

Fisika

**LAPORAN PENELITIAN
HIBAH BERSAING**



**FABRIKASI SUPERKAPASITOR DENGAN SIFAT-SIFAT KAPASITIF
TINGGI MELALUI PENINGKATAN ANTARMUKA PIRANTI
MENGUNAKAN NANOPARTIKEL LOGAM**

Peneliti Utama :
Dr. Iwantono, M.Phil

Anggota :
Dr. Akrajas Ali Umar
Erman Taer, M.Si

UNIVERSITAS RIAU
November 2011

HALAMAN PENGESAHAN LAPORAN AKHIR (Tahun-1)

1. Judul Penelitian : Fabrikasi Superkapasitor dengan Sifat-sifat Kapasitif Tinggi Melalui Peningkatan Antarmuka Piranti Menggunakan Nanopartikel Logam
2. Ketua Peneliti
- a. Nama Lengkap : Dr. Iwantono, M.Phil
 - b. Jenis Kelamin : Laki-laki
 - c. NIP : 196903251994031002
 - d. Jabatan Struktural : -
 - e. Jabatan Fungsional : Lektor Kepala
 - f. Bidang Keahlian : Nanoteknologi / Nanomaterials
 - g. Fakultas/Jurusan : FMIPA / Fisika
 - h. Perguruan Tinggi : Universitas Riau
 - i. Tim Peneliti

No	Nama dan Gelar Akademik	Bidang Keahlian	Fakultas/ Jurusan	Perguruan Tinggi
1	Erman Taer, M.Si	Fisika Karbon	FMIPA/Fisika	Universitas Riau
2	Dr. Akrajas Ali Umar	Nanomaterial	FMIPA/Fisika IMEN-UKM	Universitas Andalas

3. Jangka Waktu Penelitian : 2 tahun
4. Jumlah biaya tahun ke-1 : Rp 45.000.000,-
 Jumlah biaya tahun ke-1 yang diusulkan : Rp 53.741.780,-
 Total biaya selama 2 tahun : Rp 104.756.780,-

Pekanbaru, 19 November 2011

Mengetahui,
Dekan FMIPA

Ketua Peneliti,

Prof. DR. Adel Zamri, MS, DEA
NIP: 19591220198631005

Dr. Iwantono, M.Phil
NIP: 196903251994031002

Menyetujui,
Ketua Lembaga Penelitian

Prof. DR. Usman M. Tang, MS
NIP: 19640501 198903 1 001

RINGKASAN

Dalam penelitian tahun pertama ini, telah berhasil dilakukan penumbuhan dan karakterisasi nanopartikel logam (Platinum, Palladium dan Emas) di atas permukaan pengumpul arus stainless steel 316L. Nanopartikel metal ini berfungsi sebagai antar muka (interface) antara pengumpul arus dan electrode sel superkapasitor. Untuk mendapatkan kondisi optimum, penumbuhan nanopartikel metal tersebut dilakukan dengan memvariasikan jenis dan jumlah surfaktan, konsentrasi ascorbic acid, CTAB, larutan penumbuhan, waktu penumbuhan dan metode penumbuhan. Karakterisasi nanopartikel metal ini dilakukan dengan menggunakan metode SEM, EDAX dan XRD. Dari hasil riset dan kajian yang telah dilakukan, maka diperoleh kondisi penumbuhan nanopartikel metal dengan karakteristiknya adalah sebagai berikut ini. Nanopartikel platinum dengan kondisi penumbuhan optimum (metode multi-steps growth, konsentrasi ascorbic acid 0,2 M; konsentrasi larutan penumbuh (K_2PtCl_4) 1 mL dan waktu penumbuhan berulang 5 jam + 5 jam) memiliki karakteristik sebagai berikut: bentuk partikelnya bulat (spherical), densitas tinggi, tumbuh merata di atas permukaan stainless steel dan uniform, dengan ukuran partikel rata-rata adalah 24,6 – 26,8 nm). Sedangkan nanopartikel palladium optimum yang tumbuh pada stainless steel current collector diperoleh dengan kondisi penumbuhan sebagai berikut: penumbuhan didahului proses mediasi /pembenihan (seed-mediated process), konsentrasi ascorbic acid 0,3M; konsentrasi CTAB 0,1 mL; waktu penumbuhan selama 5 jam. Hasil nanopartikel palladium yang tumbuh di atas current collector stainless steel adalah: nanopartikel tumbuh cukup merata di permukaan stainless steel, berbentuk bulat (spherical), densitas tinggi, uniform dengan ukuran partikel rata-rata antara 16,7 – 24,6 nm. Kehadiran/tumbuhnya nanopartikel platinum dan palladium dibuktikan dengan hasil karakterisasi XRD dan EDAX. Unsur platinum yang muncul pada sampel cukup dominan, dengan prosentase lebih dari 80% berat keseluruhan unsur pada sampel. Penumbuhan nanopartikel emas dilakukan dengan menggunakan metode seed-mediated growth (mediasi pbenihan), dengan memberi perlakuan variasi konsentrasi HCl, CTAB, ascorbic acid, $AgNO_3$ dan variasi waktu penumbuhan. Kondisi optimum penumbuhan nanopartikel emas adalah konsentrasi larutan 0,5 ml $HAuCl_4$ 0,01M; 0,15 ml HCl; 0,3 ml ascorbic acid 0,1M; 20 ml CTAB 0,1M dan 0,1 ml $AgNO_3$ 10 μ M. Nanopartikel emas yang tumbuh berbentuk nanorods yang memiliki struktur FCC dengan bidang Kristal (111) dan (200) yang terjadi pada sudut $38,185^\circ$ dan $44,393^\circ$. Nilai aspek ratio dari nanorod emas ini adalah 1,7 – 14,3. Namun demikian, nanorods emas yang tumbuh memiliki densitas yang belum optimal tapi ketika waktu penumbuhan lebih dari 2 jam, densitas nya meningkat. Untuk meningkatkan densitas nanopartikel emas, maka penumbuhan melibatkan 2 macam surfaktan, yaitu CTAB dan HMT. Nanopartikel emas yang terbentuk berbentuk rice-shape (bentuk biji beras) dengan struktur FCC dengan densitas yang jauh lebih besar dan seragam.

Sifat-sifat kapasitif piranti (energy dan daya) superkapasitor yang dihasilkan setelah penambahan antarmuka nanopartikel logam antara pengumpul arus dan elektroda karbon akan ditinjau secara mendalam pada penelitian tahun kedua. Pengujian sifat kapasitif superkapasitor dilakukan dengan teknik, impedant spektroskopi, cas-discas pada arus konstan dan cyclic voltametri.

