

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI SENYAWA AURIVILIUS
 $\text{Bi}_{4-x}\text{Sn}_x\text{Ti}_{3-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ MENGGUNAKAN METODE LELEHAN GARAM
SEBAGAI BAHAN KAPASITOR DIELEKTRIK**

SKRIPSI SARJANA KIMIA

Oleh :

MHD. RISKY

NIM : 2210412023



Pembimbing I : Prof. Dr. Zulhadjri M.Eng

Pembimbing II : Dr. Tio Putra Wendari

PROGRAM STUDI SARJANA

DEPARTEMEN KIMIA

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

UNIVERSITAS ANDALAS

PADANG

2026

INTISARI

Sintesis dan Karakterisasi Senyawa Aurivilius $\text{Bi}_{4-x}\text{Sn}_x\text{Ti}_{3-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ Menggunakan Metode Lelehan Garam Sebagai Bahan Kapasitor Dielektrik

Oleh :

Mhd Risky (NIM : 2210412023)

Prof. Dr. Zulhadjri, M.Eng* Dr. Tio Putra Wendari*

*Pembimbing

Pesatnya perkembangan teknologi menuntut pengembangan material kapasitor dielektrik yang memiliki efisiensi tinggi dan stabilitas termal yang baik. Salah satu kandidat material tersebut adalah senyawa Aurivilius lapis tiga $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BiTO), yang memiliki kestabilan feroelektrik pada suhu tinggi, namun memiliki keterbatasan berupa polarisasi spontan yang belum optimal, arus bocor yang tinggi dan efisiensi penyimpanan energi yang rendah. Pada penelitian ini dilakukan modifikasi BiTO melalui substitusi kation Bi^{3+} oleh Sn^{2+} dan Ti^{4+} oleh Nb^{5+} sehingga diperoleh senyawa $\text{Bi}_{4-x}\text{Sn}_x\text{Ti}_{3-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ ($x = 0, 0,05, 0,1, 0,15$ dan $0,2$) dengan tujuan meningkatkan sifat listrik dan efisiensi penyimpanan energinya. Sintesis dilakukan menggunakan metode lelehan garam dengan campuran garam NaCl/KCl dengan rasio mol garam terhadap mol produk sebesar 7:1. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan bahwa seluruh sampel memiliki fasa tunggal pada $x = 0, 0,05$, dan $0,1$ dengan pola difraksi yang bergeser ke sudut difraksi lebih kecil, seiring peningkatan komposisi dopan. Sedangkan pada $x = 0,15$ dan $0,2$ ditemukan adanya fasa pengotor. Analisis refinement metode Le Bail mengonfirmasi bahwa seluruh sampel berstruktur ortorombik dengan grup ruang B2cb, dengan perubahan parameter kisi yang menunjukkan adanya distorsi struktur tanpa mengalami perubahan struktur secara signifikan. Analisis FTIR mengkonfirmasi keberhasilan substitusi ion Nb^{5+} pada situs B, sedangkan analisis Raman menunjukkan pergeseran mode vibrasi yang berkaitan dengan substitusi ion Sn^{2+} pada situs A dan perubahan lingkungan lokal oktahedral $(\text{Ti},\text{Nb})\text{O}_6$. Hasil UV-Vis DRS menunjukkan bahwa nilai E_g menurun dari 3,1 eV menjadi 3,03 eV dengan meningkatnya komposisi dopan, yang mengindikasikan terjadinya penataulangan orbital-orbital molekul dan distorsi oktahedral $(\text{Nb},\text{Ti})\text{O}_6$ yang terbentuk. Pengamatan SEM memperlihatkan morfologi berbentuk pelat berlapis khas struktur Aurivilius dengan ukuran butir yang semakin kecil seiring peningkatan komposisi dopan. Hasil analisis sifat dielektrik menunjukkan penurunan konstanta dielektrik dan suhu Curie (T_c) setelah pendopingan. Meski demikian, anomali dielektrik yang lebar pada rentang suhu 300-600°C yang berkaitan dengan relaksasi cacat (*defect-related relaxation*) akibat volatilisasi Bi selama proses sintering berkurang secara signifikan dengan penambahan Sn^{2+} dan Nb^{5+} . Hal ini menunjukkan penurunan konsentrasi kekosongan oksigen yang berdampak pada berkurangnya relaksasi cacat dan dielektrik loss ($\tan \delta$). Analisis sifat feroelektrik menunjukkan kurva histeresis P-E yang semakin besar dan penurunan efisiensi penyimpanan energi (η) seiring bertambahnya komposisi dopan, dengan nilai efisiensi sebesar 64,53 % pada $x = 0,1$. Hasil penelitian ini menunjukkan bahwa senyawa $\text{Bi}_{4-x}\text{Sn}_x\text{Ti}_{3-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ berpotensi sebagai material kapasitor dielektrik bebas timbal dengan stabilitas termal yang baik untuk aplikasi penyimpanan energi pada kondisi temperatur tinggi.

