

BAB IV HASIL DAN DISKUSI

4.1 Penentuan temperatur kalsinasi optimum dari CuSnO_3

CuSnO_3 disintesis dengan menggunakan metoda sol gel dengan memvariasikan temperatur kalsinasi 400 °C, 600 °C dan 800 °C. adapun reaksi yang terjadi adalah sebaga berikut :

Pembentukan CuSnO_3 dari $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ dan $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ dengan pelarut metanol melibatkan serangkaian reaksi kimia. Berikut adalah tahapan terjadi dalam proses ini:

1. Tahap pembentukan sol (hidrolisis dan kondensasi)

$\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ terhidrolisis menjadi $\text{Cu}(\text{OH})_2$ dan $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ terhidrolisis menjadi $\text{Sn}(\text{OH})_2$

2. Tahap pembentukan gel

Larutan sol akan terus mengalami reaksi polikondensasi sehingga viskositasnya meningkat. Ikatan tiga dimensi yang terbentuk akan mengubah cairan sol menjadi fasa padat lunak yang disebut gel. Pada tahap ini terbentuk prekursor hidroksida logam campuran yang seragam.

3. Tahap kalsinasi atau pembentukan CuSnO_3 :

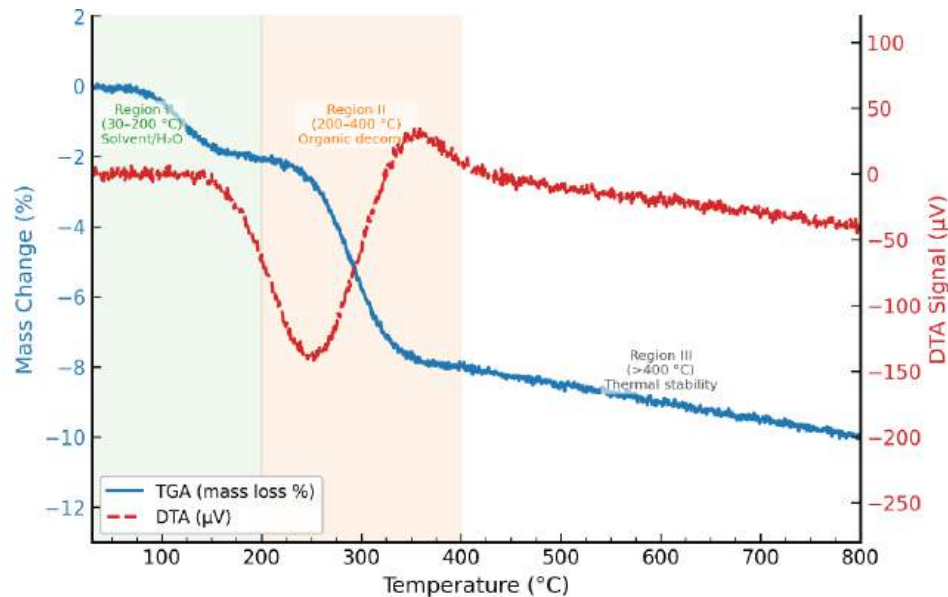
Gel yang telah dikeringkan kemudian dipanaskan pada temperatur tinggi (kalsinasi). Proses ini bertujuan untuk menguapkan sisa pelarut, serta memicu reaksi pembentukan fasa kristal CuSnO_3 yang utuh dari campuran oksida logam tersebut. Pada proses ini juga terjadi peningkatan bilangan oksidasi Sn dari 2+ menjadi 4+.

Hasil sintesis kemudian di karakterisasi dengan DTG, SEM, FTIR, XRD, XRF dan DR-UV untuk menentukan tempertur kalsinasi optimum

4.1.1 Karakterisasi dengan analisis Termogravimetri (TGA)

Stabilitas termal xerogel CuSnO_3 menggunakan analisis termogravimetri (TGA) untuk menentukan suhu kalsinasi yang tepat dalam pembentukan fasa. Dari profil TGA yang di peroleh (Gambar 11), dapat diamati kehilangan massa yang berlangsung kontinu di seluruh rentang pemanasan 30–800 °C. Kehilangan massa tahap pertama

yang kami deteksi pada interval 30–200 °C hal ini dapat kaitkan dengan pelepasan air yang teradsorpsi secara fisik serta sisa pelarut yang terperangkap dalam jaringan gel. Tahap ini secara umum kami interpretasikan sebagai proses dehidrasi pada material hasil sintesis sol-gel, yang mencerminkan pelepasan spesi volatil yang terikat lemah.



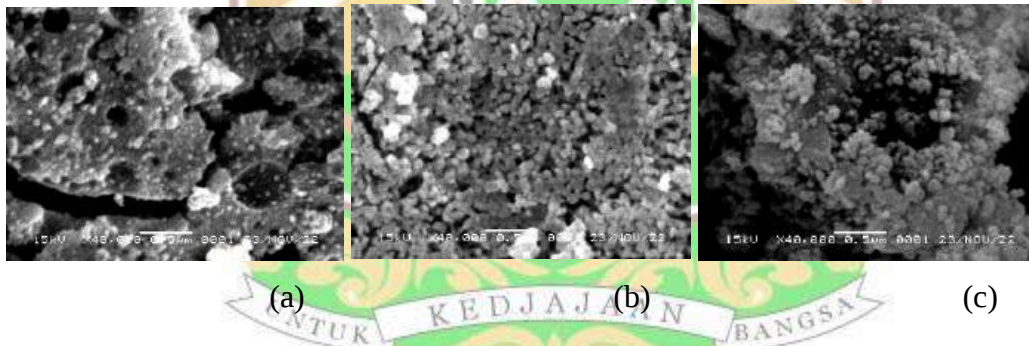
Gambar 1. Profil TGA/DTA dari prekursor xerogel CuSnO_3 yang direkam dari 30 °C hingga 800 °C pada 10 °C/menit di bawah N_2 . Sumbu kiri: kehilangan massa (%); sumbu kanan: sinyal DTA (μV). Daerah 30°C – 200 °C: penghilangan pelarut/air; daerah 200–400 °C: dekomposisi organ.

Pada peristiwa kehilangan massa kedua terlihat lebih signifikan terjadi antara 200 °C dan 400 °C. Daerah ini terutama dapat dikaitkan dengan dekomposisi residu organik yang berasal dari sistem prekursor serta spesies yang terbentuk selama proses sol-gel. Ini menjelaskan bahwasanya ada proses endotermik di dekat 250 °C yang mengindikasikan pembakaran dan penguraian residu tersebut, suatu proses yang diperlukan untuk mendapatkan kerangka anorganik yang bersih (Meng et al., 2024). Di atas 400 °C, terlihat bahwa kurva TGA menjadi hampir stabil dan hanya menunjukkan perubahan massa yang kecil. Berdasarkan hasil ini, dapat diinterpretasikan bahwa sebagian besar komponen volatil dan organik telah berhasil dihilangkan, sehingga kerangka Cu–Sn–O anorganik yang tersisa telah mencapai keadaan yang lebih stabil. Perilaku termal yang telah diamati mendukung penggunaan suhu 400 °C, 600 °C, dan 800 °C sebagai suhu kalsinasi untuk studi evolusi fase. Di antara suhu-suhu tersebut,

600 °C diidentifikasi sebagai yang paling sesuai untuk sintesis selanjutnya karena memberikan energi termal yang cukup untuk menghilangkan sisa organik dan mendorong kristalisasi sambil menghindari pengerasan butiran yang berlebihan atau degradasi struktural. Pilihan ini konsisten dengan prinsip umum bahwa suhu kalsinasi optimal harus cukup tinggi untuk menyelesaikan transformasi fasa tetapi tidak terlalu tinggi sehingga berdampak buruk pada pertumbuhan kristal atau morfologi (Liang et al., 2025). Oleh karena itu, 600 °C digunakan untuk persiapan sampel dan evaluasi kinerja selanjutnya.

4.1.2 Karakterisasi dengan SEM

Dari hasil observasi menggunakan Scanning Electron Microscope (SEM) pada perbesaran 40.000× dan skala 0,5 µm, kami menemukan bahwa variasi suhu perlakuan (400°C, 600°C, dan 800°C) memberikan pengaruh yang sistematis terhadap morfologi permukaan material. Pada sampel yang diperlakukan pada suhu 400°C, partikel masih berukuran sangat halus, sekitar 0,2–0,4 µm, dengan distribusi yang tidak merata dan kecenderungan membentuk aglomerasi longgar.



Gambar 2. Mikrograf SEM dari CuSnO_3 yang disintesis (a) pada suhu 400°C, (b) 600°C, (c) 800°C. Skala bar: 0.5 µm. Tegangan percepatan: 15 kV; perbesaran: ×40.000.

Tingginya porositas antar partikel serta permukaan yang kasar pada suhu ini mengindikasikan bahwa energi termal yang tersedia belum cukup untuk mengaktifkan difusi atom secara signifikan. Ketika suhu naik menjadi 600°C, terlihat adanya pertumbuhan butir yang nyata; ukuran partikel bertambah menjadi 0,5–0,7 µm, dan mulai terbentuk leher kontak antar partikel yang kami interpretasikan sebagai awal proses sintering. Porositas mulai berkurang, meskipun masih terdapat rongga-rongga

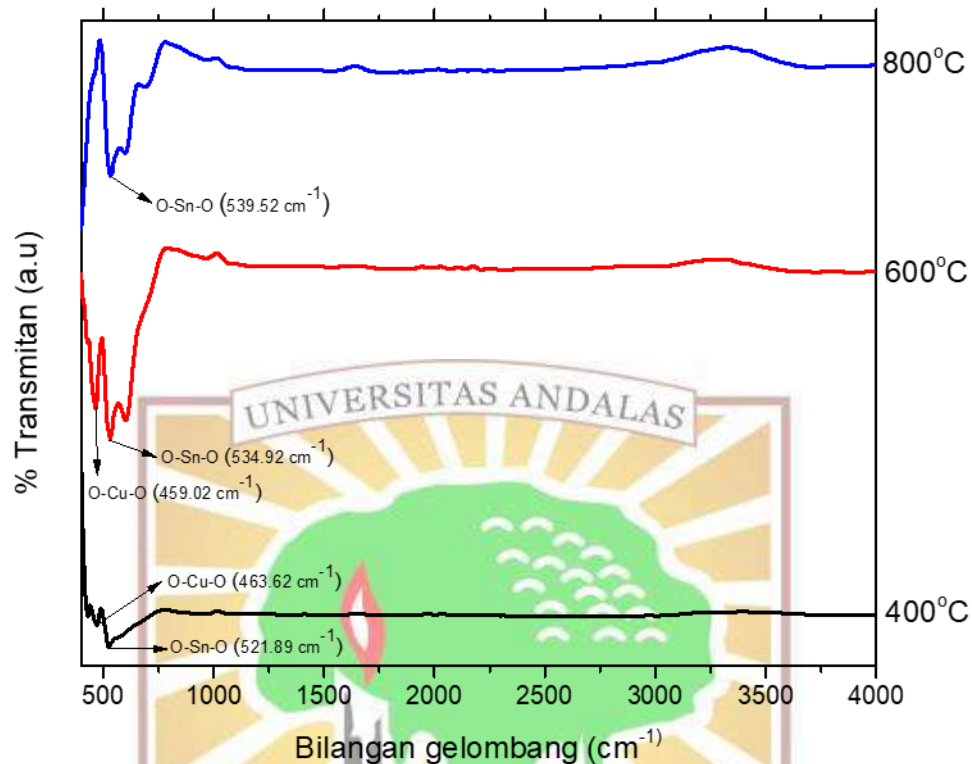
kecil. Pada suhu 600°C, mekanisme difusi permukaan dan difusi batas butir sudah mulai berperan. Selanjutnya mikrostruktur yang jauh lebih matang: ukuran butir mencapai 0,8–1,0 μm , bentuk butir lebih teratur dan membulat, serta porositas menurun drastis—hanya tersisa pori-pori kecil yang terperangkap di dalam butir. Permukaan tampak sangat padat dan homogen, dengan batas butir yang jelas. Difusi volume menjadi mekanisme dominan sehingga densifikasi berlangsung efektif (Zhu et al., 2025).

Kenaikan suhu dari 400°C ke 800°C secara konsisten meningkatkan ukuran butir, menurunkan porositas, dan memperbaiki homogenitas permukaan. Dari ketiga kondisi tersebut, kami menilai suhu 600°C memberikan hasil mikrostruktur paling optimal untuk densifikasi, namun kami juga mencatat perlunya mengontrol waktu pemanasan agar tidak terjadi pertumbuhan butir berlebih yang tidak diinginkan.

4.1.3 Karakterisasi dengan FTIR

Hasil sintesis CuSnO_3 dengan variasi temperature kaslinasi 400 °C , 600 °C dan 800 °C dikarakterisasi dengan FTIR , hasil karakterisasi dapat dilihat pada gambar berikut :





Gambar 3. Spektrum FTIR film tipis CuSnO_3 yang disintesis dengan berbagai pengubah suhu kalsinasi (400°C , 600°C , hingga 800°C) dibandingkan dengan sampel kontrol.

