



## Sintesis dan Karakterisasi CuO/rGO

M. Sifal Maulana<sup>1\*</sup>, Kapti Riyani<sup>1</sup>, dan Tien Setyaningtyas<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Program Studi Kimia, FMIPA, Universitas Jenderal Soedirman, Jl. Dr. Soeparno, Karangwangkal,  
Purwokerto, Jawa Tengah 53123

\*E-mail : msifal.maulana@mhs.unsoed.ac.id

### Abstract

Semiconductor material is a material that is widely used in the chemical industry, especially as a photocatalyst. CuO is a semiconductor material that is active in the visible light range. Semiconductor materials can undergo recombination, rGO was used as a composite material into CuO to reduce recombination in this study. This study aims to look at the characteristics of the synthesized CuO/rGO. The processes performed include synthesis of CuO/rGO and characterization of CuO/rGO. The XRD results show the peaks of the diffractogram indicating of rGO peaks interpreted (002), peaks at (110), (-111), (111), (-202), (020), (202), (-113), (-331), (220), (311) and (004) indicate the monoclinic phase of CuO has been formed. FTIR results indicating Cu-OH absorption show peak at wave numbers  $3441.0\text{ cm}^{-1}$  and  $894.97\text{ cm}^{-1}$ , O-C-O vibrations present in CuO/rGO indicating adsorption at  $2360.8\text{ cm}^{-1}$ ,  $1975.1$  and  $1512.1\text{ cm}^{-1}$  appears due to the C=C stretching vibrations in the rGO layer,  $1033.8\text{ cm}^{-1}$  absorbs C-O stretching vibrations and  $609.51$  and  $439.77\text{ cm}^{-1}$  have relative peaks indicating Cu-O stretching vibrations. The DRS results show that CuO/rGO has band gap value of 1.54 eV.

**Keywords:** Semiconductor; CuO; rGO; CuO/rGO

### Pendahuluan

Reaksi kimia memiliki ciri khas dan keunikannya tersendiri, salah satu reaksi kimia yang terjadi karena adanya material katalis padat yang diaktivasi oleh cahaya matahari terutama oleh energi foton secara umum merupakan definisi dari Fotokatalis. Salah satu material yang memiliki kemampuan fotokatalitik adalah material semikonduktor.

Suatu material yang memiliki daya hambat elektrik antara isolator dengan konduktor dan biasanya dicirikan dengan struktur pita elektron disebut material semikonduktor. Celah pita yang dimiliki oleh material semikonduktor berkisar antara 0,5 – 5,0 eV. Pita konduksi (C) bertindak sebagai pita dengan energi tertinggi dan pita valensi (V) merupakan pita energi terendah yang terisi elektron yang keduanya dipisahkan oleh celah pita (*band gap*) (Kaneko & Okura, 2002). Pencahayaan sinar UV pada panjang gelombang kurang dari 405 nm akan membantu material semikonduktor untuk aktif serta bertransformasi menjadi materia yang memiliki kemampuan tinggi dalam mendegradasi senyawa-senyawa organik (Henderson, 2011).

Tembaga (II) oksida (CuO) adalah material semikonduktor yang potensial serta ramah lingkungan dan memiliki aktivitas fotokatalisis yang baik yang dapat digunakan sebagai bahan pendegradasi zat warna. Tembaga (II) oksida (CuO) adalah semi konduktor tipe-p dengan celah pita sempit yang banyak digunakan dalam katalisis, pertukaran ion dan perawatan lingkungan (Zhu *et al.*, 2013).

Kemampuan fotokatalitik dari material semikonduktor dapat berkurang efektivitasnya yang disebabkan oleh adanya rekombinasi elektron dengan *hole*. *Hole* merupakan lubang positif yang ditinggalkan oleh elektron yang tereksitasi. Energi foton dengan nilai energi  $h\nu$  sesuai atau lebih besar dari energi *band gap* maka secara otomatis elektron pada pita valensi akan berpindah menuju tingkat energi yang lebih tinggi di pita konduksi dan menghasilkan lubang positif pada pita valensi. Adanya kemungkinan rekombinasi *electron-hole* menyebabkan efektivitas fotokatalitik semikonduktor menurun. Telah banyak penelitian yang dilakukan untuk mengurangi rekombinasi yang terjadi, salah satu yang dapat dilakukan adalah dengan cara modifikasi permukaan semikonduktor.

