

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI GRAFENA OKSIDA DARI
LIMBAH TEMPURUNG KELAPA (*Cocos Nucifera*) DENGAN
METODE SONIKASI DAN HIDROTHERMAL**

*SYNTHESIS OF COCONUT SHELL WASTE (*Cocos Nucifera*) INTO
GRAPHENE OXIDE THROUGH SONICATION AND
HYDROTHERMAL METHODS*

DWI KURNIAWAN

H012201001



**PROGRAM STUDI ILMU KIMIA
SEKOLAH PASCASARJANA
UNIVERSITAS HASANUDDIN
MAKASSAR**

2024

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI GRAFENA OKSIDA DARI
LIMBAH TEMPURUNG KELAPA (*Cocos Nucifera*) DENGAN
METODE SONIKASI DAN HIDROTERMAL**

Tesis

sebagai salah satu syarat untuk mencapai gelar magister

Program Studi Kimia

Disusun dan diajukan oleh

DWI KURNIAWAN

H012201001

Kepada

**PROGRAM MAGISTER KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS HASANUDDIN
MAKASSAR
2024**

TESIS

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI GRAFENA OKSIDA DARI LIMBAH
TEMPURUNG KELAPA (*Cocos Nucifera*) DENGAN METODE SONIKASI
DAN HIDROTERMAL**

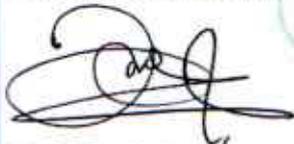
DWI KURNIAWAN

NIM: H012201001

Telah dipertahankan di hadapan Panitia Ujian yang dibentuk dalam
rangka Penyelesaian Studi Program Magister Kimia Fakultas Matematika
dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Hasanuddin
pada tanggal 15 Februari 2024
dan dinyatakan telah memenuhi syarat kelulusan

Menyetujui

Pembimbing Utama



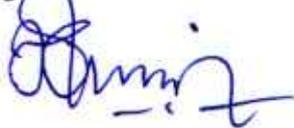
Prof. Dr. Indah Raya, M.Si
NIP. 196411251990022001

Pembimbing Pendamping



Dr. Maming, M.Si
NIP. 196312311989031031

**Ketua Program Studi
Magister Kimia**



Prof. Dr. Hasnah Natsir, M.Si
NIP. 196203201987112001

**Dekan Fakultas MIPA
Universitas Hasanuddin**



Dr. Eng. Amiruddin, M.Si
NIP. 197205151997021002



PERNYATAAN KEASLIAN TESIS DAN PELIMPAHAN HAK CIPTA

Yang bertanda tangan dibawah ini:

Nama : Dwi Kurniawan
NIM : H012201001
Program Studi : Magister Kimia

Dengan ini saya menyatakan bahwa, tesis berjudul "Sintesis dan Karakterisasi Grafena Oksida dari Limbah Tempurung Kelapa (*Cocos Nucifera*) dengan Metode Sonikasi dan Hidrotermal" adalah benar karya saya dengan arahan dari komisi pembimbing (Prof. Dr. Indah Raya, M.Si sebagai Pembimbing Utama dan Dr. Maming, M.Si sebagai Pembimbing Pendamping). Karya ilmiah ini belum diajukan dan tidak sedang diajukan dalam bentuk apapun kepada perguruan tinggi manapun. Sumber informasi yang berasal atau dikutip dari karya yang diterbitkan maupun tidak diterbitkan dari penulis lain telah disebutkan dalam teks dan dicantumkan dalam Daftar Pustaka tesis ini. Sebagian dari isi tesis ini telah dipublikasikan di *Institute of Physics (IOP)* sebagai artikel dengan judul "*Synthesis Of Coconut Shell Waste (Cocos Nucifera) Into Graphene Oxide Through Sonication and Hydrothermal Methods*".

Dengan ini saya melimpahkan hak cipta dari karya tulis saya berupa tesis ini kepada Universitas Hasanuddin.

Makassar, 15 Februari 2024


Dwi Kurniawan
NIM: H012201001

UCAPAN TERIMA KASIH

Bismillahirrahmanirrahim, segala puji dan syukur kehadirat Allah yang telah memberikan rahmat, hidayah dan kemudahan yang selalu diberikan kepada hamba-Nya, sehingga penulis dapat menyelesaikan tesis ini dengan judul **“SINTESIS DAN KARAKTERISASI GRAFENA OKSIDA DARI LIMBAH TEMPURUNG KELAPA (*Cocos Nucifera*) DENGAN METODE SONIKASI DAN HIDROTERMAL.”**

Shalawat dan salam tak lupa tercurahkan kepada Baginda Rasulullah SAW, kepada keluarganya, para sahabatnya, dan kepada umatnya hingga akhir zaman. Berhasilnya penulis dalam menyelesaikan penyusunan tesis ini menandakan berakhirnya salah satu dimensi perjuangan sebagai syarat dalam memperoleh gelar magister di Pascasarjana Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Hasanuddin.

Penulis menyadari bahwa penulis mengalami banyak kesulitan dan hambatan, namun berkat kerjasama dan bantuan dari berbagai pihak, kesulitan dan hambatan tersebut dapat teratasi. Untuk itu, iringan doa dan ucapan terima kasih yang sebesar-besarnya penulis sampaikan kepada **Prof. Dr. Indah Raya, M.Si** dan **Dr. Maming, M.Si.** selaku dosen pembimbing yang dengan penuh kesabaran, ketelatenan dan keikhlasan di tengah-tengah kesibukannya meluangkan waktu untuk memberikan bimbingan serta pengarahan dalam menyelesaikan penelitian dan penulisan tesis ini.

Kepada kedua orang tua tercinta, ayahanda **Drs. Abdul Bahar, M.Pd** dan ibunda **Hj. Fatmawati Laside**, atas segala do'a serta motivasi yang tidak mengenal kata lelah. Semoga Allah senantiasa meridhoi, melimpahkan rahmat-Nya berupa kasih sayang, keteguhan hati di atas agama Allah dan kemuliaan bukan hanya di dunia tapi juga di akhirat Insha Allah. Terima kasih juga kepada keluarga kecilku tercinta, istri dan anak saya **dr. Khalifah Lummi Wewang** dan **Haziqah Maiza Awwami Kurniawan** yang selalu memberikan motivasi, serta menjadi penyemangat bagi saya, semoga Allah senantiasa melindungi mereka, Aamiin.

Penulis juga tak lupa mengucapkan terima kasih dan penghargaan yang sebesar-besarnya kepada:

1. **Prof. Ahyar Ahmad, Ph.D., Prof. Dr. Paulina Tabah, M.Phil dan Dr. Djabal Nur Basir, S.Si., M.Si**, selaku komisi penilai, terima kasih atas masukan berupa kritik dan saran yang telah diberikan demi penyempurnaan penulisan tesis.
2. Dekan Fakultas MIPA, Ketua Jurusan KIMIA Fakultas MIPA dan seluruh dosen Kimia Pascasarjana Universitas Hasanuddin yang telah membagi ilmunya serta seluruh staf Fakultas MIPA Universitas Hasanuddin, terima kasih atas segala bantuan dan kerjasamanya.
3. Seluruh staf Laboratorium Biologi Kimia Universitas Hasanuddin, Laboratorium Kimia Fisika Universitas Hasanuddin, Laboratorium Teknik Kimia Politeknik Negeri Ujung Pandang, terima kasih atas segala bantuan fasilitas yang telah diberikan selama penelitian berlangsung.
4. Staf Laboratorium Kimia Terpadu Departemen Kimia Fakultas MIPA, Laboratorium Teknik Geologi Fakultas Teknik Universitas Hasanuddin, serta Laboratorium Mikrostruktur Universitas Muslim Indonesia, atas segala bantuan dalam pengujian hasil penelitian.
5. **Bu Kiki** selaku staf Program Studi S2 Kimia yang selalu membantu dan memberikan masukannya dalam penyelesaian administrasi.
6. Teman-teman yang turut membantu selama penelitian berlangsung, **Eka dan Monas** terima kasih sudah kebersamaan selama penelitian berlangsung.
7. Teman-teman seperjuangan **Pascasarjana Kimia angkatan 2020, senior angkatan 2019**, atas segala bantuan, do'a, semangat dan motivasi yang tidak pernah putus.
8. Semua pihak yang tidak dapat penulis tuliskan satu per satu yang telah membantu penulis dalam menyelesaikan penelitian ini, terima kasih.

Penulis sadar bahwa tesis ini tidak sempurna dan banyak kekurangan baik materi maupun teknik penulisan, karena sejatinya kesempurnaan hanyalah milik Allah SWT. Oleh karena itu, penulis berharap saran dan kritik yang bersifat membangun dari pembaca, dan

semoga tulisan ini dapat bermanfaat bagi pembaca dalam pengembangan ilmu pengetahuan khususnya dalam pengembangan pembuatan hidrogel. Terima kasih.

Penulis

Dwi Kurniawan

ABSTRAK

DWI KURNIAWAN. **Sintesis dan Karakterisasi Grafena Oksida dari Limbah Tempurung Kelapa (*Cocos Nucifera*) dengan Metode Sonikasi dan Hidrotermal.** (dibimbing oleh Indah Raya dan Maming).

Penelitian ini bertujuan untuk menentukan karakterisasi dan nilai kapasitansi spesifik Grafena Oksida (GO) hasil sintesis dari karbon limbah tempurung kelapa (*Cocos Nucifera*) menggunakan kombinasi metode sonikasi dan hidrotermal serta pengaruh pemberian injeksi gas nitrogen terhadap kapasitansi spesifik GO sebagai kandidat superkapasitor. Penelitian ini diawali dengan preparasi limbah tempurung kelapa kemudian dilakukan proses sonikasi yang selanjutnya disintesis GO menggunakan proses hidrotermal disertai dengan dan tanpa injeksi gas nitrogen. Karakterisasi GO hasil sintesis menggunakan FTIR, XRD dan SEM-EDS yang selanjutnya di uji kapasitansi menggunakan CV. Hasil yang diperoleh dari FTIR menunjukkan gugus hidroksil, karboksil, alkohol dan epoksi. Hasil XRD menunjukkan puncak yang lebar pada $2\theta = 23,24^\circ$ yang mengindikasikan struktur amorf dengan morfologi hasil SEM terdapat banyak partikel granular dan serpihan-serpihan yang tidak beraturan atau acak dengan tepi yang berbeda-beda. Hasil CV menunjukkan nilai kapasitansi dan energi spesifik GO berturut-turut sebesar 0,3034 F/g dan 0,1517 Wh/kg serta mengalami peningkatan setelah diberikan injeksi gas nitrogen sehingga menjadi 0,4476 F/g dan 0,2238 Wh/kg.

Kata kunci : Grafena Oksida, Superkapasitor, Sintesis, Injeksi Gas Nitrogen

ABSTRACT

DWI KURNIAWAN. **Synthesis of Coconut Shell Waste into Graphene Oxide Through Sonication and Hydrothermal Methods.** (supervised by Indah Raya dan Maming).

