



TESIS - MM2341

**PENGARUH TEMPERATUR HIDROTERMAL DAN  
WAKTU ULTRASONIKASI TERHADAP NILAI  
KAPASITANSI ELEKTRODA ELECTRIC DOUBLE  
LAYER CAPACITOR (EDLC) DARI MATERIAL  
GRAFENA**

HANIFFUDIN NURDIANSAH  
NRP. 2712 201 904

Dosen Pembimbing  
Diah Susanti, ST., MT., Ph.D

PROGRAM MAGISTER  
BIDANG KEAHLIAN MATERIAL INOVATIF  
JURUSAN TEKNIK MATERIAL DAN METALURGI  
FAKULTAS TEKNOLOGI INDUSTRI  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2014

*Halaman ini sengaja dikosongkan*



TESIS - MM2341

**EFFECT OF HYDROTHERMAL TEMPERATURE  
AND ULTRASONICATION TIME TOWARD THE  
CAPACITANCE VALUE OF ELECTRIC DOUBLE  
LAYER CAPACITOR (EDLC) ELECTRODE FROM  
GRAPHENE MATERIAL**

HANIFFUDIN NURDIANSAH  
NRP. 2712 201 904

Advisor :  
Diah Susanti, ST., MT., Ph.D

MASTER DEGREE PROGRAM  
EXPERTISE AREA OF INNOVATIVE MATERIALS  
DEPARTMENT OF MATERIALS AND METALLURGICAL ENGINEERING  
FACULTY OF INDUSTRIAL TECHNOLOGY  
SEPULUH NOPEMBER INSTITUTE OF TECHNOLOGY  
SURABAYA  
2014

*Halaman ini sengaja dikosongkan*

# Pengaruh Temperatur Hidrotermal dan Waktu Ultrasonikasi Terhadap Nilai Kapasitansi Elektroda Electric Double Layer Capacitor (EDLC) dari Material Grafena

## LAPORAN TESIS

Diajukan untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh Gelar Magister Teknik (M.T.) pada Bidang Studi Material Inovatif Program Studi Magister Teknik Material dan Metalurgi

FTI-ITS

Oleh:

Haniffudin Nurdiansah

NRP : 2712 2019 04

Telah disidangkan pada:

Hari : Jum'at

Tanggal : 18 Juli 2014

Tempat : Ruang MTL 345 Jurusan Teknik Material dan Metalurgi FTI-ITS

Mengetahui/menyetujui:

Dosen Penguji

Dosen Pembimbing

1. Dr. Hosta Ardhyanta, S.T., M.Sc  
NIP. 198012072005011004

Diah Susanti, S.T., M.T., Ph.D.  
NIP. 197701162003122001

2. Lukman Noerochim, S.T., M.Sc.Eng., Ph.D.  
NIP. 197703132003121001

3. Dr. Widyastuti, S.Si, M.Si.  
NIP. 197906202006042001

Direktur Program Pascasarjana

Prof.Dr.Ir. Adi Soeprijanto, MT.

NIP. 196404051990021001

# **PENGARUH TEMPERATUR HIDROTERMAL DAN WAKTU ULTRASONIKASI TERHADAP NILAI KAPASITANSI ELEKTRODA ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR (EDLC) DARI MATERIAL GRAFENA**

Nama Mahasiswa : Haniffudin Nurdiansah  
NRP : 2712 201 904  
Dosen Pembimbing : Diah Susanti, ST., MT., Ph.D

## **ABSTRAK**

Dewasa ini peningkatan kebutuhan akan penggunaan energi semakin meningkat. EDLC banyak sekali digunakan dalam aplikasi penangkap dan penyimpan energi, dimana dipercaya menjadi sumber energi yang bersih dan hampir tidak menghasilkan limbah. Belakangan ini, grafena telah banyak di eksplorasi sebagai material untuk EDLC

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mensintesis grafena dengan menggunakan waktu ultrasonikasi yang berbeda (1.5, 2, dan 2.5 jam) serta temperatur hidrotermal yang berbeda (160, 180, dan 200<sup>0</sup>C) dengan menggunakan metode Hummer dan reduksi Zn.. Material yang disintesis ini di karakterisasi dengan menggunakan XRD, SEM, FTIR, BET, EDC, Pengujian FPP, dan Raman Spectroscopy. Untuk performa elektrokimia, material diuji dengan menggunakan CV, EIS, dan uji Charge Discharge.

Dari hasil XRD, FTIR, EDS, Raman, dan SEM menunjukkan bahwa material yang disintesis adalah grafena. Hasil BET menunjukkan luas permukaan terbesar grafena adalah sekitar 170.211 m<sup>2</sup>/gr, dengan diameter pori 3.418 nm. Nilai konduktivitas listrik grafena sebesar 0.6097 S/cm, diukur dengan metode Four Point Probe.

Lebih jauh lagi, dilakukan pengujian elektrokimia. Dari hasil CV menunjukkan bentuk yang *rectangular* dan mempunyai kapasitansi mencapai 350.37 F/gr pada *scan rate* 2mV/s pada larutan Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1M. Dari pengujian Charge discharge diperoleh nilai kapasitansi mencapai 368 F/gr pada *current density* 2A/gr. Uji cycle number grafena menunjukkan kapasitansi menurun hanya 6% setelah 400 siklus. Uji EIS menunjukkan pada daerah frekuensi rendah, kurva hampir tegak lurus dengan sumbu y, yang mengindikasikan bahwa grafena mempunyai sifat kapasitansi yang baik. Dari hasil penelitian didapatkan variasi temperatur hidrotermal 160<sup>0</sup>C dan waktu ultrasonikasi 1.5 jam memberikan performa elektrokimia yang terbaik.

Peningkatan temperatur hidrotermal dan waktu ultrasonikasi mengakibatkan banyak gugus fungsi oksigen yang hilang, sehingga kapasitansi dari grafena menurun. Hal ini dikarenakan gugus fungsi tersebut berkontribusi terhadap nilai kapasitansi dari EDLC.

**Kata Kunci** : Grafena, Superkapasitor, EDLC, Hidrotermal, Ultrasonikasi

*Halaman ini sengaja dikosongkan*

# **THE EFFECTS OF HYDROTHERMAL TEMPERATURE AND ULTRASONICATION TIME TOWARD THE CAPACITANCE OF ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR (EDLC) ELECTRODE FROM GRAPHENE MATERIAL**

Name : Haniffudin Nurdiansah  
NRP : 2712 201 904  
Advisor : Diah Susanti, ST., MT., Ph.D

## **ABSTRACT**

Today's the level of demand for energy is increasing. Electric double-layer capacitors (EDLCs), are used in a wide range of energy capture and storage applications, which are believed to provide clean energy with almost zero waste emission. In recent years, graphene has been extensively explored as an electrode material for EDLC.

The objective of this research is to synthesize graphene using different ultrasonication time (1.5, 2, and 2.5 hour) and different hydrothermal temperature (160<sup>0</sup>C, 180<sup>0</sup>C and 200<sup>0</sup>C) by using Hummer Method and reduction by Zn. These synthesized materials have been characterized by XRD, SEM, FTIR, BET, EDS, Conductivity Testing, and Raman Spectroscopy. For electrochemical performance these material furthermore investigated by Cyclic Voltammetry (CV) Testing, Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS) Testing, and Galvanostatic Charge-Discharge Testing.

From the XRD , FTIR, EDS, Raman and SEM results shows that synthesize material was graphene. From BET Testing shows that the biggest value of surface area was 170.211 m<sup>2</sup>/g with pore diameter around 3.418 nm. The value of electrical conductivity ~0.6097 S/cm, measured by four point probe method.

Furthermore, the electrochemical performance investigated. The CV Testing shows a rectangular shape and a high capacitance up to 350.37 F/gr at scan rate 2mV/s in the Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> solution 1M. Galvanostatic charge discharge shows the capacitance 368 F/gr at the current density 2 A/g. Cycle number Testing of graphene show the decreasing of capacitance only 6% after 400 times cycling. EIS testing shows the low frequency region, the curve is parallel to the ordinate, indicating the capacitive behaviour of graphene. The result shows that at hydrothermal temperature 160<sup>0</sup>C and ultrasonication time 1.5 hour, graphene exhibit the best performance in electrochemical testing. Increasing of hydrothermal temperature or ultrasonication time caused so much fuctional group of oxygen was dissappeared, which is reducing the capacitance of graphene, because those functional group contributing on adding the capacitance of EDLC.

Keywords: Graphene, EDLC, Hydrothermal, Ultrasonication,

*Halaman ini sengaja dikosongkan*



## **KATA PENGANTAR**

Alhamdulillah hirobbil alamien...

Atas limpahan rahmat dan karunia Allah SWT, sehingga penulis dapat menyelesaikan Tesis serta menyusun Laporan Tesis yang berjudul : **Pengaruh Temperatur Hidrotermal dan Waktu Ultrasonikasi Terhadap Nilai Kapasitansi Elektroda Electric Double Layer Capacitor (EDLC) dari Material Grafena.**

Penulis menyadari bahwa dalam penulisan laporan Tesis ini banyak melibatkan banyak pihak yang sangat membantu. Oleh karena itu, pada kesempatan ini penulis mengucapkan banyak terima kasih kepada :

1. Allah SWT atas rahmat, hidayah dan berbagai kemudahan dalam penyelesaian tugas akhir ini.
2. Ibu dan Bapak serta keluarga atas segala doa, dukungan dan pengertian yang telah diberikan selama ini.
3. Dosen Pembimbing Tesis Ibu Diah Susanti, ST., MT., P.hD atas waktu, kritik, saran dan kesabarannya dalam memotivasi dan membimbing penulis.
4. Bapak Dr Eng Hosta Ardhyanta, ST, M.Sc selaku Ketua Program Studi S2 Teknik Material dan Metalurgi ITS.
5. Bapak Sungging Pintowantoro, ST., MT., P.hD selaku Ketua Jurusan Teknik Material dan Metalurgi ITS.
6. Bapak Prof Dah Shyang Tsai dari NTUST Taiwan dan seluruh member Lab CVD Research yang telah membantu penulis dalam pengujian performa elektroda EDLC.
7. Pihak Pasca Sarjana ITS yang telah memberikan Beasiswa Fast Track kepada penulis selama 2 tahun, yang membuat penulis mampu menempuh jenjang Magister dengan cuma-cuma.
8. Teman-teman S2, MT 11, Member Lab Kimia Material, DDIP ITS 2013, yang telah menemani penulis dan menjadi teman perjuangan penulis.
9. Seluruh dosen dan karyawan Jurusan Teknik Material dan Metalurgi FTI-ITS.



## 10. Pihak Yayasan Tunas Unggul Bangsa IKA ITS

Penyusun menyadari adanya keterbatasan di dalam penyusunan laporan ini. Besar harapan penyusun akan saran, dan kritik yang sifatnya membangun. Selanjutnya semoga tulisan ini dapat selalu bermanfaat. Amin.

Surabaya, Juli 2014

Penyusun



## DAFTAR ISI

LEMBAR JUDUL .....	i
LEMBAR PENGESAHAN.....	v
ABSTRAK .....	vii
KATA PENGANTAR.....	xi
DAFTAR ISI .....	xiii
DAFTAR GAMBAR.....	xvii
DAFTAR TABEL.....	xxv
<b>BAB I PENDAHULUAN</b>	
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Perumusan Masalah .....	2
1.3 Batasan Masalah .....	3
1.4 Tujuan Penelitian .....	3
1.5 Manfaat Penelitian .....	3
<b>BAB II TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI</b>	
2.1 Grafena.....	5
2.2 Metode Pembuatan Grafena	8
2.2.1 Pengelupasan.....	8
2.2.2 Penumbuhan dari silikon Karbida.....	9
2.2.3 Penumbuhan dengan Chemical Vapor Deposition (CVD) pada substrat.....	10
2.2.4 Metode Oksidasi Hummer dan reduksi dengan serbuk Zn.....	12
2.3 Karakterisasi Grafena.....	19
2.3.a Pengujian XRD.....	19
2.3.b Pengujian SEM.....	19
2.3.c Pengujian Raman.....	20
2.3.d Pengujian FTIR.....	21
2.4 Reaksi Hidrotermal.....	21



2.5 Kapasitor.....	23
2.6 EDLC (Electric Double Layer Capacitor ).....	24
2.7 Superkapasitor Grafena.....	29
2.8 Kajian Penelitian Sebelumnya.....	31

### BAB III METODE PENELITIAN

3.1 Bahan.....	33
3.2 Peralatan .....	33
3.3 Flow Chart Penelitian.....	35
3.3.1 Flow Chart Pembuatan Grafit Oksida.....	35
3.3.2 Flow Chart Pembuatan Grafena.....	36
3.3.3 Flow Chart Pembuatan Elektroda EDLC dan Pengujian.....	37
3.4 Sintesis Grafena.....	38
3.4.1 Sintesis Grafit Oksida.....	38
3.4.2 Sintesis Grafena.....	41
3.5 Pengujian.....	44
3.5.1 Scanning Electron Microscope (SEM) dan EDS.....	44
3.5.2 XRD (X-Ray Diffraction).....	45
3.5.3 Pengujian BET.....	46
3.5.4 Pengujian Fourier Transform Infrared Spectroscopy.....	47
3.5.5 Pengujian Four Point Probe (FPP).....	48
3.5.6 Pengujian Raman Spectroscopy.....	50
3.5.7 Pengujian Cyclic Voltammetry.....	51
3.5.8 Pengujian Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS)	53
3.5.9 Pengujian Charge-Discharge.....	56
3.6 Rancangan Penelitian.....	58

### BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Hasil Pengujian XRD.....	59
4.2 Hasil Pengujian SEM dan EDS.....	63



4.3 Hasil Pengujian FTIR.....	70
4.4 Hasil Pengujian BET.....	73
4.5 Hasil Pengujian Konduktivitas Listrik.....	75
4.6 Hasil Pengujian Raman Spectroscopy .....	76
4.7 Hasil Pengujian Cyclic Voltammetry.....	81
4.7.1 Larutan $K_2SO_4$ 1M.....	81
4.7.1.a Potential Window 0-08 V.....	82
4.7.1 b Potential Window -0.2 - -0.7 V.....	86
4.7.2 Larutan $Li_2SO_4$ 1M.....	89
4.7.2.a Potential Window 0-08 V.....	89
4.7.2.b Potential Window -0.2 - -0.7 V.....	93
4.7.3 Larutan $Na_2SO_4$ 1M.....	97
4.7.2.a Potential Window 0-08 V.....	97
4.7.2.b Potential Window -0.2 - -0.7 V.....	101
4.8 Hasil Pengujian Charge Discharge.....	107
4.9 Hasil Pengujian Cycleability.....	112
4.10 Hasil Pengujian EIS.....	114
BAB V KESIMPULAN.....	121
DAFTAR PUSTAKA.....	123
LAMPIRAN.....	129
BIODATA PENULIS.....	



*Halaman ini sengaja dikosongkan*



## DAFTAR GAMBAR

	Halaman
Gambar 2.1 Hubungan dispersi grafena .....	6
Gambar 2.2 Beberapa contoh Grafena Nanoribbon. (a) Tepi zigzag (b) Tepi armchair. (c) GNR dengan sudut kiral $13,9^{\circ}$ . .....	7
Gambar 2.3 Hasil pemodelan band gap GNR satu lapis dengan bentuk tepi armchair dan zigzag .....	7
Gambar 2.4 Hasil TEM dari grafena yang ditumbuhkan pada SiC dengan metode vakum tingkat rendah.....	10
Gambar 2.5 Contoh grafena yang ditumbuhkan pada Cu.....	10
Gambar 2.6 Hasil penumbuhan berpola pada nikel.....	11
Gambar 2.7 Pola XRD grafit grafit oksida dan grafena menurut Feng Chang Chia, dkk (2013).....	19
Gambar 2.8 Bentuk Morfologi dari permukaan grafena pada perbesaran rendah sampai tinggi (a-d) menurut Tran Van Khai dkk (2013).....	20
Gambar 2.9 Pola Raman dari Grafit, Grafit Oksida, dan Grafena menurut Feng Chang Chia (2013).....	20
Gambar 2.10 Pola FTIR dari grafit oksida (a) grafena yang disintesis dengan menggunakan metode reduksi termal (b) grafena yang disintesis dengan menggunakan metode reduksi kimia (c) menurut Seung Hun Huh, dkk (2010).....	21
Gambar 2.11 Skema autoclave untuk reaksi hidrotermal.....	22
Gambar 2.12 Plot Ragone untuk berbagai alat penyimpan dan pengkonversi energi (Extremetech, 2014).....	23
Gambar 2.13 Skema EDLC (Murata co Ltd, 2011).....	24
Gambar 2.14 Skema proses <i>charging and discharging</i> pada EDLC (Murata co, Ltd, 2011).....	25
Gambar 2.15 Berbagai jenis EDLC yang beredar di pasaran a.	



	Rubycon b. Nesscap c. Murata d. Dynacap (google.com/images).....	27
Gambar 2.16	Berbagai aplikasi EDLC dalam komponen elektronik (a) <i>LED flashlight</i> (b) <i>Audio circuit</i> (c) Power Amplifier (d) Meteran Listrik (e) UPS (f) SSD (google.com/images).....	28
Gambar 2.17	Tipe kurva CV dari berbagai jenis superkapasitor (Elzbieta Frackowiak, 2001).....	29
Gambar 3.1	Flow Chart pembuatan grafit oksida.....	35
Gambar 3.2	Flow Chart pembuatan grafena.....	36
Gambar 3.3	Flow Chart pengujian grafena.....	37
Gambar 3.4	Skema <i>Set up Ice Bath</i> .....	38
Gambar 3.5	Keadaan larutan saat penambahan $\text{KMnO}_4$ dan $\text{NaNO}_3$ .....	39
Gambar 3.6	Perubahan warna larutan saat penambahan $\text{H}_2\text{O}_2$ ...	39
Gambar 3.7	Uji $\text{BaCl}_2$ untuk mengetahui ada sisa $\text{SO}_4^{2-}$ (endapan putih) atau tidak (bening).....	40
Gambar 3.8	Warna dari endapan yang siap di <i>drying</i> .....	40
Gambar 3.9	Lembaran grafit oksida setelah proses <i>drying</i> .....	41
Gambar 3.10	Mekanisme terbentuknya grafena oksida dari grafit oksida (Karthikeyan Krishnamoorthy, 2013)	41
Gambar 3.11	Skema Reaksi Reduksi grafena oksida menjadi grafena (Zhi-Gang Geng, 2012).....	42
Gambar 3.12	Warna endapan hasil proses Reduksi dengan serbuk Zn.....	43
Gambar 3.13	Proses Hidrotermal di dalam <i>autoclave</i> yang dipanaskan pada <i>muffle furnace</i> .....	43
Gambar 3.14	Serbuk (kiri) dan lembaran (kanan) grafena setelah proses hidrotermal .....	44
Gambar 3.15	<i>Scanning Electron Microscope</i> (SEM).....	45
Gambar 3.16	Skema kerja XRD.....	45



Gambar 3.17	Mesin XRD PANalytical.....	46
Gambar 3.18	Mesin BET <i>Quantrachrome AsiQwin</i> .....	47
Gambar 3.19	Alat Uji FTIR.....	47
Gambar 3.20	Skema Prinsip Kerja FTIR (Steven Voughan, 2009).....	48
Gambar 3.21	Four Point Probe Test .....	49
Gambar 3.22	Geometrical Correction Factor (Smits F.M, 1958).....	50
Gambar 3.23	Mesin Raman <i>Spectroscopy</i> .....	51
Gambar 3.24	Alat Jiehan 5000 E lectrochemical Workstation untuk pengujian CV.....	51
Gambar 3.25	Skema set-up 3 elektroda.....	52
Gambar 3.26	Grafik hasil pengujian EIS: (a) plot Nyquist, (b) plot Bode[Z] dan (c) plot Bode [C].....	54
Gambar 3.27	Aturan Nyquist.....	55
Gambar 3.28	Mesin Uji EIS.....	55
Gambar 3.29	Contoh grafik hasil pengujian charge discharge (Yi Huang, 2012).....	56
Gambar 3.30	Bentuk spesimen pengujian CV, EIS, dan Charge Discharge. Tanda persegi hitam menunjukkan area yang di <i>press</i> (1 cm <sup>2</sup> ).....	57
Gambar 4.1	Pola XRD dari grafit, grafit oksida, dan grafena....	59
Gambar 4.2	Pola XRD dari grafena pada temperatur hidrotermal a)160 <sup>0</sup> C, b)180 <sup>0</sup> C, c) 200 <sup>0</sup> C dengan berbagai variasi waktu ultrasonikasi, 1.5, 2, dan 2.5 jam.....	61
Gambar 4.3	Pola intensitas peak (002) dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal a) 160 <sup>0</sup> C, b) 180 <sup>0</sup> C, c) 200 <sup>0</sup> C dan berbagai variasi waktu ultrasonikasi 1.5, 2, dan 2.5 jam.....	63



Gambar 4.4	Struktur Morfologi grafit (A,B) dan grafit oksida (C,D).....	63
Gambar 4.5	Bentuk morfologi grafena pada waktu ultrasonikasi 1.5 jam dengan variasi temperatur hidrotermal 160 <sup>0</sup> C (A-B), 180 <sup>0</sup> C (C-D), dan 200 <sup>0</sup> C (E-F).....	64
Gambar 4.6	Bentuk morfologi grafena pada waktu ultrasonikasi 2 jam dengan variasi temperatur hidrotermal 160 <sup>0</sup> C (A-B), 180 <sup>0</sup> C (C-D), dan 200 <sup>0</sup> C (E-F).....	65
Gambar 4.7	Bentuk morfologi grafena pada waktu ultrasonikasi 2.5 jam dengan variasi temperatur hidrotermal 160 <sup>0</sup> C (A-B), 180 <sup>0</sup> C (C-D), dan 200 <sup>0</sup> C (E-F).....	66
Gambar 4.8	Morfologi Nickel Foam (A-B) dan elektroda EDLC grafena-Nickel Foam (C-F).....	67
Gambar 4.9	Hasil Kurva EDS untuk grafit oksida.....	68
Gambar 4.10	Hasil Kurva EDS untuk grafena.....	69
Gambar 4.11	Hasil kurva EDS untuk grafena-Nickel Foam.....	70
Gambar 4.12	Pola FTIR grafit oksida dan grafena.....	71
Gambar 4.13	Pola FTIR dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal a) 160 <sup>0</sup> C, b) 180 <sup>0</sup> C, c) 200 <sup>0</sup> C dan berbagai variasi waktu ultrasonikasi 1.5, 2, dan 2.5 jam.....	72
Gambar 4.14	Grafik penyerapan gas N <sub>2</sub> pada grafena.....	73
Gambar 4.15	Distribusi pori pada grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal.....	74
Gambar 4.16	Pengaruh waktu ultrasonikasi (a) dan temperatur hidrotermal (b) terhadap nilai konduktivitas grafena.....	76
Gambar 4.17	Pola Raman Spectroscopy dari grafit, grafit oksida	



	dan grafena, beserta nilai $I_D/I_G$ nya.....	76
Gambar 4.18	Pola Raman Spectroscopy dan nilai $I_D/I_G$ dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal a) $160^{\circ}\text{C}$ , b) $180^{\circ}\text{C}$ , c) $200^{\circ}\text{C}$ dan berbagai variasi waktu ultrasonikasi 1.5, 2, dan 2.5 jam.....	78
Gambar 4.19	Fitting Curve untuk mencari nilai $I_D/I_G$ .....	79
Gambar 4.20	Pola Raman dari 9 s ampel grafena berdasarkan kenaikan waktu ultrasonikasi (a) dan kenaikan temperatur hidrotermal (b).....	81
Gambar 4.21	Bentuk kurva <i>Cyclic Voltammetry</i> a) Nickel Foam dan b) grafena oksida pada larutan $\text{K}_2\text{SO}_4$ 1M.....	82
Gambar 4.22	Bentuk Kurva CV untuk 9 s ampel grafena pada larutan $\text{K}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)....	84
Gambar 4.23	Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{K}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V.....	85
Gambar 4.24	Bentuk kurva <i>Cyclic Voltammetry</i> dan nilai kapasitansi dari grafena oksida pada larutan $\text{K}_2\text{SO}_4$ 1M pada rentang potential window -0.2 - -0.7 V....	86
Gambar 4.25	Bentuk Kurva CV untuk 9 s ampel grafena pada larutan $\text{K}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 – -0.7 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5).....	88
Gambar 4.26	Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{K}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 – -0.7 V.....	89
Gambar 4.27	Bentuk kurva <i>Cyclic Voltammetry</i> a) Nickel Foam	



	dan b) grafena oksida pada larutan $\text{Li}_2\text{SO}_4$ 1M.....	90
Gambar 4.28	Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)....	92
Gambar 4.29	Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V .....	93
Gambar 4.30	Bentuk kurva <i>Cyclic Voltammetry</i> dan nilai kapasitansi dari grafena oksida pada larutan $\text{Li}_2\text{SO}_4$ 1M pada rentang potential window -0.2 - -0.7 V.....	94
Gambar 4.31	Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5).....	96
Gambar 4.32	Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 – -0.7 V .....	97
Gambar 4.33	Bentuk kurva <i>Cyclic Voltammetry</i> a) Nickel Foam dan b) grafena oksida pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1M.....	98
Gambar 4.34	Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5).....	100
Gambar 4.35	Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V.....	101
Gambar 4.36	Bentuk kurva <i>Cyclic Voltammetry</i> grafena oksida	



	pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1M pada rentang potential window -0.2 - -0.7 V.....	101
Gambar 4.37	Bentuk Kurva CV untuk 9 s ampel grafena pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5).....	104
Gambar 4.38	Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V.....	104
Gambar 4.39	Bentuk kurva CV untuk sampel $160^\circ\text{C}$ ultrasonikasi 1.5 jam dalam larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1 M pada rentang potential window 0 - -0.5 V.....	106
Gambar 4.40	Bentuk kurva CV untuk sampel a) Karbon Aktif b) Komposit Karbon Aktif – Grafena.....	106
Gambar 4.41	Bentuk Kurva Charge Discharge dan nilai kapasitansi pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window (-0.2) – (-0.7) V a (grafena oksida) b (160, 1.5) c (160, 2) d (160, 2.5) e (180,1.5) f (180, 2) g (180, 2.5) h (200, 1.5) i (200, 2) dan j (200, 2.5).....	111
Gambar 4.42	Hubungan antara Kapasitansi dan <i>Current Density</i> untuk 9 s ampel grafena pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V.....	112
Gambar 4.43	Hasil pengujian Cycle Number . Inset : CV sebelum dan sesudah 1000 <i>cycling</i> .....	113
Gambar 4.44	Bentuk Plot Nyquist (kiri) dan Plot Bode IZI (kanan ) pada larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1M potential window (-0.2) – (-0.7) V a (grafena oksida) b (160, 1.5) c (160, 2) d (160, 2.5) e (180,1.5) f (180, 2) g (180, 2.5) h (200, 1.5) i (200, 2) dan j (200, 2.5)....	117
Gambar 4.45	Perbandingan Plot Nyquist grafena oksida dan	



	grafena.....	118
Gambar 4.46	Perbandingan bentuk Plot Nyquist untuk 9 sampel grafena.....	118
Gambar 4.47	Perbandingan kurva Bode IZI dari 9 s ampel grafena.....	119



## DAFTAR TABEL

	Halaman
Tabel 2.1 Perbandingan sifat antara Grafena dan keluarga Karbon yang lainnya	5
Tabel 2.2 Perbandingan Metode Oksidasi Grafit menjadi GO	13
Tabel 2.3 Perbandingan Efek Reduksi GO dengan berbagai Metode	15
Tabel 2.4 Perbandingan waktu reduksi dari berbagai jenis metode reduksi	17
Tabel 2.5 Nilai kapasitansi dari superkapasitor grafena dan campuran grafena dengan material lain	31
Tabel 3.1 Rancangan Penelitian	58
Tabel 4.1 Perhitungan jarak antar layer pada grafit, grafit oksida, dan grafena	60
Tabel 4.2 Posisi $2\theta$ dari berbagai macam variasi grafena	62
Tabel 4.3 Komposisi unsur penyusun grafit oksida	68
Tabel 4.4 Komposisi unsur penyusun grafena	69
Tabel 4.5 Komposisi unsur penyusun grafena-Nickel Foam	70
Tabel 4.6 Jenis gugus ikatan pada grafit oksida	71
Tabel 4.7 Luas permukaan aktif dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal	73
Tabel 4.8 Hasil pengujian konduktivitas listrik grafena	75
Tabel 4.9 Parameter <i>Curve Fitting</i> dengan metode Lorentzian shape	80
Tabel 4.10 Kapasitansi dari grafena oksida dalam $K_2SO_4$ 1M 0-0.8 Volt pada berbagai <i>scan rate</i>	83
Tabel 4.11 Kapasitansi dari grafena oksida dalam $K_2SO_4$ 1M 0-0.8 Volt pada berbagai <i>scan</i>	86
Tabel 4.12 Kapasitansi dari grafena oksida dalam $Li_2SO_4$ 1M 0-0.8 Volt pada berbagai <i>scan rate</i>	90



4.13	Kapasitansi dari grafena oksida dalam $\text{Li}_2\text{SO}_4$ 1M -0.2 - -0.7 Volt pada berbagai <i>scan rate</i>	94
4.14	Kapasitansi dari grafena oksida dalam $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1M 0-0.8 Volt pada berbagai <i>scan rate</i>	98
4.15	Kapasitansi dari grafena oksida dalam $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1M -0.2 - -0.7 Volt pada berbagai <i>scan rate</i>	102
4.16	Kapasitansi dari grafena oksida dalam $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1M 0 - -0.5 Volt pada berbagai <i>scan rate</i>	105
4.17	Kapasitansi dari Karbon Aktif dan Komposit Karbon Aktif - Grafena dalam $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1M -0.2 - -0.7 Volt pada berbagai <i>scan rate</i>	107
4.18	Nilai IZI untuk semua sampel grafena	119



## BAB I

### PENDAHULUAN

#### 1.1. Latar Belakang Masalah

Dewasa ini peningkatan kebutuhan akan penggunaan energi semakin meningkat. Penelitian di bidang pengembangan media penyimpan energi juga sangat berkembang luas. Banyak sekali media penyimpan energi yang telah ada. Misalnya, baterai dan superkapasitor. Selama ini baterai dianggap mempunyai kelemahan karena proses pengisiannya yang lama, dan juga terjadinya *voltage drop* pada baterai juga menurunkan performa dari baterai. Adanya superkapasitor yang dipasang paralel pada baterai menyebabkan peningkatan performa dari baterai, dan juga meningkatkan umur pakai dari baterai.

Superkapasitor merupakan terobosan baru di dunia piranti penyimpan energi yang memiliki rapat daya yang besar, kapasitas penyimpanan muatan yang sangat besar, proses pengisian-pengosongan muatan yang cepat dan tahan lama jika dibandingkan dengan kapasitor biasa. Keunggulan tersebut menyebabkan superkapasitor telah digunakan secara luas dalam berbagai bidang seperti bidang teknologi digital, mesin listrik dan peralatan militer dan luar angkasa. Selama ini penelitian mengenai material yang digunakan pada Superkapasitor sangat berkembang luas. Berbagai contoh material yang digunakan sebagai pengisi elektroda adalah karbon aktif, metal oksida, dan lain-lain.

Superkapasitor yang menggunakan karbon aktif sebagai elektrodanya sering dinamakan dengan *Electric Double Layer Capacitor* (EDLC). EDLC telah dipikirkan sebagai sumber tenaga daya tinggi yang memberikan harapan untuk peralatan komunikasi digital dan kendaraan listrik. Karena keunggulan yang dimiliki EDLC adalah kemampuannya lebih cepat dan waktu pakai yang lebih lama jika dibandingkan baterai konvensional (Aripin, 2007).

Salah satu material yang sangat potensial di aplikasikan menjadi bahan elektroda superkapasitor adalah grafena. Grafena adalah alotrofi karbon yang berbentuk lembaran.

Sintesis grafena dapat dilakukan dengan berbagai macam metode. Ada yang pengelupasan dari grafit, CVD, elektrodposisi, dan metode Hummer yang



dilanjutkan dengan proses reduksi. Metode Hummer mempunyai kelebihan, selain dari peralatan yang dibutuhkan cukup sederhana, grafena yang dihasilkan juga dalam kuantitas yang lebih banyak apabila dibandingkan dengan metode lain. Selain itu proses reduksinya yang menggunakan serbuk Zn, lebih ramah lingkungan dan lebih cepat daripada menggunakan bahan lain, semisal Hidrazin (Panbo Liu, 2013).

Grafena memiliki luas permukaan  $2630 \text{ m}^2/\text{gram}$  dapat membentuk lapisan-lapisan dan menghasilkan ruang-ruang yang dapat menyimpan energi sehingga bisa digunakan sebagai superkapasitor. Superkapasitor dari grafena ini mempunyai rapat massa yang tinggi dibandingkan dengan kapasitor-kapasitor dielektrik konvensional. Selain itu superkapasitor dari grafena memiliki range yang besar dalam menangkap energi dan menyimpan energi tersebut sehingga dapat pula dijadikan sebagai sumber daya primer bila dikombinasikan dengan aki atau sel bahan bakar (Prof Rod Ruoff, 2008).

Selain itu, Wang dkk (2009) menemukan bahwa superkapasitor dengan berbahan grafena mempunyai kapasitansi  $205.000 \text{ F/kg}$  pada kondisi densitas daya  $10 \text{ kW/kg}$  dan densitas  $28,5 \text{ W/kg}$ . Selain itu, elektroda dari grafena dapat meminimalisir tahanan elektronik dan tahanan ionik serta dapat bekerja pada frekuensi yang tinggi, dimana EDLC yang menggunakan karbon aktif sebagai elektrodanya akan berubah menjadi resistor ketika diberi perlakuan frekuensi tinggi, sehingga tidak efektif.

Penelitian bertujuan untuk mengetahui pengaruh temperatur hidrotermal dan waktu ultrasonikasi terhadap nilai kapasitas dari grafena. Sehingga bisa diketahui waktu ultrasonikasi dan temperatur hidrotermal optimal untuk menghasilkan grafena yang mempunyai kapasitansi terbaik ketika diaplikasi untuk EDLC.

## 1.2. Perumusan Masalah

Masalah yang terdapat dalam penelitian ini yaitu:

1. Bagaimana cara mensintesis grafena dengan menggunakan metode hidrotermal?



2. Bagaimana cara mengkarakterisasi grafena yang telah dibuat dengan menggunakan metode hidrotermal?
3. Bagaimana cara menyiapkan elektroda superkapasitor EDLC dengan menggunakan grafena ?
4. Bagaimana pengaruh waktu ultrasonikasi dan temperatur hidrotermal terhadap nilai kapasitansi EDLC?

### **1.3. Batasan Masalah**

Agar diperoleh hasil akhir yang baik dan sesuai dengan yang diinginkan serta tidak menyimpang dari permasalahan yang ditinjau, maka batasan masalah pada penelitian ini adalah sebagai berikut :

1. Ukuran serbuk Grafit yang digunakan dalam sintesis dianggap homogen.
2. Kecepatan stirring dianggap konstan.
3. Tekanan dari autoclave dianggap konstan
4. Temperatur dan tekanan udara sekitar dianggap konstan.

### **1.4. Tujuan Penelitian**

Tujuan dari penelitian ini yaitu:

1. Mensintesis grafena dengan menggunakan metode hidrotermal
2. Mengkarakterisasi grafena yang disintesis dengan metode hidrotermal
3. Menyiapkan elektroda EDLC dengan menggunakan grafena
4. Mengetahui pengaruh temperatur hidrotermal dan waktu ultrasonikasi terhadap nilai kapasitansi EDLC

### **1.5. Manfaat Penelitian**

Penelitian ini bertujuan untuk menghasilkan grafena yang mempunyai karakteristik tertentu yang bisa digunakan untuk aplikasi elektroda pada Superkapasitor, serta bisa digunakan untuk rujukan terhadap penelitian-penelitian selanjutnya seperti aplikasi grafena untuk baterai, *fuel cell*, *solar cell*, dsb.



*Halaman ini sengaja dikosongkan*



## BAB II

### KAJIAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI

#### 2.1 Grafena

Grafena adalah susunan atom karbon dalam kerangka heksagonal serupa sarang lebah yang membentuk satu lembaran setipis satu atom. Penemuan grafena secara eksperimental terjadi tahun 2004 (Novoselov, 2004). Setelah itu, banyak dilakukan penelitian baik untuk memodelkan berbagai sifat dari grafena maupun untuk membuat dan memanfaatkannya.

Hasil-hasil penelitian, seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2.1, menunjukkan bahwa grafena memiliki sifat-sifat elektronik yang unggul, di antaranya mobilitas pembawa muatan dan konduktivitas yang tinggi.

**Tabel 2.1** Perbandingan sifat antara Grafena dan keluarga Karbon yang lainnya  
( Zhong-Shuai Wua, 2012).

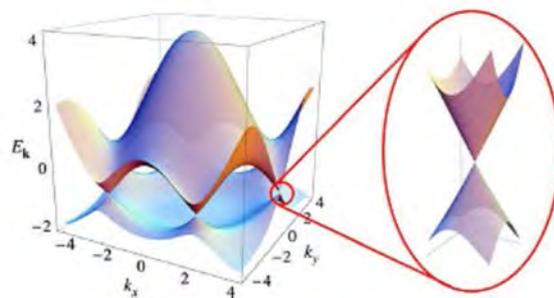
Alotrofi Karbon	Grafit	Intan	Fullerene	Carbon Nanotubes	Grafena
Bentuk Hibridisasi	$sp^2$	$sp^2$	$sp^2$	$sp^2$	$sp^2$
Sistem Kristal	Heksagona 1	Oktahedral	Tetragonal	Ikosahedral	Heksagonal
Dimensi	3	3	0	1	2
Massa Jenis ( $g\ cm^{-3}$ )	2.09 - 2.23	3.5 - 3.53	1.72	>1	>1
Luas Permukaan Spesifik ( $m^2g^{-1}$ )	10 - 20	20 - 160	80 - 90	1300	1500
Sifat Optik	Uniaksial	Isotropik	Non Linear	Tergantung Struktur	Transmitan Optik
Konduktivitas Termal ( $W\ m^{-1}\ K^{-1}$ )	1500 - 2000	900 - 2320	0.4	3500	4840 - 5300
Kekerasan	Tinggi	Sangat Tinggi	Tinggi	Tinggi	Tertinggi
Keuletan	Fleksibel, non elastik	Tidak ada Data	Elastik	Fleksibel dan Elastis	Fleksibel dan Elastik
Sifat Elektronik	Konduktor	Insulator	Insulator	Metalik, semikonduktor	Semimetal, semikonduktor
Konduktivitas Elektrik ( $S\ cm^{-1}$ )	$3 \times 10^4$	Tidak ada Data	$1 \times 10^{-10}$	Tergantung Struktur	2000



Dalam kajian pustaka ini dibahas sifat-sifat elektronik grafena, kemudian berbagai cara pembuatan grafena. Cara-cara ini dibandingkan baik secara prosedur maupun dari hasilnya. Kemudian, dibahas beberapa aplikasi yang potensial dari grafena yaitu untuk pembuatan superkapasitor.

Untuk memahami sifat-sifat dasar grafena, orang melakukan pemodelan terhadap struktur kristal grafena. Sifat-sifat yang diteliti adalah kurva dispersi, band gap, konduktivitas, dan mobilitas pembawa muatan. Sedangkan, parameter-parameter yang ditinjau adalah dimensi lembaran grafena, jumlah lapisan, dan keberadaan pengotor (doping).

Grafena dalam bentuk lembaran (sheet) yang luasnya tidak terbatas memiliki hubungan dispersi seperti ditunjukkan dalam Gambar 2.1 (Castro, 2009). Pada pojok-pojok zona Brillouin pertama, energi elektron pada pita konduksi tepat bertemu dengan pita valensi membentuk kerucut. Pada tempat ini, yang dinamakan titik Dirac, nilai energi berbanding lurus dengan momentum, sehingga massa efektif elektron adalah nol.



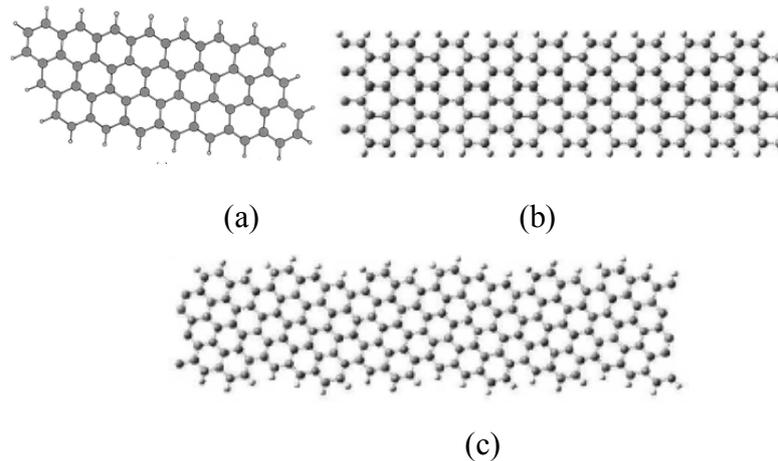
**Gambar 2.1** Hubungan dispersi grafena (Perez, 2009)

Hal ini menyebabkan grafena bersifat semilogam dengan band gap nol. Elektron-elektron grafena bersifat relativistik dan mengalami sedikit saja hamburan terhadap fonon sehingga batas atas mobilitas elektron grafena sangat tinggi yaitu  $200.000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (Morozov, 2008). Dalam kaitannya dengan efek medan, mobilitas elektron grafena yang didapatkan dari pemodelan mencapai  $80.000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (Arkturk, 2008).

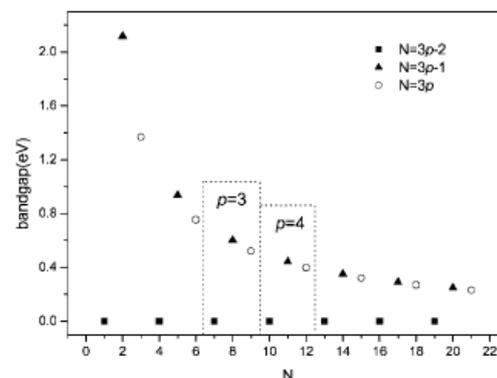
Berbagai penelitian juga telah dilakukan untuk memodelkan grafena yang bentuknya seperti pita, yang dikenal dengan sebutan Grafena



Nanoribbon (GNR). Contoh susunan atom dalam GNR ditampilkan dalam Gambar 2.2. Pada Gambar 2.2 terlihat bahwa GNR bisa memiliki berbagai macam tepi. Tepi seperti pada Gambar 2.2a disebut *zigzag*, sedangkan tepi seperti pada Gambar 2.2b disebut *armchair*.



**Gambar 2.2** Beberapa contoh Grafena Nanoribbon. (a) Tepi zigzag (b) Tepi armchair. (c) GNR dengan sudut kiral  $13,9^{\circ}$ . (Barone, 2006)



**Gambar 2.3** Hasil pemodelan band gap GNR satu lapis dengan bentuk tepi armchair dan zigzag (Zhang, 2009).

Hasil pemodelan menunjukkan bahwa GNR satu lapis memiliki band gap yang besarnya bergantung pada lebar pita. Untuk bentuk tepi armchair, terdapat tiga kelompok yang dibedakan oleh jumlah atom yang menyusun lebar pita, yaitu  $3n$ ,  $3n+1$ , dan  $3n+2$ . (Barone, 2006 ; Zhang, 2009 ; Yu, 2008). Hubungan besar band gap terhadap lebar pita yang didapatkan dari hasil pemodelan ditampilkan dalam Gambar 2.3.



Ukuran yang sempit juga mempengaruhi mobilitas elektron grafena. Jika GNR semakin sempit maka mobilitas elektronnya berkurang. Berkurangnya mobilitas juga bisa disebabkan bentuk tepi yang tidak teratur (Yang, 2010).

Selain bentuk tepi, hal lain yang mempengaruhi parameter GNR adalah keberadaan atom lain. Jika atom-atom karbon di tepi pita dibiarkan saja, artinya ada valensi karbon yang tidak mendapat pasangan (dangling bond). Supaya stabil, atom-atom ini cenderung menangkap, atau sengaja dipasangi, atom lain seperti hidrogen. Dalam hal ini tepi pita disebut hydrogen passivated (Barone, 2006). Pemasangan atom seperti boron dan nitrogen pada tepi pita baik bentuk armchair maupun zigzag mungkin menjadikan GNR bersifat feromagnetik (Owens, 2008).

## 2.2 Metode Pembuatan Grafena

Berbagai metode telah dikembangkan untuk membuat grafena secara terkendali dalam hal jumlah lapisan, luas, dan bentuknya. Metode-metode ini terbagi menjadi dua, yaitu pembelahan grafit menjadi lapisan-lapisan grafena (top down) dan penumbuhan grafena secara langsung dari atom-atom karbon (bottom up).

### 2.2.1 Pengelupasan

Dalam metode pengelupasan (exfoliation), kristal grafit dibelah-belah menjadi lapisan-lapisan grafena. Cara yang paling awal adalah dengan selotip, yang dilakukan oleh (Novoselov, 2004). Selotip ditempelkan pada grafit lalu dikelupas. Sebagian material yang terambil kemudian ditempel selotip lagi dan dikelupas, demikian seterusnya sampai didapatkan lapisan yang sangat tipis yang mungkin hanya terdiri dari satu lapisan grafena.

Metode ini dikembangkan lebih lanjut menjadi apa yang disebut *drawing method* (menggambar) (Zhang, 2004). Dalam metode ini, kristal grafit dipasang pada ujung Atomic Force Microscope (AFM) kemudian digoreskan seperti pensil pada substrat  $\text{SiO}_2$ . Lapisan-lapisan grafena terpisah dan menempel pada substrat.



Cara lain untuk membelah grafit adalah dengan pelarutan atau dispersi dalam cairan. Salah satu metode adalah pelarutan dalam larutan surfaktan SDBS (sodium dodecylbenzene sulfonate) (Lotya, 2009). Dalam larutan ini, grafit yang hidrofobik menjadi dibasahi oleh air dan lapisan-lapisan grafena terlepas dengan sendirinya. Setelah itu dilakukan pengendapan dan pengeringan sehingga grafena dapat dikumpulkan.

### 2.2.2 Penumbuhan dari Silikon Karbida

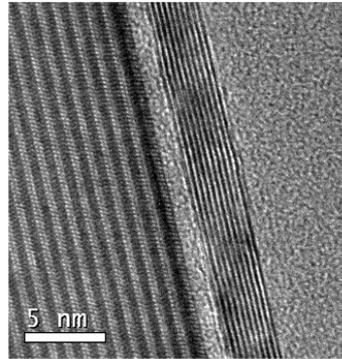
Grafena telah berhasil ditumbuhkan dari silikon karbida (SiC). Dalam metode ini, substrat SiC dipoles sampai sangat rata lalu dipanaskan dalam vakum tingkat ultra (Ultra High Vacuum,  $10^{-10}$  torr) sehingga atom-atom Si menyublim. Atom-atom karbon yang tertinggal di permukaan membentuk grafena (De Heer, 2007). Kristal SiC yang digunakan bisa merupakan polytype 4H, 6H, atau 3C (Aristov, 2009 ; Suemitsu, 2009). Dapat digunakan kristal SiC dengan muka silikon atau muka karbon.

Cara lain adalah dengan membiarkan sedikit gas ( $O_2$ ,  $H_2O$ ,  $CO_2$ ) tersisa dalam vakum tingkat sedang ( $10^{-5}$  torr). Ternyata sedikit gas ini bereaksi dengan SiC menyisakan atom karbon yang membentuk grafena (Song, 2006). Hasil-hasil penumbuhan tersebut biasanya menghasilkan beberapa lapisan grafena. Grafena yang ditumbuhkan dari SiC memiliki mobilitas pembawa muatan mencapai  $1.120 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  jika ditumbuhkan pada muka silikon dan  $18.100 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  jika ditumbuhkan pada muka karbon (Gaskill, 2009). Contoh hasil penumbuhan terlihat dalam Gambar 2.4.

Keunggulan dari metode ini adalah bahwa substrat SiC dapat langsung digunakan sebagai substrat untuk membuat rangkaian elektronik dengan grafena. Untuk membuat pola pada grafena SiC dapat dilakukan dua cara. Pertama, dilakukan penumbuhan berpola, artinya grafena yang tumbuh langsung membentuk pola. Dalam metode ini, SiC ditutupi dengan aluminium nitrida pada bagian yang diinginkan (Rubio-Roy, 2010). Ketika penumbuhan dilakukan, bagian yang tertutup tidak tumbuh. Lapisan AlN kemudian



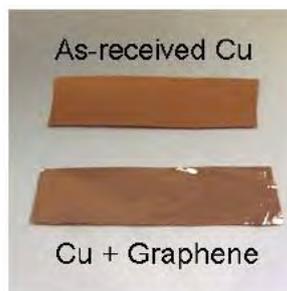
dibuang. Dalam metode kedua, grafena yang telah ditumbuhkan tanpa pola dietsa dengan plasma, misalnya oksigen atau helium (Lu, 1999 ; Bell, 2009).