PRAKATA

Assalaamu'alaikum Wr. Wb.,

Puji Syukur penulis panjatkan kepada Allah Subhanawata'ala atas limpahan Rahmat serta Karunia Nya, sehingga Penelitian Hibah Bersaing Tahun Pertama yang berjudul Fabrikasi Superkapasitor dengan Sifat-sifat Kapasitif Tinggi Melalui Peningkatan Antarmuka Piranti Menggunakan Nanopartikel Logam telah dapat terlaksana dengan baik. Untuk itu penulis menyampaikan ucapan terimakasih kepada Direktur Pembinaan Penelitian dan Pengabdian Kepada Masyarakat (DP2M), Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi Kementerian Pendidikan Nasional dan pihak Universitas Riau, yang telah memberikan bantuan dana penelitian Hibah Bersaing untuk tahun ke-1 (2011) yang dibiayai oleh DIPA DP2M Ditjen Pendidikan Tinggi Tahun Anggaran 2011.

Terimakasih juga disampaikan kepada Tim Reviewer proposal Hibah Bersaing yang telah berkenan meneliti proposal secara objektif beserta saran-saran yang diberikan untuk kesempurnaan penelitian ini, sehingga penelitian ini dapat terwujud. Kepada Tim Peneliti dan Mahasiswa yang telah dan masih sedang membantu dalam pelaksanaan penelitian ini, tidak lupa dihaturkan ucapan terima kasih dan penghargaan yang setinggi-tingginya. Terakhir, kami berharap agar hasil penelitian ini dapat memberikan kontribusi positif bagi pengembangan penelitian bisang sains dan pengembangan teknologi terkait untuk kemaslahatan masyarakat.

Pekanbaru, November 2011

Peneliti

DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN
RINGKASAN
PRAKATA
DAFTAR INI
DAFTAR TABEL
DAFTAR GAMBAR
DAFTAR LAMPIRAN
BAB I. PENDAHULUAN
BAB II. TINJAUAN PUSTAKA
BAB III. TUJUAN DAN MANFAAT PENELITIAN
BAB IV. METODE PENELITIAN
BAB V. HASIL DAN PEMBAHASAN
BAB VI. KESIMPULAN DAN SARAN
DAFTAR PUSTAKA
LAMPIRAN

BAB I PENDAHULUAN

1.1. Latar Belakang

Energi dan daya listrik merupakan faktor kunci untuk piranti penyimpan tenaga, termasuk superkapasitor. Pada superkapasitor, energi dan daya ditentukan oleh jenis elektroda, elektrolit dan ohmik kontak antara current collector (pengumpul arus) dan elektroda. Kontak yang baik antara pengumpul arus dengan elektroda karbon akan mengurangi nilai hambatan sehingga transfer arus listrik lebih baik. Salah satu cara untuk meningkatkan ohmik kontak adalah dengan penambahan antarmuka (interface). Nanopartikel logam dapat dijadikan sebagai antarmuka (interface) karena mempunyai sifat katalitik yang baik. Diharapkan dengan penambahan antarmuka nanopartikel logam dapat mengurangi nilai ohmik kontak antara elektroda karbon dan pengumpul arus sehingga energi dan daya superkapasitor dapat ditingkatkan.

Peneliti telah mengembangkan elektroda karbon (pellet karbon) yang dibuat dari bahan dasar limbah penggergajian kayu karet dan diaplikasikan untuk membangun superkapasitor dengan nilai kapasitansi tinggi. Pada tahap awal, telah dihasilkan elektroda pellet karbon murni, tetapi sifat listrik dan elektrokimianya masih kurang baik, sehingga nilai kapasitansi spesifik-nya masih rendah. Selanjutnya, telah diupayakan untuk meningkatkan sifat listrik dan elektrokimia elektroda pellet karbon superkapasitor dengan menumbuhkan nanopartikel logam (platinum dan palladium) di atas elektroda karbon tersebut. Hasil dari penambahan nanopartikel logam ini, diperoleh peningkatan sifat listrik dan elektrokimia pellet karbon, sehingga mampu meningkatkan nilai kapasitansi spesifik superkapasitor. Usaha lain untuk meningkatkan sifat listrik dan elektrokimia superkapasitor adalah dengan cara penumbuhan nanopartikel logam (platinum, palladium dan gold) sebagai antarmuka (interface) pada permukaan pengumpul arus (current collector) yang terbuat dari stainless steel, karena nanopartikel logam (platinum, palladium dan gold) mempunyai sifat katalis yang baik dan mempunyai porositas yang tinggi, sehingga diharapkan mampu mengurangi ohmik kontak dan berdampak baik terhadap sifat listrik dan elektrokimia superkapasitor yang mampu meningkatkan nilai kapasitansi spesifiknya secara signifikan. Simultan dengan usaha ini, pengembangan metode fabrikasi elektroda karbon juga terus dilakukan untuk meningkatkan nilai kapasitansi spesifiknya.

Nanopartikel logam (platinum, palladium dan gold) ditumbuhkan di atas pengumpul arus stainless steel dengan wet chemical method. Dilakukan variasi surfaktan beserta konsentrasinya, variasi waktu penumbuhan dan bentuk partikel serta modifikasi metode penumbuhan. Diharapkan diperoleh nanopartikel logam dengan bentuk dan ukuran yang bervariasi, selanjutnya dilakukan peninjauan terhadap sifat nanopartikel yang dihasilkan. Karakterisasi sifat listrik dan elektrokimia pengumpul arus dengan interface-nya yang telah ditumbuhi nanopartikel logam serta superkapasitor dilakukan dengan metode XRD, Spektroskopi UV-Vis, SEM, Impedance Spectroscopy, Charge-discharge dan Cyclic Voltametri.

1.3. Obyek Penelitian

Objek yang dikaji pada penelitian ini adalah penumbuhan nanopartikel Platinum, Paladium dan Emas pada permukaan pengumpul arus stainless steel. Sifat-sifat kapasitif piranti (energy dan daya) superkapasitor yang dihasilkan setelah penambahan antarmuka (interface) nanopartikel logam antara pengumpul arus (current collector) dan elektroda karbon ditinjau secara mendalam. Platinum, Palldium dan Emas nanopartikel ditumbuhkan dengan metode kimia basah (*wet chemical*). Dilakukan variasi waktu penumbuhan, cara penumbuhan untuk mendapatkan kondisi optimum. Pemberian variasi waktu penumbuhan diharapkan diperoleh variasi ukuran partikel yang dihasilkan sedangkan untuk cara penumbuhan diharapkan dapat diperoleh nanopartikel yang lebih merata dengan density yang tinggi.