This research aims to determine the characterization and value capacitance of *Graphene Oxide* (GO) results synthesis from carbon waste shell coconut (*Cocos Nucifera*) using a combination method of sonication and hydrothermal as well as influence giving nitrogen gas injection against GO capacitance as candidate supercapacitor. Study This started with the preparation of waste shell coconut Then The next sonication process was carried out synthesized GO using a hydrothermal process accompanied with and without nitrogen gas injection. Characterization of GO results synthesis using FTIR, XRD, and SEM-EDS which is then tested for capacity using CV. Results obtained from FTIR show group hydroxyl, carboxyl, alcohol and epoxy. The XRD results show the broad peak at $2\theta = 23.24^\circ$ indicates a structure amorphous with morphology SEM results are available Lots of granular particles and flakes that are not orderly or random with different edges. The CV results show that the capacitance and specific energy values of GO are 0.3034 F/g and 0.1517 Wh/kg respectively and increase after nitrogen gas injection is given to 0.4476 F/g and 0.2238 Wh/kg

Keywords : Graphene Oxide, Supercapacitor , Synthesis , Nitrogen Gas Injection

DAFTAR ISI

	halaman
HALAMAN JUDUL.....	i
HALAMAN PENGAJUAN.....	ii
HALAMAN PERSETUJUAN.....	iii
LEMBAR PERNYATAAN KEASLIAN TESIS.....	iv
UCAPAN TERIMA KASIH.....	v
ABSTRAK.....	viii
ABSTRACT.....	ix
DAFTAR ISI.....	x
DAFTAR TABEL	xii
DAFTAR GAMBAR.....	xiii
DAFTAR LAMPIRAN.....	xv
DAFTAR SINGKATAN.....	xvi
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1. Latar Belakang.....	1
1.2. Rumusan Masalah.....	4
1.3. Tujuan Penelitian.....	5
1.4. Manfaat Penelitian.....	5
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	6
2.1. Superkapasitor.....	6
2.2. Grafena dan Grafena Oksida (GO).....	8
2.3. Grafena dengan Doping Nitrogen.....	12
2.4. Tempurung Kelapa (<i>Cocos Nucifera</i>).....	13
2.5. Sonikasi / Ultrasonikasi.....	15
2.6. Metode Hidrotermal.....	16
2.7. Karakterisasi.....	18
2.7.1. <i>Fourier Transform Infrared</i> (FTIR).....	18
2.7.2. <i>X-Ray Diffraction</i> (XRD).....	20
2.7.3. <i>Scanning Electron Microscope</i> (SEM).....	22
2.8. <i>Cyclic Voltammetry</i> (CV).....	23
2.9. Kerangka Pikir Penelitian.....	24
2.10. Hipotesis.....	26

BAB III METODE PENELITIAN.....	27
3.1. Rancangan Penelitian.....	27
3.2. Waktu dan Tempat Penelitian.....	27
3.3. Alat dan Bahan.....	27
3.3.1. Alat.....	27
3.3.2. Bahan.....	28
3.4. Prosedur Penelitian.....	28
3.4.1. Preparasi Sampel Tempurung Kelapa.....	28
3.4.2. Proses Karbonisasi Tempurung Kelapa.....	28
3.4.3. Sintesis Grafena Oksida (GO) dengan Metode Sonikasi dan Hidrotermal Menggunakan Injeksi Gas Nitrogen.....	28
3.4.4. Sintesis Grafena Oksida (GO) dengan Metode Sonikasi dan Hidrotermal Tanpa Menggunakan Injeksi Gas Nitrogen.....	29
3.4.5. Pembuatan Elektroda dari Pasta Elektroda GO	29
3.4.6. Pengukuran Nilai Kapasitansi spesifik.....	30
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN.....	31
4.1. Proses Karbonisasi Tempurung Kelapa.....	31
4.2. Sintesis Grafena Oksida (GO).....	32
4.3. Identifikasi Grafena Oksida (GO).....	35
4.3.1. Analisis FTIR.....	35
4.3.2. Analisis XRD.....	37
4.3.3. Analisis SEM.....	39
4.4. Pengukuran Nilai Kapasitansi Spesifik.....	43
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....	44
5.1. Kesimpulan.....	44
5.2. Saran.....	44
DAFTAR PUSTAKA.....	45
LAMPIRAN.....	51

DAFTAR TABEL

nomor		halaman
1.	Komponen Kimiawi Karbon Aktif Tempurung Kelapa	14
2.	Data Hasil Mapping EDS GO dan GO Injeksi Gas Nitrogen.....	42
3.	Hasil Analisis Nilai Kapasitansi Spesifik pada Elektrolit $K_4[Fe(CN)_6] \cdot 3H_2O$ 0,1 M.....	43

DAFTAR GAMBAR

nomor		halaman
1.	<i>Ragone plot</i> untuk berbagai jenis penyimpanan energi.....	6
2.	Skema superkapasitor.....	7
3.	Diagram skematis.....	9
4.	(a). Grafena (b). Grafit.....	10
5.	Struktur Grafena Oksida.....	11
6.	Preparasi GO.....	11
7.	Konfigurasi Ikatan dari Grafena dengan Doping Nitrogen.....	13
8.	a). Contoh <i>autoclave</i> b). Diagram skematik <i>autoclave</i>	17
9.	Spektrum hasil analisis FTIR pada grafit, GO, dan rGO.....	19
10.	Spektrum hasil analisis FTIR GO dan N-GO-1N pada suhu doping 600, 700 dan 800 °C.....	19
11.	Pola difraktogram grafit, GO, dan rGO.....	21
12.	Pola difraktogram XRD N-GO, NiCo ₂ Al-LDH dan NiCo ₂ Al-LDH/N-GO.....	22
13.	Morfologi SEM material.....	23
14.	Kerangka Pikir Penelitian.....	25
15.	Karbon Tempurung Kelapa.....	32
16.	<i>Ice Bath</i> Oksidasi Karbon.....	33
17.	(a) Suspensi Hijau (b) Grafena Oksida.....	33
18.	(a) GO (b) GO Injeksi Gas Nitrogen.....	34
19.	Skema Pembentukan GO dan Perubahannya Setelah diinjeksi Gas Nitrogen.....	35
20.	Spektrum FTIR (a) GO Injeksi Gas Nitrogen, (b) GO, (c) Karbon.....	36
21.	Spektrum XRD Sampel Karbon.....	38
22.	Spektrum XRD (a) GO Injeksi (b) GO.....	38
23.	Hasil Analisis SEM Karbon (a) Perbesaran 5.000x	

	(b) Perbesaran 1.300x.....	40
24.	Hasil Analisis SEM pada perbesaran 10.000x dan 3000x dari GO dan GO Injeksi Gas Nitrogen.....	40
25.	Hasil Mapping EDS (a) Karbon, (b) GO dan (c) GO Injeksi Gas Nitrogen.....	42
26.	Voltamogram (a) GO Non-Injeksi dan (b) GO Injeksi Gas Nitrogen.....	44

DAFTAR LAMPIRAN

nomor		halaman
1.	Skema Prosedur Kerja Penelitian.....	54
2.	Data Hasil FTIR.....	58
3.	Data Hasil XRD.....	61
4.	Data Hasil SEM-EDS.....	63
5.	Analisis Data.....	67
6.	Dokumentasi Kegiatan Penelitian.....	70

DAFTAR ARTI LAMBANG DAN SINGKATAN

Istilah/Singkatan	Keterangan
rGO	reduced Graphene Oxide
GO	Graphene Oxide
SLG	Single Layer Graphene
MLG	Multi Layer Graphene
N-GO	Nitrogen doping Grafena oksida
CVD	Chemical Vapour Deposition
Cs	Specific Capacitance
CNT	Carbon Nanotube
sp ² dan sp ³	Bentuk Hibridisasi Orbital
NOR	Nortfloxacin
FTIR	Fourier Transformed Infrared
SEM	Scanning Electron Microscope
XRD	X-Ray Diffraction
SEM	Scanning Electron Microscope
EDS	Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy
Hz	Hertz
eV	Elektron Volt
CV	Cyclic Voltammetry
Å	Angstrom

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Perkembangan teknologi yang semakin meningkat menyebabkan teknologi kendaraan listrik juga mengalami peningkatan yang pesat (Allcott dan Wozny, 2014; Nikoloski, 2016; Ding dkk., 2017). Kendaraan listrik menggunakan media penyimpanan energi berupa baterai (Jing dkk., 2016; Ding dkk., 2017). Namun, penggunaan baterai memiliki kekurangan diantaranya kerapatan daya yang tidak terlalu tinggi, durasi pengisian yang relatif lama dan usia baterai yang terbatas (Hannan dkk., 2017; Kouchachvili dkk., 2017; She dkk., 2020). Perangkat penyimpan energi lainnya yang banyak dikembangkan saat ini selain baterai, yaitu superkapasitor dan *fuel cell* (Abioye dan Ani 2015; Dong dkk., 2020).

Superkapasitor dianggap sebagai salah satu perangkat penyimpanan energi yang paling menjanjikan karena kepadatan daya yang superior, waktu pengisian daya yang cepat, kerapatan energi dan jumlah siklus energi yang tinggi (>100000 siklus) (Wang dkk., 2015; Meng dkk., 2018). Parameter kemampuan penyimpanan energi yang tinggi pada suatu superkapasitor ditentukan oleh nilai kapasitansi spesifiknya yang bergantung pada jenis bahan elektroda yang digunakan pada superkapasitor (Choi dan Park, 2014).

Pembuatan elektroda superkapasitor dapat menggunakan grafena (Naderi dkk., 2020), tabung nano karbon (Cho dkk., 2020), aerogel karbon (Liu dkk., 2013) dan karbon aktif (Xie dan Zhou, 2019). Salah satu bahan material elektroda superkapasitor yang cukup populer digunakan saat ini adalah grafena. Hal ini disebabkan karena grafena memiliki mobilitas elektron dan konduktivitas termal yang cukup baik (Purkait, dkk., 2018).

Grafena adalah material yang terdiri atas karbon hibridisasi sp^2 dan tersusun secara heksagonal dalam struktur dua dimensi (Ding dkk., 2018). Struktur heksagonal pada grafena menyebabkan material ini memiliki karakteristik stabilitas termal yang baik, luas permukaan spesifik yang tinggi,

fleksibilitas, sifat elektronik, dan konduktivitas yang sangat baik (Osman dkk., 2021). Grafena unggul sebagai elektroda superkapasitor karena material ini bersifat kromoforik yang dapat menyerap elektron bebas secara cepat dengan mobilitas elektron $200.000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, luas permukaan spesifik $2630 \text{ m}^2/\text{g}$ dan kapasitansi spesifik elektrokimia sebesar $21 \text{ mF}/\text{cm}^2$. Grafena juga tahan terhadap panas ketika proses *charging* dengan nilai konduktivitas termal sebesar $5.000 \text{ W}/\text{m.K}$, serta lebih kuat dan tahan lama dikarenakan material ini memiliki struktur heksagonal dengan kekuatan sebesar $42 \text{ N}/\text{m}$ (Marcelina, 2017). Beberapa material yang termasuk turunan grafena antara lain *single-layer graphene* (SLG), *multi-layer graphene* (MLG), *graphene oxide* (GO), *reduced graphene oxide* (rGO), dan *graphene platelets* (Chauhan dkk., 2020).

