

PENGARUH PENCAMPURAN DAN RASIO DOPAN/PREKURSOR DALAM PEMBUATAN LAPISAN TIPIS *FLUORINE DOPED TIN OXIDE* (FTO) BERBASIS TIMAH (II) KLORIDA

Latifa Hanum Lalasari^{a,*}, Tri Arini^a, Akhmad Herman Yuwono^b, F. Firdiyono^a

^aPusat Penelitian Metalurgi dan Material - LIPI

Gedung 470, Kawasan Puspiptek, Tangerang Selatan

^bDepartemen Teknik Metalurgi dan Material – Universitas Indonesia

Kampus Baru Universitas Indonesia – Depok 16424

E-Mail: *lati003@lipi.go.id

Masuk Tanggal : 18-11-2015, revisi tanggal : 01-12-2015, diterima untuk diterbitkan tanggal 15-12-2015

Intisari

Flourine-doped tin oxide (FTO) merupakan oksida yang umum digunakan dalam pelapisan pada kaca yang diberi perlakuan tertentu agar dapat menghantarkan listrik. FTO ini diharapkan dapat menggantikan fungsi *indium tin oxide* (ITO) yang bahan bakunya sangat mahal dan tersedia dalam jumlah yang terbatas. Percobaan pendahuluan tentang pembuatan lapisan tipis F-SnO₂ dilakukan menggunakan kombinasi metode sol gel dan *dip coating*. Percobaan ini menggunakan bahan baku timah (II) klorida hidrat (SnCl₂.2H₂O) sebagai prekursor dan ammonium florida (NH₄F) sebagai doping. Hasil percobaan menunjukkan bahwa lamanya waktu pencampuran antar prekursor dan doping tidak begitu mempengaruhi kestabilan larutan. Faktor yang signifikan mempengaruhi adalah rasio konsentrasi dopan/prekursor (NH₄F: SnCl₂.2H₂O) dan kondisi pencampuran antara prekursor dan doping. Rasio konsentrasi dopan/prekursor (NH₄F: SnCl₂.2H₂O) sebesar 10% menghasilkan larutan konduktif paling stabil (US-1-¹/₂-¹/₂) dengan lapisan tipis FTO yang dihasilkan mempunyai morfologi heksagonal lebih teratur, seragam dan fasa Sn₄OF₆.

Kata Kunci: *Flourine-doped tin oxide, Timah (II) klorida hidrat, Ammonium florida, Sol gel, Dip coating*

Abstract

Flourine-doped tin oxide (FTO) is an oxide that is commonly used in the coating on the glass treated a particular treatment in order to be able to conduct electricity. FTO is expected to replace *indium tin oxide* (ITO) whose raw materials are very expensive and available in limited quantities. Preliminary experiments on the manufacture of F-SnO₂ thin film done with using combinations of sol gel method and *dip coating*. This experiment used the raw material of tin (II) chloride hydrate (SnCl₂.2H₂O) as precursors and ammonium fluoride (NH₄F) as doping. The results showed that the processing time between the mixing of precursors and doping was not so affect the stability of the solution. The significant factor affecting was the concentration ratio of the dopant/precursor and the conditions of mixing between the precursors and doping. The concentration ratio of the dopant/precursors of 10% produced the most stable conductive solution (US-1-¹/₂-¹/₂) with a thin layer of FTO has generated more regular hexagonal morphology, uniform and phase of Sn₄OF₆.

Keywords: *Flourine-doped tin oxide, Tin (II) chloride hydrate, Ammonium florida, Sol gel, Dip coating*

1. PENDAHULUAN

Kemajuan ilmu pengetahuan dan teknologi telah membawa manusia pada suatu peradaban yang membutuhkan potensi intelektual yang berkualitas. Peran ilmu sains selama ini telah terbukti bahwa saat ini yang diperlukan adalah kesan bahwa ilmu bukan hanya ilmu teoritis,

tapi mampu menjadi ilmu yang dapat diterapkan dalam kehidupan masyarakat.

Timah dalam bentuk oksida SnO₂ memiliki berbagai kelebihan yaitu masa pemakaian lama, relatif stabil, resistansi baik, biaya produksi murah, dan ketersediaannya di alam melimpah. Manfaat dari SnO₂ sendiri salah satunya adalah

sebagai bahan untuk membuat kaca konduktif. SnO_2 adalah semikonduktor oksida logam yang memiliki celah pita lebar khas tipe-N semikonduktor (3,6 eV). SnO_2 memiliki struktur kristal tetragonal dan bersifat nonpolar dengan parameter $a = 4,738 \text{ \AA}$ dan $c = 3,1888 \text{ \AA}$ ^[1]. Kaca konduktif dari SnO_2 memiliki konduktivitas rendah sehingga perlu adanya doping. Doping kali ini menggunakan florida dikarenakan florida memiliki tahanan listrik yang rendah dan transmisi optik tinggi.

FTO (*flourine-doped tin oxide*) umumnya lebih resistan secara kimiawi, murah dan ketersediaan bahan baku yang lebih mudah diperoleh. Khusus untuk aplikasi DSSC (*dye sensitized solar cell*), FTO menunjukkan sifat konduktivitas listrik yang relatif lebih tahan terhadap perlakuan pemanasan dibandingkan dengan ITO (*indium tin oxide*). Sehingga hal ini membuat FTO sangat potensial digunakan sebagai elektroda pada DSSC^[2].