Salah satu cara modifikasi semikonduktor untuk mengurangi rekombinasi yang terjadi adalah dengan penambahan *Reduced Graphene Oxide* (rGO). *Reduced Graphene Oxide* (rGO) merupakan salah satu alotrop karbon dalam kerangka dua dimensi yang dapat disintesis dari berbagai macam sumber karbon. Sumber karbon alami sangat melimpah, namun pada penelitian ini sumber karbon yang digunakan berasal dari karbon pada baterai bekas. Limbah baterai yang ada merupakan limbah B3 (Bahan Beracun dan Berbahaya) yang dapat menyebabkan kerusakan lingkungan jika tidak dilakukan pengolahan kembali dengan baik (Gifron *et al.*, 2018). Penggunaan karbon pada



baterai bekas sebagai sumber utama pembuatan rGO dapat menjadi solusi alternatif untuk mengurangi permasalahan lingkungan.

Pita konduksi yang merupakan orbital d pada CuO dan orbital  $\pi$  pada rGO memiliki tingkat energi yang setara sehingga dapat mengurangi efek rekombinasi. Interaksi ikatan kimia membentuk orbital elektron d- $\pi$  yang tumpang tindih sehingga elektron yang tereksitasi dapat terjadi secara berulang. Elektron ditransfer ke permukaan rGO akan bereaksi dengan oksigen dan air menghasilkan OH radikal untuk mengoksidasi polutan organik. rGO yang memiliki kemampuan adsorpsi akan menyerap polutan organik menuju permukaannya sehingga membantu proses degradasi (Pratama *et al.*, 2021).

## Metode Penelitian

### 1. Bahan dan Alat

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini diantaranya  $H_2SO_4$  (Merck),  $H_3PO_4$  (Merck),  $KMnO_4$  (Merck),  $H_2O_2$  30% (Merck),  $Cu(NO_3)_2$  (Merck), Zn (Merck), HCl 37% (Merck), etanol (Merck), aquades dan aqua DM. Mortar dan alu, saringan, *magnetic stirrer*, *hot plate*, *oven*, sonikator, timbangan digital, XRD, spektrometer FTIR, spektrometer DRS dan alat-alat gelas merupakan sejumlah alat yang digunakan dalam penelitian ini.

### 2. Sintesis Graphene Oxide (GO) (Pratama *et al.*, 2021)

Sampel grafit yang digunakan untuk sintesis *Graphene Oxide* (GO) adalah grafit yang berasal dari baterai bekas. Grafit terlebih dahulu dihaluskan menggunakan mortar dan alu sebelum digunakan yang bertujuan untuk memperluas permukaan.

Metode Hummer termodifikasi digunakan untuk sintesis GO. Sebanyak 2 gram sampel grafit halus dimasukkan ke dalam 40 mL larutan campuran  $H_2SO_4/H_3PO_4$  (dengan perbandingan 9:1).  $KMnO_4$  sejumlah 6 gram juga ditambahkan ke dalam larutan secara perlahan, selama penambahan  $KMnO_4$  suhu diatur dibawah  $10^\circ C$ . Campuran selanjutnya diaduk menggunakan *magnetic stirrer* sembari dipanaskan pada  $50^\circ C$ , kemudian diencerkan dengan aqua demineral. Hidrogen peroksida 30% ditambahkan ke dalam larutan untuk menghentikan proses oksidasi. Penambahan hidrogen peroksida ke dalam larutan akan mengubah warna larutan menjadi hijau kekuningan dengan munculnya gelembung yang menandakan telah terhentinya proses oksidasi. Larutan disaring dan dibilas menggunakan aqua demineral sampai pH mendekati 7, kemudian endapan dikeringkan pada suhu  $60^\circ C$  selama 12 jam dengan oven sehingga didapatkanlah *Graphene Oxide* (GO).