Dari hasil analisis FTIR terlihat munculnya puncak serapan yang menandakan adanya ikatan oksigen dengan logam yaitu pada rentang $500\text{ cm}^{-1} - 600\text{ cm}^{-1}$ yang menandakan adanya ikatan O-Sn-O dan pada rentang $400\text{ cm}^{-1} - 500\text{ cm}^{-1}$ menandakan adanya ikatan O-Cu-O. pada spectrum FTIR terlihat seiring dengan kenaikan suhu kalsinasi terjadi pergeseran bilangan gelombang kearah yang lebih tinggi, hal ini menandakan ikatan kimia menjadi lebih kuat.(Liu et al., 2020). Pada spectrum FTIR CuSnO_3 dengan suhu kalsinasi 400°C terlihat puncak serapan O-Cu-O terlihat pada bilangan gelombang $463,62\text{ cm}^{-1}$ dan O-Sn-O pada bilangan gelombang dimana puncak yang terlihat kecil (intensitas rendah) dan sempit hal ini menandakan konsentrasi dari CuO dan SnO_2 yang terbentuk masih rendah dan ikatannya lemah. Ketika temperature kalsinasi dinaikkan menjadi 600°C terlihat pada spectrum FTIR

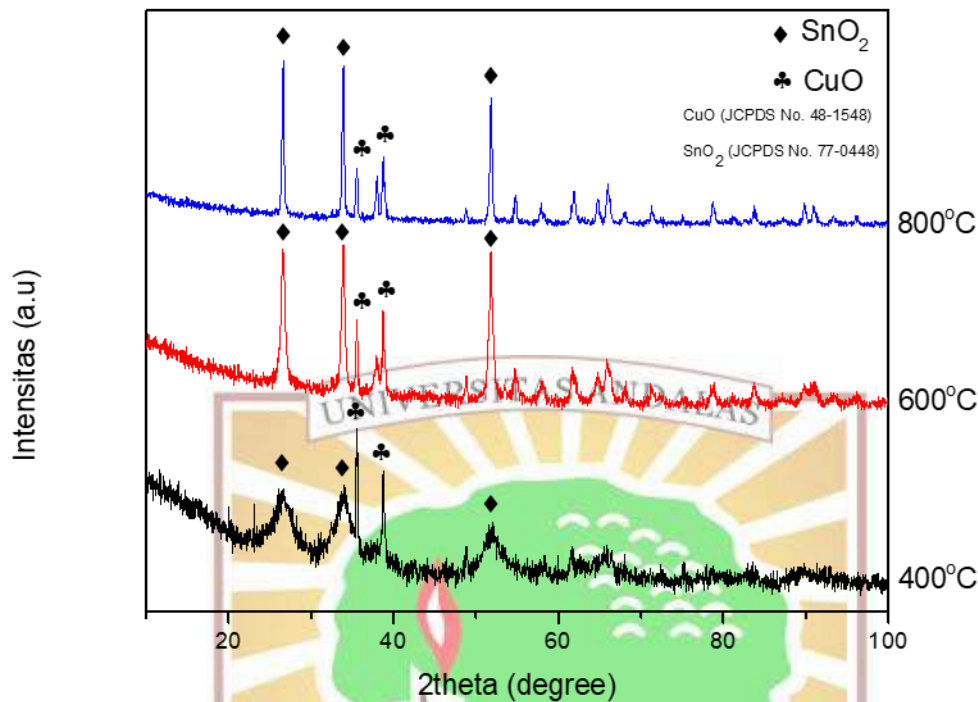
puncak O-Cu-O pada $459,02\text{ cm}^{-1}$ dan O-Sn-O pada bilangan gelombang $534,92\text{ cm}^{-1}$. Hal ini menunjukkan terjadinya pergeseran bilangan gelombang kearah yang lebih tinggi dan puncak juga lebih tinggi intensitasnya serta lebar, ini berarti CuSnO_3 yang dihasilkan lebih banyak dan ikatannya juga lebih kuat. Sedangkan ketika temperature menjadi $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ puncak O-Cu-O tidak terlihat lagi didaerah bilangan gelombang $400\text{ cm}^{-1} - 500\text{ cm}^{-1}$ namun puncak O-Sn-O masih terlihat di bilangan gelombang $539,52\text{ cm}^{-1}$, hal ini menandakan bahwa terjadinya pergeseran SnO_2 kearah bilangan gelombang yang lebih tinggi sedangkan CuO bergeser kearah yang lebih rendah, selain itu puncak yang terlihat lebih rendah dan sempit.

Berdasarkan hasil karakterisasi dengan FTIR, temperature kalsinasi yang terbaik pada $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ karena dihasilkan CuSnO_3 yang lebih banyak dengan ikatan yang lebih kuat.

4.1.4. karakterisasi XRD

Hasil karakterisasi dengan menggunakan instrument XRD dapat dilihat pada gambar berikut :





Gambar 4. Pola XRD dari CuSnO₃ dengan variasi suhu kalsinasi (a) 400°C, (b) 600°C dan (c) 800°C

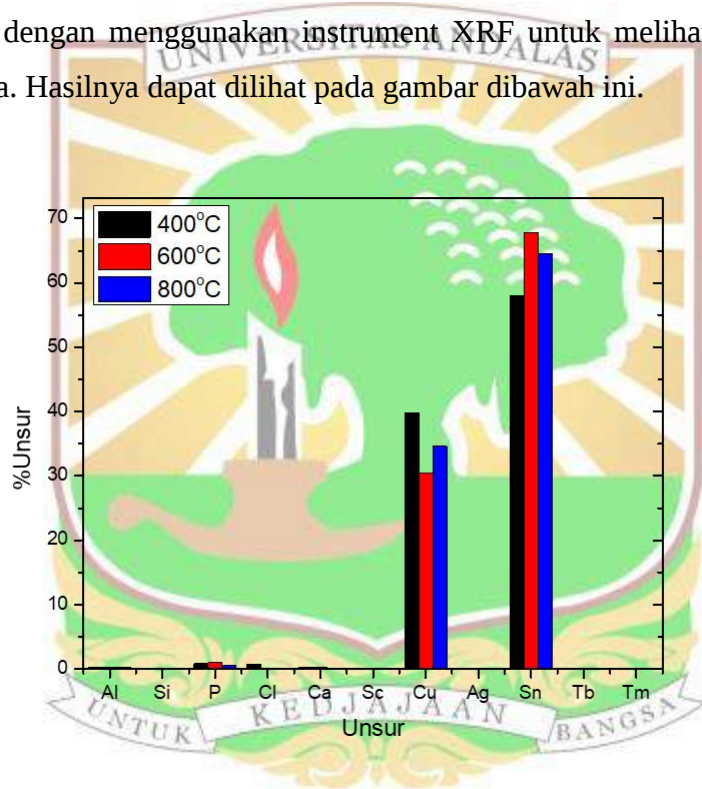
Hasil difraksi sinar-X untuk sampel yang diperlakukan pada suhu 400°C menunjukkan adanya puncak-puncak difraksi yang sesuai dengan fasa CuO dan SnO₂. Intensitas puncak masih relatif rendah dan cenderung melebar, mengindikasikan bahwa kristalinitas material belum optimal dan ukuran kristalit masih kecil akibat energi termal yang terbatas. Tidak terlihat adanya puncak tambahan dari fasa lain, sehingga disimpulkan bahwa pada suhu 400°C kedua oksida telah terbentuk namun masih dalam tahap awal kristalisasi.

Ketika suhu dinaikkan menjadi 600°C, puncak-puncak difraksi menjadi lebih tajam dan intensitasnya meningkat secara signifikan, baik untuk CuO maupun SnO₂. Hal ini menunjukkan bahwa pemanasan pada 600°C telah mendorong pertumbuhan kristalit dan perbaikan keteraturan struktur. Pelebaran puncak berkurang, mengindikasikan ukuran kristalit yang lebih besar sesuai dengan persamaan Scherrer. Pada suhu 800°C, intensitas puncak semakin meningkat dan posisi puncak menjadi

lebih sempit, menandakan kristalinitas yang sangat baik. Namun perlu dicermati apakah terjadi pergeseran sudut 2θ yang mengindikasikan adanya tegangan kisi atau pembentukan larutan padat. Secara keseluruhan, kenaikan suhu dari 400°C ke 800°C meningkatkan kristalinitas dan ukuran kristalit dari kedua fasa tanpa membentuk fasa baru yang terdeteksi. Suhu 600°C memberikan hasil kristalinitas terbaik untuk aplikasi yang memerlukan struktur kristal yang sempurna (Abolhasani et al., 2025).

4.1.5 Karakterisasi dengan XRF

Masing masing hasil sintesis CuSnO_3 yang dikalsinasi dengan variasi temperatur di karakterisasi dengan menggunakan instrument XRF untuk melihat komposisi yang dikandungnya. Hasilnya dapat dilihat pada gambar dibawah ini.



Gambar 5. Komposisi unsur (XRF, wt%) dari sampel CuSnO_3 dengan suhu yang berbeda (a) 400°C , (b) 600°C , dan (c) 800°C .

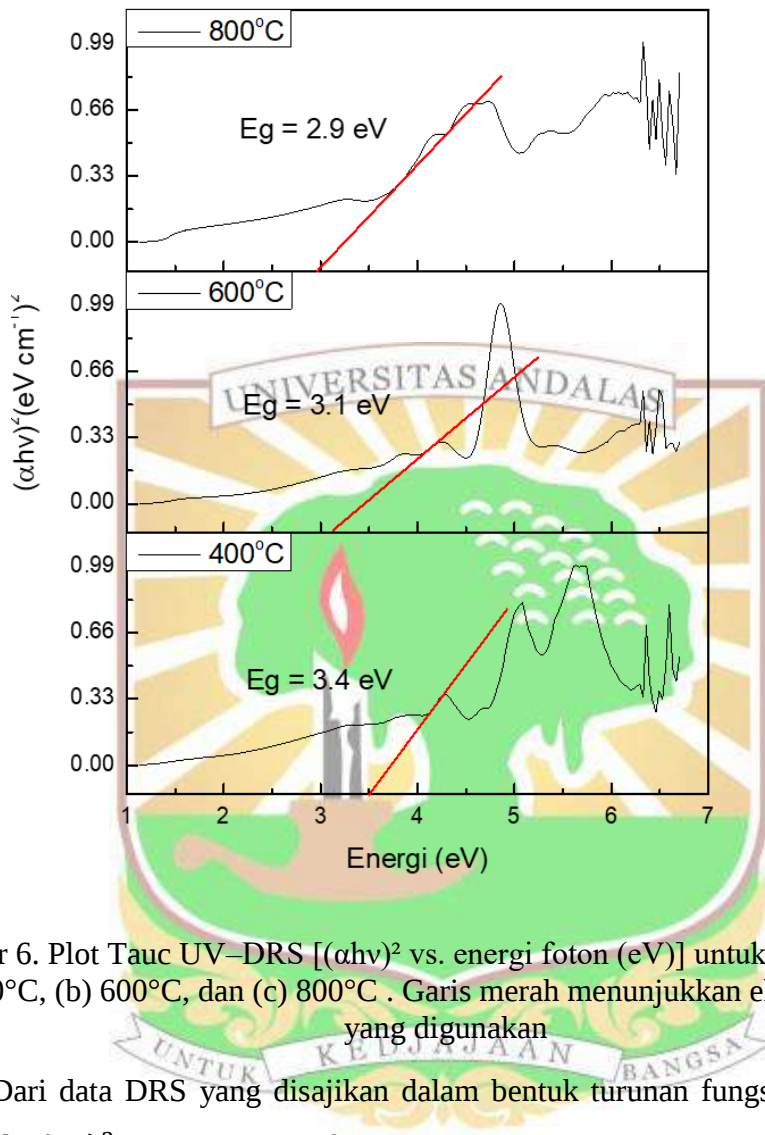
Berdasarkan hasil analisis XRF pada suhu 400°C (a), 600°C (b), dan 800°C (c), terdeteksi bahwa unsur-unsur seperti Al, Si, Ag, Tb, dan Tm tidak muncul pada ketiga kondisi (0%). Pada suhu 400°C , unsur P, Cl, dan Ca masing-masing terukur sekitar 100 ppm (atau 0,01%), sementara Sn mencapai 4000 ppm dan Cu mencapai 5800 ppm. Fenomena ini menunjukkan bahwa peningkatan suhu menyebabkan hilangnya seluruh unsur yang sebelumnya hadir, namun Sn dan Cu memiliki konsentrasi relatif tinggi

pada 600°C.

Secara teoritis, hilangnya unsur-unsur pada suhu yang lebih tinggi dapat dikaitkan dengan beberapa mekanisme. Pertama, unsur-unsur seperti P, Cl, dan Ca dapat membentuk senyawa volatil (misalnya P_2O_5 , Cl_2 , atau CaO yang bereaksi dengan silika membentuk fase gas) pada suhu di atas 400°C. Kedua, Sn dan Cu diketahui dapat membentuk klorida volatil ($SnCl_2$, $CuCl_2$) jika terdapat klorin dalam sistem, dan volatilitasnya meningkat drastis pada suhu >600°C. Selain itu, pada suhu tinggi, oksida logam dapat mengalami reduksi atau sublimasi, terutama dalam kondisi atmosfer tertentu (misalnya adanya reduktor atau aliran gas). Kehadiran Cl pada suhu 400°C memperkuat kemungkinan pembentukan klorida logam yang mudah menguap. Sementara itu, tidak terdeteksinya Al dan Si menunjukkan bahwa matriks sampel mungkin bukan berbasis silikat atau aluminium, atau konsentrasinya memang di bawah batas deteksi XRF. Dengan demikian, data ini mengindikasikan bahwa rentang suhu 400–600°C merupakan titik kritis di mana terjadi penguapan massal atau dekomposisi termal dari fase-fase yang mengandung Sn, Cu, P, Cl, dan Ca. Ketika suhu kalsinasi meningkat menjadi 800 °C terlihat komposisi Sn meningkat dan Cu menurun. Hal ini sejalan dengan prinsip termogravimetri bahwa laju kehilangan massa akibat volatilisasi akan semakin cepat seiring kenaikan suhu, terutama jika senyawa yang terbentuk memiliki titik didih rendah (Kortunov et al., 2015). Berdasarkan hasil analisa XRF, maka komposisi material yang lebih baik dihasilkan pada temperatur kalsinasi 600 °C dimana kandungan Cu dan Sn yang dihasilkan lebih banyak dibandingkan dengan hasil pada temperature 400 °C dan 800 °C.

