

Pengembangan Metode Sederhana pada Sintesis *Reduced Graphene Oxide* (rGO) dan Pengaruhnya Terhadap Konduktivitas Listrik yang Dihasilkan

Miftahul Husnah^{1,a)}, Hafizh. A. Fakhri^{1,b)}, Namaz Effza. E.^{1,c)},
Akfiny H. Aimon^{1,d)} dan Ferry Iskandar^{1,2,e)}

¹Laboratorium Material Energi dan Lingkungan,
Kelompok Keahlian Fisika Material dan Elektronik,
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Bandung,
Jl. Ganesha no. 10 Bandung, Indonesia, 40132

²Research Center for Nanoscience and Nanotechnology (RCNN)
Institut Teknologi Bandung,
Jl. Ganesha no. 10 Bandung, Indonesia, 40132

^{a)}miftahulhusnah1403@gmail.com

^{b)}hafizhfakhri1@gmail.com

^{c)}namazeffza@gmail.com

^{d)}akfiny@fi.itb.ac.id

^{e)}ferry@fi.itb.ac.id (corresponding author)

Abstrak

Pada penelitian ini grafena telah berhasil disintesis dengan bantuan microwave sehingga proses sintesis lebih cepat, mudah dan aman. Karakterisasi yang digunakan pada penelitian ini yaitu Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR), Scanning Electron Microscope (SEM), X-Ray Diffractometer (XRD) dan 4 point probe. Dari hasil XRD dan FT-IR menunjukkan rGO telah berhasil disintesis, dan hasil Scanning Electron Microscope (SEM) menunjukkan morfologi rGO berbentuk lembaran-lembaran tipis. Berdasarkan pengukuran 4 Point Probe grafena yang terbentuk memiliki nilai konduktivitas listrik sebesar 1,9 S/cm.

Kata-kata kunci: Grafena, Konduktivitas Listrik, Reduced Graphene Oxide

PENDAHULUAN

Grafena merupakan alotrop karbon yang berbentuk lembaran datar tipis yang tersusun dari karbon atom yang terhibridisasi sp² dan dikemas rapat dalam bentuk kisi kristal seperti sarang lebah, yang mempunyai ketebalan satu atom dan bersifat semilogam dengan band gap nol[1]. Penemuan grafena secara eksperimental dilaporkan oleh Andre Geim dan rekannya Konstantin Novoselov tahun 2004 di University of Manchester [2]. Grafena memiliki propertis fisika dan kimia yang menarik seperti transfer elektron yang tinggi sebesar ~15.000 cm²V⁻¹, kecepatan transfer elektron yang tinggi pada suhu ruang sebesar ~200.000 cm²/(V·s), nilai konduktifis termal 5000 Wm⁻¹K, transparansi optikal ~97,7%, modulus young ~1.0 Tpa, dan kekauan ~130 Gpa. Sifat-sifat unik yang dimiliki membuat grafena menjadi salah satu material ideal yang bisa diaplikasikan keberbagai bidang teknologi[3], misalnya *fuel cells*[4] kapasitor[5], sensor[6], dan *electrocatalysis*[7].

Sampai saat ini telah banyak dilakukan penelitian tentang sintesis grafena untuk menghasilkan grafena satu lapis (*single-layer*) dan beberapa lapis (*few-layer*) dari material dasar carbon. Dari beberapa di antara teknik sintesis yang telah dilaporkan, metoda yang paling sering digunakan untuk memproduksi grafena adalah pengelupasan mikromekanik langsung dari kristal grafit, penumbuhan epitaksial, *chemical vapor deposition* (CVD) dan sintesis kimiawi dengan cara mengoksidasi grafit menjadi oksida grafena (GO) yang dilanjutkan ke dalam proses reduksi menjadi grafena [9]. Sintesis grafena melalui jalur sintesis kimiawi sangat memungkinkan untuk bisa menghasilkan produk dalam skala besar dengan biaya yang relatif lebih murah. Akan tetapi, metode sintesis ini menghasilkan banyak cacat pada grafena yang terbentuk karena perubahan struktur aromatik dan adanya oksidasi. Metode sintesis kimiawi yang paling umum digunakan untuk mensintesis GO dikembangkan oleh Hummer dkk pada tahun 1958 [10]. Metode tersebut kemudian dimodifikasi menjadi metode yang lebih aman oleh Marcano dkk pada tahun 2010 yakni metode sintesis yang tidak mengeluarkan gas beracun seperti NO_2 dan N_2O_4 dengan struktur yang lebih teratur [11]. Akan tetapi metode yang dilaporkan Marcano dkk menggunakan asam pekat yang sangat banyak, sehingga menghasilkan limbah asam yang banyak dan berbahaya, waktu sintesis yang lama, serta konduktivitas listrik yang masih rendah yaitu 0,1 S/cm.