### 3. Sintesis Tembaga (II) Oksida/Reduced Graphene Oxide (CuO/rGO) (Rai *et al.*, 2019)

Sintesis CuO/rGO dilakukan dengan memodifikasi metode Rai. GO yang telah disintesis sebelumnya ditimbang sebanyak 0,5 gram dan dilarutkan ke dalam 250 mL aquades sambil disonikasi selama 1 jam untuk pembentukan dispersi.  $Cu(NO_3)_2$  ditambahkan sebanyak 1,5 gram dan kemudian terus diaduk selama 1 jam dengan *magnetic stirrer*. Sebanyak 4 gram serbuk Zn dan 10 mL HCl 37% secara bertahap ditambahkan ke dalam dispersi sembari terus diaduk pada suhu  $90^\circ C$  selama 1 jam sampai larutan berwarna coklat tua dan terbentuk endapan. Endapan coklat gelap disaring dan dicuci dengan air dan etanol secukupnya kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu  $50^\circ C$  selama 8 jam.

### 4. Karakterisasi Tembaga (II) Oksida/Reduced Graphene Oxide (CuO/rGO)

Tembaga (II) Oksida/Reduced *Graphene Oxide* (CuO/rGO) yang diperoleh dikarakterisasi dengan *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (Spektroskopi FTIR), *X-ray Diffractometer* (XRD) serta *Diffuse Reflectance Spectroscopy* (DRS).

## Hasil dan Pembahasan

### 1. Sintesis Graphene Oxide (GO)

Grafit pada baterai bekas dikumpulkan sebagai sumber utama pembuatan *Graphene Oxide* (GO). Grafit terlebih dahulu dihaluskan menggunakan mortar dan alu sebelum digunakan, hal tersebut ditujukan untuk memperluas permukaan partikel grafit.

Grafit ditimbang sebanyak 2 gram kemudian dilarutkan dalam 40 mL larutan campuran  $H_2SO_4/H_3PO_4$  (dengan perbandingan 9:1) secara perlahan sambil diaduk perlahan untuk menghilangkan sisa-sisa ion logam pada grafit karena ion-ion logam cenderung mudah terlarut di dalam asam pekat. Larutan disimpan dalam penangas es sampai suhu larutan turun berkisar antara  $10 - 15^\circ C$ , kemudian 6 gram  $KMnO_4$  ditambahkan secara perlahan sambil diaduk secara perlahan. Suhu diatur antara  $10 - 15^\circ C$  untuk mencegah terjadinya reaksi eksoterm yang berlebihan yang dapat mengakibatkan ledakan jika berada pada suhu di atas  $55^\circ C$ , reaksi ini menghasilkan  $Mn_2O_7$  yang merupakan senyawa yang reaktif (Pratama *et al.*, 2021).  $KMnO_4$  akan mengoksidasi grafit menjadi GO serta membuat suspensi menjadi lebih mengental dan warnanya menjadi semakin pekat.

Suspensi diaduk menggunakan *magnetic stirrer* pada suhu  $50^\circ C$  selama 40 menit agar suspensi homogen dan oksidasi terjadi secara sempurna. Proses oksidasi dihentikan dengan ditambahkannya  $H_2O_2$  30% secara perlahan ke dalam suspensi.  $H_2O_2$  akan bereaksi dengan  $KMnO_4$  menghasilkan  $MnO_2$ ,  $O_2$ , dan  $H_2O$ . Perubahan yang menandakan

proses oksidasi telah berhenti yang ditandai dengan munculnya buih–buih kecil  $O_2$  dan larutan berubah warna dari hitam pekat menjadi kuning kehijauan. Reaksi yang terjadi adalah sebagai berikut:

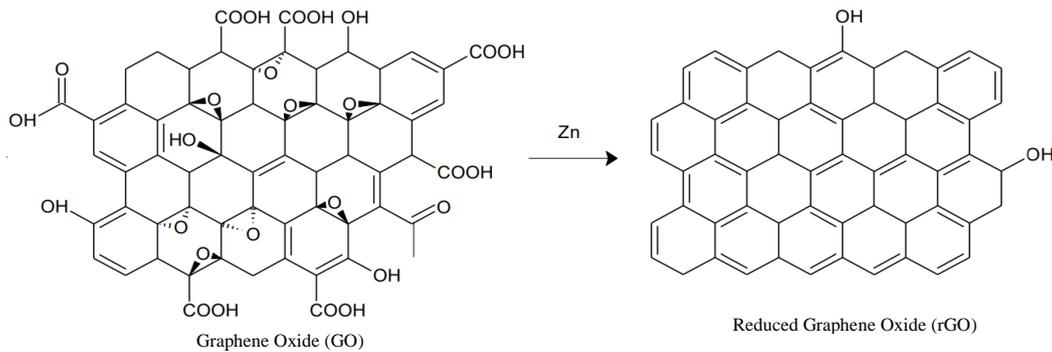


(Kusiak-Nejman *et al.*, 2020)

Larutan disaring untuk memisahkan residu dan filtrat, residu dicuci menggunakan aqua demineral sampai mendekati pH 7. Residu GO dikeringkan dalam oven pada suhu  $60^\circ C$  selama 12 jam.

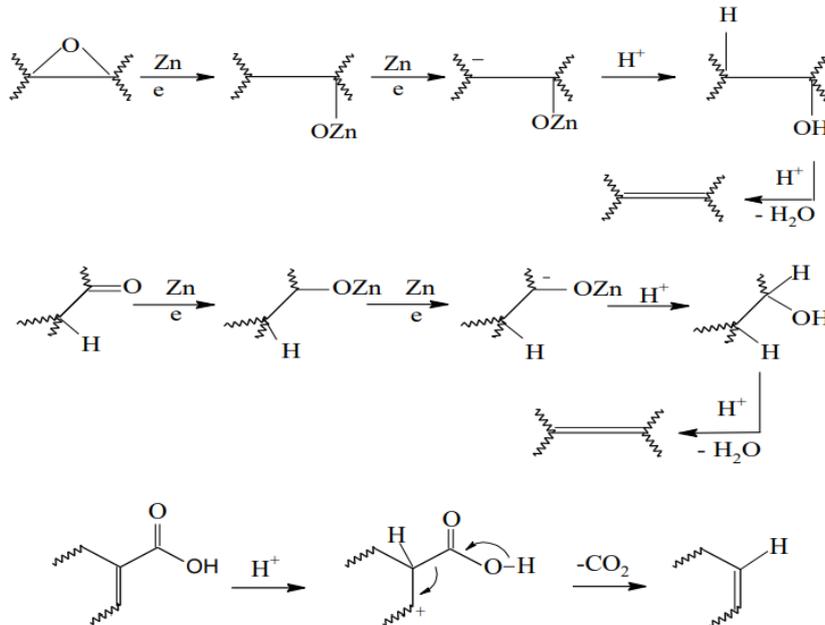
## 2. Sintesis Tembaga (II) Okida/Reduced Graphene Oxide (CuO/rGO)

GO yang telah disintesis pada tahap sebelumnya ditimbang sebanyak 0,5 gram kemudian dilarutkan dalam 250 mL aquades dan disonikasi selama 1 jam untuk membentuk dispersi. Sebanyak 1,5 gram  $Cu(NO_3)_2$  dimasukkan kedalam campuran seiring pengadukan dengan *magnetic stirrer* selama 1 jam. Zn sebanyak 4 gram dan 10 mL HCl 37% dimasukkan kedalam campuran sambil terus diaduk dan suhu diatur pada  $90^\circ C$ . Suhu dinaikkan untuk mendekomposisi  $Cu(NO_3)_2$  menjadi CuO. Zn dalam reaksi ini berfungsi untuk mereduksi GO dan mengembalikan cacat struktural pada kisi karbon dengan mengembalikan konjugasi  $\pi$  serta untuk menghilangkan gugus fungsi yang terbentuk pada tahapan sebelumnya (Taufantri *et al.*, 2016).