**Gambar 2.4** Hasil TEM dari grafena yang ditumbuhkan pada SiC dengan metode vakum tingkat rendah. (Song, 2006)

### 2.2.3 Penumbuhan dengan Chemical Vapor Deposition (CVD) pada Substrat

Penumbuhan dengan CVD telah dilakukan pada substrat logam seperti Ni dan Cu (Reina, 2009; Grüneis, 2009; Li, 2009). Logam-logam ini dipilih karena dapat dikikis dengan etsa sehingga grafena yang dihasilkan tidak terikat pada substrat logam. Gas yang bisa digunakan adalah metana + hidrogen. Telah dapat ditumbuhkan grafena pada nikel yang mencapai lebar beberapa sentimeter yang seluruhnya bersambungan (Reina, 2009). Jika menggunakan substrat Cu, dihasilkan grafena yang jumlah lapisannya lebih sedikit dan sebagian besar merupakan lapisan tunggal (Li, 2009). Contoh grafena yang ditumbuhkan dengan cara ini ditampilkan pada Gambar 2.5.

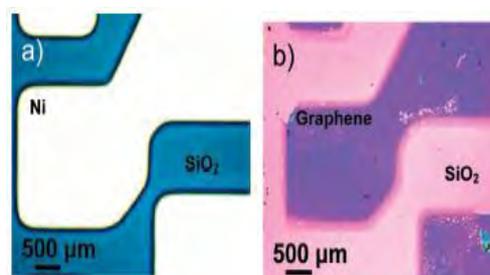


**Gambar 2.5** Contoh grafena yang ditumbuhkan pada Cu (Li, 2009).



Mekanisme penumbuhan grafena pada logam adalah sebagai berikut. Atom karbon yang berasal dari gas larut ke dalam substrat logam pada temperatur  $1000^{\circ}\text{C}$ . Ketika temperatur diturunkan, kelarutan karbon berkurang sehingga atom-atom karbon “mengendap” di permukaan logam menjadi grafena, sama seperti garam yang keluar dari es saat air asin membeku. Pertumbuhan grafena di sini bersifat membatasi diri pada satu lapisan saja. Grafena berlapis lebih dari satu ditemukan pada perbatasan kristal (grain boundary) logam (Reina, 2009).

Grafena yang telah ditumbuhkan pada logam dapat dipindahkan ke substrat lain seperti  $\text{SiO}_2/\text{Si}$ . Pertama, grafena di atas logam diberi lapisan Poli Metil Metakrilat (PMMA), lalu logam dietsa hingga habis. Selanjutnya, grafena yang menempel pada PMMA ditempelkan pada substrat tujuan, lalu PMMA dikikis habis dengan aseton (Li, 2006). Dapat pula dilakukan penumbuhan berpola pada logam yang sudah dibuat berpola sebelumnya. Contoh hasilnya ditampilkan pada Gambar 2.6.



**Gambar 2.6** Hasil penumbuhan berpola pada nikel (Reina, 2009).

Grafena yang ditumbuhkan pada logam memiliki mobilitas pembawa muatan mencapai  $100\text{-}2000\text{ cm}^2/\text{Vs}$  (Reina, 2009), yang rendah jika dibandingkan dengan nilai teoretis. Tetapi, metode ini memiliki keunggulan bahwa grafena dapat ditumbuhkan dengan luas dan jumlah lapisan yang dihasilkan adalah tunggal atau sedikit.



#### 2.2.4 Metode Oksidasi Hummer dan Reduksi dengan serbuk Zn

Grafena dapat di sintesis dengan menggunakan metode Hummer, yang melibatkan proses oksidasi dari grafit menjadi grafit oksida, kemudian dilanjutkan dengan proses ultrasonikasi untuk mengubah grafit oksida menjadi grafena oksida, dan terakhir proses reduksi untuk mereduksi grafena oksida menjadi grafena.

Kelebihan mensintesis grafena dengan model ini, adalah grafena yang diperoleh bisa dalam jumlah yang banyak. Selain itu, peralatan yang digunakan tergolong mudah dan tidak terlalu susah dalam aplikasinya. Sedangkan kekurangan dari metode ini, adalah grafena yang dihasilkan cenderung mempunyai tingkat *defect* atau cacat yang tinggi, karena permukaan grafena berkali-kali bersentuhan langsung dengan senyawa kimia baik itu oksidator maupun reduktor, sehingga terdapat banyak *impurities* dan struktur yang tidak sempurna pada permukaan grafena. Selain itu, konduktivitas material yang dihasilkan juga sangat rendah.

Proses oksidasi grafit menjadi grafit oksida dilakukan dengan menggunakan metode Hummer. Sebelum ditemukan metode Hummer, beberapa peneliti, Broudie (1859), Stadenmaier (1898), telah mengembangkan proses oksidasi grafit. Perbandingan ketiga metode oksidasi tersebut diperlihatkan pada Tabel 2.2.



**Tabel 2.2** Perbandingan Metode Oksidasi Grafit menjadi GO (Owen dkk, 2010)

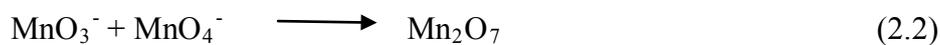
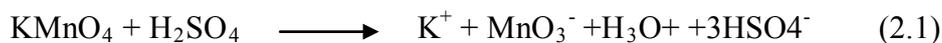
	<b>Brodie</b>	<b>Staudenmaier</b>	<b>Hummer</b>	<b>Modifikasi Hummer</b>	
<b>Tahun</b>	1859	1898	1958	1999	2004
<b>Oksidator</b>	KClO <sub>3</sub> , HNO <sub>3</sub>	KClO <sub>3</sub> , (atau NaClO <sub>3</sub> ), HNO <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	NaNO <sub>3</sub> , KMnO <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Pre-ox: K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> , P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>  Ox: KMnO <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	NaNO <sub>3</sub> , KMnO <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>
<b>Rasio C/O</b>	2.16 – 2.28	N/A – 1.85	2.17 – 2.25	1.3	1.8
<b>Lama Reaksi</b>	3 – 4 Hari / 10Hari	1 – 2 Hari/ 10Hari	2 – 10 jam	6 jam pre- ox dan 2 jam ox	~5 Hari
<b>Jarak antar lembaran (A°)</b>	5.95	6.23	6.67	6.9	8.3

Metode Hummer menggunakan larutan NaNO<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, KMnO<sub>4</sub>, dan H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. Produk oksidasi kemudian dimurnikan dengan pencucian 10% HCl, dan dilanjutkan dengan pencucian DI water (Tien dkk, 2012).

Permanganate merupakan oksidan (*dihydroxylations*), berupa Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub>. Terbentuk minyak berwarna merah tua dari hasil reaksi KMnO<sub>4</sub> dengan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. Aktivasi Ion MnO<sub>4</sub><sup>-</sup> yang sangat reaktif hanya terjadi pada kondisi asam sesuai persamaan 2.1 dan 2.2. Transformasi MnO<sub>4</sub><sup>-</sup> menjadi bentuk yang lebih reaktif



$Mn_2O_7$  akan sangat membantu mengoksidasi grafit, tetapi bentuk bimetal dari permanganate oksida diketahui dapat meledak jika mengalami pemanasan melebihi  $55\text{ }^\circ\text{C}$ . Tromel dan Russ telah membuktikan kemampuan  $Mn_2O_7$  dalam memilih oksida berikatan rangkap alifatik lebih ikatan rangkap aromatik. Hal ini merupakan gambaran penting struktur grafit dan proses reaksi yang terjadi selama oksidasi (Dreyer, 2009).



Grafit dicampurkan dengan  $H_2SO_4$  pada temperatur  $0\text{ }^\circ\text{C}$ . Kemudian distirring dengan penambahan  $KMnO_4$  secara bertahap. Proses stirring harus dijaga pada temperature dibawah  $35\text{ }^\circ\text{C}$  selama 24 jam. Proses berikutnya adalah penambahan aquades pada campuran. Karena penambahan aquades pada  $H_2SO_4$  konsentrasi medium melepaskan sejumlah panas, maka temperaturnya harus dikontrol kurang dari  $100\text{ }^\circ\text{C}$ .  $30\%$   $H_2O_2$  harus ditambahkan dalam campuran untuk mereduksi sisa  $KMnO_4$ . Ketika hidrogen peroksida ditambahkan maka terbentuk gelembung-gelembung dan warna larutan berubah menjadi kuning cerah. Selanjutnya untuk menghilangkan ion-ion dari aquades maka campuran harus dicuci dengan menggunakan  $HCl\ 5\%$ . Produk campuran kemudian dikeringkan pada temperature  $60\text{ }^\circ\text{C}$  selama 24 jam (Wua dkk, 2009).

Langkah selanjutnya adalah proses reduksi. Proses ini pada dasarnya adalah untuk mencapai dua tujuan utama yaitu menghilangkan gugus fungsional dan mengembalikan cacat struktural. Penghilangan gugus fungsional harus memperhatikan dua efek apakah oksigen dapat dihilangkan dan apakah area yang sudah tereduksi dapat dikembalikan untuk struktur terkonjugasi ( $\pi$ ) secara jangka panjang. Sehingga terdapat alur untuk perpindahan muatan pembawa dalam lembaran Grafit oksida (GO). Untuk pengembalian cacat structural terdapat dua kemungkinan, grafitisasi pada temperature tinggi dan *epitaxial growth* atau CVD pada daerah cacat dengan penambahan suplai karbon (Pei dkk, 2011).



**Tabel 2.3** Perbandingan Efek Reduksi GO dengan berbagai Metode  
(Pei dkk, 2011)

Referensi	Metode Reduksi	Bentuk	Rasio C/O	$\sigma$ (S/m)
Stankovich S. dkk	Hydrazine Hidrate	Serbuk	10.3	2
Li D, Muller MB dkk	Reduksi Hydrazine pada kondisi koloid	Film (lapisan)	NA	72
Shin H-J dkk	Larutan 150 mM NaBH <sub>4</sub> ,	TCF	8.6	0.045
Yang D. dkk	Hydrazine vapor	Film	~8.8	NG
Beccerril H.A	Annealing 1100 °C, UHV	TCF	NA	~10 <sup>3</sup>
Wang X	Annealing 1100 °C pada Ar/H <sub>2</sub>	TCF	NA	727
Fernandez Merino MJ	Vitamin C	Film	12.5	77
Pei S	Reduksi 55% HI	Film	>14.9	298



Teknik reduksi GO menjadi *Grafena* diklasifikasikan menjadi dua kelompok utama yaitu *Thermal reduction* dan *Chemical reduction*. Kedua metode reduksi ini kemudian dikembangkan lagi seperti yang diberikan pada Tabel 2.3

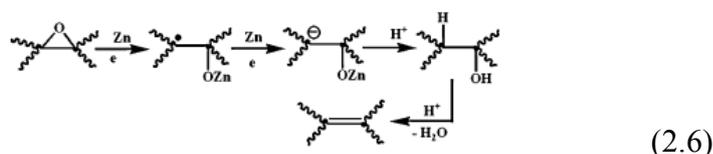
Salah satu bentuk *Chemical reduction* adalah *Chemical Reagent Reduction*. Reduksi dengan bahan kimia biasanya dapat berlangsung pada temperature ruangan atau dengan pemanasan temperatur menengah. Hal ini menjadikan proses reduksi GO dapat dilakukan lebih efisien dari pada dengan proses Annealing yang membutuhkan temperatur tinggi, sehingga proses reduksi kimia lebih murah, dapat dilakukan untuk produksi jumlah besar *grafena*.

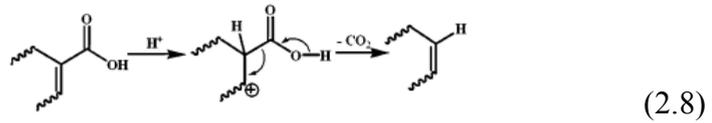
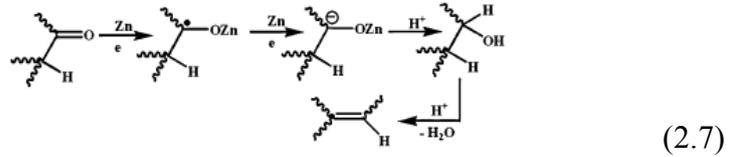
Stancovich dkk (2007) pertama kali memperkenalkan hydrazine dan turunannya sebagai Pereaksi kimia yang biasa digunakan untuk reduksi GO. Penambahan hydrazine dalam larutan GO menyebabkan terbentuk aglomerasi lembaran *grafena* skala nano karena GO bersifat hidrofobik. Setelah proses *drying* (pengeringan) rasio C/O *grafena* adalah 12.5 dan memiliki konduktivitas listrik 99.6 S/cm. Seiring berjalannya waktu, penemuan pereaksi kimia untuk reduksi GO bermunculan, misalnya dengan menggunakan NaBH<sub>4</sub>, Hydroquinon, Vitamin C, dan HI.

Zhi-Gang (2012) menyebutkan dalam penelitiannya bahwa proses reduksi *grafena oxide* (GO) menggunakan serbuk Zn akan terjadi sesuai persamaan 2.3 – 2.5.



Dey dkk (2011) mencoba mereduksi GO dengan Zn sebagai *Chemical reduction agent*. Dalam penelitiannya, Dey dkk menjelaskan mekanisme reduksi GO seperti pada persamaan 2.6 – 2.8. Zn berperan sebagai pereduksi gugus fungsi oksigen pada kondisi asam dan restorasi ikatan  $\pi$  pada jaringan karbon.





Persamaan diatas menjelaskan mekanisme reduksi kandungan oksigen pada struktur GO menggunakan Zn pada lingkungan asam. Selain itu juga mengembalikan konjugasi  $\pi$  pada struktur karbon. Deoksigenasi *epoxy* dapat disebabkan oleh berbagai logam misalnya Zn, Beberapa literatur menyatakan kombinasi Zn dan  $H_2SO_4$  sangat efisien untuk deoksigenasi *epoxy* baik secara langsung maupun bertahap. Deoksigenasi bertahap dilanjutkan dengan pembentukan gugus *hydroxyl*. Disisi lain, gugus *carbonyl* direduksi menjadi alkohol oleh Zn pada lingkungan asam. Gugus *hydroxyl* dihasilkan oleh deoksigenasi *epoxy* dan reduksi *carbonyl* ketika dehidrasi pada kondisi asam untuk menghasilkan olefins. Metal sulfat diketahui bertindak sebagai katalisis alcohol. Dekarboksilasi gugus COOH dapat dikatalisis oleh asam.

**Tabel 2.4** Perbandingan waktu reduksi dari berbagai jenis metode reduksi (Xiaoguang Mei, 2011)

No	Metode	Waktu Reduksi	Referensi
1	Reduksi dengan $H_2$ pada $450^{\circ}C$ .	2 jam	Wu ZS (2009)
2	Annealing pada kondisi vakum pada $T = 1100^{\circ}C$	6 jam	Becerril HA (2008)
3	Reduksi dengan uap Hydrazine pada $40^{\circ}C$ , lalu annealing pada $T = 400^{\circ}C$	22 jam	Becerril HA (2008)
4	Reduksi dengan larutan Hydrazine pada $T = 100^{\circ}C$	24 jam	Stankovich S (2006)



5	Reduksi dengan 98% Hydrazine hidrat	1 minggu	Tung VC (2009)
6	Reduksi dengan Hydroquinone	20 jam	Wang GX (2008)
7	Reduksi dengan dimethylhydrazine pada T = 80 <sup>0</sup> C	24 jam	Stankovich S (2006)
8	Reduksi dengan NaBH <sub>4</sub> , garam aryl diazonium dari asam sulfanilic, dan hydrazine	27 jam	Si Y (2008)
9	Reduksi dengan larutan NaBH <sub>4</sub>	2 jam	Shin HJ (2009)
10	Reduksi dengan HI 55% pada T = 80 <sup>0</sup> C	45-60 menit	Pei SF (2010)
11	Reduksi dengan serbuk Fe	6 jam	Fan ZJ (2010)
12	Hydrothermal pada T = 180 <sup>0</sup> C	6 jam	Zhou Y (2009)
13	Reduksi dengan larutan Benzyl alcohol	24 jam	Dreyer DR (2011)
14	Reduksi dengan larutan NaOH atau KOH pada T = 50-90 <sup>0</sup> C	Beberapa menit	Fan XB (2008)
15	Reduksi dengan serbuk Zn	Kurang dari 1 menit	Xiaoguang Mei (2011)

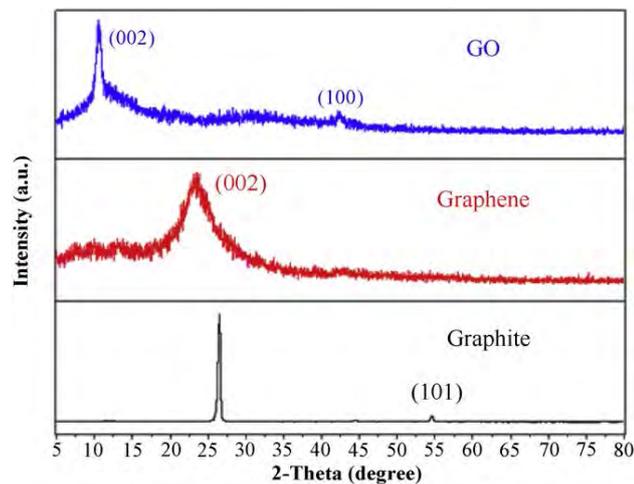
Reduksi dengan menggunakan serbuk Zn mempunyai kelebihan, yaitu proses reduksinya yang sangat cepat, tidak sampai 1 menit, dapat dilakukan pada temperatur kamar, dan juga tidak melibatkan senyawa kimia beracun apapun, sehingga lebih ramah lingkungan apabila dibandingkan dengan menggunakan bahan lain (Panbo Liu, 2013). Perbandingan waktu reduksi berbagai jenis metode yang digunakan untuk mereduksi grafena ditunjukkan pada Tabel 2.4



## 2.3 Karakterisasi Grafena

### 2.3 a. Pengujian XRD

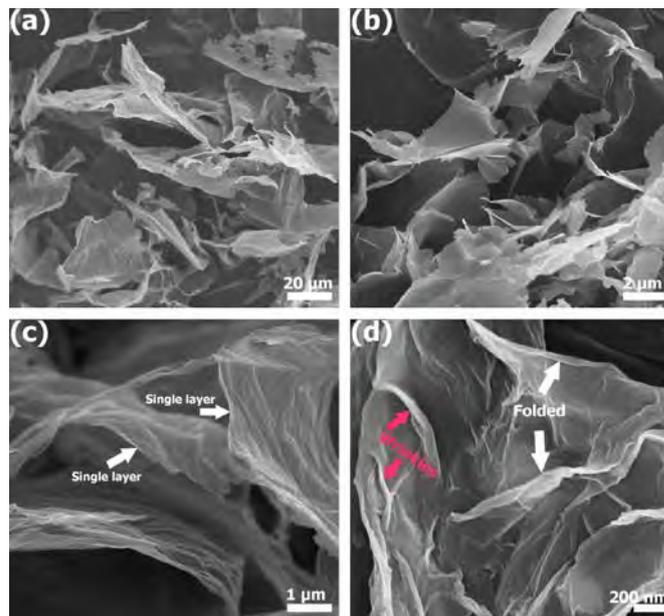
Pengujian XRD dari grafena menunjukkan terjadinya perubahan struktur dari grafit ke grafit oksida dan akhirnya grafena. Pada grafit, terdapat puncak yang sangat tajam dan memiliki intensitas yang sangat tinggi pada daerah  $2\theta \sim 26^\circ$ , yang merupakan puncak (002). Kemudian setelah di oksidasi menjadi grafit oksida (GO), puncaknya bergeser pada posisi  $2\theta \sim 9-10^\circ$ , yang kemudian akan bergeser lagi ke posisi  $\sim 23-24^\circ$  pada grafena, yang menandakan terjadinya proses reduksi, seperti ditunjukkan Gambar 2.7 berikut ini.



**Gambar 2.7** Pola XRD grafit grafit oksida dan grafena menurut Feng Chang Chia, dkk (2013)

### 2.3 b. Pengujian SEM

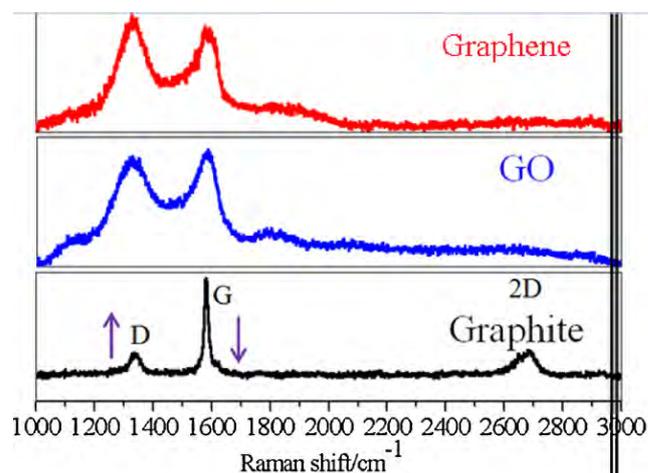
SEM dari grafena menunjukkan morfologi lembaran transparan, dari SEM sudah bisa diketahui bentuk *single layer* grafena, kadang juga nampak adanya *wrinkle* atau *folding* yang terjadi pada permukaan grafena, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2.8 dibawah ini.



**Gambar 2.8.** Bentuk Morfologi dari permukaan grafena pada perbesaran rendah sampai tinggi (a-d) menurut Tran Van Khai dkk (2013)

### 2.3 c Pengujian Raman

Pengujian Raman menunjukkan pola yang hampir sama antara grafit oksida dan grafena, yaitu terdapatnya puncak D dan G, serta 2D yang lemah. Sebaliknya, grafit menunjukkan puncak G yang kuat, D yang lemah, serta 2D yang kuat. Pola raman dari grafit, grafit oksida dan grafena ditunjukkan pada Gambar 2.9

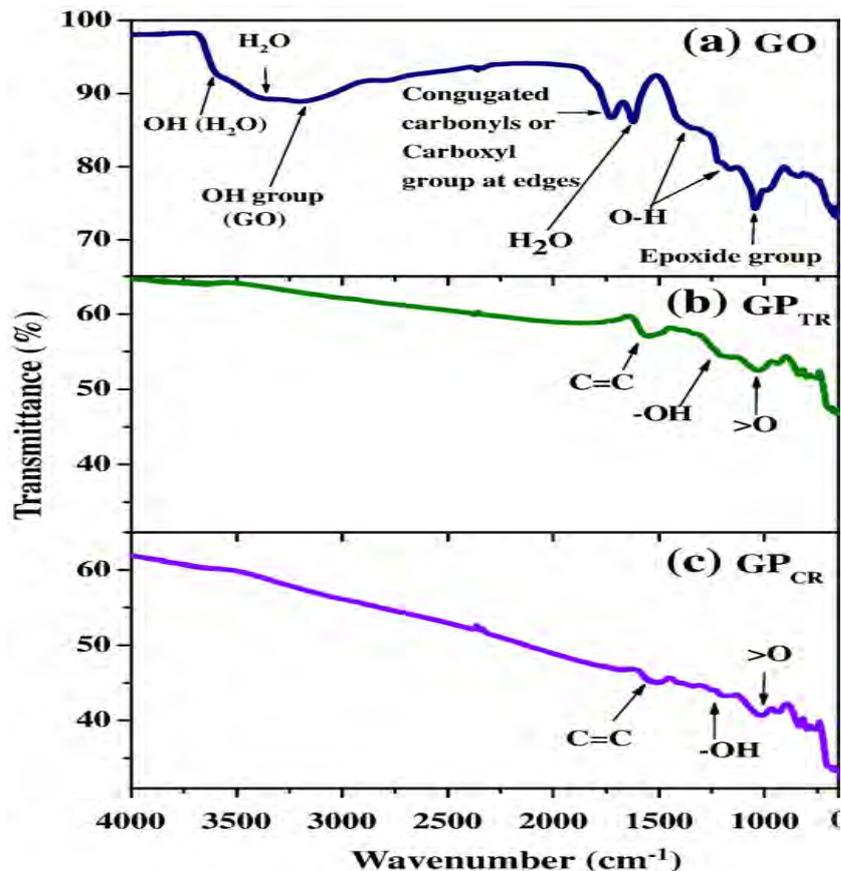


**Gambar 2.9.** Pola Raman dari Grafit, Grafit Oksida, dan Grafena menurut Feng Chang Chia (2013)



### 2.3 d. Pengujian FTIR

Pengujian FTIR pada grafena menunjukkan terjadinya penghilangan gugus fungsional OH yang sangat signifikan. Hal inilah yang sangat membedakan antara pola FTIR grafit oksida dan grafena, seperti ditunjukkan pada Gambar 2.10.



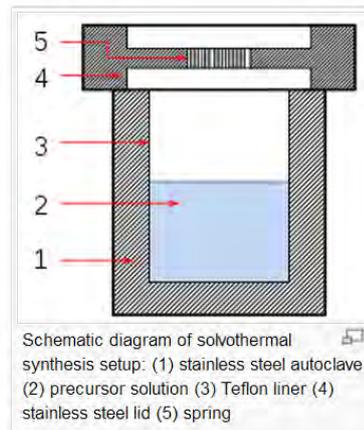
**Gambar 2.10** Pola FTIR dari grafit oksida (a) grafena yang disintesis dengan menggunakan metode reduksi termal (b) grafena yang disintesis dengan menggunakan metode reduksi kimia (c) menurut Seung Hun Huh, dkk (2010)

### 2.4 Reaksi Hidrotermal

Reaksi Hidrotermal dapat digambarkan sebagai reaksi kimia yang melibatkan pelarut baik dalam kondisi subkritis atau superkritis. Seperti misalnya pelarut dapat bertindak sebagai komponen kimia atau fasa fluida mampu melampaui sifat fisika-kimianya untuk memodifikasi mekanisme reaksi.



Metode hidrotermal biasanya selalu menggunakan autoclave sebagai tempat terjadinya reaksi. Skema dari sebuah autoclave ditunjukkan oleh Gambar 2.11 dibawah.



**Gambar 2.11** Skema autoclave untuk reaksi hidrotermal ([http://en.wikipedia.org/wiki/Solvothermal\\_synthesis](http://en.wikipedia.org/wiki/Solvothermal_synthesis)).

Faktor-faktor yang memainkan peran penting pada reaksi hidrotermal:

- Sifat kimia pelarut,
- Sifat fisika-kimia pelarut ini,
- Sifat prekursor,
- Kondisi eksperimental.

Pemilihan pelarut sangat tergantung pada komposisi kimia dari material yang dihasilkan dan juga pada kemampuan sifat fisika-kimia dalam memodifikasi mekanisme reaksi. Mengingat prekursor, seleksi terutama diatur oleh interaksi mereka dengan pelarut, parameter termodinamika, tekanan dan temperatur, dalam kebanyakan kasus dioptimalkan untuk mendapatkan kondisi eksperimental paling mudah dapat menyebabkan penyusunan material akhir atau untuk mendapatkan bentuk yang di sesuaikan (nanocrystallites, kristal tunggal, film tipis, dsb).

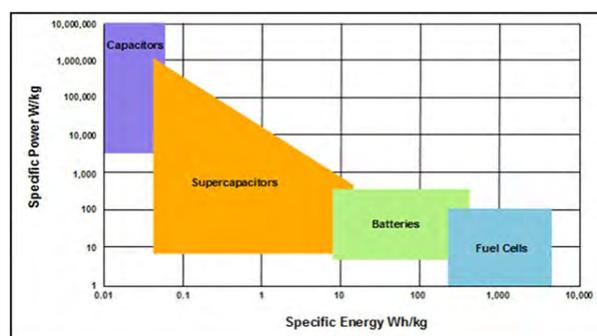


## 2.5 Kapasitor

Kapasitor merupakan perangkat elektronik yang dapat menyimpan dan memberikan energi dengan sama baiknya. Kapasitor memiliki dua jenis yaitu kapasitor elektrolitik dan kapasitor elektrokimia. Kapasitor elektrolitik terdiri dari dua keping permukaan logam sejajar yang merupakan elektroda dipisahkan pada jarak kecil dengan udara, vakum, cair atau padatan berupa film tipis, yang disebut ‘dielektrik’. Kapasitansi sebanding dengan luas permukaan plat elektroda dan permitivitas dielektrik antar dua plat serta berbanding terbalik dengan jarak antar dua plat.

Sedangkan Kapasitor elektrokimia adalah kapasitor jenis khusus yang bekerja berdasarkan *charging* (pemasukan muatan) dan *discharging* (pelepasan muatan) dari *interface* dari material-material yang mempunyai luas spesifik yang tinggi seperti material karbon yang berpori atau beberapa oksida logam yang berpori. Kapasitansinya 10000 kali lebih tinggi daripada kapasitansi kapasitor elektrolitik dengan ukuran yang sama. Oleh karenanya, kapasitor elektrokimia sering juga disebut ‘*superkapasitor*’ atau ‘*ultrakapasitor*’ (Conway, 1999).

Kapasitor elektrokimia (ECs) dibuat untuk menjebatani perbedaan kinerja kritis diantara kapasitor konvensional yang mempunyai densitas daya yang tinggi dengan baterai / sel bahan bakar yang mempunyai densitas energi yang tinggi, karena karakteristik uniknya yang mencakup wilayah yang luas pada densitas daya dan densitas energi. Kapasitor elektrokimia merupakan tipe perangkat yang berorientasi pada daya dengan efisiensi densitas energi yang tinggi dan siklus hidup yang lama.(Chang, 2010).



**Gambar 2.12** Plot Ragone untuk berbagai alat penyimpanan dan pengkonversi energi (Extremetech, 2014)

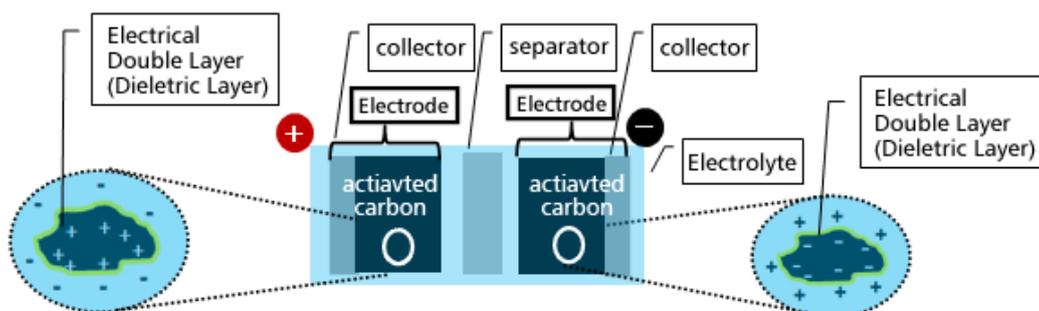


Kapasitor elektrokimia telah mampu menarik banyak perhatian karena densitas dayanya yang lebih tinggi dan siklus hidupnya yang lebih panjang jika dibandingkan dengan baterai, dan densitas energinya yang lebih tinggi jika dibandingkan dengan kapasitor konvensional (elektrolitik). Gambar Plot Ragone menunjukkan posisi berbagai alat penyimpan energi ditinjau dari energi spesifik dan daya spesifiknya, yang menempatkan kapasitor elektrokimia di antara kapasitor elektrolitik dan baterai. Gambar plot Ragone ditunjukkan pada gambar 2.12.

## 2.6 EDLC (*Electric Double Layer Capacitor*)

Kapasitor elektrokimia itu secara prinsip berdasar dari dua jenis perilaku kapasitave. Yang pertama diklasifikasikan dengan nama *Double Layer* yang terletak pada antar muka pada elektroda dan yang kedua diklasifikasikan dengan nama *Pseudocapacitor* yang dibentuk dalam macam-macam proses elektroda tertentu. Skema EDLC secara lengkap seperti terlihat pada Gambar 2.13. Seperti yang telah banyak dijelaskan, prinsip kerja dari kapasitor elektrokimia *double-layer* adalah penggunaan dari pengembangan kapasitansi yang besar pada material serbuk karbon atau karbon berpori yang memiliki luas permukaan spesifik yang tinggi kira-kira 1000 hingga 2000 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup>.

Hal yang paling penting dalam penjelasan sistem kerja pada kapasitor dua layer adalah kapasitor itu menggunakan antar permukaan elektroda/larutan pada *double-layer capacitance*, yang harus disusun dari dua permukaan yang berlawanan (+/-) yang dipicu oleh larutan elektrolit dengan separator yang biasanya diletakkan diantara dua elektroda.

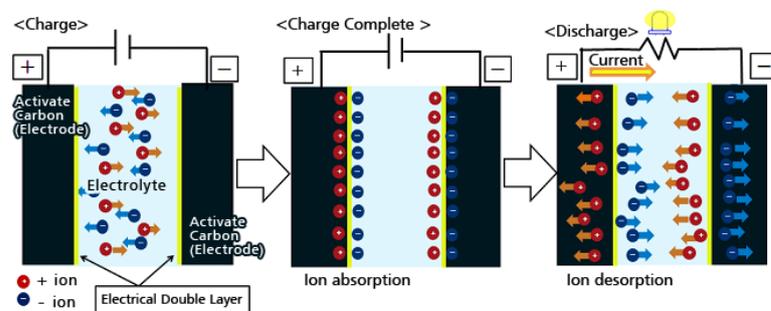


Gambar 2.13 Skema EDLC (Murata co Ltd, 2011)



Prosedur yang paling banyak dipilih untuk perlakuan sebelum aktivasi pada material karbon untuk pembuatan kapasitor elektrokimia *double-layer* adalah karbonisasi thermal yang dibuat dari batu bara, kayu, tempurung kelapa atau polimer seperti *polyacrylonitrile*. Hal ini dibutuhkan untuk mendapatkan luas area yang terbaik, pori yang optimum dan begitu juga kapasitansi per gramnya (Conway, 1999)

Kapasitor listrik dua layer atau EDLC didasari pada prinsip kerja dari lapisan listrik ganda yang terbentuk pada antar permukaan lapisan antara karbon aktif dan elektrolit sebagai dielektrik. Adanya mekanisme absorpsi dan desorpsi ion pada kedua layer elektroda karbon aktif berperan dalam pengisian dan pengosongan EDLC. Dengan memberikan tegangan pada elektroda yang saling berhadapan maka ion akan tertarik ke permukaan kedua elektroda dan terjadilah proses pengisian atau *charging*. Sebaliknya, ion akan bergerak menjauh saat EDLC digunakan atau *discharging* (Murata Manufacturing Co., Ltd 2011). Proses *charging and discharging* dari EDLC dapat dilihat pada Gambar 2.14.



**Gambar 2.14** Skema proses *charging and discharging* pada EDLC

(Murata co, Ltd, 2011)

Pada mekanisme kerja EDLC sangat bergantung pada adanya ion yang memiliki muatan listrik. Ion yang digunakan didapat dari elektrolit yang berada diantara kedua elektroda karbon aktif terdisosiasi. Disosiasi sendiri merupakan peristiwa terurainya suatu zat menjadi beberapa zat yang lebih sederhana. Pada EDLC misalnya, sebuah larutan elektrolit AB terdisosiasi menjadi komponennya A- dan B+. Hal tersebut dinamakan disosiasi elektrolit atau ionisasi dan reaksi ini juga merupakan reaksi reversibel atau berjalan bolak-balik karena ion-ion A- dan



$B^+$  juga bisa kembali membentuk elektrolit AB seperti yang terlihat pada persamaan 2.9. Melalui proses seperti inilah ion-ion bermuatan listrik dapat dimanfaatkan pada sistem kerja EDLC (Takeuchi, 2006).



Setelah ion bermuatan listrik diproduksi selanjutnya ion-ion tersebut akan bergerak secara difusi menuju elektroda seperti yang terlihat pada Gambar 2.14 dan terjadilah proses *charging*. Dan hal tersebut akan terjadi juga saat proses *discharging*.

Karbon aktif digunakan sebagai elektroda, karena (1) biaya rendah, (2) luas permukaan yang tinggi, (3) ketersediaan, dan (4) teknologi produksi mudah. Karbon aktif yang tersedia dapat memiliki luas permukaan spesifik hingga  $2500 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ . Karbon aktif yang digunakan dalam bentuk padatan sedangkan larutan elektrolitnya dalam bentuk cair. Ketika bahan-bahan ini melakukan kontak antara satu dengan yang lainnya, maka kutub positif dan negatif didistribusikan relatif terhadap satu dan yang lainnya dengan jarak yang sangat dekat. Fenomena seperti ini dikenal dengan sebutan listrik layer ganda (elektrical double layer). Ketika medan listrik eksternal diterapkan, maka listrik dua layer yang terbentuk disekitar permukaan karbon aktif didalam cairan elektrolit itulah yang digunakan sebagai struktur dasar kapasitor.

Desain pada EDLC tidak memiliki dielektrik padat seperti yang digunakan pada desain sebelumnya, juga tidak memiliki reaksi kimia seperti yang ditemukan dalam baterai selama pengisian dan pemakaian. Sebaliknya desain EDLC memiliki karakteristik sebagai berikut :

- Kelebihan
  - Desain ini memungkinkan orde farad kapasitansi dalam perangkat kecil. (Bila arang aktif dengan luas permukaan yang besar, digunakan ketebalan dielektrik yang sangat tipis).



- Tidak dibutuhkan sirkuit *charging* khusus atau untuk kontrol selama *discharging*
  - *Charging* yang berlebihan atau pemakaian berlebih tidak memiliki efek negatif pada jangka hidup
  - Teknologi ini sangat *clean energy* dalam hal ramah lingkungan.
  - Karena bagian elektroniknya dapat disolder maka tidak akan ada masalah dengan kontak yang tidak stabil karena penggunaan bersama dengan baterai.
- Kelemahan
    - Jangka hidup terbatas karena penggunaan elektrolit
    - Elektrolit bisa bocor jika kapasitor tidak digunakan dengan benar (ELNA Co., Ltd 2011)

Berbagai jenis EDLC telah beredar dipasaran, misalnya Rubycon, yang mempunyai kapasitansi mulai dari 1 – 30 F, Nesscap yang mempunyai kapasitansi 3-50 F, Murata yang mempunyai kapasitansi 0.47 F, sampai Dynacap yang mempunyai kapasitansi hingga 300 F.



(a)



(b)



(c)

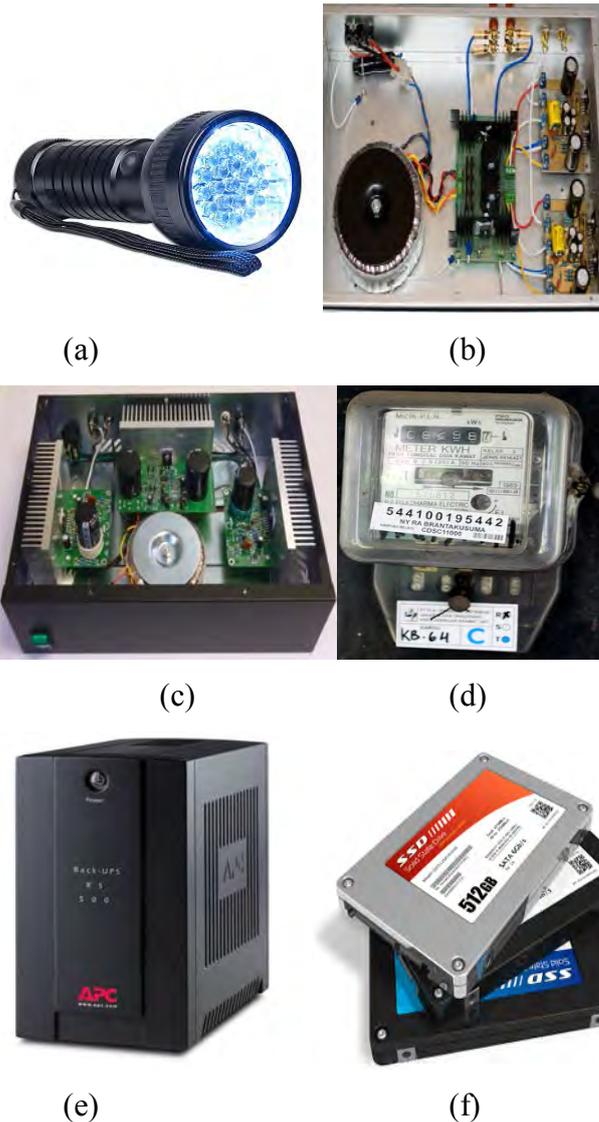


(d)

**Gambar 2.15** Berbagai jenis EDLC yang beredar di pasaran a. Rubycon  
b. Nesscap c. Murata d. Dynacap (google.com/images)



EDLC telah diaplikasikan pada berbagai bidang, termasuk pada peralatan *LED flash*, *audio circuit* dan *power amplifier*. Selain itu juga diaplikasikan dalam meteran listrik, Solid State Disk (SSD) atau harddisk portable, Uninterrupted Power Supply (UPS), dsb. Berikut Gambar peralatan yang menggunakan EDLC sebagai komponennya.



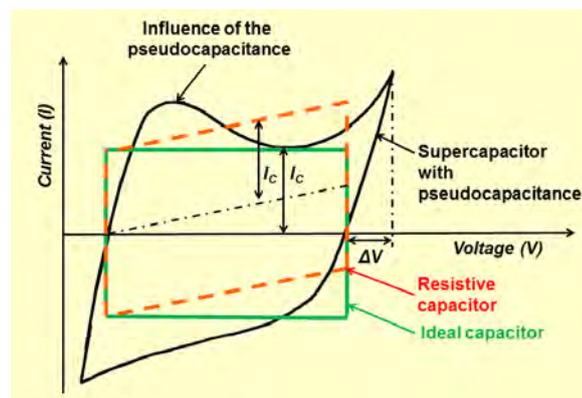
**Gambar 2.16** Berbagai aplikasi EDLC dalam komponen elektronik (a) *LED flashlight* (b) *Audio circuit* (c) Power Amplifier (d) Meteran Listrik (e) UPS (f) SSD (google.com/images)



## 2.7 Superkapasitor Grafena

Superkapasitor adalah piranti elektrokimia yang dapat menyimpan energi dan melepaskannya kembali dengan kekuatan daya yang tinggi dan densitas arus yang tinggi selama selang waktu yang pendek. Sehingga, kapasitor sangat diunggulkan sebagai pengganti untuk baterai dan fuel cell pada berbagai variasi aplikasi, misalnya mobil dan piranti elektronik portabel. Prinsip penyimpanan energi pada superkapasitor adalah akumulasi dari muatan elektrostatis pada elektroda-interface elektrolit (EDLC) atau transfer dari muatan ke dalam lapisan molekul yang mengalami reaksi redoks pada bagian permukaan dari elektroda (pseudokapasitor).

Berbagai tipe superkapasitor dapat dilihat dari jenis kurva *cyclic voltammogram (CV)* nya. Gambar 2.17 menunjukkan berbagai tipe kurva CV dari berbagai jenis superkapasitor.



**Gambar 2.17** Tipe kurva CV dari berbagai jenis superkapasitor

(Elzbieta Frackowiak, 2001)

Dari Gambar tersebut dapat dilihat bahwa superkapasitor mempunyai beberapa tipe. Yang pertama adalah superkapasitor ideal (warna hijau). Superkapasitor ideal menunjukkan pola *charging discharging* yang sama, sehingga mempunyai bentuk yang *rectangular*, atau persegi, yang menandakan bahwa *charging discharging* berlangsung dalam waktu yang sama.

Yang kedua adalah jenis kapasitor resistif (warna merah). Kapasitor jenis ini ditandai oleh bentuk kurva CV yang *rectangular*, namun miring keatas, yang



menandakan adanya peningkatan *current density* seiring dengan penambahan nilai voltase.

Yang terakhir adalah jenis *pseudocapacitor* (warna hitam). Ciri khas dari jenis kapasitor ini adalah adanya *hump* (gundukan), yang menandakan terjadinya reaksi, baik oksidasi maupun reduksi. *Pseudocapacitor* biasanya mempunyai kapasitansi yang lebih tinggi, karena adanya efek reaksi redoks yang terjadi.

Superkapasitor EDLC sangat tergantung pada luas permukaan aktif dari material elektroda. Oleh karena itu, grafena yang mempunyai luas permukaan aktif teoritik mencapai  $2.63 \times 10^6 \text{ m}^2/\text{kg}$ , yang juga mempunyai sifat konduktivitas yang baik, mikrostruktur yang dapat dikontrol, dan stabilitas termal dan mekanik yang luar biasa, sangat menjanjikan sebagai elektroda EDLC. Dengan menggunakan elektroda dari grafena oksida yang telah direduksi, Stoller dkk, menemukan nilai kapasitansi mencapai 135.000 F/kg dan 99.000 F/kg pada larutan dan elektrolit organik.

Peneliti yang lain, Wang dkk (2009) menemukan bahwa superkapasitor dengan berbahan grafena mempunyai kapasitansi 205.000 F/kg pada kondisi densitas daya 10kW/kg dan densitas 28,5 W/kg. Selain itu, elektroda dari grafena dapat meminimalisir tahanan elektronik dan tahanan ionik serta dapat bekerja pada frekuensi yang tinggi, dimana EDLC yang menggunakan karbon aktif sebagai elektrodanya akan berubah menjadi resistor ketika diberi perlakuan frekuensi tinggi, sehingga tidak efektif.

Xian Du dkk (2010), meneliti performa dari grafena sebagai elektroda EDLC, dan menghasilkan nilai kapasitansi grafena yang tinggi, hingga 150 F/gr dalam larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ .

Penyatuan grafena pada sepeda elektrik (electric vehicle) sangat mencengangkan. Sebelumnya sepeda elektrik dibatasi oleh laju charge/discharge yang rendah, yang diperkirakan akibat penggunaan jenis superkapasitornya. Liu, Yu, Neff, Zhamu, dkk pada tahun 2010 menunjukkan bahwa dengan menggunakan lembaran grafena sebagai superkapasitor yang sangat cepat dalam hal charging, yaitu hanya memakan waktu 2 menit.



## 2.8 Kajian Penelitian Sebelumnya

**Tabel 2.5** Nilai kapasitansi dari superkapasitor grafena dan campuran grafena dengan material lain (Sumber : Hyun-Jung Choi, 2012).