Pada penelitian ini, kami mensintesis oksida grafena tereduksi (*Reduced graphene oxide*; rGO) dengan dua tahap sintesis, yaitu sintesis *graphene oxide* (GO) menggunakan modifikasi metode Marcano dan sintesis *reduced graphene oxide* (GO) dengan bantuan *microwave* dengan tambahan *hydrazine hydrate* (N_2H_4) sebagai agen pereduksi oksida grafena. Pada metode ini pengurangan penggunaan asam pekat hingga ~80,8% dan waktu sintesis yang lebih cepat. Sehingga metode ini bersifat sederhana, aman, sesuai untuk produksi skala besar, murah, serta memiliki konduktivitas listrik yang lebih baik.

METODE PENELITIAN

Material

Material dasar yang digunakan untuk sintesis grafena adalah grafit (*Merck Chemical* Indonesia) dan menggunakan pelarut asam sulfat (H_2SO_4) 98% (*Merck Chemical* Indonesia) dengan tambahan pelarut *posporic acid* (H_3PO_4) (*Merck Chemical* Indonesia). Agen pengoksidasi grafit menjadi oksida grafit adalah *potassium permanganate* (KMnO_4) (*Merck Chemical* Indonesia). Proses oksidasi kemudian diterminasi menggunakan hidrogen peroksida (H_2O_2). Pencucian sampel menggunakan asam klorida (HCl) 5%, aqua dm, dan ethanol. Pelarut oksida grafit pada saat sonikasi menggunakan *ethylene glycol* dan pereduksi *hydrazine hydrate hexahydrate* ($\text{N}_2\text{H}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) (*Merck Chemical* Indonesia).

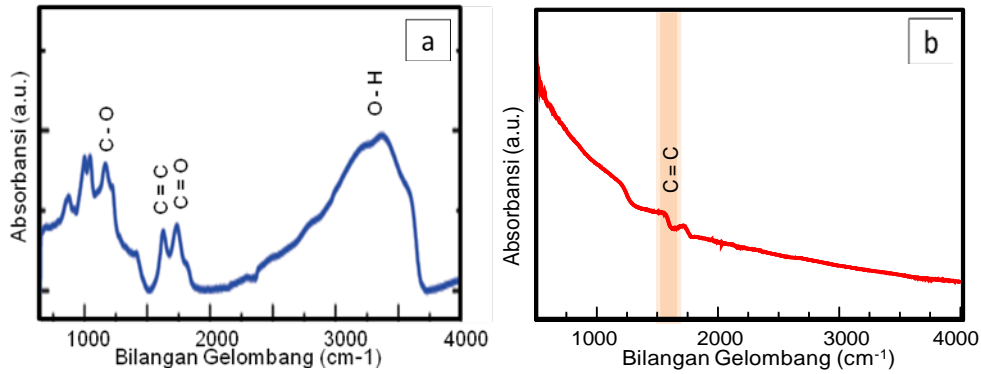
Sintesis Grafit Interkalasi Asam

Pada penelitian ini sintesis rGO dibagi menjadi 2 tahap, yaitu tahap grafit interkalasi asam dan tahap pengelupasan. Proses grafit interkalasi asam dengan metode ini menggunakan serbuk grafit, KMnO_4 , H_3PO_4 , dan H_2SO_4 sebagai bahan dasar. Sintesis dimulai dengan stiring 1 g serbuk grafit, 23 ml H_2SO_4 98% dan 2,55 ml H_3PO_4 dengan kecepatan pengadukan 900 rpm. Larutan ditempatkan pada *ice bath* hingga suhu larutan dibawah 4°C . Selanjutnya dilakukan penambahan 3 g KMnO_4 secara perlahan. Campuran dari senyawa ini memiliki sifat yang eksplosif pada suhu yang tinggi (diatas 20°C), maka suhu larutan dijaga hingga dibawah 10°C selama penambahan KMnO_4 , kemudian reaksi dijalankan pada 50°C selama 40 menit. Larutan yang awalnya berwarna hijau keunguan berubah menjadi coklat muda dan lebih kental pada proses reaksi ini. Selanjutnya, larutan diencerkan dengan 46 ml aqua dm dan 1 ml 30% H_2O_2 untuk menghentikan proses oksidasi. Penambahan hidrogen peroksida membuat larutan akan berubah warna menjadi kehijauan dan disertai gelembung-gelembung, hal ini menandakan derajat oksidasi yang terjadi cukup tinggi.

