



Sintesis dan karakterisasi grafena oksida dari tempurung kelapa dengan metode sonikasi dan hidrotermal

Mohamad Bima Putera Honoris^{a,b}, Nurul Huda^{a,b}, Tri Partuti^b, Amalia Sholehah^{a,b,1}

^aLaboratorium Material Maju dan Tomografi, Gedung CoE 2, Lantai 4, Fakultas Teknik, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa, Jl. Jenderal Sudirman Km 3, Cilegon, Banten, 42435, Indonesia

^bJurusan Teknik Metalurgi, Fakultas Teknik, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa, Jl. Jenderal Sudirman Km 3, Cilegon, Banten, 42435, Indonesia

¹E-mail: amalia.sholehah@untirta.ac.id

INFO ARTIKEL

Riwayat artikel:

Diajukan pada 27 Februari 2020

Direview pada 01 Maret 2020

Direvisi pada 31 Maret 2020

Disetujui pada 01 April 2020

Tersedia daring pada 30 Juni 2020

Kata kunci:

Tempurung kelapa, grafena oksida, sonikasi, hidrotermal.

Keywords:

Coconut shell, graphene oxide, sonication, hydrothermal.

ABSTRAK

Tempurung kelapa termasuk sampah organik, sehingga dapat digunakan sebagai sumber karbon alternatif. Grafit merupakan salah satu alotrop karbon yang memiliki struktur mirip sarang lebah yang terdiri dari banyak lapisan, sedangkan grafena hanya memiliki satu lapisan karbon. Untuk mensintesis grafena dapat menggunakan metode sonikasi dengan ukuran partikel grafit +200#, -200+230#, dan -230# serta waktu proses selama 30 dan 60 menit. Grafit didapatkan dari arang tempurung kelapa yang berwarna coklat dan berasal dari perkebunan kelapa di Banten. Setelah proses sonikasi, grafit masuk ke proses hidrotermal dengan dan tanpa gas nitrogen. Grafena oksida yang dihasilkan dikarakterisasi menggunakan *Raman spectroscopy*, *Fourier transform infrared spectroscopy* (FTIR), *X-ray diffraction* (XRD), dan *scanning electron microscopy* (SEM). Berdasarkan hasil XRD, sampel yang telah sonikasi masih berbentuk grafit oksida. Hal ini didukung dengan hasil SEM yang memiliki morfologi yang berpori dan belum transparan serta tidak terdeteksinya titik 2D pada karakterisasi Raman. Pada karakterisasi FTIR, terdapat ikatan C=C. Berdasarkan karakterisasi Raman, sampel GV 24 menunjukkan rasio iD/iG sebesar 0,84. Pada karakterisasi FTIR terdeteksi ikatan O-H, ikatan C-H, dan ikatan C=C. Morfologi permukaan terlihat lebih transparan dari grafit yang telah disonikasi. Berdasarkan karakterisasi Raman, sampel GH 4 menunjukkan rasio iD/iG sebesar 0,84. Pada karakterisasi FTIR terdeteksi ikatan O-H, ikatan C=C, dan ikatan C-O. Morfologi permukaan lebih transparan yang menandakan bahwa grafit telah terkelupas. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin lama proses sonikasi dan ukuran partikel -200# +230# menciptakan lapisan yang transparan dan tipis serta menghasilkan grafena oksida setelah melalui proses hidrotermal.

ABSTRACT

Coconut shell is an organic waste and can be used as an alternative carbon source. Graphite is one of the carbon allotropes which has a honeycomb-like structure consisting of many layers, whereas graphene has only single carbon layer. To synthesize graphene, sonication method used by using graphite particle size +200#, -200# +230# and -230#, and processing time of 30 and 60 minutes. Graphite was obtained from brown coconut shell charcoal and comes from coconut plantations in Banten. After the sonication process, graphite processed by hydrothermal method with and without nitrogen gas. Characterization of graphene oxide was done by Raman spectroscopy, Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), X-ray diffraction (XRD) and scanning electron microscopy (SEM). Based on the XRD results, the sonicated sample is still in the form of graphite oxide. This is supported by SEM results that have porous morphology and are not transparent and 2D peaks are not detected in Raman characterization. In FTIR characterization, there is a C=C bond. Based on Raman characterization, the GV 24 sample shows an iD/iG ratio of 0.84. In FTIR characterization O-H bonds, C-H bonds, and C=C bonds were detected. Surface morphology looks more transparent than graphite that has been sonicated. Based on Raman characterization, the GH 4 sample shows an iD / iG ratio of 0.84. In FTIR characterization O-H bonds, C=C bonds, and C-O bonds were detected. The surface morphology is more transparent which indicates that the graphite has been peeled off. The results showed that the longer the sonication process and particle size -200# +230# creates a transparent and thin layer and produces graphene oxide after going through the hydrothermal process.

Tersedia pada: <http://dx.doi.org/10.36055/tjst.v16i1.7519>.

1. Pendahuluan

Sebagai negara yang terletak pada wilayah tropis, Indonesia merupakan salah satu penghasil kelapa terbesar di dunia. Luas areal perkebunan kelapa di Indonesia pada tahun 1970 mencapai 1,80 juta ha dan terus meningkat menjadi 3,54 juta ha atau meningkat sebesar 196,28 % pada tahun 2017. Perluasan areal perkebunan kelapa berdampak pada peningkatan jumlah produksinya. Pada tahun 2017, produksi kelapa nasional mencapai 2,87 juta ton [1]. Perkiraan produksi nasional kelapa pada tahun 2019 akan mencapai 2,92 juta ton [2]. Kebutuhan nasional sekitar 12 milyar sampai 13 milyar butir/tahun yang meliputi industri besar dan konsumsi rumah tangga [3].

Pada pengolahannya, daging buah kelapa diambil untuk diolah menjadi produk jadi, sedangkan tempurung kelapa dianggap sebagai limbah sisa. Pada industri pengolahan buah kelapa dan konsumsi rumah tangga, limbah tempurung kelapa umumnya langsung dibuang. Tempurung kelapa termasuk sampah organik, namun limbah ini sulit terurai oleh mikroorganisme dikarenakan sifatnya yang keras. Struktur yang keras disebabkan oleh kandungan silikat (SiO_2) yang kadarnya cukup tinggi pada tempurung kelapa tersebut. Limbah ini memiliki bobot dan ukuran yang besar, sehingga bisa menyebabkan penumpukan pada pembuangan limbah [4]. Limbah tempurung kelapa dapat diolah kembali menjadi arang dan briket sebagai energi alternatif untuk aktivitas sehari-hari. Pembuatan arang dan briket ini bertujuan untuk memberikan nilai jual yang lebih tinggi serta upaya untuk mengurangi limbah di Indonesia.

Tempurung kelapa mengandung senyawa organik, seperti selulosa, lignin, dan hemiselulosa. Senyawa organik dapat digunakan sebagai sumber karbon jika diolah lebih lanjut. Karbon mampu membentuk banyak alotrop karena bilangan valensi yang dimiliki oleh atom karbon. Alotrop karbon yang sudah dikenal sampai saat ini adalah intan, *carbon nanotube*, *fullerene*, *fullerite*, grafena, dan grafit [5]. Arang tempurung kelapa dapat digunakan sebagai bahan baku dalam pembuatan grafit karena memiliki kandungan karbon. Grafit memiliki sifat tidak mudah dibakar dan sukar larut dalam air dapat diaplikasikan menjadi bahan untuk baterai kering, cat, sikat dinamo, dan pembuatan pensil.

Grafena adalah salah satu alotrop karbon tunggal yang memiliki struktur mirip sarang lebah. Grafena ditemukan pada tahun 2004 oleh Andre K. Geim dan Kostya Novoselov dengan menggunakan *scotch tape* yang ditempelkan di grafit untuk mengambil sampel serbuk-serbuk karbonnya [6]. Grafena memiliki modulus Young 1 TPa, konduktivitas termal 3000 Wm/k dan mobilitas elektron $15000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$. Aplikasi grafena sangat luas diberbagai bidang seperti nanoelektrik, sensor, nanokomposit, baterai, superkapasitor, semikonduktor, dan elektroda transparan [7].