Pengujian sifat kapasitif superkapasitor dilakukan pada tahun kedua, dengan teknik impedant spektroskopi, cas-discas pada arus konstan dan cyclic voltametri. Selain pengujian sifat kapasitif dicari juga struktur mikro nanopartikel yang di hasilkan dengan analisis XRD dan SEM untuk mengetahui morfologi nanopartikel logam.

1.4. Lokasi penelitian

Kegiatan penelitian ini sebagian besar akan dilakukan di Laboratorium Material Jurusan Fisika FMIPA – Universitas Riau, Kampus Bina Widya Jl. H. R. Soebrantas km 12.5 Simpang Panan - Pekanbaru, Riau.

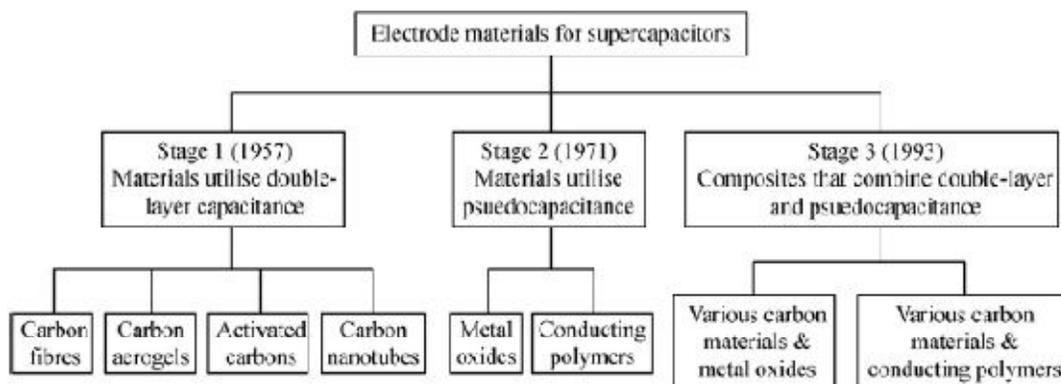
1.5. Hasil yang ditargetkan

Melalui studi ini diharapkan diperoleh superkapasitor dengan energy dan daya yang tinggi dengan penambahan nanopartikel logam. Pada tahun pertama diharapkan dapat diketahui kondisi optimum proses penumbuhan nano partikel logam (Platinum, Paladium dan Emas) pada permukaan pengumpul arus /current collector dari bahan stainless steel. Sedangkan untuk tahun kedua dapat diaplikasikan pada fabrikasi superkapasitor dengan menggunakan elektroda karbon berbentuk pellet dan serbuk dan dilakukan uji prestasi. Dari seluruh hasil yang diperoleh diharapkan dapat dipublikasikan pada jurnal nasional dan internasional.

BAB II TINJAUAN PUSTAKA

2.1. Pengenalan

Supercapacitor atau ultracapacitor (E. Frankowiak, et al. 2001) adalah istilah yang digunakan untuk komponen elektrik yang mempunyai nilai kapasitan mencapai ribuan farad. Dikarenakan nilai kapasitannya, supercapacitor menjadi peralatan elektrik yang dipilih untuk penyimpanan tenaga. Perbandingan supercapacitor dengan baterai sebagai penyimpan tenaga listrik mempunyai nilai negatif dan positif. Salah satu kekurangan supercapacitor adalah penyimpanan tenaga spesifik yang relatif rendah (R. Kotz, et al. 2000). Komemersial produk supercapacitor mempunyai spesifik energi dibawah 10 Wh kg^{-1} , lebih rendah jika dibandingkan dengan baterai yaitu $35\text{-}40 \text{ Wh kg}^{-1}$, untuk lead-acid batteri, tetapi untuk litium ion baterai dapat mencapai 150 Wh kg^{-1} . Supercapacitor mempunyai spesifik daya yang lebih tinggi dari betterai. Sisi positif lain adalah siklus hidup yang lebih tinggi, dapat dioperasikan pada range temperatur yang lebih besar dan cas dan dis cas yang cepat.



Gambar 1: Perkembangan penyelidikan bahan elektroda supercapacitor.

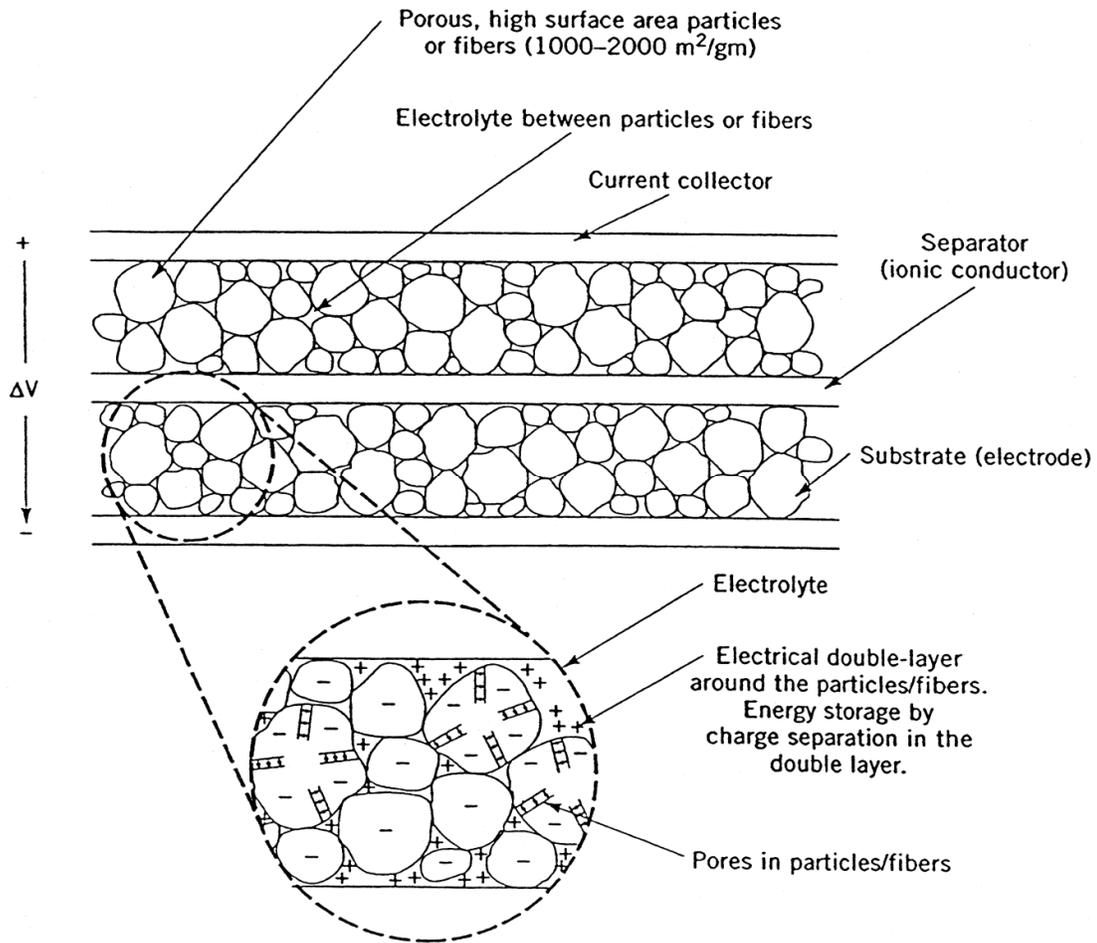
Penyelidikan pada supercapacitor dapat dibagi dalam dua kelompok berdasarkan pada mode penyimpanan energi yang disebut: 1) supercapacitor redox dan 2) kapasitor elektrokimia dua lapisan. Pada supercapacitor redox (juga dikenal dengan istilah pseudocapacitor), sebuah tipe transfer muatan reversibel Faradaic yang menghasilkan kapasitan, yang bukan elektrostatik asal (sehingga diberi awalan ‘pseudo’ yang membedakan dari kapasitan electric statik). Kapasitan diasosiasikan dengan sebuah proses elektrokimia cas transfer yang mempunyai nilai lebih menggunakan material aktif tertentu (B.E. Conway,