Material	Perlakuan	Densitas Power (k W / kg)	Densitas Energi (W h / kg)	Kapasitansi Spesifik (F/ g)	Peneliti
Grafena	CVD	-	-	80 F/ cm <sup>3</sup>	J.J. Yoo, K. Balakrishnan, J. Huang, dkk (2011)
rGO	Reduksi Grafena	9.8	85.6	250	C. Liu, Z. Yu, D. Neff, dkk (2010)
GO fungsional	Pengelupasan termal dari G0	-	28.5	230	Q. Du, M. Zheng, dkk (2010)
Grafena di doping N	Plasma N <sub>2</sub>	800	48	282	H.M. Jeong, J.W. Lee, dkk (2011)
Carbon Black – Grafena	Ultrasonikasi dan reduksi in situ	-	-	175	J. Yan, T. Wei, B. Shao, dkk (2010)
CNT – Grafena	CVD	-	-	385	Z. Fan, J. Yan, dkk (2010)
Carbon sphere –	Reduksi Kimia	15.4	-	198	C.X. Guo, C.M. Li, dkk



GNS					(2011)
PANi – grafena	Polimerisasi in situ	0.14	37.9	1126	H. Wang, Q. Hao, dkk (2010)
PPy – grafena	Deposisi elektrik GO	3	5.7	1510	P. Mini, A. Balakrishnan, dkk (2011).
PEDOT-grafena	Polimerisasi Oksidatif	0.038	12	304	F. Alvi, M.K. Ram, dkk (2011)
MnO <sub>2</sub> – kelupasan graphite	Deposisi kering dan celup	110	12.5	315	G. Yu, L. Hu, N. Liu, dkk (2011)
RuO <sub>2</sub> -grafena	Proses sol gel RuO <sub>2</sub> dan GO	0.05	20.1	570	Z.S. Wu, D.W. Wang, dkk (2010)
NiO-grafena	Deposisi Elektroforetik dan deposisi kimia	-	-	400	X. Xia, J. Tu, Y. Mai, dkk (2011)
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	Kristalisasi Metal Oksida dengan rGO	2.4	85	326	Q. Qu, S. Yang, X. Feng, (2011)



## BAB III

### METODA PENELITIAN

#### 3.1 Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu:

- a. Serbuk grafit dengan ukuran 150  $\mu\text{m}$  dan kemurnian 99%
- b. Air suling/aquades ( $\text{H}_2\text{O}$ ).
- c. Larutan elektrolit Asam Sulfat ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )
- d. Es
- e. Nickel Foam
- f.  $\text{NaNO}_3$
- g.  $\text{KMnO}_4$
- h.  $\text{H}_2\text{O}_2$
- i.  $\text{HCl}$
- j.  $\text{BaCl}_2$
- k.  $\text{Na}_2\text{SO}_4$
- l.  $\text{Li}_2\text{SO}_4$
- m.  $\text{K}_2\text{SO}_4$
- n. Serbuk Zn
- o. Ethanol Absolut

#### 3.2 Peralatan

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu :

1. Neraca Analitik (Digital)  
Alat ini digunakan untuk menimbang massa dari serbuk grafit.
2. Pipet  
Pipet yang digunakan adalah pipet standard untuk mengambil larutan dll.
3. Pengaduk (Spatula)  
Digunakan untuk mengaduk larutan.
4. Hot plate with magnetic stirrer  
Alat ini digunakan untuk mencampur dan mengaduk larutan agar partikel menjadi homogen,



5. *Muffle Furnace*

Digunakan untuk proses pembuatan grafit oksida, dan grafena

6. X' Pert Pro PANalytical, Philips *X-ray diffraction* (XRD) untuk mengetahui senyawa yang terkandung dalam sampel; *Inspect S50 Scanning Electron Microscope* (SEM) untuk menganalisis morfologi dan ukuran partikelnya; *Quantrachrome AsiQwin BET Analyzer* untuk mengetahui luas permukaan aktif berdasarkan daya serap terhadap gas N<sub>2</sub>; *Nicolet iS10 Fourier Transform Infrared* untuk mengetahui jenis gugus fungsi yang terkandung pada material; *Renishaw Invia Raman Microscope* untuk pengujian Raman Spectroscopy; *Jiehan 5000 electrochemical workstation* untuk pengujian *cyclic voltammetry* dan *charge discharge*; *Solartron Electrochemical Cell dan Gain Phase Analyzer* untuk pengujian EIS,.

7. *Autoclave*

Digunakan untuk proses hidrotermal

8. Sarung tangan

Digunakan untuk melindungi tangan dari bahan-bahan kimia yang digunakan saat proses di laboratorium

9. Masker

Digunakan untuk menghindari uap beracun

10. Erlenmeyer

Digunakan untuk menaruh larutan.

11. Wadah es

Digunakan untuk proses pembuatan grafit oksida

12. Centrifuge

Digunakan untuk mengatur memisahkan partikel terdispersi

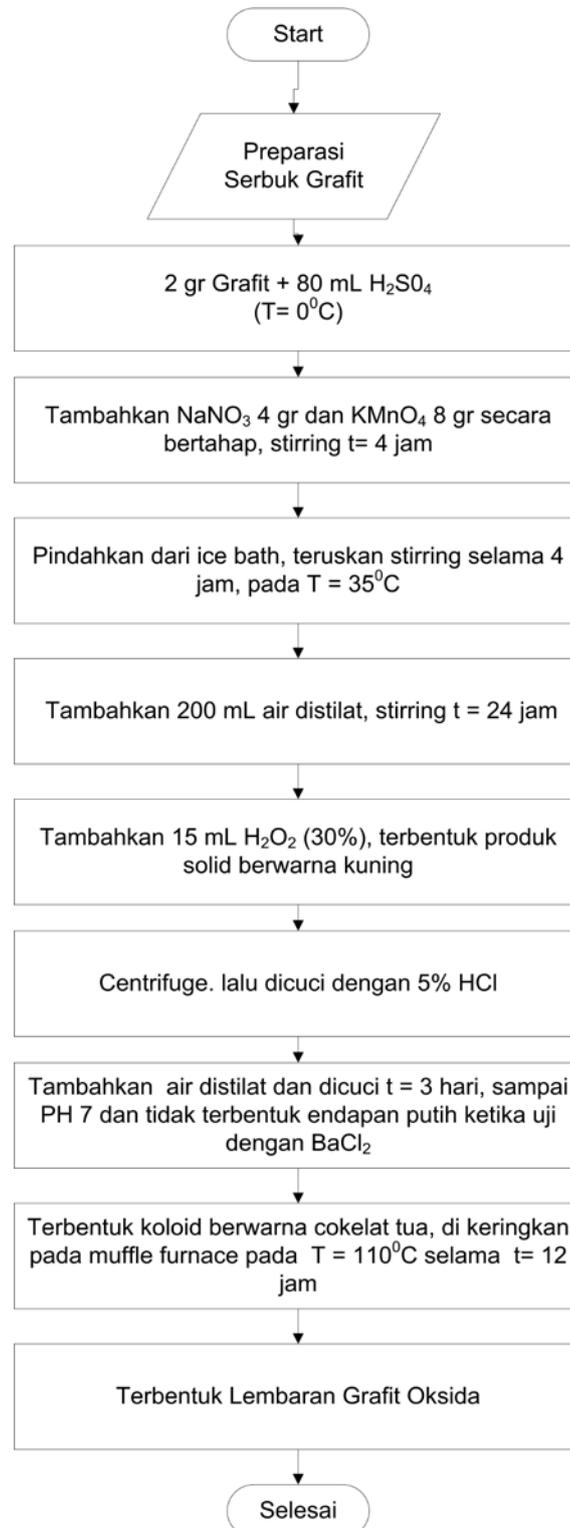
13. Ultrasonic Cleaner

Digunakan untuk homogenisasi larutan dan pembuatan grafena oksida



### 3.3 Flowchart Penelitian

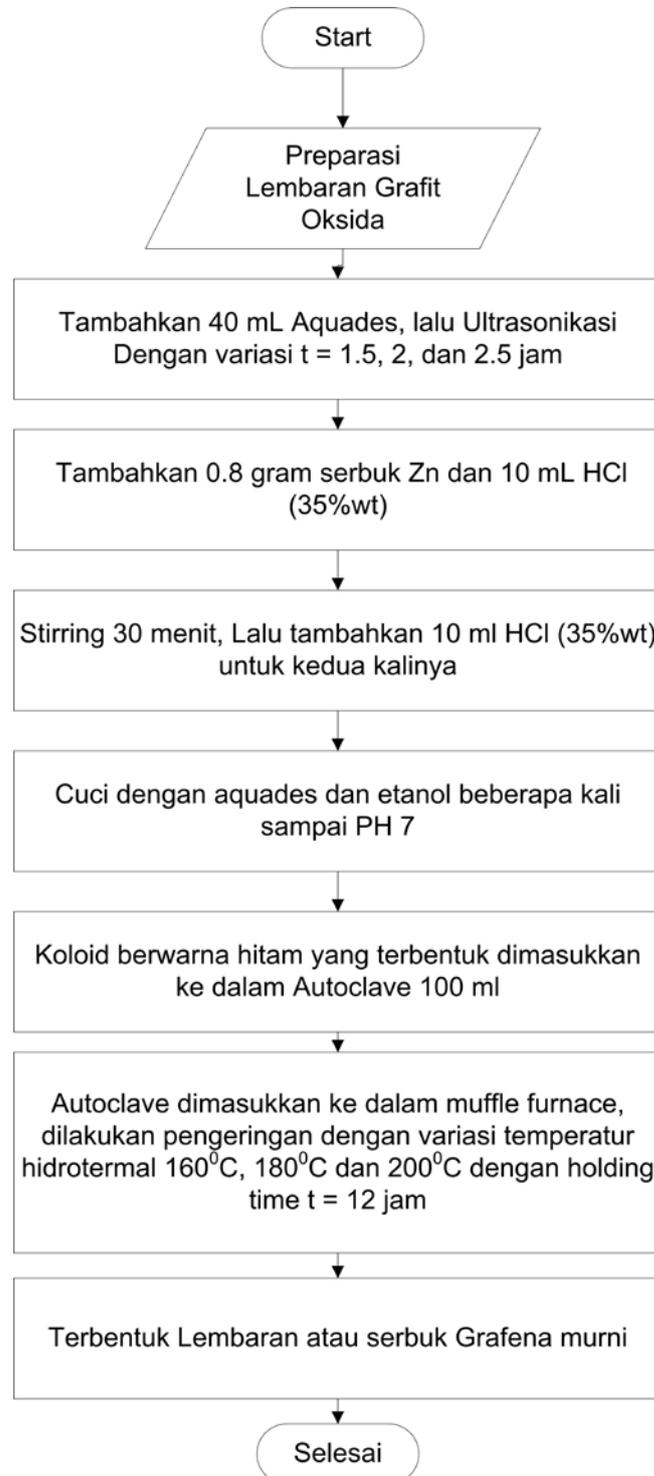
#### 3.3.1 Flow Chart Pembuatan Grafit Oksida



**Gambar 3.1** Flow Chart pembuatan grafit oksida



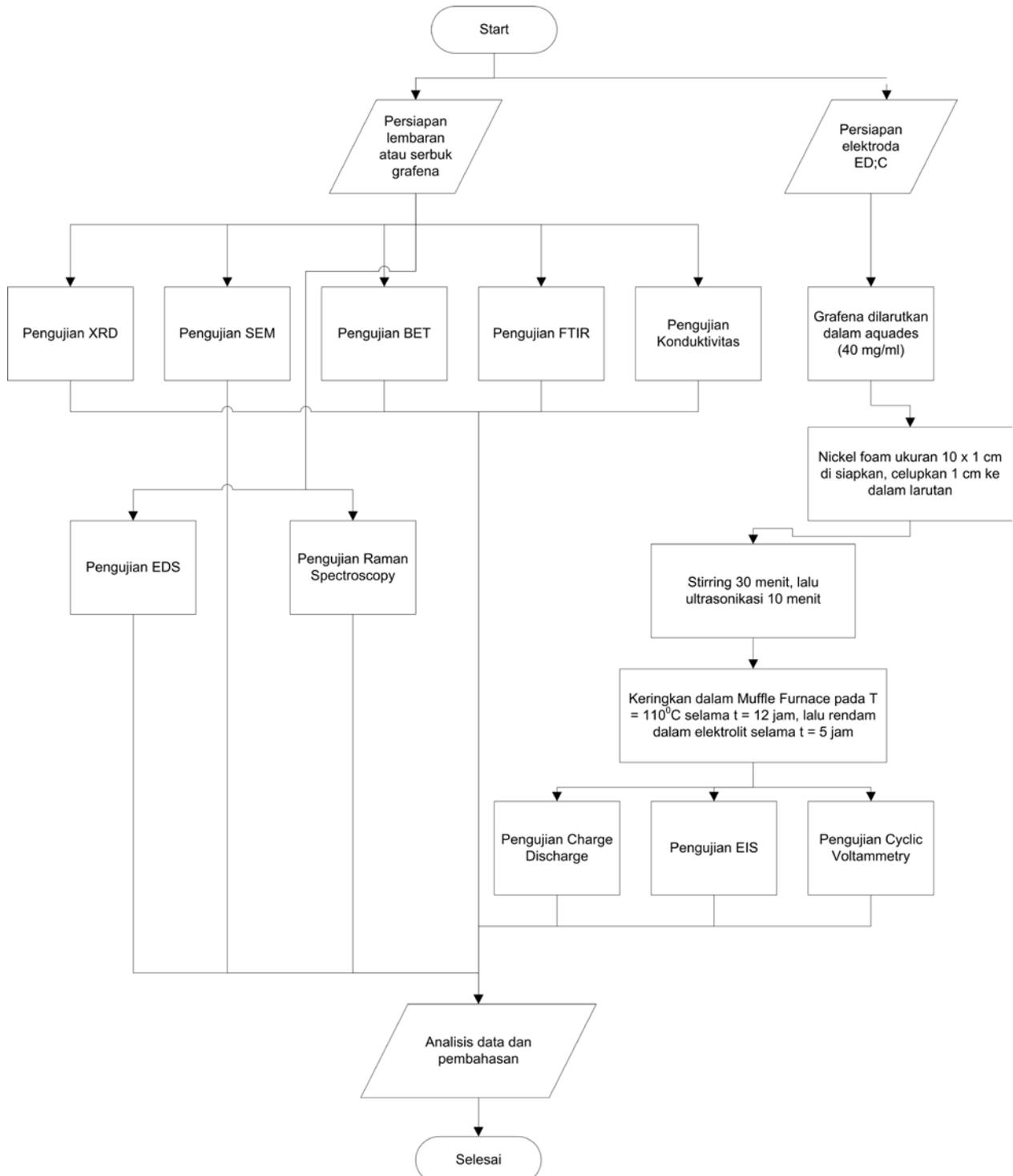
### 3.3.2 Flow Chart Pembuatan Grafena



Gambar 3.2 Flow Chart pembuatan grafena



### 3.3.3 Flow Chart Pembuatan Elektroda EDLC dan Pengujian



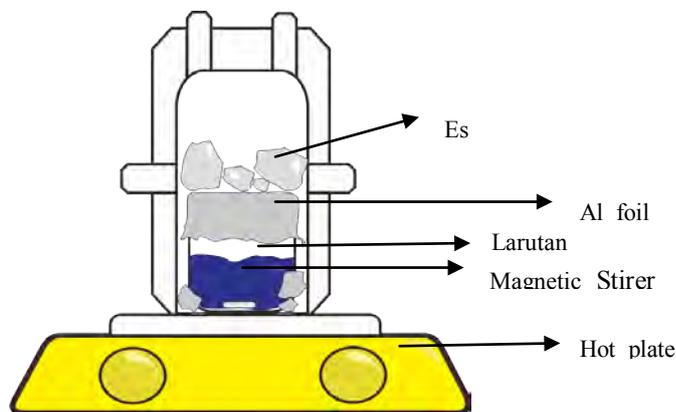
Gambar 3.3 Flow Chart pengujian grafena



### 3.4. Sintesis Grafena

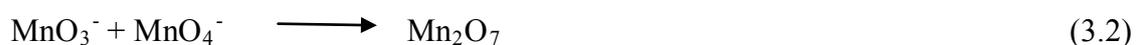
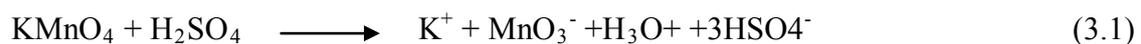
#### 3.4.1. Sintesis Grafit Oksida

Grafit Oksida di sintesis dengan menggunakan metode Hummer. Bahan yang digunakan adalah serbuk grafit,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{KMnO}_4$ ,  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ , es, dan aquades. Proses dimulai dengan menimbang massa grafit sebesar 2 gram. Kemudian dilanjutkan mempersiapkan  $\text{H}_2\text{SO}_4$  98% sebanyak 98 ml. Selanjutnya, *ice bath* disiapkan, dengan menambahkan es pada sekeliling *glass beaker* 1L yang terlebih dahulu disiapkan di dalam *bath*. Grafit dimasukkan ke dalam *glass beaker*, kemudian dilanjutkan dengan penambahan  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Selanjutnya dilakukan proses *stirring* di atas *hot plate* selama 1 jam, dengan menjaga temperatur konstan  $0^\circ\text{C}$ . *Set-up ice bath* digambarkan seperti gambar 3.4.



**Gambar 3.4** Skema *Set up Ice Bath*

Kemudian, dilakukan penambahan  $\text{KMnO}_4$  sebanyak 8 gram dan  $\text{NaNO}_3$  sebanyak 4 gram, secara bertahap dalam kondisi tetap *stirring*. Penambahan ini dimaksudkan untuk mengoksidasi grafit menjadi grafit oksida. Pada saat penambahan, nampak terjadi perubahan warna larutan dari hitam mengkilat menjadi merah gelap dan sedikit kehijauan, dan juga pada permukaan es berubah menjadi warna pink, karena adanya uap  $\text{KMnO}_4$  (gambar 3.5). Reaksi yang terjadi dapat digambarkan seperti dibawah ini.



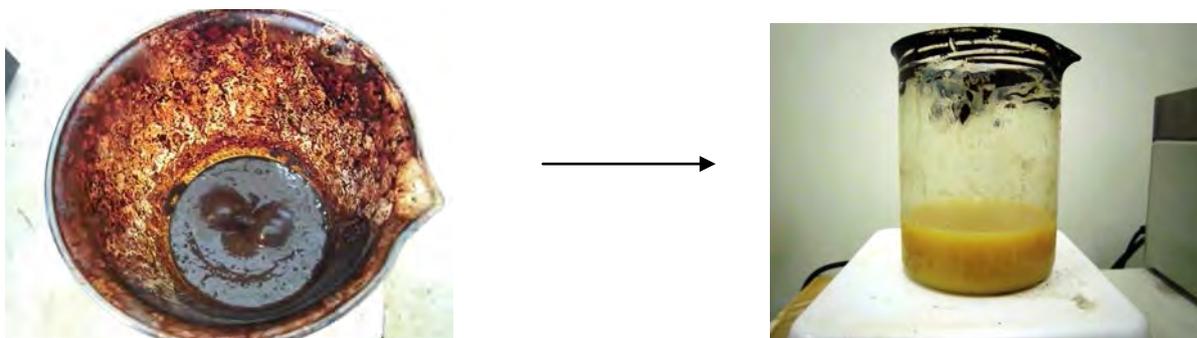


Proses *stirring* dilanjutkan sampai tepat 4 jam. Setelah itu, *glass beaker* dikeluarkan dari *ice bath*, temperature diatur pada  $35^{\circ}\text{C}$ , dan dilakukan penambahan aquades sebanyak 200 ml, yang berfungsi untuk mengurangi kepekatan. Selanjutnya *stirring* dilanjutkan lagi selama 24 jam, untuk memberi waktu grafit teroksidasi sempurna.



**Gambar 3.5** Keadaan larutan saat penambahan  $\text{KMnO}_4$  dan  $\text{NaNO}_3$

Setelah 24 jam *stirring*, maka diperoleh bentuk larutan yang bertambah kental, dengan warna coklat susu. Kemudian dilakukan penambahan  $\text{H}_2\text{O}_2$  30% sebanyak 15 ml, sampai larutan berubah warna dari coklat susu menjadi kuning, seperti yang ditunjukkan pada gambar 3.6. Penambahan ini berfungsi untuk menghilangkan sisa  $\text{KMnO}_4$  yang tidak bereaksi. Reaksinya dapat ditulis sebagai berikut.



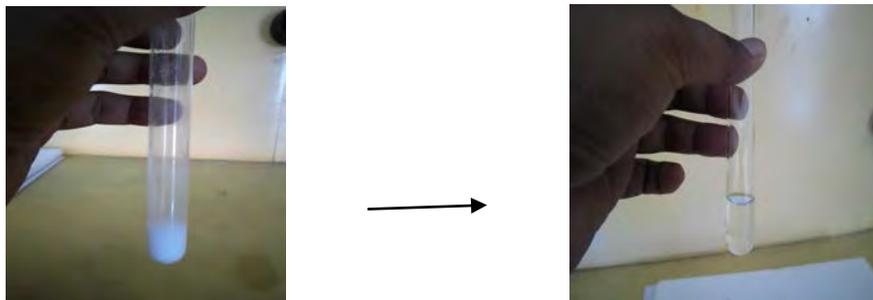
**Gambar 3.6** Perubahan warna larutan saat penambahan  $\text{H}_2\text{O}_2$

Selanjutnya, produk larutan kental berwarna kuning tersebut disaring, dan di *centrifuge* dengan kecepatan 3000 rpm selama 1 jam. Hasil dari *centrifuge*, terbentuk endapan kuning pada



bagian bawah tabung, dan larutan bening pada bagian atas tabung. Larutan bening ini dibuang, dan endapan kuning nya diambil. Apabila masih ada kotoran berwarna putih disertai bercak hitam, maka bagian itu tidak diambil, karena itu merupakan sisa grafit yang masih belum sepenuhnya teroksidasi.

Proses selanjutnya adalah proses pencucian. Pertama kali endapan dicuci dengan menggunakan HCl 5%. Fungsi dari penambahan HCl ini adalah untuk menghilangkan sisa ion logam yang masih ada di larutan. Kemudian pencucian diteruskan dengan menggunakan aquades berulang kali. Secara berkala dilakukan pengecekan dengan menggunakan  $\text{BaCl}_2$  untuk mengetahui apakah masih ada sisa  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (ditandai dengan terbentuknya endapan putih  $\text{BaSO}_4$ ) atau tidak (gambar 3.7). Selain itu juga dilakukan pengecekan pH dengan menggunakan Indikator Universal. Proses ini dilakukan sampai endapan berubah warna dari kuning menjadi berwarna coklat tua, tidak ada endapan putih saat penambahan  $\text{BaCl}_2$ , dan nilai pH 6-7. Gambar endapan yang siap di drying adalah seperti ditunjukkan oleh gambar 3.8.



**Gambar 3.7** Uji  $\text{BaCl}_2$  untuk mengetahui ada sisa  $\text{SO}_4^{2-}$  (endapan putih) atau tidak (bening)



**Gambar 3.8** Warna dari endapan yang siap di *drying*



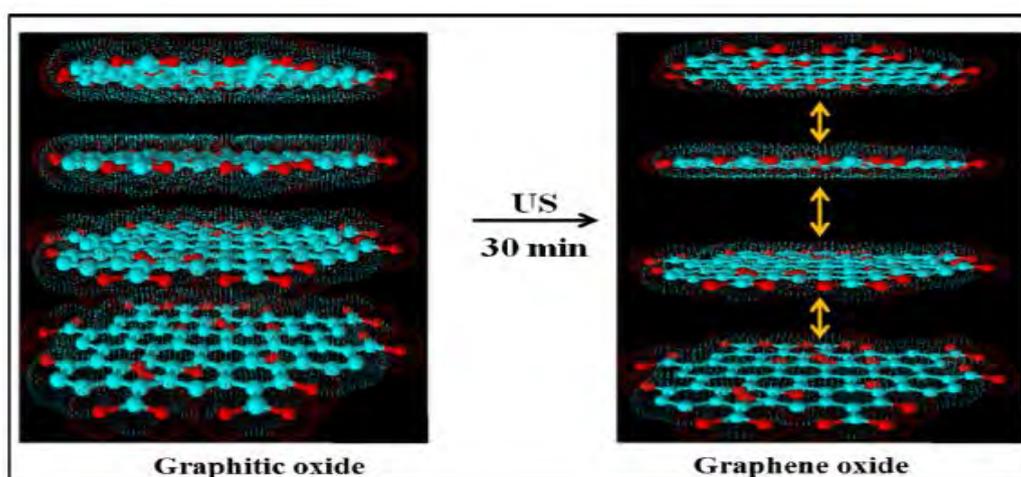
Proses *drying* dilakukan pada wadah *crucible* Alumina 100 ml didalam *muffle furnace* pada temperatur  $110^{\circ}\text{C}$  dengan *holding time* 12 jam. Hasil dari proses drying adalah berupa lembaran grafit oksida berwarna hitam mengkilat, seperti ditunjukkan oleh gambar 3.9



**Gambar 3.9** Lembaran grafit oksida setelah proses *drying*

### 3.4.2 Sintesis Grafena

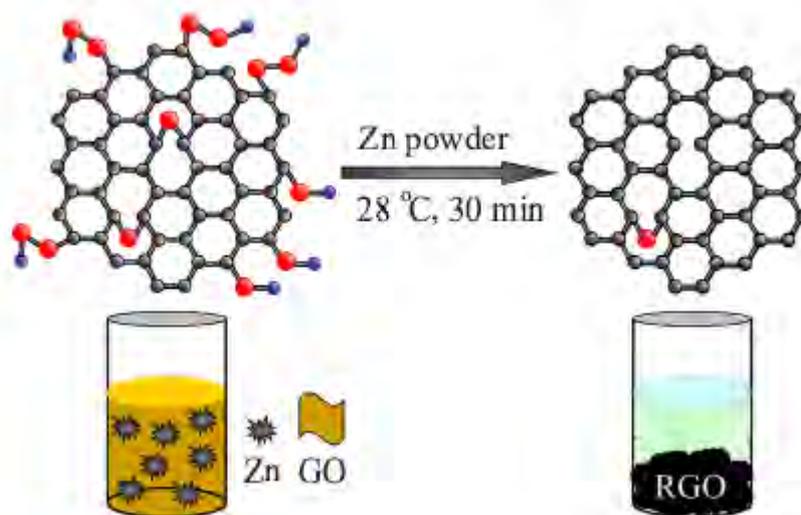
Grafena disintesis dengan cara mereduksi grafit oksida menjadi grafena oksida, kemudian dilanjutkan dengan mereduksi grafena oksida menjadi grafena (Reduced Grafena Oksida/rGO). Pembuatan grafena oksida dimulai dengan cara melarutkan grafit oksida (40 mg) ke dalam 40 ml aquades, kemudian di *stirring* selama 2 jam untuk menguraikan lembaran nya. Kemudian, dilakukan proses ultrasonikasi dengan berbagai variasi waktu ultrasonikasi, yaitu 1.5, 2, dan 2.5 jam. Mekanisme ultrasonikasi ini dapat di gambarkan sebagai berikut.



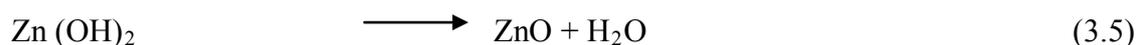
**Gambar 3.10** Mekanisme terbentuknya grafena oksida dari grafit oksida  
(Karthikeyan Krishnamoorthy, 2013)



Setelah proses ultrasonikasi, maka terbentuk endapan hitam, dan itulah yang disebut grafena oksida. Selanjutnya, grafena oksida di reduksi dengan menggunakan serbuk *Zinc* untuk memperoleh grafena yang murni. Proses ini dilakukan dengan menambahkan 10 ml HCl (35%) ke dalam larutan grafena oksida, dalam kondisi *non-stirring*. Kemudian dilanjutkan dengan penambahan serbuk Zn sebesar 1.6 gram. Ketika penambahan Zn, akan terbentuk ledakan- ledakan kecil gelembung pada permukaan larutan di sertai dengan peningkatan temperatur. Akan nampak terlihat pada endapan keluar gelembung yang konstan, yang menandakan terjadinya peristiwa reduksi. Endapan semakin lama akan bergerak mengumpul pada permukaan atas larutan. Kita harus membiarkan peristiwa ini sampai selesai, ditandai dengan tak ada lagi gelembung yang keluar dari endapan, dan seluruh endapan telah naik ke permukaan larutan. Reaksi yang terjadi pada saat penambahan Zn dapat digambarkan sebagai berikut. Persamaan kimia yang terjadi ditunjukkan pada persamaan 3.4-3.6.



**Gambar 3.11** Skema Reaksi Reduksi grafena oksida menjadi grafena (Zhi-Gang Geng, 2012)





Kemudian, dilakukan proses *stirring* 30 menit untuk homogenisasi larutan. Setelah itu, dilakukan penambahan HCl (35%) untuk kedua kalinya, sebanyak 10 ml. Proses penambahan ini bertujuan untuk menghilangkan sisa Zn yang masih ada di larutan. Hasilnya berupa endapan hitam, seperti ditunjukkan pada gambar 3.12. Selanjutnya adalah proses pencucian. Proses pencucian pertama menggunakan HCl 5%, dengan tujuan untuk menghilangkan sisa ion logam. Kemudian dilanjutkan dengan menggunakan aquades beberapa kali.



**Gambar 3.12** Warna endapan hasil proses Reduksi dengan serbuk Zn

Selanjutnya dilakukan proses hidrotermal untuk memperoleh lembaran atau serbuk grafena. Pada proses ini, endapan yang telah dicuci beberapa kali, dimasukkan ke dalam *autoclave* untuk selanjutnya di masukkan ke dalam *muffle furnace* dengan variasi temperatur hidrotermal 160, 180, dan 200<sup>0</sup>C dengan holding time 12 jam, seperti ditunjukkan pada gambar 3.13.



**Gambar 3.13** Proses Hidrotermal di dalam *autoclave* yang dipanaskan pada *muffle furnace*



Hasil dari proses hidrotermal adalah berupa lembaran ataupun serbuk grafena berwarna hitam, yang tidak terlalu mengkilat apabila dibandingkan dengan lembaran grafit oksida., seperti ditunjukkan pada gambar 3.14



**Gambar 3.14** Serbuk (kiri) dan lembaran (kanan) grafena setelah proses hidrotermal

### 3.5 Pengujian

#### 3.5.1 Scanning Electron Microscope (SEM) dan EDS

*Scanning Electron Microscope* adalah jenis mikroskop elektron yang menampilkan gambar morfologi sampel dengan memanfaatkan sinar elektron berenergi tinggi dalam pola *raster scan*. Cara kerja SEM adalah dengan menembakkan elektron dari *electron gun* lalu melewati *condensing lenses* dan pancaran elektron akan diperkuat dengan sebuah kumparan, setelah itu elektron akan difokuskan ke sampel oleh lensa objektif yang ada dibagian bawah. Pantulan elektron yang mengenai permukaan sampel akan ditangkap oleh *backscattered electron detector* dan *secondary electron detector* yang kemudian diterjemahkan dalam bentuk gambar pada display.



**Gambar 3.15** *Scanning Electron Microscope* (SEM)

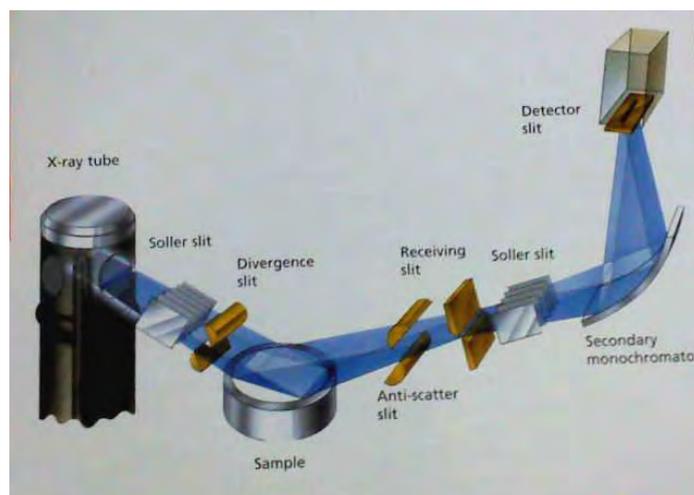


Pada pengujian ini sampel diamati morfologinya menggunakan mesin SEM Inspect S50 seperti yang terlihat pada gambar 3.12. Sampel grafena yang digunakan berupa lembaran yang dilengketkan pada *holder* dengan menggunakan selotip karbon *double tape*. Lalu sampel grafena diamati dengan berbagai perbesaran. Perbesaran yang digunakan adalah 300x, 500x, 1000x, 5000x, 10000x, 15000x.

Pengujian EDS (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy), bertujuan untuk mengetahui apa saja jenis unsur penyusun material yang ada dalam sampel, dan sekaligus untuk mengetahui nilai % berat dan % atomik dari semua unsur penyusun tersebut. Pengujian EDS dilakukan dengan menggunakan alat SEM Jeol JSM-7001F, yang dilengkapi dengan software INCA .

### 3.5.2 XRD (X-ray Diffraction)

Pengujian XRD ini adalah sebuah pengujian yang dilakukan untuk mengetahui senyawa/unsur yang terbentuk pada sampel. Pengujian ini memanfaatkan difraksi dari sinar-X. Secara umum prinsip kerja XRD dapat dilihat pada gambar 3.16 yaitu generator tegangan tinggi yang berfungsi sebagai pembangkit daya sumber sinar-X pada bagian *x-ray tube*. Sampel berbentuk serbuk yang telah dimampatkan diletakkan diatas wadah yang dapat diatur posisinya. Lalu berkas sinar-X ditembak ke sampel dan sinar-x didifraksikan oleh sampel, kemudian berkas sinar-x masuk ke alat pencacah. Intensitas difraksi sinar-X ditangkap oleh detector dan diterjemahkan dalam bentuk kurva.



**Gambar 3.16** Skema kerja XRD



Semua sampel grafena dianalisis menggunakan XRD dengan mesin PANalytical seperti yang terlihat pada gambar 3.17. Dalam pengujian ini sampel harus dihaluskan terlebih dahulu menggunakan mortar agar serbuk grafena lebih halus lagi. Karena jika serbuk tidak halus maka permukaan yang didapat tidak rata dan dapat mempengaruhi hasil difraksi sinar-x yang didapat. Untuk menganalisa hasil XRD digunakan *Joint Committee of Powder Diffraction Standart* (JCPDS) atau dengan hanawalt.



**Gambar 3.17** Mesin XRD PANalytical

### 3.5.3 Pengujian BET

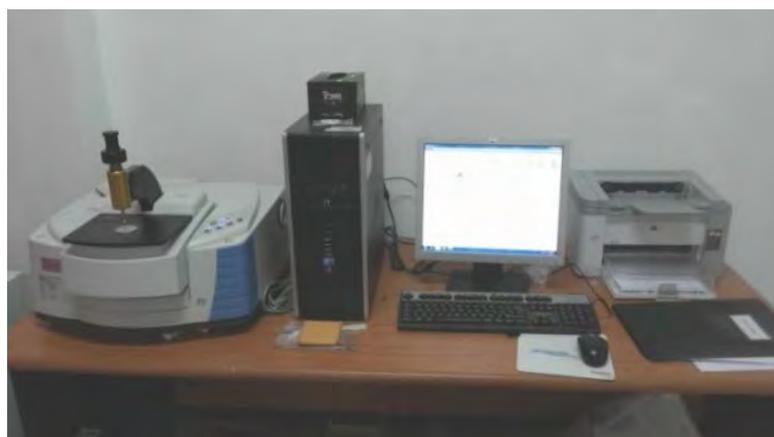
Pengujian BET (Bruner Emmet Teller) ini merupakan pengujian untuk mengetahui besar luas permukaan aktif pada sampel ( $m^2/g$ ). Prinsip kerja pengujian ini adalah dengan memanfaatkan daya serap sampel terhadap gas nitrogen. Sampel grafena diuji BET dengan mesin BET *Quantachrome AsiQwin* seperti yang terlihat pada gambar 3.18. Sampel yang diuji minimal memiliki massa 0,1 g. Pada pengujian ini sampel akan dipanaskan namun temperatur pemanasannya dibawah perlakuan aktivasi fisiknya agar tidak mempengaruhi hasil sampel grafena.



**Gambar 3.18** Mesin BET *Quanchrome AsiQwin*

#### **3.5.4. Pengujian Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR)**

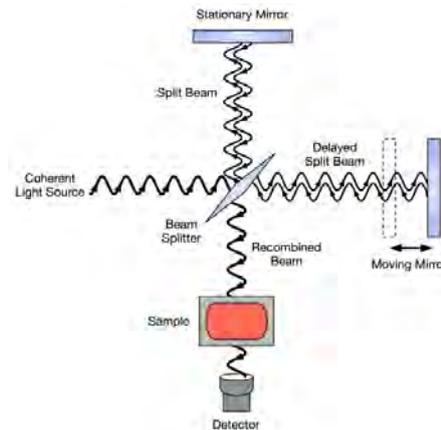
FTIR merupakan salah satu instrumen spektroskopi. Pada spektroskopi infra merah, radiasi inframerah dipancarkan mengenai sampel. Sebagian radiasi infra merah diserap oleh sampel sebagian yang lain ditransmisikan. Hasil spektrum infra merah menggambarkan penyerapan molekul dan transmisi, menggambarkan ciri khas sampel. Setiap molekul memiliki penyerapan berbeda sesuai dengan pola vibrasi dan pola ikatan antar atomnya. Tidak ada dua molekul yang menghasilkan spektrum infra merah yang sama. Oleh karena itu spektroskopi infra merah sangat berguna untuk berbagai analisis. FTIR dapat memberikan informasi mengenai material yang belum diketahui (teridentifikasi), mengenai kualitas sampel, dan mengetahui jumlah komponen dalam suatu campuran. Gambar 3.19 memperlihatkan instrumen uji FTIR.



**Gambar 3.19** Alat Uji FTIR



Prinsip kerja FTIR adalah berdasarkan penyerapan radiasi infra merah. Infra merah dipancarkan melalui interferometer kemudian dipancarkan melalui sampel, sebagian radiasi infrared diserap sampel dan sebagian lain dipancarkan kembali dan tertangkap oleh *detector*. Besarnya radiasi infra merah yang tertangkap oleh detektor kemudian diubah menjadi spektrum oleh Interferogram. Mekanisme kerja FTIR ini diperlihatkan pada Gambar 3.20



**Gambar 3.20** Skema Prinsip Kerja FTIR (Steven Voughan, 2009)

### 3.5.5. Pengujian Four Point Probe (FPP)

*4-Point Probe (FPP)* digunakan untuk mengukur resistivitas beberapa material semikonduktor. Instrumen ini dapat mengukur sampel bongkahan padat maupun lapisan tipis.

FPP memiliki 4 logam tungsten dengan radius tertentu. Setiap ujung ditahan oleh pegas relatif yang bergerak naik turun untuk meminimalkan kerusakan sampel ketika *probe* dipasang. Sebuah sumber arus mengalirkan arus melalui 2 *probe* terluar, sedangkan voltmeter mengukur tegangan pada kedua *probe* bagian dalam untuk mengukur resistivitas sampel. Gambar 3.21 memperlihatkan prinsip kerja FPP. konduktivitas listrik material dapat dihitung dengan persamaan 3.3

$$\frac{I}{A} = k \frac{d\phi}{dx} \quad (3.7)$$

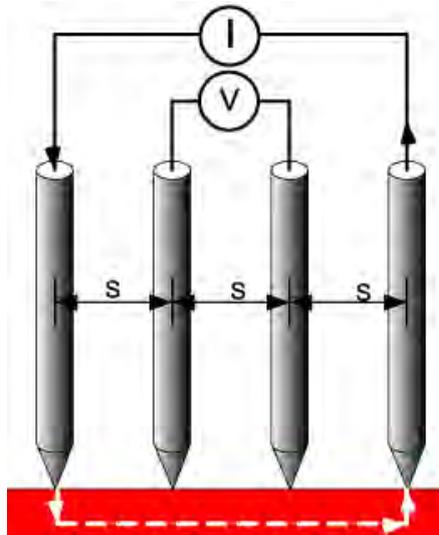
Dimana I : Arus listrik (A)

A : Luas permukaan (m<sup>2</sup>)

K : Konduktivitas Listrik (S/m)

$d\phi$ : Tegangan listrik

$dx$ : perubahan panjang



**Gambar 3.21** Four Point Probe Test ([www.google.com/images](http://www.google.com/images))

Resistivitas pada pengujian tersebut dinyatakan dengan :

$$\rho_s = \frac{V}{I} C \quad (3.8)$$

Dimana,

- $\rho_s$  = Resistivitas dari material
- $V$  = Beda Potensial yang diberikan
- $I$  = Arus yang terdeteksi
- $C$  = Geometrical Correction Factor

Konstanta  $C$  dapat ditentukan dengan menggunakan gambar 3.22, dimana terdapat nilai-nilai tertentu untuk perbandingan antara jarak antar probe dengan diameter atau panjang dari sampel yang akan diuji. Pada penelitian kali ini setiap sampel akan diuji dengan metode ini untuk mengetahui nilai konduktivitas elektrik dari setiap sampel hasil sintesis.



TABLE I — CORRECTION FACTOR C FOR THE MEASUREMENT OF SHEET RESISTIVITIES WITH THE FOUR-POINT PROBE

$d/s$	circle diam $d/s$	$a/d = 1$	$a/d = 2$	$a/d = 3$	$a/d \geq 4$
1.0				0.9988	0.9994
1.25				1.2467	1.2248
1.5			1.4788	1.4893	1.4893
1.75			1.7196	1.7238	1.7238
2.0			1.9454	1.9475	1.9475
2.5			2.3532	2.3541	2.3541
3.0	2.2662	2.4575	2.7000	2.7005	2.7005
4.0	2.9289	3.1137	3.2246	3.2248	3.2248
5.0	3.3625	3.5098	3.5749	3.5750	3.5750
7.5	3.9273	4.0095	4.0361	4.0362	4.0362
10.0	4.1716	4.2209	4.2357	4.2357	4.2357
15.0	4.3646	4.3882	4.3947	4.3947	4.3947
20.0	4.4364	4.4516	4.4553	4.4553	4.4553
40.0	4.5076	4.5120	4.5129	4.5129	4.5129
$\infty$	4.5324	4.5324	4.5324	4.5325	4.5324

Gambar 3.22 Geometrical Correction Factor (Smits F.M, 1958)

### 3.5.6. Pengujian Raman Spectroscopy

Raman Spectroscopy merupakan teknik yang digunakan untuk melihat ikatan kimia yang terdapat pada suatu sampel. Getaran yang dihasilkan akibat dari adanya ikatan kimia dan simetri molekul yang teridentifikasi oleh alat. Pengujian ini juga dapat dilakukan untuk mempelajari perubahan dalam ikatan kimia setelah mengalami suatu proses tertentu.

Teknik spektroskopi ini didasarkan pada hamburan cahaya *inelastic monochromatic* yang biasanya berasal dari laser. Hamburan inelastic ini menunjukkan adanya perubahan frekuensi foton melalui perubahan cahaya monokromatik saat berinteraksi dengan sampel.

Foton dari sinar laser diserap oleh sampel dan kemudian dipancarkan kembali. Frekuensi yang dipancarkan kembali oleh foton sedikit berubah sesuai dengan frekuensi monokromatik yang asli. Hal ini disebut sebagai efek Raman. Raman spectroscopy ini dapat digunakan untuk mempelajari material padat, cair dan gas. Mesin Raman yang digunakan adalah Renishaw Invia Raman Microscope, dengan software WiRE 2.0, seperti ditunjukkan oleh gambar 3.23



**Gambar 3.23** Mesin Raman *Spectroscopy*

### 3.5.7. Pengujian *Cyclic Voltammetry*

Pengujian dengan menggunakan *potentiostat* bertujuan untuk mengetahui sifat kapasitansi suatu material yang didapat dari grafik cyclic voltametri. *Potentiostat* yang digunakan untuk pengujian adalah Jiehan 5000 Electrochemical Workstation seperti yang terlihat pada gambar 3.24.

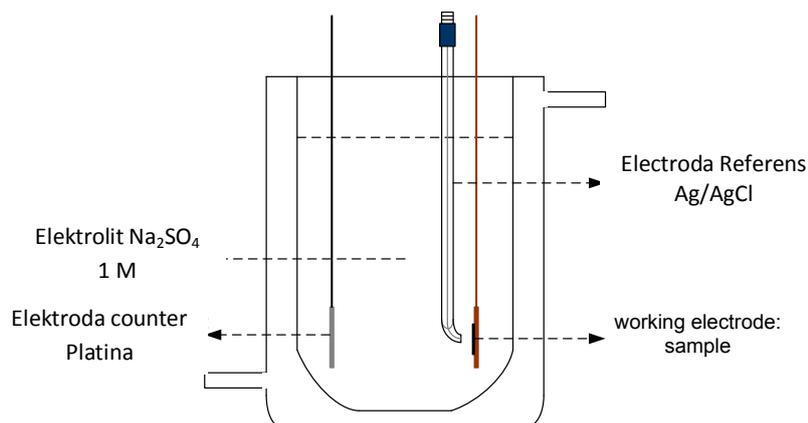


**Gambar 3.24** Alat Jiehan 5000 Electrochemical Workstation untuk pengujian CV



Untuk mengukur property kapasitif, *potensiostat* akan digunakan untuk melakukan analisa *cyclic voltammetry* (CV). Pengukuran akan menggunakan set-up 3 elektroda yang terdiri dari elektroda kerja (Grafena), elektroda referens (Ag/AgCl) dan elektroda counter (Platina) di dalam larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1 M. Variasi yang digunakan adalah rentang potential, yaitu dari 0 sampai 0.8 Volt, dan juga dari -0.2 sampai -0.7 Volt. Selain itu juga digunakan variasi elektrolit, yaitu menggunakan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , dan  $\text{K}_2\text{SO}_4$ .

Pada Gambar 3.25 menunjukkan skema penyusunan set up 3 elektroda. Penyusunan sampel seperti ini disebut konfigurasi bidang parallel, Sampel berupa grafena digunakan sebagai elektroda kerja yang dihadapkan pada elektroda referens Ag/AgCl. Sedangkan kan untuk elektroda counter yang digunakan adalah platina. Semua elektroda dicelupkan didalam larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1 M.



**Gambar 3.25** Skema set-up 3 elektroda

Pada pengujian ini yang didapat adalah grafik *cyclic voltammetry* dan untuk menghitung besarnya kapasitansi spesifik digunakan persamaan 3.5 dibawah ini. Di samping itu, data dari CV menggambarkan kelakuan kapasitif elektrokimia dari elektroda-elektroda. Akhirnya, hasil penelitian akan dibandingkan dan disimpulkan.

$$C = \frac{\int idV}{\frac{2 w \gamma}{\Delta E}} \quad (3.9)$$



Dimana :

C	= Kapasitansi Spesifik (Farad/gram)
I	= Arus (Ampere)
w	= Massa Elektroda Grafena (gram)
$\gamma$	= Scan Rate (mV/s)
$\Delta E$	= Potential Window (Volt)

Dari hasil pengujian *Cyclic Voltammetry* kita juga bisa mengetahui nilai Densitas Energi (E) dan Densitas Power (P) dengan menggunakan rumus dibawah ini.

$$E = 0.5 \times C \times (\Delta V)^2$$

$$P = \frac{E}{t} \quad (3.10)$$

Dimana :

E	= Densitas Energi (Wh/kg)
C	= Kapasitansi (Farad/gram)
( $\Delta V$ )	= Potential Window (Volt)
P	= Densitas Power (W/kg)
t	= Waktu discharge (sekon)

### 3.5.8. Pengujian *Electrochemical Impedance Spectroscopy* (EIS)

*Electrochemical Impedance Spectroscopy* (EIS) adalah suatu metode untuk menganalisis suatu elektroda terhadap sinyal potensial AC pada amplitudo rendah (~10 mV) dari rentang frekuensi yang sangat lebar. Pada prinsipnya, EIS digunakan untuk menentukan parameter kinetika elektrokimia berkaitan dengan unsur-unsur listrik seperti tahanan R, kapasitansi C dan induksi L.

Tahanan listrik dalam EIS dinyatakan dengan impedansi (Z) yaitu ukuran kemampuan suatu rangkaian dalam menahan aliran arus listrik. Dalam impedansi, sinyal potensial dan arus AC berada dalam fase berbeda dan nilainya dipengaruhi oleh frekuensi. EIS diukur melalui potensial AC yang dialirkan pada sel elektrokimia untuk mengetahui besar arus yang mengalir dalam sistem.



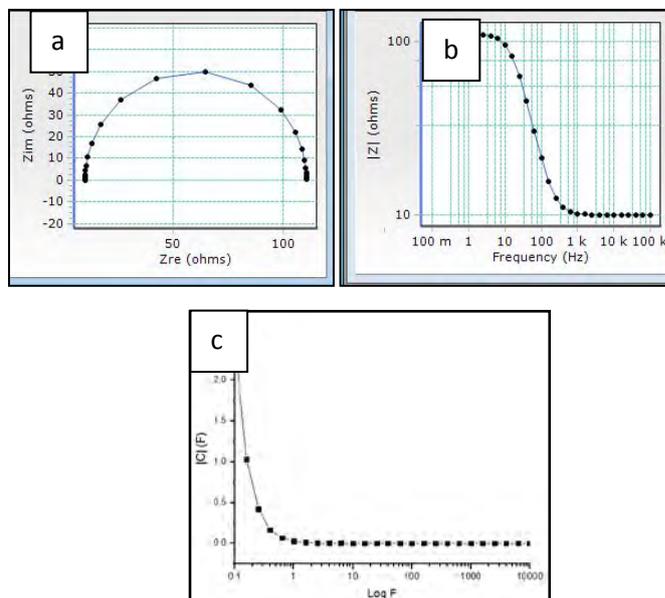
Impedansi dari sistem sel elektrokimia  $Z$ , ditentukan berdasarkan analogi hukum Ohm seperti persamaan 3.11 di bawah ini. Dengan  $\omega$  adalah frekuensi radial,  $\omega=2\pi f$  (rad/sekon), dimana  $f$  adalah frekuensi (Hz).

$$Z = \frac{Et}{It} = \frac{\sin \omega t E_0}{\sin \omega t + \phi I_0} = Z_0 \frac{\sin \omega t E}{\sin \omega t + \phi I} \quad (3.11)$$

Dimana :

- $Z$  = Impedansi ( $\Omega$ )
- $E$  = Voltase (V)
- $I$  = Arus listrik (A)
- $\omega$  = Frekuensi radial (rad/s)
- $\phi$  = Sudut (fase) (rad)

Dari hasil pengujian EIS diperoleh tiga grafik utama yaitu plot Nyquist, plot Bode [ $Z$ ] dan plot Bode [ $C$ ] seperti pada gambar 3.26 berikut ini.