Pembuatan FTO ini diharapkan dapat menggantikan fungsi ITO yang bahan bakunya sangat mahal dan tersedia dalam jumlah yang terbatas. Selain itu pula diharapkan FTO ini lebih kuat, tidak gampang rusak, serta lebih tahan panas dibandingkan dengan ITO. FTO merupakan salah satu oksida yang umum digunakan dalam pelapisan pada kaca yang diberi perlakuan tertentu agar dapat menghantar listrik. Kaca yang sudah dilapisi oleh oksida konduktif transparan memiliki hambatan jenis yang rendah pada sisi yang dilapisi. Untuk mendapatkan kaca dengan karakteristik tersebut, dapat dilakukan pelapisan dengan berbagai metode baik secara fisika maupun kimia^[3]. Secara fisika, pelapisan dapat dibuat dengan metode evaporasi^[4,5], *electron beam evaporation*^[6], *sputtering*^[7], dan *spray pyrolysis*^[6,8]. Sedangkan secara kimia berbagai metode deposisi dapat digunakan diantaranya metode sol-gel dan deposisi uap kimia/*chemical vapor deposition* (CVD)^[9]. Metode *sol gel* merupakan teknik yang sederhana, jauh lebih murah dibandingkan metode secara fisika, serta dapat digunakan untuk mendeposisi film tipis bahan semikonduktor dari senyawa logam sulfida dan selenida maupun semikonduktor logam oksida. Penelitian ini menggunakan kombinasi metode sol gel dan *dip coating* untuk pembuatan lapisan tipis SnO_2 yang didoping florida.

Proses deposisi film tipis SnO_2 yang didoping flourine dapat dilakukan dengan kombinasi metode sol gel dan *dip coating*. Namun demikian, untuk mendapatkan kaca konduktor FTO yang transparan serta konduktif

sesuai spesifikasi yang diinginkan, masih terdapat banyak faktor yang mempengaruhinya, baik dalam tahapan pelarutan maupun proses termal lanjutan (kalsinasi) menjadi oksida pada permukaan *substrate*. Hal ini membutuhkan suatu investigasi yang sistematis dan komprehensif untuk memperoleh kondisi proses yang optimum dan efisien. Oleh karenanya penelitian ini akan membahas pengaruh ratio massa (w/w) $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} : \text{NH}_4\text{F}$ dan kondisi pencampuran terhadap morfologi dan fasa yang terbentuk dari film SnO_2 yang didoping florida.

2. PROSEDUR PERCOBAAN

A. Bahan Percobaan

Bahan yang digunakan dalam percobaan adalah kristal Timah (II) Klorida Hidrat ($\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), kristal ammonium florida (NH_4F), larutan Asam Sulfat (H_2SO_4) 36 N, Etanol, dan akuades.

B. Proses Percobaan

Pembuatan lapisan transparansi FTO secara umum dibagi dalam 3 tahapan besar. Tahapan pertama adalah proses pelarutan prekursor timah dengan doping NH_4F dalam bermacam variasi konsentrasi menjadi larutan konduktif yang akan menjadi bahan pelapisan kaca konduktif. Pembuatan larutan konduktif ini mengacu pada metode yang dilakukan Dengkui Miao^[10] dengan metode pencampuran, rasio konsentrasi dan teknik pelapisan substrat yang berbeda. Tahap kedua adalah proses pelapisan kaca preparat (substrat) dengan metode *dip coating*. Tahap ketiga adalah karakterisasi kaca konduktif.

Tahap pertama yaitu persiapan larutan konduktif. Larutan konduktif ini dibuat dengan melarutkan prekursor timah dengan doping flourine. Prekursor yang digunakan dalam percobaan ini adalah $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ yang akan didoping NH_4F . Langkah-langkah pembuatan larutan konduktif adalah sebagai berikut :

1. Prekursor $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ dilarutkan dalam etanol sampai homogen. Larutan homogen ini disebut Larutan 'I'.
2. Dopan NH_4F dilarutkan ke dalam akuades sampai homogen. Larutan homogen ini disebut Larutan "II".

Larutan II kemudian dicampurkan ke dalam Larutan 'I' dengan rasio konsentrasi $\text{NH}_4\text{F}/\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ sebesar 10, 15, 20, 30 dan 40 %berat pada berbagai kondisi dan waktu pencampuran. Hasil pencampuran larutan tersebut diberikan kode seperti ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Kode percobaan pembuatan larutan konduktif

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .2H ₂ O	Waktu Pencampuran (jam)	
		SnCl ₂ + etanol	Larutan I dan Larutan II
SE-1-1/2-1/2	10%	0,5	0,5
SE-2-1/2-1/2	15%	0,5	0,5
SE-3-1/2-1/2	20%	0,5	0,5
SE-4-1/2-1/2	30%	0,5	0,5
SE-5-1/2-1/2	40%	0,5	0,5
US-1-1/2-1/2	10%	0,5	0,5
US-2-1/2-1/2	15%	0,5	0,5
US-3-1/2-1/2	20%	0,5	0,5
US-4-1/2-1/2	30%	0,5	0,5
US-5-1/2-1/2	40%	0,5	0,5
US-1-1/2-1	10%	0,5	1,0
US-2-1/2-1	15%	0,5	1,0
US-3-1/2-1	20%	0,5	1,0
US-4-1/2-1	30%	0,5	1,0
US-5-1/2-1	40%	0,5	1,0
SE-2-1/2-1	15 %	0,5	1,0
SE-2-1/2-2	15 %	0,5	2,0
SE-2-1/2-3	15 %	0,5	3,0
SE-2-1-1/2	15 %	1,0	0,5
SE-2-1-1	15 %	1,0	1,0
SE-2-1-2	15 %	1,0	2,0
SE-2-1-3	15 %	1,0	3,0