4.1.6. Karakterisasi dengan spektrofotometer DR-UV

Hasil pengukuran dengan spektrofotometer DR-UV masing masing $CuSnO_3$ yang di sintesis dengan kalsinasi 400 °C, 600°C dan 800°C dapat dilihat pada gambar berikut :



Gambar 6. Plot Tauc UV-DRS [$(\alpha h\nu)^2$ vs. energi foton (eV)] untuk sampel CuSnO₃: (a) 400°C, (b) 600°C, dan (c) 800°C. Garis merah menunjukkan ekstrapolasi linier yang digunakan

Dari data DRS yang disajikan dalam bentuk turunan fungsi Kubelka-Munk, yaitu $(\alpha h\nu/eV)^2$ terhadap energi foton, diperoleh nilai energi celah pita (band gap, E_g) sebesar 3,4 eV untuk sampel (a) 400°C dan 3,1 eV untuk (b) 600°C, serta 2,9 eV untuk sampel (c) 800°C. Secara teori, peningkatan suhu annealing umumnya dapat mempengaruhi E_g melalui beberapa mekanisme: (1) peningkatan ukuran kristalit yang cenderung menurunkan E_g akibat efek kuantum terbatas (quantum confinement), (2) penghilangan cacat dan keadaan pengotor (defect states) di dalam celah pita yang justru dapat menaikkan E_g karena berkurangnya tingkat energi donor di dekat pita konduksi,

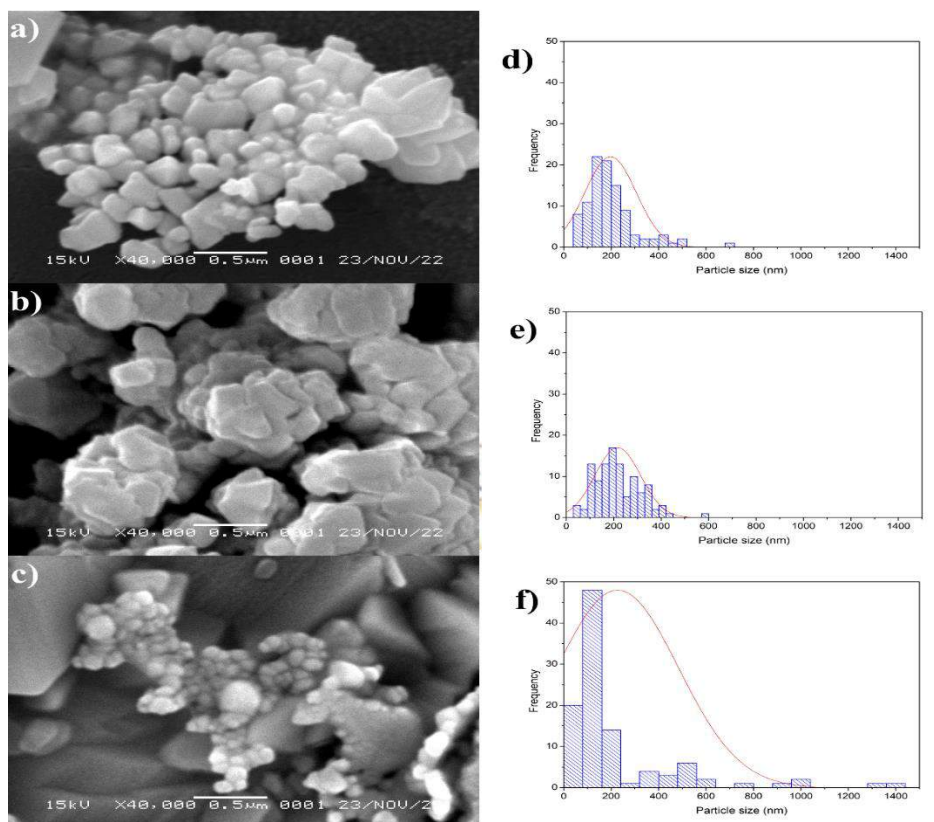
serta (3) perubahan komposisi atau stoikiometri permukaan. Pada material ini yang merupakan campuran CuO (band gap $\sim 1,2\text{--}1,7$ eV) dan SnO₂ (band gap $\sim 3,6$ eV), nilai E_g 3,4 eV pada suhu 400°C dan 3,1 eV pada suhu 600°C mengindikasikan dominasi serapan dari CuO yang termodifikasi oleh kehadiran SnO₂ atau adanya keadaan cacat. Sementara itu, penurunan E_g menjadi 2,9 eV pada suhu 800°C hal ini sangat mungkin disebabkan oleh difusi termal yang menyebabkan segregasi atau penipisan CuO di permukaan, atau oksidasi lebih lanjut yang mengubah rasio Cu²⁺/Cu⁺.

Mengaitkan dengan hasil karakterisasi sebelumnya, pada SEM terlihat bahwa suhu 800°C menghasilkan butir yang lebih besar (0,8–1,0 μm) dan lebih padat. Umumnya ukuran butir besar menurunkan E_g karena efek kuantum hilang, namun di sini E_g justru naik. Ini mengindikasikan bahwa faktor penghilangan cacat lebih dominan daripada efek ukuran partikel. XRD menunjukkan peningkatan kristalinitas pada 800°C; semakin kristalin, semakin sedikit keadaan terperangkap (trap states) di dalam celah pita, sehingga E_g mendekati nilai intrinsik komponen yang dominan. FTIR menunjukkan hilangnya gugus O-Cu-O pada 800°C, yang berarti berkurangnya polarisasi permukaan dan defek yang dapat menciptakan tingkat energi di dalam celah pita. Dengan demikian, peningkatan E_g pada 800°C konsisten dengan berkurangnya cacat dan peningkatan kemurnian fasa.

4.2 Penentuan jumlah zat aditif optimum

4.2.1 Jumlah penambahan zat additive MEA optimum pada sintesis CuSnO₃

Dari hasil pengamatan SEM dengan perbesaran 40.000 $\times$ dan skala 0,5 μm , terlihat bahwa penambahan MEA dalam sintesis CuSnO₃ memberikan pengaruh signifikan terhadap morfologi, ukuran partikel, serta derajat aglomerasi.

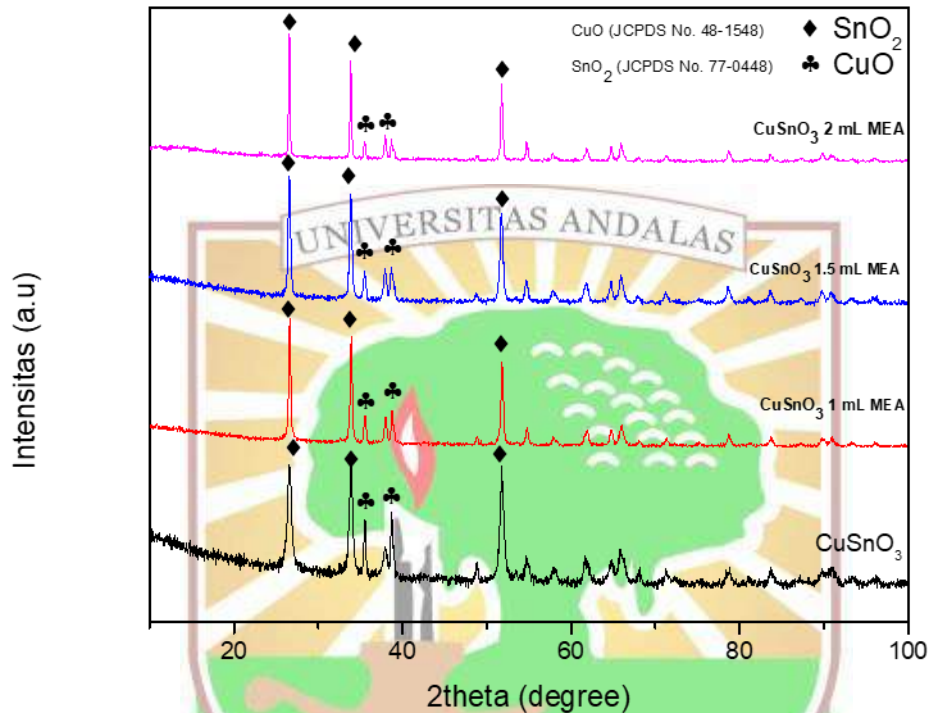


Gambar 7. Mikrograf SEM dari CuSnO_3 yang disintesis (a) $\text{CuSnO}_3 + \text{MEA} = 1$ ml, (b) $\text{CuSnO}_3 + \text{MEA} = 1,5$ ml, (c) $\text{CuSnO}_3 + \text{MEA} = 2$ ml, Skala bar: $0,5 \mu\text{m}$. Tegangan percepatan: 15 kV; perbesaran: $\times 40.000$. dan distribusi partikel dari variasi suhu kalsinasi (d) $\text{CuSnO}_3 + \text{MEA} = 1$ ml, (e) $\text{CuSnO}_3 + \text{MEA} = 1,5$ ml, (f) $\text{CuSnO}_3 + \text{MEA} = 2$ ml.

Pada CuSnO_3 yang ditambahkan 1 ml MEA (a dan d), partikel yang terbentuk cenderung berbentuk bulat dengan ukuran relatif seragam sekitar $0,3\text{--}0,5 \mu\text{m}$, namun masih terlihat aglomerasi antar partikel yang cukup tinggi. Hal ini menunjukkan bahwa MEA berfungsi sebagai agen pengompleks yang cukup efektif untuk mengendalikan nukleasi, tetapi belum optimal dalam mencegah aglomerasi. Ketika volume MEA menjadi 1,5 ml (b dan e), morfologi berubah menjadi lebih halus dengan ukuran partikel menurun hingga sekitar $0,2\text{--}0,4 \mu\text{m}$ (L. Sun et al., 2021).

Pada CuSnO_3 yang ditambahkan 2 ml MEA (c dan f) terlihat partikel tersebar lebih merata dan aglomerasi berkurang secara nyata, karena kelebihan MEA dapat menstabilkan permukaan partikel melalui efek sterik atau elektrostatik, sehingga mencegah penggabungan antar partikel. Secara keseluruhan, penambahan MEA yang

optimal adalah pada 2 ml, karena menghasilkan partikel paling halus, tersebar baik, dengan potensi luas permukaan tinggi yang menguntungkan untuk aplikasi katalitik maupun fotoelektrokimia (H. Sun et al., 2021).



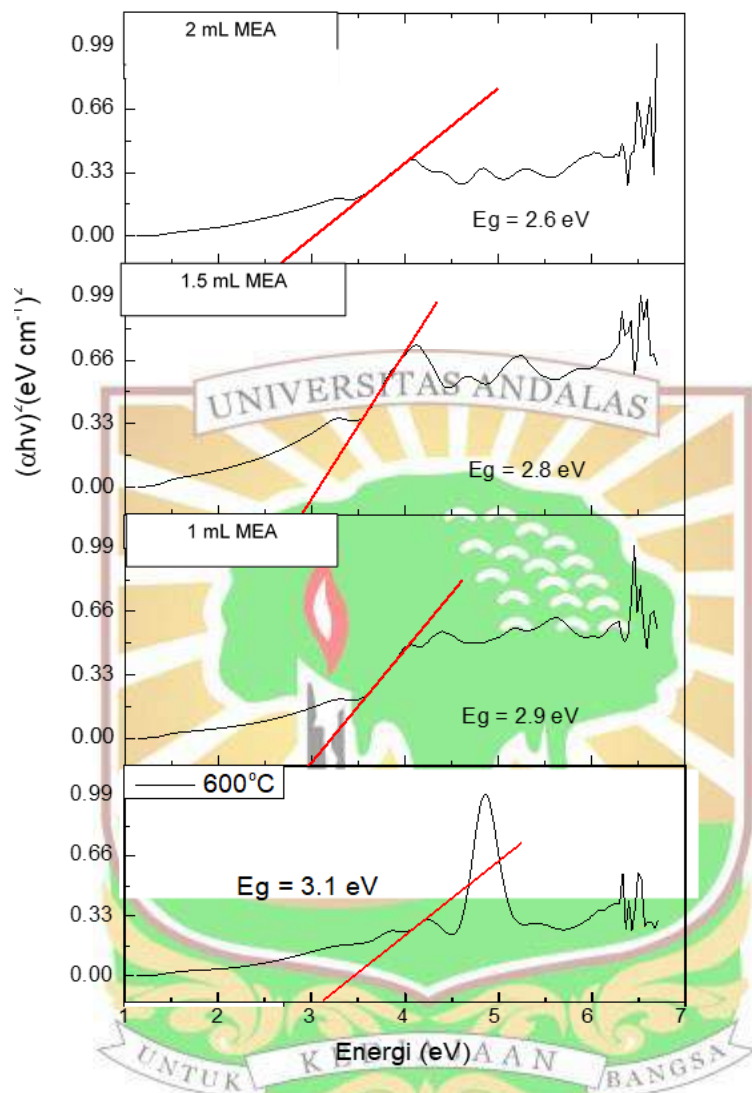
Gambar 8. Pola XRD dari CuSnO_3 yang disintesis dengan berbagai konsentrasi MEA, semuanya dikalsinasi pada suhu 600 °C.

Hasil difraksi sinar-X untuk ketiga variasi perbandingan CuSnO_3 + MEA menunjukkan bahwa semua sampel mengandung dua fasa utama yaitu CuO dan SnO_2 , tanpa adanya puncak yang mengindikasikan terbentuknya fasa CuSnO_3 tunggal. Hal ini konsisten dengan hasil sebelumnya pada suhu 600°C (tanpa MEA) yang juga menunjukkan campuran CuO dan SnO_2 . Namun, penambahan MEA memberikan pengaruh yang nyata terhadap intensitas, lebar puncak, serta kristalinitas relatif kedua fasa. Pada penambahan 1ml MEA, puncak CuO dan SnO_2 terdeteksi dengan intensitas sedang dan lebar puncak yang relatif besar, mengindikasikan ukuran kristalit kecil (berdasarkan persamaan Scherrer) serta kristalinitas yang belum optimal.