1999). Kelompok material pseudocapacitive yang paling dikenal adalah oksida logam transisi (yang paling populer adalah oksida ruthenium) dan polymer conducting seperti polyaniline, polypyrrole atau turunan polythiophene (C. Peng, et al. 2008). Sedangkan, penyimpanan tenaga pada kapasitor elektrokimia dua lapisan (KEDL) hampir menyerupai kapasitor tradisional yaitu melalui pemisahan muatan. Supercapacitor dapat menyimpan lebih banyak tenaga per unit masa atau volume dari pada kapasitor konvensional karena: 1) pemisahan muatan terjadi pada jarak yang sangat kecil pada KEDL yang terjadi pada perbatasan elektoda dan elektrolit (B.E. Conway, 1999), 2) jumlah muatan yang dapat tersimpan dapat ditingkatkan dengan luas permukaan yang tinggi (terjadi karena jumlah pori yang besar dalam material elektrode dengan luas permukaan yang besar). Mekanisme penyimpanan tenaga berlangsung secara cepat karena melibatkan perpindahan ion dari dan keluar permukaan elektrode.

Supercapacitor jenis KEDL adalah kategori supercapacitor yang sangat maju dikembangkan. Carbon dalam berbagai bentuk, secara intensif terus di kaji dan digunakan secara meluas sebagai material elektrode pada KEDL yang pengembangannya di fokuskan pada pencapaian luas permukaan yang lebih tinggi dengan tahanan yang lebih rendah.

2.2. Struktur KEDL

Struktur superkapasitor terdiri dari dua buah elektrode yang terendam dalam elektrolit, dengan sebuah pemisah ion-permeable yang terletak diantara kedua elektroda, seperti yang ditunjukkan pada gambar 2. Dalam devais seperti itu, masing-masing antar muka elektrode elektrolit mewakili sebuah kapasitor sehingga sebuah sell lengkap dapat dipandang sebagai dua kapasitor tersusun secara series. Untuk kapasitor simetris (elektrode yang sama), kapasitan sell, ditunjukkan sebagai :



Gambar 2. Struktur superkapasitor

$$\frac{1}{C_{cell}} = \frac{1}{C_1} + \frac{1}{C_2} \quad (1)$$

Dimana C_1 dan C_2 mewakili kapasitan untuk elektrod pertama dan kedua (X. Andrieu, et al, 2000). Sedangkan nilai literature dari kapasitan spesifik selalu dipilih sebagai kapasitan satu elektroda, biasanya di peroleh dari pengukuran menggunakan tiga elektrode yang melibatkan referen dan konter elektrode (D. Qu, et al. 1988). Kapasitan dwi-lapisan, C_{dl} , pada masing-masing antara muka elektrod ditunjukkan dengan rumusan

$$C_{dl} = \frac{\epsilon A}{4\pi t} \quad (2)$$

Dimana ϵ adalah konstanta dielektrik dari daerah dwi-lapisan, A adalah luas permukaan dari elektroda dan t adalah tebal dari dwi-lapisan elektrik. Pada kapasitor dwi-lapisan, merupakan kombinasi dari luas permukaan yang tinggi (biasanya $> 1500 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$) dengan pemisahan muatan yang sangat kecil (Angstroms) yang dapat menghasilkan kapasitan yang tinggi

(A.K.Shukla, et al, 2000). TEnergi (E) dan daya (P_{max}) dari superkapasitor dapat ditentukan berdasarkan

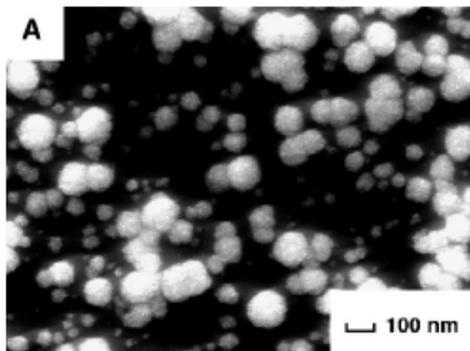
$$E = \frac{1}{2} CV^2 \quad (3)$$

$$P_{max} = \frac{V^2}{4R} \quad (4)$$

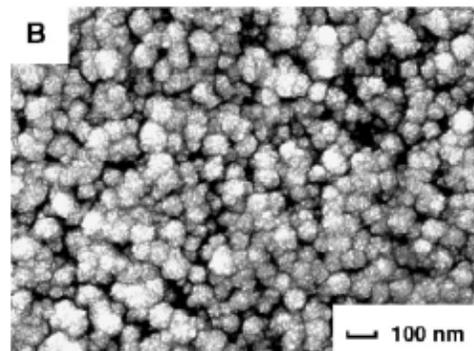
Dimana C adalah kapasitan dc dalam Farads, V adalah tegangan dan R adalah ekuivalen tahanan series (ESR) dalam ohm (X. Andrieu, et al, 2000).