Tahap kedua adalah pencelupan substrat dengan metode *dip coating*. Langkah-langkah yang dilakukan adalah sebagai berikut:

1. Substrat dibersihkan terlebih dahulu dengan cara dipanaskan pada temperatur 80 °C selama 15 menit menggunakan *muffle furnace* (oven).
2. Substrat dikeluarkan dari oven, dan langsung dilakukan pencelupan ke dalam larutan yang telah dibuat pada Tahap Pertama dengan kecepatan motor *dip coating* sebesar 270 rpm. Pencelupan dilakukan 10 kali pencelupan.
3. Lapisan tipis yang dihasilkan dipanaskan pada temperatur 110 °C selama 30 menit.
4. Langkah 1-3 diulangi sebanyak 1-3 kali.

Tahap ketiga adalah pengujian kaca konduktif FTO. Proses pengujian kaca konduktor menggunakan peralatan XRD (*x-ray diffraction*) dan SEM-EDS (*scanning electron microscope - energy dispersive spectroscopy*).

3. HASIL DAN DISKUSI

A. Pengaruh Perlakuan dalam Pencampuran Larutan

Percobaan ini bertujuan untuk menginvestigasi dan mengetahui pengaruh pencampuran Larutan I dan II dalam pembuatan bahan pelapisan kaca konduktif. Pembuatan bahan untuk pelapisan kaca konduktif diberi kode sampel SE-1-1/2-1/2 sampai SE-4-1/2-1/2.

Dalam percobaan ini dilakukan pengulangan sebanyak 3x dengan parameter tetap dalam

pembuatan larutan I yaitu dengan cara melarutkan SnCl₂.2H₂O sebanyak 11 gram dalam 100 ml etanol selama 30 menit sampai bercampur homogen. Kemudian pembuatan larutan II dengan menggunakan 1,1; 1,65; 2,2; 3,3 gram NH₄F yang dilarutkan dengan 3; 4,5; 6; 9 ml akuades masing-masing sesuai dengan rasio konsentrasi NH₄F/SnCl₂.2H₂O sebesar 10, 15, 20, 30, 40 %berat. Hasil percobaan diilustrasikan pada Tabel 2-4.

Perbedaan perlakuan (*treatment*) pada larutan Tabel 2-4 adalah pada proses pencampuran larutan II ke dalam larutan I. Pada Tabel 2 proses pencampuran dilakukan dengan langsung menuang larutan II ke dalam larutan I sedangkan pada Tabel 3 dan 4, proses pencampuran larutan II ke dalam larutan I dilakukan tetes demi tetes. Hal tersebut dikarenakan hasil yang didapatkan pada larutan Tabel 2 pada rasio 10% sudah terdapat endapan sehingga dilakukan perlakuan yang berbeda pada Tabel 3 untuk membuktikan pada rasio 10% memang sudah menghasilkan endapan. Tujuan pencampuran larutan secara tetes demi tetes adalah untuk memperkecil waktu kontak larutan, memperbanyak pembentukan inti (nukleasi) sol timah yang didoping flourida dan menstabilkan larutan sehingga akan mengurangi endapan yang terbentuk.

Pada Tabel 3 ditunjukkan bahwa pencampuran larutan tersebut mempengaruhi hasil sehingga untuk membuktikan kembali dibuat larutan pada Tabel 4 yang menggunakan perlakuan sama seperti 3, akan tetapi hasilnya sama dengan Tabel 2 yaitu pada rasio 10% sudah terdapat endapan. Hal tersebut membuktikan bahwa pencampuran larutan I dan larutan II kurang sempurna, salah satu penyebab hal tersebut adalah pada proses penetasan tidak stabil rentang waktu antara penetasan pertama dengan penetasan kedua sehingga hasil dari proses pencampurannya juga berbeda. Hasil lain yang berbeda antara Tabel 2-4 adalah warna larutan yang terbentuk setelah didiamkan yaitu pada Tabel 2 terbentuk warna kuning sedangkan Tabel 3-4 cenderung putih susu. Warna kuning tersebut berasal dari klorida sehingga untuk membuktikannya dilakukan analisis SEM-EDS untuk mengetahui komposisi kimianya. Pada percobaan yang ditunjukkan pada Tabel 2-4 dapat ditarik kesimpulan sementara bahwa larutan SE-1-1/2-1/2 (Percobaan 2) merupakan larutan paling stabil dibandingkan percobaan lainnya yaitu larutan putih bening agak keruh.