Hal ini diduga karena MEA dalam jumlah setara dengan prekursor cukup untuk

membentuk kompleks, tetapi selama kalsinasi pada 600°C, masih terdapat sisa karbon atau nitrogen yang menghambat pertumbuhan kristal. Pada penambahan 1,5 ml MEA, terjadi peningkatan intensitas puncak yang signifikan serta penyempitan puncak untuk kedua fasa, terutama pada sudut 2θ sekitar 35–38° (CuO) dan 26–34° (SnO₂). Ini menunjukkan bahwa kelebihan MEA membantu pembentukan partikel yang lebih kristalin dengan ukuran kristalit yang lebih besar. Secara teori, MEA bertindak sebagai agen pengompleks dan juga sumber basa yang mengontrol pH larutan prekursor, sehingga menghasilkan nukleasi yang lebih seragam dan pertumbuhan kristal yang lebih teratur selama kalsinasi. (Abolhasani et al., 2025).

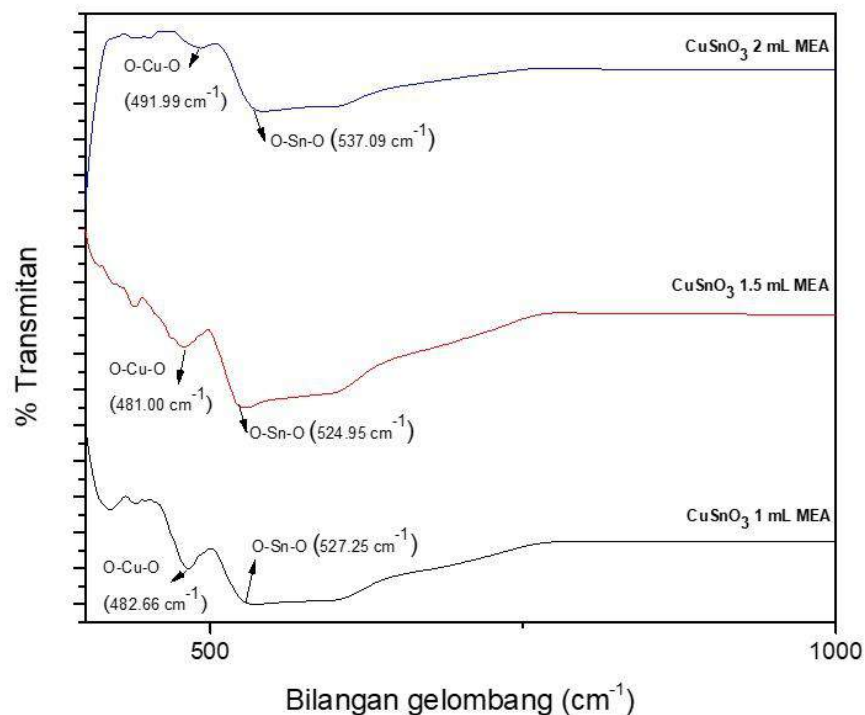
Kondisi ini mengindikasikan kristalinitas buruk dan ukuran kristalit sangat kecil. Kekurangan MEA menyebabkan proses pengompleksan tidak sempurna, sehingga ion logam cenderung mengendap cepat sebagai hidroksida yang tidak homogen, dan setelah kalsinasi menghasilkan struktur amorf atau nanokristalin dengan banyak cacat. Mengaitkan dengan hasil SEM sebelumnya, pada sampel dengan penambahan MEA 2ml diperoleh partikel paling halus (0,2–0,4 μm) dan tersebar merata, yang berkorelasi dengan ukuran kristalit kecil (dari XRD puncak lebar) namun intensitas puncak tetap tinggi – ini menunjukkan bahwa partikel tersusun dari banyak kristalit kecil dengan orientasi yang baik. Pada sampel dengan penambahan MEA 1 ml, partikel agak besar dan aglomerasi, sedangkan pada 1,5 ml partikel relative kecil dan tidak beraturan, sesuai dengan XRD yang menunjukkan kristalinitas rendah. Secara keseluruhan, CuSnO₃ dengan penambahan 2 ml MEA memberikan hasil kristalinitas terbaik di antara ketiga variasi, karena kelebihan MEA menciptakan lingkungan kimia yang ideal untuk pertumbuhan kristal CuO dan SnO₂ yang terpisah namun terdistribusi baik (Ke et al., 2022).



Gambar 9. Plot Tauc UV-DRS [$(\alpha h\nu)^2$ vs. energi foton (eV)] untuk sampel CuSnO_3 : (a) tanpa aditif ($E_g = 3,1$ eV), (b) MEA 1 ml ($E_g = 2,9$ eV), (c) MEA 1,5 ml ($E_g = 2,8$ eV), (d) MEA 2ml ($E_g = 2,6$ eV). Garis putus-putus merah menunjukkan ekstrapolasi linier yang digunakan.

Berdasarkan pengukuran spektroskopi UV-Vis DRS dan perhitungan Tauc plot, kami memperoleh nilai band gap untuk ketiga variasi volume aditif MEA. Pada sampel dengan penambahan aditif 1 ml MEA, E_g terukur 2,9 eV. Pada penambahan 1,5 ml MEA, E_g menurun menjadi 2,8 eV. Pada penambahan 2 ml MEA, E_g terjadi penurunan menjadi 2,6 eV. Penurunan energy gap ini dapat dikaitkan dengan teori

bahwa molekul organik seperti MEA, yang memiliki gugus amina ($-\text{NH}_2$) dan hidroksil ($-\text{OH}$), dapat bertindak sebagai agen pengompleks atau capping agent. Interaksi kimia antara MEA dengan permukaan material semikonduktor (misalnya nanopartikel logam oksida atau perovskite) dapat menimbulkan tail states di dekat pita konduksi atau pita valensi, sehingga celah pita optik tampak menyempit (red shift). Hal ini konsisten dengan prinsip Tauc plot bahwa perubahan kemiringan kurva $(\alpha h\nu)^2$ terhadap $h\nu$ mencerminkan perubahan transisi elektronik. Selain itu, pada penambahan 2 ml, MEA mungkin mencapai kondisi optimal dalam memodulasi kerapatan muatan atau menginduksi regangan kisi. Dengan demikian, hasil ini mendukung teori bahwa penambahan senyawa organik seperti MEA secara sistematis mampu merekayasa energy gap material untuk aplikasi optoelektronik (Ke et al., 2022)(Ochoa-Muñoz et al., 2021).



Gambar 10. Spektrum FTIR CuSnO_3 yang disintesis dengan penambahan aditif MEA.

Dari spektrum FTIR yang diperoleh pada rentang bilangan gelombang 400 cm^{-1}

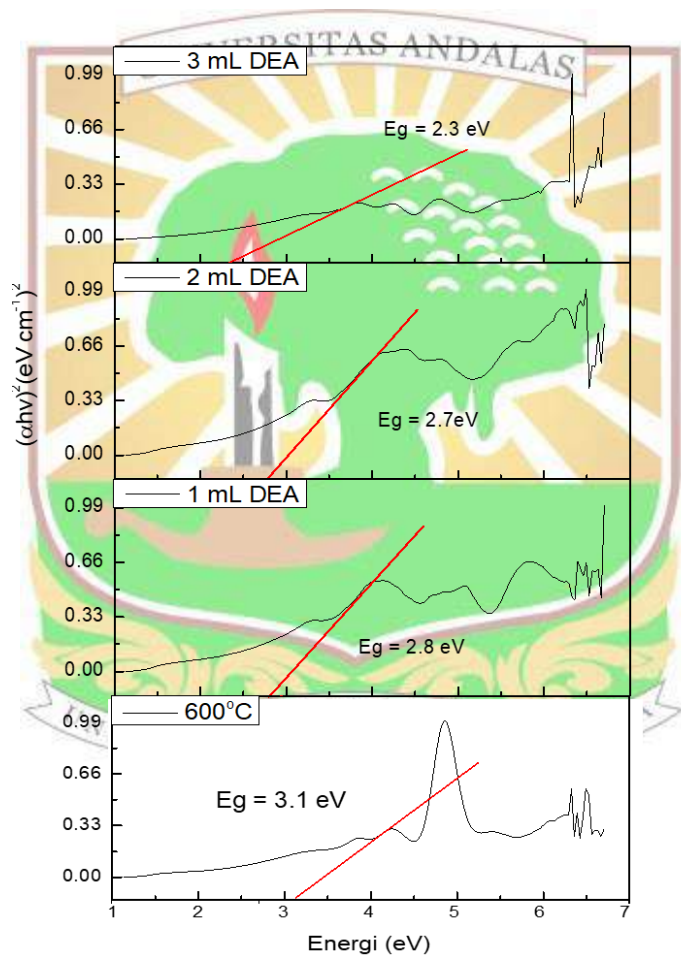
hingga 1000 cm^{-1} , terlihat bahwa penambahan MEA dengan perbandingan yang berbeda memberikan pengaruh signifikan terhadap nilai transmitansi, yang mencerminkan perubahan gugus fungsi dan ikatan kimia dalam material CuSnO_3 . Pada perbandingan penambahan MEA 1 ml, terlihat ikatan O-Cu-O pada bilangan gelombang $482,66\text{ cm}^{-1}$ dan O-Sn-O terlihat pada bilangan gelombang $527,25\text{ cm}^{-1}$. Ini menunjukkan serapan inframerah yang paling kuat, mengindikasikan masih banyaknya gugus fungsi organik, air terikat, atau gugus hidroksil yang tersisa setelah kalsinasi pada 600°C . Rendahnya transmitansi ini dapat disebabkan oleh ketidaksempurnaan dekomposisi prekursor akibat MEA yang tidak cukup untuk mengompleks semua ion logam, sehingga residu karbon atau nitrogen masih terperangkap.

Pada penambahan MEA 1,5 ml, spektrum FTIR terjadi pergeseran bilangan gelombang ke arah sedikit lebih rendah. Ini menunjukkan bahwa dengan jumlah MEA 1,5 ml, tidak begitu mempengaruhi konsentrasi CuO dan SnO_2 dalam sampel. (Liu et al., 2020). Hal ini mengindikasikan bahwa FTIR lebih sensitif terhadap gugus permukaan pada penambahan 2 ml MEA, terlihat puncak serapan dari ikatan O-Cu-O dan O-Sn-O bergeser ke arah bilangan gelombang yang lebih tinggi dan secara keseluruhan, penambahan 2 ml MEA memberikan hasil FTIR terbaik (paling transparan terhadap IR), menandakan eliminasi gugus fungsi paling sempurna (Liu et al., 2020).

4.2.2 Pengaruh penambahan Zat additive DEA terhadap sintesis CuSnO_3

Nilai energi celah pita yang diperoleh dari analisis UV-DRS untuk berbagai volume DEA yang disajikan pada gambar 4.11 menunjukkan tren penurunan yang jelas dengan meningkatnya volume DEA: dari 3,4 eV (tanpa DEA) menjadi 2,8 eV (1 mL DEA), 2,7 eV (1,5 mL DEA), dan akhirnya 2,3 eV (2 mL DEA). Penurunan sistematis ini menunjukkan bahwa DEA memainkan peran penting dalam memodifikasi struktur elektronik material CuSnO_3 yang disintesis. Tanpa DEA, celah pita lebar 3,4 eV menunjukkan komposisi kaya tembaga atau keberadaan fase sekunder (misalnya, domain seperti SnO_2) yang meningkatkan celah optik. Setelah menambahkan 1 mL DEA, celah pita turun secara signifikan menjadi 2,8 eV, yang lebih dekat dengan nilai yang diharapkan untuk semikonduktor CuSnO_3 ternary murni (Gnanamoorthy et al.,

2020; Karlina & Sanjaya, 2023). Penurunan ini dapat dikaitkan dengan aditif yang menghasilkan campuran material yang lebih halus dengan luas permukaan yang lebih besar, sehingga meningkatkan reaktivitas material semikonduktor. Kemungkinan disebabkan oleh aglomerasi pada material semikonduktor yang disintesis, yang dapat mempengaruhi pergeseran penyerapan dan nilai celah pita (Kasuma Warda Ningsih et al., 2020).