2.3 Nanopartikel Logam

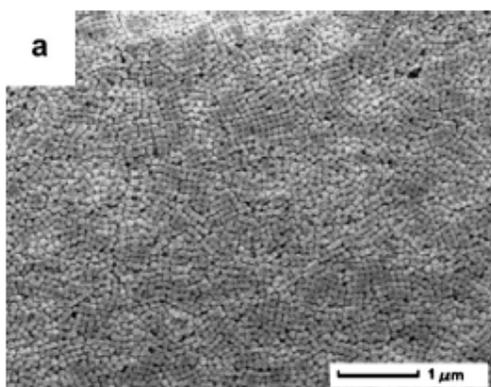
Platinum dan Paladium nano partikel dapat ditumbuhkan pada bahan ITO, Karbon glass, (Gang Chang, Munetaka Oyama , Kazuyuki Hirao, 2006, 2007) dengan menggunakan teknik kimia basah. Pada gambar 5 dan 6 ditunjukkan Platinum dan Palladium nanopartikel yang ditumbuhkan permukaan karbon glass.



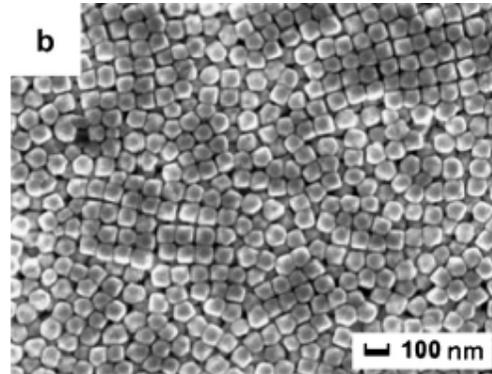
Gambar.3A Platinum nano cluster pada glassi karbon
Gang Chang , Munetaka Oyama , Kazuyuki Hirao, 2007.



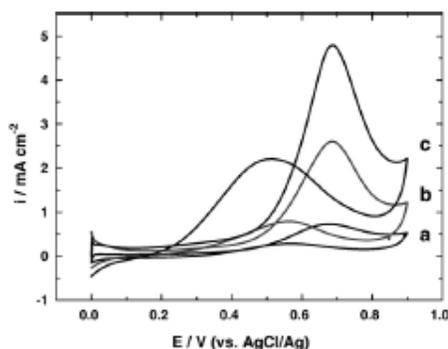
Gambar. 3 B Platinum nano film pada glassi karbon
Gang Chang , Munetaka Oyama , Kazuyuki Hirao, 2007.



Gambar 4. Nano partikel Paladium yang ditumbuhkan diatas karbon glass
Gang Chang a, Munetaka Oyama b, Kazuyuki Hirao , 2007



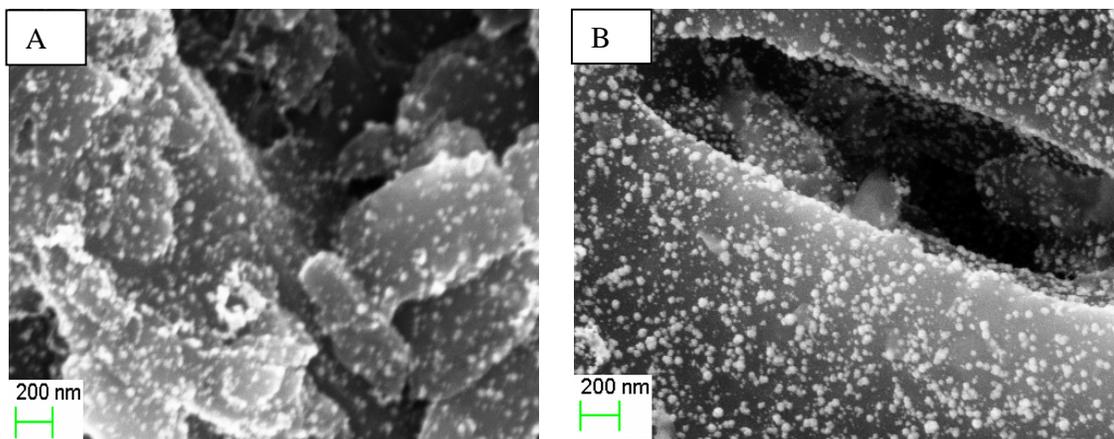
Sifat elektrokimia platinum palladium nanopartikel yang ditumbuhkan karbon glass pun telah diselidiki, seperti ditunjukkan pada gambar dibawah



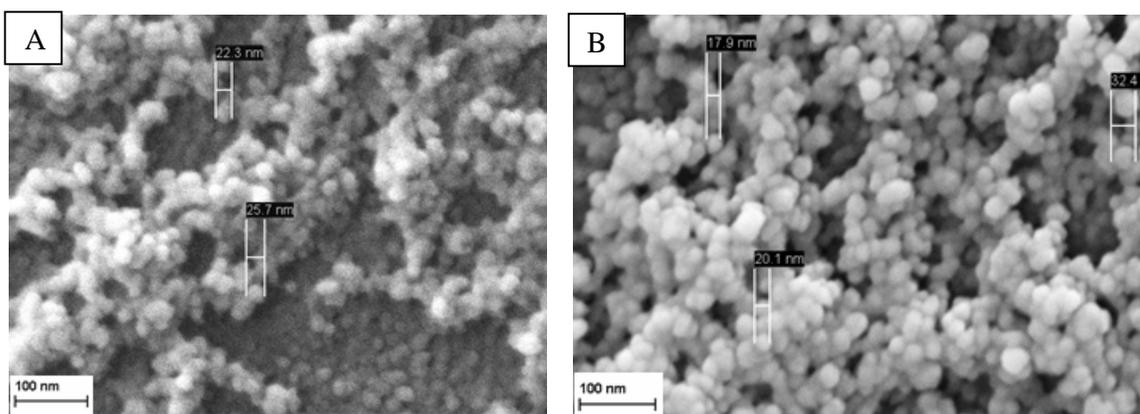
Gambar 5. Siklus voltamogram a. platinum nano cluster b, platinum nano filem dalam larutan 0,5M H₂SO₄ dengan scan rate 50mV/s