Untuk menghasilkan grafena, grafit dapat dikelupas menggunakan beberapa metode. Metode Hummers yang menggunakan banyak larutan, metode *chemical vapour deposition* (CVD) dan metode sonikasi yang memanfaatkan gelombang ultrasonik. Metode CVD dapat menghasilkan grafena dengan kualitas dan kemurnian yang tinggi, tetapi metode ini memiliki kekurangan seperti biaya produksi yang mahal dan tidak bisa memproduksi grafena dalam jumlah yang besar. Metode Hummers menggunakan senyawa kimia meliputi H_2SO_4 , KMnO_4 , HCl , NaNO_3 dan H_2O_2 untuk mengelupas lapisan grafit. Metode ini sederhana, senyawa kimianya mudah ditemukan dan dapat menghasilkan grafena dalam jumlah besar. Kekurangan dari metode ini adalah menghasilkan limbah kimia yang berbahaya seperti asam kuat dan memiliki kemurnian grafena yang rendah. Metode sonikasi menggunakan bantuan gelombang ultrasonik untuk mengelupas lapisan grafit di dalam air. Metode ini memiliki kelebihan seperti proses yang mudah, murah karena bisa menggunakan air, menghasilkan limbah yang sedikit dan dapat memproduksi grafena dalam jumlah besar. Kekurangan metode ini adalah menghasilkan suara bisung pada saat produksi dan grafena yang dihasilkan memiliki kemurnian yang rendah [8].

Penelitian sebelumnya telah berhasil mensintesis grafena dari tempurung kelapa dengan menggunakan metode Hummers. Hasil yang paling optimal didapatkan pada sampel grafena dengan ukuran partikel -200# +230# dengan waktu sintesis 5 jam [9]. Penelitian lain dilakukan oleh Ling dkk., grafena disintesis melalui metode sonikasi. Pada penelitian tersebut, grafena *multilayer* berhasil disintesis dengan variasi waktu sonikasi yang berbeda [10].

Pada penelitian ini, digunakan metode sonikasi untuk mengelupas grafit menjadi grafena. Metode ini digunakan karena sederhana, tidak menghasilkan limbah berbahaya, dan dapat memproduksi grafena dalam jumlah yang besar. Grafena yang dihasilkan akan diberikan perlakuan hidrotermal dengan injeksi gas N_2 dan tanpa gas N_2 untuk memperbaiki struktur. Hasil dari penelitian ini diharapkan dapat digunakan sebagai salah satu metode untuk mensintesis grafena dari limbah tempurung kelapa.

2. Metodologi Penelitian

2.1. Sintesis grafit

Persiapan pembuatan grafit diawali dengan preparasi bahan baku. Tempurung kelapa disangrai selama 10 menit untuk menghilangkan kandungan airnya dan ditimbang untuk mengetahui massa awalnya. Selanjutnya bahan baku ini dipanaskan di dalam furnace dengan temperatur 600 °C selama 2 jam dan didinginkan pada temperatur ruang untuk. Grafit yang dihasilkan ditimbang untuk mengetahui massa akhirnya. Sampel ini direduksi ukurannya menggunakan blender dan dihaluskan menggunakan mortar. Lalu sampel yang telah halus diayak hingga mendapatkan ukuran +200#, -200# +230#, dan -230#. Sampel selanjutnya dikarakterisasi menggunakan FTIR, SEM, XRD, dan spektroskopi Raman. Variasi yang digunakan pada proses pembuatan grafit ditampilkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Variasi sampel pada pembuatan grafit.

Nama sampel	G1	G2	G3
Fraksi ukuran	+200#	-200# +230#	-230#

2.2. Proses sonikasi

Proses sintesis grafena dilakukan dengan menggunakan metode sonikasi. Sebanyak 0,50 g grafit hasil sintesis ditambahkan dengan 50 mL campuran etanol-air dengan perbandingan 4:6. Proses sonikasi dilakukan dengan variasi ukuran grafit, dan waktu sonikasi. Kemudian sampel grafena hasil proses sonikasi disaring menggunakan kertas saring dan dikeringkan pada oven dengan temperatur 100 °C selama 6 jam untuk menghilangkan kadar etanol. Selanjutnya sampel grafena dikarakterisasi menggunakan FTIR, SEM, dan spektroskopi Raman. Variasi pada proses sonikasi ditampilkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Variasi sampel pada proses sonikasi.

Nama sampel	Variasi waktu (menit)	Variasi Ukuran
GS1	30	+200#
GS2	60	+200#
GS3	30	-200# +230#
GS4	60	-200# +230#
GS5	30	-230#
GS6	60	-230#

2.3. Proses hidrotermal dengan gas hidrogen

Grafena sebanyak 1 gr dimasukkan ke dalam kertas saring yang dibentuk menyesuaikan holder. Kemudian dituangkan air sebanyak 60 mL ke dalam gelas dan dimasukkan ke alat hidrotermal. Proses hidrotermal diatur pada temperatur 100 °C, tekanan gas N₂ sebesar 1 bar dan waktu proses selama 1 jam. Grafena hasil dari proses hidrotermal dikeringkan dalam oven dengan temperatur 100 °C selama 6 jam. Selanjutnya sampel dikarakterisasi menggunakan FTIR, SEM, dan spektroskopi Raman. Variasi yang digunakan pada proses hidrotermal dengan gas nitrogen ditampilkan pada Tabel 3.

Tabel 3. Variasi sampel pada proses hidrotermal dengan gas nitrogen.

Nama sampel	Variasi waktu (menit)	Variasi ukuran
GH1	30	+200#
GH2	60	+200#
GH3	30	-200# +230#
GH4	60	-200# +230#
GH5	30	-230#
GH6	60	-230#

2.4. Proses hidrotermal tanpa gas hidrogen

Grafena sebanyak 0,1 g dimasukkan ke dalam *autoclave* dan ditambahkan 10 mL akuades. *Autoclave* dimasukkan ke dalam oven dengan temperatur 200 °C selama 12 dan 24 jam. Kemudian sampel grafena yang telah melalui proses hidrotermal diambil dan dikeringkan menggunakan oven dengan temperatur 100 °C selama 6 jam. Selanjutnya sampel dikarakterisasi menggunakan FTIR, SEM, dan spektroskopi Raman. Variasi yang digunakan pada proses hidrotermal tanpa gas nitrogen ditampilkan pada Tabel 4.

Tabel 4. Variasi sampel pada proses hidrotermal tanpa gas nitrogen.

Nama sampel	Waktu hidrotermal (jam)
GV12	12
GV24	24

2.5. Karakterisasi material

Pada penelitian ini serangkaian karakterisasi material dilakukan untuk mengidentifikasi karakteristik sampel percobaan yang dihasilkan. *Scanning electron microscope* untuk mengetahui morfologi permukaan sampel percobaan. *X-ray diffractometer* dan *Fourier transform infrared spectrometer* digunakan untuk mengidentifikasi senyawa dan gugus fungsi yang terdapat pada sampel percobaan. *Raman Spectrometer* digunakan untuk mengonfirmasi/mengidentifikasi kehadiran grafena pada sampel dan untuk mengetahui jumlah lapisan karbon yang dihasilkan.

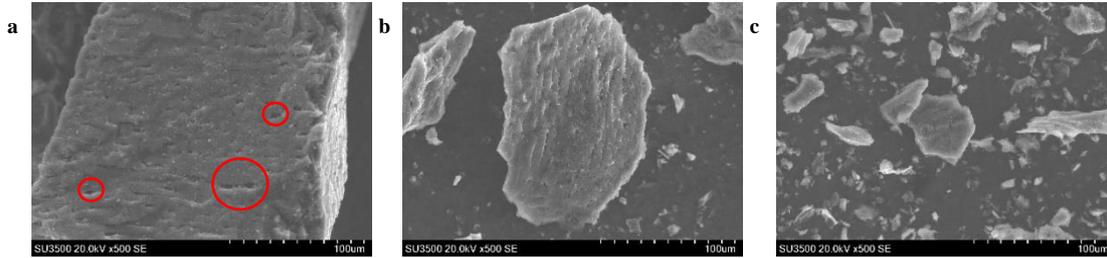
3. Hasil dan Pembahasan

Proses pembuatan grafit dilakukan dari tahap karbonisasi. Proses ini bertujuan untuk mengubah senyawa organik menjadi grafit dengan menggunakan temperatur tinggi. Pada pembuatan grafit terjadi pengurangan massa yang cukup banyak. Grafit yang dihasilkan hanya sekitar 27,26 % dari keseluruhan berat tempurung kelapa yang dibakar. Hal ini disebabkan pada temperatur 600 °C, senyawa lignin, selulosa, dan air yang terkandung dalam tempurung kelapa mulai terurai [9, 11]. Senyawa tersebut berubah menjadi gas karbon monoksida dan karbon dioksida. Tabel 5 menampilkan banyaknya massa yang hilang pada proses ini.