Tabel 2. Pengaruh rasio SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ sampai SE-4- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Percobaan 1)

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .H ₂ O	Warna Awal	Setelah Pengadukan	Didiamkan
SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	10%	Putih susu	Putih keruh ada endapan	Putih kuning ada endapan +
SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	15%	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan ++
SE-3- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	20%	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan +++
SE-4- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	30%	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan ++++

Catatan: simbol + menandakan jumlah endapan dalam campuran

Tabel 3. Pengaruh rasio SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ *repeat* sampai SE-4- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Percobaan 2)

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .H ₂ O	Warna Awal	Setelah Pengadukan	Didiamkan
SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	10%	Putih susu	Putih keruh ada endapan	Putih bening agak keruh
SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	15%	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih susu ada endapan +
SE-3- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	20%	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih susu ada endapan ++
SE-4- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	30%	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih susu ada endapan +++

Catatan: simbol + menandakan jumlah endapan dalam campuran

Tabel 4. Pengaruh rasio larutan SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ *repeat* 2 sampai SE-4- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Percobaan 3)

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .H ₂ O	Warna Awal	Setelah Pengadukan	Didiamkan
SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	10%	Putih susu	Putih susu	Putih susu ada endapan +
SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	15%	Putih susu	Putih susu	Putih susu ada endapan ++
SE-3- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	20%	Putih susu	Putih susu	Putih susu ada endapan +++
SE-4- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	30%	Putih susu	Putih susu	Putih susu ada endapan ++++

Catatan: simbol + menandakan jumlah endapan dalam campuran

Pada Tabel 3 ditunjukkan bahwa pencampuran larutan tersebut mempengaruhi hasil sehingga untuk membuktikan kembali dibuat larutan pada Tabel 4 yang menggunakan perlakuan sama seperti 3, akan tetapi hasilnya sama dengan Tabel 2 yaitu pada rasio 10% sudah terdapat endapan. Hal tersebut membuktikan bahwa pencampuran larutan I dan larutan II kurang sempurna, salah satu penyebab hal tersebut adalah pada proses penetasan tidak stabil rentang waktu antara penetasan pertama dengan penetasan kedua sehingga hasil dari proses pencampurannya juga berbeda. Hasil lain yang berbeda antara Tabel 2-4 adalah warna larutan yang terbentuk setelah didiamkan yaitu pada Tabel 2 terbentuk warna kuning, sedangkan Tabel 3-4 cenderung putih susu. Warna kuning tersebut berasal dari klorida sehingga untuk membuktikannya dilakukan analisis SEM-EDS untuk mengetahui komposisi kimianya. Pada percobaan yang ditunjukkan pada Tabel 2-4 dapat ditarik kesimpulan sementara bahwa larutan SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Percobaan 2) merupakan larutan paling stabil dibandingkan percobaan lainnya yaitu larutan putih bening agak keruh.

B. Pengaruh Massa Prekursor SnCl₂.2H₂O dan Waktu Pencampuran dalam Pembuatan Larutan Sampel

Pada percobaan ini dilakukan pembuatan larutan I dengan massa prekursor SnCl₂.2H₂O yang berbeda dengan percobaan sebelumnya. Pembuatan larutan sampel US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ sampai US-5- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ adalah dengan cara melarutkan SnCl₂.2H₂O sebanyak 2,19 gram dengan 97 ml etanol. Kemudian pembuatan larutan II dengan menggunakan 0,2190; 0,3285; 0,438; 0,657; 0,876 gram NH₄F yang dilarutkan dengan 0,5970; 0,8959; 1,1945; 1,7918; 1,3890 akuades masing-masing sesuai dengan rasionya. Perbedaan perlakuan pada Tabel 2-4 adalah pembuatan larutannya itu pada larutan US lebih sedikit menggunakan SnCl₂.2H₂O, NH₄F, akuades, dan etanol. Hal tersebut dimaksudkan dikarenakan SnCl₂.2H₂O dan NH₄F merupakan senyawa yang higroskopis (mudah menguap) sehingga penambahan pelarutnya yaitu akuades dan etanol juga menyesuaikan dengan massa SnCl₂.2H₂O dan NH₄F yang digunakan sesuai dengan rasio masing-masing, ilustrasi dari larutan tersebut dapat dilihat dari Tabel 5-6 dan Gambar 2.

Perbedaan perlakuan pada larutan Tabel 5-6 adalah pada proses pencampuran larutan II ke dalam larutan I. Pada Tabel 5 proses pencampuran dilakukan dalam waktu 30 menit sedangkan pada Tabel 6 selama 1 jam.

Perbedaan lamanya waktu pencampuran bertujuan untuk melihat pengaruh waktu kontak larutan terhadap proses nukleasi partikel Sn(OH)₂ dari larutan 1 dengan larutan doping fluoride (larutan 2). Semakin lama waktu kontak larutan maka akan mengurangi endapan yang terbentuk. Waktu kontak berangsur lama, menyebabkan jumlah nukleasi sol Sn(OH)₂ yang terbentuk semakin banyak dan kemampuannya dalam mengadsorpsi doping semakin besar sehingga endapan yang terbentuk juga berkurang.

Pada Tabel 5-6 menunjukkan bahwa lamanya pencampuran larutan 1 dan 2 selama 30 menit dan 1 jam adalah tidak berpengaruh signifikan terhadap kestabilan larutan sampel dibandingkan dengan pengaruh rasio massa dopan/prekursor (NH₄F:SnO₂). Pada Tabel 5-6 terlihat semakin besar rasio massa dopan/prekursor (NH₄F:SnO₂) yaitu 15% - 40% menyebabkan proses pengendapan terjadi dalam larutan sampel. Pada percobaan yang ditunjukkan pada Tabel 5-6 didapatkan bahwa larutan US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ dan US-1- $\frac{1}{2}$ -1 merupakan larutan paling stabil dibandingkan percobaan lainnya yaitu larutan putih bening.

Pada Tabel 2-6 dapat disimpulkan bahwa semakin tinggi rasio konsentrasi dopan/prekursor maka semakin banyak pula endapan yang terbentuk sesuai dengan semakin tinggi konsentrasi maka teori tumbukan yang

dihasilkan juga semakin besar sehingga banyak partikel-partikel yang membentuk endapan^[11].