2.4. Hasil yang telah dicapai pada penumbuhan nanopartikel logam pada permukaan pellet karbon dan ITO

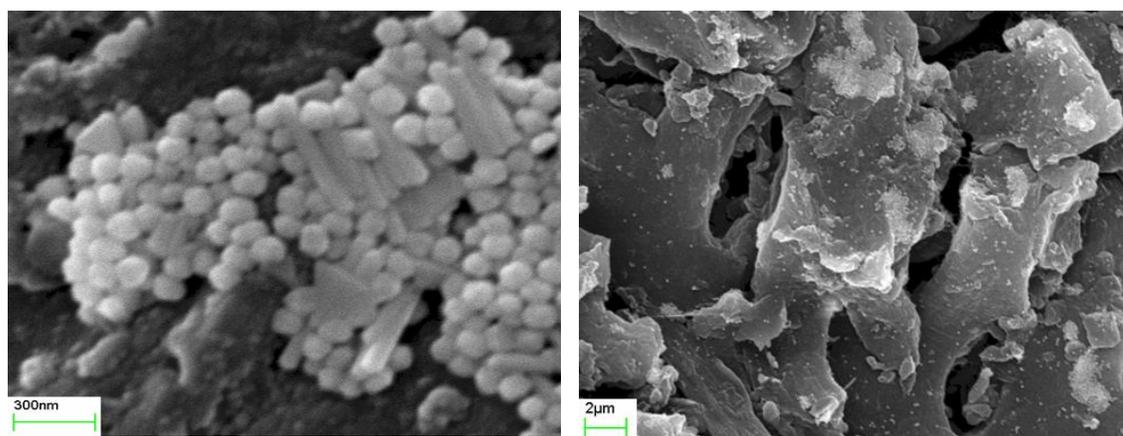
Beberapa hasil terpenting yang berkaitan langsung dengan penelitian yang diusulkan dapat dikemukakan sebagai berikut: Iwantono dkk, sejak tahun 2007 telah melakukan studi awal tentang penumbuhan nano-partikel logam (Pt, Pd dan Au) pada beberapa substrat seperti, pellet karbon dan ITO. Gambar SEM (Pt dan Au) yang ditumbuhkan pada permukaan pellet karbon ditunjukkan pada Gambar 5 (E. Taer, 2009) dan 7 (E. Taer, 2009) sedangkan penumbuhan Pd pada permukaan ITO ditunjukkan pada Gambar 6 (Iwantono, 2010). Dari gambar tersebut ditunjukkan bahwa nano-partikel logam Pt, Pd dan Au dapat ditunjukkan bahwa partikel yang dihasilkan tumbuh merata pada permukaan pellet karbon dan ITO. Sehingga diharapkan nano-partikel logam tersebut dapat juga ditumbuhkan pada permukaan pengumpul arus stainless secara merata dan terikat kuat sehingga dapat berperan sebagai antarmuka pada piranti superkapasitor.



Gambar 6. SEM mikrograf distribusi Pt nano-partikel pada permukaan pellet karbon dengan beda waktu penumbuhan A, 2 jam dan B, 16 jam



Gambar 7. SEM mikrograf distribusi Pd nano-partikel pada permukaan ITO dengan beda waktu penumbuhan A, 1 jam dan B, 24 jam.



Gambar 8. SEM mikrograf distribusi Pd nano-partikel pada permukaan pellet carbon selama 24 jam dengan A, pembesaran 40k dan B, pembesaran 3k.

2.5. Pengembangan elektroda superkapasitor dari serbuk gergaji kayu karet

Peneliti secara khusus telah mengembangkan elektroda superkapasitor berbentuk pellet dari bahan biomassa yaitu limbah gergaji kayu karet. Hasil pengujian ditunjukkan pada Tabel 5 berikut. Berdasarkan hasil yang telah dicapai ini dapat dijadikan pengetahuan dasar untuk pengembangan elektroda karbon superkapasitor dari sumber lain, seperti petroleum based (green petroleum coke).

Tabel 2. Optimasi pengembangan elektroda superkapasitor dari serbuk gergaji kayu karet

Tahapan Kegiatan	Hasil
a. Variasi tekanan pempeletan elektroda	
-Density	Tidak terlalu bervariasi pada daerah 7-10ton, 0.83 s/d 0.86 g/cm ³
-Luas permukaan BET	318.18 s/d 337.93 m ² /g
-Kapasitan spesifik	Mak pada tekanan 8 ton (nilai rata-rata dari 5 sampel, 95.04, retained ratio sangat rendah
Kondisi Optimum	Tekanan 8 ton
b. Variasi ketebalan elektroda	
-Retained ratio	Maksimum pada ketebalan 0.4mm, 21.33%
Kondisi Optimum	Ketebalan 0,4mm
c. Variasi suhu karbonisasi	
-Luas permukaan BET	733.99 m ² /g, suhu 600C
-Konduktivitas listrik	0.0068 S cm ⁻¹ s/d 0.0126 S cm ⁻¹
-Kapasitan spesifik	Mak, 29.09 F/g, pd suhu 600C
-Retained ratio	23.09 % setelah scan rate 100mV/s
Kondisi Optimum	Karbonisasi pada suhu 600C
d. Variasi waktu	
-Luas permukaan BET	860.66 m ² /g, waktu 2.5 jam
-Kapasitan spesifik	Mak, 90 F/g
-Retained ratio	19.09 % setelah scan rate 100mV/s

BAB III

TUJUAN DAN MANFAAT PENELITIAN

3.1. Tujuan Penelitian

Tujuan yang akan dicapai dalam penelitian ini adalah mengembangkan kemandirian dalam pengembangan superkapasitor dengan energi dan gaya tinggi dengan modifikasi nanopartikel logam pada pengumpul arus. Adapun tujuan secara khusus sebagai berikut :