Grafena oksida (GO) adalah turunan grafena yang memiliki luas permukaan dengan spesifik yang tinggi, fleksibilitas, konduktivitas yang sangat baik, dan dispersi stabilitas termal yang baik (Si dkk., 2021). GO dan grafena meskipun memiliki sifat kimia, optik, dan listrik yang mirip (Shao dkk., 2012) namun GO dan grafena memiliki struktur yang berbeda. Struktur grafena berbentuk planar sedangkan GO terdapat lengkungan karena adanya gugus oksigen dalam bentuk karboksil dan karbonil (Zaman, 2021). Penambahan nitrogen dengan GO (N-GO) dapat membantu dalam meningkatkan kapasitansi spesifik grafena oksida (Luo dkk., 2021).

Doping kimia dengan nitrogen merupakan salah satu metode yang efektif untuk memodifikasi sifat GO karena ukuran atom yang sebanding dan lima elektron valensi yang dimilikinya mampu membentuk ikatan valensi yang kuat dengan atom karbon (Ardiani, 2018). Elektronegativitas nitrogen yang lebih besar dibanding karbon menciptakan polarisasi pada jaringan karbon sehingga mempengaruhi sifat elektrik, magnetik, dan optik dari GO (Wang dkk., 2014). Beberapa hasil penelitian yang mengindikasikan bahwa doping nitrogen terhadap GO (N-GO) memiliki karakteristik yang baik sebagai elektroda dalam pengaplikasiannya untuk superkapasitor yang terbukti memiliki nilai kapasitas spesifik $328,85 \text{ F}/\text{g}$ dibandingkan tanpa menggunakan doping nitrogen $261,13 \text{ F}/\text{g}$ (Shen dkk., 2022), lembaran nano karbon/grafena (mNC/G) yang didoping nitrogen mesopori 2D memiliki nilai kapasitas spesifik cukup tinggi yakni $267 \text{ F}/\text{g}$ (Yang dkk., 2022), dan mensintesis NiCoAl-LDH dengan N-GO hingga membentuk elektroda NiCo₂Al-LDH/N-GO mampu memiliki nilai kapasitas

spesifik yang sangat tinggi yakni 1136,67 F/g (Wang dkk., 2020). GO banyak dibuat dari limbah hasil pertanian.

Limbah hasil pertanian yang mengandung karbon banyak menjadi target untuk dijadikan sebagai riset penelitian pembuatan GO seperti batang padi (Rahayu dkk., 2017), bambu betung (Amaliyah dkk., 2018), pelepah sawit (Thebora dkk., 2019), tempurung kelapa (Najati dkk., 2023) dan tempurung kemiri (Zakir dkk., 2019). Perkiraan produksi nasional buah kelapa pada tahun 2021 akan mencapai 2,77 juta ton (Kementan RI, 2019). Pada pengolahan buah kelapa, daging buahnya diambil untuk diolah menjadi produk jadi sedangkan tempurung kelapa dianggap sebagai limbah sisa sehingga langsung dibuang. Tempurung kelapa termasuk sampah organik namun limbah ini sulit terurai oleh mikroorganisme karena sifatnya yang keras akibat kandungan silikat (SiO_2) yang kadarnya cukup tinggi (Arfandiani dan Larasati, 2013). Beberapa hasil penelitian yang mengindikasikan bahwa tempurung kelapa cukup menarik untuk diolah lebih lanjut karena mudah untuk ditemukan, murah, dan sebagai energi terbarukan (Bello dkk., 2015), memiliki kandungan karbon >50% (Rosi dan Viridi, 2018), sebagai bahan kapasitor dan elektroda yang baik (Wang dkk., 2016), dapat meningkatkan sifat listrik dan mekanik (Faiz dkk., 2020), dan memiliki modulus young, kekuatan tarik, dan sifat kimia yang tinggi (Sun dkk., 2020). Hal inilah yang membuat tempurung kelapa banyak disintesis dengan menggunakan berbagai macam metode untuk menghasilkan GO.

Metode yang digunakan untuk proses sintesis GO diantaranya metode Hummers (Sujiono dkk., 2020), metode *Chemical Vapour Deposition* (CVD) (Dinata dkk., 2018), dan metode sonikasi (Lyn dkk., 2021). Semua metode memiliki kelebihan dan kekurangan dalam penerapannya. Metode hummers terlalu banyak menggunakan larutan, menghasilkan limbah kimia yang berbahaya, efisiensinya rendah, dan grafena yang dihasilkan memiliki kemurnian yang rendah (Sujiono dkk., 2020). Metode CVD dan sonikasi memiliki prinsip kerja yang sama yakni memanfaatkan gelombang ultrasonik. Metode CVD mampu menghasilkan grafena dengan kualitas dan kemurnian yang tinggi tetapi biaya bahan produksi sangat mahal sehingga menghasilkan grafena dalam jumlah yang banyak sangat sulit dan gas yang dikeluarkan dapat mencemari lingkungan sekitar (Dinata dkk., 2018). Metode sonikasi dalam penerapannya cukup sederhana dan mudah dilakukan. Metode ini cukup menarik untuk dikaji lebih mendalam selain karena masih minim penelitian terkait ini, juga memiliki

kelebihan lain yakni dapat menggunakan air dalam prosesnya, menghasilkan limbah yang sedikit dan dapat memproduksi grafena dalam jumlah yang banyak meskipun kekurangannya grafena yang diproduksi memiliki kemurnian yang rendah (Bhuyan dkk., 2016). Kemurnian yang rendah dapat ditingkatkan dengan menggunakan metode hidrotermal. Metode hidrotermal adalah proses pemanasan dengan menggunakan suhu yang tinggi. Metode ini melibatkan pemanasan reaktan dalam wadah tertutup (*autoclave*) menggunakan air. Menurut Pratama dkk (2021) bahwa kelebihan dari metode ini adalah mampu meningkatkan kemurnian, homogenitas yang baik, dan waktu reaksi lebih cepat. Menurut Cejka dkk (2007) bahwa kelebihan lain dari sintesis hidrotermal adalah kristal tunggal yang dihasilkan lebih besar dan strukturnya lebih terbuka.

Pada penelitian ini material Grafena oksida (GO) dilakukan sintesis dengan memanfaatkan limbah tempurung kelapa yang masih berlimpah menggunakan metode sonikasi dan hidrotermal. Berdasarkan dari latar belakang di atas maka akan dilakukan penelitian dengan judul Sintesis dan Karakterisasi Grafena Oksida dari Limbah Tempurung Kelapa (*Cocos Nucifera*) dengan Metode Sonikasi dan Hidrotermal. Hasil dari penelitian ini diharapkan dapat digunakan sebagai salah satu metode untuk mensintesis *grafena oksida* dari limbah tempurung kelapa.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang yang telah diuraikan, maka yang menjadi rumusan masalah pada penelitian ini yaitu:

1. Bagaimana karakteristik GO hasil sintesis dari karbon limbah tempurung kelapa (*Cocos Nucifera*) menggunakan kombinasi metode sonikasi dan hidrotermal?
2. Berapa nilai kapasitansi dan energi spesifik GO yang disintesis dari karbon limbah tempurung kelapa (*Cocos Nucifera*) menggunakan kombinasi metode sonikasi dan hidrotermal?
3. Bagaimana pengaruh pemberian injeksi gas nitrogen terhadap nilai kapasitansi dan energi spesifik GO sebagai kandidat superkapasitor?

1.3 Tujuan Penelitian

Berdasarkan dengan permasalahan di atas, maka yang menjadi tujuan dalam penelitian ini yaitu:

1. Menganalisis karakterisasi GO hasil sintesis dari karbon limbah tempurung kelapa (*Cocos Nucifera*) menggunakan kombinasi metode sonikasi dan hidrotermal
2. Menentukan nilai kapasitansi dan energi spesifik GO yang disintesis dari karbon limbah tempurung kelapa (*Cocos Nucifera*) menggunakan kombinasi metode sonikasi dan hidrotermal
3. Menganalisis pengaruh pemberian injeksi gas nitrogen terhadap nilai kapasitansi dan energi spesifik GO sebagai kandidat superkapasitor

1.4 Manfaat Penelitian

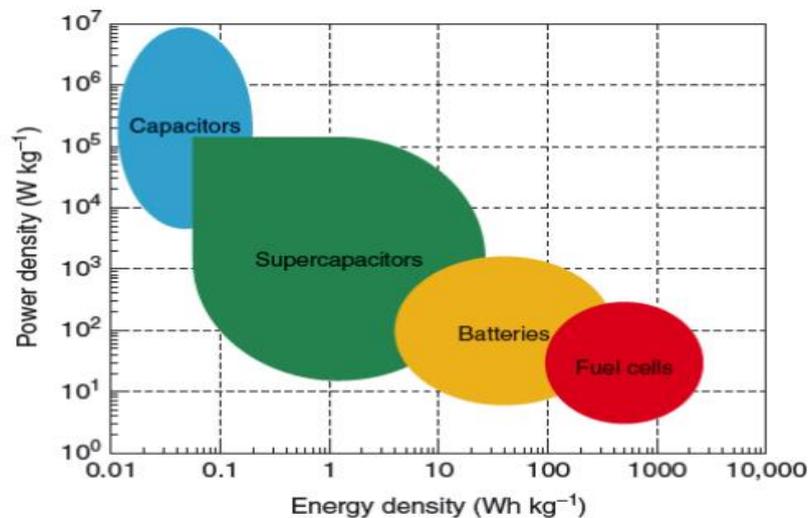
1. Memberikan solusi terhadap penumpukan limbah tempurung kelapa sebagai inovasi material terbarukan
2. Memberikan informasi bahwa limbah tempurung kelapa dapat dimanfaatkan untuk menangani masalah lingkungan.
3. Memberikan informasi terkait material GO hasil sintesis dari limbah tempurung kelapa mempunyai banyak manfaat, salah satunya yaitu sebagai bahan superkapasitor
4. Memberikan referensi untuk penelitian selanjutnya terkait pengembangan elektroda superkapasitor sehingga menghasilkan penelitian yang intensif

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1. Superkapasitor

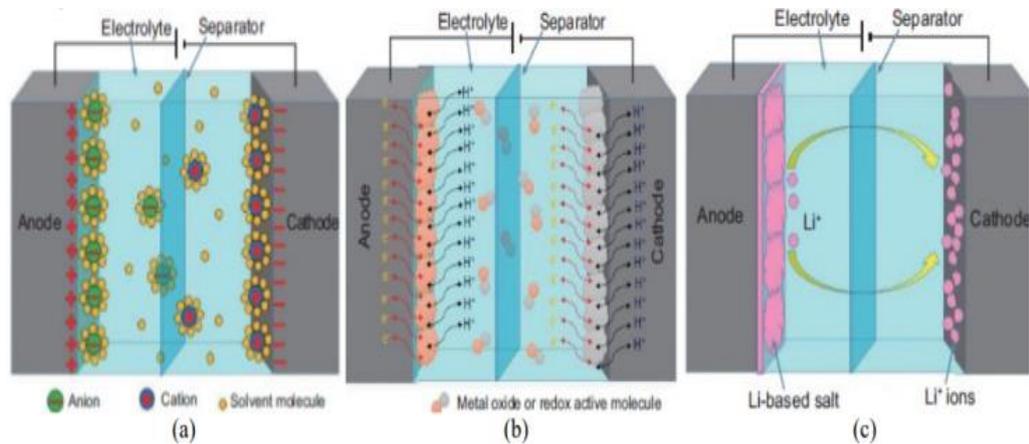
Superkapasitor adalah perangkat penyimpan energi secara elektrokimia yang berperan dalam memenuhi kebutuhan energi listrik. Berbeda dengan baterai, superkapasitor dapat memberikan rapat daya ($>10 \text{ kWkg}^{-1}$) pada proses pengisian dan pengosongan muatan yang cepat serta tingkat kestabilan yang tinggi (Vangari dkk., 2012; Chen dkk., 2011). Superkapasitor memiliki keunggulan dibanding dengan baterai diantaranya; usia pemakaian yang lebih lama dan waktu pengisian cepat. Namun, superkapasitor juga memiliki kekurangan yaitu tegangan yang rendah dibanding dengan baterai (Asep, 2011).