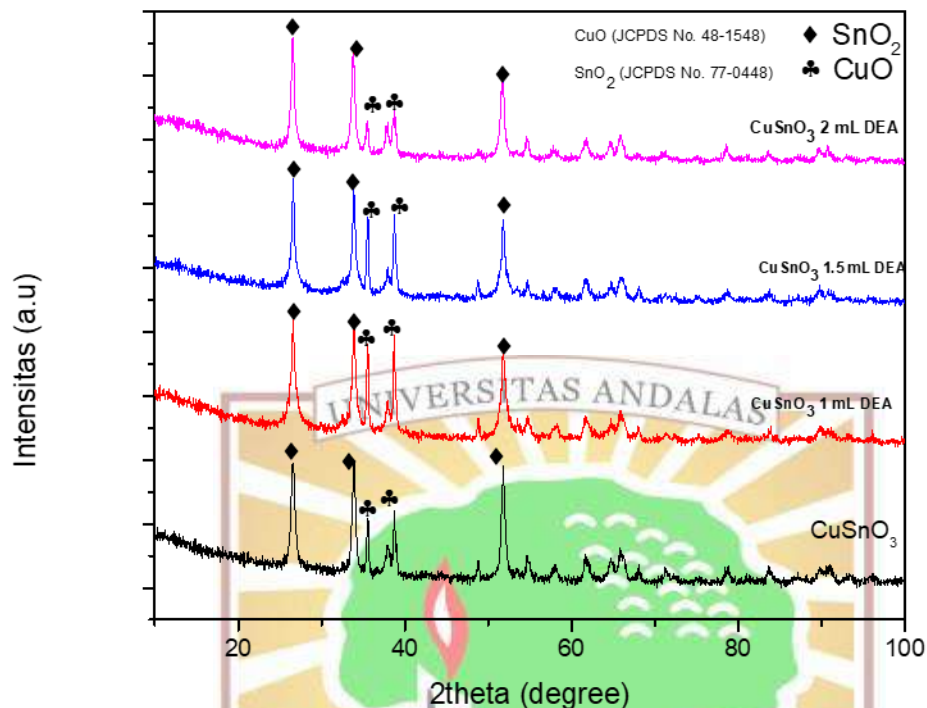
Gambar 11. Plot Tauc UV-DRS [$(\alpha h\nu)^2$ vs. energi foton (eV)] untuk sampel CuSnO_3 : (a) tanpa aditif ($E_g = 3,1$ eV), (b) DEA 1 ml ($E_g = 2,8$ eV), (c) DEA 1,5 ml ($E_g = 2,7$ eV), (d) DEA 2ml ($E_g = 2,3$ eV). Garis putus-putus merah menunjukkan ekstrapolasi linier yang digunakan.

Penambahan aditif DEA dapat memodifikasi sifat elektronik material

semikonduktor melalui beberapa mekanisme: (a) meningkatkan konduktivitas dengan menambahkan lebih banyak elektron ke semikonduktor, (b) mengubah jenis semikonduktor dari tipe-p menjadi tipe-n atau sebaliknya, dan (c) memodifikasi struktur pita energi, yang pada akhirnya memengaruhi nilai celah pita.

Nilai E_g yang hampir identik pada 1 mL (2,8 eV) dan 1,5 mL (2,7 eV) menunjukkan bahwa penambahan DEA tidak begitu mempengaruhi energi celah pita pada kisaran ini. Peningkatan DEA lebih lanjut menjadi 2 mL menghasilkan celah pita yang lebih sempit (2,3 eV). Hal ini dapat dikaitkan dengan sedikit kelebihan timah (seperti yang terlihat pada hasil XRF), yang dapat memperkenalkan tingkat donor dangkal atau meningkatkan hibridisasi orbital Sn–O, yang secara efektif mengurangi celah pita. Alternatifnya, peningkatan kristalinitas dan pertumbuhan butiran pada konsentrasi DEA yang lebih tinggi dapat mengurangi hamburan ekor pita, yang menyebabkan tepi penyerapan yang lebih tajam dan E_g tampak yang lebih rendah. Secara keseluruhan, data menunjukkan bahwa volume DEA merupakan parameter penyetelan yang efektif untuk celah pita CuSnO_3 , dengan 2 mL DEA menghasilkan celah terkecil (2,3 eV) berpotensi bermanfaat untuk penyerapan cahaya tampak dalam aplikasi fotokatalitik atau optoelektronik. Namun, perubahan non-linier antara 1,5 mL dan 2 mL menunjukkan bahwa terdapat efek ambang batas, kemungkinan terkait dengan perubahan kimia koordinasi selama sintesis (Borhade et al., 2019). Namun, nilai celah pita yang lebih rendah menunjukkan bahwa lebih sedikit energi yang dibutuhkan untuk eksitasi elektron dari pita valensi ke pita konduksi.

Pola XRD bubuk CuSnO_3 yang disintesis tanpa DEA dan dengan DEA ditunjukkan pada Gambar 22. Puncak tertinggi diamati pada $2\theta = 26,59^\circ$ dan $33,93^\circ$ tanpa dan dengan penambahan DEA, masing-masing. Pola XRD yang diperoleh dengan penambahan DEA menunjukkan puncak yang lebih tinggi, lebih tajam, dan lebih sempit dibandingkan dengan sampel tanpa DEA, yang mengindikasikan kristal yang terbentuk dengan baik dengan kemurnian tinggi (fase tunggal) (Rosanti, A.D., Wardani, A.R.K., & Anggraeni, 2020).



Gambar 12. Pola difraksi sinar-X (XRD) dengan dan tanpa DEA

Pola difraksi sesuai dengan JCPDS No. 00-021-1250 untuk SnO_2 tetragonal dan JCPDS No. 00-048-1548 untuk CuO monoklinik. Puncak CuSnO_3 karakteristik diamati pada $2\theta = 38,99^\circ, 66,17^\circ, 83,61^\circ, \text{ dan } 89,84^\circ$, yang mengkonfirmasi keberhasilan sintesis CuSnO_3 . Pola XRD pada Gambar 22, bersama dengan ukuran kristalit yang dihitung dari pelebaran puncak (Tabel 2), memberikan gambaran mekanistik yang jelas tentang bagaimana DEA memengaruhi evolusi struktural CuSnO_3 . Tanpa DEA, pola XRD menunjukkan puncak yang lebar dan intensitas rendah yang menyimpang secara substansial dari standar CuSnO_3 , menunjukkan kristalinitas yang buruk dan adanya oksida yang tidak teratur atau terpisah fasa. Hal ini secara kuantitatif tercermin dalam ukuran kristalit terkecil sebesar 23,77 nm. Tidak adanya agen pengkelat menyebabkan pengendapan hidroksida logam yang tidak terkontrol selama sintesis prekursor, menghasilkan banyak inti kecil yang kurang teratur dan tidak menyatu menjadi kisi terner yang terdefinisi dengan baik setelah kalsinasi. Setelah penambahan 1 mL DEA, ukuran kristalit meningkat menjadi 27,14 nm, dan pola XRD menjadi jauh lebih tajam

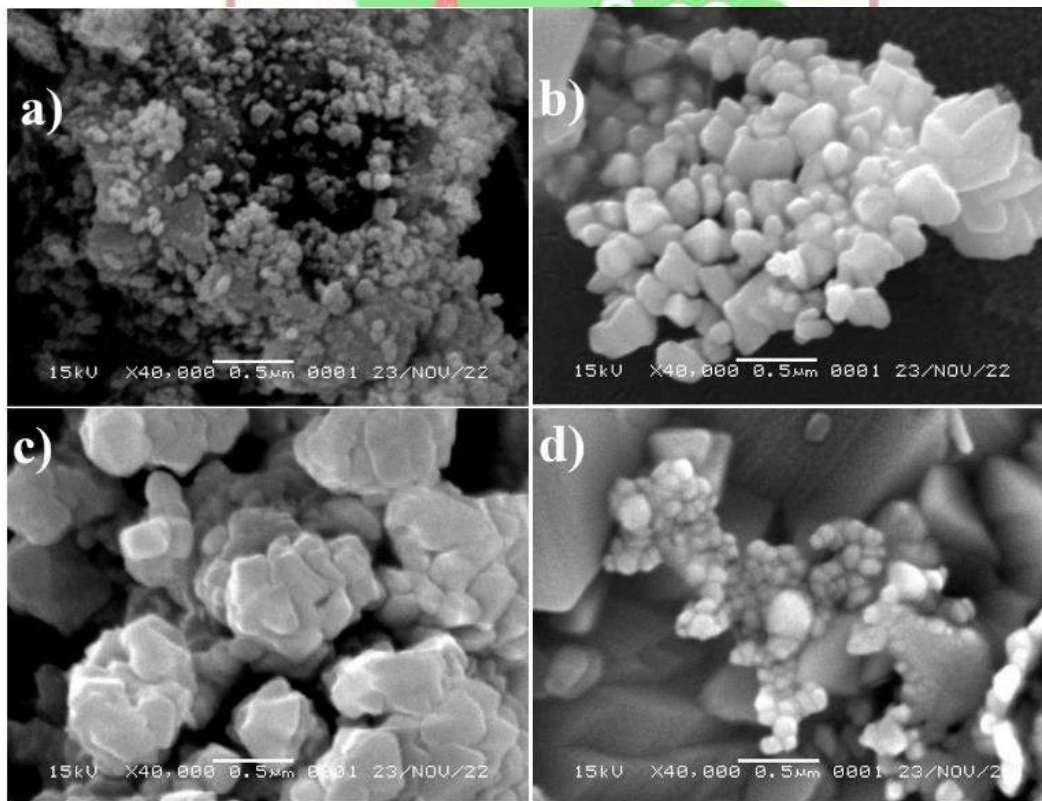
dan selaras dengan standar. Peningkatan ini dikaitkan dengan kompleksasi ion logam (terutama Sn^{4+}) oleh DEA, yang memperlambat hidrolisis dan mendorong distribusi kation yang lebih homogen dalam gel. Akibatnya, laju nukleasi berkurang, memungkinkan lebih sedikit kristalit tetapi lebih besar terbentuk selama kalsinasi, dengan peningkatan keteraturan jarak jauh. Pada 1,5 mL DEA, ukuran kristalit sedikit menurun menjadi 25,54 nm, yang tidak terduga mengingat tren umumnya. Pengurangan ini berkorelasi dengan pelebaran puncak dan asimetri halus yang diamati pada pola XRD pada tingkat DEA ini (Alibe et al., 2018).

Tabel 1. Pengaruh volume DEA terhadap ukuran kristalit

Volume of DEA (mL)	Ukuran kristal (D)
W/O	23.77 nm
1	27.14 nm
1.5	25.54 nm
2	43.64 nm

Penjelasan yang paling masuk akal adalah bahwa 1,5 mL berada dalam rezim transisi di mana dinamika kompleksasi menjadi non-linier. Kelebihan DEA dapat mengubah sementara pH larutan atau stabilitas relatif kompleks Cu DEA versus Sn DEA, yang menyebabkan periode singkat nukleasi sekunder atau pembentukan domain yang sangat kecil dari fase pengotor (misalnya, CuO) yang mengganggu pertumbuhan kristal CuSnO_3 yang koheren. Penurunan ukuran yang sedikit menunjukkan adanya populasi butiran yang lebih kecil yang memperluas nilai Scherrer rata-rata, meskipun fase dominan tetap CuSnO_3 . Pada 2 mL DEA, peningkatan ukuran kristal yang dramatis menjadi 43,64 nm diamati, yang hampir dua kali lipat dari sampel tanpa DEA. Secara konsisten, pola XRD menunjukkan puncak yang paling tajam dan paling intens dengan pelebaran minimal, menunjukkan kristalinitas yang sangat tinggi dan kesesuaian yang hampir sempurna dengan standar. Lonjakan ini dijelaskan oleh khelasi lengkap dan stabil dari Cu^{2+} dan Sn^{4+} pada konsentrasi DEA yang lebih tinggi, yang menciptakan prekursor fase tunggal yang sangat homogen. Setelah kalsinasi, kerangka organik terurai, tetapi keseragaman spasial kation mendorong pertumbuhan butiran yang luas melalui difusi keadaan padat, menghasilkan kristalit besar dan minim cacat tanpa gangguan fase sekunder. Menariknya, ukuran kristalit tidak meningkat secara

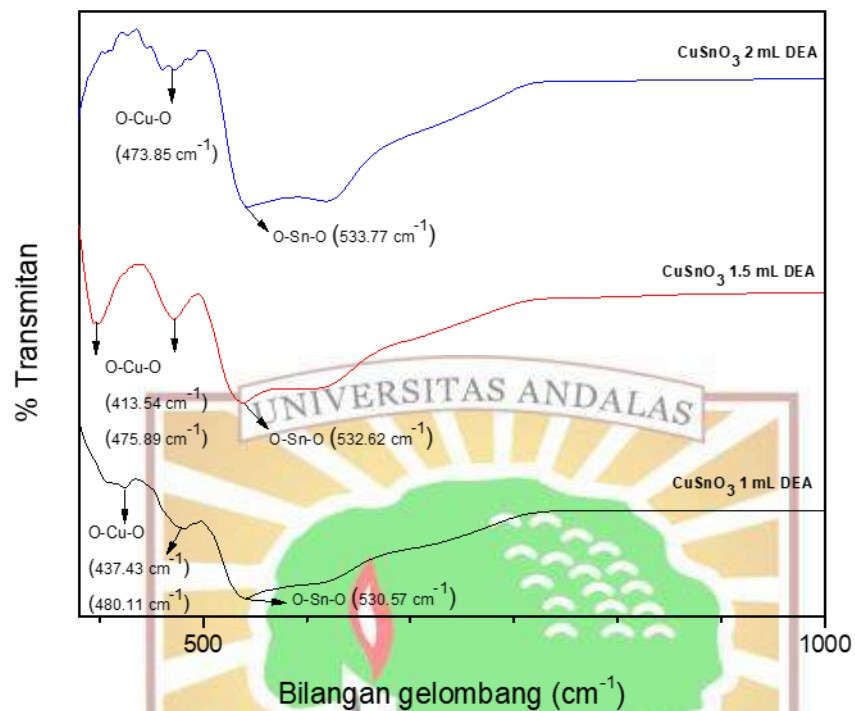
monoton; penurunan pada 1,5 mL DEA menyoroti jendela kritis di mana kompleksasi kompetitif untuk sementara menghambat pertumbuhan optimal, sementara 2 mL DEA mengatasi hal ini dengan memastikan ketersediaan ligan berlebih. Singkatnya, analisis XRD dan ukuran kristalit gabungan menunjukkan bahwa volume DEA merupakan variabel utama untuk mengendalikan kemurnian fasa dan ukuran butir pada CuSnO_3 : 2 mL DEA menghasilkan kristalit terbesar (43,64 nm) dan struktur paling teratur, sedangkan konsentrasi menengah (1–1,5 mL) menghasilkan ukuran sedang tetapi memerlukan penyesuaian yang cermat untuk menghindari penghambatan pertumbuhan sementara. Tidak adanya puncak kristal sekunder pada pola 2 mL DEA lebih lanjut menegaskan bahwa ukuran kristalit yang besar tidak mengorbankan kemurnian fasa, sehingga kondisi ini optimal untuk aplikasi yang membutuhkan kesempurnaan struktural yang tinggi (Nadeak & Susanti, 2012).