C. Pengaruh Waktu Pencampuran dalam Pembuatan Larutan Sampel

Pada percobaan ini dilakukan pembuatan larutan sampel SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ sampai SE-2- $\frac{1}{2}$ -3 beserta SE-2-1- $\frac{1}{2}$ sampai SE-2-1-3. Percobaan ini bertujuan untuk mengetahui waktu optimum dalam pembuatan larutan sampel dengan pada rasio dopan/prekursor 15%. Perbedaan pada larutan ini adalah waktu pencampuran SnCl₂.2H₂O dengan etanol (larutan 1) dan waktu pencampuran larutan I dengan larutan II dimana diketahui dari tabel sebelumnya bahwa waktu pencampuran mempengaruhi hasil yang disebabkan oleh waktu kontak antar larutan. Hasil yang didapatkan pada percobaan ini dapat dilihat pada Tabel 7-8.

Dari Tabel 7-8 ditunjukkan bahwa pengaruh waktu pencampuran prekursor dengan etanol (larutan I) dan pencampuran antar larutan tidak signifikan mempengaruhi kondisi larutan sampel yang dihasilkan. Hasil yang didapatkan masih sama dengan tabel sebelumnya pada rasio konsentrasi dopan/prekursor di atas 15% yaitu endapan yang didapatkan juga semakin banyak pada larutan konduktif dengan semakin lama waktu pencampuran prekursor dengan etanol dan pencampuran antar larutan. Pada percobaan ini tidak didapatkan kondisi larutan konduktif yang stabil.

Tabel 5. Pengaruh rasio larutan US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ sampai US-5- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .H ₂ O	Larutan I dan Larutan II	Warna Awal	Setelah Pengadukan	Didiamkan
US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	10%	$\frac{1}{2}$ jam	Putih keruh	Putih bening	Putih bening
US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	15%	$\frac{1}{2}$ jam	Putih keruh	Putih keruh	Putih keruh
US-3- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	20%	$\frac{1}{2}$ jam	Putih keruh	Putih keruh	Putih keruh
US-4- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	30%	$\frac{1}{2}$ jam	Putih keruh	Putih keruh ada endapan	Putih keruh ada endapan +
US-5- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$	40%	$\frac{1}{2}$ jam	Putih keruh	Putih keruh ada endapan	Putih keruh ada endapan ++

Catatan: simbol + menandakan jumlah endapan dalam campuran

Tabel 6. Pengaruh rasio larutan US-1- $\frac{1}{2}$ -1 sampai US-5- $\frac{1}{2}$ -1

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .H ₂ O	Larutan I dan Larutan II	Warna Awal	Setelah Pengadukan	Didiamkan
US-1- $\frac{1}{2}$ -1	10%	1 jam	Putih keruh	Putih bening	Putih bening
US-2- $\frac{1}{2}$ -1	15%	1 jam	Putih keruh	Putih keruh	Putih keruh
US-3- $\frac{1}{2}$ -1	20%	1 jam	Putih keruh	Putih keruh	Putih keruh
US-4- $\frac{1}{2}$ -1	30%	1 jam	Putih keruh	Putih keruh	Putih keruh ada endapan +
US-5- $\frac{1}{2}$ -1	40%	1 jam	Putih keruh	Putih keruh	Putih keruh ada endapan ++

Catatan: simbol + menandakan jumlah endapan dalam campuran

Tabel 7. Pengaruh rasio larutan SE-2-1/2-1/2 sampai SE-2-1/2-3

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .H ₂ O	SnCl ₂ + etanol	Larutan I dan Larutan II	Warna Awal	Setelah Pengadukan	Didiamkan
SE-2-1/2-1/2	15%	1/2 jam	1/2 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan +
SE-2-1/2-1	15%	1/2 jam	1 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan ++
SE-2-1/2-2	15%	1/2 jam	2 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan +++
SE-2-1/2-3	15%	1/2 jam	3 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan ++++

Catatan: simbol + menandakan jumlah endapan dalam campuran

Tabel 8. Pengaruh rasio larutan SE-2-1-1/2 sampai SE-2-1-3

Kode Sampel	NH ₄ F: SnCl ₂ .H ₂ O	SnCl ₂ + etanol	Larutan I dan Larutan II	Warna Awal	Setelah Pengadukan	Didiamkan
SE-2-1-1/2	15%	1 jam	1/2 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan +
SE-2-1-1	15%	1 jam	1 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan +
SE-2-1-2	15%	1 jam	2 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih kuning ada endapan ++
SE-2-1-3	15%	1 jam	3 jam	Putih susu	Putih susu ada endapan	Putih keruh ada endapan +++