Gambar 1. Ragone plot untuk berbagai jenis penyimpanan energi (Kim dan Jeyong, 2015).

Superkapasitor yang memiliki densitas energi lebih rendah dibandingkan dengan baterai, namun memiliki densitas daya yang lebih tinggi dapat dilihat pada Gambar 1. Berdasarkan mekanisme energi yang mendasari superkapasitor terdiri atas tiga jenis: kapasitor lapis ganda elektrokimia, pseudokapasitor dan

hibrid superkapasitor yang dapat dilihat pada Gambar 2 (Tetra dkk., 2018; Iro dkk., 2016).



Gambar 2. Skema superkapasitor: (a) Elektrokimia lapisan ganda listrik, (b) Pseudokapasitor dan (c) Hibrid superkapasitor (Chen dkk., 2017).

Kapasitansi spesifik (C_s) Fg^{-1} dan energi spesifik (E_s) Whkg^{-1} , dihitung dengan persamaan (1) dan persamaan (2) (Zhang, dkk., 2013) :

$$C_s = \frac{2I \cdot \Delta t}{m \Delta V}$$

$$C_s = \frac{A}{2mk(V_2 - V_1)} \quad (1)$$

$$E_s = \frac{C_s (\Delta V)^2}{(4 \times 3,6)}$$

$$E_s = \frac{1}{2} C_s (\Delta V)^2 \quad (2)$$

Keterangan :

I = arus (A); m = massa elektroda (g); Δt = waktu pengosongan (s); ΔV = potensial window (V); A = luas area; k = scan rate (mV/s)

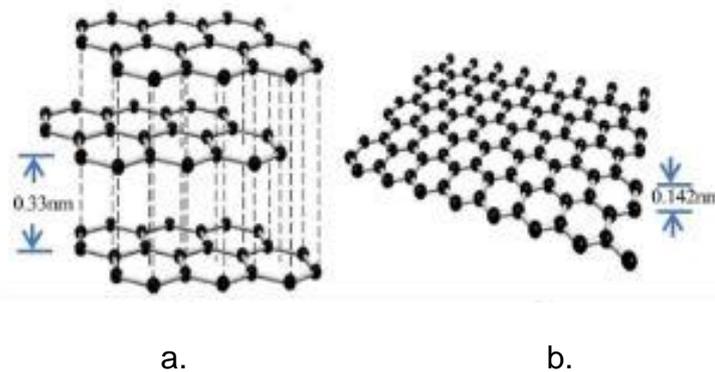
Elektrokimia lapisan ganda listrik dapat menyimpan muatan secara elektrostatis atau melalui cara non-Faradaik tanpa transfer muatan. Prinsip penyimpanan energi elektrokimia lapisan ganda listrik adalah lapisan ganda elektrokimia (Iro dkk., 2016; Kiamahalleh dkk, 2012; Jayalakshmi dan Balasubramanian, 2008). Elektrokimia lapisan ganda listrik dibuat menggunakan dua bahan berbasis karbon untuk elektroda, elektrolit dan pemisah. Elektrokimia lapisan ganda listrik umumnya mempunyai rapat dan daya yang tinggi dan siklus hidup yang lebih lama (Iro dkk., 2016).

Pseudokapasitor menyimpan muatan melalui proses Faradaik yang melibatkan transfer muatan secara elektro-statis antara elektroda dan elektrolit. Ketika potensial diterapkan pada reduksi pseudokapasitor, oksidasi terjadi pada bahan elektroda (Iro dkk., 2016). Proses ini melibatkan perjalanan muatan melintasi lapisan ganda, menghasilkan arus Faradik yang melewati sel superkapasitor. Proses Faradaik ini menyebabkan pseudokapasitor memiliki kepadatan energi yang lebih tinggi dari pada elektrokimia lapisan ganda listrik (Najib dan Emre, 2019).

Superkapasitor asimetrik atau hibrid superkapasitor yang dirangkai dari dua elektroda yang tidak sama dan dilengkapi dengan potensial kerja (Rajkumar dkk., 2015). Hibrid superkapasitor diharapkan dapat meningkatkan tegangan sel dengan kombinasi elektroda yang lebih baik dan dapat meningkatkan kepadatan energi dan daya terhadap superkapasitor (Iro dkk., 2016; Burke, 2007). Jenis superkapasitor ini yang terdiri atas elektroda yang dapat dipolarisasi seperti karbon dan elektroda yang tidak dapat dipolarisasi seperti logam atau polimer penghantar. Proses Faradaik dan non-Faradaik digunakan untuk mendapatkan penyimpanan energi yang tinggi, baik melalui jenis baterai dan elektroda jenis kapasitor (Halper dan James, 2006; Ho dkk., 2014).

2.2. Grafena dan Grafena Oksida (GO)

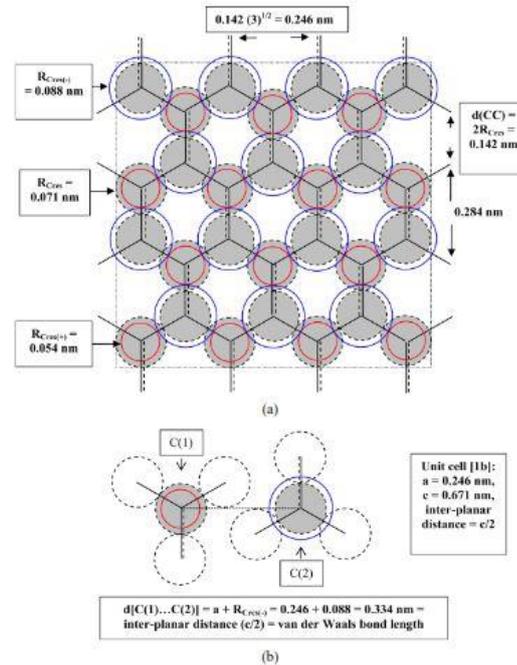
Grafena merupakan material yang sangat berkembang pada saat ini. Grafena menjadi sangat menarik untuk dikaji lebih dalam oleh para peneliti dari berbagai bidang ilmu baik Fisika, Kimia, Biologi maupun Teknik material. Pada dasarnya grafena adalah allotropi karbon yang menjadi struktur dasar untuk pembentukan material berbasis karbon seperti grafit (*stacked graphene*), *Carbon Nanotube* (CNT) (beberapa layer grafena yang digulung melingkar terhadap aksial) dan *Fullerence* (Junaidi, 2014).



Gambar 3. Diagram skematis dari (a) Grafit dan (b) Lapisan tunggal grafena (Adetayo, 2019)

Grafena adalah satu lapis atom karbon yang tersusun dalam bentuk kisi heksagonal menyerupai sarang lebah. Grafena menjadi sangat menarik untuk dikaji karena memiliki sifat kelistrikan, termal, dan mekanik yang luar biasa. Struktur yang unik dari grafena memberikan peningkatan sifat grafena, misalnya mobilitas pembawa yang tinggi ($\sim 10,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$), efek Quantum Hall pada temperatur ruangan, transparansi optik yang baik (97.7%), luas permukaan spesifik ($2630 \text{ m}^2/\text{g}$), Modulus Young ($\sim 1 \text{ Tpa}$), dan konduktivitas panas yang sangat baik $\sim 3000 \text{ W/mK}$ (Junaidi, 2014). Sifat lain yang unggul dari grafena adalah keelastisan bahannya (Geim, 2007). Perkembangannya yang luar biasa, sifat optik dan mekanik grafena memiliki potensi besar untuk digunakan dalam berbagai aplikasi (Pinto, 2014). Ditemukannya grafena, era baru material 2D untuk ilmu pengetahuan dan teknologi telah dimulai.

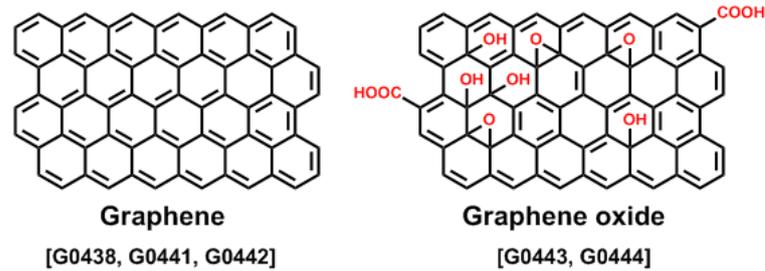
Grafena dapat diperoleh dengan mensintesis material grafit. Menurut Geim (2007), grafit merupakan material yang terdiri dari banyak lembaran grafena yang ditumpuk secara bersama. Lembaran grafena satu dengan lainnya diikat oleh ikatan *van der waals*. Jarak antara lembar grafena satu dengan yang lainnya adalah $0,335 \text{ nm}$ dan jarak antar lembar grafena yang sejajar adalah $0,67 \text{ nm}$. Panjang ikatan kovalen rangkap antar atom C pada lembar grafena adalah $0,142 \text{ nm}$.



Gambar 4. (a). Grafena, Lingkaran merah dan biru adalah kation dan anion (bertanggung jawab untuk konduksi) jari-jari. (b). Grafit, Atom C(1) dan C(2) berada dalam lapisan grafena yang berdekatan yang dihubungkan oleh ikatan *Van Der Waals* seperti yang ditunjukkan oleh garis putus-putus. (Heyrovska, 2016)

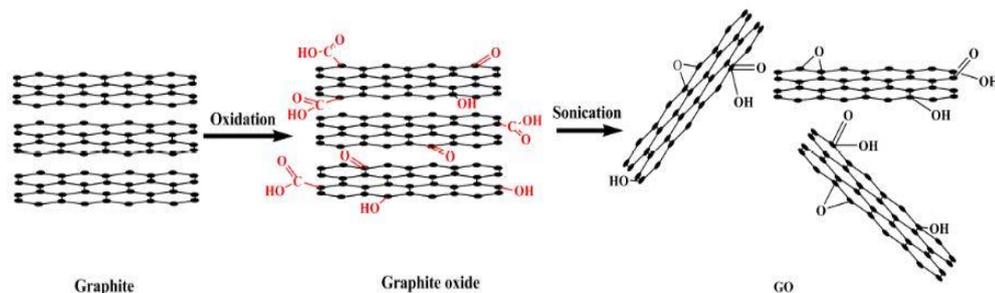
Material grafena pertama kali dibuat oleh Novoselov dan Geim menggunakan pengelupasan mikromekanis grafit, yang disebut sebagai metode “*Scotch tape*”, (Xu, dkk. 2018).