Gambar 13. Gambar mikroskop elektron pemindaian (SEM) dari bubuk CuSnO_3 . (a) tanpa DEA, (b) 1 mL DEA, (c) 1,5 mL DEA, dan (d) 2 mL DEA

Mikrograf SEM dari serbuk CuSnO_3 pada perbesaran 1000x ditunjukkan pada

Gambar 23. Morfologi serbuk CuSnO_3 sangat dipengaruhi oleh penambahan dietanolamina (DEA). Tanpa DEA (Gambar 23a), serbuk menunjukkan aglomerat padat yang tidak beraturan dengan ukuran partikel yang tidak seragam dan tekstur permukaan yang kasar, menunjukkan pertumbuhan yang tidak terkontrol selama sintesis. Dengan penambahan 1 mL DEA (Gambar 23b), terjadi perubahan yang nyata: partikel menjadi lebih kecil, lebih terpisah, dan sedikit lebih seragam, menunjukkan bahwa DEA bertindak sebagai agen penutup atau pengubah pengarah struktur. Meningkatkan volume DEA menjadi 1,5 mL (Gambar 23c) lebih lanjut memperbaiki morfologi, menghasilkan distribusi partikel yang lebih homogen, berbentuk bulat atau seperti lempeng dengan aglomerasi yang berkurang. Namun, pada 2 mL DEA (Gambar 23d), partikel-partikel tersebut tampak mengalami aglomerasi ulang sebagian dan menunjukkan batas yang kurang jelas, kemungkinan karena kelebihan DEA mendorong pembentukan jembatan atau nukleasi sekunder. Secara keseluruhan, konsentrasi DEA optimal sekitar 1,5 mL tampaknya menghasilkan mikrostruktur yang paling menguntungkan untuk bubuk CuSnO_3 , menyeimbangkan dispersi partikel dan kontrol morfologi. Gambar tersebut menunjukkan morfologi permukaan yang ditandai dengan adanya rongga berongga yang berbeda dan tekstur yang relatif kasar. Diameter struktur bongkahan diperkirakan berada dalam kisaran 7–11 nm. Sifat berpori permukaan bermanfaat untuk aplikasi katalitik dan adsorpsi, karena memberikan peningkatan luas permukaan dan situs aktif untuk reaksi kimia (Wang et al., 2021). Rongga yang diamati menunjukkan bahwa aditif DEA dan proses kalsinasi secara efektif menghasilkan struktur jaringan berpori daripada partikel padat yang teragregasi.



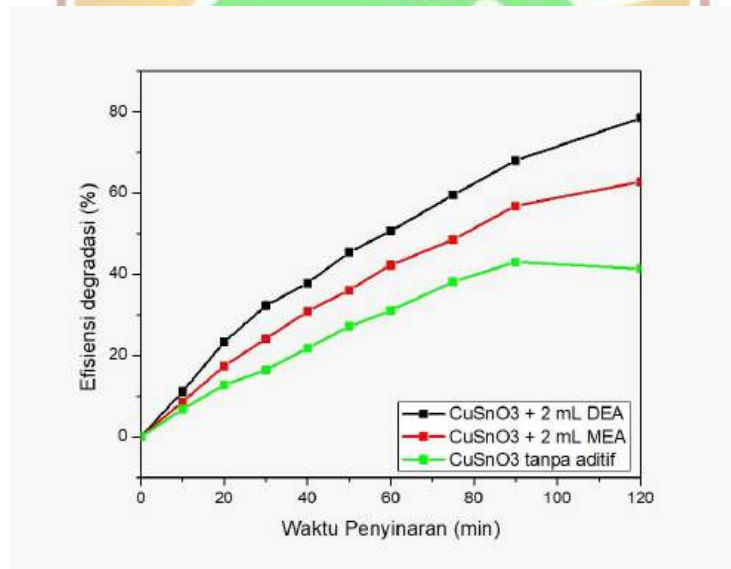
Gambar 14. Spektrum FTIR dari CuSnO₃ yang disintesis dengan DEA

Susunan kimia dan gugus fungsional film tipis CuSnO₃ yang dihasilkan dinilai menggunakan spektroskopi Fourier Transform Infrared (FTIR) dalam rentang 1000–400 cm⁻¹, yang umumnya terkait dengan getaran kisi dalam oksida logam (Gambar 24). Setiap sampel menunjukkan pita serapan yang khas di bawah 600 cm⁻¹, menunjukkan bahwa kerangka anorganik CuSnO₃ telah berhasil terbentuk. Secara khusus, mode peregangan ikatan Cu–O dan Sn–O diwakili oleh puncak yang terlihat pada rentang 400–500 cm⁻¹ dan 550–600 cm⁻¹, masing-masing. Pilihan pengubah organik memiliki dampak besar pada intensitas getaran ini; film yang dimodifikasi DEA menunjukkan respons spektral yang lebih datar, konduktivitas listriknya yang lebih unggul—yang diamati dalam pengukuran sebelumnya—menunjukkan bahwa celah pita yang lebih sempit (2,3 eV) daripada kepadatan getaran permukaan aktif inframerah mungkin lebih erat kaitannya dengan kinerja elektronik dalam film ini. Secara keseluruhan, data FTIR mengkonfirmasi bahwa prekursor secara efektif berubah menjadi matriks oksida logam yang stabil dan sesuai untuk penggunaan

fotovoltaik. Tren ini menunjukkan mekanisme yang bergantung pada konsentrasi: sementara sejumlah kecil DEA (1 mL) memperkuat sinyal secara merata, volume menengah (1,5 mL) menimbulkan efek peredaman selektif frekuensi, dan volume yang lebih besar (2 mL) secara seragam memadamkan respons, kemungkinan karena efek saturasi, perubahan lingkungan dielektrik lokal, atau asosiasi diri molekul DEA yang mengubah sifat optik massal sampel.

4.3 Uji aktivitas fotokatalitik CuSnO_3 modifikasi dengan MEA dan DEA terhadap zat warna Metil Orange

Hasil uji aktivitas katalitik dari CuSnO_3 sebagai katalis dalam proses degradasi zat warna metil orange dengan penyinaran sinar UV selama 120 menit dapat dilihat pada gambar berikut ini :



Gambar 15. Efisiensi degradasi MO(%) vs waktu (menit) di bawah iradiasi UV untuk sampel CuSnO_3 , CuSnO_3 + 2ml MEA dan CuSnO_3 + 2 ml DEA

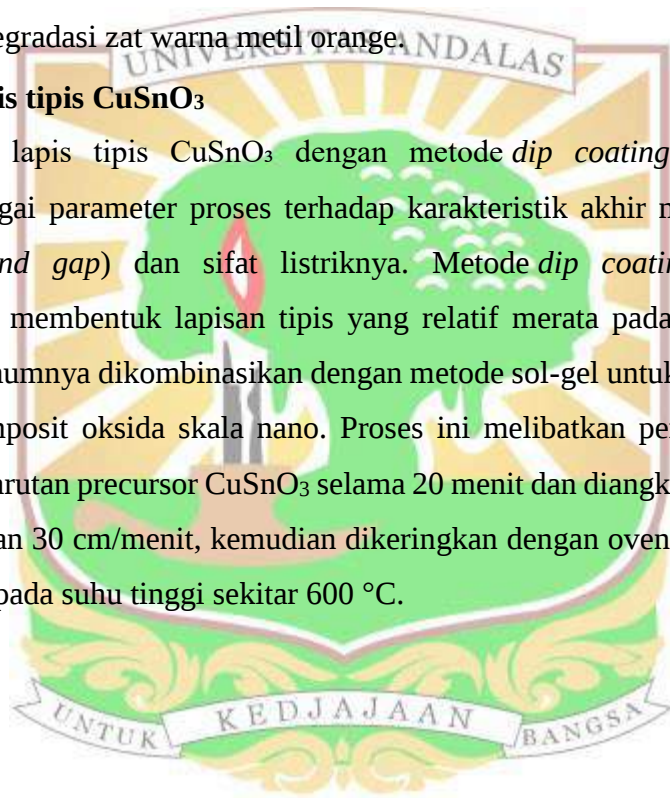
Pada hasil uji aktivitas katalitik CuSnO_3 memperlihatkan bahwa semikonduktor CuSnO_3 baik yang tanpa menggunakan aditif maupun yang menggunakan aditif MEA dan DEA sama-sama mampu mendegradasi senyawa metil orange, dimana pada gambar menunjukkan nilai efisiensi degradasi metil orange dengan menggunakan CuSnO_3 sebagai katalis yaitu sebesar 41,30 % , sedangkan efisiensi degradasi meningkat dengan menggunakan CuSnO_3 yang ditambahkan MEA dan DEA sebagai

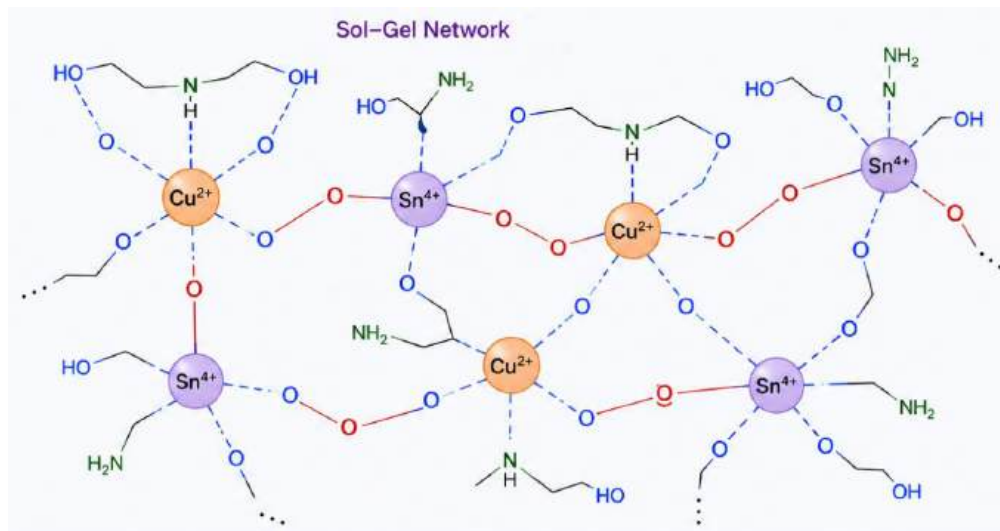
aditif dengan nilai efisiensi berturut turut 62,82% dan 78,56 %. Hal ini memperlihatkan peningkatan efisiensi degradasi sejalan dengan penurunan nilai band gap dari CuSnO_3 ketika ditambahkan aditif MEA dan DEA, hasil yang terbaik pada uji aktivitas katalik ini adalah dengan menggunakan CuSnO_3 yang ditambahkan 2 ml aditif DEA .

Pada penelitian ini, DEA berfungsi serupa sebagai donor elektron pengorbanan (pemulung lubang), yang secara ireversibel mengonsumsi lubang fotogenerasi. Tindakan ini menyisakan populasi elektron yang lebih tinggi yang tersedia di permukaan CuSnO_3 untuk mereduksi oksigen menjadi radikal superoksida, sehingga mempercepat degradasi zat warna metil orange.

4.4 Sintesis lapis tipis CuSnO_3

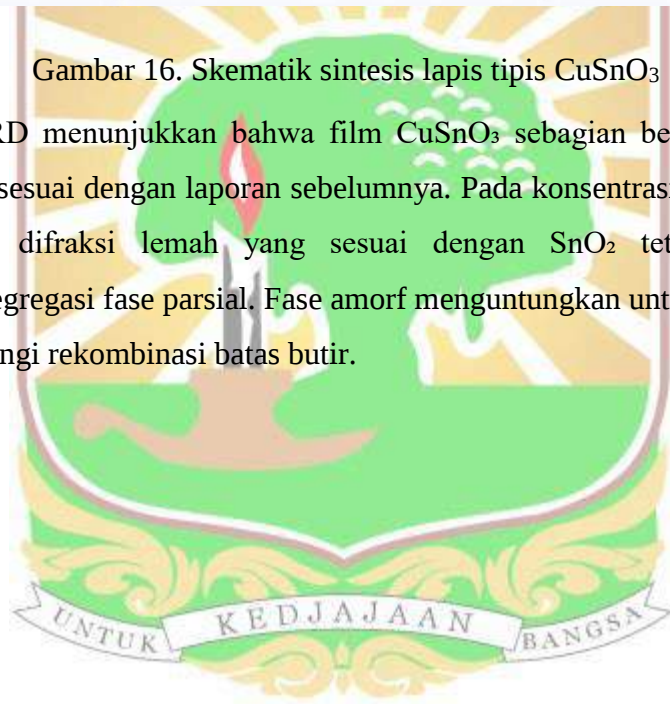
Sintesis lapis tipis CuSnO_3 dengan metode *dip coating* perlu mencakup pengaruh berbagai parameter proses terhadap karakteristik akhir material, terutama celah pita (*band gap*) dan sifat listriknya. Metode *dip coating* dipilih karena kemampuannya membentuk lapisan tipis yang relatif merata pada berbagai bentuk substrat, dan umumnya dikombinasikan dengan metode sol-gel untuk mengontrol sifat permukaan komposit oksida skala nano. Proses ini melibatkan pencelupan substrat kaca ke dalam larutan precursor CuSnO_3 selama 20 menit dan diangkat secara perlahan dengan kecepatan 30 cm/menit, kemudian dikeringkan dengan oven pada suhu 110°C dan dikalsinasi pada suhu tinggi sekitar 600°C .