Catatan: simbol + menandakan jumlah endapan dalam campuran

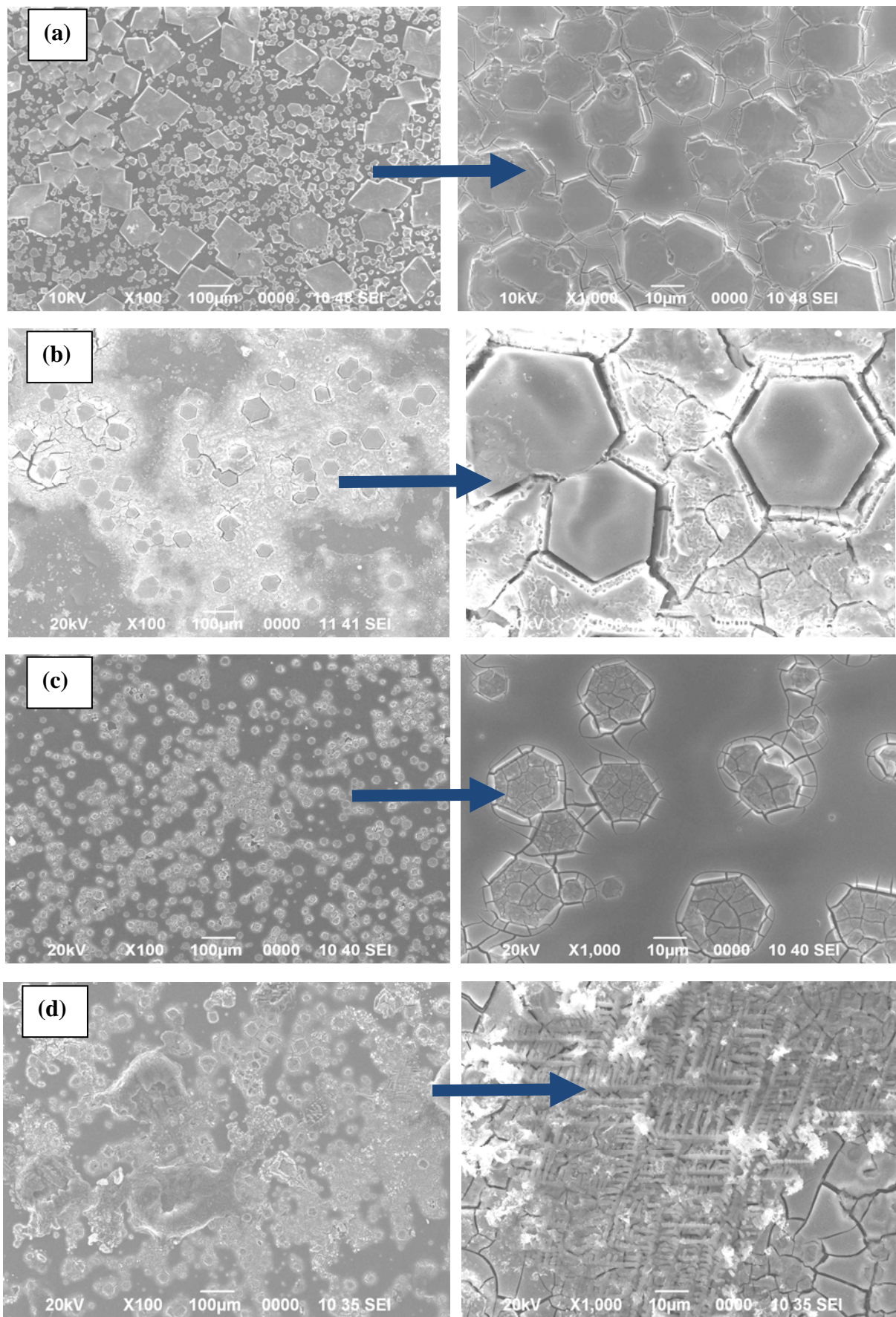
Tabel 9. Analisis semikuantitatif EDS-SEM lapisan tipis SE-1-1/2-1/2, SE-2-1/2-1/2, US-1-1/2-1/2, US-2-1/2-1/2

Elemen	Kadar %			
	SE-1-1/2-1/2	SE-2-1/2-1/2	US-1-1/2-1/2	US-2-1/2-1/2
C	-	-	-	-
O	19,14	10,18	69,50	19,50
F	1,52	0,59	-0,10	0,43
Na	-	-	6,37	-
Si	-	-	9,64	1,28
Cl	36,88	25,79	2,93	21,21
Sn	42,47	63,44	9,80	57,10
Fe	-	-	0,56	-
Mg	-	-	1,10	-

D. Analisis SEM-EDS

Analisis SEM bertujuan untuk mengetahui morfologi dari suatu senyawa yang terdapat dalam suatu bahan. Data yang didapatkan dari pembuatan larutan konduktif sebelumnya mengindikasikan bahwa larutan konduktif SE-1-1/2-1/2 (Tabel 3) dan US-1-1/2-1/2 adalah relatif paling stabil (putih bening atau putih bening agak keruh) dibandingkan larutan dengan rasio konsentrasi (w/w) dopan/prekursor (NH₄F: SnCl₂.H₂O) lebih tinggi lainnya dimana sudah terbentuk banyak endapan dalam larutan konduktif yang dihasilkan. Larutan konduktif SE-1-1/2-1/2 dan US-1-1/2-1/2 ini mempunyai keunggulan yaitu dipersiapkan dengan waktu pencampuran singkat yaitu selama 30 menit dan rasio konsentrasi dopan/prekursor 10%. Dalam upaya mengetahui perbedaan dalam pembuatan lapisan tipis FTO dari kedua larutan konduktif yang dihasilkan maka dipersiapkan larutan

konduktif stabil yaitu SE-1-1/2-1/2 (Tabel 3) dan US-1-1/2-1/2 dan larutan konduktif kurang stabil yaitu SE-2-1/2-1/2 dan US-2-1/2-1/2 sebagai bahan dalam pelapisan kaca preparat (substrat) dengan metode *dip coating*. Pemilihan larutan konduktif SE-2-1/2-1/2 dan US-2-1/2-1/2 sebagai sampel pelapisan substrat didasarkan kestabilan larutan dan rasio konsentrasi dopan/prekursor kecil 15% selain waktu pencampuran sama selama 30 menit. Hasil pelapisan dan pemanasan pada temperatur 110 °C selama 30 menit menghasilkan lapisan tipis FTO. Untuk mengetahui komposisi kimia dan morfologi dari lapisan tipis FTO dilakukan analisis SEM-EDS. Hasil analisis SEM-EDS ditunjukkan pada Tabel 9 dan Gambar 1.