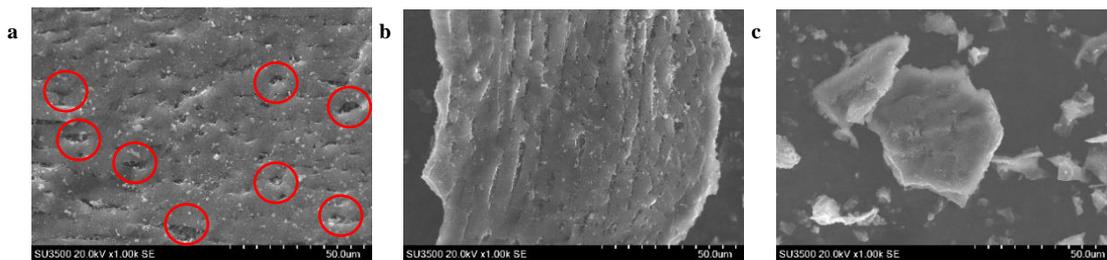
Tabel 5. Data pengurangan massa tempurung kelapa.

No	Massa awal (g)	Massa akhir (g)	Selisih (g)	Persentase massa akhir (%)
1	307,40	81,86	225,54	26,63
2	243,16	67,87	175,29	27,91
3	255,67	73,48	182,19	28,74

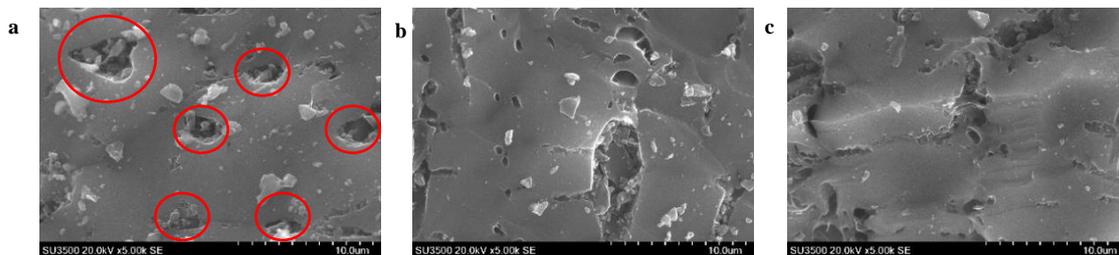
No	Massa awal (g)	Massa akhir (g)	Selisih (g)	Persentase massa akhir (%)
4	268,59	72,11	196,48	26,85
5	265,98	72,06	193,92	27,09
6	266,72	71,42	195,30	26,78
7	268,59	72,61	195,98	27,03
Total	1876,11	511,41	1364,70	27,26



Gambar 1. Morfologi permukaan grafit pada pembesaran 500x pada a) G1, b) G2, dan c) G3.



Gambar 2. Morfologi permukaan grafit pada pembesaran 1.000x pada a) G1, b) G2, dan c) G3.

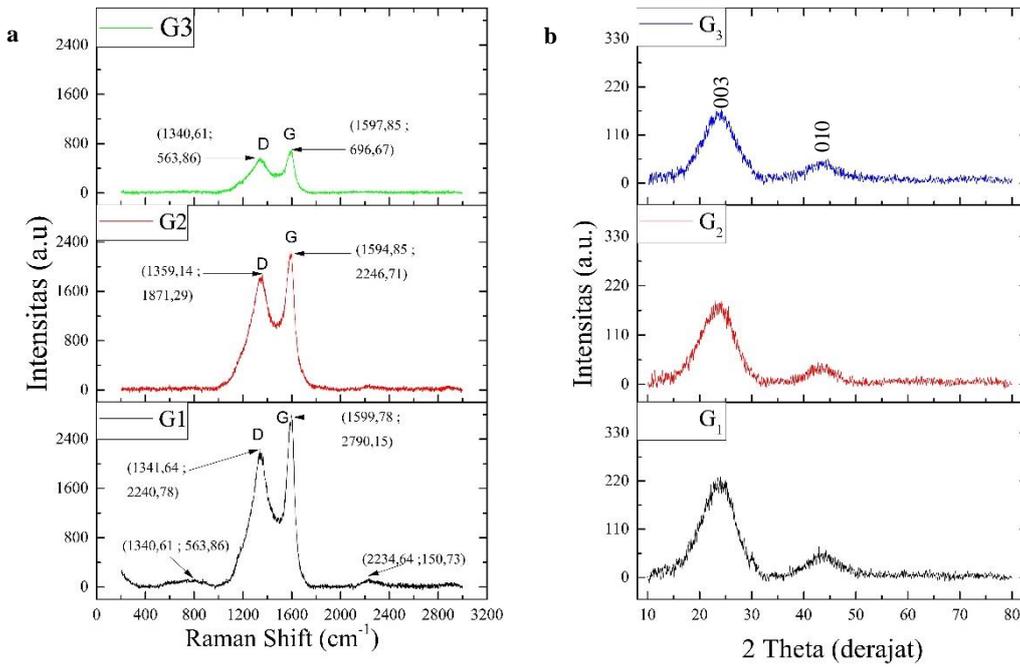


Gambar 3. Morfologi permukaan grafit pada pembesaran 5.000x pada a) G1, b) G2, dan c) G3.

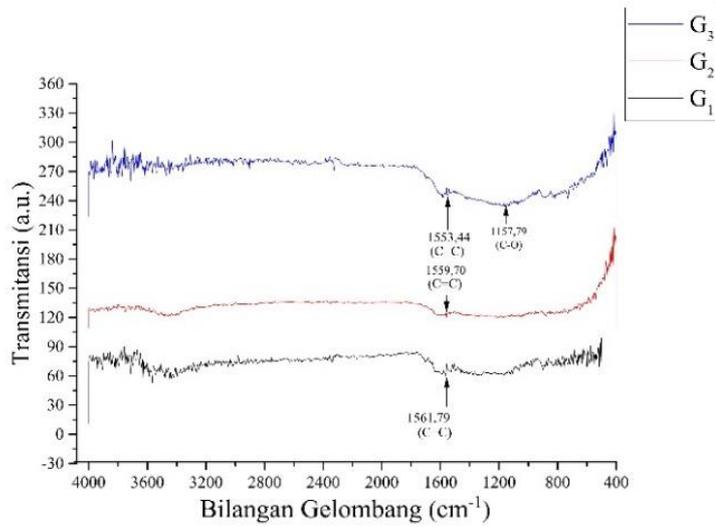
Berdasarkan hasil dari SEM, terlihat struktur permukaan grafit yang tidak teratur dan memiliki pori (ditandai dengan bulatan merah). Pada Gambar 1, partikel grafit terlihat seperti bongkahan yang tidak seragam yang disebabkan oleh proses karbonisasi. Persebaran pori ini dipengaruhi oleh perbedaan fraksi ukuran yang digunakan. Sampel G1 memiliki ukuran partikel yang paling besar sehingga bongkahan terlihat besar, sebaliknya pada G3 dengan partikel yang paling halus sehingga bongkahannya terlihat kecil pada perbesaran 500x. Pada Gambar 2 dan 3 terlihat permukaan grafit memiliki banyak lapisan yang tebal dan tidak seragam. Secara visual, seluruh sampel grafit memiliki warna yang cenderung hitam dan belum transparan.