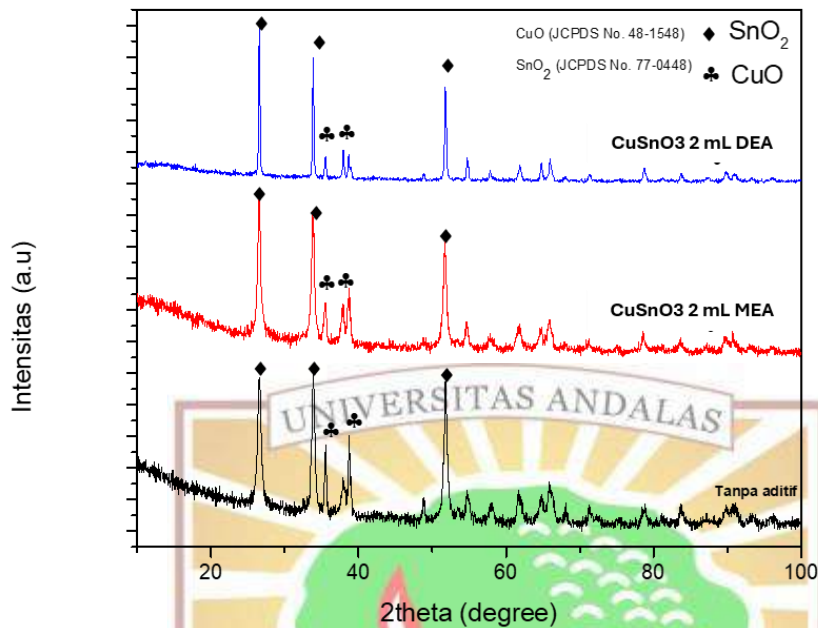




Gambar 16. Skematik sintesis lapis tipis CuSnO_3

Pola XRD menunjukkan bahwa film CuSnO_3 sebagian besar menunjukkan struktur amorf, sesuai dengan laporan sebelumnya. Pada konsentrasi DEA yang lebih tinggi, puncak difraksi lemah yang sesuai dengan SnO_2 tetragonal diamati, menunjukkan segregasi fase parsial. Fase amorf menguntungkan untuk aplikasi DSSC karena mengurangi rekombinasi batas butir.

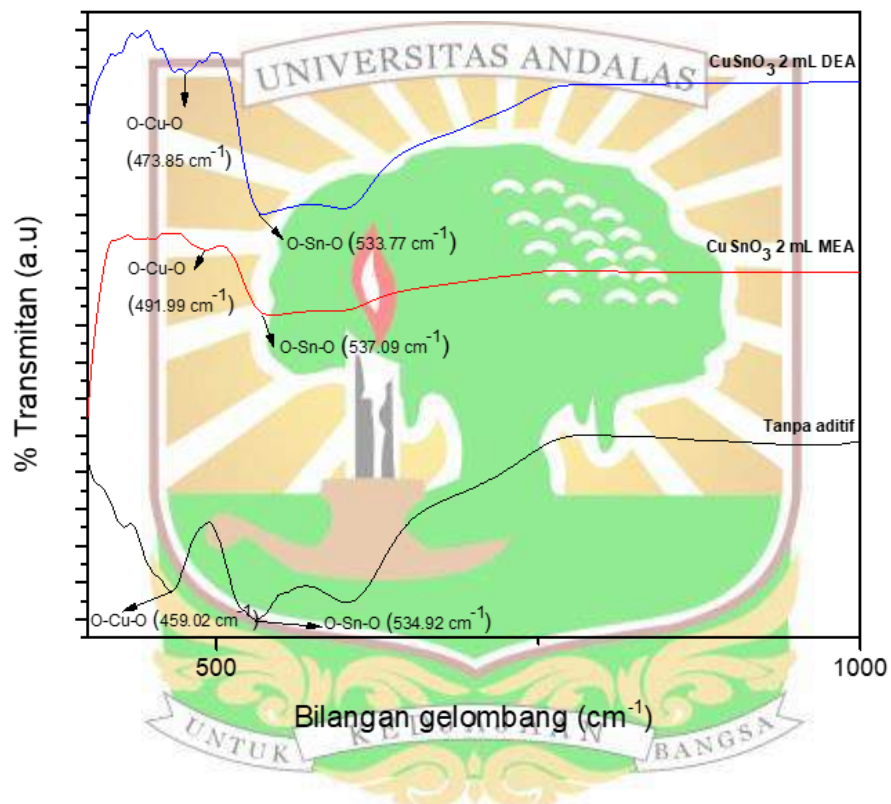




Gambar 17. Pola XRD dari film tipis CuSnO_3 yang disiapkan dalam kondisi : tanpa aditif (hitam), dengan 2 ml MEA (merah), dan 2 ml DEA (Biru) dengan waktu perendaman 20 menit.

Pola XRD dari CuSnO_3 (tanpa aditif) menunjukkan fitur amorf yang lebar, bersama dengan puncak kristal lemah pada $2\theta \approx 28^\circ$, 37° dan 53° , yang masing-masing sesuai dengan SnO_2 tetragonal dan CuO pada $2\theta \approx 38^\circ$ dan 39° dalam bentuk monoklinik. Ini menunjukkan pemisahan fase parsial, seperti yang juga dilaporkan oleh Kim, *et al* (2019). Sebaliknya, film yang disiapkan dengan 2 mL DEA menunjukkan satu puncak SnO_2 lebih runcing dan tajam, sedangkan puncak CuO terlihat. Ini menunjukkan bahwa DEA lebih disukai menstabilkan ion tembaga dalam jaringan amorf, menekan kristalisasi CuO . Film yang dimodifikasi MEA hanya menampilkan halo amorf, menunjukkan bahwa DEA bahkan lebih efektif dalam mencegah pemisahan fase (Sanjaya et al., 2026). Sifat amorf ini umum ditemukan pada material CuSnO_3 yang disintesis dengan metode dip coating pada suhu kalsinasi yang tidak terlalu tinggi, dan seringkali justru diinginkan untuk aplikasi tertentu karena homogenitasnya yang baik.

Secara keseluruhan, hasil XRD ini mengonfirmasi bahwa Penambahan aditif DEA secara sistematis memengaruhi derajat amorfisitas lapisan tipis CuSnO_3 . Jika dikaitkan dengan sifat optik dan listrik, peningkatan amorfisitas (penurunan intensitas XRD) sering berkorelasi dengan penurunan nilai celah pita (band gap), seperti yang telah dibahas pada diskusi sebelumnya, karena struktur yang lebih tidak teratur dapat menciptakan keadaan energi lokal di dalam celah pita.

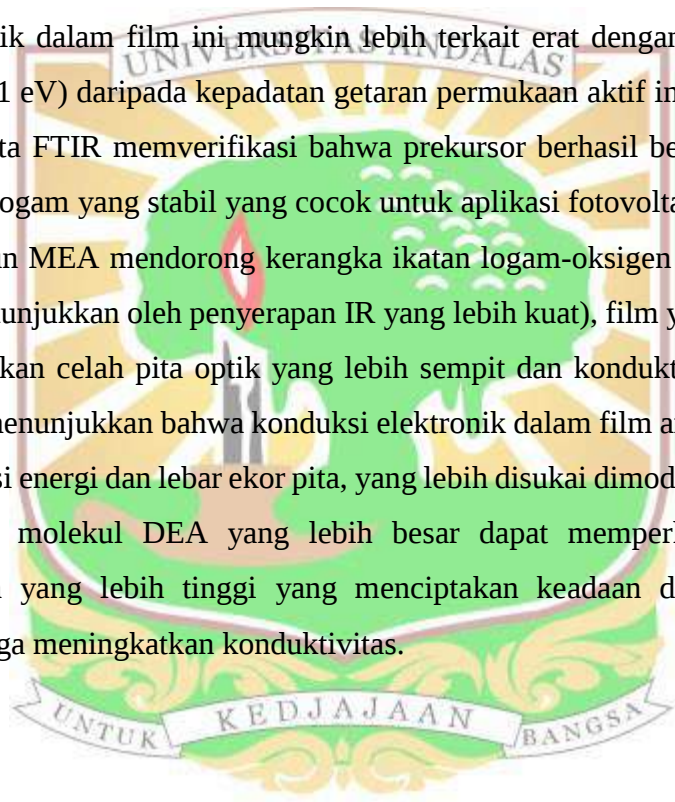


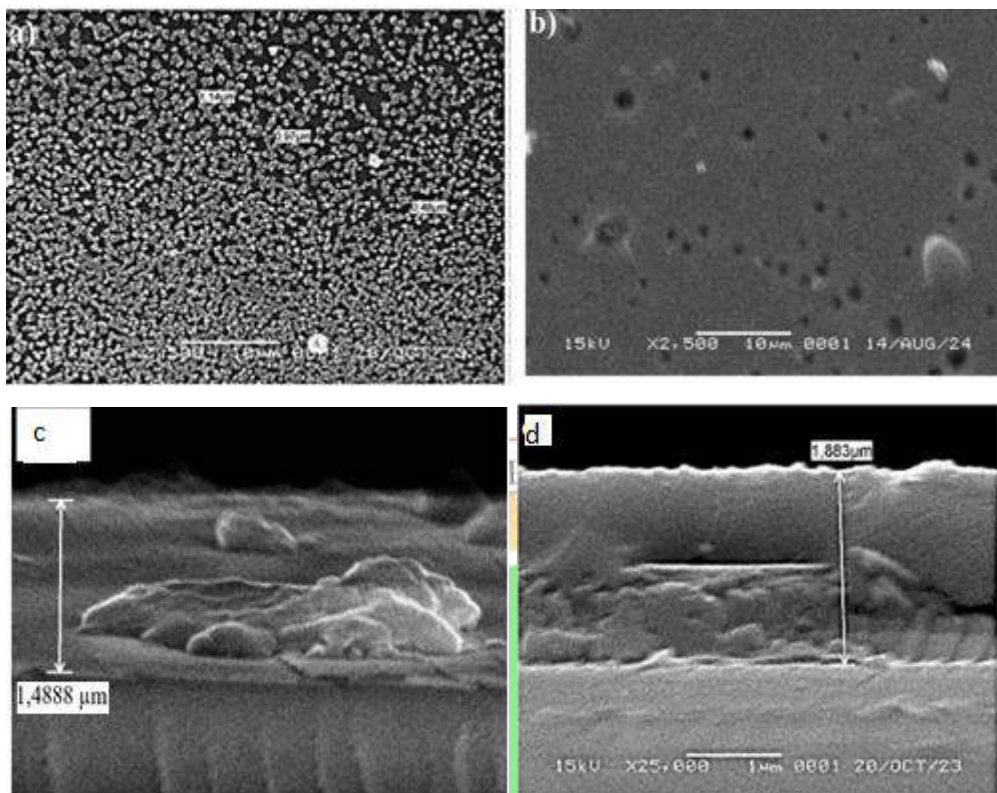
Gambar 18. Spektrum FTIR film tipis CuSnO_3 yang disintesis dengan berbagai pengubah organik (MEA dan DEA) dibandingkan dengan CuSnO_3 tanpa aditif.

Gambar diatas menunjukkan komposisi kimia dan gugus fungsional dari film tipis CuSnO_3 yang disintesis, yang dievaluasi dengan spektroskopi Fourier Transform Infrared (FTIR) dalam rentang $1000\text{--}400\text{ cm}^{-1}$, suatu daerah yang biasanya dikaitkan dengan getaran kisi dalam oksida logam. Semua sampel menunjukkan pita serapan karakteristik di bawah 600 cm^{-1} , yang mengkonfirmasi keberhasilan pembentukan kerangka anorganik CuSnO_3 . Secara khusus, puncak yang diamati dalam rentang 400--

500 cm^{-1} dan 550–600 cm^{-1} masing-masing sesuai dengan mode peregangan ikatan Cu–O dan Sn–O. Intensitas getaran ini sangat dipengaruhi oleh pilihan pengubah organik; sampel yang dimodifikasi MEA menunjukkan puncak serapan paling menonjol pada sekitar 537,09 cm^{-1} dan 491,99 cm^{-1} , menunjukkan bahwa Monoetanolamina (MEA) memfasilitasi jaringan ikatan logam-oksigen yang lebih padat dibandingkan dengan sampel yang dimodifikasi DEA dan tanpa aditif. Meskipun film yang dimodifikasi DEA menunjukkan respons spektral yang lebih datar, konduktivitas listriknya yang lebih unggul—yang diamati dalam pengukuran sebelumnya—menunjukkan bahwa kinerja elektronik dalam film ini mungkin lebih terkait erat dengan celah pita yang lebih sempit (2,1 eV) daripada kepadatan getaran permukaan aktif inframerah. Secara keseluruhan, data FTIR memverifikasi bahwa prekursor berhasil bertransisi menjadi matriks oksida logam yang stabil yang cocok untuk aplikasi fotovoltaik.

Meskipun MEA mendorong kerangka ikatan logam-oksigen yang lebih padat (seperti yang ditunjukkan oleh penyerapan IR yang lebih kuat), film yang dimodifikasi DEA menunjukkan celah pita optik yang lebih sempit dan konduktivitas yang lebih tinggi. Hal ini menunjukkan bahwa konduksi elektronik dalam film amorf ini terutama diatur oleh posisi energi dan lebar ekor pita, yang lebih disukai dimodifikasi oleh DEA, karena struktur molekul DEA yang lebih besar dapat memperkenalkan tingkat ketidakaturan yang lebih tinggi yang menciptakan keadaan donor yang lebih dangkal, sehingga meningkatkan konduktivitas.