Menurut Li, dkk (2014), terdapat dua masalah utama dalam usaha memperoleh grafena. Masalah pertama adalah tentang bagaimana dapat menghasilkan lembaran grafena pada skala yang cukup. Seperti telah diketahui bahwa grafit, meskipun harganya murah dan tersedia dalam jumlah banyak, *grafit* tidak mudah terkelupas untuk menghasilkan lembaran grafena. Masalah kedua adalah bahwa lembaran grafena sulit digabungkan dan didistribusikan secara homogen ke berbagai matriks untuk aplikasi. Sebagai solusi, Grafena Oksida (GO) yang mengandung banyak kelompok berbasis oksigen dapat diperoleh dengan mudah dari oksidasi grafit. GO dipandang sebagai pendahulu untuk menghasilkan grafena (mengurangi GO) dengan reaksi kimia dan termal. Selanjutnya, dalam beberapa tahun terakhir banyak turunan GO seperti komposit berbasis GO, lapisan berbasis GO dan film tipis, serta nanopartikel berbasis GO muncul sebagai bahan fungsional untuk berbagai aplikasi.



Gambar 5. Struktur Grafena Oksida (Tokyo Chemical Industri)

Proses preparasi GO melibatkan dua langkah seperti yang ditunjukkan pada gambar 5. Langkah pertama yaitu pembuatan GO dari serbuk grafit yang dapat dilakukan dengan mendispersi grafit dalam air atau pelarut polar lainnya karena adanya gugus hidroksil dan epoksida di bidang basal gugus GO dan karbonil serta karboksil pada bagian tepi. Langkah kedua, bongkahan GO dapat dikelupas oleh sonikasi atau perlakuan lainnya untuk membentuk suspensi koloid dari lapisan monolayer, lapisan dua lapis atau beberapa lapisan GO dalam pelarut yang berbeda. Titik kritis dalam preparasi GO adalah pemilihan bahan pengoksidasi yang sesuai untuk mengoksidasi grafit (Li, dkk, 2014).



Gambar 6. Preparasi GO (Li, dkk, 2014)

2.3. Grafena dengan Doping Nitrogen

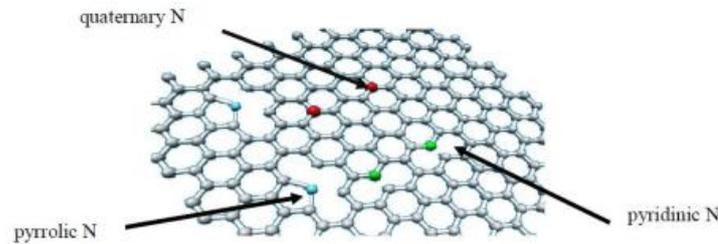
Sifat suatu material berkaitan dengan struktur material tersebut. Oleh karena itu, untuk memodifikasi sifat dari grafena dapat dilakukan dengan mengendalikan strukturnya, salah satunya adalah doping kimia dengan heteroatom (Geng dkk., 2011). Penggunaan heteroatom seperti boron (B), nitrogen (N), pospor (P), dan sulfur (S) ke dalam grafena dapat meningkatkan

sifat elektronik dan reaktivitas kimia. Dalam aplikasi superkapasitor, doping nitrogen (N-doping) telah dilaporkan menghasilkan *pseudocapacitance* dengan bertindak sebagai elektron donor untuk menarik proton dan memperkuat reaksi redoks (Hao dkk., 2016). Selain itu, substitusi grafena dengan atom nitrogen dapat mengubah energi Fermi dan meningkatkan celah pita. Penggabungan atom lain ke dalam situs sp^2 dari kisi grafena dapat menyempurnakan sifat intrinsik grafena (Shinde dkk., 2016). Diantara berbagai dopan, doping nitrogen mudah dicapai dalam grafena karena ukuran atom dan elektronegativitasnya yang sebanding (Lin dkk., 2017). Nitrogen memiliki ukuran dan nomor elektron valensi yang sama dengan atom karbon (C). Grafena dengan doping nitrogen memiliki kapasitansi spesifik yang lebih besar karena doping nitrogen menyebabkan *micro porous* pada grafena sehingga meningkatkan *wettability* pada elektroda/elektrolit. Selain itu, doping nitrogen pada grafena juga dapat meningkatkan *binding energy*, yang menyebabkan banyak pergerakan ion pada luas permukaan elektroda (Gong, 2015). Elektronegativitas nitrogen yang lebih besar dibanding karbon menciptakan polarisasi pada jaringan karbon sehingga mempengaruhi sifat elektrik, magnetik, dan optik dari grafena (Wang dkk., 2014).

Atom nitrogen yang didoping ke dalam grafena akan membentuk tiga konfigurasi ikatan dalam kisi karbon, yaitu *quaternary N* (atau *graphitic N*), *pyridinic N*, dan *pyrrolic N*. Skema ikatan ditunjukkan oleh gambar 7. Secara khusus, ikatan *pyridinic N* dengan dua atom C di tepi atau cacat dari *grafena* dan menyumbangkan satu p elektron untuk sistem π . *Pyrrolic N* mengacu atom N yang berkontribusi dua elektron p ke sistem π , meskipun tidak perlu ikatan ke dalam cincin beranggota lima, seperti di *pyrrole*. Kuartir N mengacu pada atom N yang pengganti atom C dalam cincin heksagonal. Di antara jenis nitrogen ini, *pyridinic N* dan kuartir N merupakan hibridisasi sp^2 dan *pyrrolic N* merupakan hibridisasi sp^3 (Yadav dan Dixit, 2017). Dari ketiga konfigurasi ikatan N ini, *pyridinic N* dan *pyrrolic N* berperan dalam keterbasahan (*wettability*) dan meningkatkan *pseudocapacitance*, sedangkan *graphitic N* berperan dalam meningkatkan konduktivitas listrik grafena (Lin dkk., 2017).

Ada beberapa metode dalam sintesis *grafena* dengan doping N. Pada dasarnya terdapat dua metode umum yang digunakan dalam proses sintesis, yaitu dikategorikan sebagai *Direct Synthesis* dan *Post Treatment*. *Direct Synthesis* mencakup metode *chemical vapor deposition* (CVD), metode segregasi, solvothermal dan metode *arc discharge*. Sedangkan *Post Treatment*

mencakup *thermal treatment*, *plasma treatment*, dan N_2H_4 *treatment* (Yadav dan Dixit, 2017).



Gambar 7. Konfigurasi Ikatan dari *Grafena* dengan Doping Nitrogen (Deepan, dkk., 2014).

2.4. Tempurung Kelapa (*Cocos Nucifera*)

Negara Indonesia merupakan salah satu negara penghasil pohon kelapa terbesar di dunia. Hingga saat ini beberapa bagian dari pohon kelapa sudah banyak dimanfaatkan seperti bunga, batang, daun, buah bahkan akar dari pohon kelapa juga dapat dimanfaatkan. Namun ada salah satu limbah dari pohon kelapa ini yang kurang dilihat manfaatnya, yaitu tempurung kelapa terutama tempurung kelapa yang tua. Tempurung kelapa memiliki ketebalan sekitar 3-5 mm dimana terdiri dari lignin, metoksi, selulosa dan beberapa bahan mineral lainnya serta memiliki berat sekitar 15-19% dari berat kelapa keseluruhan. Tempurung kelapa merupakan salah satu material organik yang digunakan untuk menghasilkan unsur karbon dan yang kemudian dijadikan suatu produk berupa arang (Suhartana, 2007).

Tempurung kelapa adalah bahan organik yang terdiri dari beberapa komponen seperti hemiselulosa, selulosa, dan lignin. Selulosa adalah senyawa organik dengan formula $(C_6H_{10}O_5)_n$ yang terdapat pada dinding sel dan berfungsi untuk menguatkan struktur. Hemiselulosa adalah polimer polisakarida heterogen yang tersusun dari unit D-Glukosa, L-Arabisosa, dan D-Xilosa yang mengisi ruang antara serat selulosa di dalam dinding sel tumbuhan. Sehingga hemiselulosa adalah matriks pengisi serat selulosa. Komponen lainnya yaitu lignin yang berfungsi sebagai pengikat sel-sel yang lain dan memberikan kekuatan (Wachid, 2012).

Tempurung kelapa selain dapat digunakan sebagai bahan bakar langsung maupun dalam bentuk arang, dapat juga ditingkatkan kegunaannya di dalam

industri yaitu sebagai bahan adsorpsi setelah diubah menjadi arang aktif atau karbon aktif. Jadi yang dimaksud dengan arang aktif adalah arang yang mempunyai kemampuan daya adsorpsi lebih tinggi dari arang pada umumnya. Perlakuan tersebut dapat dilakukan karena arang yang digunakan dalam pembuatan arang aktif mempunyai komposisi yang tercantum dalam Tabel 1. (Masthura & Zulkarnain, 2018).

Tabel 1. Komponen Kimiawi Karbon Aktif Tempurung Kelapa

No	Komponen	Persentase (%)
1	C	74,3
2	O	21,9
3	Si	0,2
4	K	1,4
5	S	0,5
6	P	1,7

(Bledzki, A.K dkk ,2010)

Beberapa hasil penelitian yang mengindikasikan bahwa tempurung kelapa cukup menarik untuk diolah lebih lanjut karena mudah untuk ditemukan, murah, dan sebagai energi terbarukan (Bello dkk., 2015), memiliki kandungan karbon >50% (Rosi dan Viridi, 2018), sebagai bahan kapasitor dan elektroda yang baik (Wang dkk., 2016), dapat meningkatkan sifat listrik dan mekanik (Faiz dkk., 2020), dan memiliki modulus young, kekuatan tarik, dan sifat kimia yang tinggi (Sun dkk., 2020)

2.5. Sonikasi / Ultrasonikasi

Sejak karakteristik yang luar biasa dari *grafit* diketahui, beberapa metode untuk preparasi telah dikembangkan. Disamping produksi kimia *grafena* dari *grafena oksida* dengan banyak proses, yang mana dibutuhkan reduktor dan oksidator yang sangat kuat. Ditambah lagi, *grafena* yang terbuat dari kondisi kimia ini sering mengandung banyak perbedaan setelah hasil reduksi dibandingkan dengan *grafena* yang diperoleh dengan metode lain. Bagaimanapun juga, sonikasi terbukti menjadi alternatif untuk membuat *grafena* dengan kualitas tinggi, tetapi pada umumnya pembuatan *grafena* adalah sebuah

langkah mudah. Untuk memberikan sebuah contoh: grafit ditambahkan kedalam campuran asam organik yang ditambahkan air, alkohol dan air, lalu campuran akan dikenai gelombang ultrasonik. Asam bekerja sebagai “*molecular wedge*” yang akan memisahkan lembaran *grafena* dari induknya *grafit*. Dengan proses mudah ini, *grafena* kualitas tinggi yang terdispersi dalam air tercipta. (An dkk., 2010)

Sonikasi adalah suatu teknologi yang memanfaatkan gelombang ultrasonik. Ultrasonik memiliki rentang frekuensi antara 20 kHz – 10 MHz. Berdasarkan frekuensinya ultrasonik dibagi menjadi 3 bagian, yaitu: (1) frekuensi rendah, dengan rentang frekuensi 20-100 kHz, (2) frekuensi sedang, dengan rentang frekuensi 100 kHz – 2 MHz, dan (3) frekuensi tinggi, dengan rentang frekuensi 2-10 MHz. Umumnya frekuensi ultrasonik yang sering digunakan dalam proses sintesis adalah yang mempunyai rentangan frekuensi 20 kHz – 2 MHz (Ningsih, 2016).