**Gambar 1.** Reduksi GO menjadi rGO Menggunakan Reduktor Zn (Taufantri *et al.*, 2016).

Gugus fungsi seperti epoksi akan membentuk gugus hidroksi akibat reaksi Zn dengan HCl. Gugus hidroksi juga dihasilkan pada saat reduksi gugus karbonil. Adanya gugus hidroksi pada kondisi asam menyebabkan terlepasnya hidrogen dan menghasilkan olefin (Taufantri *et al.*, 2016). Mekanisme reaksi reduksi GO oleh Zn ditampilkan pada Gambar 2.



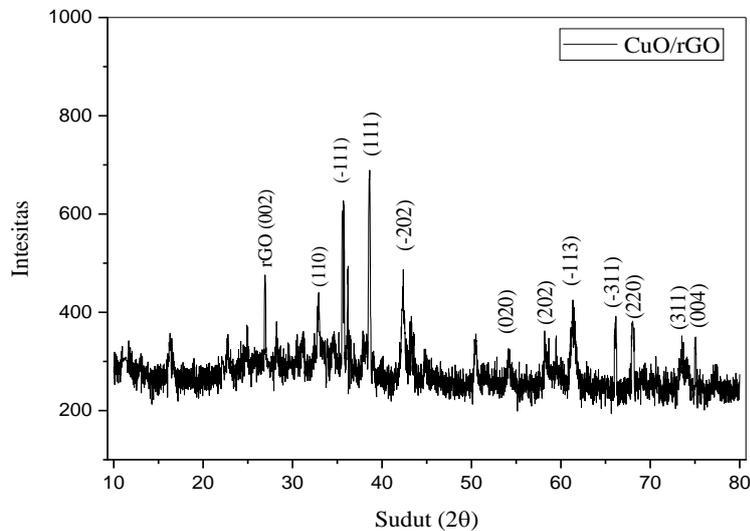
**Gambar 2.** Mekanisme Reduksi GO oleh Zn (Taufantri *et al.*, 2016).

Campuran disaring untuk memisahkan residu dan filtrat. Residu yang terbentuk dicuci menggunakan aquades dan etanol kemudian dikeringkan pada suhu 50°C selama 6 jam menggunakan oven untuk menghasilkan CuO/rGO yang berwarna coklat kehitaman.

### 3. Karakterisasi Tembaga (II) Okida/Reduced Graphene Oxide (CuO/rGO)

#### a. Karakterisasi X-Ray Diffraction (XRD)

Sampel CuO/rGO yang sebelumnya telah berhasil disintesis selanjutnya dikarakterisasi untuk mengetahui fase kristal yang terbentuk menggunakan XRD melalui difraktogram dengan munculnya puncak-puncak sudut difraksi  $2\theta$  yang spesifik. Pola difraktogram XRD dari CuO/rGO dapat dilihat pada Gambar 3.



Gambar 3. Difraktogram XRD CuO/rGO

Pola difraktogram (Gambar 3) sudut difraksi  $2\theta$  26,98° yang diinterpretasikan dengan (002) menunjukkan adanya puncak rGO, hal tersebut menandakan GO yang digunakan telah tereduksi menjadi rGO (Rai *et al.*, 2019). Sudut difraksi  $2\theta$  32,91° (110); 36,11° (-111); 38,28° (111); 42,34° (-202); 54,14° (020); 58,18° (202); 61,34° (-113); 66,16° (-311); 68,06° (220); 73,52° (311) dan 75,06° (004) merupakan puncak XRD paling intens yang menandakan telah terbentuknya CuO pada fase monoklinik (Rai *et al.*, 2019; Sagadevan *et al.*, 2021).

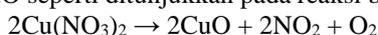
Pola difraktogram pada hasil XRD tersebut mengindikasikan bahwasannya GO telah tereduksi menjadi rGO dan  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  telah terdekomposisi menjadi CuO. Berdasarkan hasil tersebut maka dapat disimpulkan bahwa CuO/rGO telah berhasil disintesis.