Hasil karakterisasi spektroskopi Raman pada Gambar 4a menunjukkan bahwa sampel G1 memiliki intensitas spektrum Raman yang paling tinggi. Intensitas pada titik D mencapai 2240 cm^{-1} dan titik G mencapai 2790 cm^{-1} . Intensitas spektrum Raman akan meningkat tergantung dengan ukuran partikel grafit. Menurut Gomez, intensitas yang dihasilkan tergantung dengan meningkatnya ukuran dan ketebalan partikel [12]. Karakterisasi spektroskopi Raman dilakukan untuk mengetahui banyaknya lapisan atom karbon pada grafit yang tereduksi menjadi grafena. Semakin tinggi puncak 2D maka semakin teratur ikatan heksagonal antar atom C dan semakin sedikitnya lapisan karbon yang terbentuk [13]. Spektrum Raman sampel grafit tidak teridentifikasi puncak 2D dikarenakan masih memiliki banyak lapisan karbon.

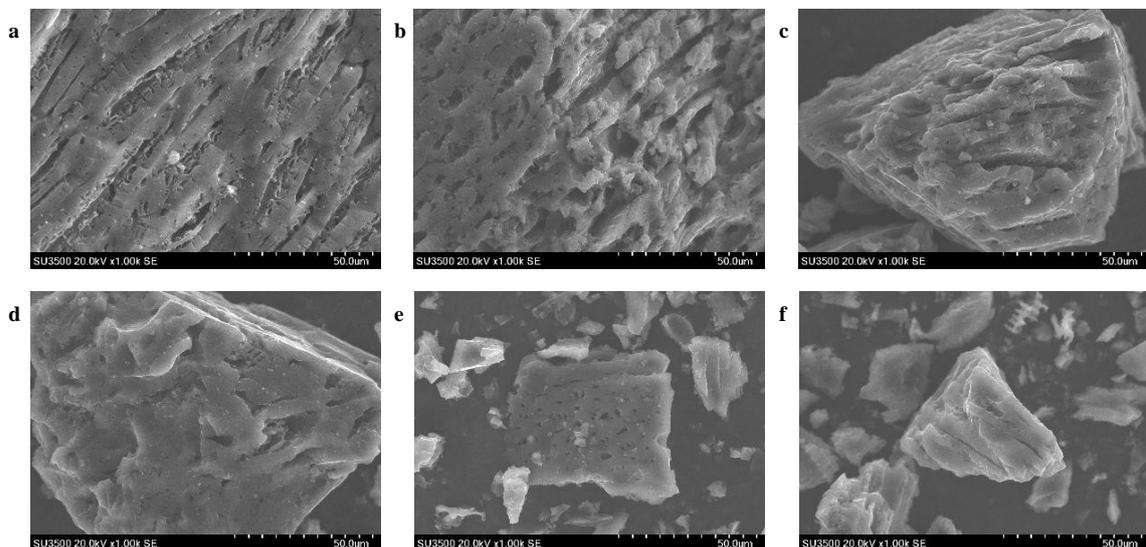
Gambar 4b menunjukkan bahwa grafit teridentifikasi di setiap fraksi ukuran. Dari database *High Score Plus* (HSP) diketahui bahwa sampel G1 dan G3 sesuai dengan standar ICSD nomor 98-005-3780. Sementara itu sampel G2 bersesuaian dengan standar ICSD nomor 98-003-1829. Puncak 2 theta pada sudut 26° dengan indeks Miller (003) dan puncak 2 theta pada 43° dengan indeks Miller (010) [14]. Berdasarkan analisis dengan software HSP, grafit yang terbentuk memiliki struktur kristal heksagonal. Gambar 5 merupakan hasil dari karakterisasi FTIR pada sampel grafit. Dari ketiga sampel terdeteksi bahwa seluruh sampel grafit memiliki ikatan C=C. Puncak serapan pada ketiga sampel ini terdapat pada bilangan gelombang $1500\text{--}1600 \text{ cm}^{-1}$ membentuk ikatan C=C yang merupakan ciri dari pita vibrasi grafit. Ikatan C-O pada pita vibrasi $1100\text{--}1350 \text{ cm}^{-1}$ bermanfaat untuk membantu pengelupasan grafit menjadi oksida [15]. Gambar 5 menunjukkan bahwa semakin kecil fraksi ukuran maka panjang gelombang yang diserap akan semakin tinggi.



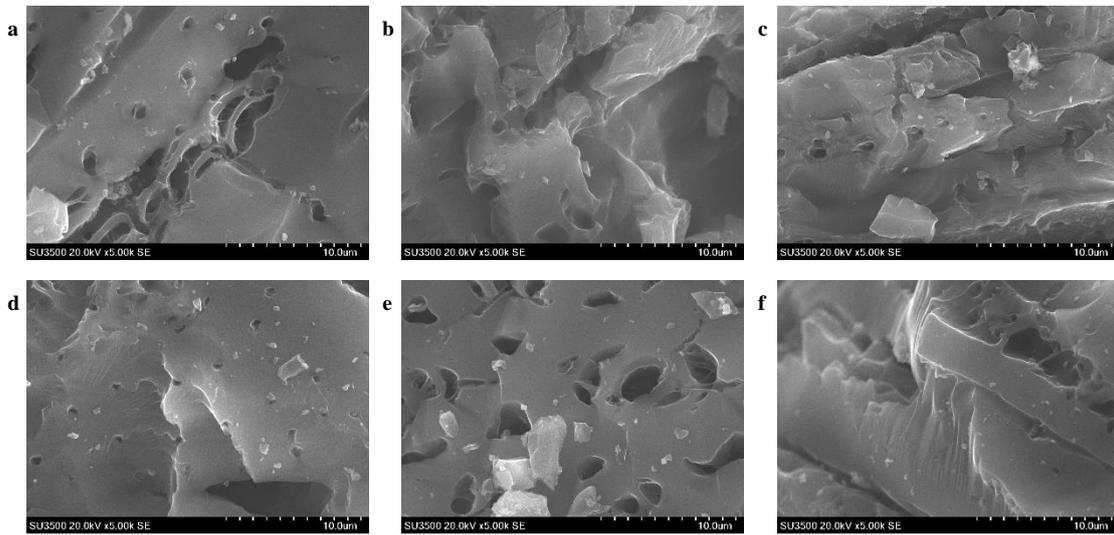
Gambar 4. a) Spektrum Raman dan b) Spektrum XRD sampel grafit.



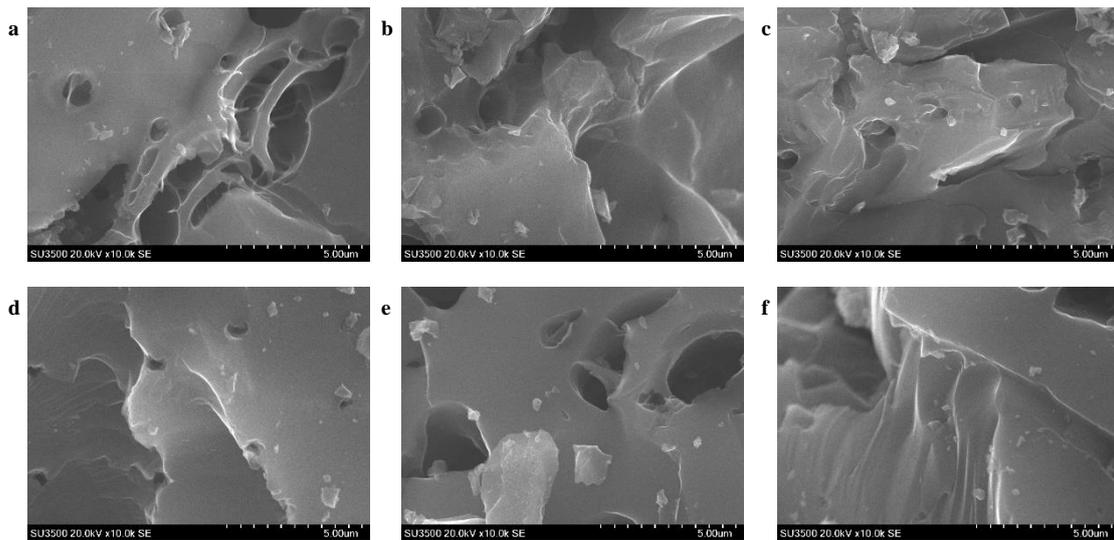
Gambar 5. Spektrum FTIR sampel grafit.