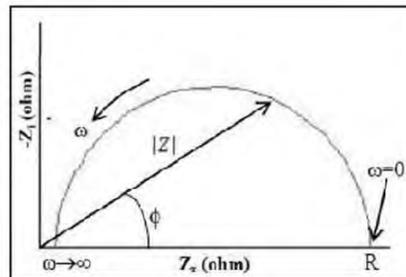


**Gambar 3.26** Grafik hasil pengujian EIS:

(a) plot Nyquist, (b) plot Bode[ $Z$ ] dan (c) plot Bode [ $C$ ]



Plot Nyquist menjelaskan hubungan antara impedansi real ( $Z_{real}$ ) dan impedansi imajiner ( $Z_{im}$ ). Jika impedansi real diletakkan pada sumbu-x dan impedansi imajiner pada sumbu y akan diperoleh aturan Nyquist. Berdasarkan aturan Nyquist, impedansi dapat dinyatakan sebagai vektor dengan panjang sudut antar vector dan sumbu-x adalah  $\phi$ , seperti gambar 3.27 berikut:



**Gambar 3.27.** Aturan Nyquist.

Grafik kedua hasil pengujian EIS yaitu Bode[ $Z$ ] menjelaskan hubungan antara frekuensi (Hz) terhadap impedansi mutlak (Ohm). Pada umumnya semakin tinggi nilai frekuensi maka semakin kecil nilai impedansi mutlak. Sedangkan grafik ketiga yaitu Bode [ $C$ ], menjelaskan hubungan antara frekuensi (Hz) terhadap kapasitansi. Dari Bode [ $C$ ] dapat diketahui kapasitansi material tiap frekuensi yang berbeda.

Pengujian EIS menggunakan set-up 3 elektroda, dengan komposisi sama dengan pengujian CV, menggunakan alat Solartron SI 1287 Electrochemical Interface dan SI 1260 Impedance/Gain-Phase Analyzer, seperti ditunjukkan oleh gambar 3.28. Variasi yang digunakan adalah variasi potential, yaitu dari -0.7 sampai -0.2 Volt.



**Gambar 3.28.** Mesin Uji EIS



Nilai kapasitansi dari data EIS dapat diperoleh dengan menggunakan rumus sebagai berikut.

$$C = -1/2 \pi f Z'' \quad (3.12)$$

Dimana :

C = Kapasitansi (Farad/gram)

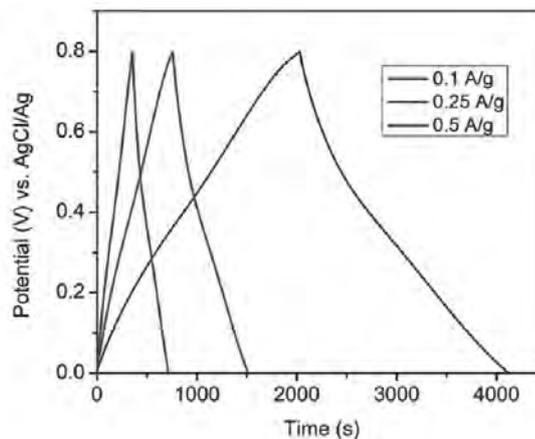
$\pi$  = 3.14

f = Frekuensi (Hertz)

$Z''$  = Nilai Impedance Imajiner ( $\Omega$ )

### 3.5.9. Pengujian *Charge-discharge*

Pengujian charge discharge digunakan untuk mengetahui kemampuan suatu material untuk menyimpan energi. Kapasitas energi atau muatan dinyatakan dalam satuan Farad/gram. Grafik charge discharge menampilkan hubungan potensial dan waktu seperti yang terlihat pada gambar 3.29 di bawah ini.



**Gambar 3.29** Contoh grafik hasil pengujian charge discharge (Yi Huang, 2012)

Dalam penelitian ini digunakan variasi Densitas Arus yaitu mulai dari 1 Ampere/gram sampai dengan 5 Ampere/gram, dengan menggunakan rentang potensial dari -0.7 sampai -0.2 Volt. Alat yang digunakan untuk pengujian Charge Discharge adalah Jiehan 5000 Electrochemical Workstation, seperti yang digunakan pada pengujian *Cyclic Voltammetry*.



Nilai Kapasitansi juga dapat diketahui dari hasil pengujian Charge-Discharge dengan menggunakan rumus sebagai berikut. Perlu diperhatikan, bahwa nilai kapasitansi dihitung pada saat discharging, bukan pada saat charging.

$$C = \frac{I \times t}{m \times \Delta E} \quad (3.13)$$

Dimana :

- C = Kapasitansi (Farad/gram)
- I = Arus (Ampere)
- t = Waktu discharge (Sekon)
- m = Massa aktif dari material elektroda (gram)
- $\Delta E$  = Potential Window (Volt)

Elektroda untuk pengujian CV, EIS, dan Charge Discharge dibuat dengan cara mencelupkan nickel foam ukuran 10 cm x 1 cm di dalam larutan grafena (40 mg/ml). Bagian yang tercelup adalah sebesar 1 cm<sup>2</sup>. Lalu di *stirring* selama 30 menit, kemudian dilanjutkan dengan ultrasonikasi 10 menit untuk memastikan grafena telah masuk ke dalam pori-pori nickel foam. Setelah itu, spesimen di drying di dalam *muffle furnace* pada T=110<sup>0</sup>C selam 12 jam. Setelah kering, spesimen di press dengan menggunakan mesin pengepres dengan waktu tahan 13 detik, lalu di redam di dalam larutan elektrolit yang akan digunakan, minimal 5 jam sebelum pengujian dimulai. Berikut adalah gambar dari spesimen grafena yang di depositkan di dalam nickel foam.



**Gambar 3.30** Bentuk spesimen pengujian CV, EIS, dan Charge Discharge. Tanda persegi hitam menunjukkan area yang di *press* (1 cm<sup>2</sup>).



### 3.6 Rancangan Penelitian

**Tabel 3.1** Rancangan Penelitian

SPESI MEN	TEMPERATUR HIDROTERMAL	WAKTU ULTRASONI KASI	PENGUJIAN								
			X R D	S E M	B E T	F T I R	KONDUK TIVITAS	R A M A N	CHARGE- DISCHARGE	C V	E I S
1	160 <sup>0</sup> C	1.5 jam	√	√	√	√	√	√	√	√	√
2			√	√		√	√	√	√	√	
3			√	√		√	√	√	√	√	
4	180 <sup>0</sup> C	2 jam	√	√	√	√	√	√	√	√	√
5			√	√		√	√	√	√	√	
6			√	√		√	√	√	√	√	
7	200 <sup>0</sup> C	2.5 jam	√	√	√	√	√	√	√	√	√
8			√	√		√	√	√	√	√	
9			√	√		√	√	√	√	√	
Grafit			√	√	X	X	X	√	X	X	X
Grafit Oksida			√	√	X	√	X	√	X	X	X
Grafena Oksida			X	X	X	X	X	X	√	√	√

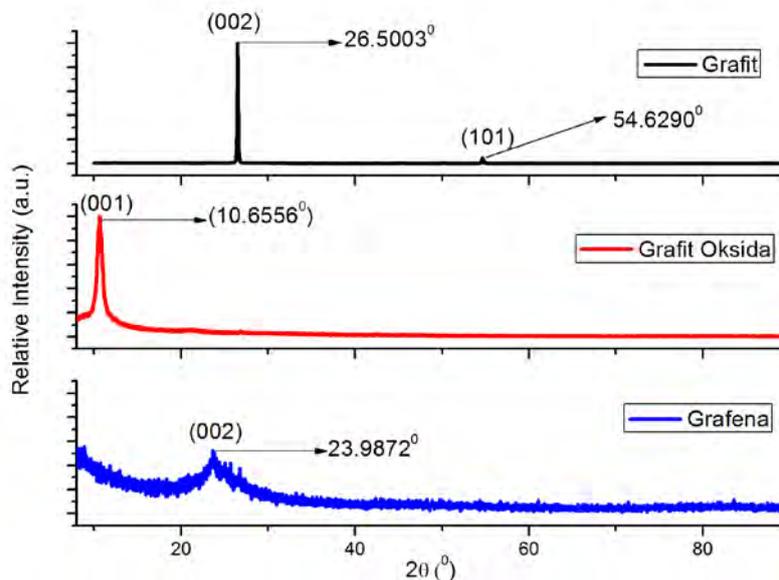


## BAB IV

### HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.1 Hasil Pengujian XRD

Pengujian XRD dilakukan pada grafit, grafit oksida dan grafena. Pengujian ini dilakukan untuk mengetahui perbedaan posisi puncak dari ketiganya, yang mengindikasikan terjadinya perubahan struktur yang terjadi dari grafit menjadi grafena. Gambar 4.1 menunjukkan perbedaan posisi puncak antara grafit, grafit oksida, dan grafena.



**Gambar 4.1** Pola XRD dari grafit, grafit oksida, dan grafena

Dari gambar diatas dapat dilihat bahwa awalnya, pada grafit terdapat peak (002) yang sangat tajam pada posisi  $2\theta = 26.5003^\circ$ , dan peak (004) yang lemah pada posisi  $54.6290^\circ$ . Hal ini menunjukkan bahwa sifat kristalinitas grafit sangat bagus. Saat proses oksidasi dilakukan, maka terbentuklah grafit oksida. Peak (002) dan (004) menghilang sepenuhnya, berganti dengan terbentuknya peak (001) pada posisi  $10.6556^\circ$ . Peak ini juga cukup tajam, namun intensitasnya sudah menurun apabila dibandingkan dengan grafit. Kemudian dilakukan proses reduksi dengan menggunakan Zn untuk memperoleh grafena. Hasilnya adalah peak (001) menghilang sepenuhnya, berganti dengan terbentuknya peak yang lebar (*broad*) pada posisi  $\pm 23-24^\circ$ . Peak ini juga bernama (002), dengan intensitas yang sangat menurun drastis, dan cenderung bersifat



amorf. Nilai intensitas dari peak (002) yang semakin melemah jika dibandingkan dengan grafit oksida ataupun grafit, menunjukkan bahwa jumlah layer dari lembaran grafena telah menurun, akibat adanya proses pengelupasan kimia (*chemical exfoliation*), yang berarti juga semakin bagus kualitas dari grafena yang dibuat.

Perhitungan jarak antar layer (*interlayer distance*) dari grafit, grafit oksida, dan grafena dapat dilakukan dengan menggunakan persamaan 4.1 dan hasilnya diTabelkan pada Tabel 4.1

$$d_{002} = \frac{\lambda}{2 \sin \theta} \quad (4.1)$$

Dimana:

- $d_{002}$  = Jarak antar layer (Å)  
 $\lambda$  = Panjang gelombang (1.54 Å)  
 $\theta$  = Sudut difraksi ( $^{\circ}$ )

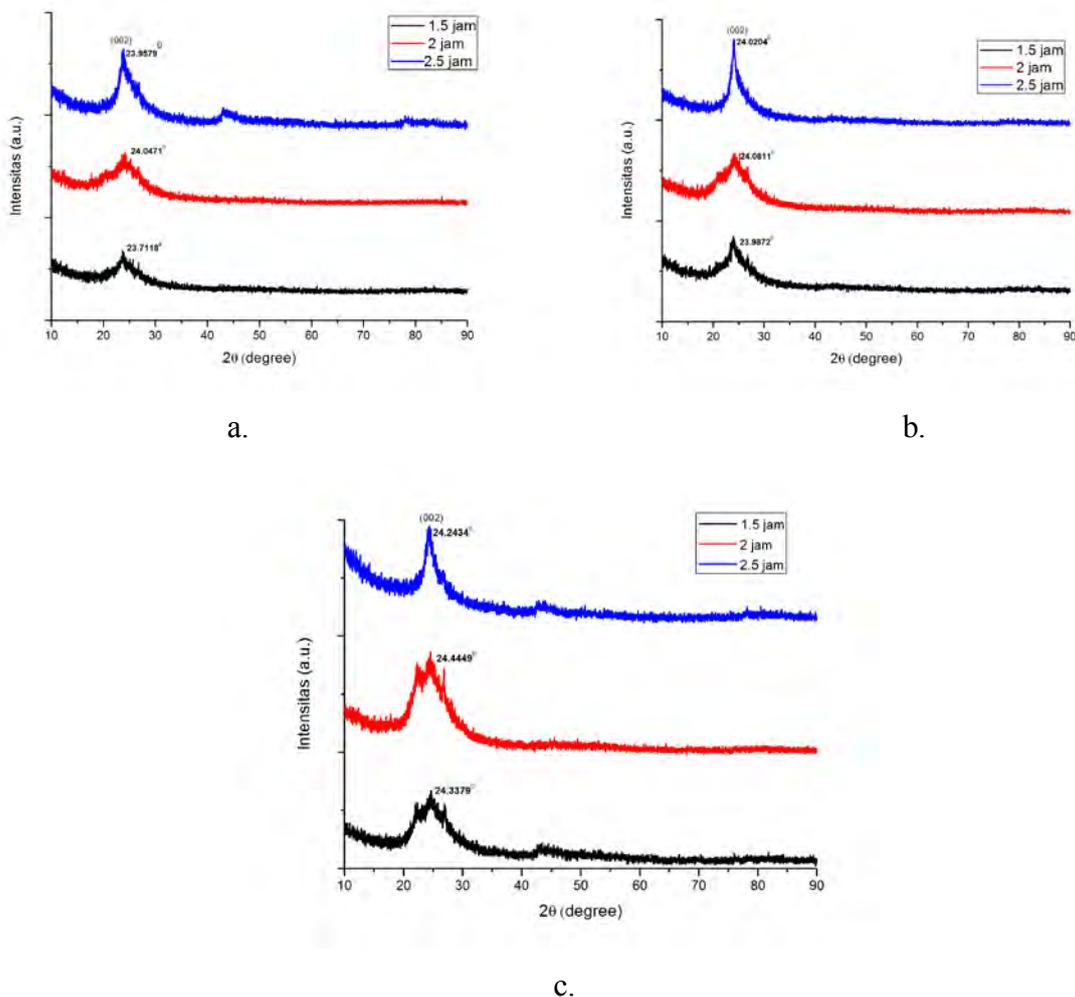
**Tabel 4.1** Perhitungan jarak antar layer pada grafit, grafit oksida, dan grafena

No	Temperatur Hidrotermal	Waktu ultrasonikasi	Jarak Antar Layer (Å)
1	160 <sup>0</sup> C	1.5 jam	3.75422
2		2 jam	3.70085
3		2.5 jam	3.71442
4	180 <sup>0</sup> C	1.5 jam	3.70995
5		2 jam	3.69569
6		2.5 jam	3.70490
7	200 <sup>0</sup> C	1.5 jam	3.65728
8		2 jam	3.64152
9		2.5 jam	3.67133
Grafit			3.30
Grafit Oksida			8.298

Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa terjadi peningkatan jarak antar layer dari grafit ke grafit oksida. Hal ini terjadi akibat terbentuknya gugus fungsional oksigen dan peningkatan kadar air di antara lapisan grafit oksida karena adanya proses oksidasi. Kemudian, pada grafena, nilai jarak antar layer menurun lagi mendekati nilai dari grafit, yang mengindikasikan adanya proses reduksi yang telah menghilangkan gugus fungsional oksigen dan air, sehingga diperoleh



struktur grafena, yang hanya berisi atom karbon, sebagaimana halnya grafit. Namun demikian, nilai dari jarak interlayer hasil pengujian masih lebih besar dibandingkan dengan grafit, yang mengindikasikan bahwa masih ada sedikit gugus fungsional yang tersisa. Selain itu dapat dilihat bahwa nilai jarak antar layer menurun seiring dengan meningkatnya temperatur hidrotermal, yang diikuti dengan pergeseran peak (002) ke sudut difraksi yang lebih besar, seperti ditunjukkan oleh gambar 4.2 dan Tabel 4.2



**Gambar 4.2** Pola XRD dari grafena pada temperatur hidrotermal a)160°C, b)180°C, c) 200°C dengan berbagai variasi waktu ultrasonikasi, 1.5, 2, dan 2.5 jam

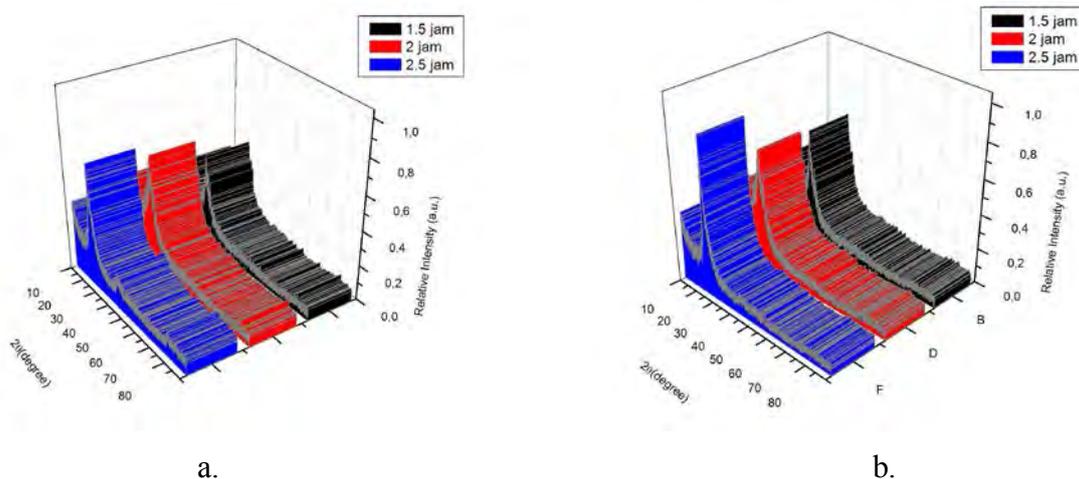


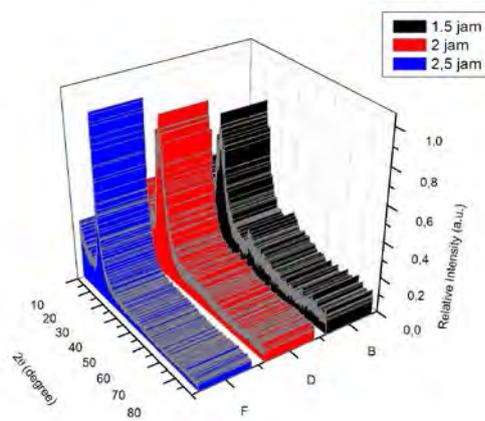
**Tabel 4.2** Posisi 2 $\theta$  dari berbagai macam variasi grafena

No	Temperatur Hidrotermal	Waktu ultrasonikasi	Posisi 2 $\theta$ ( $^{\circ}$ )
1	160 $^{\circ}$ C	1.5 jam	23.7118
2		2 jam	24.0471
3		2.5 jam	23.9579
4	180 $^{\circ}$ C	1.5 jam	23.9872
5		2 jam	24.0811
6		2.5 jam	24.0204
7	200 $^{\circ}$ C	1.5 jam	24.3379
8		2 jam	24.44
9		2.5 jam	24.24

Sedangkan waktu ultrasonikasi juga mempunyai pola unik tersendiri. Jarak antar layer dari grafena menurun pada saat peningkatan waktu ultrasonikasi dari 1.5 jam menjadi 2 jam, kemudian naik kembali pada saat waktu ultrasonikasi 2.5 jam. Sementara itu, posisi 2 $\theta$  mengalami kenaikan saat waktu ultrasonikasi naik dari 1.5 jam menjadi 2 jam, kemudian turun kembali pada saat waktu ultrasonikasi naik menjadi 2.5 jam.

Selain itu, nilai intensitas dari peak (002) mempunyai pola yang sama baik karena peningkatan temperatur ataupun waktu ultrasonikasi, seperti ditunjukkan pada gambar 4.3. Dari gambar tersebut kita dapat melihat, bahwa nilai intensitas semakin naik seiring dengan peningkatan temperatur ataupun waktu ultrasonikasi.



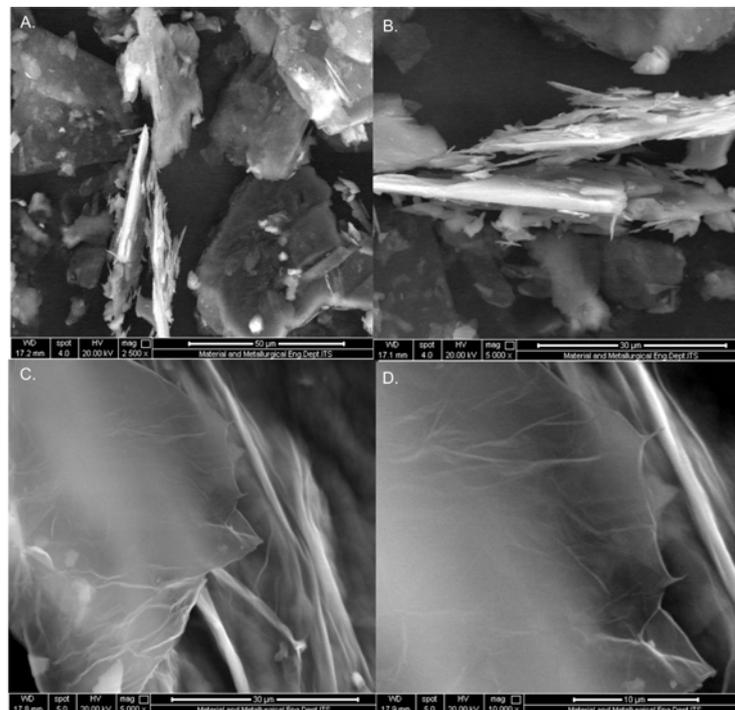


c.

**Gambar 4.3** Pola intensitas peak (002) dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal a) 160<sup>0</sup>C, b) 180<sup>0</sup>C, c) 200<sup>0</sup>C dan berbagai variasi waktu ultrasonikasi 1.5, 2, dan 2.5 jam

#### 4.2 Hasil Pengujian SEM-EDS

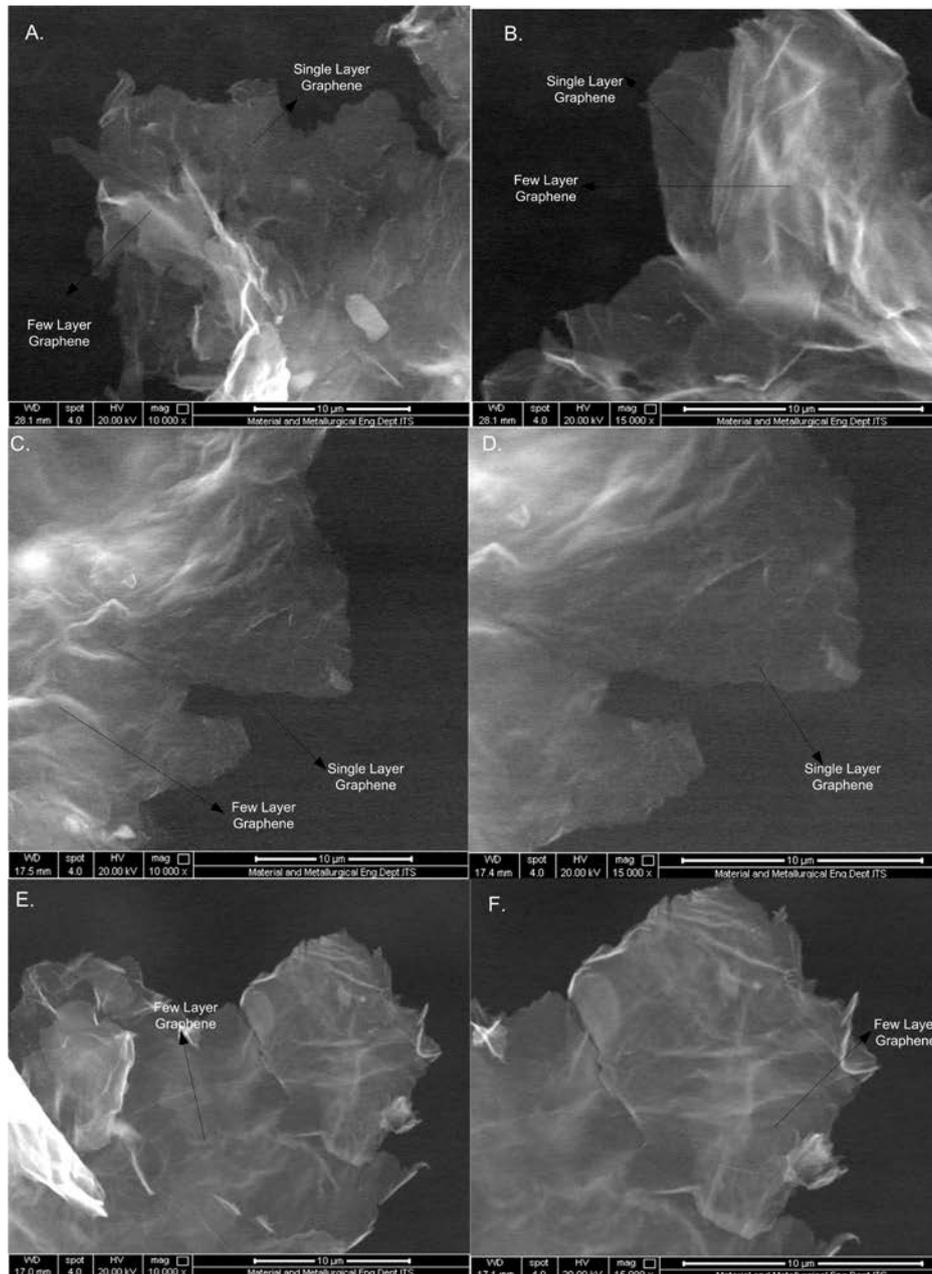
Pengujian SEM dilakukan terhadap grafit, grafit oksida, grafena, dan elektroda grafena-Nickel Foam untuk mengetahui morfologi permukaannya. Gambar 4.4 menunjukkan struktur morfologi grafit dan grafit oksida.



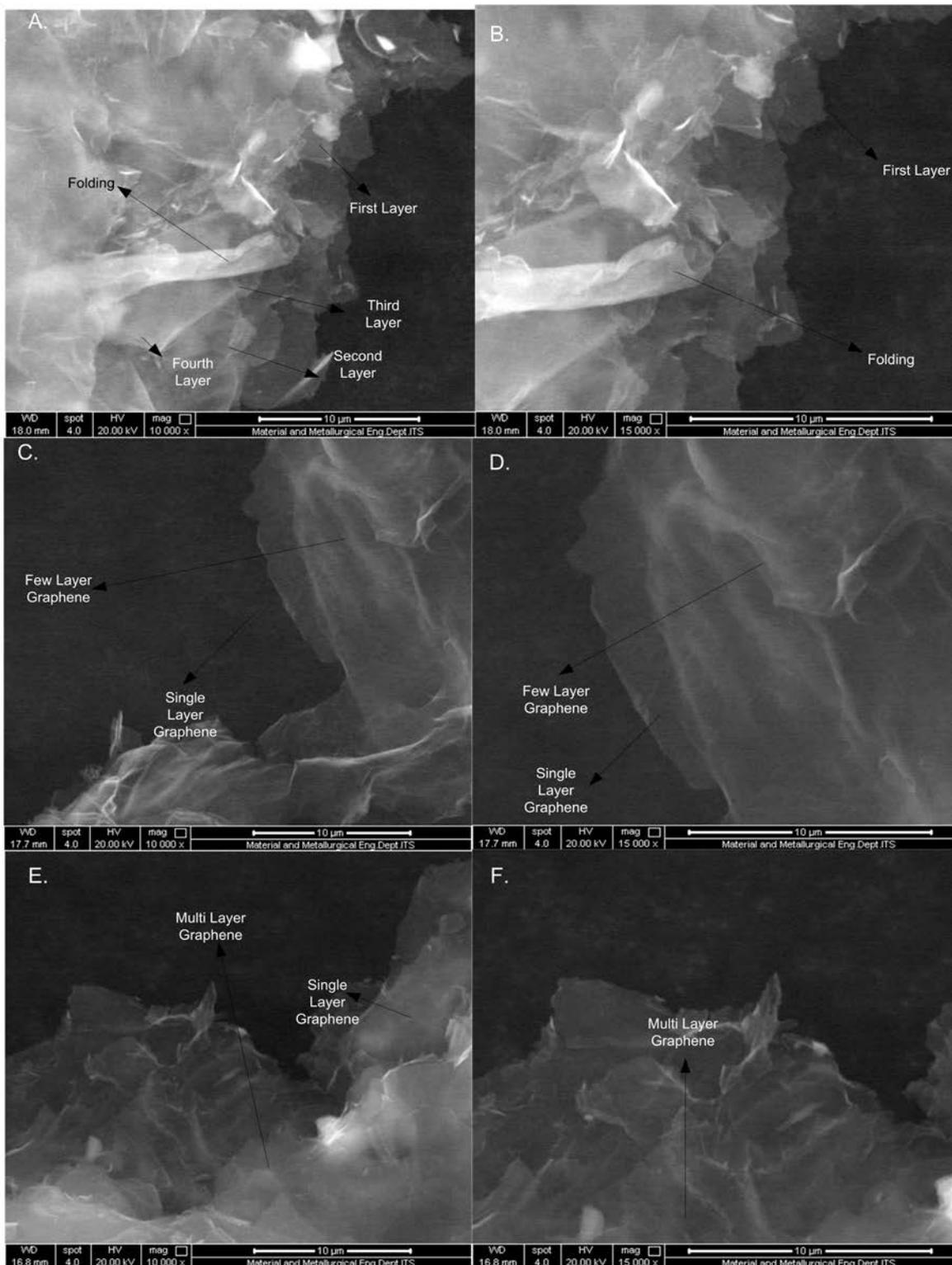
**Gambar 4.4** Struktur Morfologi grafit (A,B) dan grafit oksida (C,D)



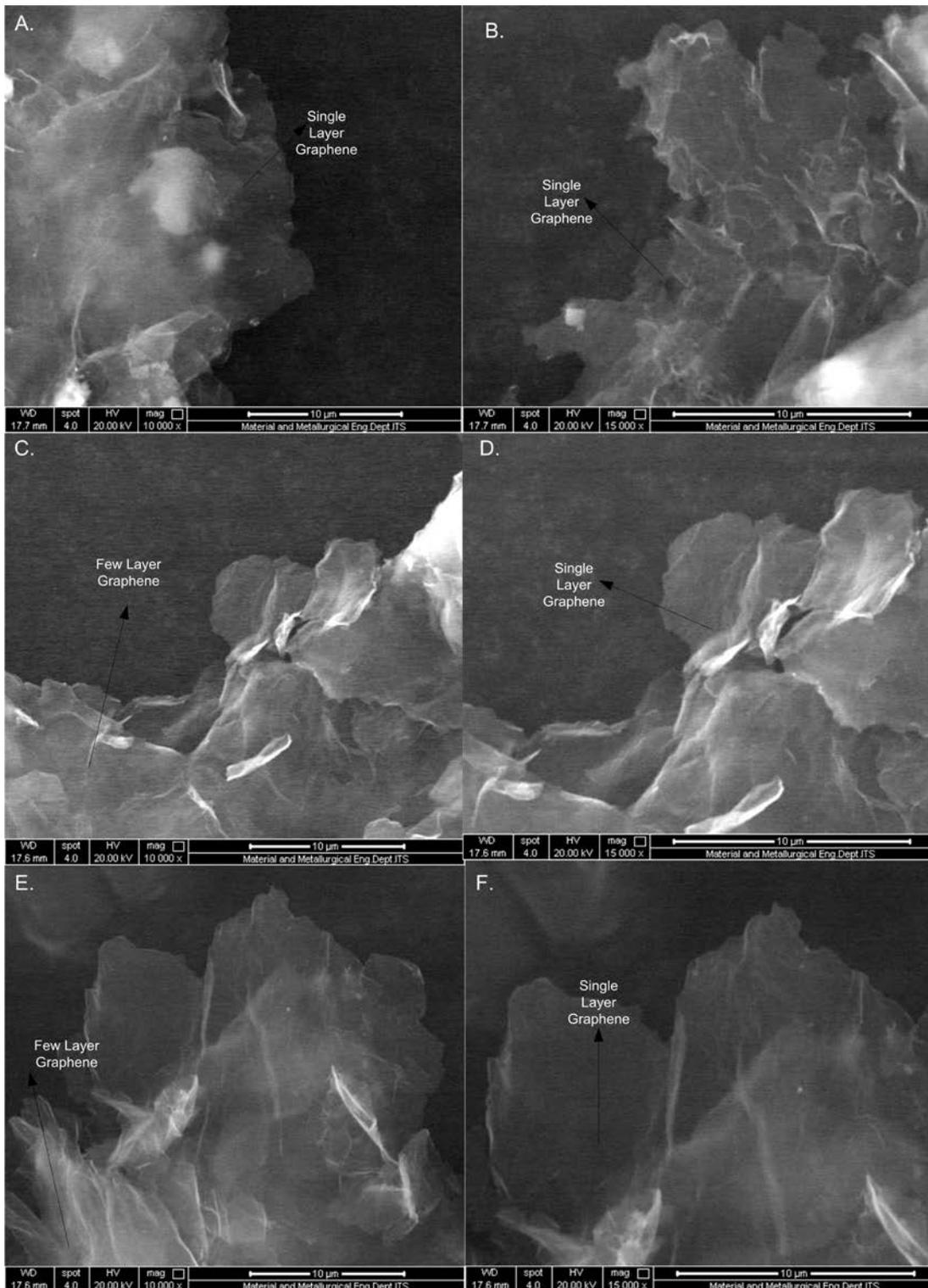
Dari gambar diatas dapat dilihat bahwa struktur morfologi grafit adalah berbentuk seperti serpihan atau *flakes*, yang tidak beraturan. Sedangkan grafit oksida menunjukkan morfologi lembaran tipis yang transparan, bening, yang sangat jauh berbeda dengan grafit. Hal ini menunjukkan telah terjadi perubahan struktur, yang memperlihatkan bahwa grafit telah berhasil di oksidasi secara sempurna menjadi grafit oksida



**Gambar 4.5** Bentuk morfologi grafena pada waktu ultrasonikasi 1.5 jam dengan variasi temperatur hidrotermal 160<sup>0</sup>C (A-B), 180<sup>0</sup>C (C-D), dan 200<sup>0</sup>C (E-F)



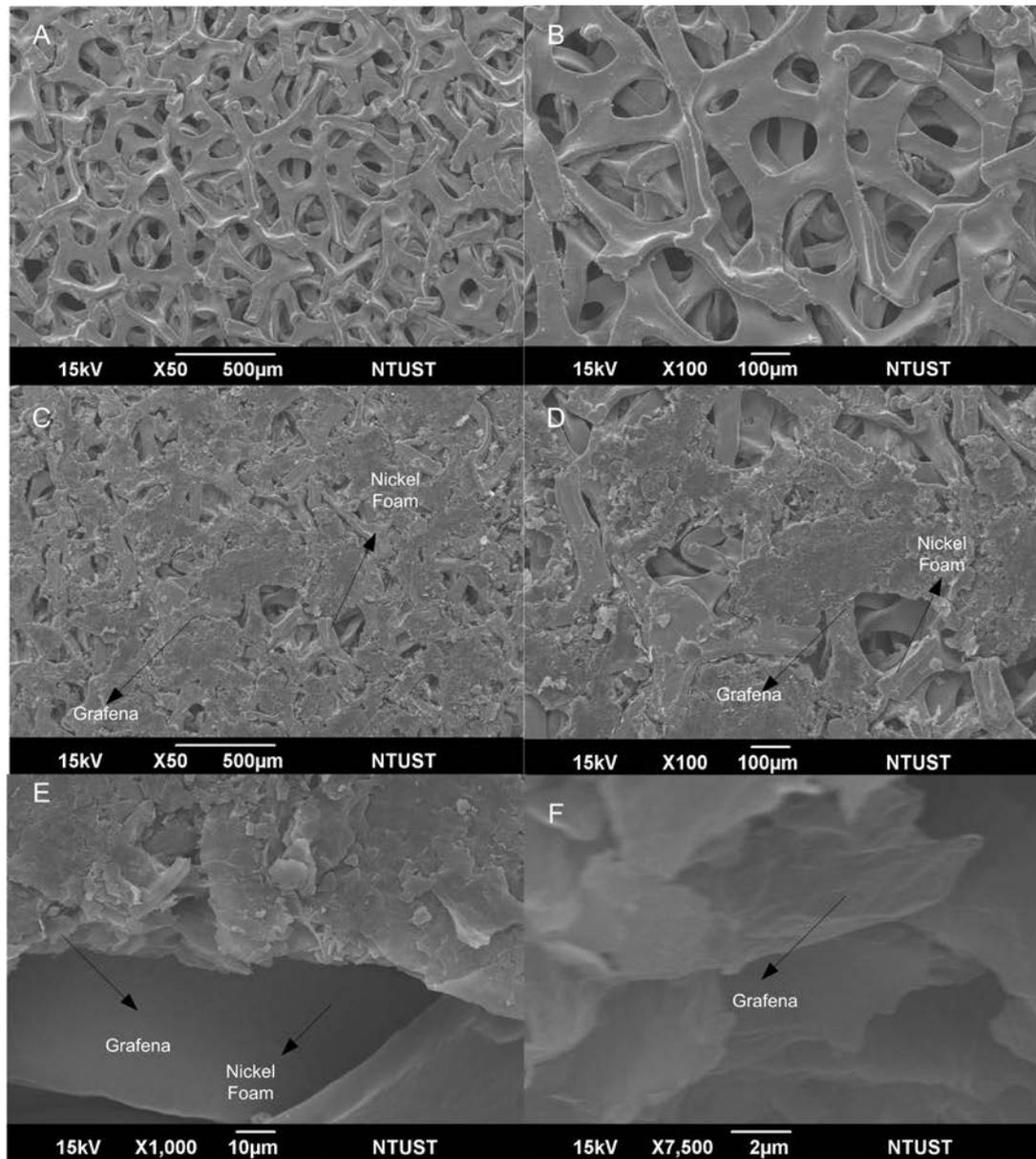
**Gambar 4.6** Bentuk morfologi grafena pada waktu ultrasonikasi 2 jam dengan variasi temperatur hidrotermal 160<sup>0</sup>C (A-B), 180<sup>0</sup>C (C-D), dan 200<sup>0</sup>C (E-F)



**Gambar 4.7** Bentuk morfologi grafena pada waktu ultrasonikasi 2.5 jam dengan variasi temperatur hidrotermal 160<sup>0</sup>C (A-B), 180<sup>0</sup>C (C-D), dan 200<sup>0</sup>C (E-F)



Gambar 4.5 sampai 4.7 menunjukkan bentuk morfologi permukaan grafena. Dari semua hasil tersebut, dapat kita lihat bahwa ke 9 sampel grafena mempunyai bentuk morfologi yang sama, yaitu berupa lembaran transparan tipis, yang terdiri dari beberapa layer grafena, kadang juga terlihat adanya *single layer*, ataupun struktur *multi layer* dan adanya pelipatan atau *folding* dari layer grafena.



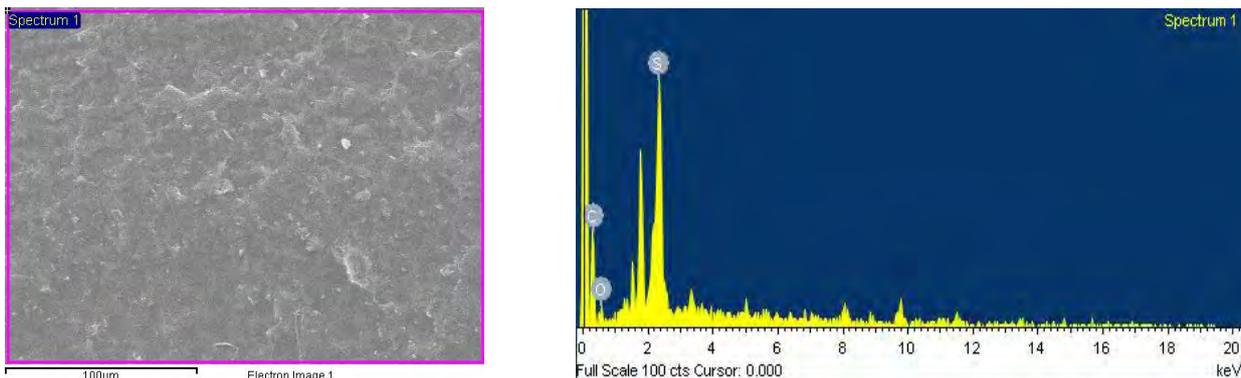
**Gambar 4.8** Morfologi Nickel Foam (A-B) dan elektroda EDLC grafena-Nickel Foam (C-F)

Selain itu, dari gambar 4.5-4.7 nampak terlihat bahwa lapisan grafena semakin tipis seiring dengan peningkatan waktu ultrasonikasi dari 1.5 sampai 2.5 jam. Kondisi ultrasonikasi 2



jam menunjukkan morfologi yang paling tipis dan transparan. Selain itu, nampak terlihat juga bahwa peningkatan temperatur hidrotermal juga menyebabkan lapisan grafena yang terbentuk menjadi semakin tipis. Hal ini ditunjang dari nilai jarak antar layer yang diperoleh dari XRD, menunjukkan bahwa jarak yang paling dekat adalah pada saat waktu ultrasonikasi 2 jam pada masing-masing temperatur hidrotermal, dan nilai jarak antar layer paling rendah adalah pada temperatur 200<sup>0</sup>C.

Gambar 4.8 menunjukkan bentuk morfologi dari Nickel Foam dan elektroda EDLC yang terbuat dari Nickel Foam yang dicelupkan ke dalam larutan grafena. Tampak bahwa bentuk morfologi Nickel Foam berupa pori-pori seperti busa. Ketika Nickel Foam dicelupkan ke dalam grafena, maka akan ada grafena yang mengisi rongga-rongga dari pori-pori Nickel Foam. Grafena ini akan tampak jelas mengisi di sela-sela rongga, dan ketika dilakukan pengamatan dengan perbesaran 7500x, nampak adanya struktur khas lembaran grafena.



**Gambar 4.9** Hasil Kurva EDS untuk grafit oksida

**Tabel 4.3** Komposisi unsur penyusun grafit oksida

Unsur	% Berat	% Atomik
C K	72.82	83.70
O K	10.64	9.18
S K	16.54	7.12
Total	100	

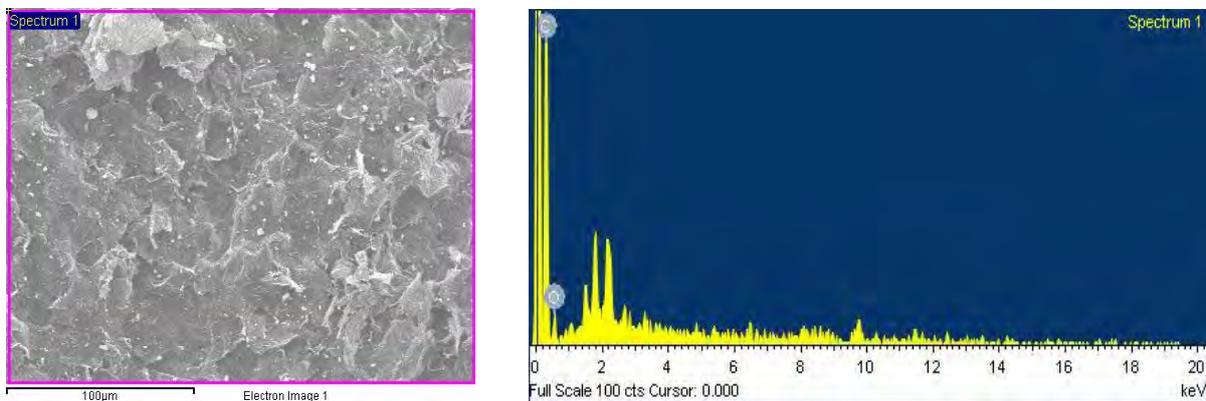
Selanjutnya, dilakukan pengujian EDS terhadap grafit oksida, grafena dan elektroda grafena- Nickel Foam untuk mengetahui kandungan unsur yang terdapat di dalamnya, dan juga



untuk mengetahui rasio C/O. Hasil EDS untuk grafit oksida ditunjukkan oleh gambar 4.9 dan Tabel 4.3.

Dari Tabel diatas, dapat diketahui bahwa grafit oksida tersusun atas unsur C , O , dan S. Keberadaan unsur S ini berasal dari sisa  $H_2SO_4$  yang belum sepenuhnya hilang pada saat proses oksidasi grafit. Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa nilai rasio C/O untuk grafit oksida adalah sebesar 6.84.

Hasil pengujian EDS untuk grafena ditunjukkan pada gambar 4.10 dan Tabel 4.4 berikut ini.



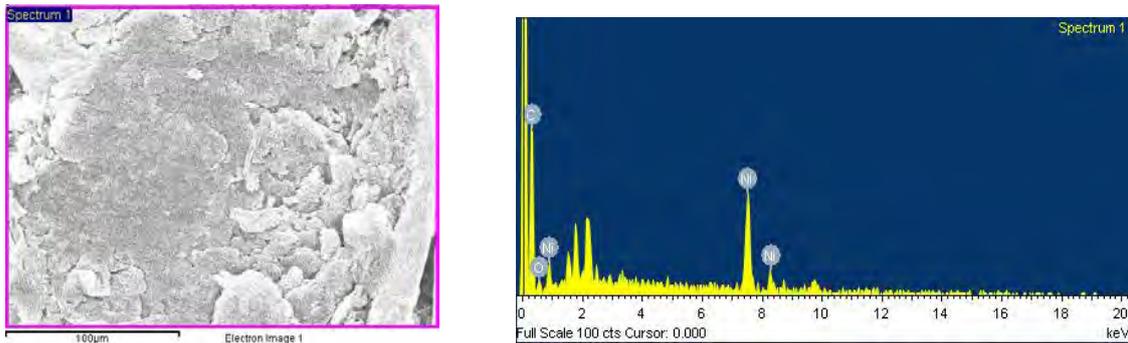
**Gambar 4.10** Hasil Kurva EDS untuk grafena

**Tabel 4.4** Komposisi unsur penyusun grafena

Unsur	% Berat	% Atomik
C K	81.98	85.84
O K	18.02	14.16
Total	100	

Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa grafena hanya terdiri dari C dan O, yang mengindikasikan bahwa proses reduksi berjalan dengan baik. Selain itu, jumlah % berat C meningkat jika dibandingkan dengan grafit oksida, yang menunjukkan peningkatan kualitas dari material. Nilai rasio C/O untuk grafena berdasarkan Tabel diatas adalah sebesar 4.54.

Hasil pengujian EDS untuk elektroda grafena-Nickel Foam ditunjukkan pada gambar 4.11 dan Tabel 4.5 berikut ini.



**Gambar 4.11** Hasil kurva EDS untuk grafena-Nickel Foam

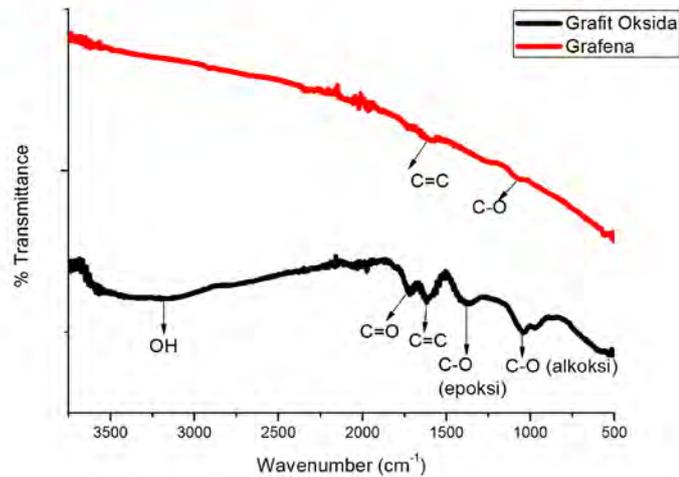
**Tabel 4.5** Komposisi unsur penyusun grafena-Nickel Foam

Unsur	% Berat	% Atomik
C K	60.22	84.53
O K	5.28	5.56
Ni K	34.50	9.91
Total	100	

Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa elektroda grafena-Nickel Foam memang terdiri dari C, O, dan Ni, tanpa adanya kemunculan unsur impuritis apapun.