Tahap Pengelupasan

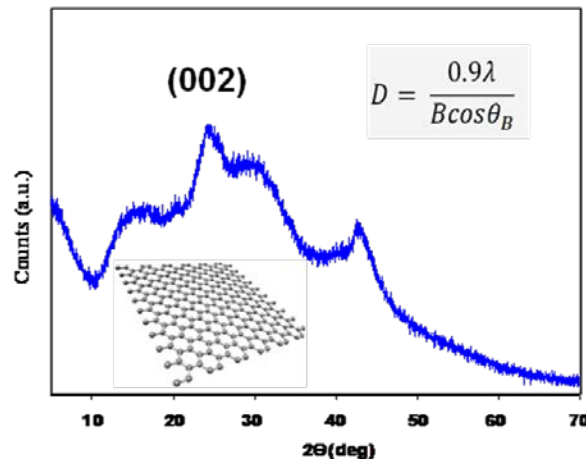
Larutan grafit yang telah diinterkalasi asam dimasukkan ke *microwave* dengan daya 300W selama 20 menit. Kemudian larutan ditambahkan 150 ml aqua dm dan 100 ml etanol, dan dilanjutkan dengan proses sonikasi menggunakan *sonicator* dan pengaduk dengan kecepatan tinggi. Larutan tersebut disaring dan dicuci dengan 5% HCl, aqua dm dan etanol sebanyak tiga kali. Pada proses pencucian ini HCl berfungsi untuk mereduksi sisa SO_4^{2-} dan aqua dm sebagai penetral pH. Hasil pencucian kemudian dipanaskan dengan oven pada suhu 60°C selama 12 jam.

HASIL DAN DISKUSI



Gambar 1. Hasil karakterisasi grafena menggunakan FTIR

Hasil karakterisasi FTIR ditunjukkan pada Gambar 1, dimana spektrum oksida grafena ditunjukkan pada Gambar 1a, sedangkan spektrum rGO ditunjukkan pada Gambar 1b. Pada Gambar 1a terlihat puncak-puncak absorpsi pada grup *hydroxyl* (3420), *carbonyl* (1720), *phenol* (1590), dan pada grup *epoxide* (1250). Sedangkan pada Gambar 1b spektrum sampel rGO menunjukkan absorpsi yang jauh lebih kecil dibandingkan dengan spektrum oksida grafena. Hasil ini mengindikasikan bahwa gugus fungsi oksigen pada sampel rGO telah tereduksi dengan baik dan oksida grafena berhasil berubah menjadi rGO melalui proses ini.



Gambar 2. Hasil karakterisasi pola difraksi (XRD) rGO

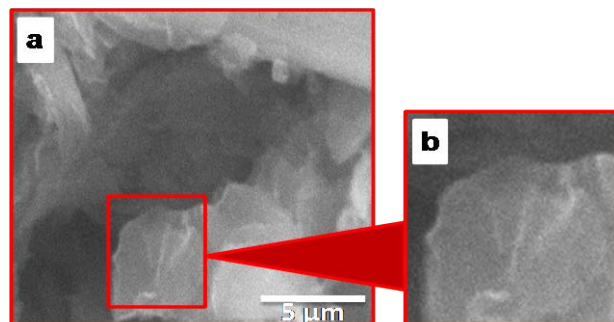
Gambar 2 menunjukkan hasil karakterisasi XRD sampel rGO yang dibuat. Pada gambar terdapat puncak difraksi (002) pada $2\theta = 24.66^\circ$ yang mengindikasikan jarak diantara layer pada rGO[12]. Berdasarkan persamaan Bragg diperoleh jarak antar bidang kristal sebesar 0,356 nm. Ukuran kristalinitas grafena dihitung dengan persamaan Scherrer dan diperoleh ukuran kristal sebesar ~2 nm. Berdasarkan jarak bidang kristal dan ukuran kristal yang diperoleh, diketahui rata-rata jumlah layer grafena yang terbentuk sebesar 5 - 6 layer.