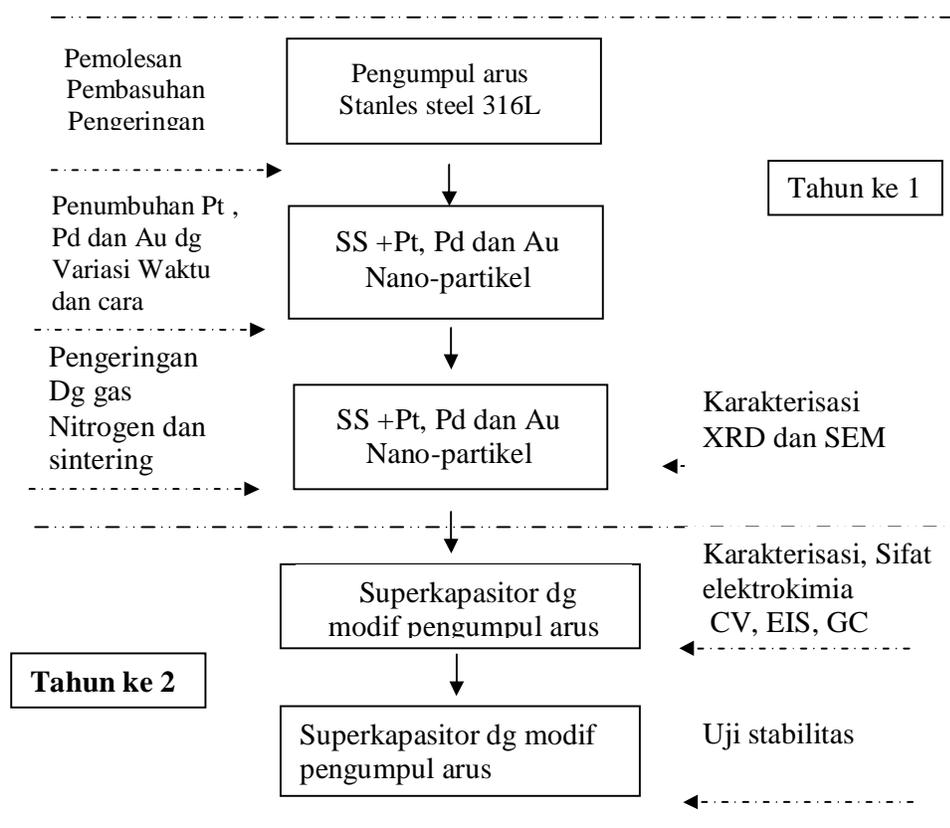
1. Menentukan kondisi optimum variabel waktu penumbuhan nanopartikel (Pt, Pd dan Au) agar diperoleh ukuran partikel yang sesuai.
2. Menentukan kondisi optimum cara pembenihan (seeding) dan pengulangan penumbuhan agar diperoleh nanopartikel (Pt, Pd dan Au) dengan morfologi yang baik, merata dan padat.
3. Menentukan kondisi optimum seleksi bentuk elektroda (pellet atau pasta/powder) agar diperoleh nilai tahanan seri piranti yang minimum.
4. Uji kestabilan piranti dengan menggunakan variasi konsentrasi elektrolit (H_2SO_4) agar diperoleh piranti superkapasitor yang berumur panjang.

3.2. Keutamaan Penelitian

Secara khusus keutamaan penelitian ini adalah akan diperoleh elektroda kapasitor dengan kemampuan penyimpanan energi dan daya yang besar dengan harga yang relatif murah sehingga dapat dipergunakan sebagai penyimpan tenaga untuk berbagai aplikasi seperti kendaraan bermotor, berbagai perangkat elektronik, militer dan sebagainya. Dengan dapat dikembangkannya teknologi ini sehingga negara kita (Indonesia) akan turut berperan dalam pengembangan piranti penyimpan energi. Pengembangan piranti penyimpan energi yang unggul akan dapat meningkatkan efisiensi penyimpanan energi sehingga lebih jauh lagi dapat lebih menghemat pemakaian bahan bakar baik fosil maupun non fosil. Disamping itu jika pemanfaatan superkapasitor dapat dikembangkan lebih jauh pada kendaraan bermotor akan dapat dihasilkan pengembangan kendaraan yang ramah lingkungan.

BAB IV METODE PENELITIAN

Metode penelitian yang dilakukan menggunakan eksperimen murni yang dilakukan di laboratorium. Keunggulan riset ini adalah dapat menerangkan secara mendasar gejala-gejala fisika yang terjadi pada sifat listrik dan elektrokimia dari piranti superkapasitor yang telah diberi modifikasi pada pengumpul arus dengan nano-partikel logam Pt, Pd dan Au.



Gambar 4.1. Diagram alir penelitian

4.1. Persiapan awal

Pengumpul arus stanles steel 316L dibeli dalam bentuk batangan. Setelah dipotong-potong dengan ketebalan 0.5 mm, pengumpul arus mengalami proses pemolesan, pencucian dengan acetone dan etanol ataupun dengan larutan asam untuk menghilangkan oksidasi logam.

4.2. Penumbuhan Paladium nano-partikel dengan variasi waktu dan cara penumbuhan

Platinum nano-partikel ditumbuhkan dengan teknik wet-chemical dengan campuran 0.5 ml dari 10mM K_2PtCl_4 (Aldrich) ditambahkan kedalam 18 mL DI water, kemudian pellet karbon direndam dan ditambahkan 1mL dari 0.1M ascorbid Acid, sample direndam dengan beberapa variasi waktu dan disimpan dalam oven pada suhu kamar. (Oyama, M, et al, 2007), (Chang, G., Oyama, M., Hirao, K., 2006). Metode yang lebih kurang sama juga dilakukan untuk Paladium dan Emas.

Untuk meningkatkan kerapatan penumbuhan nano-partikel logam pada permukaan pengumpul arus dilakukan beberapa cara penumbuhan seperti, variasi seeding (pembenihan) dan pengulangan penumbuhan. Sehingga diharapkan dapat dihasilkan nano-partikel logam yang merata dan kerapatan yang tinggi

4.3. Sintering

Setelah nano-partikel logam dapat ditumbuhkan dengan baik, dilakukan proses sintering dengan beberapa lingkungan dan variasi suhu. Diharapkan setelah proses ini kepadatan dan kekuatan lekat nano-partikel logam dapat ditingkatkan.

.

4.4. Pengujian Sifat Elektrokimia

Pengujian sifat elektrokimia dilakukan menggunakan alat elektrokimia interface Solatron menggunakan elektrolit asam sulfat 1M. Akan ditentukan prestasi sel yang telah dilengkapi Platinum, Palladium dan Emas nano-partikel dengan variasi waktu penumbuhan untuk mendapatkan sel superkapasitor terbaik. Akan dilakukan seleksi bentuk elektroda karbon (pellet dan pouders/pasta) untuk mendapatkan sifat kapasitif terbaik (E. Taer, 2010).

.

4.5 Uji stabilitas

Uji stabilitas diperlukan untuk mengetahui kestabilan piranti dalam selang waktu yang panjang. Mengingat dalam penelitian ini menggunakan elektrolit asam sulfat perlu dilakukan uji kemolaran yang sesuai terhadap umur piranti.