### 4.3 Hasil Pengujian FTIR

Pengujian FTIR dilakukan terhadap grafit oksida dan grafena, untuk mengetahui jenis ikatan apa saja yang ada di dalamnya, dan juga untuk membedakan antara grafit oksida dan grafena. Hal yang paling mendasar yang embedakan antara grafit oksida dan grafena adalah adanya gugus fungsional OH yang sangat besar pada grafit oksida, yang mengindikasikan banyaknya kandungan air pada material. Gambar 4.12 menunjukkan perbandingan hasil FTIR antara grafit oksida dan grafena.



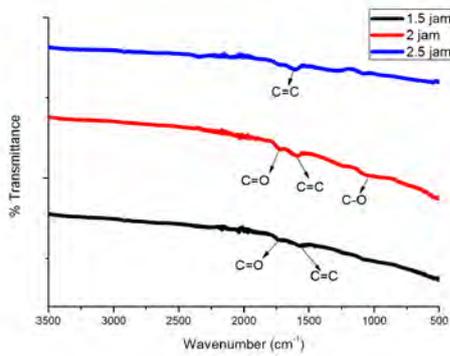
**Gambar 4.12** Pola FTIR grafit oksida dan grafena

Jenis gugus ikatan yang terdapat pada grafit oksida dapat dilihat pada Tabel 4.6.

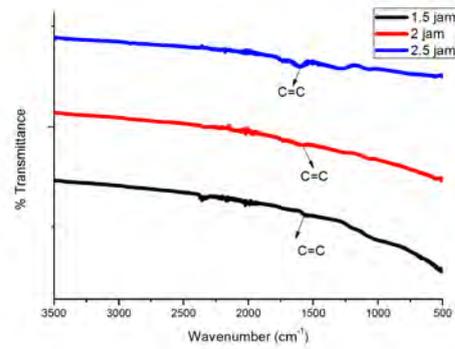
**Tabel 4.6** Jenis gugus ikatan pada grafit oksida (George Socrates, 2001)

NO	Posisi Peak (cm <sup>-1</sup> )	Nama Peak
1	3200.01	-OH
2	1718.88	C=O
3	1617.81	C=C
4	1363.94	C-O (Epoksi)
5	1042.42	C-O (Alkoksi)

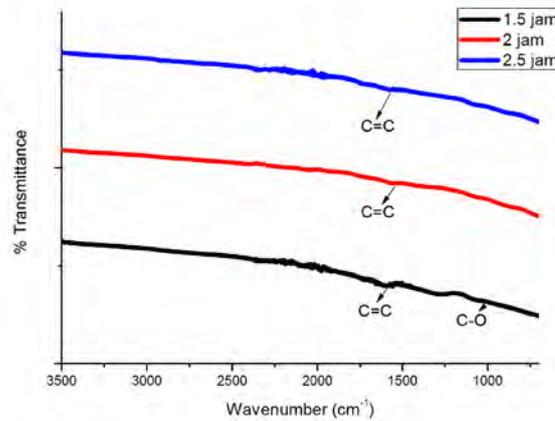
Dari Tabel diatas, dapat dilihat bahwa grafit oksida mempunyai banyak gugus yang berisi O dan H, yang menunjukkan masih banyaknya kandungan oksigen dan air di dalamnya, sama seperti penjelasan XRD terdahulu. Hal yang paling nampak jelas membedakan antara grafena dan grafit oksida adalah, pada pola FTIR grafena, ikatan OH telah hilang sempurna, yang mengindikasikan pengurangan jumlah atom O dan H di dalamnya, yang berarti terjadi peningkatan kemurnian. Pola FTIR dari 9 sampel grafena dapat dilihat pada gambar 4.13.



a.



b.



c.

**Gambar 4.13** Pola FTIR dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal a) 160<sup>0</sup>C, b) 180<sup>0</sup>C, c) 200<sup>0</sup>C dan berbagai variasi waktu ultrasonikasi 1.5, 2, dan 2.5 jam

Dari gambar diatas, dapat dilihat bahwa pada temperatur hidrotermal yang paling rendah, yaitu 160<sup>0</sup>C, masih terdapat beberapa gugus C-O ataupun C=O yang tersisa. Sedangkan pada temperatur 180 dan 200<sup>0</sup>C, hampir semua gugus tersebut hilang, menyisakan gugus C=C saja. Demikian pula dengan pengaruh waktu ultrasonikasi. Semakin lama waktu ultrasonikasi, maka di dapat gugus C-O dan C=O tidak nampak lagi, hanya menyisakan gugus C=C.



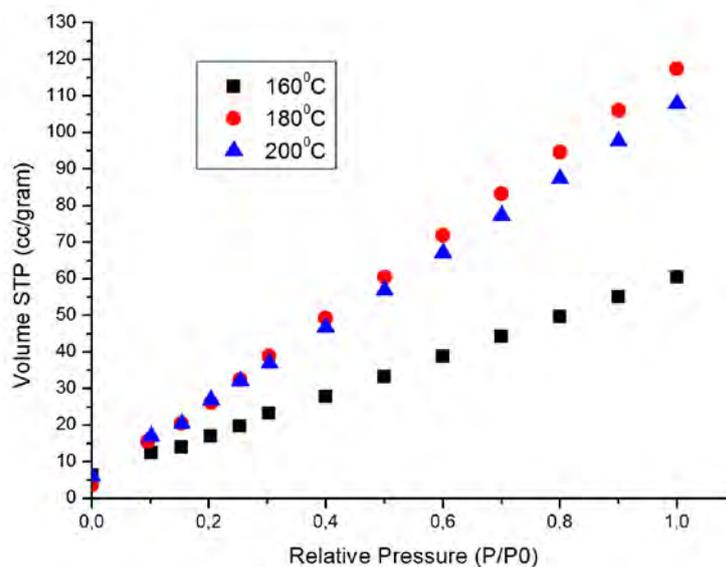
#### 4.4 Hasil Pengujian BET

Pengujian BET dilakukan untuk mengetahui luas permukaan aktif dari suatu material. Untuk material karbon, uji ini dimaksudkan selain untuk mengetahui luas permukaan aktif, juga untuk mengetahui diameter pori dari material tersebut. Pengujian BET dilakukan kepada 3 sampel grafena yang mewakili masing-masing temperatur hidrotermal. Hasil pengujian dapat dilihat pada Tabel 4.7

**Tabel 4.7** Luas permukaan aktif dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal

No	Temperatur Hidrotermal	Luas Permukaan Aktif (m <sup>2</sup> /gr)
1	160 <sup>0</sup> C	83.724
2	180 <sup>0</sup> C	170.211
3	200 <sup>0</sup> C	152.352

Luas permukaan aktif tertinggi adalah 170.211 m<sup>2</sup>/gr, yaitu pada temperatur hidrotermal 180<sup>0</sup>C. Besarnya penyerapan grafena terhadap gas N<sub>2</sub> dapat dilihat pada gambar 4.14.

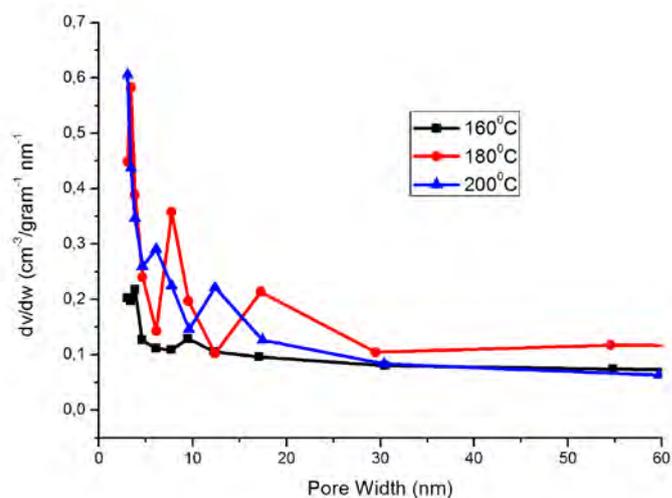


**Gambar 4.14** Grafik penyerapan gas N<sub>2</sub> pada grafena



Volume terbesar yang bisa diserap adalah pada saat *relative pressure* nya 1, yaitu sekitar 120 cc/gram. Nilai luas permukaan aktif yang rendah pada temperatur hidrotermal 160<sup>0</sup>C disebabkan masih adanya gugus gugus fungsional C-O ataupun C=O, yang menutupi pori-pori dari grafena, sehingga menurunkan luas permukaan aktifnya. Dapat dilihat bahwa tidak terlalu banyak perbedaan yang mencolok antara 180<sup>0</sup>C dan 200<sup>0</sup>C dalam hal jumlah volume yang bisa diserap. Hal ini karena pada kedua temperatur tersebut, gugus C-O ataupun C=O sudah banyak yang hilang, sehingga pori-pori grafena tidak tertutupi, mengakibatkan N<sub>2</sub> bisa masuk ke dalam pori-pori dengan mudah. Nilai dari BET ini juga sesuai dengan referensi dari Bing Zhao dkk (2012), serta Bernardo Marinho (2012) yaitu berada pada rentang 71 – 220 m<sup>2</sup>/gr.

Selain untuk mengetahui luas permukaan aktif, pengujian BET juga digunakan untuk mengetahui diameter pori dari grafena. Hasil pengujian pori pada grafena dapat dilihat pada gambar 4.15. Dari ketiga sampel, diperoleh hasil bahwa besarnya diameter pori dari grafena adalah sekitar 3 nm. Nilai diameter ini sesuai dengan referensi Xian Du dkk (2010), yang menyatakan bahwa diameter pori dari grafena berada pada rentang 3-5 nm, dan rentang inilah yang diperlukan guna meningkatkan performa dari EDLC.



**Gambar 4.15** Distribusi pori pada grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal



#### 4.5 Hasil Pengujian Konduktivitas Listrik

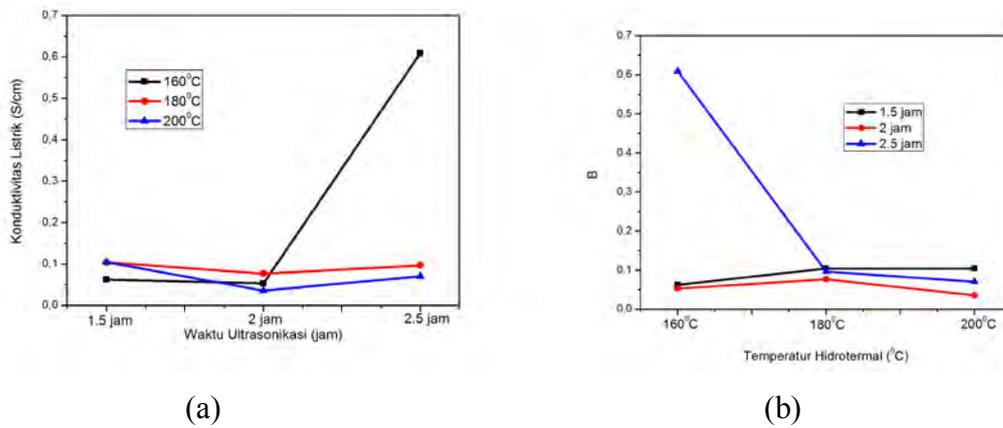
Pengujian Konduktivitas dilakukan untuk mengetahui nilai konduktivitas dari material grafena. Metode yang digunakan adalah *Four Point Probe* (FPP). Parameter yang digunakan adalah, luas area merupakan panjang x tebal dari lembaran grafena, yang nilainya  $0.05 \text{ cm}^2$ . Jarak antar probe yang digunakan adalah  $0.25 \text{ cm}$ . Hasil dari pengujian dapat dilihat pada Tabel 4.8.

**Tabel 4.8** Hasil pengujian konduktivitas listrik grafena

No	Temperatur Hidrotermal ( $^{\circ}\text{C}$ )	Waktu Ultrasonikasi (jam)	Resistansi ( $\Omega$ )	Geometrical Correction Factor	Resistivitas ( $\rho$ )	Konduktivitas Listrik (S/cm)
1	160	1.5	80	19.454	16	0.0625
2		2	93.6	19.454	18.72	0.0534
3		2.5	8.2	19.454	1.64	0.6097
4	180	1.5	48	19.454	9.6	0.1041
5		2	64.8	19.454	12.98	0.0770
6		2.5	51.6	19.454	10.32	0.0968
7	200	1.5	48	19.454	9.6	0.1041
8		2	141.6	19.454	28	0.0357
9		2.5	70.8	19.454	14.16	0.0706

Dari Tabel diatas dapat dilihat bahwa terdapat trend penurunan nilai konduktivitas dari waktu ultrasonikasi 1.5 jam ke 2 jam, kemudian terjadi peningkatan pada saat waktu ultrasonikasi 2.5 jam. Pola ini sama untuk semua sampel. Untuk pengaruh temperatur hidrotermal, nampak tidak ada trend yang berarti, seperti ditunjukkan pada gambar 4.16. Nilai tertinggi terdapat pada variasi temperatur hidrotermal  $160^{\circ}\text{C}$ , waktu ultrasonikasi 2.5 jam, yaitu sekitar  $0.6097 \text{ S/cm}$ .

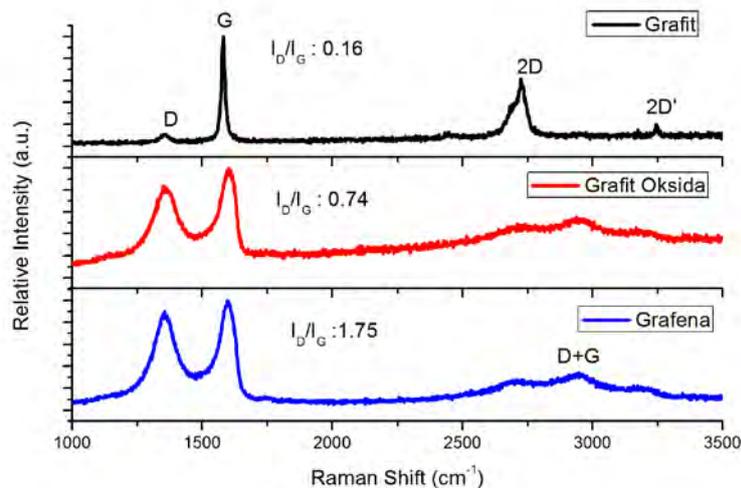
Nilai ini masih memenuhi rentang dari nilai konduktivitas listrik berdasarkan referensi Gomez-Navarro dkk (2007), yang menyatakan rentang nilai konduktivitas elektrik grafena yang disintesis dari proses reduksi kimia adalah memang sangat rendah, yaitu dari  $0.05\text{-}2 \text{ S/cm}$ . Namun demikian, nilai yang dihasilkan dari eksperimen tergolong sangat rendah apabila dibandingkan dengan nilai yang diperoleh Panbo Liu dkk (2013), yang mencapai  $650 \text{ S/cm}$ .



**Gambar 4.16** Pengaruh waktu ultrasonikasi (a) dan temperatur hidrotermal (b) terhadap nilai konduktivitas grafena

#### 4.6 Hasil Pengujian Raman Spectroscopy

Pengujian Raman dilakukan terhadap grafit, grafit oksida, dan grafena, digunakan untuk mengetahui pita (*band*) ikatan di dalamnya, dan juga untuk mengetahui perbedaan pola diantara ketiganya. Selain itu, dari hasil pengujian raman juga bisa diketahui tingkat cacat (*defect*) dari material, dengan menggunakan perbandingan intensitas D band dan G band ( $I_D/I_G$ ).



**Gambar 4.17** Pola Raman Spectroscopy dari grafit, grafit oksida dan grafena, beserta nilai  $I_D/I_G$  nya.



Gambar 4.17 menunjukkan pola raman dari grafit, grafit oksida, dan grafena. Dari gambar tersebut, dapat dilihat bahwa grafit mempunyai puncak D band yang lemah, G band yang kuat, 2D band yang kuat, dan G' yang lemah. Untuk grafit oksida dan grafena, terdapat satu puncak yang lain, yaitu puncak D+G band.

D band, yang berada pada *raman shift* sekitar  $1350\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya cacat/defect yang terdapat pada material, berupa gangguan pada ikatan  $sp^2$  (bisa berupa *vacancies*, *heptagon* dan *pentagon* ring, struktur *wrinkle*, dan juga adanya gugus fungsional lain seperti O dan H. Pada grafit, nilai D band ini sangat lemah, mengindikasikan bahwa struktur grafit sangat bagus, dan hanya ada sedikit cacat yang ada didalamnya. Hal ini sangat kontras apabila dibandingkan dengan grafit oksida maupun grafena. Pada keduanya, puncak D band kuat, yang mengindikasikan bahwa strukturnya banyak mengalami cacat. Sebagian besar cacat ini dikarenakan proses oksidasi ataupun reduksinya, yang dilakukan dengan metode kimiawi, sehingga sering bersentuhan dengan unsur lain, yang mengakibatkan kerusakan pada struktur kristalnya. Selain itu, adanya gugus fungsional O dan H juga mengakibatkan struktur yang tidak sempurna (Reeti Bjapai dkk, 2012)..

G band, yang berada pada *raman shift* sekitar  $1590\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya karakteristik grafitik dari material. Semua keluarga karbon mempunyai puncak ini. Puncak ini muncul akibat adanya pergerakan peregangan dari ikatan  $sp^2$  pada atom karbon (Reeti Bjapai dkk, 2012).

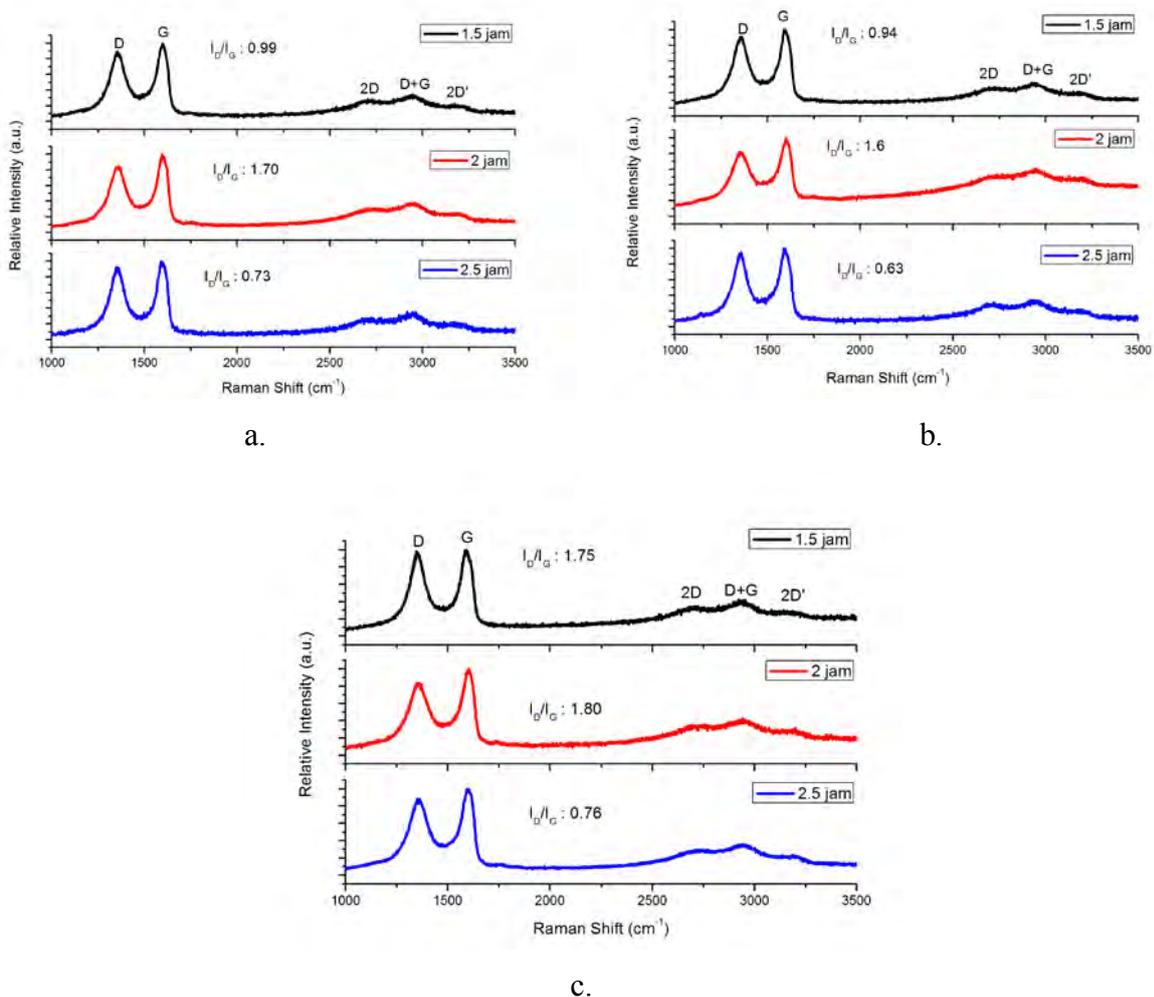
Puncak yang berada pada *raman shift* sekitar  $2600\text{ cm}^{-1}$  dikenal sebagai puncak 2D, atau G'. Puncak ini merupakan tambahan (*overtone*) dari puncak D. Puncak 2D menunjukkan karakteristik dari grafena. Pada grafit, puncak 2D ini kuat dan tajam, dengan ada lekukan kecil. Pada grafena yang benar-benar murni, puncak 2D ini juga kuat dan tajam, berbentuk *Lorentzian shape*, tanpa ada lekukan apapun. Akan tetapi karakteristik seperti ini hanya dipunya oleh grafena yang di sintesis dengan metode *Chemical Vapor Deposition* (CVD). Proses CVD menghasilkan benar-benar *single layer* grafena, yang biasanya dilapiskan pada substrat tertentu.

Akan tetapi, untuk grafena yang disintesis dengan metode pengelupasan kimia (*chemical exfoliation*), yang melibatkan proses oksidasi dan reduksi, puncak 2D nya sangat lemah, mengindikasikan bahwa grafena yang terbentuk tidak *single layer*, namun *few layer*. Walaupun demikian, metode pengelupasan kimia banyak dipakai untuk mensintesis grafena, karena bisa



menghasilkan grafena dalam jumlah yang banyak, terutama untuk keperluan industri. (Reeti Bjapai dkk, 2012).

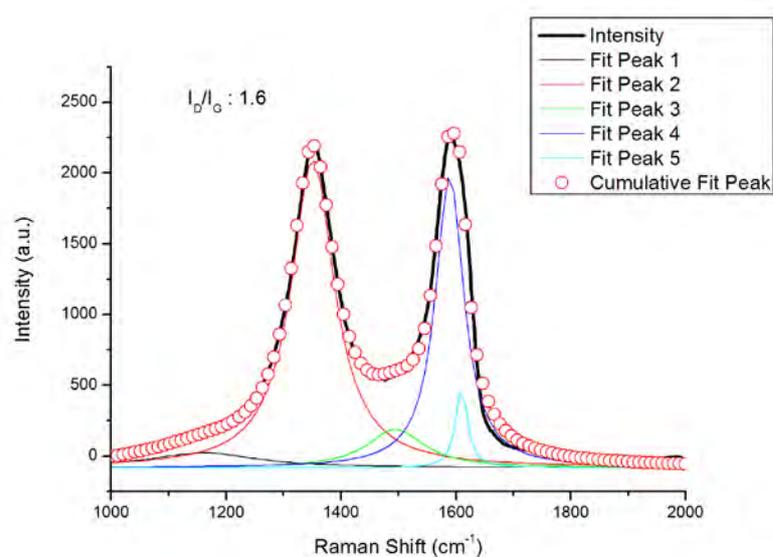
Puncak yang berada pada *raman shift* sekitar  $2930\text{ cm}^{-1}$  adalah puncak kombinasi D+G band. Sedangkan puncak pada raman shift sekitar  $3170\text{ cm}^{-1}$  adalah kelebihan (*overtone*) dari D', biasa dinamakan 2D' (Reeti Bjapai dkk, 2012). Bentuk Raman untuk 9 sampel grafena ditunjukkan pada gambar 4.18



**Gambar 4.18** Pola Raman Spectroscopy dan nilai  $I_D/I_G$  dari grafena pada berbagai variasi temperatur hidrotermal a)  $160^{\circ}\text{C}$ , b)  $180^{\circ}\text{C}$ , c)  $200^{\circ}\text{C}$  dan berbagai variasi waktu ultrasonikasi 1.5, 2, dan 2.5 jam



Untuk mengetahui adanya cacat pada grafit, grafit oksida, dan grafena, maka dilakukan perhitungan rasio  $I_D/I_G$ . Perhitungan ini dilakukan dengan menggunakan *software* origin. Bentuk yang dijadikan acuan adalah Lorentzian. Contoh hasil fitting curve, ditunjukkan pada gambar 4.19.



**Gambar 4.19** Fitting Curve untuk mencari nilai  $I_D/I_G$

Perhitungan  $I_D/I_G$  dilakukan dengan menggunakan perbandingan Luas Area (A) dari puncak D band, dibagi dengan luas area dari puncak G band, setelah terlebih dahulu dilakukan *straight line* pada *baseline* dari kurva. Sebagai contoh, dari gambar 4.22 diatas, diperoleh parameter yang diTabelkan dalam Tabel 4.9 . Metode *fitting* dilakukan dengan 5 parameter, sehingga dalam kurva tersebut terdapat 5 puncak. Untuk mengetahui nilai  $I_D/I_G$ , maka kita tinggal membagi nilai luas area pada puncak 2, dengan nilai pada puncak 4. Puncak 2 adalah puncak D band, dan puncak 4 adalah puncak G band. Sehingga diperoleh nilai  $I_D/I_G$  sebesar  $315.336,77 : 196.410,5044$ , hasilnya 1.6. Hasil *fitting* dikatakan baik, apabila bentuk *cumulative curve* sama persis dengan bentuk dari raman kita sebelumnya.

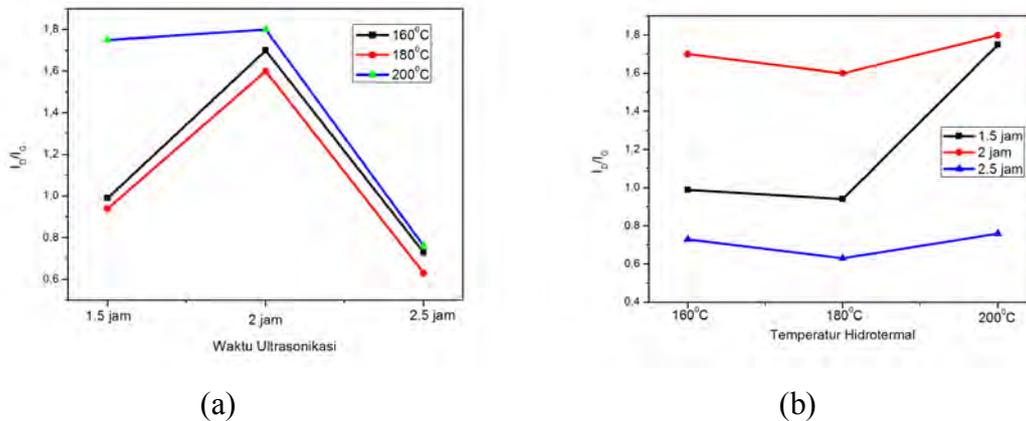


**Tabel 4.9** Parameter *Curve Fitting* dengan metode Lorentzian shape

Equation	$y = y_0 + (2 \cdot A / \pi) \cdot (w / (4 \cdot (x - x_c)^2 + w^2))$		
Adj. R-Square	0,99423		
		Value	Standard Error
Peak1(B)	y0	-84,18577	4,18257
Peak1(B)	xc	1160	0
Peak1(B)	w	231,36352	36,5687
Peak1(B)	A	38657,91456	5880,88354
Peak1(B)	H	22,18533	
Peak2(B)	y0	-84,18577	4,18257
Peak2(B)	xc	1351	0
Peak2(B)	w	92,08827	0,9873
Peak2(B)	A	315336,77	3659,39412
Peak2(B)	H	2179,96949	
Peak3(B)	y0	-84,18577	4,18257
Peak3(B)	xc	1495	0
Peak3(B)	w	120,57889	12,05128
Peak3(B)	A	51846,79521	5508,03133
Peak3(B)	H	273,73527	
Peak4(B)	y0	-84,18577	4,18257
Peak4(B)	xc	1589	0
Peak4(B)	w	60,44957	0,77531
Peak4(B)	A	196410,5044	3614,5933
Peak4(B)	H	2068,48153	
Peak5(B)	y0	-84,18577	4,18257
Peak5(B)	xc	1610	0
Peak5(B)	w	24,04917	1,6539
Peak5(B)	A	22139,79027	1645,91058
Peak5(B)	H	586,0754	

Dari hasil diatas, dapat diketahui bahwa nilai  $I_D/I_G$  semakin meningkat ketika proses perubahan dari grafit menjadi grafit oksida, kemudian menjadi grafena, yang menandakan bahwa tingkat kecacatan kristal nya juga meningkat. Hal ini dikarenakan proses oksidasi grafit menjadi grafit oksida, ataupun proses reduksi grafit oksida menjadi grafena, dilakukan dengan metode pengelupasan kimia, sehingga diperoleh struktur yang banyak mengalami cacat permukaannya.

Pengaruh waktu ultrasonikasi dan temperatur hidrotermal berbanding terbalik terhadap nilai  $I_D/I_G$ . Nilai  $I_D/I_G$  naik ketika waktu ultrasonikasi dinaikkan dari 1.5 jam menjadi 2 jam, kemudian turun lagi saat waktu ultrasonikasi 2.5 jam. Sedangkan nilai  $I_D/I_G$  turun saat temperatur hidrotermal naik dari 160<sup>0</sup>C menjadi 180<sup>0</sup>C, dan naik lagi saat temperatur hidrotermal 200<sup>0</sup>C, seperti ditunjukkan pada gambar 4.20 di bawah ini.



**Gambar 4.20** Pola Raman dari 9 sampel grafena berdasarkan kenaikan waktu ultrasonikasi (a) dan kenaikan temperatur hidrotermal (b)

#### 4.7 Hasil Pengujian Cyclic Voltammetry (CV)

Pengujian Cyclic Voltammetry digunakan untuk mengetahui nilai kapasitansi dari elektroda EDLC dari material grafena. Pengujian yang dilakukan dengan mendepositkan grafena oksida dan grafena ke dalam Nickel Foam yang bertindak sebagai *current collector*. Material yang di uji CV adalah grafena oksida dan grafena, dengan menggunakan *set up* 3 elektroda, di dalam larutan elektrolit  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , dan  $\text{K}_2\text{SO}_4$ , dengan variasi rentang *potential window* dari 0 sampai 0.8 dan -0.7 sampai -0.2, sesuai dengan karakteristik dari EDLC.

##### 4.7.1 Larutan $\text{K}_2\text{SO}_4$ 1 M.

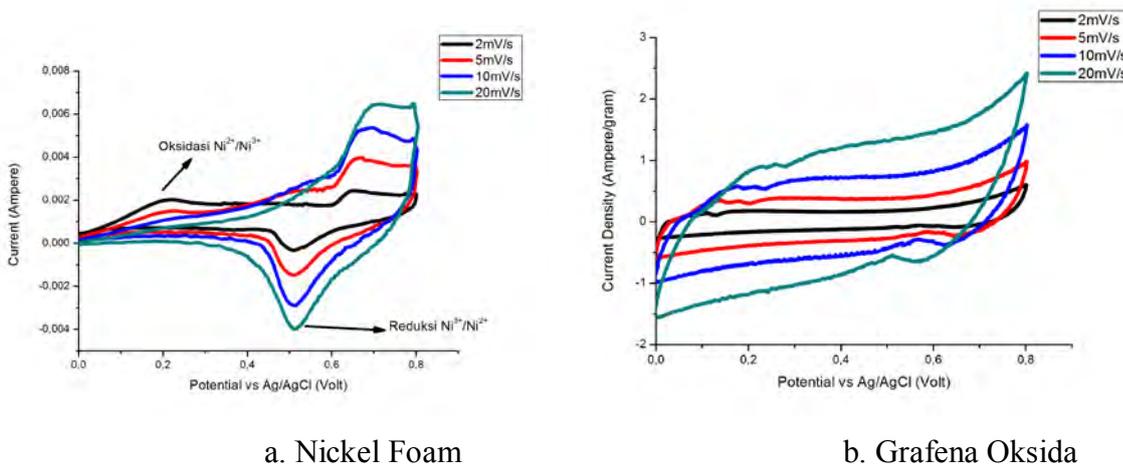
Larutan  $\text{K}_2\text{SO}_4$  dipilih karena termasuk larutan yang elektrolit yang netral, berbeda dengan larutan KOH ataupun  $\text{H}_2\text{SO}_4$  yang bersifat asam atau basa. Pemilihan larutan netral bertujuan untuk meminimalisir adanya pengaruh kemungkinan terjadinya senyawa baru ketika dilakukan proses pengujian CV, yang justru mengacaukan nilai kapasitansi material yang akan di ukur. Misalnya, grafena yang didepositkan pada nickel foam, apabila di lakukan pengujian di dalam larutan KOH, maka kemungkinan terjadinya reaksi pembentukan senyawa  $\text{Ni}(\text{OH})_2$  sangatlah besar, sedangkan  $\text{Ni}(\text{OH})_2$  mempunyai nilai kapasitansi yang sangat besar ( $> 1000\text{F}/\text{gram}$ ), sehingga dikhawatirkan terjadi ambiguitas terhadap nilai kapasitansi yang terukur, apakah itu kapasitansi dari material atau dari  $\text{Ni}(\text{OH})_2$ . Namun, ternyata  $\text{K}_2\text{SO}_4$  merupakan elektrolit yang tidak sesuai untuk pengujian CV dari grafena yang di depositkan ke nickel foam.



Hal ini dikarenakan terjadi reaksi redoks, sehingga kapasitansi yang diamati adalah nilai kapasitansi dari pseudocapacitor, bukan EDLC lagi. Hal ini diperkuat dengan bentuk kurva yang nampak ada *hump* (gundukan), yang mengindikasikan adanya reaksi redoks yang terjadi.

#### 4.7.1.a. Potential Window 0-0.8 V

Nickel foam murni menunjukkan perilaku *pseudocapacitance* pada larutan  $K_2SO_4$ , pada rentang potensial 0 – 0.8 V, seperti terlihat pada Gambar 4.21 a . Adanya hump (gundukan) yang kecil pada rentang  $\pm 0.2 - 0.3$  V , kemudian dilanjutkan dengan peningkatan potensial lagi pada  $\pm 0.7 - 0.8$  V , menunjukkan adanya peristiwa reaksi oksidasi dari Nickel  $^{2+}$ , menjadi ion  $Ni^{3+}$  . Penurunan potensial pada saat proses *discharge*, pada rentang  $\pm 0.7 - 0.4$  V, menunjukkan peristiwa kebalikannya, yaitu proses reduksi  $Ni^{3+}$  menjadi  $Ni^{2+}$  (Xiehong Cao, 2011).



**Gambar 4.21** Bentuk kurva *Cyclic Voltammetry* a) Nickel Foam dan b) grafena oksida pada larutan  $K_2SO_4$  1M.

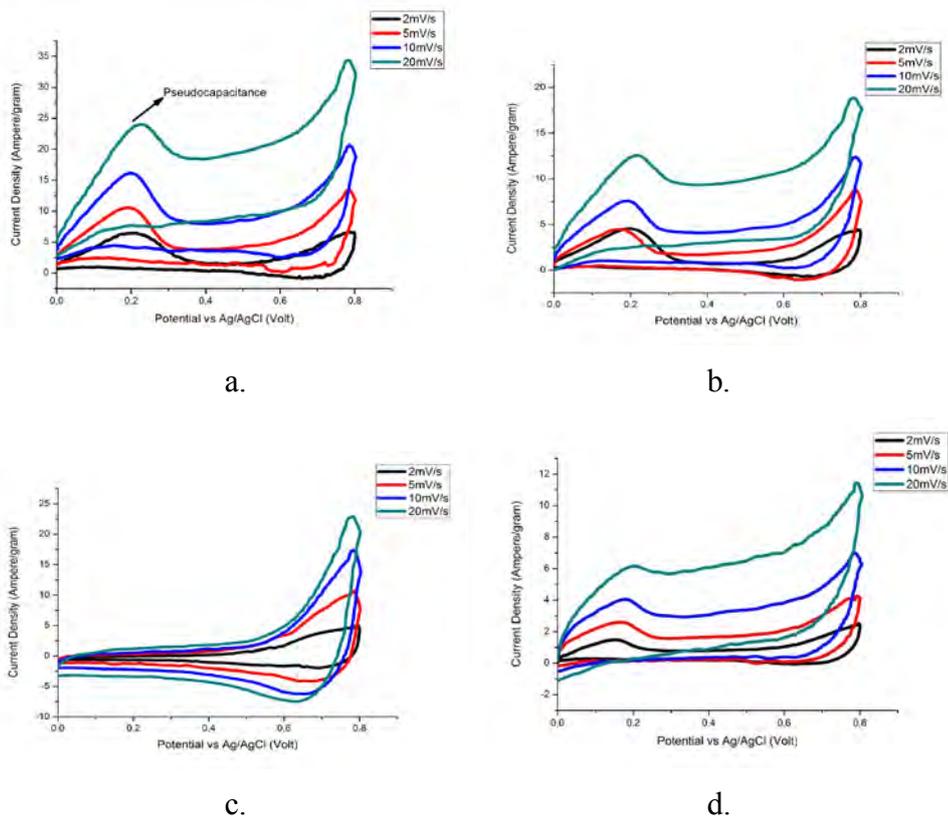
Grafena oksida (Gambar 4.21 b ), menunjukkan perilaku stabil di larutan  $K_2SO_4$ , pada rentang potensial 0 – 0.8 V, yang ditunjukkan oleh tidak adanya *hump* yang terjadi, dan juga nilai kapasitansi tidak turun secara drastis, namun secara bertahap dan tidak terlalu jauh rentang penurunan kapasitansinya, seperti ditunjukkan pada Tabel 4.10 . Nilai Kapasitansi tertingginya adalah 87.5 F/gram pada *scan rate* 2 mV/s.

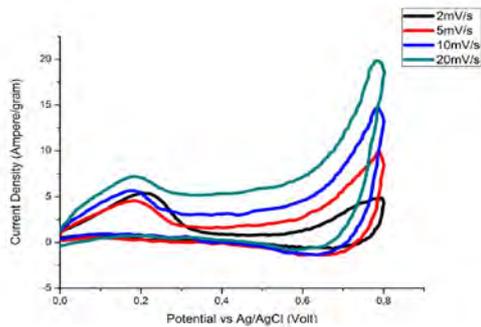


**Tabel 4.10** Kapasitansi dari grafena oksida dalam  $K_2SO_4$  1M 0-0.8 Volt pada berbagai *scan rate*

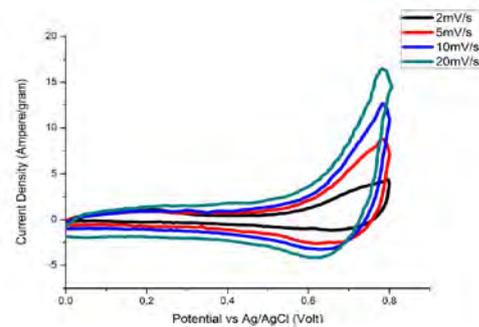
Scan rate (V/s)	C (F/g)
0,002	87.25
0,005	73.57
0,01	64.47
0,02	52.36
0,05	35.73
0,1	25.46

Grafena menunjukkan perilaku yang unik pada rentang potensial ini, seperti ditunjukkan pada Gambar 4.22.

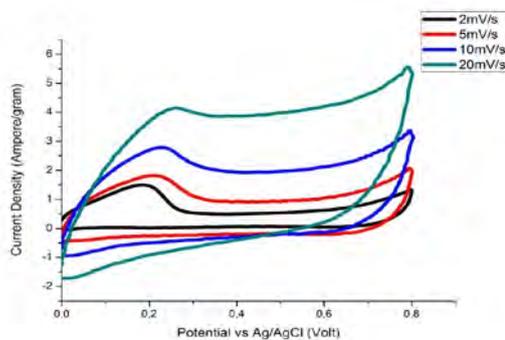




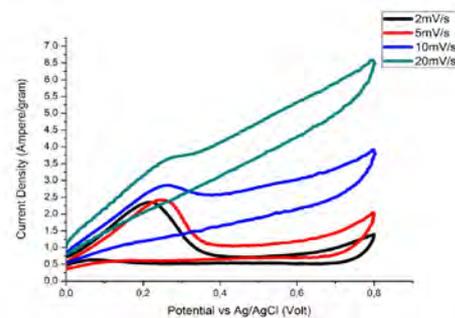
e.



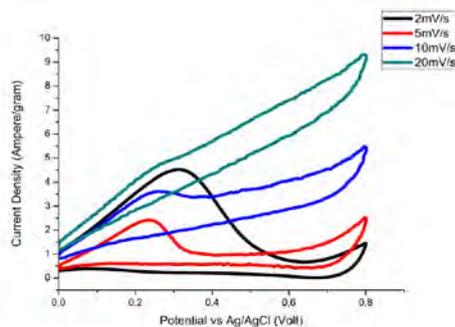
f.



g.



h.



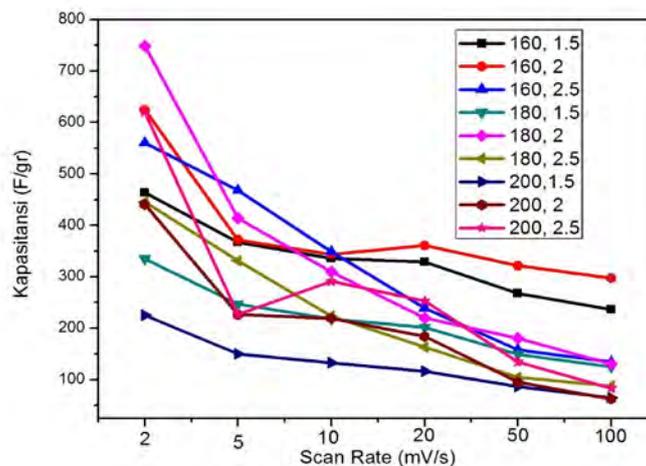
i.

**Gambar 4.22** Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan  $K_2SO_4$ , potential window 0 – 0.8 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)

Grafena yang didepositkan di Nickel Foam mempunyai perilaku *pseudocapacitance* di dalam larutan  $K_2SO_4$  pada rentang potensial 0 – 0.8 V. Hal ini ditunjukkan oleh adanya *hump* (gundukan) pada rentang voltase  $\pm 0.2 - 0.3$  V. Adanya perilaku ini menyebabkan peningkatan



yang dramatis nilai kapasitansi nya, namun kestabilannya mengalami penurunan. Terbukti dengan adanya penurunan yang drastis dari nilai kapasitansi, yang menandakan ketidakstabilan. Contoh yang nyata adalah pada sampel grafena 200<sup>0</sup>C, ultrasonikasi 2 dan 2.5 jam. Nilai kapasitansi pada kedua sampel ini menurun drastis dari 440 dan 619 F/gram pada *scan rate* 2mV/s menjadi sekitar 62 dan 83 F/gram pada *scan rate* 100mV/s.



**Gambar 4.23** Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan  $K_2SO_4$ , potential window 0 – 0.8 V

Dari ke 9 sampel grafena, yang menunjukkan kestabilan yang baik pada rentang voltase 0 – 0.8 V adalah 3 sampel, yaitu yang waktu ultrasonikasinya 1.5 jam, baik sampel 160<sup>0</sup>C, 180<sup>0</sup>C, dan 200<sup>0</sup>C, seperti ditunjukkan pada gambar 4.23. Hal ini ditunjukkan oleh adanya penurunan nilai kapasitansi yang tidak drastis seiring dengan peningkatan *scan rate*, dan juga dari bentuk kurva CV yang lebih mendekati *rectangular*, walaupun masih ada *hump* yang terbentuk. Dari ketiga sampel tersebut, yang paling bagus adalah sampel 160<sup>0</sup>C, ultrasonikasi 1.5 jam. Nilai kapasitansinya sebesar 463.72 F/gram, paling tinggi dibanding pada sampel 180 dan 200<sup>0</sup>C pada waktu ultrasonikasi yang sama.

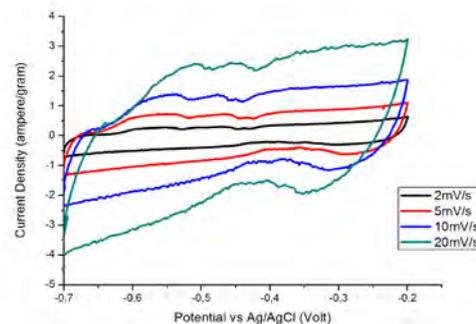
6 sampel yang lain menunjukkan data yang sangat ekstrim, dengan nilai kapasitansi yang sangat tinggi, yaitu sampel 160, 180, dan 200<sup>0</sup>C dengan waktu ultrasonikasi 2 dan 2.5 jam. Nilai kapasitansi tertinggi mencapai 748 F/gram, yaitu pada sampel 180<sup>0</sup>C ultrasonikasi 2 jam. Sayangnya, walau ke 6 sampel tersebut menunjukkan nilai kapasitansi yang sangat tinggi, namun bentuk kurva nya tidak beraturan dan cenderung tidak stabil. Hal ini ditandai dengan penurunan



nilai kapasitansi yang sangat drastis, seperti di jelaskan di atas. Hal ini menunjukkan ke 6 sampel tersebut tidak bagus performanya dalam larutan  $K_2SO_4$ . Secara umum, tidak ada bentuk *rectangular* sama sekali dari 9 sampel, yang menunjukkan bahwa  $K_2SO_4$  bukanlah elektrolit yang baik untuk grafena pada rentang potensial positif. Namun,  $K_2SO_4$  adalah elektrolit yang bagus untuk mengetahui perilaku *pseudocapacitor* dari material yang di depositkan pada nickel foam.

#### 4.7.1.b. Potential Window (-0.7) – (-0.2) V

Secara umum, pada rentang potential window negatif, tidak ada *hump*, yang menunjukkan bahwa pada rentang potential window negatif tidak terjadi reaksi redoks Ni. Selain itu bentuk kurva CV yang dihasilkan berupa *rectangular*, yang cenderung ke arah kapasitor resistif.



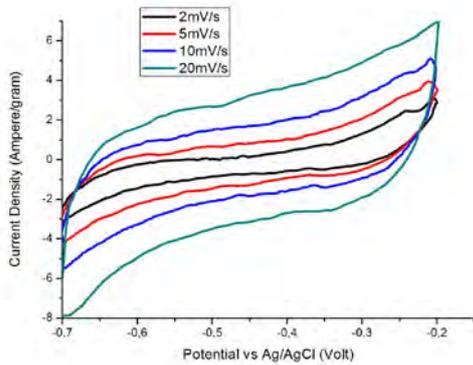
**Gambar 4.24** Bentuk kurva *Cyclic Voltammetry* dan nilai kapasitansi dari grafena oksida pada larutan  $K_2SO_4$  1M pada rentang potential window -0.2 - -07 V.

**Tabel 4.11** Kapasitansi dari grafena oksida dalam  $K_2SO_4$  1M 0-0.8 Volt pada berbagai *scan rate*

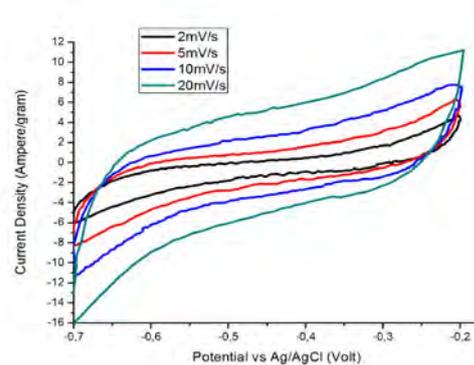
Scan rate (V/s)	C (F/g)
0.002	168.53
0.005	143.81
0.01	130.78
0.02	110.51
0.05	77.25
0.1	49.10



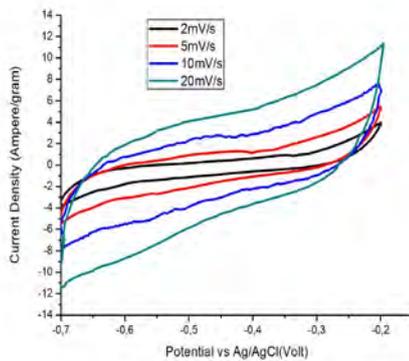
Grafena oksida juga menunjukkan kestabilan pada rentang negatif dari larutan  $K_2SO_4$ . Hal ini ditunjukkan nilai penurunan kapasitansi yang stabil, dan bentuk kurva yang mendekati *rectangular*, seperti ditunjukkan Gambar 4.24. Nilai kapasitansinya juga naik, menjadi sebesar 168.53 F/gram jika dibandingkan pada potensial positif (87.25 F/gram), yang menandakan rentang potensial negatif lebih stabil, ditunjukkan pada Tabel 4.11.