#### b. Karakterisasi Fourier Transform Infra-Red (FTIR)

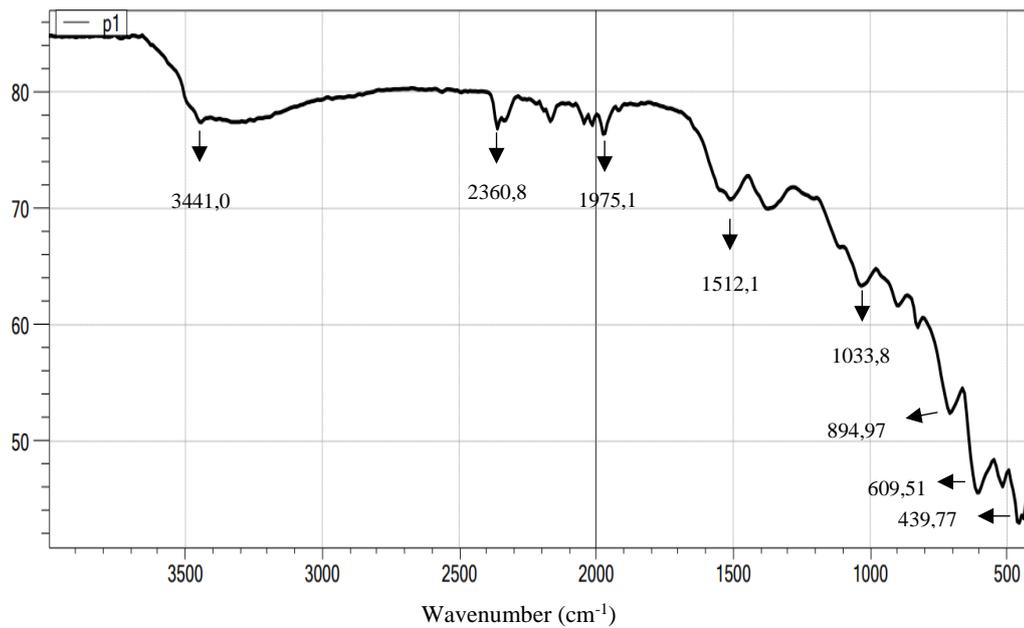
CuO/rGO yang telah berhasil disintesis pada tahap sebelumnya kemudian dikarakterisasi menggunakan spektrometer FTIR untuk mengetahui gugus fungsi yang terkandung dalam komposit yang telah dibuat.

Spektrum FTIR (Gambar 4) yang diperoleh terdapat serapan vibrasi pada bilangan gelombang 3441,0  $\text{cm}^{-1}$  yang menandakan adanya gugus O-H, bilangan gelombang 894,97  $\text{cm}^{-1}$  mengindikasikan adanya serapan Cu-OH, sehingga gugus O-H yang muncul dapat diidentifikasi terdapat dalam lapisan Cu-OH (Rai *et al.*, 2019). Serapan vibrasi pada bilangan gelombang 2360,8  $\text{cm}^{-1}$  menandakan adanya vibrasi O-C-O yang terindikasi terdapat dalam CuO/rGO (Rai *et al.*, 2019). Bilangan gelombang 1975,1 dan 1512,1  $\text{cm}^{-1}$  muncul akibat adanya vibrasi ulur C=C pada lapisan rGO (Rai *et al.*, 2019; Sagadevan *et al.*, 2021). Serapan vibrasi ulur C-O ditunjukkan dengan munculnya puncak pada bilangan gelombang 1033,8  $\text{cm}^{-1}$  (Sagadevan *et al.*, 2021; Lohar *et al.*, 2021). Pada bilangan gelombang 609,51 dan 439,77  $\text{cm}^{-1}$  terdapat puncak relatif yang mengindikasikan adanya vibrasi ulur Cu-O yang mengindikasikan CuO telah berhasil terbentuk (Sagadevan *et al.*, 2021; Lohar *et al.*, 2021).

Puncak-puncak pada spektrum FTIR menunjukkan minimnya gugus fungsi yang terdapat pada GO seperti C=O yang mengindikasikan bahwasannya GO telah tereduksi menjadi rGO dan  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  telah terdekomposisi menjadi CuO seperti ditunjukkan pada reaksi berikut.



