultra-high Q value at microwave frequencies," *J. Alloys Compd.*, vol. 802, pp. 1–5, 2019, doi: 10.1016/j.jallcom.2019.06.207.

[9] J. B. Huang *et al.*, "Microwave and terahertz dielectric properties of $MgTiO_3$-$CaTiO_3$ ceramics," *Mater. Lett.*, vol. 138, pp. 225–227, 2015, doi: 10.1016/j.matlet.2014.09.122.

[10] N. Durrotun and F. U. Ermawati, "Fabrikasi Keramik $(Mg_{0,6}Zn_{0,4})TiO_3$+x wt.% Bi_2O_3 Hasil Sintesis dengan Metode Pencampuran Larutan dan Pengaruh Variasi x wt.% Bi_2O_3 terhadap Struktur dan Densitas Keramik," vol. 09, pp. 15–20, 2020.

[11] C. Chen, Z. Peng, L. Xie, K. Bi, and X. Fu, "Microwave dielectric properties of novel (1 − x)$MgTiO_3$–x$Ca_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ ceramics," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 31, no. 16, pp. 13696–13703, 2020, doi: 10.1007/s10854-020-03927-1.

[12] S. N. Maulana Ishak and F. U. Ermawati, "Characterization Of $(Mg_{0.6}Zn_{0.4})TiO_3$ Ceramics as Dielectric Resonator Materials in Microwave Frequencies," *Spektra J. Fis. dan Apl.*, vol. 7, no. 1, 2022, doi: 10.21009/spektra.071.02.

[13] F. U. Ermawati, Y. Taryana, Y. Sulaeman, Y. N. Wijayanto, N. Sudrajat, and W. A. Adi, "Fabrication and characterization of $(Mg_{0.8}Zn_{0.2})(Ti_{0.99}Sn_{0.01})O_3$ ceramics as a 4.0 GHz resonator in dielectric resonator oscillator module," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, vol. 34, no. 20, pp. 1–18, 2023, doi: 10.1007/s10854-023-10890-0.

[14] D. J. C. MacKay, "Introduction to microstructures," *Mater. Miner. Sci. Course C Microstruct.*, pp. 1–8, 2014, [Online]. Available: http://www.inference.phy.cam.ac.uk/prlw1/minp/CourseC/CP1.pdf

[15] J. G. Wang, C. T. Chang, K. K. Song, L. Wang, and Y. Pan, "Short-range ordering in metallic supercooled liquids and glasses," *J. Alloys Compd.*, vol. 770, pp. 386–394, 2019, doi: 10.1016/j.jallcom.2018.08.090.

[16] K. R. Beyerlein, M. Leoni, and P. Scardi, "Temperature Diffuse Scattering of Nanocrystals," *Acta Crystallogr. Sect. A Found. Crystallogr.*, vol. 68, no. 3, pp. 382–392, 2012, doi: 10.1107/S0108767312009853.

[17] B. D. Cullity and S. R. Stock, *Elements of X-Ray Diffraction*. 2014.

[18] B. Niepötter, R. Herbst-Irmer, and D. Stalke, "Empirical Correction for Resolution and Temperature-dependent Errors caused by Factors such as Thermal Diffuse Scattering," *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 48, pp. 1485–1497, 2015, doi: 10.1107/S1600576715014934.

[19] T. R. Welberry and T. Weber, "One Hundred Years of Diffuse Scattering," *Crystallogr. Rev.*, vol. 22, no. 1, pp. 2–78, 2016, doi: 10.1080/0889311X.2015.1046853.

[20] B. A. Hunter, "Rietica-A visual Rietveld program," 2000.

[21] B. H. Toby, "Rietveld refinement," pp. 465–472, 2019, doi: 10.1107/97809553602060000962.

[22] R. A. Young, "Structural analysis from X-ray powder diffraction patterns with the Rietveld method," in *Symposium on Accuracy in Powder Diffraction, National Bureau of Standards. Gaithersburg, Maryland*, 1980, pp. 143–163.

[23] J. M. Cowley, *Diffuse Scattering and Absorption Effects*, Third Revi. 1995. doi: 10.1016/b978-044482218-5/50014-6.

[24] Y.-M. Chiang, D. P. Birnie, and W. D. Kingery, *Physical Ceramics: Principles for Ceramic Science and Engineering*. Toronto: John Wiley & Sons, Inc, 2007.