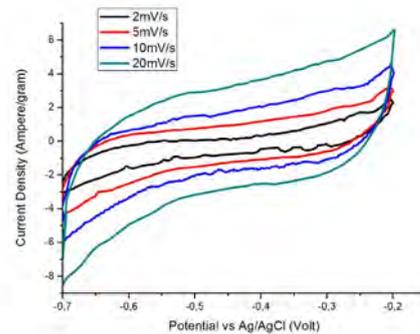
a.



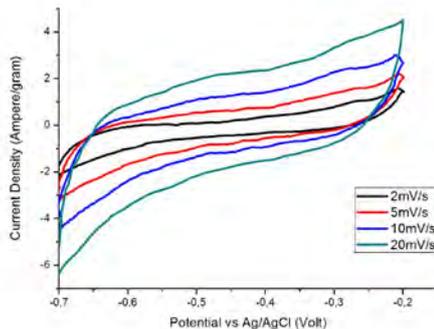
b.



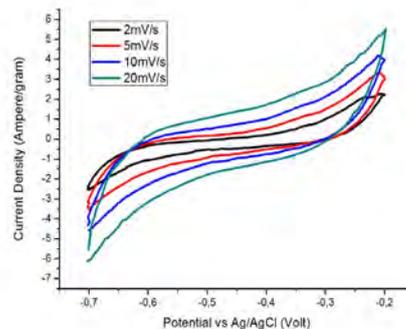
c.



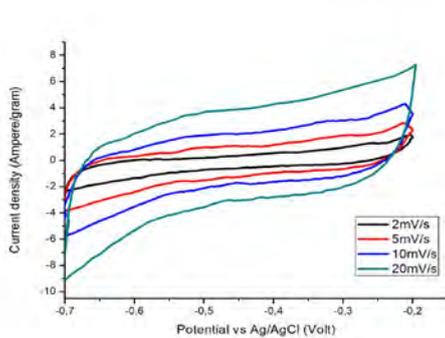
d.



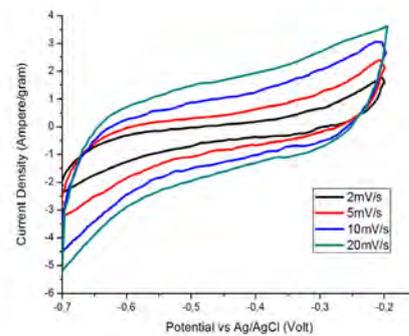
e.



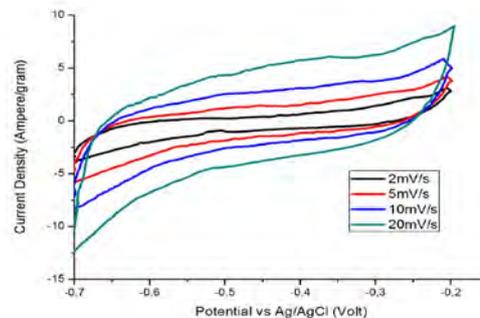
f.



g.



h.

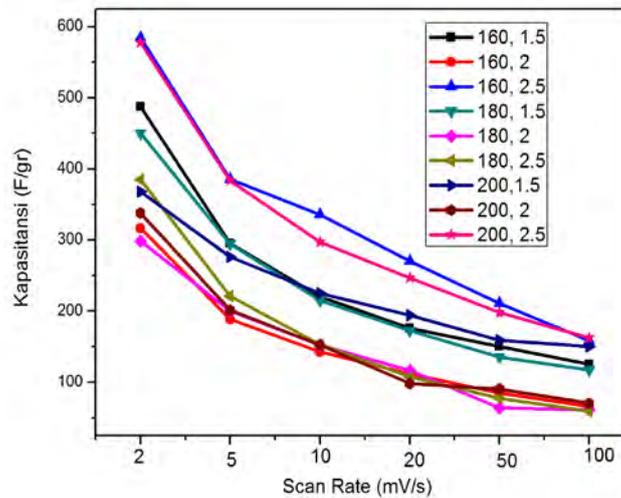


i.

**Gambar 4.25** Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan  $K_2SO_4$ , potential window -0.2 – - 0.7 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)

Demikian juga dengan ke 9 sampel grafena yang di tunjukkan pada Gambar 4.25, menunjukkan pola kurva yang mendekati bentuk *rectangular*, dan terjadi peningkatan *current density* setiap peningkatan *potential window*, yang mengindikasikan bahwa terjadi perilaku kapasitor resistif.

Nilai kapasitansi dari 9 sampel mempunyai perilaku unik. Terjadi penurunan nilai kapasitansi dari sampel dengan peningkatan waktu ultrasonikasi dari 1.5 jam ke 2 jam, yang kemudian mengalami peningkatan kapasitansi lagi saat terjadi peningkatan waktu ultrasonikasi dari 2 jam ke 2.5 jam. Sampel dengan waktu ultrasonikasi 2 jam mempunyai nilai kapasitansi terendah.



**Gambar 4.26** Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan  $K_2SO_4$ , potential window  $-0.2 - -0.7$  V

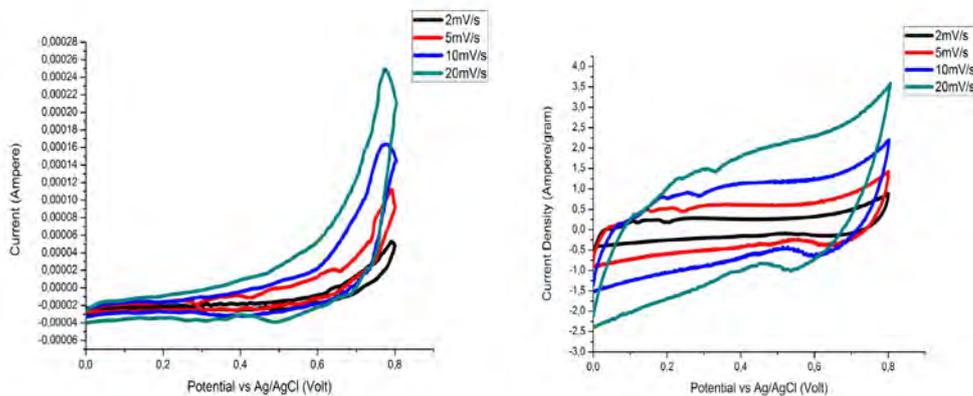
Nampak pola penurunan kapasitansi seiring kenaikan scan rate lebih teratur dan tidak terlalu menyimpang diantara 9 sampel. Sampel  $160^{\circ}C$  menunjukkan nilai kapasitansi tertinggi apabila dibandingkan dengan sampel temperatur lain. Waktu ultrasonikasi 2.5 jam juga menunjukkan nilai kapasitansi tertinggi diantara semua sampel, yaitu mencapai 584.24 F/gram, yaitu sampel  $160^{\circ}C$ , seperti terlihat pada Gambar 4.26.

#### 4.7.2 Larutan $Li_2SO_4$ 1 M.

Sama dengan larutan  $K_2SO_4$ ,  $Li_2SO_4$  dipilih karena juga bersifat netral. Material grafena yang di depositkan ke nickel foam, ketika di uji pada larutan  $Li_2SO_4$  menunjukkan perilaku yang berbeda-beda. Ada yang bersifat *pseudocapacitor*, ada yang kapasitor resistif, dan ada yang EDLC.

##### 4.7.2.a. Potential window 0-0.8 V

Pada potensial positif, secara umum ada beberapa perilaku grafena. Ada yang masih menunjukkan *hump*, yang menandakan masih terjadi efek *pseudocapacitance*. Ada juga yang menunjukkan perilaku EDLC.



a. Nickel Foam

b. Grafena Oksida

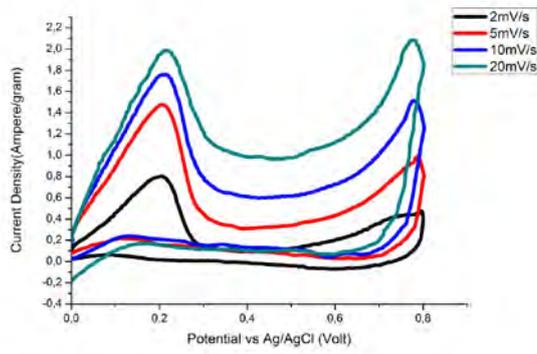
**Gambar 4.27** Bentuk kurva *Cyclic Voltammetry* a) Nickel Foam dan b) grafena oksida pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  1M.

Nickel Foam murni (Gambar 4.27 a), pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  menunjukkan perilaku *pseudocapacitance* yang lebih kecil apabila dibandingkan pada larutan  $\text{K}_2\text{SO}_4$ .

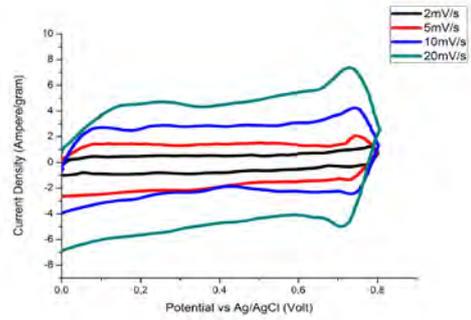
Grafena oksida (Gambar 4.27 b) menunjukkan kestabilan di larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  pada rentang positif. Kapasitansinya juga lebih tinggi (129.8 F/gram) apabila dibandingkan pada larutan  $\text{K}_2\text{SO}_4$  (87.25 F/gram), seperti ditunjukkan pada Tabel 4.12.

**Tabel 4.12** Kapasitansi dari grafena oksida dalam  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  1M 0-0.8 Volt pada berbagai *scan rate*

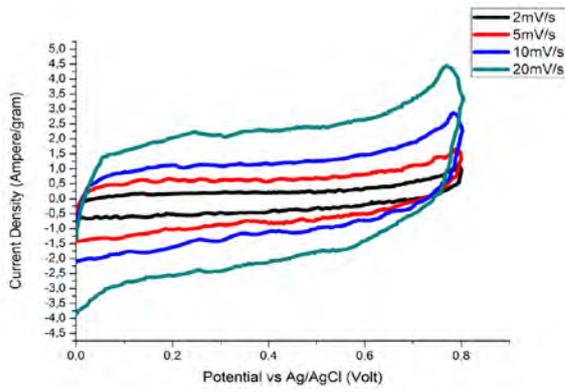
Scan rate (V/s)	C (F/g)
0,002	129.58
0,005	109.03
0,01	93.83
0,02	77.53
0,05	54.75
0,1	42.58



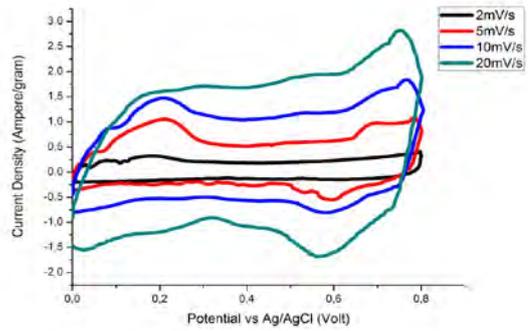
a.



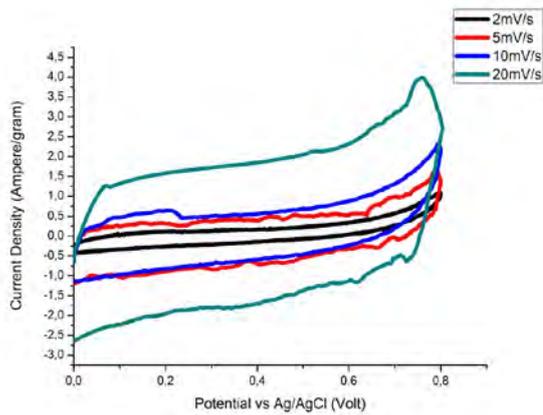
b.



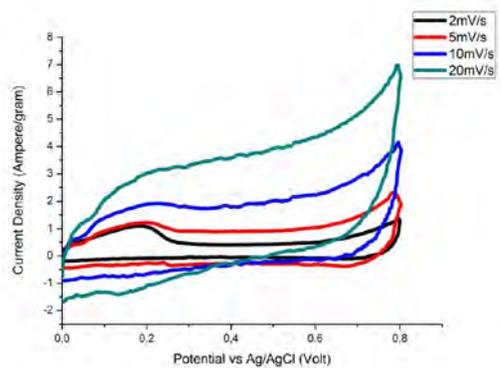
c.



d.



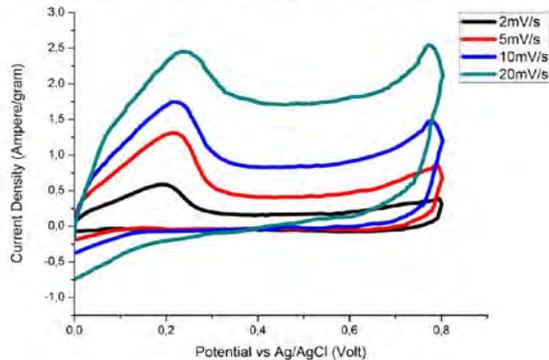
e.



f.

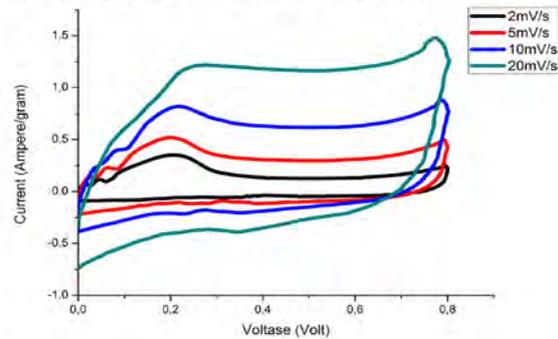


CV Pattern of Graphene Deposited on Nickel Foam (200°C, 1.5 hour)



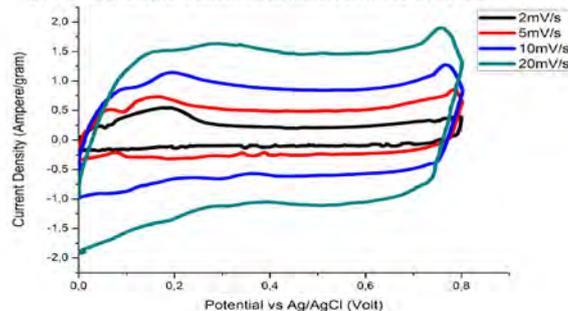
g.

CV Pattern of Graphene Deposited on Nickel Foam (200°C, 2 hour)



h.

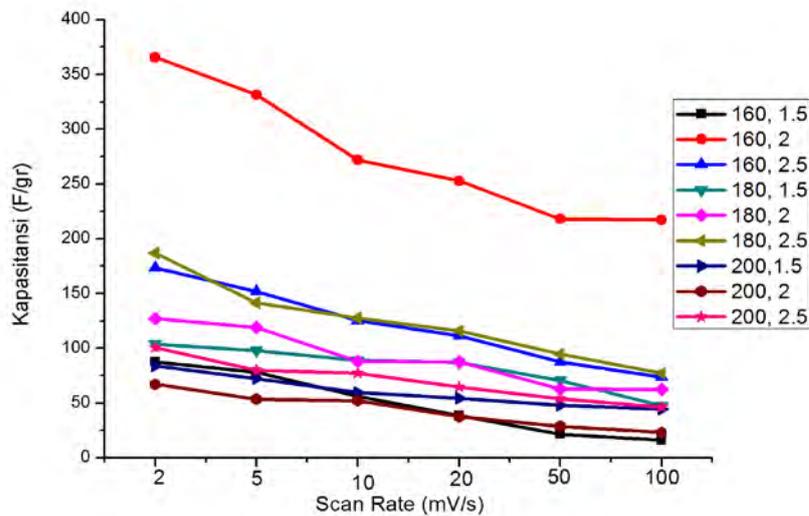
CV Pattern of Graphene Deposited on Nickel Foam (200°C, 2.5 hour)



i.

**Gambar 4.28** Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180, 1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)

Sampel grafena (Gambar 4.28), mempunyai perilaku yang berbeda-beda pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$ . Ada yang berperilaku seperti *pseudocapacitance*, misalnya pada sampel 160<sup>0</sup> dan 200<sup>0</sup>C dengan waktu ultrasonikasi 1.5 jam, serta 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2 jam. Ada juga yang berperilaku *double layer*, yang ditandai dengan bentuk kurva yang mendekati bentuk *rectangular*, misalnya pada sampel 160<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2 jam dan sampel 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2.5 jam.



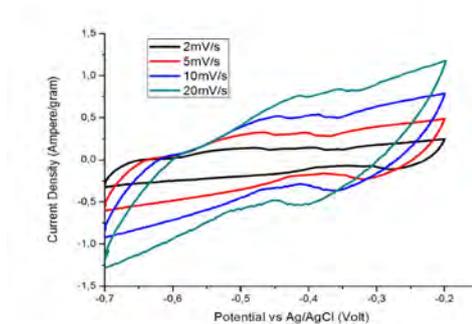
**Gambar 4.29** Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V

Secara umum nilai kapasitansi dari sampel *pseudocapacitance* tidak terlalu tinggi, hal ini karena *hump* hanya terjadi pada rentang  $\pm 0.3$  V. Dari Gambar 4.29 nampak ada salah satu data yang menyimpang dari lainnya, yaitu pada sampel  $160^\circ\text{C}$ , waktu ultrasonikasi 2 jam menunjukkan nilai kapasitansi tertinggi, yaitu sebesar 365.51 F/gram.

#### 4.7.2.b. Potential window (-0.7) – (-0.2) V

Pada rentang potensial negatif, tidak ditemui adanya perilaku *pseudocapacitance* dari material grafena. Sebagian besar berbentuk rectangular, namun tidak ideal, melainkan lebih cenderung kepada sifat kapasitor resistif.

Grafena oksida, seperti ditunjukkan pada gambar 4.30, pada rentang potensial negatif juga menunjukkan kestabilan, dengan kapasitansi sebesar 74.01 F/gram, jauh menurun apabila dibandingkan pada larutan  $\text{K}_2\text{SO}_4$ , yang bernilai 168.53 F/gram.



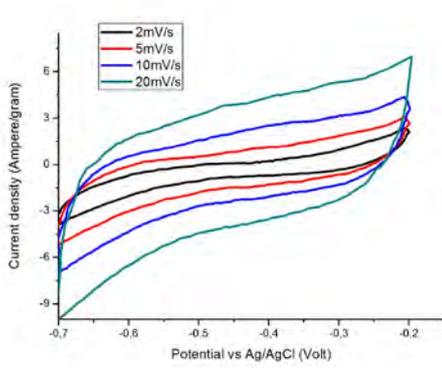
**Gambar 4.30** Bentuk kurva *Cyclic Voltammetry* dan nilai kapasitansi dari grafena oksida pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  1M pada rentang potential window -0.2 - -07 V.

Grafena oksida mempunyai bentuk yang cenderung lancip pada rentang ini, menunjukkan sifatnya yang kurang baik, dan hal itu terlihat dari nilai kapasitansi nya yang sangat rendah, hanya sebesar 74.01 F/gr, seperti ditunjukkan pada Tabel 4.13

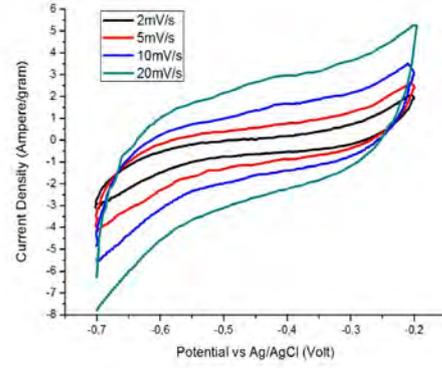
**Tabel 4.13** Kapasitansi dari grafena oksida dalam  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  1M -0.2 - -0.7 Volt pada berbagai *scan rate*

Scan rate (V/s)	C (F/g)
0.002	74.01
0.005	59.93
0.01	45.80
0.02	32.53
0.05	18.47
0.1	11.49

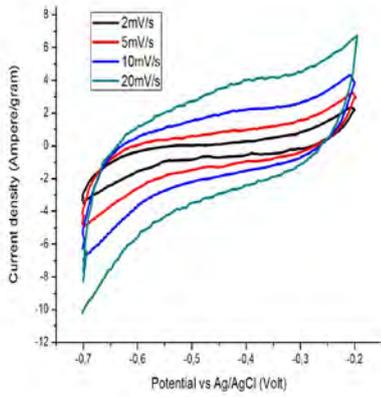
Semua sampel grafena , ditunjukkan pada gambar 4.31, mempunyai bentuk mendekati *rectangular*, yang menandakan kestabilan yang baik. Namun demikian, karena bentuk kurva yang miring ke arah atas, yang menunjukkan terjadi peningkatan nilai *current density* pada potential yang lebih tinggi, dapat disimpulkan bahwa semua sampel menunjukkan karakteristik kapasitor resistif.



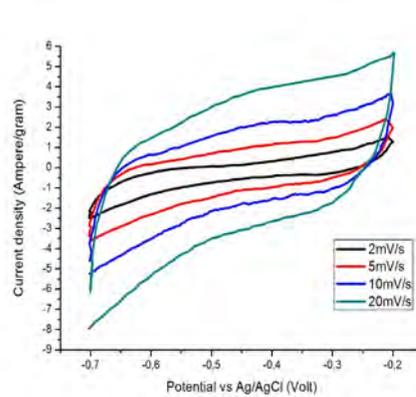
a.



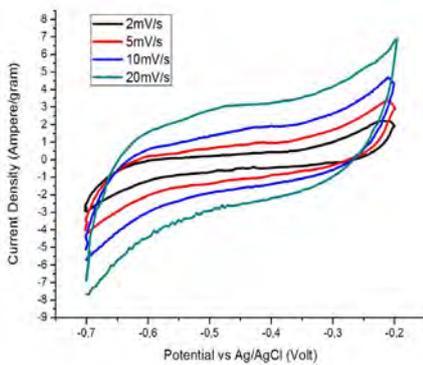
b.



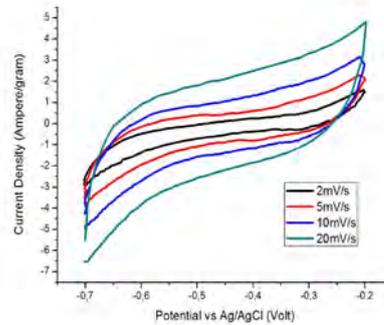
c.



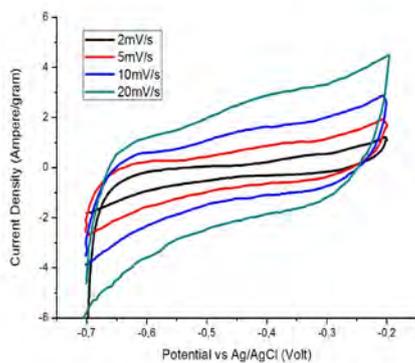
d.



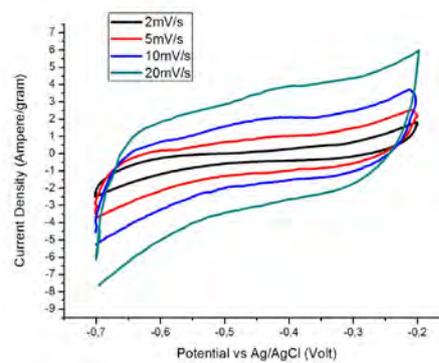
e.



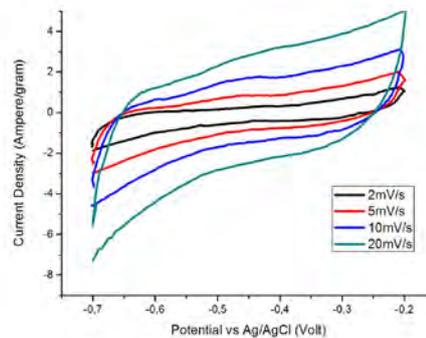
f.



g.



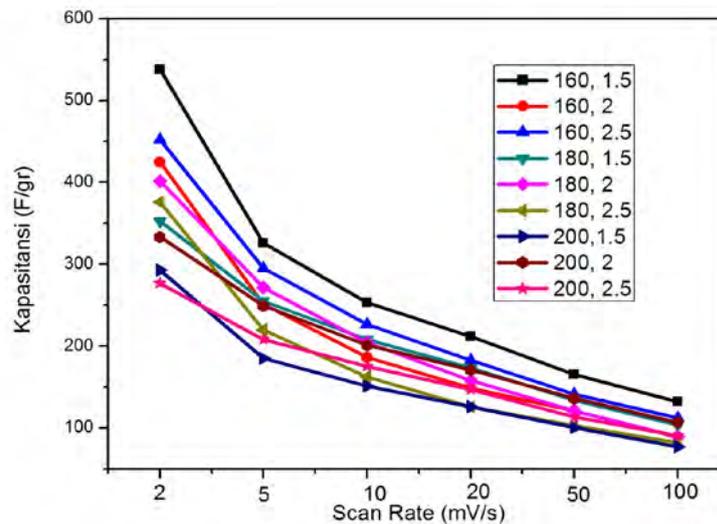
h.



i.

**Gambar 4.31** Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180, 1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)

Nilai kapasitansi tertinggi adalah pada sampel 160<sup>0</sup>C waktu ultrasonikasi 1.5 jam, yaitu sebesar 537.9 F/gram. Laju penurunan kapasitansi seiring dengan peningkatan scan rate juga tidak terlalu drastis, seperti ditunjukkan pada gambar 4.32. Secara umum larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  lebih bagus daripada  $\text{K}_2\text{SO}_4$  dalam hal pengujian CV, karena hasilnya lebih bisa dinalar dan bentuk kurvanya juga lebih *rectangular*.



**Gambar 4.32** Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$ , potential window  $-0.2 - -0.7$  V

#### 4.7.3 Larutan $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 1 M.

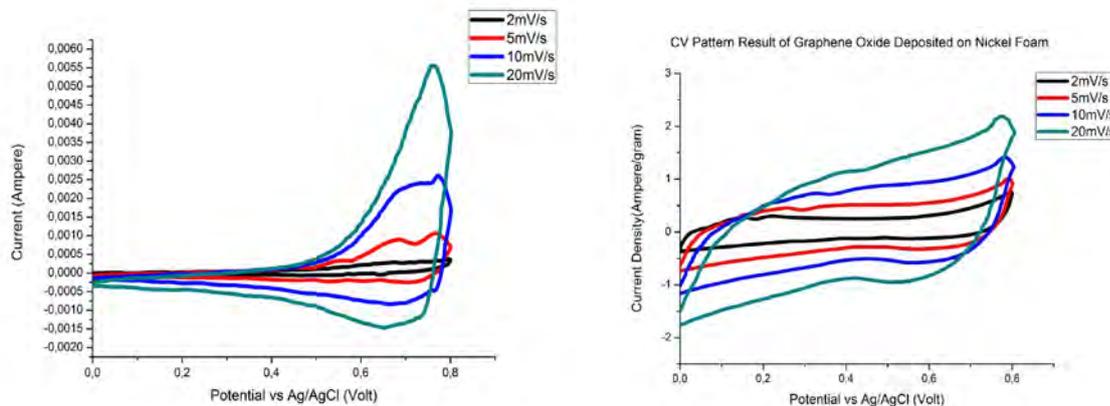
Grafena menunjukkan performa terbaik ketika menggunakan larutan netral  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ . Tidak ada efek *pseudocapacitance* yang terjadi, dan cenderung lebih stabil.

##### 4.7.3.a. Potential window 0-0.8 V

Pada rentang potensial positif, grafena tidak menunjukkan efek *pseudocapacitance*, namun cenderung berbentuk *rectangular* EDLC dan resistif.

Sampel nickel foam murni (Gambar 4.33 a), pada rentang positif tidak menunjukkan *hump* sama sekali, yang menandakan bahwa pada  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  tidak terjadi reaksi redoks Ni, sehingga tidak ada perilaku *pseudocapacitance* yang terjadi.

Seperti sebelumnya, grafena oksida (Gambar 4.33 b) menunjukkan perilaku stabil juga pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , dengan nilai kapasitansi sebesar 118.91 F/gram, seperti ditunjukkan pada tabel 4.14. Nilai ini lebih rendah dari hasil pada larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  (129.58 F/gram), namun lebih tinggi daripada hasil dari larutan  $\text{K}_2\text{SO}_4$  (87.25 F/gram).



a. Nickel Foam

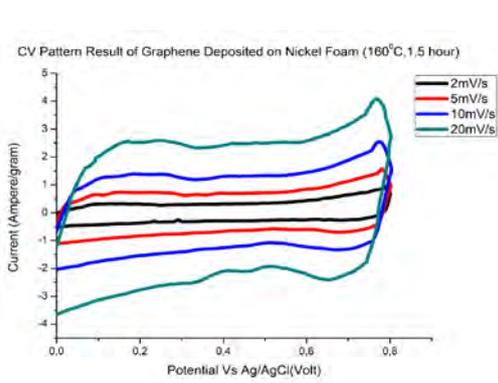
b. Grafena Oksida

**Gambar 4.33** Bentuk kurva *Cyclic Voltammetry* a) Nickel Foam dan b) grafena oksida pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1M.

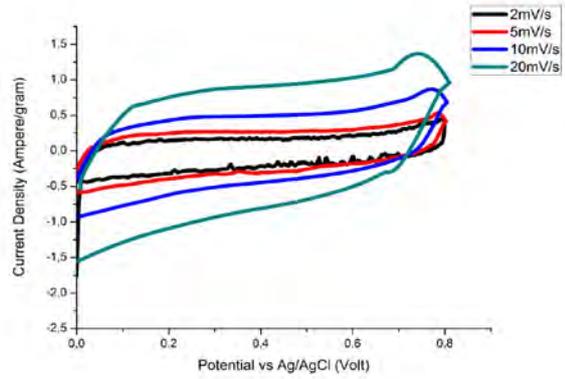
**Tabel 4.14** Kapasitansi dari grafena oksida dalam  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1M 0-0.8 Volt pada berbagai *scan rate*

Scan rate (V/s)	C (F/g)
0,002	118.91
0,005	87.41
0,01	70.67
0,02	54.58
0,05	34.71
0,1	22.20

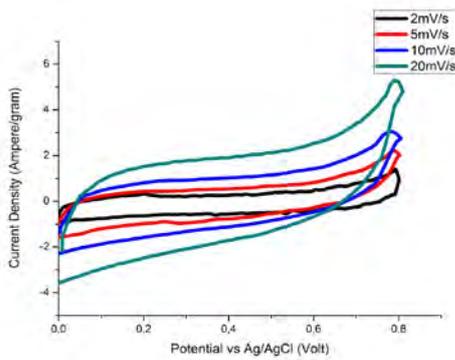
Sampel grafena (Gambar 4.34), menunjukkan dua perilaku, yaitu kapasitor resistif dan *double layer*. Perilaku kapasitor resistif ditunjukkan pada sampel grafena  $160^\circ$  dan  $180^\circ\text{C}$  waktu ultrasonikasi 2 dan 2.5 jam, sedangkan sampel lainnya semuanya menunjukkan perilaku *double layer (rectangular)*. Nilai kapasitansi tertinggi diperoleh semua pada sampel yang di ultrasonikasi 1.5 jam, dan yang paling tinggi adalah sampel  $180^\circ\text{C}$ , yaitu 184.17 dan sampel  $160^\circ\text{C}$ , yaitu 175.18 F/gram.



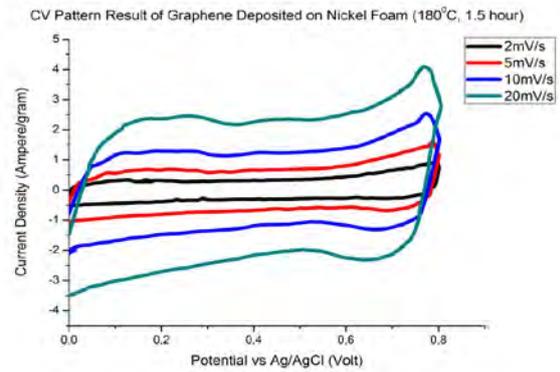
a.



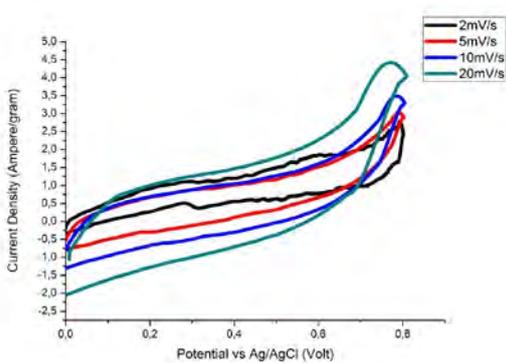
b.



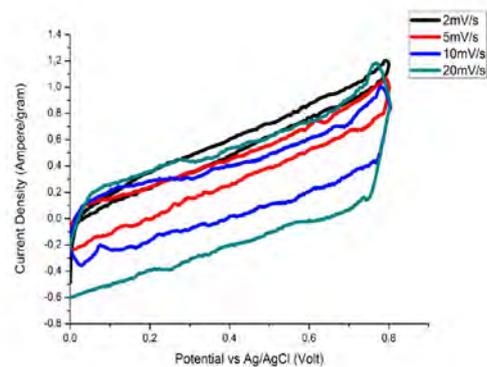
c.



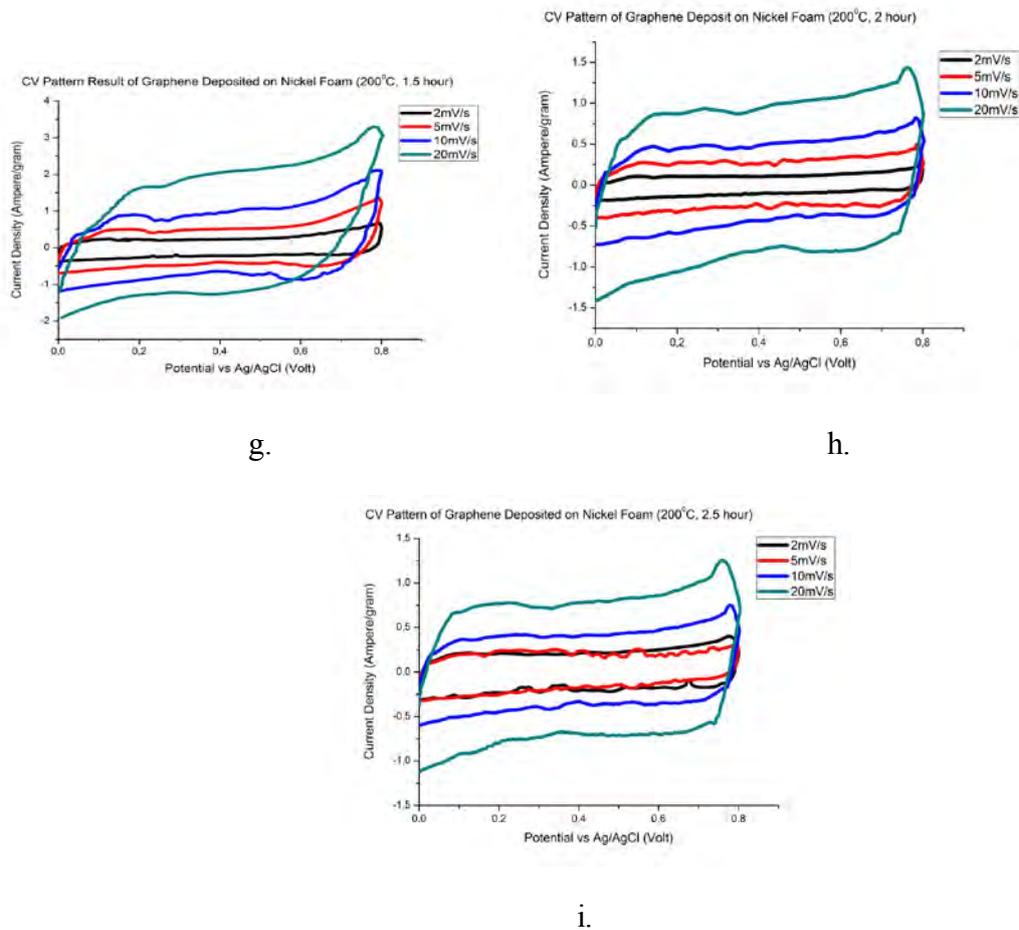
d.



e.

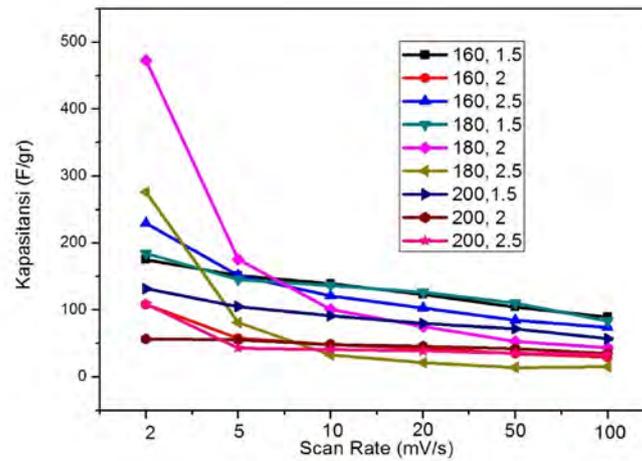


f.



**Gambar 4.34** Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window  $-0.2 - -0.7 \text{ V}$  a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180,1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)

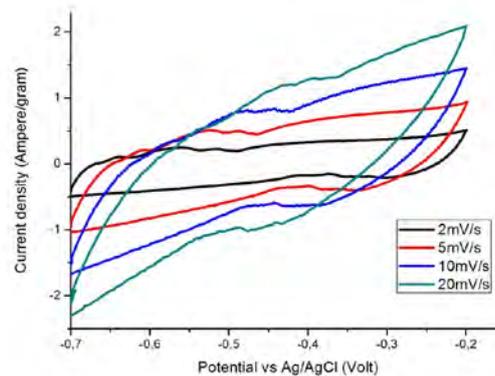
Sampel (180, 2), seperti ditunjukkan pada gambar 4.35, mempunyai kapasitansi yang tertinggi, namun nilai kapasitansi ini sangat menurun drastis ketika terjadi kenaikan scan rate, yang menandakan adanya ketidakstabilan pada spesimen. Hasil yang stabil diperoleh pada sampel (160, 1.5), karena bentuk kurva nya yang sangat landai, yang menandakan laju pengurangan kapasitansi nya hanya sedikit dan tidak drastis.



**Gambar 4.35** Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window 0 – 0.8 V

#### 4.7.3.b. Potential window (-0.7) – (-0.2) V

Dari semua elektrolit dan rentang potensial, inilah kombinasi yang paling bagus, baik dari segi bentuk kurva CV yang sebagian besar menunjukkan perilaku EDLC, maupun juga dari kestabilan penurunan nilai kapasitansi berdasarkan kenaikan scan rate.



**Gambar 4.36** Bentuk kurva *Cyclic Voltammetry* grafena oksida pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1M pada rentang potential window -0.2 - -0.7 V.

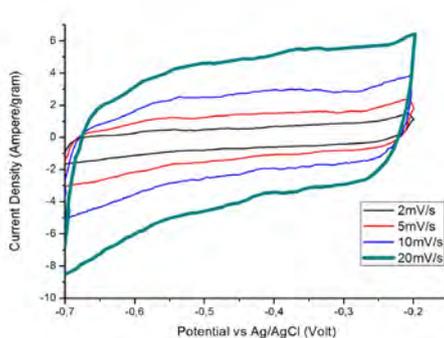


Grafena oksida (Gambar 4.36), seperti sebelumnya, selalu menunjukkan kestabilan. Nilai kapasitansi tertingginya, seperti ditunjukkan pada tabel 4.15 adalah 140.85 F/gram, lebih rendah daripada di larutan  $K_2SO_4$  (168.53 F/gram) namun lebih tinggi daripada di larutan  $Li_2SO_4$  (74.01 F/gram).

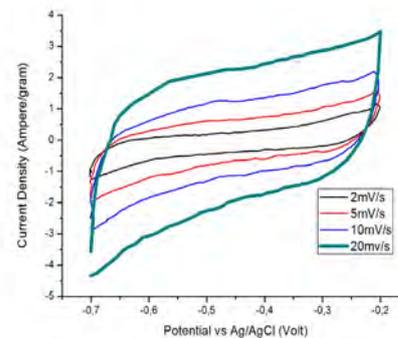
**Tabel 4.15** Kapasitansi dari grafena oksida dalam  $Na_2SO_4$  1M -0.2 - -0.7 Volt pada berbagai *scan rate*

Scan rate (V/s)	C (F/g)
0.002	140.85
0.005	110.92
0.01	83.17
0.02	56.54
0.05	29.86
0.1	17.81

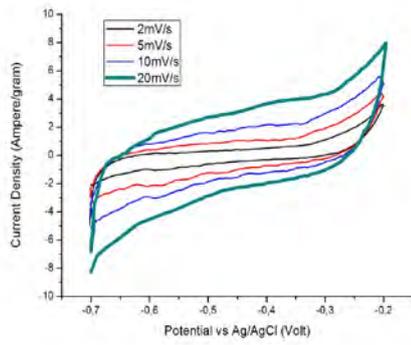
Grafena menunjukkan perilaku yang sangat baik dalam hal *double layer* pada larutan  $Na_2SO_4$  baik pada rentang potensial positif ataupun rentang negatif. Terbukti pada sampel 160<sup>0</sup>, 180<sup>0</sup>, dan 200<sup>0</sup> dengan waktu ultrasonikasi 1.5 jam, didapat bentuk *rectangular* yang hampir sempurna, yang menandakan bahwa performa EDLC nya sangat baik. Walaupun ada juga sampel yang masih bersifat kapasitor resistif, namun semuanya mempunyai bentuk yang sama, *rectangular*, seperti ditunjukkan pada gambar 4.37.



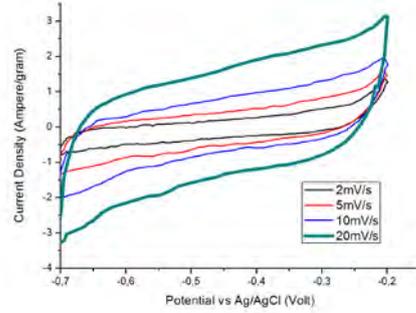
a.



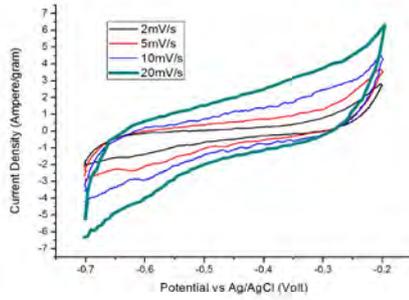
b.



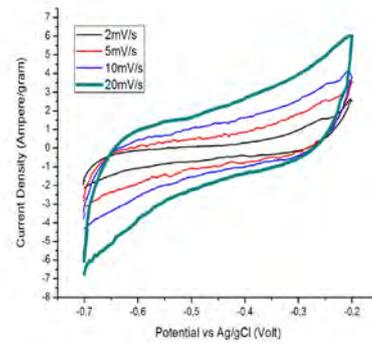
c.



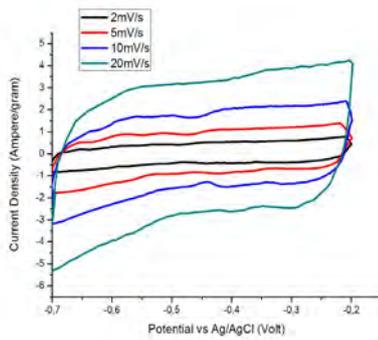
d.



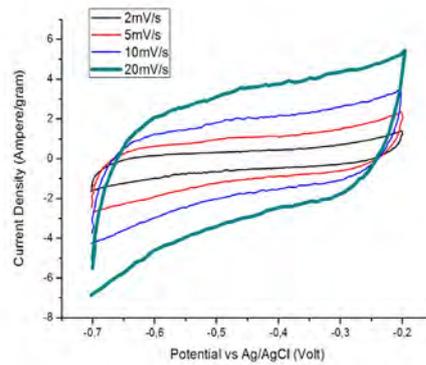
e.



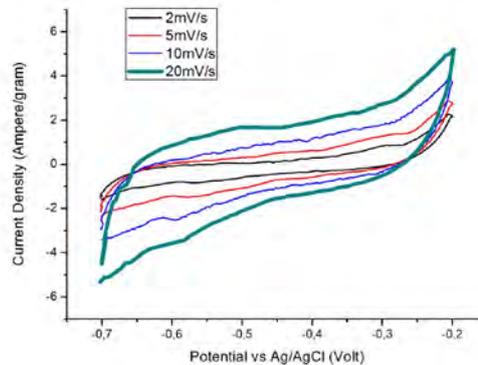
f.



g.



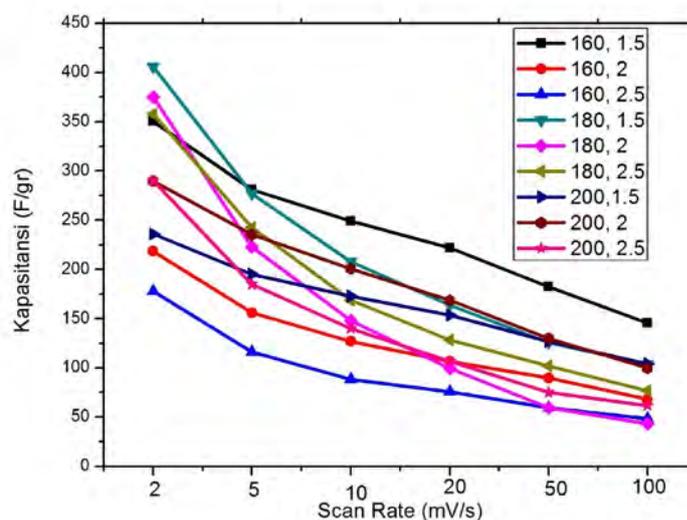
h.



i.

**Gambar 4.37** Bentuk Kurva CV untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V a (160, 1.5) b (160, 2) c (160, 2.5) d (180, 1.5) e (180, 2) f (180, 2.5) g (200, 1.5) h (200, 2) dan i (200, 2.5)

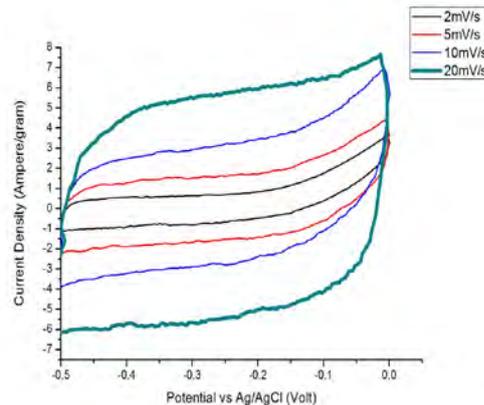
Nilai kapasitansi juga turun secara stabil seiring dengan kenaikan scan rate, seperti ditunjukkan pada gambar 4.38.



**Gambar 4.38** Hubungan antara Kapasitansi dan Scan Rate untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window -0.2 - -0.7 V



Nilai kapasitansi tertinggi adalah sebesar 491.36 F/gram, yaitu pada sampel 160<sup>0</sup>C waktu ultrasonikasi 1.5 jam, yang diperlihatkan pada gambar 4.39 dan tabel 4.16. Nilai ini jauh lebih baik apabila dibandingkan dengan hasil penelitian dari Xian Du dkk (2010), yang menghasilkan nilai kapasitansi 150 F/gr, atau Yueming Li dkk (2011), yang menghasilkan nilai kapasitansi 136 F/gr .



**Gambar 4.39** Bentuk kurva CV untuk sampel 160<sup>0</sup>C ultrasonikasi 1.5 jam dalam larutan Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1 M pada rentang potential window 0 - -0.5 V.