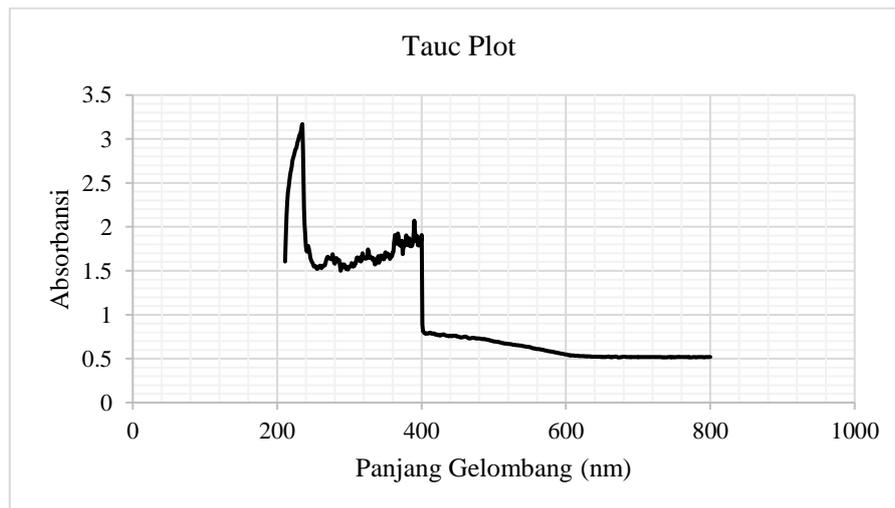
Berdasarkan hasil tersebut maka dapat disimpulkan bahwa CuO/rGO telah berhasil disintesis.



Gambar 4. Spektrum FTIR CuO/rGO

c. Karakterisasi *Diffuse Reflectance Spectroscopy (DRS)*

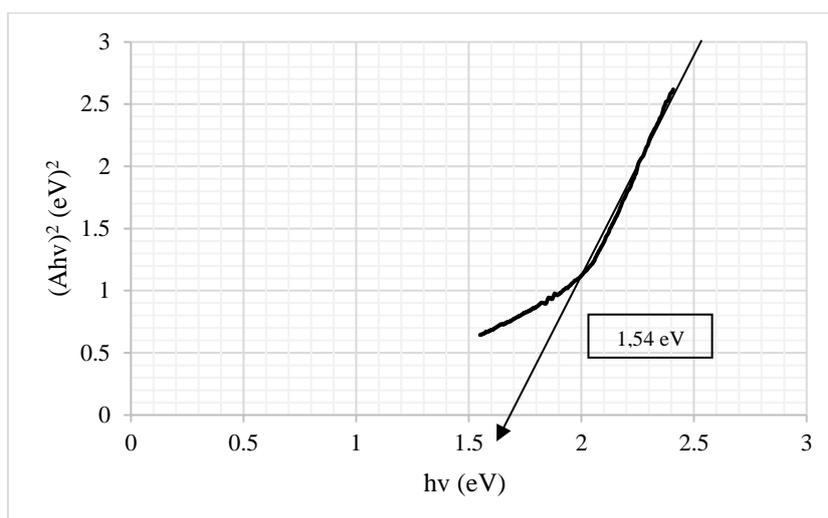
CuO/rGO yang telah berhasil disintesis pada tahap sebelumnya kemudian dikarakterisasi menggunakan DRS untuk mengetahui besar energi celah pita dalam komposit yang telah dibuat. Spektrum DRS dari CuO/rGO menghubungkan antara panjang gelombang dengan absorbansi dapat dilihat pada Gambar 5.



Gambar 5. Spektrum DRS CuO/rGO Tauc Plot

Spektrum yang telah didapat kemudian dilakukan perhitungan dengan menggunakan metode Tauc Plot dimana energi *band gap* CuO/rGO diperoleh dari grafik hubungan antara  $h\nu$  dan  $(A\nu)^2$  yang dapat dilihat pada Gambar 5.

Spektrum DRS (Gambar 6) yang diperoleh didapatkan energi *band gap* CuO/rGO sebesar 1,54 eV berdasarkan Tauc Plot. Energi *band gap* akan memberikan kemampuan CuO/rGO untuk menyerap cahaya pada energi yang lebih rendah atau panjang gelombang yang lebih besar. Energi *band gap* yang semakin kecil dapat meningkatkan aktifitas CuO/rGO karena energi yang dibutuhkan untuk mengeksitasi elektron dari pita valensi ke pita konduksi lebih kecil (Jumardin *et al.*, 2022).