Prinsip metode sonikasi adalah memanfaatkan efek kavitasi akustik. Ketika suatu medium cair (larutan) diiradiasi dengan gelombang ultrasonik, maka dalam medium tersebut akan terjadi tumbukan antar partikel penyusun larutan (medium) yang bertekanan tinggi, ketika antar partikel penyusun kecil ini saling bertumbukan akan menghasilkan *bubble* (gelembung). Selama proses kavitasi akan terjadi *bubble collapse* (ketidak stabilan gelembung), yaitu pecahnya gelembung kecil akibat suara yang ditimbulkan oleh gelombang ultrasonik. Akibatnya akan terjadi peristiwa *hotspot* (pemanasan lokal) yang melibatkan energi yang sangat tinggi yaitu sekitar 5000 K dengan tekanan sekitar 1000 atm, laju pemanasan dan pendinginannya bisa sangat cepat yaitu 10¹⁰ K/s (Suslick dan Price, 1999).

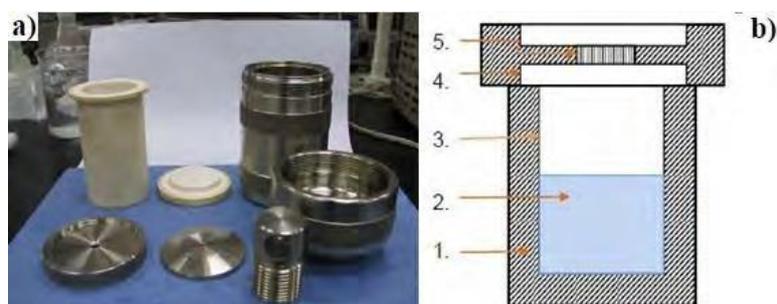
Berdasarkan hasil penelitian yang dilakukan oleh Bera dkk. (2018), bahwa menggabungkan efek ultrasonikasi, pengadukan dan pemanasan mampu mempercepat laju oksidasi dengan cepat, meningkatkan jarak antar lapisan dan membentuk lebih banyak luas permukaan pada reaksi cepat dan dengan demikian mengurangi waktu reaksi secara drastis. Menurut Cai dkk (2017) bahwa waktu sonikasi yang lebih cepat akan menghasilkan lembaran GO monolayer dengan luas permukaan yang lebih kecil sehingga dapat berdampak pada peningkatan sifat mekanik, listrik, optik, atau termal pada GO. Menurut Ye dan Jiachun (2016) bahwa semakin lama waktu yang digunakan untuk proses sonikasi maka akan menghasilkan GO yang memiliki sifat mekanik dan struktur

yang kurang baik. Menurut Dan dkk (2020) bahwa menggunakan metode sonikasi dengan waktu yang relatif lama dapat menyebabkan hilangnya gugus yang mengandung oksigen dan atom C hidrida sp^3 yang diturunkan dari sp^2 dalam *Peanut Shell-Supported Graphene Oxide* (PPS/GO) yang dapat merugikan *Nortfloxacin* (NOR) dalam melakukan penyerapan

2.6. Metode Hidrotermal

Hidrotermal berasal dari kata hidro yang artinya air dan termal yang berarti panas. Jadi, metode hidrotermal adalah proses pemanasan pelarut air. Teknik hidrotermal melibatkan pemanasan reaktan dalam wadah tertutup (*autoclave*) menggunakan air. Dalam wadah tertutup, tekanan meningkat dan air tetap sebagai cairan. Jika pemanasan air di atas titik didih normalnya yaitu 373 K disebut dengan *superheated water*. Kondisi dimana tekanan meningkat di atas tekanan atmosfer dikenal sebagai kondisi hidrotermal. Sintesis hidrotermal secara umum didefinisikan sebagai sintesis kristal atau pertumbuhan kristal pada temperatur dan tekanan tinggi. Sintesis hidrotermal biasanya dilakukan pada suhu di bawah 300°C (Ningsih, 2016).

Reaksi pembentukan yang dilakukan dengan menggunakan media tertutup yang disebut dengan *autoclave*. *Autoclave* merupakan sebuah peralatan yang terbuat dari *stainless steel* yang tebal dan tutup yang kedap udara yang dapat menahan temperatur dan tekanan yang tinggi dalam waktu yang lama. Didalam *autoclave* digunakan juga teflon sebagai wadah agar mencegah terjadinya korosi yang diakibatkan oleh larutan yang bereaksi didalam *autoclave* tersebut (Ilhami, 2017).



Gambar 8. a). Contoh *autoclave* yang digunakan dalam proses *hydrothermal*. b). Diagram skematik *autoclave* yang digunakan dalam proses *hydrothermal*. 1). *Stainless steel*. 2). Larutan. 3). Teflon liner. 4). Tutup *stainless steel*. 5). Pegas. (Ilhami, 2017).

Ada tiga kelebihan metode hidrotermal, yaitu (1) terbentuk powder secara langsung dari larutan, (2) ukuran partikel dan bentuknya dapat dikontrol dengan menggunakan material awal dan kondisi hidrotermal yang berbeda, dan (3) kereaktifan bubuk yang dihasilkan tinggi. Selain kelebihan itu, metode hidrotermal juga memiliki kelemahan. Ada tiga kelemahan metode hidrotermal, yaitu (1) solubilitas material awal harus diketahui, (2) *slurry hydrothermal* bersifat korosif, dan (3) penggunaan bejana tekanan yang tinggi akan berbahaya jika terjadi kecelakaan (Ningsih, 2016).

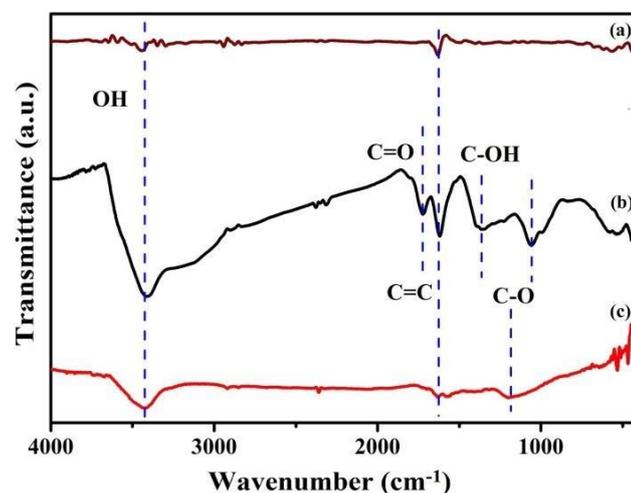
Berdasarkan hasil penelitian yang dilakukan oleh Wu dkk (2021) bahwa mengintegrasikan metode hidrotermal, GO, asam asetat, dan busa nikel ternyata mampu membuat grafena terhidrogenasi dan memberikan dampak yang tinggi terhadap sifat ferromagnetiknya. Menurut Junaidi dan Diah (2019) bahwa semakin lama proses *holding hydrothermal* maka struktur yang terbentuk pada GO akan cenderung memiliki struktur *Few Layer Grafena* yang lebih sulit menghantarkan listrik. Menurut Indhumathy dan Prakasam. (2019), bahwa membuat nanohybrid NiS/rGO menggunakan metode hidrotermal. Dari spektrum *photoluminescence* dapat mengetahui transfer dan rekombinasi dari pembawa muatan fotogenerasi, maka didapatkan hasil bahwa DSSC dengan komposit NiS/rGO menghasilkan efisiensi konversi daya sebesar 9,25%, yang lebih tinggi dari DSSC tanpa penambahan rGO sebesar 5,21%. Peningkatan efisiensi NiS/rGO karena pengurangan *triiodide* yang disebabkan oleh efek sinergis antara nanopartikel NiS yang sangat katalitik dan sifat konduktif listrik yang tinggi dari lembaran rGO.

2.7. Karakterisasi

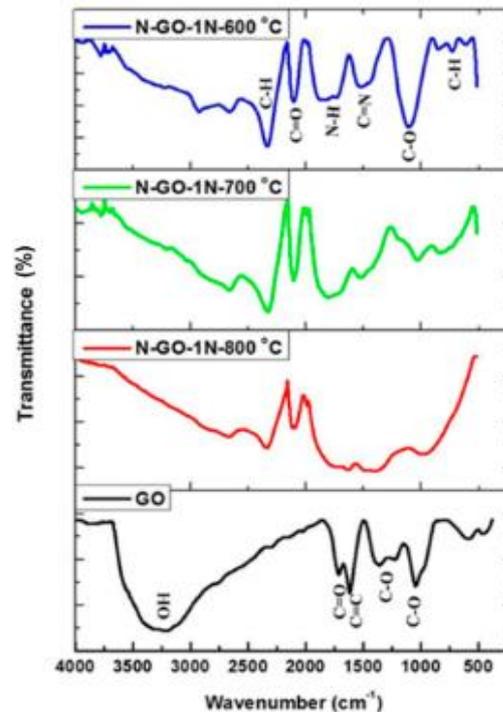
2.7.1 *Fourier Transform Infra Red (FTIR)*

Spektrofotometri inframerah sangat penting dalam kimia modern terutama dalam bidang organik. Spektrofotometri IR merupakan alat rutin dalam penemuan gugus fungsional, pengenalan senyawa dan analisa campuran (Day & Underwood, 1988). Spektrofotometri *Fourier Transform Infra Red (FTIR)* merupakan salah satu instrumen yang dapat digunakan untuk identifikasi senyawa, khususnya senyawa organik, baik secara kualitatif maupun kuantitatif.