**Tabel 4.16** Kapasitansi dari grafena oksida dalam Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1M 0 - -0.5 Volt pada berbagai *scan rate*

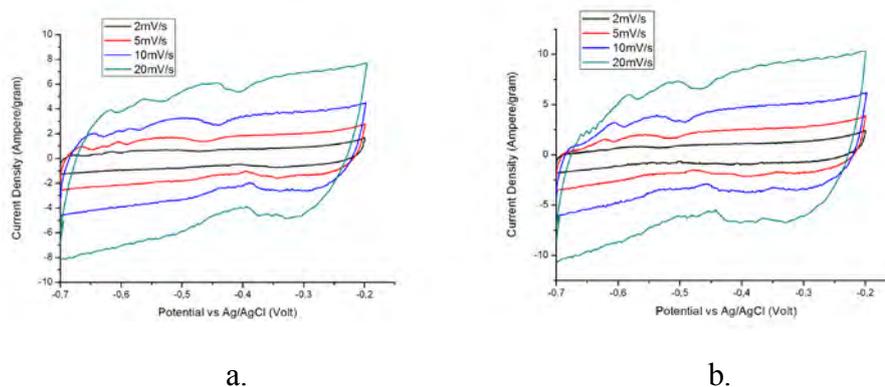
Scan rate (V/s)	C (F/g)
0,002	491,36
0,005	341,45
0,01	298,85
0,02	263,95
0,05	240,55
0,1	216,94

Berdasarkan hasil BET, sebenarnya nilai BET dari sampel 160<sup>0</sup>C adalah yang paling rendah apabila dibandingkan dengan temperatur lain. Namun nilai kapasitansi nya ternyata yang paling tinggi. Hal ini kemungkinan disebabkan oleh adanya ketidak teraturan lapisan tumpukan grafena, yang justru meningkatkan kapasitansi dari EDLC (Xian Du, 2010).



Dari semua larutan yang dipakai untuk pengujian, dapat disimpulkan bahwa larutan terbaik adalah  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , karena dengan menggunakan larutan ini, banyak sampel yang menunjukkan karakteristik *double layer*. Sedangkan larutan  $\text{Li}_2\text{SO}_4$  menjadi pilihan kedua, karena kadang menunjukkan perilaku *double layer*, kadang menunjukkan perilaku *pseudocapacitance*.  $\text{K}_2\text{SO}_4$  adalah larutan yang terburuk, karena hampir semua sampel bersifat *pseudocapacitance* pada larutan ini. Sedangkan rentang potensial yang paling menunjukkan hasil yang valid adalah rentang potensial negatif, karena rentang potensial ini bebas dari reaksi redoks Ni, yang kadang bisa mengaburkan nilai kapasitansi alami dari grafena.

Keseluruhan sampel menunjukkan perilaku ketergantungan terhadap scan rate. Dapat dilihat bahwa nilai kapasitansi akan semakin besar apabila scan rate yang digunakan semakin kecil. Begitu sebaliknya. Hal ini dikarenakan, pada scan rate yang kecil, maka dapat menjangkau lebih dalam dari bagian material, sehingga lebih banyak luas permukaan aktif yang dihasilkan, sehingga menyebabkan nilai kapasitansi nya meningkat.



**Gambar 4.40** Bentuk kurva CV untuk sampel a) Karbon Aktif b) Komposit Karbon Aktif – Grafena

Selain itu, dilakukan pengujian kapasitansi dari karbon aktif (luas permukaan aktif 2500  $\text{m}^2/\text{gram}$ ), dan komposit grafena karbon aktif (perbandingan massa 1:1) sebagai perbandingan. Bentuk kurva CV dari keduanya ditunjukkan pada gambar 4.40. Dari hasil pengujian kapasitansi didapat nilai kapasitansi karbon aktif sebesar 364.5 F/gram. Nilai ini juga termasuk sangat tinggi. Kemudian diperoleh untuk nilai kapasitansi dari komposit karbon aktif grafena mencapai 485.23, jauh lebih tinggi dari grafena atau karbon aktif yang murni. Bentuk kurva nya juga *rectangular*,



dan kestabilannya sangat tinggi, diketahui dari nilai kapasitansi yang tidak turun secara drastis seiring dengan peningkatan *scan rate*, seperti ditunjukkan pada tabel 4.17.

**Tabel 4.17** Kapasitansi dari Karbon Aktif dan Komposit Karbon Aktif - Grafena dalam  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1M -0.2 - -0.7 Volt pada berbagai *scan rate*

Scan rate (V/s)	Kapasitansi (F/gram)	
	Karbon Aktif	Komposit Karbon Aktif-Grafena
0,002	364.50	485.23
0,005	329.30	422.24
0,01	302.22	390.46
0,02	271.56	351.87
0,05	209.22	289.66
0,1	159.59	222.74

Maka dapat ditarik kesimpulan, bahwa komposit karbon aktif grafena juga sangat memungkinkan untuk digunakan sebagai elektroda EDLC masa depan, karena secara kapasitansi nya sangat tinggi, dan juga adanya grafena membuat nilai konduktivitas listriknya menjadi naik, sehingga lebih mudah terjadi mekanisme *double layer* dan juga lebih stabil.

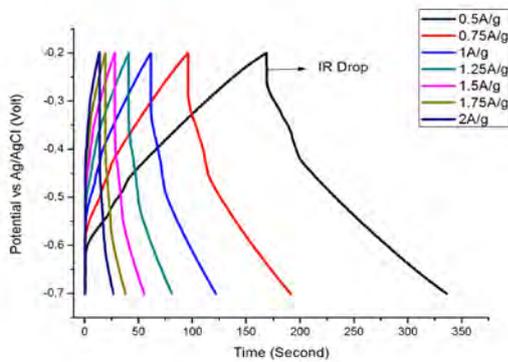
#### 4.8 Hasil Pengujian Charge-Discharge

Pengujian *charge discharge* dilakukan pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  pada rentang potential window -0.2 V - -0.7 V. Kurva *charge discharge* secara umum mempunyai dua perilaku, yaitu berbentuk segitiga simetris atau tidak simetris. Simetris menunjukkan waktu *charge* dan *discharge* nya sama. Sedangkan tidak simetris menunjukkan waktu *charge* yang lebih lama dari waktu *discharge*, atau sebaliknya. Hasil dari pengujian charge discharge untuk grafena oksida dan 9 sampel grafena ditunjukkan pada gambar 4.41.

Grafena oksida menunjukkan perilaku *charging-discharging* yang bagus, ditunjukkan oleh bentuk kurva *charge-discharge* nya yang hampir berbentuk segitiga. Bentuk ini mengindikasikan bahwa waktu *charge* hampir sama dengan waktu *discharge* nya. EDLC dikatakan mempunyai performa yang bagus apabila memenuhi syarat ini. Kemudian, dapat dilihat pula bahwa terjadi IR Drop pada permulaan proses *dicharging*. IR Drop terjadi akibat akumulasi dari hambatan dalam DC dan juga akibat arus listrik *discharge* yang mengalir besar.

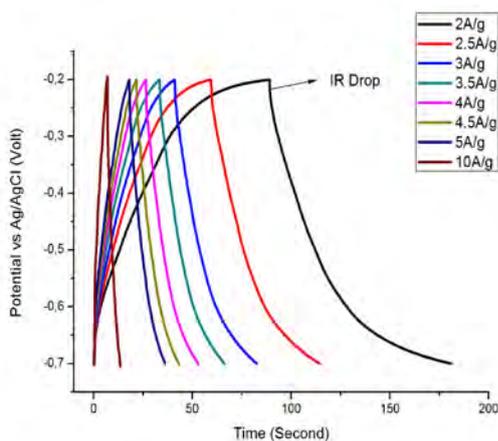


Nampak nilai kapasitansinya sebesar 167.4 F/gram, tidak terlalu jauh apabila dibandingkan dengan hasil yang didapat dari kurva CV (140.85 F/gram).



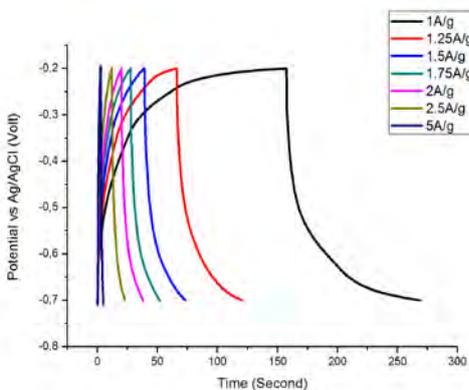
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
0.5	167.4	167.4
0.75	95.1	142.65
1	60.5	121
1.25	40.1	100.25
1.5	27.3	81.9
1.75	18.7	65.45
2	13.1	52.4

a.



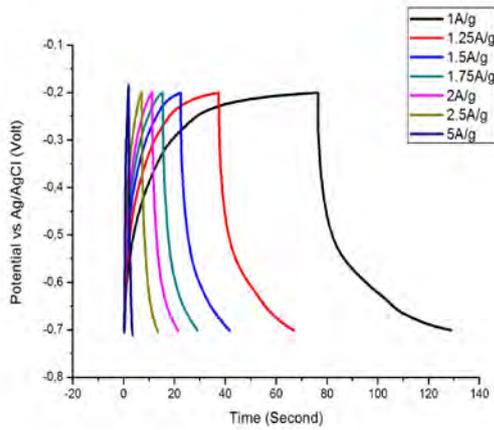
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
2	92	368
2.5	55	275
3	41.5	249
3.5	32.8	229
4	26.5	212
4.5	21.6	194.4
5	18.1	181
10	6.6	132

b.



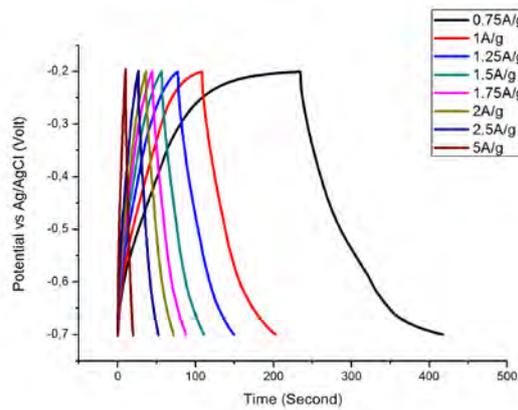
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
1	111.7	223.4
1.25	54.5	136.25
1.5	34.4	103.2
1.75	24.7	86.45
2	18.1	72.4
2.5	11	55
5	2.2	22

c.



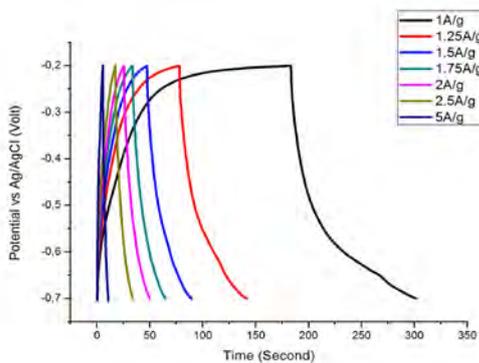
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
1	52.4	104.8
1.25	29.5	74.5
1.5	19.4	58.2
1.75	13.8	48.3
2	10.3	41.2
2.5	6.4	32
5	1.6	16

d.



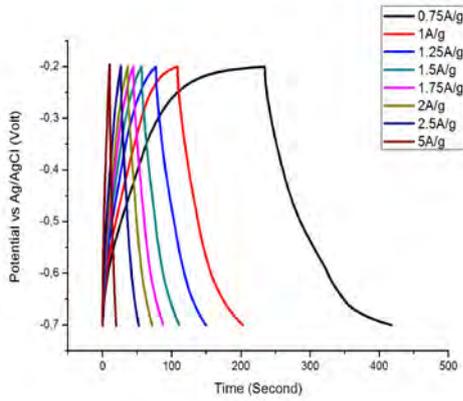
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
0.75	183.2	274.8
1	94.6	189.2
1.25	72.2	180.5
1.5	54.1	162.3
1.75	43.1	150.85
2	35.5	142
2.5	26	130
5	9.7	97

e.



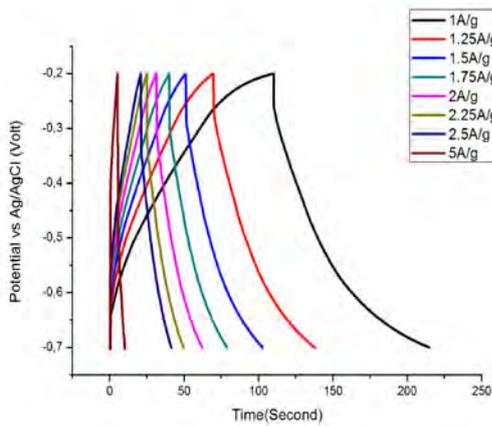
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
1	118.6	237.2
1.25	63.4	158.5
1.5	42.2	126.6
1.75	31.1	108.85
2	24.5	98
2.5	16.4	82
5	5.1	51

f.



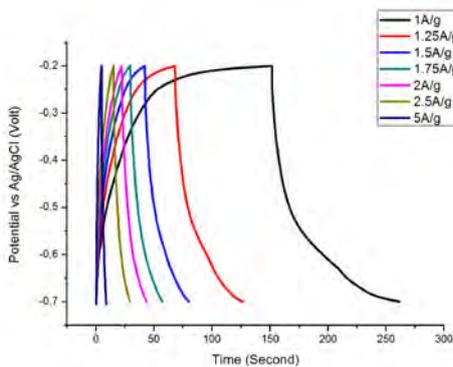
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
1	118.6	158
1.25	63.4	133.75
1.5	42.2	108.6
1.75	31.1	95.55
2	24.5	86.8
2.5	16.4	73.5
5	5.1	50

g.



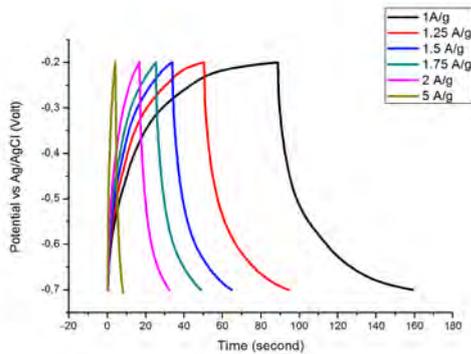
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
1	104.7	209.4
1.25	68.2	170.5
1.5	51.4	154.2
1.75	39	136.5
2	30.9	123.6
2.25	24.6	110.7
2.5	20.5	102.5
5	4.9	49

h.



Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
1	110.4	220.8
1.25	58.4	146
1.5	38.1	114.3
1.75	27.9	97.65
2	21.4	85.6
2.5	14.3	71.5
5	4.2	42

i.



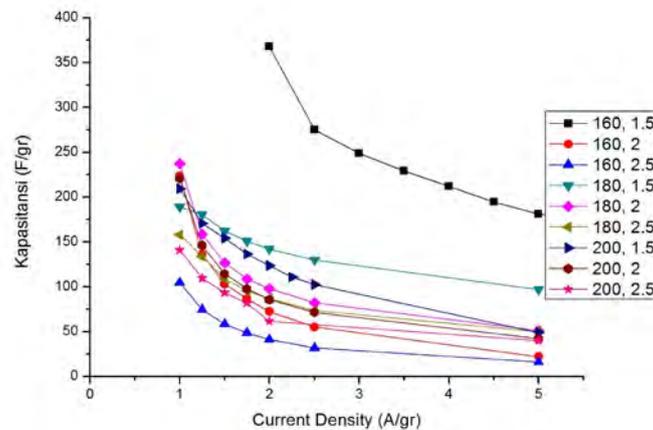
Current Density (A/gr)	Waktu Discharging (sekon)	Kapasitansi (Farad/gram)
1	70.4	140.8
1.25	43.8	109.5
1.5	31.1	93.3
1.75	23.4	81.9
2	15.4	61.6
5	4	40

j.

**Gambar 4.41** Bentuk Kurva Charge Discharge dan nilai kapasitansi pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , *potential window* (-0.2) – (-0.7) V a (grafena oksida) b (160, 1.5) c (160, 2) d (160, 2.5) e (180,1.5) f (180, 2) g (180, 2.5) h (200, 1.5) i (200, 2) dan j (200, 2.5)

Perilaku 9 sampel grafena dapat dikategorikan menjadi 2. Yang pertama adalah perilaku EDLC yang baik, yang ditunjukkan bentuk kurva yang mendekati bentuk segitiga sempurna, yang mengindikasikan bahwa *charge discharge* nya berlangsung secara seimbang. Perilaku ke dua adalah perilaku EDLC yang buruk, ditandai dengan bentuk kurva *charge* yang lebih panjang dan melengkung apabila dibandingkan dengan kurva *discharge* nya. Akibatnya, waktu *charging* nya lebih lama daripada waktu *discharging* nya. Tentu ini adalah hal yang tidak diinginkan, karena yang dicari dari kapasitor adalah bagaimana agar waktu *charging* sesingkat mungkin dan waktu *discharging* nya selama mungkin. Bentuk kurva seperti ini mengindikasikan telah terjadi degradasi pada elektrolit yang digunakan pengujian.

Secara umum, sampel dengan waktu ultrasonikasi 1.5 jam di semua variasi temperatur hidrotermal menunjukkan perilaku *charge discharge* dan nilai kapasitansi yang bagus dan relevan, seperti yang ditunjukkan pada gambar 4.42. Nilai tertinggi adalah pada sampel  $160^\circ\text{C}$  ultrasonikasi 1.5 jam, yaitu mencapai 368 F/gram, tidak begitu jauh dengan nilai kapasitansi yang di dapat dari kurva CV (350.57 F/gram). Nilai ini juga jauh lebih tinggi apabila dibandingkan dengan nilai hasil dari penelitian Xian Du (2010), yang sebesar 150 F/gr.

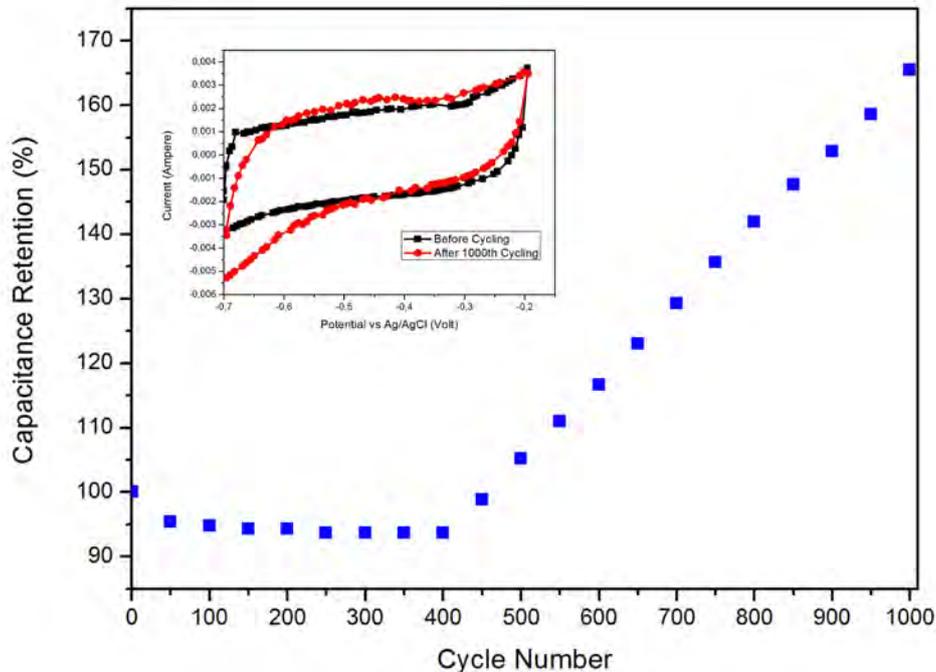


**Gambar 4.42** Hubungan antara Kapasitansi dan *Current Density* untuk 9 sampel grafena pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , potential window  $-0.2 - -0.7$  V

Peningkatan waktu ultrasonikasi menyebabkan nilai kapasitansi turun, disertai bentuk kurva yang tidak terlalu *rectangular*, mengindikasikan bahwa ultrasonikasi 2 dan 2.5 jam terjadi penurunan performa dari EDLC. Begitu juga dengan pengaruh temperatur, ternyata seiring dengan peningkatan temperatur hidrotermal, terjadi penurunan nilai kapasitansi.

#### 4.9 Hasil Pengujian *Cycleability*

Pengujian *Cycleability* bertujuan untuk mengetahui kestabilan performa dari elektroda EDLC akibat adanya proses *charging* dan *discharging* yang berulang. Superkapasitor biasanya bisa tahan samapi lebih dari 10.000 kali siklus, lebih baik apabila dibandingkan dengan baterai. Pada penelitian ini dilakukan proses charging-discharging sebanyak 1000 siklus, dengan mengalirkan *current density* sebesar 1.5 A/gram.



**Gambar 4.43** Hasil pengujian Cycle Number . Inset : CV sebelum dan sesudah 1000 *cycling*

Dari kurva, nampak bahwa kapasitansi berkurang seiring dengan peningkatan jumlah siklus. Tercatat bahwa nilai kapasitansi tersisa sebesar 93.67% sampai pada siklus 400, yang mengindikasikan performa yang bagus, karena hanya sekitar 6% nilai kapasitansi yang hilang. Kemudian, tercatat bahwa pada siklus lebih dari 400 kali, nilai kapasitansi dari elektroda justru semakin naik, puncaknya pada siklus ke 1000, nilai kapasitansi nya menjadi 165.5%. Tentu ini patut diperhatikan. Perilaku unik ini dapat di jelaskan akibat adanya peningkatan luas permukaan aktif dari material pada saat proses *charging discharging* (Jiahua Zhu, 2013). Selain itu peningkatan ini juga disebabkan adanya proses aktivasi yang menyebabkan ion yang terperangkap di dalam material secara bertahap terlepas dan berdifusi keluar (X. Zhang, 2010).

Selain itu, dari kurva CV sebelum dan sesudah pengujian cycle number (pada inset gambar), nampak ada perbedaan. Terlihat bahwa CV yang diambil setelah siklus ke 1000 menunjukkan kapasitansi yang lebih besar dari keadaan awal sebelum dilakukan pengujian.

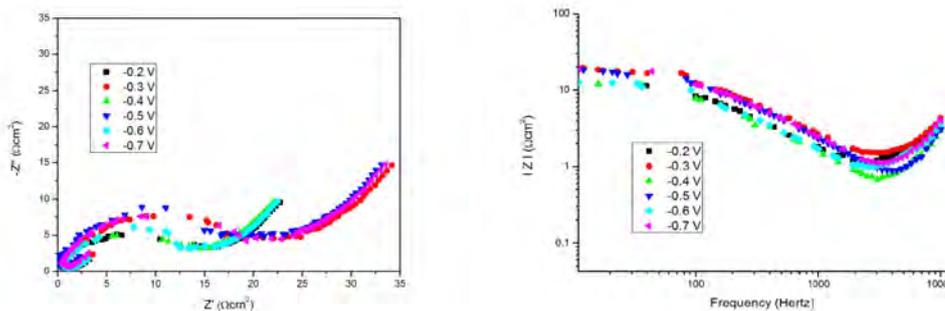


#### 4.10 Hasil Pengujian EIS

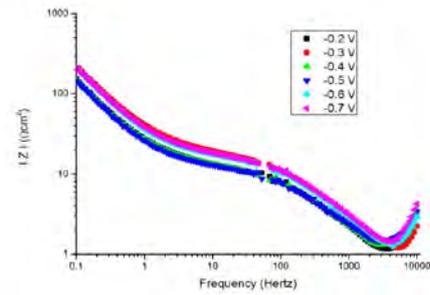
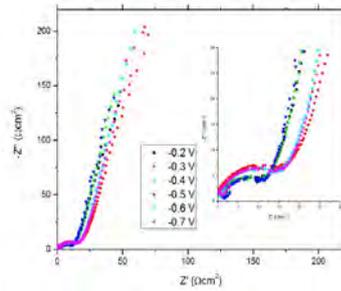
Pengujian EIS dimaksudkan untuk mengetahui sifat kapasitif dari material berdasarkan bentuk kurva Nyquist, dan juga untuk mengetahui sifat konduktivitas dari material berdasarkan bode plot IZI. Kurva plot Nyquist terdiri dari nilai  $Z$  real (sumbu x) dan  $Z$  imajiner (sumbu y). Nilai  $Z$  real menunjukkan nilai dari hambatan ohmik, dan  $Z$  imajiner menunjukkan adanya elemen non resistif (Xiandu, 2010).

Plot Nyquist terdiri dari dua daerah, yaitu daerah frekuensi tinggi dan daerah frekuensi rendah. Daerah frekuensi tinggi mempunyai bentuk setengah lingkaran, biasa dinamakan Warburg region, menunjukkan proses redoks faradaik yang terjadi pada sistem. Sedangkan pada frekuensi rendah, berupa garis lurus, tegak dengan sumbu Y. Semakin mendekati  $90^\circ$ , maka dapat disimpulkan bahwa sifat kapasitif dari material semakin baik (Weijiang Si, 2013).

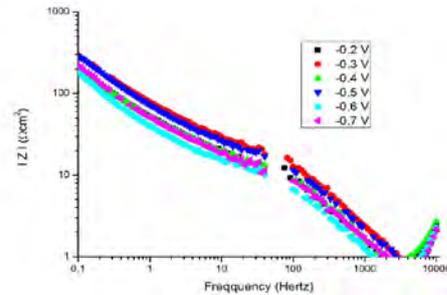
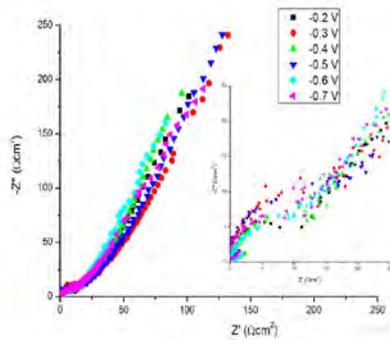
Selain itu, nilai yang tertera pada sumbu X, yang merupakan perpotongan dengan kurva, menunjukkan nilai dari *Equivalent Circuit Resistance* (ESR). ESR merupakan hasil dari kombinasi beberapa hal, yang pertama adalah hambatan akibat adanya transfer muatan ionik dan elektronik, hambatan transfer muatan intrinsik dari material, dan terakhir akibat adanya hambatan kontak antara material dengan interface dari *current collector* (dalam hal ini nickel foam). (Weijiang Si, 2013). Gambar plot Nyquist dan plot Bode IZI untuk grafena oksida dan 9 sampel grafena ditunjukkan pada gambar 4.44.



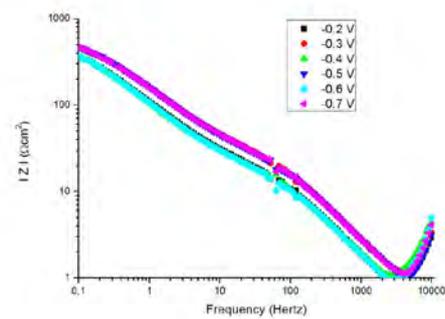
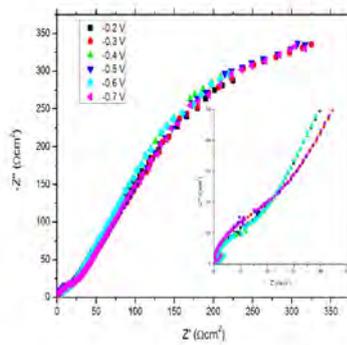
a.



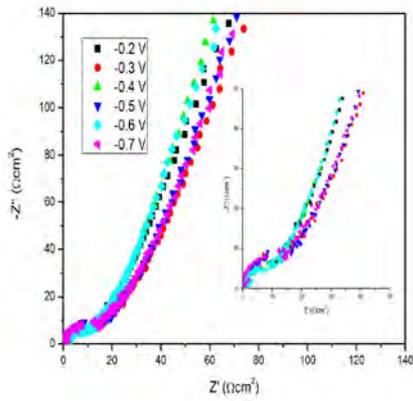
b.



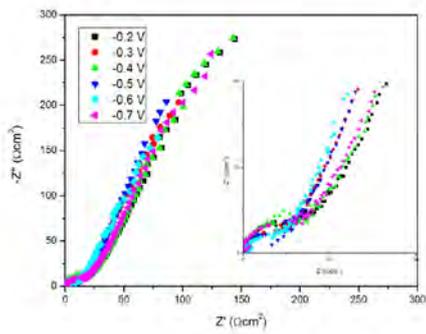
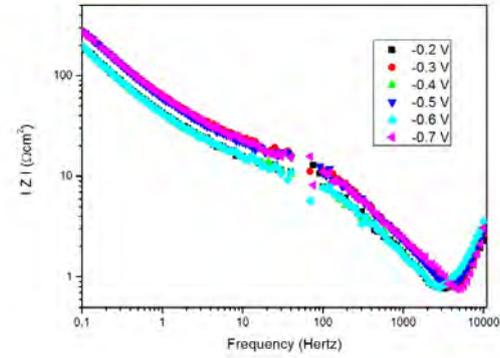
c.



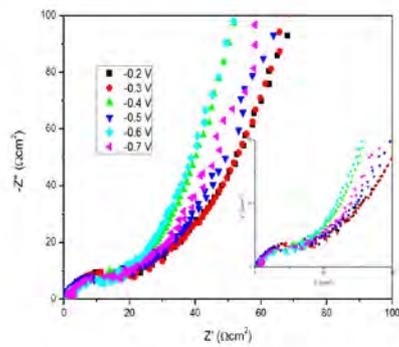
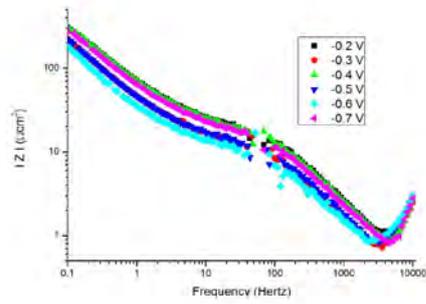
d.



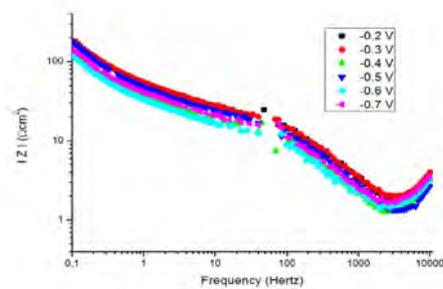
e.

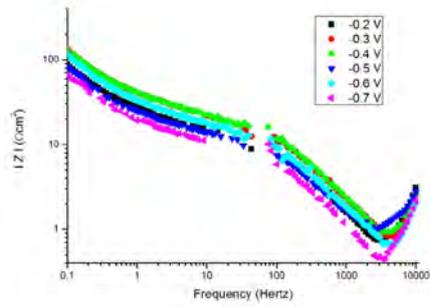
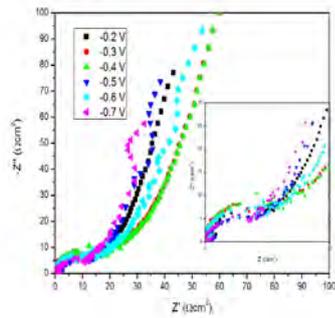


f.

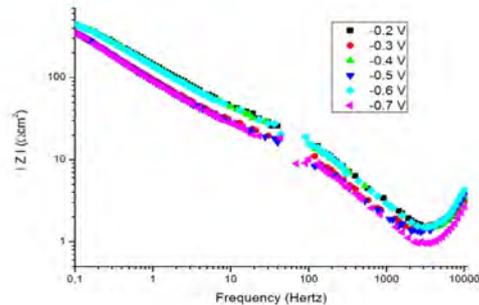
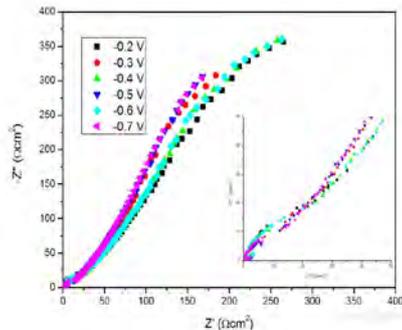


g.

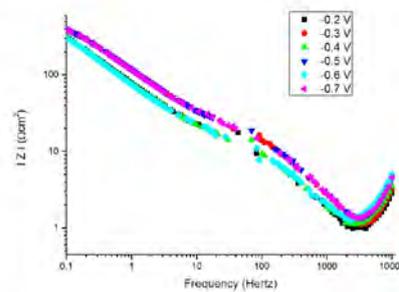
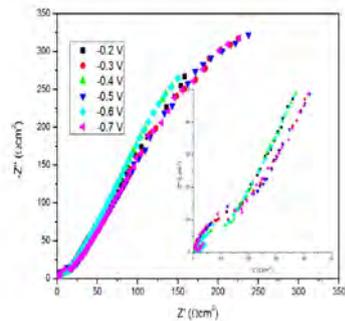




h.



i.

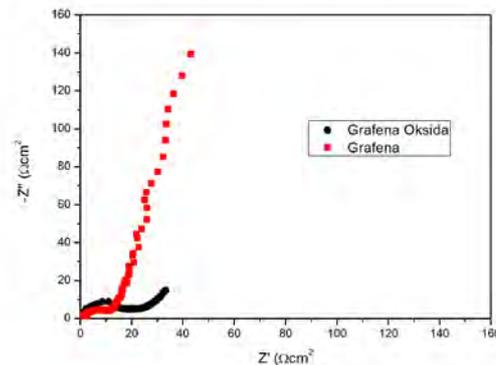


j.

**Gambar 4.44** Bentuk Plot Nyquist (kiri) dan Plot Bode IZI (kanan) pada larutan  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  1M potential window (-0.2) – (-0.7) V a (grafena oksida) b (160, 1.5) c (160, 2) d (160, 2.5) e (180,1.5) f (180, 2) g (180, 2.5) h (200, 1.5) i (200, 2) dan j (200, 2.5)

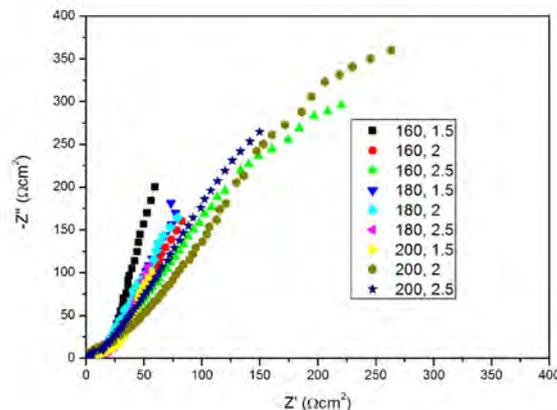


Seperti tampak pada gambar 4.45 dibawah, pada grafena oksida, nampak bahwa Plot Nyquist nya sangat landai, yang menunjukkan sifat kapasitif nya rendah, dan cenderung bersifat resistif. Sementara itu, ke 9 sampel grafena menunjukkan Plot Nyquist nya sangat tajam dan cenderung tegak lurus mendekati  $90^0$ , yang mengindikasikan bahwa sampel grafena mempunyai sifat kapasitif yang bagus.



**Gambar 4.45** Perbandingan Plot Nyquist grafena oksida dan grafena

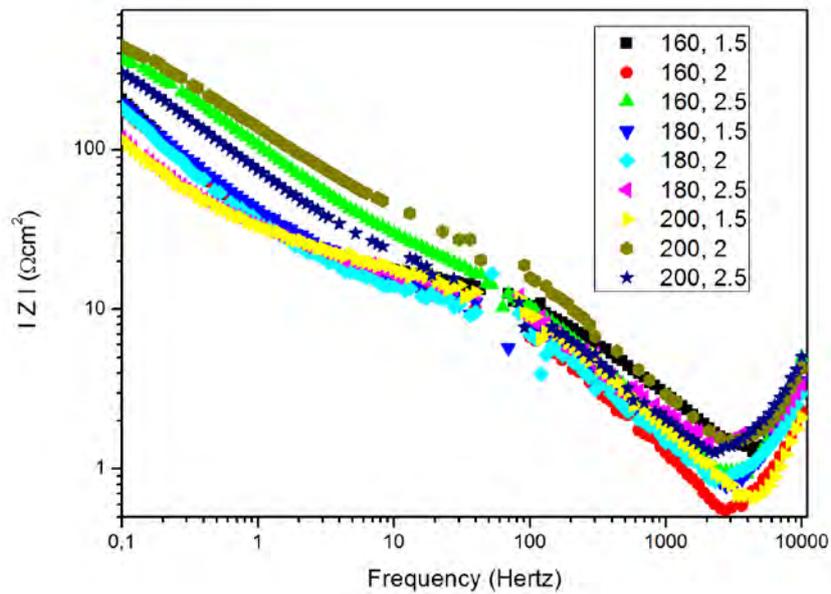
Semua sampel dengan waktu ultrasonikasi 1.5 jam pada berbagai variasi temperatur menunjukkan plot Nyquist yang paling tajam dan lebih mendekati  $90^0$  apabila dibanding dengan sampel dengan waktu ultrasonikasi yang lain. Bentuk kurva yang paling tegak diperoleh pada sampel  $160^0\text{C}$ , ultrasonikasi 1.5 jam, seperti ditunjukkan gambar 4.46, yang menunjukkan sifat kapasitif yang bagus, hal ini juga ditunjang dengan data dari CV dan *charge discharge* sebelumnya.



**Gambar 4.46** Perbandingan bentuk Plot Nyquist untuk 9 sampel grafena



Selain itu, dari kurva Bode IZI, dapat diketahui nilai nilai konduktivitas nya. Seperti terlihat pada gambar 4.47, dan tabel 4.18, nampak bahwa sampel 200<sup>0</sup>C, ultrasonikasi 1.5 jam mempunyai nilai IZI yang paling rendah, yang mengindikasikan bahwa nilai konduktivitas nya adalah yang tertinggi. Sampel waktu ultrasonikasi 2 jam dan 2.5 jam nampak mempunyai nilai IZI yang tinggi, mengindikasikan bahwa sifat konduktivitas nya kurang baik.



**Gambar 4.47** Perbandingan kurva Bode IZI dari 9 sampel grafena

**Tabel 4.18** Nilai IZI untuk semua sampel grafena

No	Variasi	Nilai IZI ( $\Omega \text{ cm}^2$ )
1	160, 1.5	208.37
2	160, 2	180.5
3	160, 2.5	368.65
4	180, 1.5	195.49
5	180, 2	182.31
6	180, 2.5	119.43
7	200, 1.5	116.04
8	200, 2	446.17
9	200, 2.5	304.11



*Halaman ini sengaja dikosongkan*



## BAB V

### KESIMPULAN

#### 5.1. Kesimpulan

Grafena berhasil disintesis dengan menggunakan metode Hummer, diikuti dengan proses reduksi menggunakan serbuk Zn, kemudian diteruskan dengan proses hidrotermal. Parameter yang digunakan sebagai tujuan penelitian adalah pengaruh waktu ultrasonikasi (1.5, 2, dan 2.5 jam) dan temperatur hidrotermal (160, 180, dan 200<sup>0</sup>C) terhadap nilai kapasitansi elektroda EDLC. Grafena yang dihasilkan dikarakterisasi dengan XRD, SEM, EDS, FTIR, BET, Raman, dan FPP. Dari pengujian karakterisasi semua menunjukkan bahwa sampel yang disintesis adalah grafena. Kemudian dilakukan pengujian performa elektroda EDLC dari grafena dengan menggunakan uji CV, EIS, Charge Discharge, dan Cycle Number. Didapatkan kapasitansi yang tertinggi pada sampel dengan variasi temperatur 160<sup>0</sup>C dan waktu ultrasonikasi 1.5 jam. Terdapat *trend* penurunan nilai kapasitansi seiring dengan kenaikan temperatur hidrotermal dan waktu ultrasonikasi. Hal ini dikarenakan semakin naik temperatur hidrotermal ataupun waktu ultrasonikasi, maka semakin banyak gugus OH yang hilang, padahal sebenarnya gugus OH ini memberikan kontribusi dalam peningkatan nilai kapasitansi dari EDLC.

#### 5.2. Saran

Ada beberapa saran yang penulis ingin tekankan :

1. Pada saat pengujian FPP, sebaiknya menggunakan alat *conductivity meter* agar hasil yang diperoleh lebih valid
2. Melakukan pengujian SEM yang *cross section* untuk mengetahui tumpukan – tumpukan lembaran grafena.
3. Melakukan pengujian TEM dan XPS untuk mengetahui lembaran tipis single layer dalam skala nano, dan untuk mengetahui rasio C/O yang lebih valid.
4. Mencari *current collector* lain selain Ni foam, karena kadang pada nickel foam terjadi reaksi redoks pada permukaannya



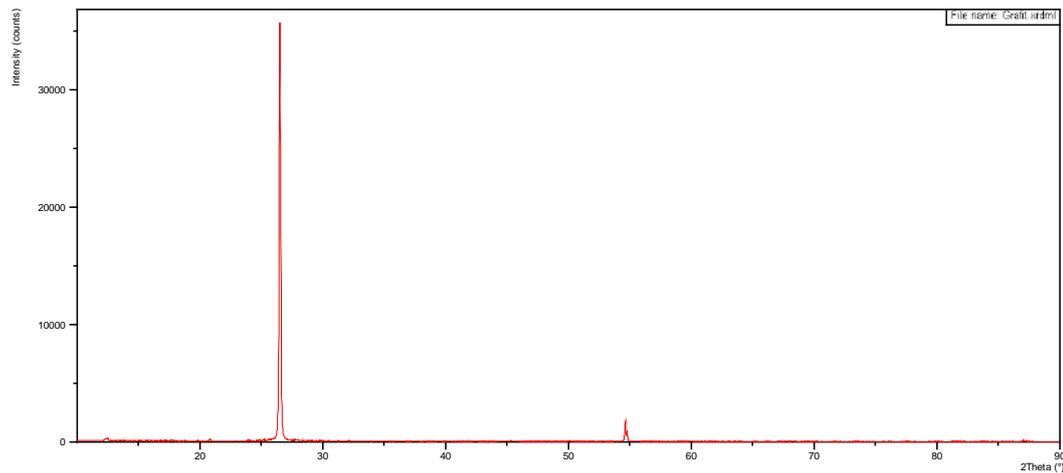
5. Melakukan *assembly* elektroda dalam bentuk *coin cell*, agar bisa dilihat lebih nyata performa elektrokimianya sesuai dengan aplikasi di lapangan.



## LAMPIRAN

### 1. Hasil Pengujian XRD

#### a. Grafit



#### Peak List :

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
10.2722	24.88	0.2676	8.61173	0.07
12.3092	162.16	0.1004	7.19078	0.46
12.4957	245.40	0.0836	7.08389	0.70
17.6914	76.92	0.2342	5.01344	0.22
18.8110	44.22	0.1004	4.71749	0.13
19.8898	22.63	0.1338	4.46399	0.06
20.8386	180.05	0.0669	4.26285	0.52
22.8861	24.79	0.2007	3.88589	0.07
23.8657	112.08	0.1004	3.72857	0.32
24.8657	132.42	0.1171	3.58084	0.38
25.1924	163.65	0.1171	3.53514	0.47
25.6735	156.19	0.2007	3.46997	0.45

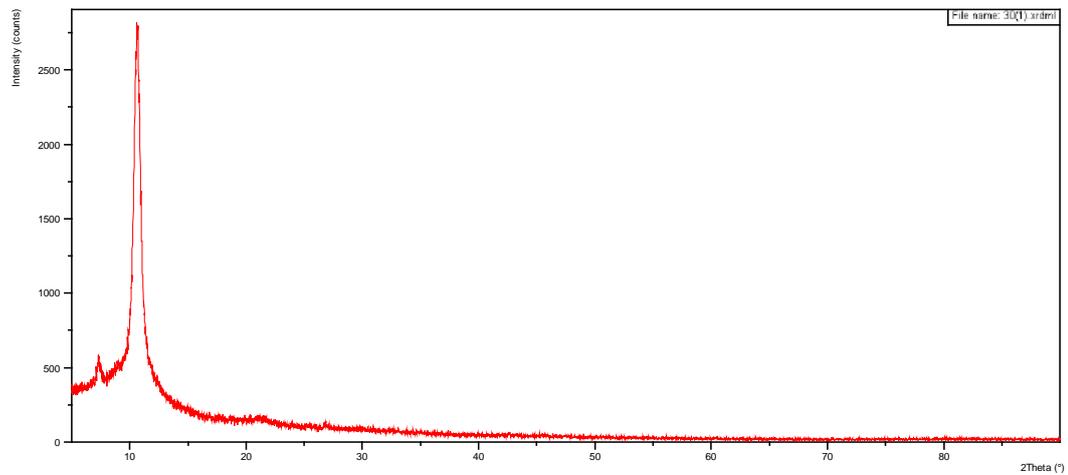


26.5003	34957.84	0.1004	3.36356	100.00
27.9911	119.31	0.1171	3.18771	0.34
29.8183	48.97	0.4015	2.99641	0.14
31.2366	88.26	0.0502	2.86352	0.25
32.0945	72.36	0.1004	2.78890	0.21
34.9950	43.50	0.1338	2.56412	0.12
36.5100	45.64	0.1004	2.46112	0.13
37.6819	19.98	0.2007	2.38723	0.06
39.4318	33.08	0.1004	2.28523	0.09
40.2663	18.76	0.2007	2.23978	0.05
42.3838	50.18	0.2007	2.13265	0.14
44.5916	31.49	0.2676	2.03205	0.09
45.3371	80.19	0.1004	2.00036	0.23
45.7507	38.64	0.1004	1.98323	0.11
50.1279	96.12	0.0669	1.81984	0.27
52.7525	8.61	0.5353	1.73531	0.02
54.6290	1683.95	0.0816	1.67867	4.82
54.7798	927.48	0.0816	1.67857	2.65
59.9036	43.63	0.1224	1.54285	0.12
64.0231	6.87	0.6528	1.45315	0.02
65.2061	6.98	0.4896	1.42962	0.02
67.7196	29.20	0.1224	1.38254	0.08
68.2451	18.56	0.3264	1.37317	0.05
75.9375	5.88	0.9792	1.25205	0.02
77.7188	13.78	0.4896	1.22774	0.04



81.4003	10.42	0.4896	1.18126	0.03
83.8133	7.94	0.6528	1.15328	0.02
87.0376	163.55	0.0816	1.11866	0.47
87.3104	77.77	0.0816	1.11864	0.22

### b. Grafit Oksida

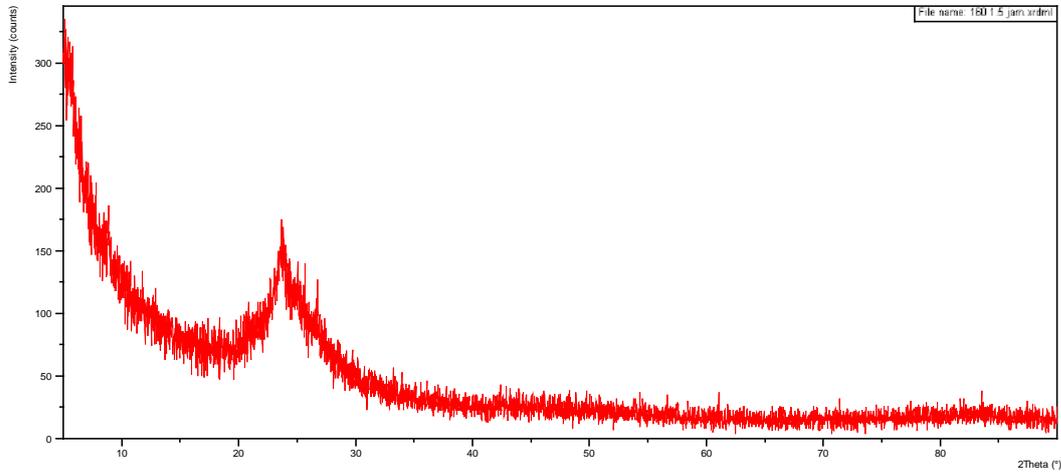


#### Peak List :

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
7.2792	151.57	0.1338	12.14459	6.74
10.6556	2248.61	0.4015	8.30268	100.00
26.7824	27.65	0.2676	3.32877	1.23
42.6266	16.86	0.2007	2.12106	0.75



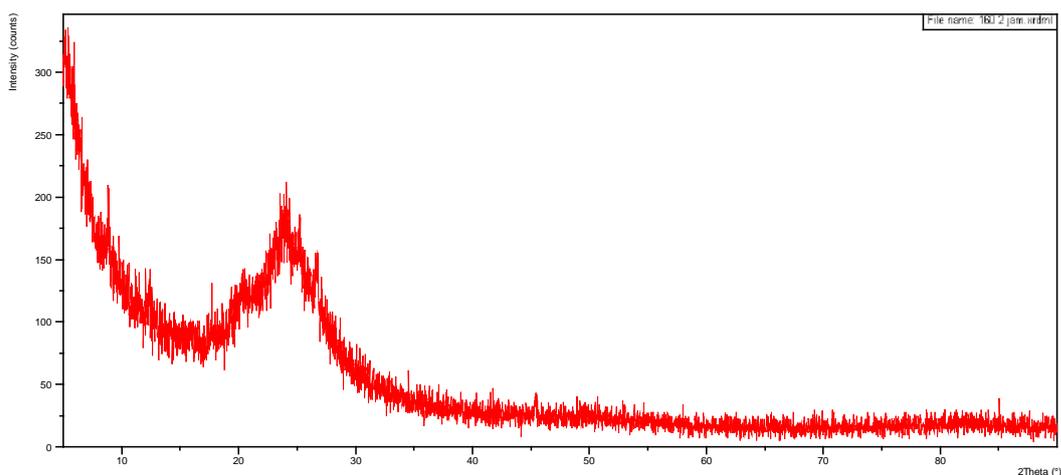
**c. Grafena Temperatur Hidrotermal 160<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi  
1.5 jam**