Tabel 1. Perbandingan parameter struktur pada rGO hasil olahan XRD

Sampel	Peak (002)				
	2θ(deg)	FWHM	H (nm)	d (nm)	n
rGO	24,66	4,103	2	0,356	5-6

Hasil SEM dari morfologi rGO sampel ditunjukkan pada Gambar 3. Dari gambar yang diperoleh terlihat sampel grafena yang terbentuk memiliki morfologi lembaran-lembaran tipis. Akan tetapi ada bagian dari

grafena yang belum membentuk lembaran-lembaran. Proses pengelupasan yang belum sempurna mengakibatkan masih terdapatnya grafena yang berupa tumpukan lembaran-lembaran.



Gambar 3. Hasil Karakterisasi SEM a) hasil karakterisasi lembaran grafena dan b) perbesarannya

Berdasarkan karakterisasi yang dilakukan menggunakan *4 point probe* diperoleh nilai konduktivitas listrik sampel rGO sebesar 1,9 S/cm. Nilai konduktivitas listrik dari sampel hasil sintesis yang dilakukan lebih tinggi 19 kali lebih besar dari hasil yang pernah dilaporkan sebelumnya [11]. Hal ini dimungkinkan karena penggunaan asam kuat yang relatif sedikit pada proses sintesis mengakibatkan sedikitnya cacat yang terbentuk pada sampel rGO. Pengukuran lebih lanjut perlu dilakukan untuk membuktikan hipotesa tersebut.

KESIMPULAN

Reduced graphene oxide (rGO) telah berhasil disintesis menggunakan pengembangan metode *Marcano*, dengan pengurangan asam pekat hingga ~80,8%. Metode ini lebih sederhana dan aman jika dibandingkan dengan metode yang telah dilaporkan sebelumnya (*Hummer* dan *Marcano*). Berdasarkan hasil pengukuran yang dilakukan, metoda ini mampu mereduksi gugus fungsi oksigen pada oksida grafena dan dapat mengurangi cacat pada permukaan sampel. Hal ini terlihat dari tingginya konduktivitas listrik sampel sebesar 1,9 S/cm.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini didanai oleh Riset Disentralisasi (Unggulan PT), Kementerian Riset Teknologi dan Pendidikan Tinggi Republik Indonesia tahun anggaran 2015 dan penelitian ini juga dilakukan dengan menggunakan bantuan alat eksperimen dari TWAS.

REFERENSI

1. Loryuenyong, V., et al., *Preparation and Characterization of Reduced Graphene Oxide Sheets Via Water-Based Exfoliation and Reduction Methods*, *Advances in Materials Science and Engineering*, (2013)
2. Geim, A.K. and K.S. Novoselov, *The Rise of Graphene*, *Nat Mater*, 6(3): p. 183-91 (2007)
3. Casero, E., et al., *Differentiation Between Graphene Oxide and Reduced Graphene by Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS)*, *Electrochemistry Communications*, 20: p. 63-66 (2012)
4. C. Hsieh, Y. Liu, A.K. Roy, *Pulse electrodeposited Pd nanoclusters on graphenebased electrodes for proton exchange membrane fuel cells*, *Electrochim. Acta*: p. 64 (2012)
5. H. Chang, C. Chang, Y. Tsai, C. Liao, *Electrochemically synthesized graphene/ polypyrrole composites and their use in supercapacitor*, *Carbon* (2012)
6. M.A. Raj, S.A. John, *Simultaneous determination of uric acid, xanthine, hypoxanthine and caffeine in human blood serum and urine samples using electrochemically reduced graphene oxide modified electrode*, *Anal. Chim. Acta*: p. 771 (2013)
7. D. Wang, W. Yan, S.H. Vijapur, G.G. Botte, *Electrochemically Reduced Graphene Oxide–Nickel Nanocomposites for Urea Electrolysis*, *Electrochim. Acta*: p. 89 (2013)
8. F. Schwierz, *Graphene transistors*, *Nat. Nanotechnol.* (2010)

9. Toh, S.Y., et al., *Graphene Production Via Electrochemical Reduction of Graphene Oxide: Synthesis and Characterisation*, Chemical Engineering Journal, 251: p. 422-434 (2014)
10. Hummers Jr, W.S. and R.E. Offeman, *Preparation of Graphitic Oxide*, Journal of the American Chemical Society, 80(6): p. 1339-1339 (1958)
11. Marcano, D.C., et al., *Improved Synthesis of Graphene Oxide*, ACS Nano, 4(8): p. 4806-14 (2010)
12. Stobinski, L., et al., *Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide Studied by The XRD, TEM and Electron Spectroscopy Methods*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 195: p. 145-154 (2014)