Analisis dilakukan dengan melihat bentuk spektrumnya yaitu dengan melihat puncak-puncak spesifik yang menunjukkan jenis gugus fungsional yang dimiliki oleh senyawa tersebut. Sedangkan analisis kuantitatif dapat dilakukan dengan menggunakan senyawa standar yang dibuat spektrumnya pada berbagai variasi konsentrasi (Siti, 2020). Spektrofotometri FTIR, dibagi kedalam tiga jenis radiasi, yaitu: inframerah dekat (bilangan gelombang 1280-4000 cm^{-1}), inframerah pertengahan (bilangan gelombang 4000-200 cm^{-1}), dan inframerah jauh (bilangan gelombang 200-10 cm^{-1}) (Adijuwana,1989). Spektra FTIR menunjukkan serapan beberapa gugus fungsi pada material *grafit*, GO, dan rGO. Material *grafit* memiliki gugus fungsi OH (3441 cm^{-1}) dan C=C (1632 cm^{-1}). Material GO juga memiliki gugus fungsi OH (3415 cm^{-1}) dan C=C (1618 cm^{-1}) serta muncul serapan baru berupa C=O (1722 cm^{-1}), C-OH (1361 cm^{-1}), dan C-O (1057 cm^{-1}) yang mengindikasikan bahwa GO telah terbentuk dari *grafit*. Sementara pada rGO memiliki gugus OH (3426 cm^{-1}), C=C (1631 cm^{-1}), dan C-O (1198 cm^{-1}) dengan mengalami penurunan intensitas puncak apabila dibandingkan dengan GO (Wahyuningsih, dkk., 2020). Hasil karakterisasi FTIR *grafit*, GO, dan rGO tercantum pada Gambar 9.



Gambar 9. Spektrum hasil analisis FTIR pada *graphite*, GO, dan rGO (Wahyuningsih dkk., 2020)



Gambar 10. Spektrum hasil analisis FTIR GO dan N-GO-1N pada suhu doping 600, 700 dan 800 °C (Ngidi dkk., 2019)

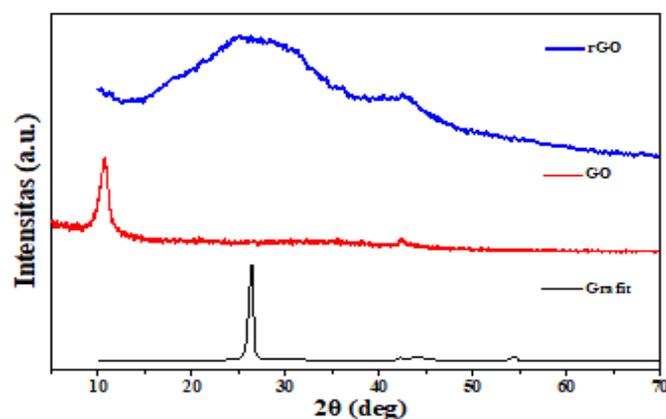
Berdasarkan data hasil analisis FTIR bahwa GO menunjukkan gugus fungsi hidroksil (O-H), karbonil (C = O), (C = C) dan (C-O), yang berturut-turut 3157, 1733, 1614 dan 1255 /1155 cm^{-1} . Setelah GO di doping nitrogen maka puncak C = N mengalami getaran renggang dan N-H getaran lentur pada puncak 1348 dan 1660 cm^{-1} . Suhu doping yang lebih tinggi cenderung mengurangi puncak getaran perenggangan O-H. Puncak getaran perenggangan C-H berada pada 2489 cm^{-1} sedangkan puncak 650 cm^{-1} (wilayah sidik jari) adalah getaran lentur dari C-H (ikatan hibridisasi sp^2) (Ngidi dkk., 2019)

2.7.2 X-Ray Diffraction (XRD)

Proses analisis menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) merupakan salah satu karakterisasi material yang paling tua dan paling sering digunakan hingga sekarang. Teknik ini digunakan untuk mengidentifikasi fasa kristalin dalam material dengan cara menentukan parameter struktur kisi serta untuk mendapatkan ukuran partikel (Callister, 2009). Sinar X dihasilkan oleh interaksi antara berkas elektron eksternal dengan elektron pada kulit atom. Spektrum sinar X memiliki panjang gelombang 5-10 nm, berfrekuensi 10¹⁷-10²⁰ Hz dan memiliki

energi 103-106 eV (Callister, 2009). XRD digunakan untuk analisis komposisi fasa atau senyawa pada material dan juga karakterisasi struktur kristal dari suatu material seperti grafena oksida. Prinsip dasar XRD adalah mendifraksi cahaya yang melalui celah kristal. Difraksi cahaya oleh kisi-kisi atau kristal ini dapat terjadi apabila difraksi tersebut berasal dari radius yang memiliki panjang gelombang yang setara dengan jarak antar atom, yaitu sekitar 1 Angstrom. Radiasi yang digunakan berupa radiasi sinar-X, elektron, dan neutron. Sinar-X merupakan foton dengan energi tinggi yang memiliki panjang gelombang berkisar antara 0.5-2.5 Angstrom. Ketika berkas sinar-X berinteraksi dengan suatu material, maka sebagian berkas akan diabsorpsi, ditransmisikan, dan sebagian lagi dihamburkan terdifraksi. Hamburan terdifraksi inilah yang dideteksi oleh XRD (Callister, 2009).

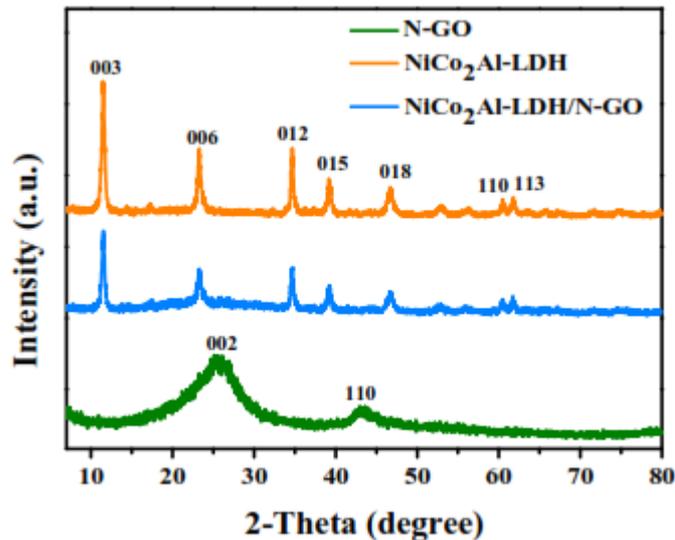
Hasil karakterisasi XRD GO, rGO pada gambar 11. GO memiliki puncak difraksi yang tajam pada nilai $2\theta = 10,74^\circ$ (hkl 001) dan puncak kecil pada nilai $2\theta = 42,42^\circ$ (hkl 100). Puncak yang tajam tersebut menunjukkan bahwa pada GO terdapat gugus fungsional oksigen di dalam strukturnya (Sarkar, dkk., 2014). Pada rGO menunjukkan difraktogram puncak yang lebar pada nilai $2\theta = 24,97^\circ$ (hkl 002) dan puncak kecil pada nilai $2\theta = 42,42^\circ$ (hkl 100). Hasil tersebut sesuai dengan penelitian sebelumnya bahwa rGO menghasilkan puncak yang lebar pada posisi 2θ sebesar $25,00^\circ$ (Razmjooei, dkk., 2014).



Gambar 11. Pola difraktogram *grafit*, GO, dan Rgo (Wahyuningsih dkk., 2020)

Puncak difraksi tajam menghilang pada GO menjadi puncak yang lebar pada rGO sehingga menunjukkan eksfoliasi atau pengelupasan dari beberapa lapisan GO selama proses reduksi. Adapun nilai jarak antar *layer* (*dspacing*)

masing-masing pada *grafit*, GO, dan rGO sebesar 3,37 Å; 8,22 Å; dan 3,56 Å. Terjadinya penurunan *d-spacing* menandakan bahwa proses reduksi GO telah berhasil. Hal ini menunjukkan bahwa *d-spacing* rGO kembali mendekati nilai *d-spacing grafir* namun sedikit lebih besar dari *grafir* yang menunjukkan bahwa terdapat sedikit gugus fungsional oksigen yang tersisa pada rGO (Xiang, dkk., 2014).



Gambar 12. Pola difraktogram XRD N-GO, NiCo₂Al-LDH dan NiCo₂Al-LDH/N-GO (Wang dkk., 2020)

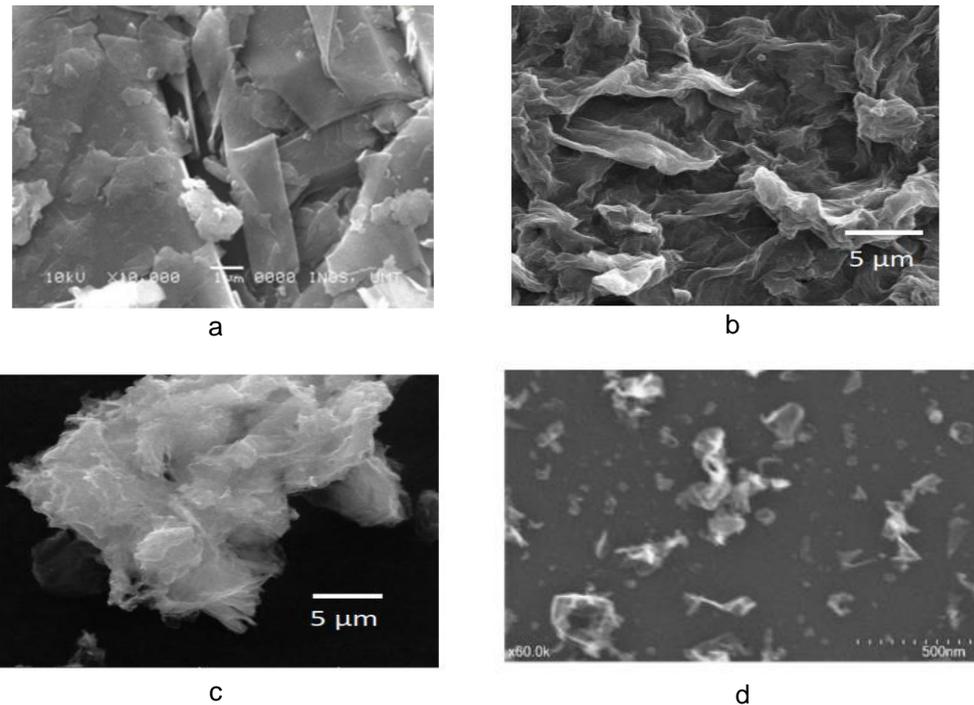
Berdasarkan data hasil analisis XRD bahwa N-GO menunjukkan puncak 25,5^o dan 42,9^o yang jika dibandingkan saat telah di kombinasi dengan NiCo₂Al-LDH memiliki puncak 11,6^o, 23,1^o, 34,9^o, 39,4^o, 46,8^o, 60,8^o, dan 62,4^o. Hal ini menunjukkan bahwa N-GO dengan *grafena* memiliki karakteristik struktur yang sama (Wang dkk., 2020). Berdasarkan persamaan Bragg bahwa d_{spacing} dari GO akan menjadi lebih besar jika ditambahkan dengan doping atom nitrogen hal ini dikarenakan keberadaan atom nitrogen pada grafena memiliki jari-jari atom yang lebih besar daripada karbon (Safitri dkk., 2017)

2.7.3 Scanning Electron Microscope (SEM)

SEM (*Scanning Electron Microscope*) adalah jenis mikroskop elektron yang menggunakan berkas elektron untuk menggambarkan bentuk permukaan dari material yang dianalisis. Analisis SEM digunakan untuk mengetahui morfologi,

topografi, komposisi, dan informasi kristalografi dari suatu material seperti *grafena oksida* (GO). Topografi menjelaskan permukaan dan tekstur material, morfologi menjelaskan bentuk dan ukuran partikel material, dan komposisi menjelaskan sifat kimia dari material penyusunnya (Girao dkk., 2017).