**Peak List :**

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
8.8928	18.81	0.4015	9.94419	38.99
23.7118	48.25	0.5353	3.75242	100.00

**d. Grafena Temperatur Hidrotermal 160<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2  
jam**

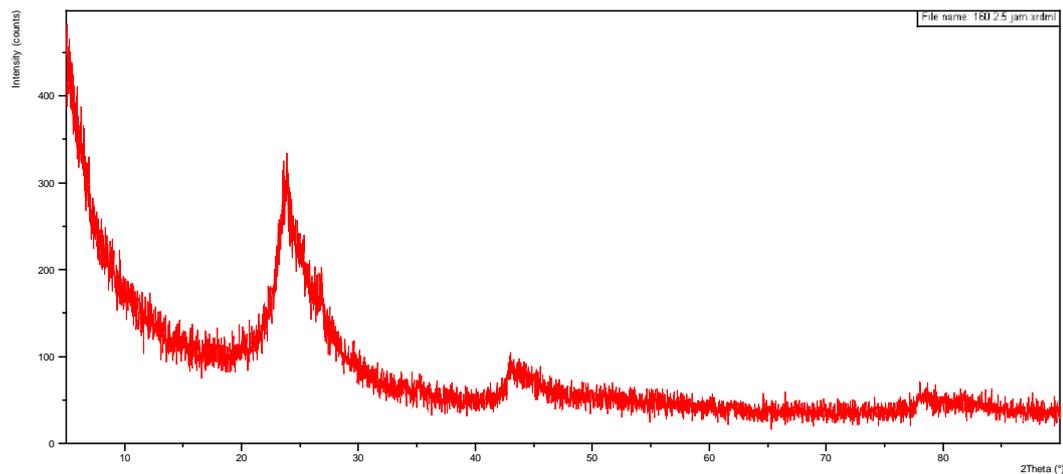




### Peak List

Pos. [ $^{\circ}2\text{Th.}$ ]	Height [cts]	FWHM Left [ $^{\circ}2\text{Th.}$ ]	d-spacing [ $\text{\AA}$ ]	Rel. Int. [%]
8.8713	37.63	0.2007	9.96829	77.95
24.0471	48.27	0.8029	3.70085	100.00
26.7159	43.98	0.2007	3.33690	91.11
40.3593	3.47	0.9368	2.23483	7.19
45.4028	14.12	0.2007	1.99762	29.25

### e. Grafena Temperatur Hidrotermal $160^{\circ}\text{C}$ , waktu ultrasonikasi 2.5 jam

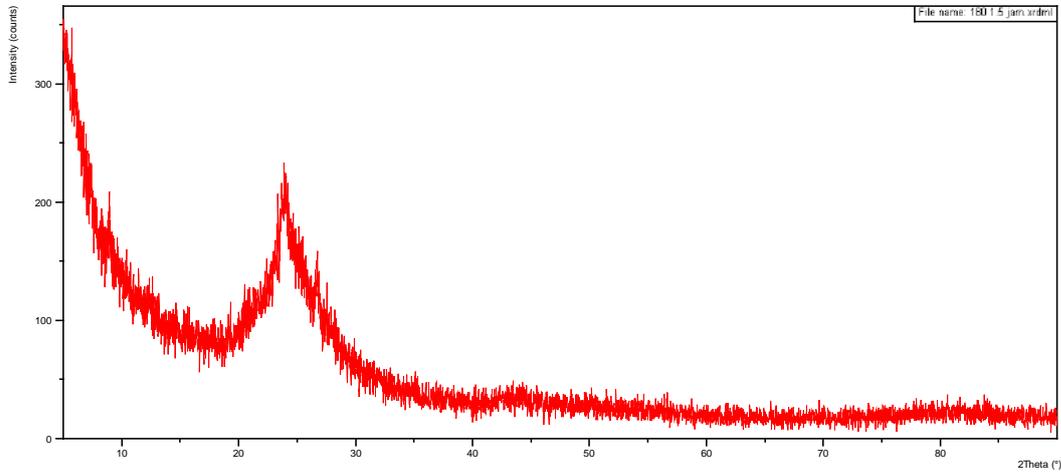


### Peak List :

Pos. [ $^{\circ}2\text{Th.}$ ]	Height [cts]	FWHM Left [ $^{\circ}2\text{Th.}$ ]	d-spacing [ $\text{\AA}$ ]	Rel. Int. [%]
23.9579	153.29	0.2676	3.71442	100.00
26.8509	47.30	0.5353	3.32042	30.86
35.2434	11.46	0.4015	2.54661	7.47
43.0285	23.77	0.4684	2.10218	15.51



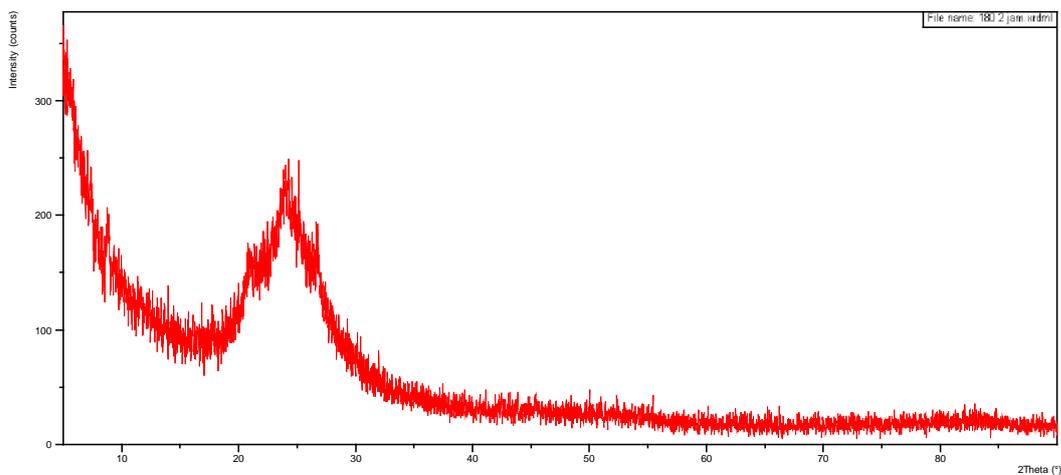
**f. Grafena Temperatur Hidrotermal 180<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi  
1.5 jam**



**Peak List :**

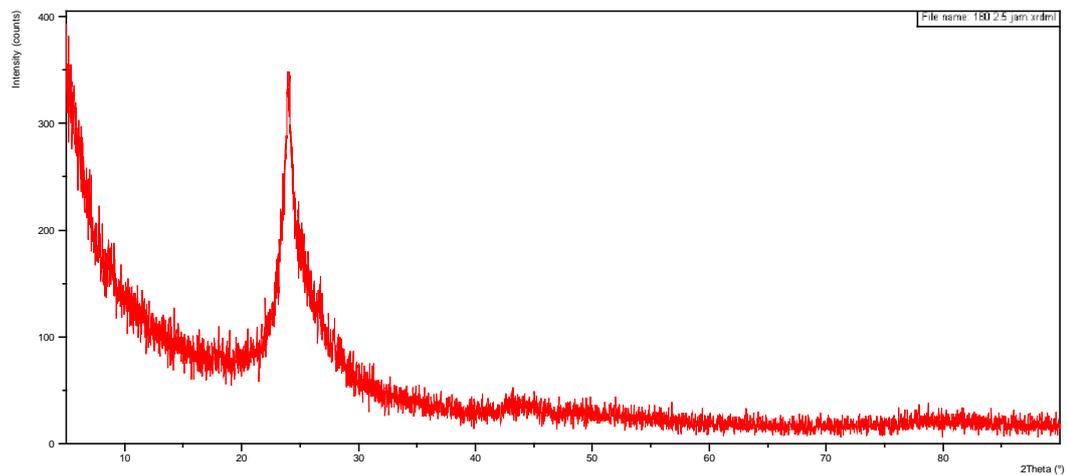
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
8.9249	30.67	0.2676	9.90851	30.23
23.9872	101.46	0.4684	3.70995	100.00
26.7783	46.89	0.2676	3.32927	46.22

**g. Grafena Temperatur Hidrotermal 180<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2  
jam**



**Peak List :**

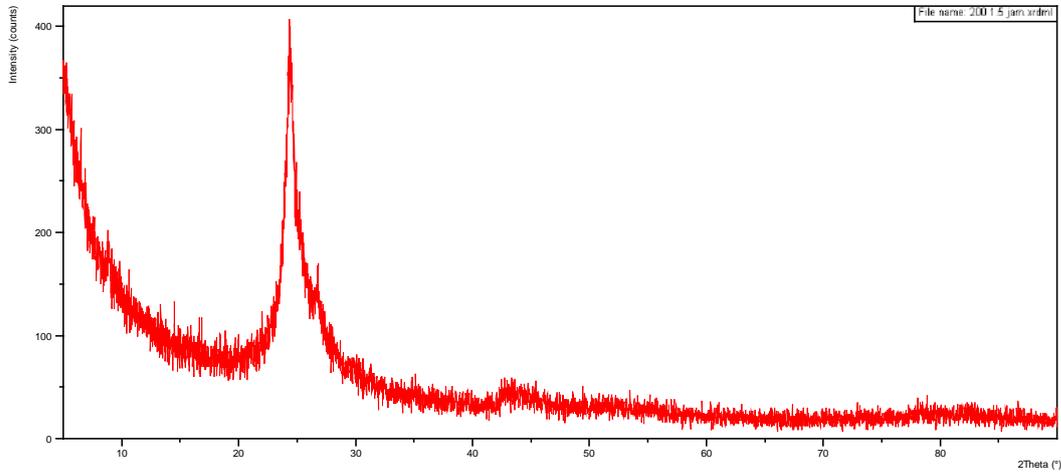
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
8.9107	27.47	0.2342	9.92421	36.51
21.0095	22.32	0.8029	4.22856	29.66
24.0811	75.25	0.5353	3.69569	100.00
26.7614	50.58	0.2007	3.33133	67.21

**h. Grafena Temperatur Hidrotermal 180<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi  
2.5 jam****Peak List :**

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
8.8339	11.45	0.4015	10.01038	5.97
24.0204	191.94	0.3346	3.70490	100.00
77.9531	16.54	0.0612	1.22464	8.62



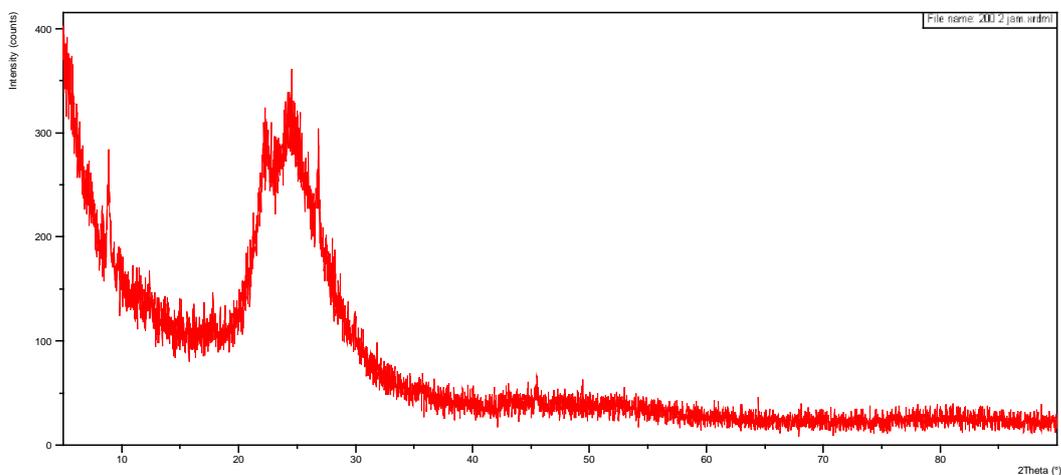
**i. Grafena Temperatur Hidrotermal 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi  
1.5 jam**



**Peak List :**

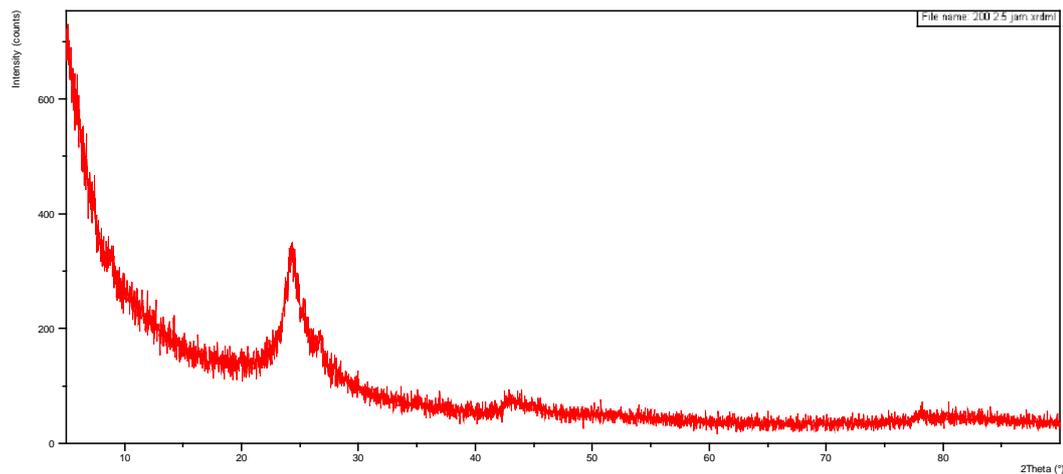
Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.1780	89.56	0.8029	17.06714	33.97
8.8453	21.28	0.4015	9.99747	8.07
24.3379	263.68	0.4684	3.65728	100.00
26.7763	52.24	0.4015	3.32951	19.81

**j. Grafena Temperatur Hidrotermal 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2  
jam**



**Peak List :**

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
8.9034	75.46	0.2007	9.93232	46.46
22.2850	127.18	0.6691	3.98933	78.30
24.4449	162.42	0.6691	3.64152	100.00
26.7809	106.35	0.2007	3.32894	65.48
45.4625	18.77	0.2007	1.99513	11.56

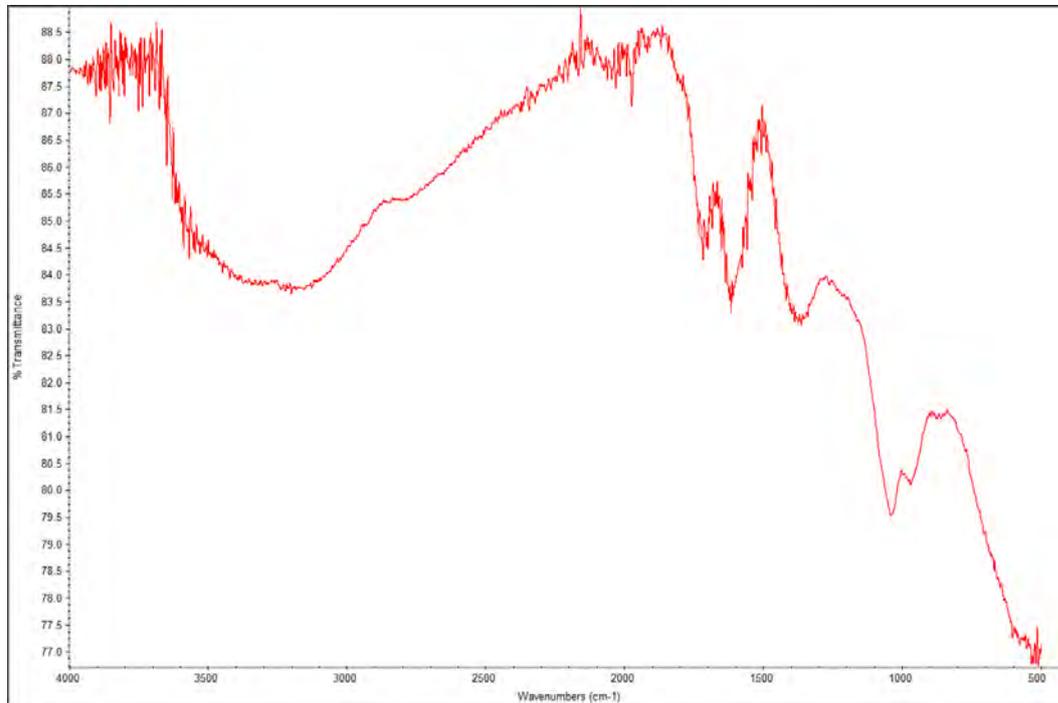
**k. Grafena Temperatur Hidrotermal 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2.5 jam****Peak List :**

Pos. [°2Th.]	Height [cts]	FWHM Left [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]
5.2285	177.96	0.4015	16.90217	100.00
8.9457	18.95	0.4684	9.88544	10.65
24.2434	177.81	0.3346	3.67133	99.91
26.7771	52.67	0.2676	3.32941	29.60
42.7046	15.07	0.6691	2.11737	8.47
78.0480	10.48	0.8029	1.22440	5.89

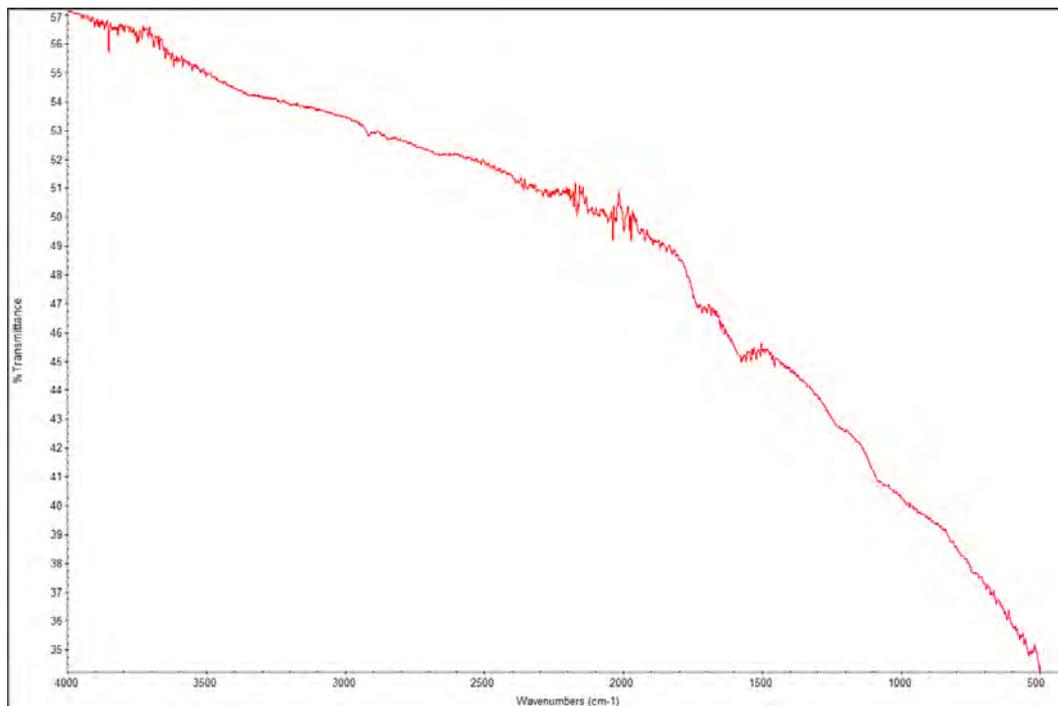


## 2. Hasil Pengujian FTIR

### a. Grafit Oksida

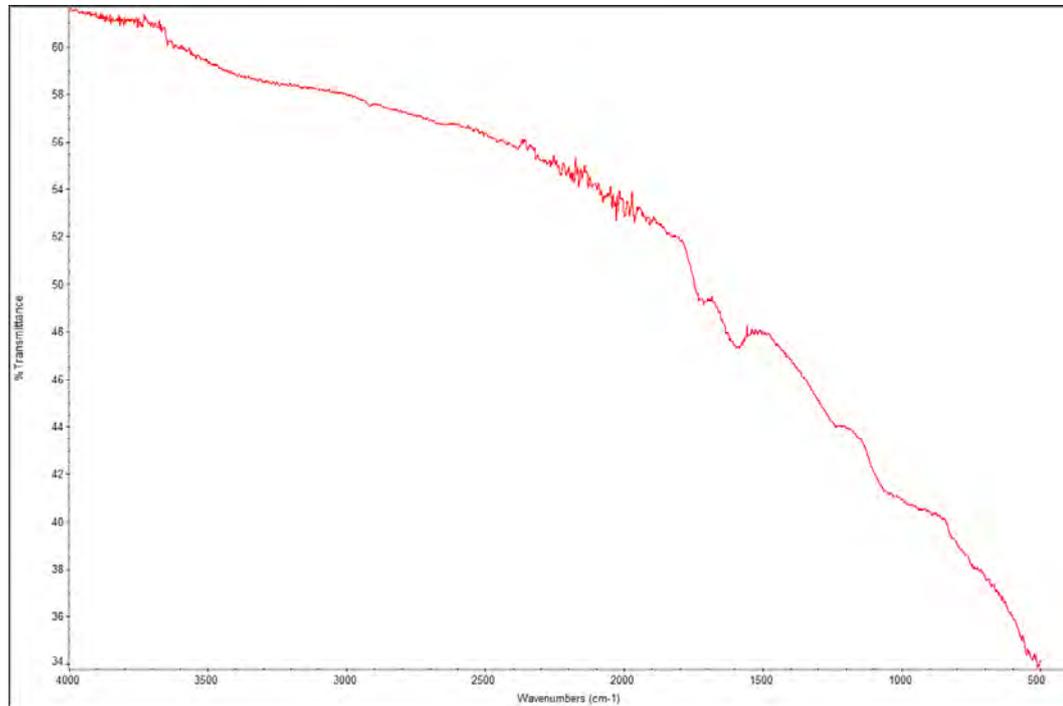


### b. Grafena Temperatur Hidrotermal 160<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 1.5 jam





**c. Grafena Temperatur Hidrotermal 160<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2 jam**

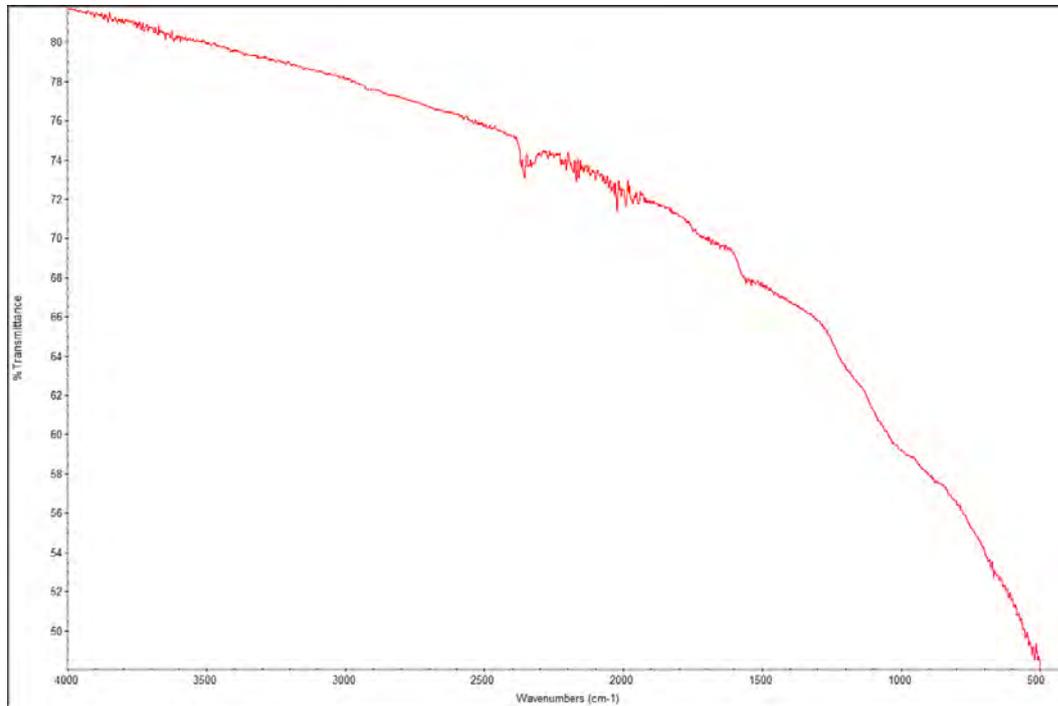


**d. Grafena Temperatur Hidrotermal 160<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2.5 jam**

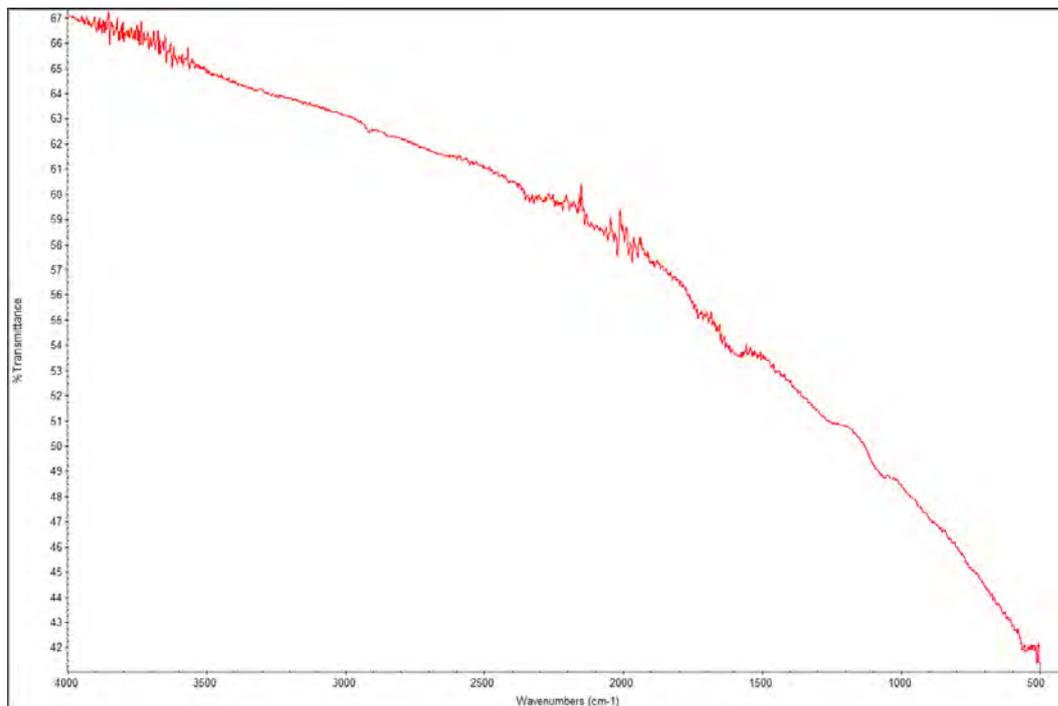




**e. Grafena Temperatur Hidrotermal 180<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi  
1.5 jam**

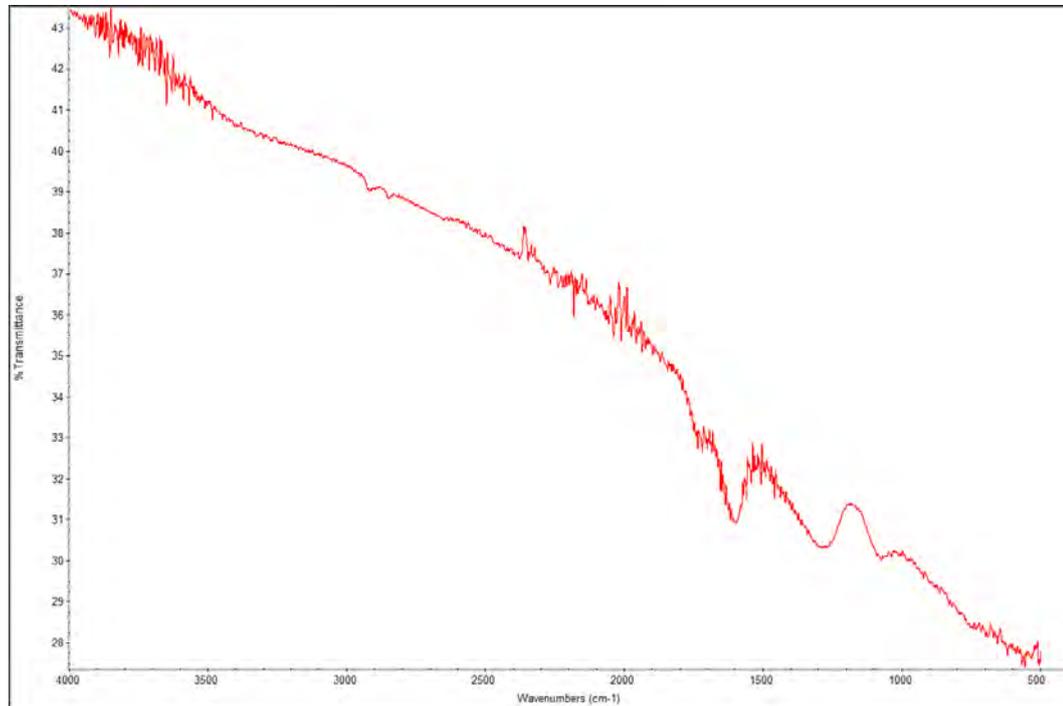


**f. Grafena Temperatur Hidrotermal 180<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2  
jam**

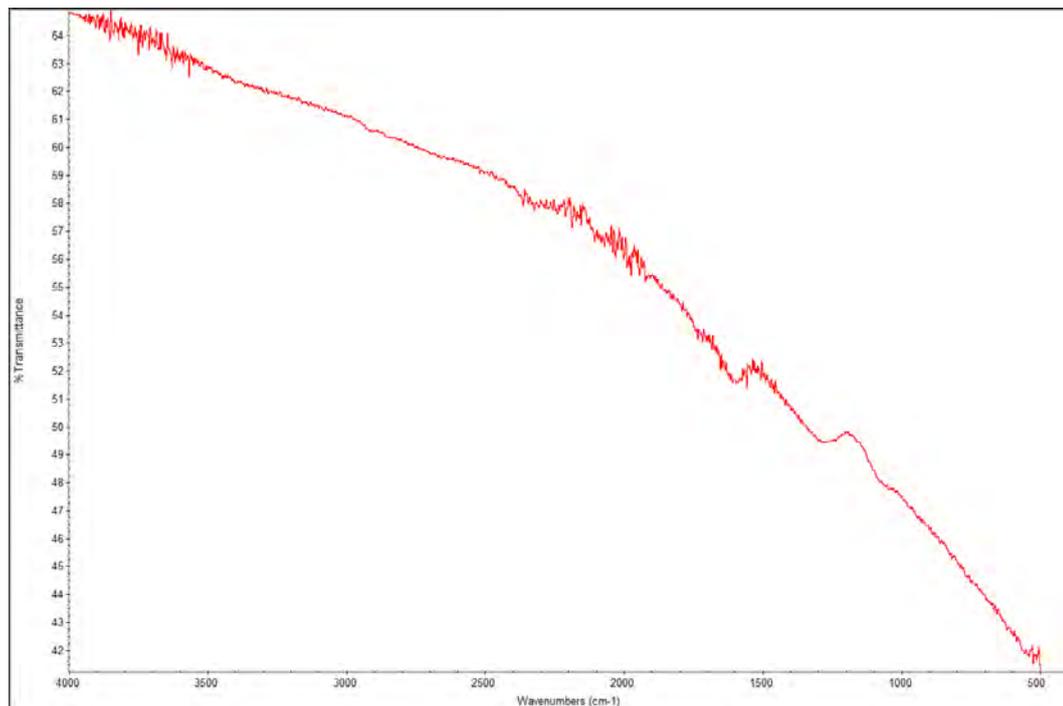




**g. Grafena Temperatur Hidrotermal 180<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi  
2.5 jam**

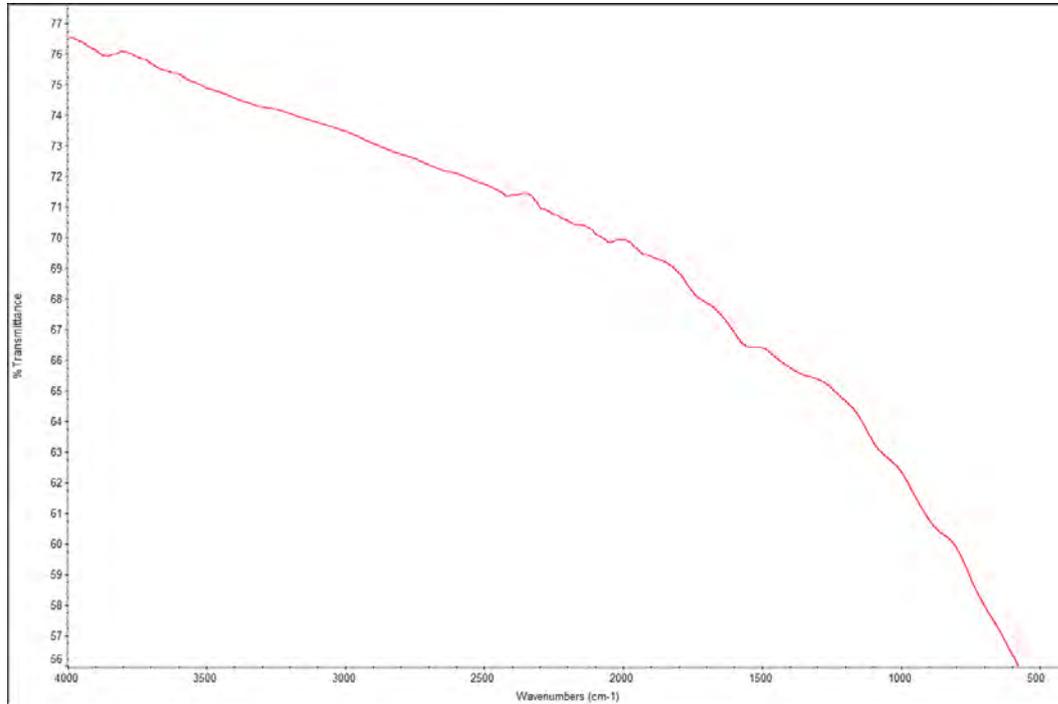


**h. Grafena Temperatur Hidrotermal 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi  
1.5 jam**

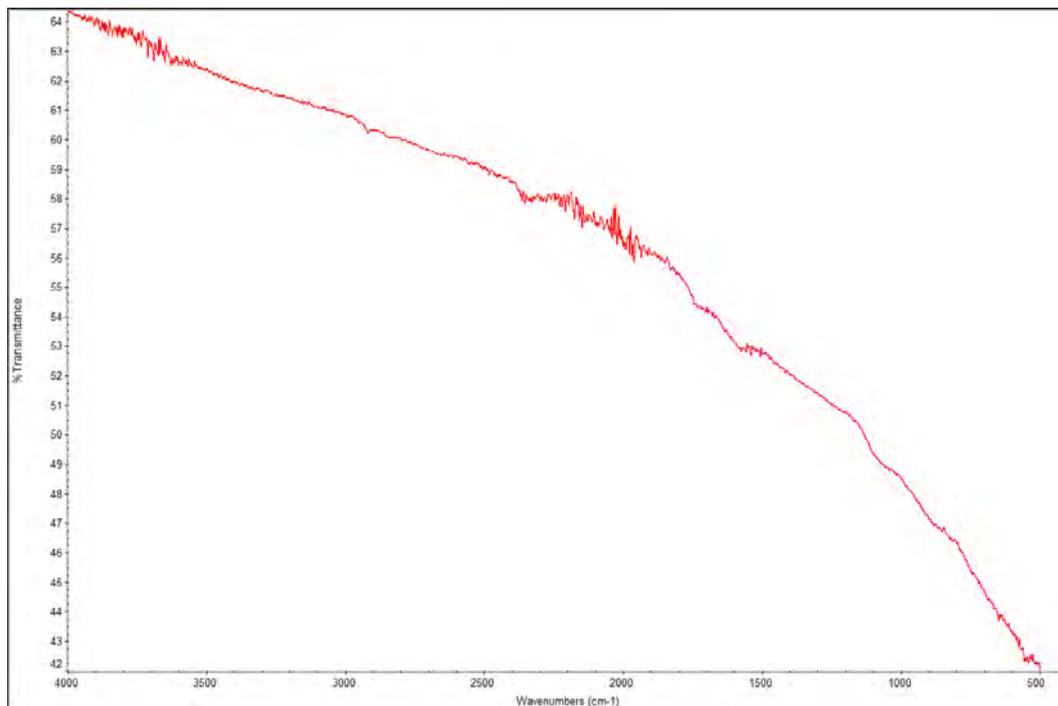




**i. Grafena Temperatur Hidrotermal 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2 jam**



**j. Grafena Temperatur Hidrotermal 200<sup>0</sup>C, waktu ultrasonikasi 2.5 jam**





## DAFTAR PUSTAKA

- Aristov, V. Y. dkk. (2009). Graphene Synthesis on Cubic SiC/Si Wafers. Perspectives for Mass Production of Graphene-Based Electronic Devices. *Nano Lett.* 10 (3), 992–995.
- Akturk, A., Goldsman, N. (2008) Electron transport and full-band electron-phonon interactions in graphene. *J. Appl. Phys.* 103, 053702
- Barone, V., dkk. Electronic Structure and Stability of Semiconducting Graphene Nanoribbons. (2006) *Nano Lett.*, 6 (12), 2748 – 2754.
- Bell, D. C. dkk. ( 2009). Precision Cutting and Patterning of Graphene with Helium Ions. *Nanotechnology* 20, 455301.
- Brenner, K., Murali, M. (2010) Single step, complementary doping of graphene. *Appl. Phys. Lett.* 96, 063104.
- Cao, Xiehong, Yumeng Shi.dkk. (2011) Preparation of novel 3D graphene networks for supercapacitor applications. *Small* 22, 3163-3168.
- Castro Neto, A. H. dkk. (2009) The electronic properties of graphene. *Rev. Mod. Phys.* 81, 109-162.
- Chen, Heng. dkk. (2010). Facile Solvothermal Synthesis of Graphene-MnOOH Nanocomposites. *Journal of Solid State Chemistry* 183, 2552-2557
- Chen, Ji. dkk. (2012) Graphene hydrogels deposited in nickel foams for high-rate electrochemical capacitors. *Adv.Matters.* 24, 4569-4573
- Chen, Yao dkk. (2012). High performance supercapacitors based on a graphene-activated carbon composite prepared by chemical activation. *Rsc advances* 2, 7747-7753
- Choi, Hyun-Jung. dkk ( 2012). Graphene for energy conversion and storage in fuel cells and supercapacitors. *Nano Energy* 1, 534551
- De Heer, W. A. dkk. (2007). Epitaxial Graphene. *Solid State Comm.* 143, 92.
- Dreyer, Daniel R. dkk ( 2009). The Chemistry of Graphene Oxide. *Chemical Society Reviews* 2010, 39, 228–240
- Du, Xian.dkk. (2010). Graphene nanosheets as electrode material for electric double layer capacitors. *Electrochimica Acta* 55 4812-4819



Gaskill, D. K. ( 2009) Epitaxial Graphene Growth on SiC Wafers. arXiv:0907.5031v1 [cond-mat.mtrl-sci].

Geng, Zhi-Gang. dkk (2012) A Green and Mild Approach of Synthesis of Highly-Conductive Graphene Film by Zn Reduction of Exfoliated Graphite Oxide. *Chinese Journal Of Chemical Physic* Vol 5 No 4

Giesbers, A. J. M. dkk, (2008) Nanolithography and manipulation of graphene using an atomic force microscope. *Solid State Comm.* 147 (9-10), 366-369.

Gomez-Navarro, C. dkk. (2007) Electronic Transport Properties of Individual Chemically Reduced Graphene Oxide Sheets. *Nano Lett.* 7 (11), 3499–3503

Gong Gu, dkk. (2007) Field effect in epitaxial graphene on a silicon carbide substrate. *Appl. Phys. Lett.* 90, 253507.

Grande, Lorenzo. dkk ( 2012) Graphene for energy harvesting/storage devices and printed electronics. *Particuology* 10, 1-8

Grüneis, A. (2009) Dynamics of graphene growth on a metal surface: a time-dependent photoemission study. *New J. Phys.* 11, 073050.

Han, M. Y. dkk. (2007) Energy Band-Gap Engineering of Graphene Nanoribbons. *Phys. Rev. Let.* 98, 206805.

Ji, Zhenyuan.dkk. (2011) In Situ Synthesis of Graphene/Cobalt Nanocomposites and their Magnetic Properties. *Material Science and Engineering B* 176 (2011)7111-715

Kedzierski, J. dkk. (2008) Epitaxial graphene transistors on SiC substrates. *IEEE /Transactions on Electron Devices* 55, 2078.

Levendorf, M. P. dkk (2009) Transfer-Free Batch Fabrication of Single Layer Graphene Transistors. *Nano Lett.*, 9 (12), 4479-4483.

Li, Wan. dkk, (2011) Electrochemistry of individual monolayer graphene sheets. *ACS Nano* 3 2262-2270

Li, X. S. dkk. (2009) Large-Area Synthesis of High-Quality and Uniform Graphene Films on Copper Foils. *Science* 324: 5932, 1312 – 1314.

Li, X. S. dkk (2009) Transfer of Large-Area Graphene Films for High-Performance Transparent Conductive Electrodes. *Nano Lett.*, 9 (12), 4359-4363.



- Li, Yueming.dkk (2011). KOH modified graphene nanosheets for supercapacitor electrodes. *Journal of power resources* 196, 6003-6006
- Liu, Panbo. dkk (2013) A facile synthesis of reduced graphene oxide with Zn powder under acidic condition. *Materials Letters* 91, 125-128
- Lotya, M. dkk. (2009) Liquid Phase Production of Graphene by Exfoliation of Graphite in Surfactant/Water Solutions. *J. Am. Chem. Soc.* 131, 3611–3620
- Lu, X. K. dkk. (1999) Patterning of highly oriented pyrolytic graphite by oxygen plasma etching. *Appl. Phys. Lett.* 75 (2), 193-195
- Marinho, Bernardo,dkk. (2012). Electrical conductivity of compacts of graphene, multi-wall carbon nanotubes, carbon black, and graphite powder. *Powder Technology* 221 351-358
- Mei, xiaoguang.dkk. (2012). Ultrafast reduction of graphene oxide with zn powder in neutral and alkaline solutions at room temperature promoted by the formation of metal complexes. *J.Mater.Chem.* 22, 9109-9116
- Mei, Xiaoguang.dkk. (2011). Ultrasonication-assisted ultrafast reduction of graphene oxide by zinc powder at room temperature. *Carbon* 49 5389-5397
- Morozov, S. V. dkk. (2008) Giant Intrinsic Carrier Mobilities in Graphene and Its Bilayer. *Phys. Rev. Let.* 100, 016602.
- Novoselov, K. S. dkk. (2004) Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films. *Science* 306: 666.
- Owens, F. J. (2008) Electronic and magnetic properties of armchair and zigzag graphite nanoribbons. *J. Chem. Phys.* 128, 194701.
- Panchakarla, L. S. dkk. (2009) Synthesis, Structure and Properties of Boron and Nitrogen Doped Graphene. *Adv. Materials* 21 (46) , 4726-4730.
- Reina, A. dkk. (2009) Large Area, Few-Layer Graphene Films on Arbitrary Substrates by Chemical Vapor Deposition. *Nano Lett.* 9 (1), 30-35.
- Rubio-Roy, M. (2010) Structured epitaxial graphene growth on SiC by selective graphitization using a patterned AlN cap. *Appl. Phys. Lett.* 96, 082112.
- Si, Weijiang. Dkk. (2013). Reduced graphene oxide aerogel with high-rate supercapacitive performance in aqueous electrolytes. *Nanoscale Research Letters.* 8:247



Song, Z. M. (2006) *Fabrication and Characterization of Nanopatterned Epitaxial Graphene Films for Carbon Based Electronics*, Thesis, Georgia Institute of Technology.

Stankovich, S. dkk. (2007) Synthesis of graphene-based nanosheets via chemical reduction of exfoliated graphite oxide. *Carbon* 45, 1558–1565

Stoller, Meryl D.dkk. (2008). Graphene-based ultracapacitors. *Nanoletters* 8, 3489-3502

Subramanian, C.K.dkk. (2012) Double layer energy storage in graphene-study. *Micro and nanosystem* 4, 180-185

Suemitsu, M. dkk. (2009) Graphene Formation on a 3C-SiC(111) Thin Film Grown on Si(110) Substrate. *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* 7, 311-313.

Tien, Huynh Ngoc. dkk (2012) Enhanced Solvothermal Reduction of Graphene Oxide in a Mixed Solution of Sulfuric Acid and Organic Solvent. *Chemical Engineering Journal*, 211-212 97-103

Terrones, Mauricio. dkk ( 2010) Graphene and Graphite Nanoribbons : Morphology, Properties, Synthesis, Defect and Applications. *Nano Today* 5, 351-372

Vivekchand, S R C. (2008). Graphene based electrochemical capacitors. *J.Chem.Sci.* 120 9-13

Wang, Y. dkk. (2009) *Supercapacitor Devices Based on Graphene Materials*, *J.Phys. Chem C* 113, 13103-13107.

Wu, Yingpeng. Dkk. (2012). Efficient and large scale synthesis of graphene from coal and its film electrical properties studies. *Journal of nanoscience and nanotechnology* 12, 1-4

Wu, Zhong- Shuai. dkk (2011) Graphene/metal oxide composite electrode materials for energy storage. *Nano Energy* 1, 107-131

Yang, Y. X., Murali, R. (2010) Impact of Size Effect on Graphene Nanoribbon Transport. arXiv:1001.2318v1 [cond-mat.mes-hall]

Yu, Hongwen,dkk. (2013). Influence of the electrochemical reduction process on the performance of graphene-based capacitors. *Carbon* 51 (94-101)

Yu, S. S. dkk. Q.(2008) 'Electronic properties of graphene nanoribbons with armchair-shaped edges', *Molecular Simulation*, 34: 10, 1085-1090



Yuan, Wenhui. dkk ( 2012) Green Synthesis of Graphene/Ag Nanocomposites. *Applied Surface Science* 261, 753-758

Zhang, X. W., Yang, G. W. (2009). Novel Band Structures and Transport Properties from Graphene Nanoribbons with Armchair Edges. *J. Phys, Chem. C* 113, 4662–4668.

Zhang, Y. B. dkk. (2004) Fabrication and Electric Field Dependent Transport Measurements of Mesoscopic Graphite Devices. arXiv:cond-mat/0410314v1 [cond-mat.mes-hall]



*Halaman ini sengaja dikosongkan*



### **BIODATA PENULIS**

Penulis bernama lengkap Haniffudin Nurdiansah, dilahirkan di kota REOG Ponorogo pada tanggal 26 Juli 1990 dan merupakan putra dari pasangan Bapak Sahid dan Ibu Sri Nurwati. Penulis merupakan anak ke dua dari tiga bersaudara. Penulis telah menempuh pendidikan formal sebagian besar di Ponorogo, yaitu di SDN 1 Kaponan, SMPN 1 Ponorogo, dan SMAN 1 Ponorogo. Setelah lulus dari SMA tahun 2009, penulis diterima menjadi mahasiswa Jurusan Teknik Material dan Metalurgi FTI-ITS melalui jalur SNMPTN dan menjadi generasi MT 11 di jurusan Teknik Material dan Metalurgi FTI-ITS.

Penulis aktif sebagai Staf Departemen Kemahasiswaan dan Keprofesian Himpunan Mahasiswa Teknik Material dan Metalurgi (HMMT) FTI-ITS masa kepengurusan 2010/2011 dan Staf Departemen DIKESMA BEM FTI ITS 2010/2011 serta menjadi Kepala Departemen Keprofesian dan Kesejahteraan Mahasiswa (PROKESMA) BEM FTI ITS 2011/2012. Dalam kegiatan akademik, penulis pernah mengikuti beberapa PKM. Penulis juga pernah melaksanakan kerja praktek di PT Toyota Motor Manufacturing Indonesia-Karawang Plant dengan meneliti kegagalan pin hanger transmisi mobil Toyota Innova. Di Jurusan Teknik Material dan Metalurgi ini penulis mengambil Tugas Akhir dalam Bidang Studi Material Inovatif dengan topik mengenai karbon aktif. Penulis saat ini tengah menyelesaikan program Master pada jurusan yang sama, dengan mengambil topik tesis mengenai grafena.

Alamat penulis saat ini Jalan Jenderal Sudirman no 77 RT 03 RW 01 Desa Kaponan Kecamatan Mlarak Kabupaten Ponorogo. Nomor telepon selular yang dapat dihubungi 085731769854 atau alamat email *haniffudin09@gmail.com*