Gambar 6. Morfologi permukaan pada pembesaran 1000x pada a) GS 1 b) GS 2 c) GS 3 d) GS 4 e) GS 5 f) GS 6.

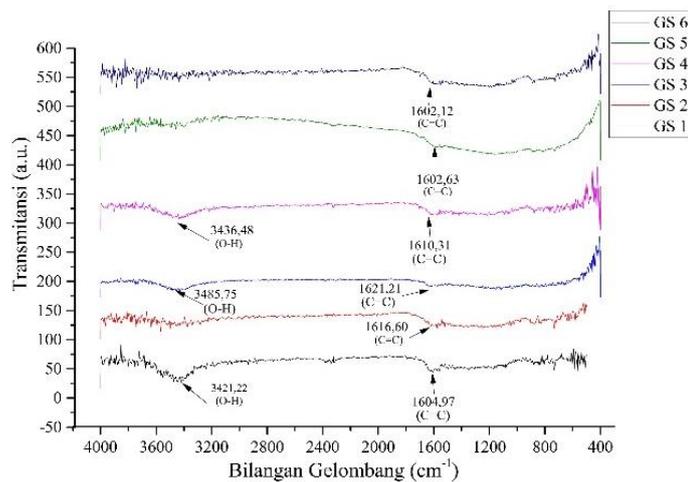


Gambar 7. Morfologi permukaan pada pembesaran 5000x pada a) GS 1 b) GS 2 c) GS 3 d) GS 4 e) GS 5 f) GS 6.



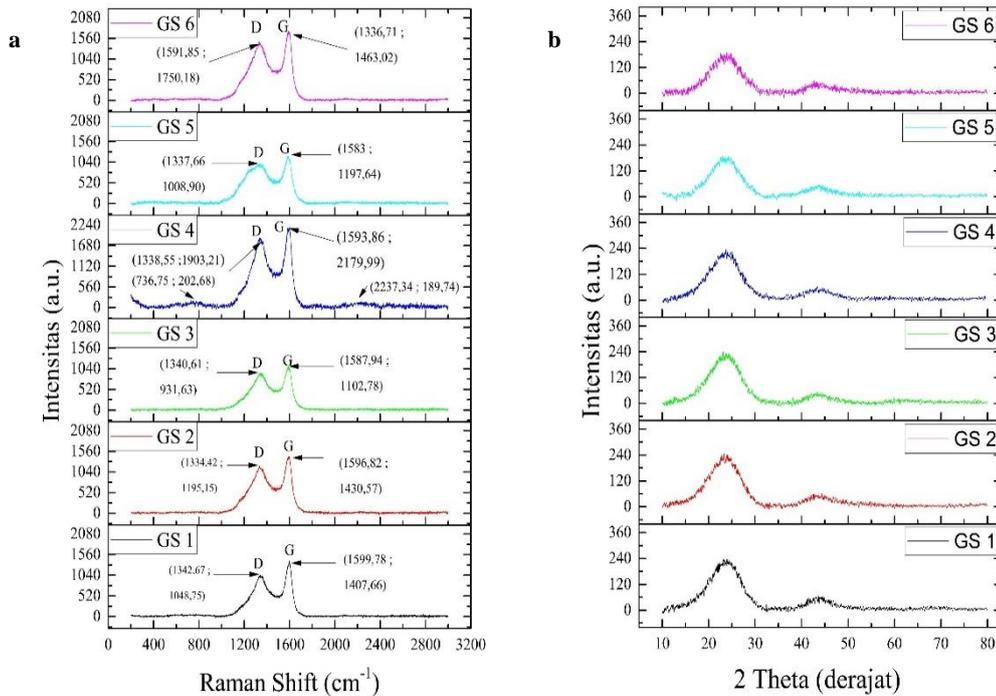
Gambar 8. Morfologi permukaan pada pembesaran 10000x pada a) GS 1 b) GS 2 c) GS 3 d) GS 4 e) GS 5 f) GS 6.

Gambar 6 dan Gambar 7 memperlihatkan morfologi permukaan seluruh sampel GS masih memiliki lapisan yang sangat banyak. Morfologi permukaan sampel GS terlihat kasar dan tidak teratur. Pada seluruh sampel, lapisan grafit mulai terkelupas, yang dapat terlihat dari garis putih pada permukaan sampel. Pada sampel GS 1 dan GS 2 dengan ukuran grafit yang lebih besar cenderung sulit terkelupas pada saat proses sonikasi. Sementara itu sampel GS dengan ukuran grafit lebih kecil terlihat memiliki lapisan karbon yang halus dan teratur. Pada seluruh sampel grafit terlihat banyaknya pori yang terbentuk yang disebabkan oleh proses sonikasi. Proses ini menciptakan pori untuk melakukan pengelupasan. Pada Gambar 8 terlihat inisiasi pengelupasan yang terlihat seperti garis putih dan masih menunjukkan hasil SEM dari sampel GS yang masih terlihat gelap. Lapisan yang tebal dan berwarna gelap ini memungkinkan sampel GS masih berbentuk grafit. Hal ini menunjukkan bahwa proses sonikasi belum dapat mengelupas lapisan grafit menjadi grafena secara baik [16].



Gambar 9. Spektrum FTIR sampel GS.

Gambar 9 menunjukkan hasil dari karakterisasi FTIR dari sampel GS. Ikatan C=C masih terdapat pada sampel GS1-GS6, hal ini menunjukan bahwa pada sampel tersebut belum terjadi pengelupasan dengan baik meskipun puncak dari C=C lebih tinggi dari sampel grafit [17]. Proses sonikasi belum bisa mensintesis grafena dengan baik karena puncak ikatan C=C yang masih rendah. Pada sampel GS1, GS3, dan GS4 terdapat gugus ikatan O-H. Hal ini mungkin berasal dari proses sonikasi yang menggunakan etanol sebagai media larutan untuk pengelupasan.

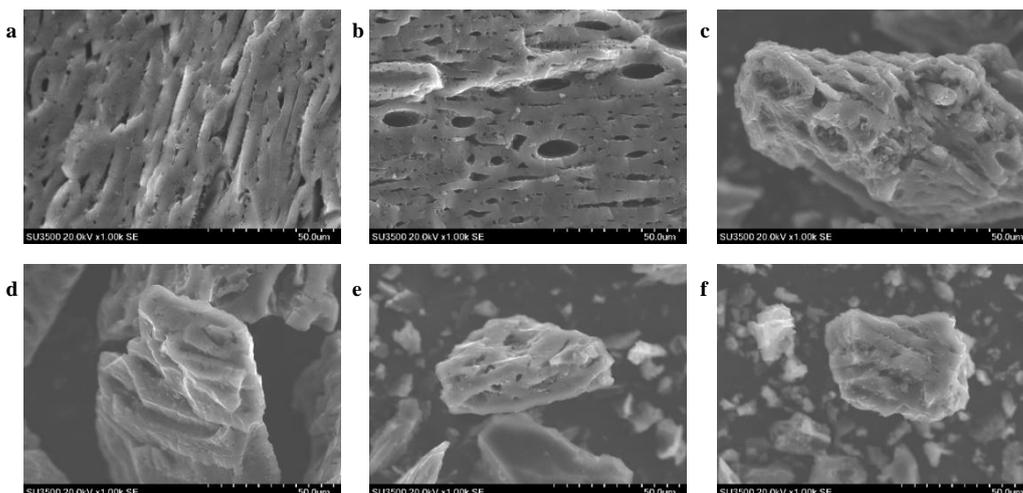


Gambar 10. a) Spektrum Raman dan b) XRD sampel GS.