Gambar 1. Morfologi lapisan tipis FTO dengan SEM: (a) SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (b) SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, (c)US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, (d)US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$

Dari hasil analisis semikuantitatif EDS-SEM dapat diketahui kandungan kimia dari lapisan tipis SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$

$\frac{1}{2}$ dimana terdapat unsur-unsur seperti dalam Tabel 9, yaitu O, Cl, dan Sn berasal dari larutan prekursor $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, F berasal dari larutan

dopan NH_4F , sedangkan Na, Si, Mg, dan Fe berasal dari kaca sodalime^[12]. Hasil analisis semikuantitatif pada Tabel 9 tidak bisa menunjukkan komposisi kimia yang sebenarnya dari lapisan tipis FTO. Namun hasil analisis EDS-SEM memberikan gambaran bahwa lapisan tipis FTO mengandung senyawa utama SnO_2 sedangkan flourida yang merupakan doping mempunyai kadar yang relatif kecil. Keberadaan unsur Cl yang masih tersisa dalam lapisan tipis FTO dikarenakan Cl tidak menguap sempurna pada pemanasan 110°C selama 30 menit. Lapisin tipis FTO perlu dilakukan pemanasan lebih lanjut dengan cara menaikkan temperatur dan atau lamanya pemanasan (*annealing*) untuk melepaskan Cl secara sempurna dari lapisan tipis FTO. Tabel 9 juga memperlihatkan persentase atau kadar unsur Sn, O dan F yang fluktuasi. Hal ini dimungkinkan pengaruh dari ketebalan lapisan tipis FTO yang dihasilkan tidak merata. Sedangkan unsur lain seperti Na, Si, Mg dan Fe yang merupakan elemen penyusun substrat terlihat tampak dalam analisis EDS-SEM dikarenakan lapisan tipis FTO yang dihasilkan tidak merata sehingga kemungkinan difraksi sinar-X melalui bagian substrat dan daerah lapisan FTO yang sangat tipis. Morfologi lapisan tipis FTO SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ dapat dilihat pada Gambar 1.

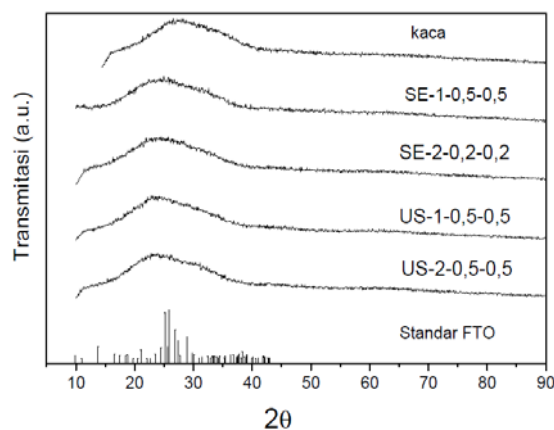
Gambar 1 memperlihatkan morfologi dari lapisan tipis FTO yang dipersiapkan dari larutan konduktif SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$, US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ pada pembesaran 100x dan 1000x. Morfologi heksagonal tidak teratur tampak lebih jelas pada lapisan tipis FTO yang dipersiapkan dengan larutan konduktif SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Gambar 1a) dan US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Gambar 1c) dibandingkan dengan larutan konduktif SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Gambar 1b) dan US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Gambar 1d). Morfologi heksagonal namun masih terlihat samar-samar dikarenakan masih terdapat dendrit yang belum membentuk kristal pada lapisan tipis FTO dari larutan konduktif SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Gambar 1b) dan US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ (Gambar 1d). *Defect* yang terjadi pada struktur tersebut diakibatkan antara lain oleh *vacancy interstitial* (penyelipan 1 atom dari atom lain) yang berasal dari kaca substrat dan dari udara karena larutan $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ dan NH_4F merupakan senyawa higroskopis sehingga terjadi dislokasi, penumpukan antar atom, dan kekosongan kristal. *Defect* yang terjadi menyebabkan morfologi sedikit berubah dari lapisan tipis FTO dari SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ dan US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$.

Dari hasil pengamatan secara keseluruhan pada Gambar 1 terlihat bahwa lapisan tipis FTO

dari larutan konduktif US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ mempunyai morfologi heksagonal yang lebih teratur, ukuran partikel kecil, seragam dan tampak tidak begitu dendrit dibandingkan dengan lapisan tipis FTO dari larutan konduktif SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$; SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ dan US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$. Lapisan tipis FTO dari larutan konduktif US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ mempunyai ukuran partikel lebih seragam disebabkan larutan konduktif US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ lebih homogen dan stabil kondisinya seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2A dibandingkan dengan larutan SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$; SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ dan US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ yang ditunjukkan pada Tabel 2-4, 5, dan 7. Dalam mengetahui fasa yang terbentuk dilakukan analisis XRD.

E. Analisis XRD

Analisis XRD dilakukan pada sudut 2θ yaitu 10° sampai 90° dan didapatkan hasil analisis XRD seperti pada Gambar 2.