Gambar 19. Analisis SEM film tipis CuSnO_3 : (a) Morfologi tampak atas CuSnO_3 + MEA, (b) Morfologi tampak atas CuSnO_3 + DEA, (c) Tampilan penampang menunjukkan ketebalan film tipis CuSnO_3 + MEA, dan (d) Tampilan penampang menunjukkan ketebalan film tipis CuSnO_3 + DEA.

Hasil karakterisasi pada Gambar 29 (a)–(d) menyajikan citra SEM permukaan dan penampang film tipis CuSnO_3 yang disiapkan dengan MEA dan DEA. Mikrograf pandangan atas (a dan b) menunjukkan bahwa kedua film tersebut kontinu, bebas retak, dan tersusun dari struktur granular yang padat, menunjukkan keberhasilan pelapisan celup sol-gel dan kalsinasi. Film yang dimodifikasi MEA (a) menampilkan butiran halus dan equiaxed dengan distribusi ukuran yang sempit dalam kisaran $0,97\text{--}1,14\text{ }\mu\text{m}$, menghasilkan permukaan yang homogen dengan ruang kosong minimal. Sebaliknya, film yang dimodifikasi DEA (b) menunjukkan butiran yang sedikit lebih kasar dan tidak beraturan, bersamaan dengan kekasaran permukaan yang sedikit lebih tinggi. Perbedaan ini disebabkan oleh ukuran molekul yang lebih besar dan kemampuan pengkelat yang lebih kuat dari DEA, yang memengaruhi agregasi gugus prekursor selama penuaan sol dan pemadatan selanjutnya selama perlakuan termal. Analisis

penampang (c dan d) menunjukkan bahwa kedua film tersebut melekat dengan baik pada substrat kaca dan memiliki ketebalan yang seragam di seluruh area yang diimajinasikan. Film yang dimodifikasi MEA (c) memiliki ketebalan terukur sekitar $1,88\ \mu\text{m}$, sedangkan film yang dimodifikasi DEA (d) menghasilkan ketebalan yang sebanding, menunjukkan bahwa kedua aditif menghasilkan film dalam rentang ketebalan yang sama di bawah kondisi pelapisan celup yang identik. Kesamaan ketebalan menunjukkan bahwa perbedaan yang diamati dalam konduktivitas listrik ($36,0\ \text{S/cm}$ untuk DEA vs. $1,74\ \text{S/cm}$ untuk MEA) dan celah pita optik ($2,16\ \text{eV}$ vs. $2,31\ \text{eV}$) terutama diatur oleh struktur atom lokal dan tingkat ketidakteraturan elektronik daripada oleh faktor geometris sederhana. Sifat amorf sepenuhnya dari film MEA (dikonfirmasi oleh XRD) menghasilkan morfologi yang halus dan seragam yang mendukung kerugian hamburan rendah, sementara permukaan film DEA yang sedikit lebih kasar dan nanokristal SnO_2 yang tertanam menciptakan jalur elektronik tambahan yang meningkatkan konduktivitas meskipun terjadi sedikit penurunan transparansi. Secara keseluruhan, analisis SEM mengkonfirmasi bahwa pilihan agen pengkelat memungkinkan penyesuaian fitur mikrostruktur film, memungkinkan pertukaran yang disengaja antara keseragaman morfologi dan kinerja listrik untuk aplikasi sel surya peka pewarna. Optimalisasi lebih lanjut dari konsentrasi aditif dan kecepatan penarikan diharapkan dapat mengontrol ketebalan dan karakteristik butiran secara tepat, sehingga memaksimalkan efisiensi fotovoltaik DSSC berbasis CuSnO_3 (Sanjaya et al., 2026).

Dengan hasil ini, dapat dilihat bahwa lapisan tipis CuSnO_3 masih tebal berdasarkan teori bahwa lapisan tipis $>1\ \mu\text{m}$ (Rizaldi et al., 2021). Semakin tebal lapisan yang dihasilkan, semakin kurang transparan sifatnya. Peningkatan ketebalan film berhubungan langsung dengan penurunan transparansi optik. Seiring dengan menebalnya lapisan yang diendapkan, transmisi cahaya melalui film menurun karena peningkatan penyerapan dan hamburan di dalam material. Efek ini timbul dari panjang jalur optik yang lebih panjang dan peningkatan kepadatan partikel yang diendapkan, yang mendorong interaksi foton-materi. Selain itu, film yang lebih tebal cenderung menunjukkan kekasaran permukaan yang lebih tinggi dan kemungkinan cacat struktural yang lebih besar, yang keduanya berkontribusi pada peningkatan kehilangan

optik. Akibatnya, meskipun lapisan yang lebih tebal dapat meningkatkan keseragaman cakupan dan sifat listrik atau mekanik, lapisan tersebut mengorbankan transparansi, yang menyoroti perlunya optimasi ketebalan film yang cermat tergantung pada aplikasi yang ditargetkan (Aouati et al., 2026; Sabriantje Mulus et al., 2025).

4.5 Aplikasi Lapis tipis CuSnO_3 terhadap Dye-Sensitized Solar Cell (DSSC)

Pengukuran listrik menunjukkan peningkatan konduktivitas yang signifikan baik dengan DEA maupun MEA. Untuk menentukan konduktivitas lapisan tipis CuSnO_3 , resistansi listrik diukur menggunakan sistem probe 4 titik. Lapisan tipis CuSnO_3 , dengan perendaman selama 20 menit, menghasilkan tegangan 14,8 V dan arus 0,63 A, menghasilkan resistansi $277,76 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}$. Nilai resistansi dipengaruhi oleh jumlah ion yang diendapkan pada substrat. Jika nilai resistansi kecil, arus yang mengalir besar karena banyaknya ion yang diendapkan, dan sebaliknya.

Tabel 2. Sifat Kelistrikan Film Tipis CuSnO_3 yang Dimodifikasi

Modifikasi	Konduktivitas (σ)	Resistant (ρ)
CuSnO_3 +MEA	173,58 S/m	$576,1 \times 10^{-6} \Omega \text{ m}$
CuSnO_3 +DEA	3600 S/m	$277,76 \times 10^{-6} \Omega \text{ m}$

Nilai resistansi berbanding lurus dengan tegangan, sehingga resistansi yang lebih tinggi berarti tegangan yang lebih tinggi, dan berbanding terbalik dengan arus, sehingga resistansi yang lebih tinggi berarti arus yang lebih rendah. Nilai resistansi yang lebih tinggi juga meningkatkan resistivitas, karena resistansi dan resistivitas berbanding lurus (Rahman, 2025).

Morfologi partikel yang berbeda yang diamati oleh SEM untuk film yang dimodifikasi MEA dan DEA berkorelasi langsung dengan nilai konduktivitas listriknya. Film MEA menunjukkan butiran halus dan equiaxed dengan diameter rata-rata $\sim 1 \mu\text{m}$ dan permukaan yang sangat kompak dan seragam. Struktur butiran halus ini menghasilkan kepadatan batas butiran (atau daerah antar butiran) yang tinggi yang bertindak sebagai pusat hamburan untuk pembawa muatan, sehingga meningkatkan resistivitas film. Akibatnya, film yang dimodifikasi MEA menghasilkan konduktivitas sedang sebesar $173,58 \text{ Sm}^{-1}$. Sebaliknya, film yang dimodifikasi DEA menunjukkan

butiran yang jauh lebih kasar dan tidak beraturan, disertai dengan permukaan yang lebih kasar. Butiran yang lebih besar mengurangi kepadatan batas butir secara keseluruhan, menurunkan hamburan pembawa muatan dan memfasilitasi transportasi muatan antar partikel yang lebih efisien. Selain itu, analisis XRD mengungkapkan bahwa film DEA mengandung nanokristal SnO_2 tetragonal yang tertanam, yang dapat berfungsi sebagai jalur konduktif tinggi di dalam matriks CuSnO_3 amorf, analog dengan peran menguntungkan dari fase konduktif sekunder dalam konduktor oksida transparan. Efek gabungan ini—butiran yang lebih besar, lebih sedikit batas butir, dan inklusi SnO_2 kristalin—menjelaskan konduktivitas yang jauh lebih tinggi sebesar 3600 Sm^{-1} ($36,0 \text{ Scm}^{-1}$) yang diukur untuk DEA. Tren konduktivitas yang bergantung pada ukuran butir ini konsisten dengan model perangkap batas butir klasik, di mana kristal yang lebih kecil menyebabkan penghalang potensial yang lebih tinggi dan mobilitas pembawa muatan yang berkurang (Seto, 1975; Minami, 2000). Dengan demikian, ukuran partikel yang diperoleh dari SEM tidak hanya mengkonfirmasi perbedaan struktural yang disebabkan oleh agen pengkelat tetapi juga memberikan dasar mikrostruktural yang konsisten untuk perbedaan orde besaran yang diamati dalam kinerja listrik. Optimasi di masa mendatang dapat menargetkan ukuran butir menengah yang menyeimbangkan konduktivitas tinggi dengan permukaan homogen bebas retak yang diperlukan untuk fotoanoda DSSC yang stabil.

Dalam penelitian ini, nilai resistivitas sebesar $277,76 \times 10^{-6} \Omega\text{m}$ diperoleh untuk film yang dimodifikasi DEA, yang sesuai dengan konduktivitas 3600 S/m . Pornsiri dkk. menemukan bahwa konduktivitas listrik meningkat dengan meningkatnya ukuran butir permukaan film tipis yang dihasilkan 22. Di sisi lain, pada sampel film yang dimodifikasi MEA, nilai resistivitas sebesar $576,1 \times 10^{-6} \Omega\text{m}$ diperoleh dengan nilai konduktivitas $173,58 \text{ S/m}$. Hubungan antara konduktivitas dan resistivitas berbanding terbalik; Semakin besar resistivitas, semakin kecil konduktivitas listrik, karena resistivitas, sebagai penghambat yang jelas, adalah kebalikan dari konduktivitas sebagai penghantar arus listrik 23.

Hasil pengujian lapis tipis CuSnO_3 yang disintesis dengan metode *dip coating* menggunakan modifikasi aditif monoetanolamina (MEA) sebagai elektroda

kerja pada Dye-Sensitized Solar Cell (DSSC) menunjukkan kinerja yang bervariasi tergantung pada jenis zat warna (dye) yang digunakan. Lapisan tipis CuSnO_3 dengan modifikasi DEA memiliki konduktivitas listrik sebesar 3600 S/m dan resistivitas $277,76 \times 10^{-6} \Omega\text{m}$, yang merupakan nilai cukup baik untuk material semikonduktor oksida. Tiga sumber zat warna alami yang diuji adalah kuersetin (*quercetin*), asam tanat, dan ekstrak ubi ungu. Dari ketiganya, DSSC dengan zat warna kuersetin menghasilkan kinerja terbaik, dengan tegangan maksimum (V_{max}) sebesar 0,33 V, arus maksimum (I_{max}) $1,29 \times 10^{-3}$ mA, daya maksimum (P_{max}) $0,43 \times 10^{-3}$ mW, dan efisiensi konversi daya sebesar 0,26%. Sementara itu, zat warna asam tanat memberikan efisiensi 0,20% dengan V_{max} 0,29 V dan I_{max} $1,13 \times 10^{-3}$ mA, sedangkan ubi ungu menghasilkan efisiensi paling rendah yaitu 0,17% dengan V_{max} 0,27 V dan I_{max} $1,04 \times 10^{-3}$ mA (Li et al., 2026; Sharipbaev et al., 2026).

Tabel 3. Kinerja DSSC dari lapisan tipis CuSnO_3 yang ditambahkan DEA

Modifikasi	Konduktivitas Listrik (σ)	Resistivitas Listrik (ρ)	Zat Warna	V_{max} (V)	I_{max} (mA)	P_{max} (mW)	Efisiensi (%)
CuSnO_3 + DEA	173,58 S/m	$576,1 \times 10^{-6} \Omega\text{m}$	Quersetin	0,33	$1,29 \times 10^{-3}$	$0,43 \times 10^{-3}$	0,26 %
			Asam Tanat	0,29	$1,13 \times 10^{-3}$	$0,33 \times 10^{-3}$	0,20 %
			Ubi Ungu	0,27	$1,04 \times 10^{-3}$	$0,28 \times 10^{-3}$	0,17 %

Perbedaan kinerja ini terutama disebabkan oleh karakteristik serapan cahaya dan kemampuan injeksi elektron dari masing-masing zat warna ke dalam pita konduksi CuSnO_3 . Kuersetin, sebagai flavonoid dengan gugus hidroksil (-OH) yang mampu berikatan kuat dengan permukaan oksida logam, memiliki spektrum serapan yang lebih luas dan efisiensi transfer elektron yang lebih baik dibandingkan asam tanat atau antosianin dari ubi ungu. Nilai efisiensi yang masih relatif rendah (maksimal 0,26%)

secara umum disebabkan oleh beberapa faktor, antara lain: (1) celah pita CuSnO_3 yang masih cukup besar (sekitar 2,3 eV setelah modifikasi DEA) sehingga tidak mengoptimalkan serapan cahaya tampak, (2) kemungkinan rekombinasi elektron yang tinggi pada antarmuka CuSnO_3 /dye/elektrolit, dan (3) resistensi internal dari lapisan tipis yang masih cukup signifikan. Namun demikian, hasil ini menunjukkan bahwa lapisan tipis CuSnO_3 dengan modifikasi DEA berpotensi untuk dikembangkan lebih lanjut sebagai material alternatif pengganti TiO_2 pada DSSC, terutama karena konduktivitasnya yang lebih baik. Upaya peningkatan efisiensi dapat dilakukan dengan optimasi ketebalan film, modifikasi permukaan CuSnO_3 , atau penggunaan zat warna sintetis dengan spektrum serapan yang lebih lebar (Görgün & Arapoğlu, 2026).