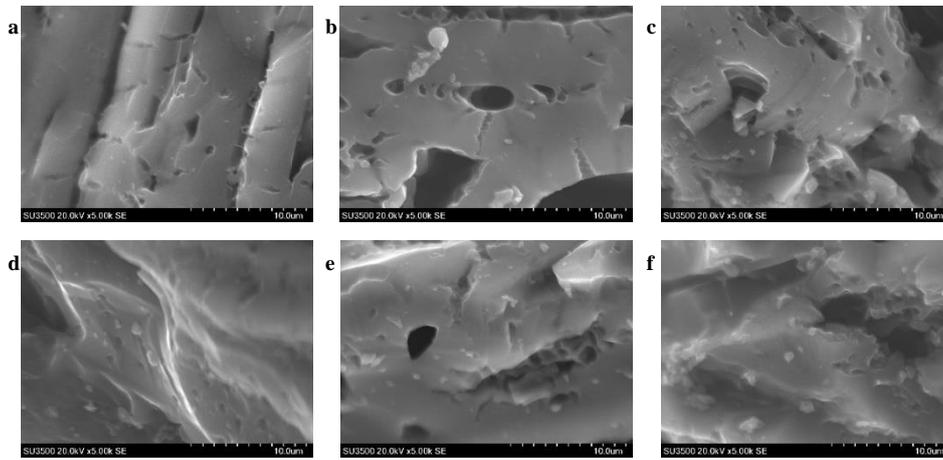
Berdasarkan karakterisasi spektroskopi Raman pada Gambar 10a menunjukkan bahwa GS 4 memiliki intensitas yang paling tinggi. Intensitas pada titik D mencapai 1903 cm⁻¹ dan titik G mencapai 2179 cm⁻¹. Intensitas spektrum Raman mengalami penurunan pada titik D dan G. Penurunan ini karena terjadi pengelupasan lapisan grafit menjadi grafena. Seluruh sampel terindikasi masih berbentuk grafit karena tidak terdeteksinya titik 2D pada Raman shift sekitar 2600-2700 cm⁻¹. Pada GS 4 terdapat titik 2D yang terbentuk, yaitu 2237 cm⁻¹. Menurut Ferrari, apabila titik 2D muncul pada 2200 – 2400 cm⁻¹, maka material tersebut adalah *high sp3 amorphous carbon* [18]. Material ini merupakan ikatan antar atom karbon yang tidak memiliki struktur yang *crystalline*.

Rasio intensitas antara titik D dan G bisa digunakan untuk membedakan antara grafit, grafena oksida dan reduced graphene oxide. Pada hasil spektroskopi Raman grafit komersial, titik G memiliki intensitas yang lebih besar jika dibandingkan dengan titik D. Pita G memiliki intensitas relatif yang lebih besar daripada pita D. Pada hasil spektroskopi Raman grafena oksida, titik G memiliki intensitas yang hampir sama dengan titik D. Titik G cenderung lebih tinggi dari titik D, sehingga rasio perbandingan iD/iG mendekati 1. Pada hasil spektroskopi Raman reduced graphene oxide, titik G memiliki intensitas yang lebih kecil dari titik D. Rasio perbandingan iD/iG reduced graphene oxide lebih dari 1 [19]. Pada semua GS yang telah disintesis berbentuk grafena oksida karena memiliki rasio iD/iG 0,75 sampai 0,87. Waktu sonikasi dapat mempengaruhi tinggi dari rasio iD/iG, apabila waktu sonikasi semakin lama maka rasio iD/iG semakin tinggi.

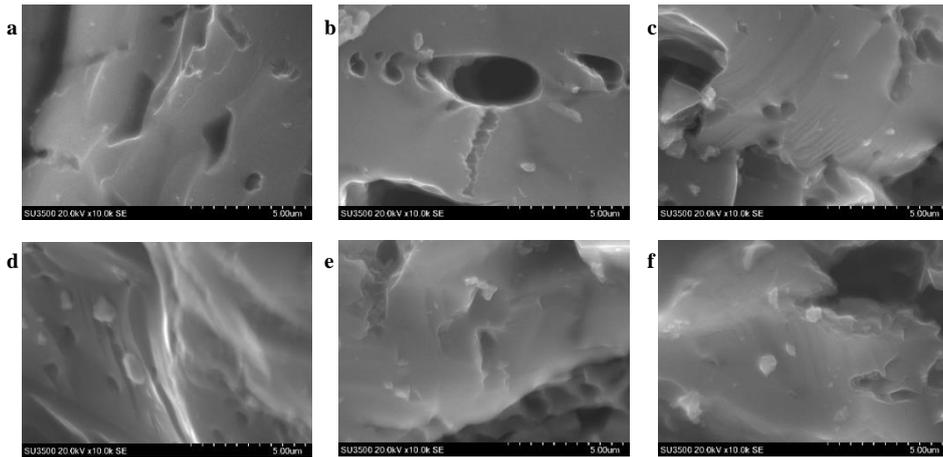
Gambar 10b menunjukkan bahwa disemua sampel GS tidak teridentifikasi kandungan grafena. Hal dapat dilihat dari puncak yang dihasilkan oleh sampel tidak sesuai dengan standar dari software HSP. Menurut literatur, puncak dari grafena berkisar pada 2 theta dari 20-26°, sedangkan untuk grafena oksida berkisar antara pada 2 Theta dari 24-26° [20]. Kandungan sampel GS teridentifikasi masih merupakan grafit sesuai dengan standar ICSD nomor 98-005-3780.



Gambar 11. Morfologi permukaan pada pembesaran 1.000x pada a) GH 1, b) GH 2, c) GH 3, d) GH 4, e) GH 5, f) GH 6.



Gambar 12. Morfologi permukaan pada pembesaran 5.000x pada a) GH 1, b) GH 2, c) GH 3, d) GH 4, e) GH 5, f) GH 6.

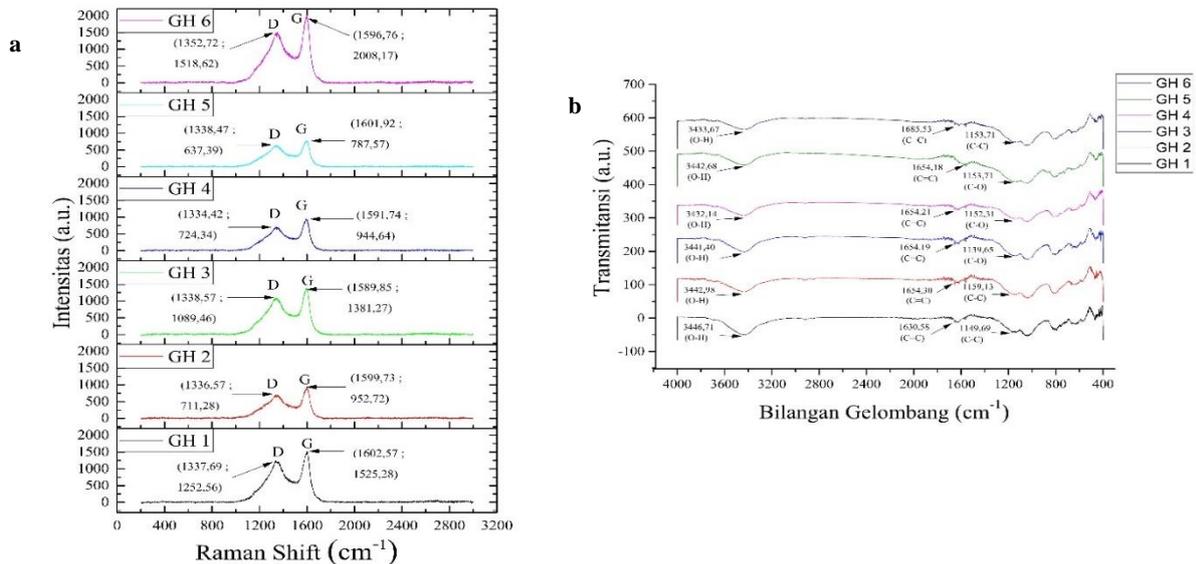


Gambar 13. Morfologi permukaan pada pembesaran 10.000x pada a) GH 1, b) GH 2, c) GH 3, d) GH 4, e) GH 5, f) GH 6.