Gambar 2. Analisis XRD untuk FTO (*fluorine-doped tin oxide*)

Dari hasil analisis XRD pada Gambar 2 dapat dilihat bahwa sampel dibandingkan dengan JCPDS (*joint committee on powder diffraction standards*) menghasilkan fasa dalam bentuk Sn_4OF_6 dan masih cenderung amorf. Kondisi ini disebabkan lapisan tipis FTO dipanaskan pada suhu 110°C selama 30 menit masih belum kristalin dan mengandung elemen prekursor seperti klorida yang belum lepas pada suhu 110°C . Proses kalsinasi pada suhu lebih tinggi perlu dilakukan untuk meningkatkan kristalinitas dari lapisan tipis SnO_2 yang didoping flourida.

4. KESIMPULAN

Percobaan yang dilakukan ini menghasilkan beberapa kesimpulan diantaranya semakin tinggi rasio konsentrasi $\text{NH}_4\text{F}:\text{SnO}_2$ maka semakin banyak pula endapan yang terbentuk dimana rasio konsentrasi dopan/prekursor ($\text{NH}_4\text{F}:\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) sebesar 10 % menghasilkan larutan

konduktif paling stabil (US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$) dengan lapisan tipis FTO yang dihasilkan mempunyai morfologi heksagonal lebih teratur dan seragam. Lamanya waktu pencampuran antar prekursor dan doping tidak begitu mempengaruhi kestabilan larutan. Faktor yang signifikan mempengaruhi adalah rasio konsentrasi dopan/prekursor (NH₄F: SnCl₂.2H₂O) dan kondisi pencampuran antara prekursor dan doping. Lapisan tipis FTO dari larutan konduktif SE-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$; SE-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$; US-1- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$; dan US-2- $\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$ mempunyai fasa dalam bentuk Sn₄O₆.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih atas bantuan pendanaan melalui Kegiatan Kompetensi Inti Tahun Anggaran 2015 di Pusat Penelitian Metalurgi dan Material, LIPI. Ucapan terima kasih juga diberikan pada Uswatul Chasanah, Mahasiswa Magang Jurusan Kimia, Universitas Sebelas Maret (UNS), Surakarta dan semua pihak yang membantu dalam penyelesaian penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] M. Batzill and U. Diebold, "The surface and materials science of tin oxide," *Prog. Surf. Sci.*, vol. 79, pp. 47–154, 2005.
- [2] A. Purwanto, H. Widiyandari, and A. Jumari, "Fabrication of high-performance fluorine doped – tin oxide film using flame-assisted spray deposition," *Thin Solid Films.*, vol. 520, pp. 2092 – 2095, 2012.
- [3] dan M. K. Akhiruddin Maddu, Rodo Tua Hasiholan, "Penumbuhan Film Nanokristal SnO₂ dengan Metode Chemical Bath Deposition (CBD)," *J. Nanosains Nanoteknologi.*, ISSN 1979-0880, vol. Khusus, pp. 96–99, 2009.
- [4] S. Muranaka, Y. Bando, and T. Takada, "Influence of substrate temperature and film thickness on the structure of reactively evaporated In₂O₃ films," *Thin Solid Films.*, vol. 151, no. 3, pp. 355–364, 1987.
- [5] K. B. Sundaram and G. K. Bhagavat, "X-Ray and Electron Diffraction Studies of Chemically Vapour-Deposited Tin Oxide Films," *Thin Solid Films.*, vol. 78, pp. 35–40, 1981.
- [6] K. N. R. K. S. Shamala, L. C. S. Murthy, "Studies on tin oxide films prepared by electron beam evaporation and spray pyrolysis methods - Springer," *Bull. Mater. Sci.*, vol. 27, no. 3, pp. 295–301, 2004.
- [7] S.S. Pan, C. Ye, X.M. Teng, H.T. Fan, and G. H. Li, "Preparation and characterization of nitrogen- incorporated SnO₂ films Preparation and characterization of nitrogen-incorporated SnO₂ films," *Appl. Phys. A, Mater. Sci. Process.*, pp. 1–5, 2006.
- [8] E. Elangovan, K. Ramesh, and K. Ramamurthi, "Studies on the structural and electrical properties of spray deposited SnO₂: Sb thin films as a function of substrate temperature Studies on the structural and electrical properties of spray deposited," *Solid State Commun.*, vol. 103, pp. 523–527, 2004.
- [9] D. Ganz, A. Reich, and M. A. Aegerter, "Laser firing of transparent conducting SnO₂ sol – gel coatings," *J. Non. Cryst. Solids.*, vol. 218, p. 242, 1997.
- [10] D. Miao, Q. Zhao, S. Wu, Z. Wang, X. Zhang, and X. Zhao, "Effect of substrate temperature on the crystal growth orientation of SnO₂: F thin films spray-deposited on glass substrates," *J. Non. Cryst. Solids.*, vol. 356, no. 44–49, pp. 2557–2561, 2010.
- [11] Gilbert William Castellan, *Physical Chemistry.*, Third. New York: Addison-Wesley, p. 1006, 1983.
- [12] L. W. Stefan Karlsson, Bo Jonson, "Copper, silver, rubidium and caesium ion exchange in soda–lime–silica float glass by direct deposition and in line melting of salt pastes," *Glas. Technol. J. Glas. Sci. Technol. Part A.*, vol. 53, no. 1, pp. 1–7, 2012.