**Gambar 6.** Grafik Perhitungan Tauc Plot untuk CuO/rGO

## Kesimpulan

Sintesis CuO/rGO dilakukan melalui 2 tahapan yaitu sintesis GO dari karbon yang berasal dari baterai bekas yang dioksidasi menggunakan  $\text{KMnO}_4$  dalam suasana asam dan sintesis CuO/rGO dari GO dan  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$  dengan pengaruh suhu dan reduktor Zn. Karakterisasi menggunakan XRD, FTIR dan DRS menunjukkan telah terbentuknya CuO/rGO pada fase monoklinik dengan energi celah pita sebesar 1,54 eV.

## Daftar Notasi

% = persen  
° = derajat  
mL = *mili liter*  
cm = *centi meter*

## Daftar Pustaka

- Gifron, M., Agustina, N., & Wela, D. (2018). Pengolahan Limbah Kulit Durian dan Baterai Bekas Menjadi Salah Satu Sumber Energi Listrik yang Ramah Lingkungan. *Al-Fiziya: Journal of Materials Science, Geophysics, Instrumentation and Theoretical Physics*, 1(1).
- Henderson, M. A. (2011). A Surface Science Perspective on  $\text{TiO}_2$  Photocatalysis. *Surface Science Reports*, 66(6–7), 185–297.
- Jumardin, Maddu, A., Santoso, K., & Isaeni. (2022). Karakteristik Sifat Optik Nano-Partikel Karbon (Carbon Dots) dengan Metode UV-Vis DRS (Ultra Violet-Visible Diffuse Reflectance Spectroscopy). *Jurnal Fisika Dan Terapannya*, 9(1), 1–15.
- Kusiak-Nejman, E., Wanag, A., Kapica-Kozar, J., Kowalczyk, Ł., Zgrzebnicki, M., Tryba, B., Przepiórski, J., & Morawski, A. W. (2020). Methylene Blue Decomposition on  $\text{TiO}_2$ /Reduced Graphene Oxide Hybrid Photocatalysts Obtained by a Two-step Hydrothermal and Calcination Synthesis. *Catalysis Today*, 357, 630–637.
- Lohar, G. M., Pore, O. C., & Fulari, A. V. (2021). Electrochemical Behavior of CuO/rGO Nanopellets for Flexible Supercapacitor, Non-Enzymatic Glucose, and  $\text{H}_2\text{O}_2$  Sensing Application. *Ceramics International*, 47(12), 16674–16687.
- Pratama, A., Destiarti, L., & Adhitiyawardana, A. (2021). Sintesis Titanium Oksida/Reduced Graphene Oxide ( $\text{TiO}_2$ /rGO) untuk Fotokatalisis Bahan Pewarna Metilen Biru. *Positron*, 11(1), 31–37.
- Rai, S., Bhujel, R., Biswas, J., & Swain, B. P. (2019). Effect of Electrolyte on The Supercapacitive Behaviour of Copper Oxide/Reduced Graphene Oxide Nanocomposite. *Ceramics International*, 45(11), 14136–14145.
- Sagadevan, S., Lett, J. A., Weldegebrieal, G. K., Garg, S., & Oh, W. (2021). Enhanced Photocatalytic Activity of rGO-CuO Nanocomposites for the Degradation of Organic Pollutants. *Catalysts*, 11, 1–13.
- Taufantri, Y., Irdhawati, I., & Asih, I. A. R. A. (2016). Sintesis dan Karakterisasi Grafena dengan Metode Reduksi Grafit Oksida Menggunakan Pereduksi Zn. *Jurnal Kimia VALENSI*, 2(1), 17–23.
- Zhu, M., Meng, D., Wang, C., Di, J., & Diao, G. (2013). Degradation of Methylene Blue with  $\text{H}_2\text{O}_2$  Over a Cupric Oxide Nanosheet Catalyst. *Chinese Journal of Catalysis*, 34(11), 2125–2129.