Tabel 6. Rasio perbandingan iD/iG sampel GS sebelum dan sesudah proses hidrotermal.

iD/iG	1	2	3	4	5	6
GS	0,74	0,83	0,84	0,87	0,84	0,85
GH	0,82	0,74	0,78	0,84	0,81	0,75

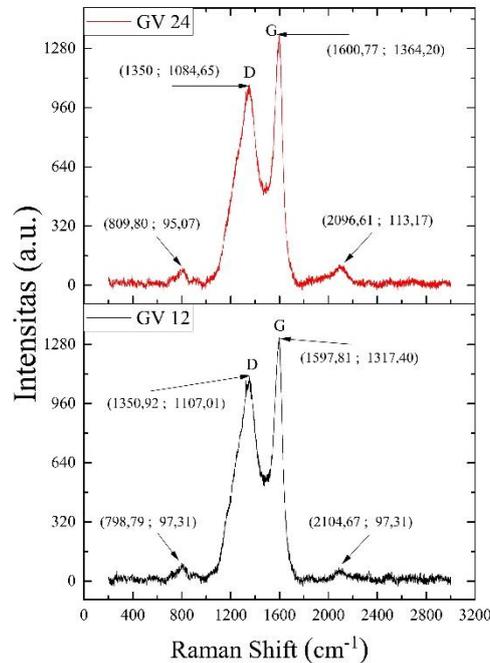
Gambar 11, Gambar 12, dan Gambar 13 menunjukkan hasil karakterisasi SEM pada Sampel GS yang telah melalui proses hidrotermal menggunakan gas N₂ (GH). Sampel GH memiliki sedikit pori jika dibandingkan dengan sampel GS yang terlihat pada Gambar 11 dan Gambar 12. Pada Gambar 12, sampel GH banyak lapisan yang sudah terkelupas jika dibandingkan dengan sampel GS yang memiliki banyak lapisan belum terkelupas disebabkan oleh proses sonikasi. Pada sampel GH, lapisan yang terbentuk mulai bewarna transparan jika dibandingkan dengan sampel GS yang ditunjukkan pada Gambar 13.



Gambar 14. a) Spektrum Raman dan b) FTIR sampel GH.

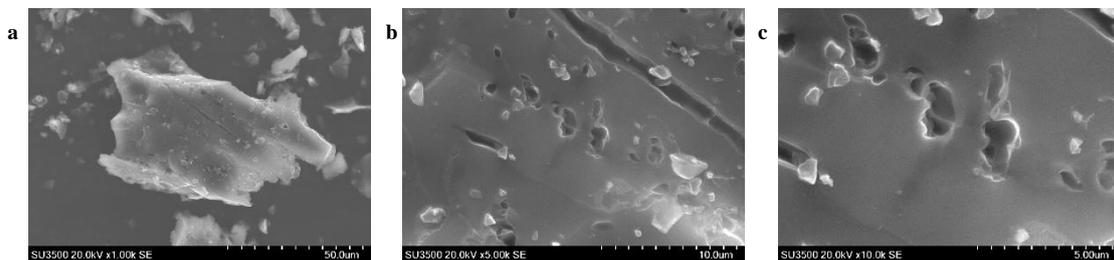
Berdasarkan Gambar 14a menunjukkan hasil dari karakterisasi spektroskopi Raman GH. Pada semua sampel GH mengalami penurunan intensitas pada titik D dan G. Penurunan ini berbanding lurus terhadap perbandingan rasio iD/iG sampel GS sebelum proses hidrotermal dengan grafena setelah proses hidrotermal. Pada semua sampel GH memiliki perbandingan rasio iD/iG 0,74 – 0,82, sehingga semua sampel GH masih berbentuk grafena oksida. Secara keseluruhan, semua sampel GH tidak berubah menjadi rGO dan tidak sesuai dengan literatur [19, 21].

Gambar 14b menunjukkan hasil karakterisasi FTIR pada sampel GH. Berdasarkan Gambar 14b, grafena oksida telah berhasil disintesis disetiap sampel GH. Hal ini ditunjukkan dengan ikatan O-H pada bilangan gelombang 3400–3450 cm^{-1} akibat dari sisa air pada proses hidrotermal dan ikatan C=C semakin kuat karena salah satu ikatan pada grafena yang dominan. Ikatan C-O semakin berkurang atau hilang menandakan unsur O yang tereduksi pada proses hidrotermal [22].

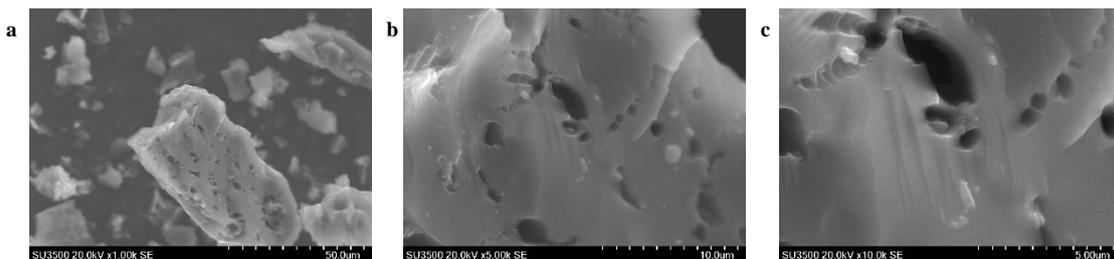


Gambar 15. Spektrum Raman sampel GV.

Gambar 15 menunjukkan hasil karakterisasi spektroskopi Raman pada sampel GV 12 dan GV 24. Rasio iD/iG pada sampel GV 12 dan GV 24 adalah 0,79 dan 0,84. Sampel GV ini belum berbentuk rGO karena memiliki rasio iD/iG yang masih di bawah 1 [19]. Rasio iD/iG ini semakin meningkat seiring dengan lamanya waktu hidrotermal. Pada kedua sampel terdeteksi titik pada + 800 cm^{-1} yang menandakan terdapat ikatan C-C yang lemah. Pada titik 2100 cm^{-1} terdeteksi bahwa terdapat *sp3 high amorphous carbon* [18].

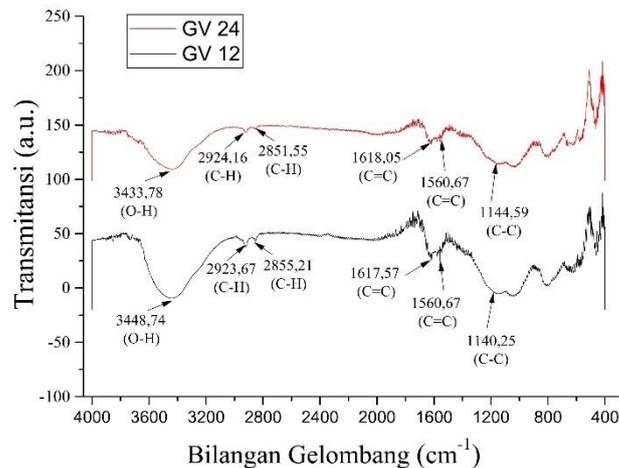


Gambar 16. Morfologi permukaan sampel GV 12 pada pembesaran a) 1000x, b) 5000x, dan c) 10000x.



Gambar 17. Morfologi permukaan sampel GV 24 pada pembesaran a) 1000x, b) 5000x, dan c) 10000x.

Gambar 16 dan 17 menunjukkan morfologi yang telah melalui proses hidrotermal tanpa injeksi N_2 . Pada kedua sampel terlihat masih banyak pori terlihat jelas pada Gambar 16b, 16c, 17b, dan 17c. Pori lebih sedikit jika dibandingkan dengan seluruh sampel GS tetapi lebih banyak jika dibandingkan dengan sampel GH 5. Pada Gambar 16b, Gambar 16c, Gambar 17b, dan Gambar 17c terlihat lapisan sudah mulai terkelupas jika dibandingkan dengan seluruh sampel GS. Seluruh sampel GV terlihat lebih transparan jika dibandingkan dengan sampel GS tetapi masih lebih transparan dibandingkan dengan sampel GH 5.



Gambar 18. Spektrum FTIR sampel GV.

Gambar 18 menunjukkan hasil karakterisasi FTIR pada sampel GV. Berdasarkan Gambar 18, grafena oksida telah berhasil disintesis disetiap sampel GV. Hal ini ditunjukkan dengan ikatan O-H pada bilangan gelombang 3400-3450 cm^{-1} akibat dari sisa air pada proses hidrotermal. Pada sampel GV 24 memiliki puncak ikatan O-H yang lebih tinggi jika dibandingkan sampel GV 12. Hal ini diakibatkan oleh semakin lama waktu tahan maka akan mengurangi ikatan O-H. Ikatan C=C semakin lemah seiring dengan lamanya waktu tahannya dan ikatan C-O sudah tidak terdeteksi pada sampel GV. Pada bilangan gelombang 2850–2950 cm^{-1} terdeteksi ikatan C-H yang merupakan pengotor [22].

4. Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan mengenai sintesis dan karakterisasi grafena oksida dari tempurung kelapa dengan metode sonikasi dan penambahan perlakuan hidrotermal, dapat disimpulkan bahwa grafit oksida telah disintesis menggunakan proses sonikasi dengan ukuran partikel +200#, -200# +230#, dan -230# serta waktu sonikasi selama 30 menit dan 60 menit. Berdasarkan karakterisasi SEM, grafit yang telah disonikasi memiliki morfologi permukaan berpori dan tebal. Hasil karakterisasi XRD, struktur kristal yang berbentuk heksagonal dengan indeks Miller pada setiap sampel adalah (003). Rasio iD/iG hasil dari karakterisasi spektroskopi Raman pada sampel GS 1, GS 2, GS 3, GS 4, GS 5, dan GS 6 adalah 0,74 ; 0,83 ; 0,84 ; 0,87 ; 0,84 dan 0,85. Pita vibrasi yang dihasilkan pada karakterisasi FTIR terdapat ikatan C=C sampel GS 1, GS 2, GS 3, GS 4, GS 5, dan GS 6 masing-masing adalah 1604,97 ; 1616,60 ; 1621,21 ; 1610,31 ; 1602,63 dan 1602,12 cm^{-1} .

Hasil yang paling optimal pada proses hidrotermal dengan gas adalah sampel GH 4 dengan ukuran partikel -200# +230# dan waktu sonikasi selama 60 menit. Berdasarkan karakterisasi SEM, morfologi permukaan yang paling transparan dan sedikit pori. Rasio iD/iG hasil dari karakterisasi spektroskopi Raman sebesar 0,84. Pita vibrasi yang dihasilkan pada karakterisasi FTIR terdapat ikatan O-H pada 3432,14 cm^{-1} , ikatan C=C pada 1654,61 cm^{-1} dan ikatan C-O pada 1152,31 cm^{-1} . Sedangkan, hasil yang paling optimal pada proses hidrotermal tanpa gas adalah sampel GV 24 dengan ukuran partikel -230#, proses sonikasi 30 menit dan waktu hidrotermal selama 24 jam. Berdasarkan karakterisasi SEM, morfologi permukaan yang transparan dan sedikit pori. Rasio iD/iG hasil dari karakterisasi spektroskopi Raman sebesar 0,84. Pita vibrasi yang dihasilkan pada karakterisasi FTIR terdapat ikatan O-H pada pita vibrasi 3433,78 cm^{-1} dan ikatan C=C pada pita vibrasi 1618,05 cm^{-1} dan 1560,67 cm^{-1} .

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Hendaryati, D. D., & Arianto, Y. (2016). *Statistik Perkebunan Indonesia: Tree Crop Estate Statistics of Indonesia*. Jakarta: Kementerian Pertanian Indonesia.
- [2] Kementerian Pertanian Indonesia. (2019). *Produksi Kelapa Menurut Provinsi di Indonesia, 2015-2019*. Jakarta: Kementerian Pertanian Republik Indonesia.
- [3] International Labour Organization (ILO). (2013). *Kajian Kelapa dengan Pendekatan Rantai Nilai dan Iklim Usaha di Kabupaten Sarmi*. Diakses dari: <http://bit.ly/KajianKelapa>. Diakses pada tanggal 1 Juni 2020 pukul 11.00 WIB.
- [4] Arfadiani, D., & Larasati, D. (2013). Pemanfaatan limbah tempurung kelapa muda melalui pengembangan desain produk alat makan. *Jurnal Tingkat Sarjana Seni Rupa dan Desain*, vol. 2, no. 1, pp. 1–8.
- [5] Inagaki, M., & Kang, F. (2014). *Materials Science and Engineering of Carbon: Fundamentals, 2nd Edition*. Oxford: Butterworth-Heinemann.
- [6] Allen, C. S., & Warner, J. H. (2013). *Properties of Graphene - Electronic properties in Graphene: Fundamentals and Emergent Applications*, pp. 61–127. Oxford: Elsevier Inc.
- [7] Gerasimov, G. (2019). *Graphene-Based Gas Sensors - in Advanced Environmental Analysis: Applications of Nanomaterials Volume 2*. C. M. Hussain and B. Karishov, Eds. The Royal Society of Chemistry.
- [8] Bhuyan, M. S. A., Uddin, M. N., Islam, M. M., Bipasha, F. A., & Hossain, S. S. (2016). Synthesis of graphene. *Int. Nano Lett.*, vol. 6, no. 2, pp. 65–83.
- [9] Vinanza, N. E. (2018). *Sintesis dan Karakterisasi Grafena Berbasis Arang Tempurung Kelapa*. Serang: Universitas Sultan Ageng Tirtayasa.
- [10] Ling, L. J., Yee, C. S., & Jaafar, M. (2016). Effect of the sonication time on the properties of multilayer graphene. *Proceeding of the 3rd International Conference of Global Network for Innovative Technology 2016 (3rd IGNITE-2016)*, AIP Proceeding, pp. 020004-1 – 020004-6.
- [11] Demirbas, A., (2004). Relationships between carbonization temperature and pyrolysis product from biomass. *Energy Exploration & Exploitation*, vol. 22, no. 6, pp. 411-420.

- [12] Gómez, D. A., Coello, J., & MasPOCH, S. (2019). The influence of particle size on the intensity and reproducibility of Raman spectra of compacted samples. *Vib. Spectrosc.*, vol. 100, no. October 2018, pp. 48–56.
- [13] Malard, L. M., Pimenta, M. A., Dresselhaus, G., & Dresselhaus, M. S. (2009). Raman spectroscopy in graphene. *Phys. Rep.*, vol. 473, No. 5–6, pp. 51–87.
- [14] Shao, G., Lu Y., Wu, F., Yang, C., Zeng, F., & Wu, Q. (2012). Graphene oxide: the mechanisms of oxidation and exfoliation. *J. Mater. Sci.*, pp. 4400–4409.
- [15] Balogun, A. O., Lasode, A., Li, H., & McDonald, G. (2015). Fourier Transform Infrared (FTIR) study and thermal decomposition kinetics of sorghum bicolor glume and albizia pedicellaris residues. *Waste and Biomass Valorization*, vol. 6, No. 1, pp. 109–116.
- [16] Fathia, A. (2018). *Sintesis dan Karakterisasi Graphene Oxide Terkombinasi Nanopartikel Perak dalam Fase Cair*. Yogyakarta: Universitas Negeri Yogyakarta.
- [17] Alam, S. N., Sharma, N., & Kumar, L., (2017). Synthesis of Graphene Oxide (GO) by modified Hummers method and its thermal reduction to obtain Reduced Graphene Oxide (RGO). *Graphene*, pp. 1–18.
- [18] Ferrari, A. C., (2007). Raman spectroscopy of graphene and graphite: Disorder, electron – phonon coupling, doping and nonadiabatic effects. vol. 143, pp. 47–57.
- [19] Calderon-Ayala, G. *et al.* (2017). Green synthesis of reduced graphene oxide using ball milling. *Carbon Lett.*, vol. 21, pp. 93–97.
- [20] Stengl, V., (2012). Preparation of graphene by using an intense cavitation field in a pressurized ultrasonic reactor. *Chem. A Eur. J.*, pp. 1–9.
- [21] Mei, X., Meng, X., & Wu, F., (2015). Hydrothermal method for the production of reduced graphene oxide GO colloidal solution GO lamellar solid sample for conductivity test. *Phys. E Low-dimensional syst. nanostructures*, vol. 68, pp. 81–86.
- [22] Junaidi, M. & Susanti, D. (2014). Pengaruh variasi waktu ultrasonikasi dan waktu tahan *hydrothermal* terhadap struktur dan konduktivitas listrik material graphene. *J. Tek. POMITS*, vol. 3, no. 1, pp. F13-F18.