Kata Kunci : Aurivilius, feroelektrik, dielektrik, metode lelehan garam, Refinement Le Bail

ABSTRACT

Synthesis and Characterization of Aurivillius $\text{Bi}_{4-x}\text{Sn}_x\text{Ti}_{3-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ Prepared via the Molten Salt Method as Dielectric Capacitor Materials

By :

Mhd Risky (NIM : 2210412023)

Prof. Dr. Zulhadjri, M.Eng* Dr. Tio Putra Wendari*

*Supervisor

The rapid advancement of technology demands the development of dielectric capacitor materials with high efficiency and excellent thermal stability. One promising candidate is the three-layer Aurivillius compound $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BiTO), which exhibits excellent ferroelectric stability at high temperatures. However, it suffers from several limitations, including suboptimal spontaneous polarization, high leakage current, and low energy storage efficiency. In this study, BiTO was modified through the substitution of Bi^{3+} with Sn^{2+} and Ti^{4+} with Nb^{5+} to obtain $\text{Bi}_{4-x}\text{Sn}_x\text{Ti}_{3-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ compounds ($x = 0, 0.05, 0.1, 0.15$ and 0.2) aiming to enhance their electrical properties and energy storage performance. The compounds were synthesized using the molten salt method with a NaCl/KCl salt mixture at a salt-to-precursor molar ratio of 7:1. X-ray diffraction (XRD) analysis revealed that all samples exhibited a single-phase structure for $x = 0, 0.05$, and 0.2 with diffraction peaks shifting toward lower diffraction angles as the dopant concentration increased. Additionally, an impurity was found for both $x = 0.15$ and 0.2 . Le Bail refinement confirmed that all samples crystallized in an orthorhombic structure with the B2cb space group. Variations in the lattice parameters indicated structural distortion without significant changes in the crystal symmetry. FTIR analysis confirmed the successful substitution of Nb^{5+} ions at the B-site, while Raman spectroscopy revealed shifts in vibrational modes associated with the incorporation of Sn^{2+} ions at the A-site and changes in the local environment of the $(\text{Ti},\text{Nb})\text{O}_6$ octahedra. UV-Vis diffuse reflectance spectroscopy (DRS) showed that the optical band gap decreased from 3.1 eV to 3.03 eV with increasing dopant concentration, indicating orbital rearrangement and distortion of the NbO_6 octahedra. SEM observations revealed the characteristic plate-like morphology of Aurivillius structures, with grain size decreasing as the doping level increased. Dielectric measurements demonstrated a reduction in both dielectric constant and Curie temperature (T_c) after doping. Nevertheless, the broad dielectric anomaly observed in the temperature range of 300-600°C, which is associated with defect-related relaxation caused by Bi volatilization during sintering, was significantly suppressed by the incorporation of Sn^{2+} and Nb^{5+} . This result suggests a decrease in oxygen vacancy concentration, leading to reduced defect relaxation and dielectric loss ($\tan \delta$). Ferroelectric characterization showed progressively broader P-E hysteresis loops and reduced energy storage efficiency (η) with increasing dopant concentration, reaching a maximum value of 64,53 % for $x = 0.1$. These findings demonstrate that $\text{Bi}_{4-x}\text{Sn}_x\text{Ti}_{3-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ is a promising lead-free dielectric capacitor material with good thermal stability for high-temperature energy storage applications.

Keywords: Aurivillius, ferroelectric, dielectric, molten salt method, Le Bail refinement.