Morfologi *graphite*, GO, rGO dan N-GO pada Gambar 13 dikarakterisasi secara fisik dengan analisis SEM. Hasil analisis SEM grafit murni memiliki bentuk berupa serpihan atau *flakes* kasar yang menyebar dengan ukuran yang bervariasi dan tidak beraturan seperti yang ditunjukkan pada Gambar 13 a. Setelah *grafit* mengalami oksidasi dan sonikasi, analisis SEM pada GO menunjukkan perubahan morfologi, atau memiliki tampilan berupa lembaran-lembaran berlapis, keriput dengan banyak lipatan seperti yang ditunjukkan pada Gambar 13 b. Ketebalan pada morfologi GO dikarenakan adanya gugus fungsional oksigen yang terikat di dalamnya. Hal tersebut mengindikasikan bahwa *grafit* telah terkelupas selama proses oksidasi. Sedangkan morfologi rGO ditunjukkan pada Gambar 13 c yang memperlihatkan bahwa rGO memiliki morfologi lembaran yang tipis apabila dibandingkan dengan GO dan terlihat jarak antar lapisannya yang menurun (Yusoff dkk., 2018; Wahyuningsih dkk., 2020). Gambar 13 d merupakan morfologi N-GO yang menunjukkan pulau-pulau secara 3D yang mirip dengan struktur kertas kusut yang tersebar di permukaan substrat. Pulau-pulau tersebut sebagian besar terdiri dari struktur N-GO multilayer (Zafar dkk., 2022)



Gambar 13. Morfologi SEM material (a) Grafit, (b) GO, (c) rGO dan (d) N-GO. (Wahyuningsih dkk., 2020; Yusoff dkk., 2018; Zafar dkk., 2022)

2.8 Cyclic Voltammetry (CV)

Cyclic Voltammetry adalah alat yang secara luas digunakan di bidang elektrokimia untuk mengkarakterisasi kinerja berbagai perangkat penyimpanan energi listrik seperti kapasitor elektrokimia, baterai dan sel bahan bakar. Dalam aplikasi ini, elektroda bermuatan biasanya direndam dalam larutan elektrolit. Lapisan ganda listrik terbentuk pada antarmuka elektroda/elektrolit yang dapat diakses dengan adanya ion dalam elektrolit. Pada *voltammetry* dilakukan pengukuran arus dengan cara scan potensial, hasil yang didapatkan disebut voltamogram (Wang, 2006). *Voltammetry* merupakan salah satu teknik elektroanalitik dengan prinsip dasar elektrolisis. Elektroanalisis merupakan suatu teknik yang berfokus pada hubungan antara besaran listrik dengan reaksi kimia, yaitu menentukan satuan-satuan listrik seperti arus, potensial, atau tegangan, dan hubungannya dengan parameter-parameter kimia. Dalam teknik voltametri, potensial yang diberikan dapat diatur sesuai keperluan. Kelebihan dari teknik ini adalah sensitifitasnya yang tinggi, limit deteksi yang rendah dan memiliki daerah linier yang lebar. Selama proses pengukuran, konsentrasi analit praktis tidak berubah karena hanya sebagian kecil analit yang dielektrolisis. Potensial

elektroda kerja diubah selama pengukuran, dan arus yang dihasilkan dialurkan terhadap potensial yang diberikan pada elektroda kerja. Arus yang diukur pada analisis voltametri terjadi akibat adanya reaksi redoks pada permukaan elektroda (Mulyani, dkk., 2012).

Sel *voltammetry* terdiri atas tiga elektroda, yaitu elektroda kerja, elektroda pembanding, dan elektroda pembantu. Elektroda kerja berfungsi sebagai tempat terjadinya reaksi redoks dari analit yang bergantung pada potensial yang diberikan. Elektroda pembanding merupakan elektroda yang nilai potensialnya dibuat tetap selama pengukuran dan nilainya tidak bergantung pada jenis dan komposisi larutan yang digunakan. Elektroda pembantu berperan dalam melengkapi sirkuit dengan mengalirkan arus pada elektroda ini. Potensial luar diberikan antara elektroda kerja dan elektroda pembanding. Bila terjadi reaksi oksidasi maupun reduksi pada elektroda kerja, arus yang dihasilkan dilewatkan ke elektroda pembantu, sehingga reaksi yang terjadi pada elektroda pembantu akan berlawanan dengan reaksi yang terjadi pada elektroda kerja (Skoog, 2013).

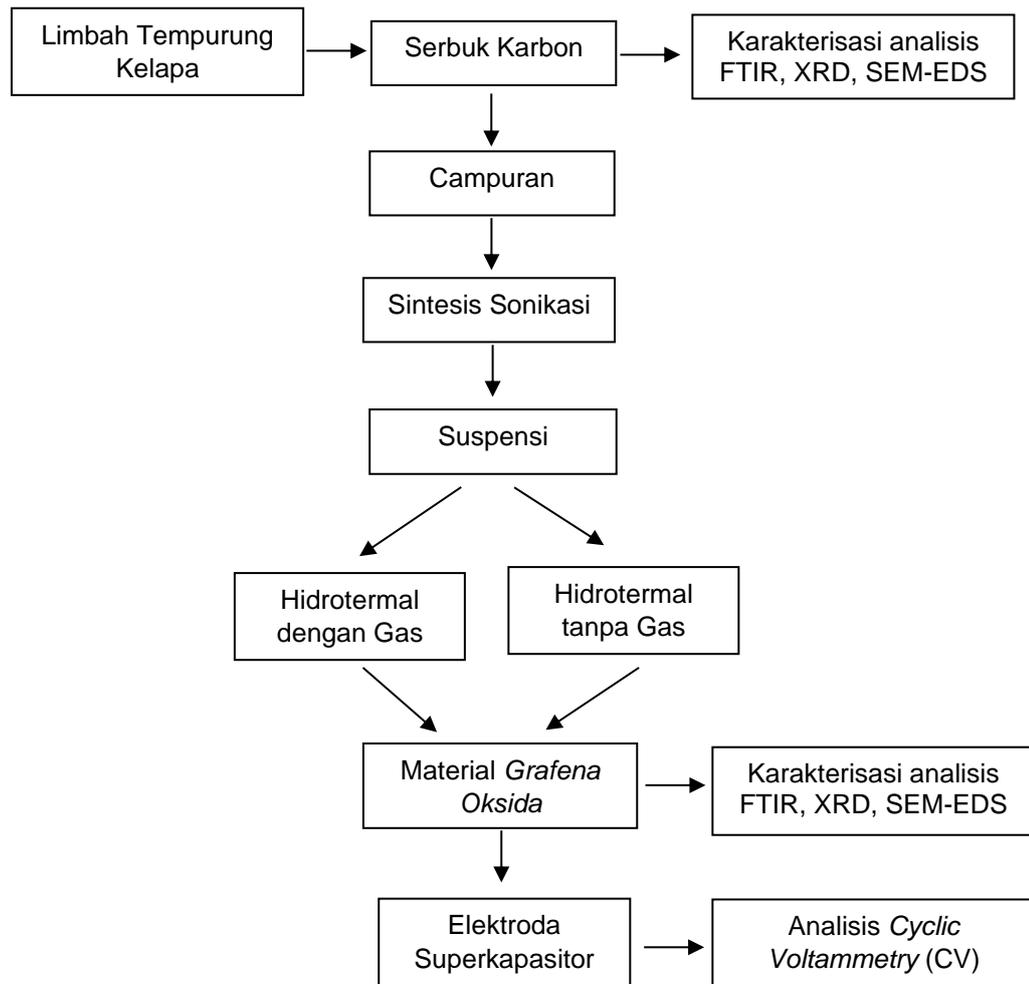
2.9. Kerangka Pikir Penelitian

Superkapasitor merupakan salah satu penyimpanan energi yang memiliki nilai kapasitansi spesifik yang tinggi. Nilai kapasitansi spesifiknya yang bergantung pada jenis bahan elektroda yang digunakan. Pembuatan bahan elektroda superkapasitor dapat menggunakan *grafena oksida* (GO). Pembuatan GO dapat memanfaatkan limbah biomassa seperti tempurung kelapa yang belum dimanfaatkan secara optimal. Beberapa hasil penelitian yang mengindikasikan bahwa tempurung kelapa cukup menarik untuk dikaji karena mudah untuk di dapat, harganya terjangkau, sebagai energi terbarukan dan memiliki kandungan karbon > 50%.

GO yang diinjeksi gas nitrogen akan mampu meningkatkan nilai kapasitansi spesifik *grafena*. Hal ini karena ukuran atom yang sebanding dan lima elektron valensi yang dimilikinya mampu membentuk ikatan valensi yang kuat dengan atom karbon. Elektronegativitas nitrogen yang lebih besar dibanding karbon menciptakan polarisasi pada jaringan karbon sehingga mempengaruhi sifat elektrik, magnetik, dan optik dari GO.

Metode yang digunakan untuk sintesis GO adalah metode sonikasi yang dikombinasikan dengan metode hidrotermal. Hal ini dilakukan karena metode

sonikasi dalam penerapannya cukup sederhana, mudah dilakukan, menghasilkan limbah yang sedikit dan mampu menghasilkan *grafena* dalam jumlah yang banyak meskipun memiliki kemurnian yang rendah. Hal ini sangat tepat untuk dikombinasikan dengan metode hidrotermal yang memiliki kelebihan yakni mampu meningkatkan kemurnian serta kristal tunggal yang terbentuk tampak lebih besar dan memiliki struktur yang lebih terbuka.



Gambar 14. Kerangka Pikir Penelitian

GO yang diperoleh dari hasil sintesis dan diberikan penambahan injeksi gas nitrogen maupun yang tidak injeksi gas nitrogen akan dikarakterisasi menggunakan FTIR untuk mengidentifikasi senyawa dan gugus fungsi yang terdapat pada sampel percobaan, XRD untuk melihat bentuk kristal, SEM untuk melihat morfologi dan topografi dari sampel dan EDS untuk mengetahui unsur yang terkandung pada sampel. Sampel selanjutnya dapat dimanfaatkan sebagai

elektroda superkapasitor. Uji kapasitansi spesifik dari elektroda GO digunakan pengujian *Cyclic Voltammetry* (CV).

2.10 Hipotesis

Hipotesis dalam penelitian ini adalah sebagai berikut :

1. GO dapat disintesis dari karbon limbah tempurung kelapa (*Cocos Nucifera*) menggunakan kombinasi metode sonikasi dan hidrotermal
2. GO hasil sintesis dari karbon limbah tempurung kelapa (*Cocos Nucifera*) menggunakan kombinasi metode sonikasi dan hidrotermal memiliki nilai kapasitansi dan energi spesifik yang baik
3. Pemberian injeksi gas nitrogen memiliki pengaruh terhadap peningkatan nilai kapasitansi dan energi spesifik GO sebagai elektroda superkapasitor.