BAB V

HASIL DAN PEMBAHASAN

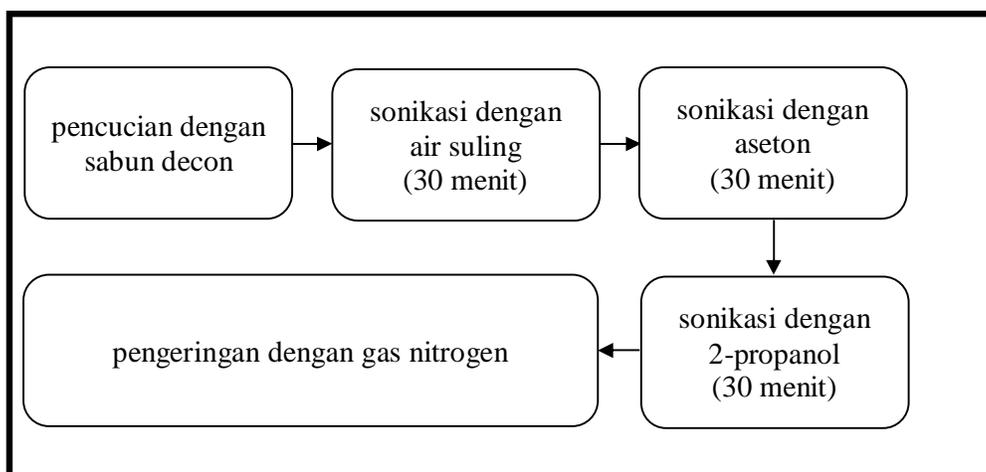
5.1. Persiapan awal

Pengumpul arus stanles steel 316L dibeli dalam bentuk batangan. Setelah dipotong-potong dengan ketebalan 0.5 mm, pengumpul arus mengalami proses pemolesan, pencucian dengan acetone dan etanol ataupun dengan larutan asam untuk menghilangkan oksidasi logam.

5.2. Penumbuhan dan Karakterisasi *Nanopartikel gold nanorods* melalui metode penumbuhan dengan mediasi pembenihan (*seed-mediated growth*).

5.2.1 Penyiapan Substrat

Langkah pertama dalam penyiapan substrat adalah membersihkan substrat dari kotoran atau lemak. Kebersihan peralatan dan substrat yang akan digunakan menjadi perhatian yang sangat penting karena sedikit saja kotoran yang terdapat pada peralatan atau substrat yang digunakan dapat menggagalkan tumbuhnya nanopartikel. Pada gambar 5.1 ditunjukkan skema dari proses pembersihan substrat.



Gambar 5.1. Skema pembersihan substrat

Pada tahap pertama substrat dicuci dengan menggunakan sabun decon yang telah dicampur dengan air. Pencucian dengan sabun decon bertujuan untuk menghilangkan lemak dan kotoran-kotoran yang melekat pada substrat. Setelah dilakukan pencucian dengan sabun decon, peralatan dan sampel dibilas dengan menggunakan air suling.

Langkah selanjutnya adalah membersihkan substrat dengan cara sonikasi menggunakan air suling selama 30 menit. Sonikasi dengan air suling ini bertujuan untuk membersihkan sisa-sisa kotoran dan sabun decon serta bahan kimia yang bersifat polar yang kemungkinan masih melekat pada substrat.

Selanjutnya substrat dibilas lagi dengan air suling dan disonikasi kembali dengan menggunakan larutan aseton dan larutan 2-propanol masing-masing selama 30 menit. Penggunaan aseton dan 2-propanol sebagai larutan pencuci karena sifatnya yang semipolar sehingga dapat melarutkan berbagai jenis senyawa. Selain itu, aseton dan 2-propanol juga mudah menguap sehingga diharapkan kotoran-kotoran yang tidak bisa larut dalam pelarut air dapat larut dan menguap bersama dengan aseton dan 2-propanol.

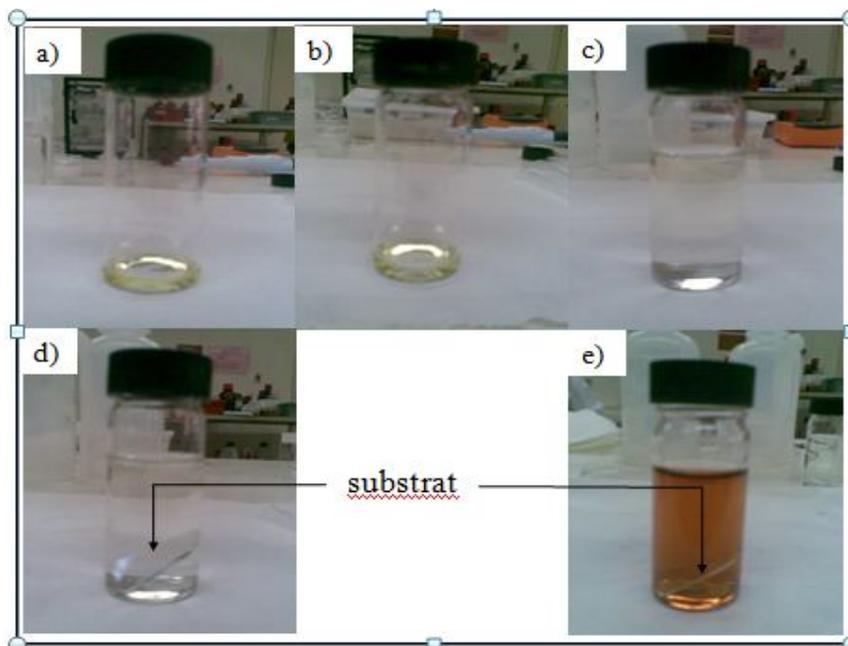
Langkah terakhir dalam proses pembersihan peralatan dan sampel adalah proses pengeringan. Substrat dikeringkan dengan menggunakan gas nitrogen dan selanjutnya disimpan di dalam ruang vakum untuk menjaga agar sampel tetap bersih dan tidak terkontaminasi dengan debu atau zat lain yang dapat menempel pada permukaan sampel yang telah dibersihkan.

5.2.2 Proses Pembenihan

Langkah pertama yang harus dilakukan pada proses pembenihan adalah menyiapkan larutan pembenih. Larutan pembenih merupakan larutan campuran yang terdiri dari larutan HAuCl_4 , larutan trisodium sitrat dan larutan NaBH_4 . Pada proses pembenihan, ion Au^{3+} yang berasal dari HAuCl_4 dikapsul dengan ion sitrat. Dengan pengkapsulan ini, ion Au^{3+} tidak mengumpul membentuk senyawa Au. Dengan adanya NaBH_4 sebagai pereduksi keras, ion Au^{3+} langsung direduksi menjadi atom Au. Adapun reduksi ion Au^{3+} menjadi atom Au dapat dituliskan dalam persamaan setengah reaksi sebagai berikut:



Dari persamaan (5.1) dan (5.2) dapat dilihat bahwa pada proses pembenihan, 3 mol ion BH_4^- akan mereduksi 8 mol ion Au^{3+} menjadi atom Au. Proses pembenihan pada penelitian ini dilakukan dengan cara *in situ* dimana agen pereduksi (NaBH_4) dicampurkan pada larutan pembenih setelah substrat dimasukkan ke dalam larutan pembenih selama 30 menit. Hal ini bertujuan agar ion Au^{3+} terkapsul secara sempurna sebelum tereduksi menjadi atom Au. Adapun proses pembenihan nanopartikel emas diperlihatkan pada gambar 5.2.



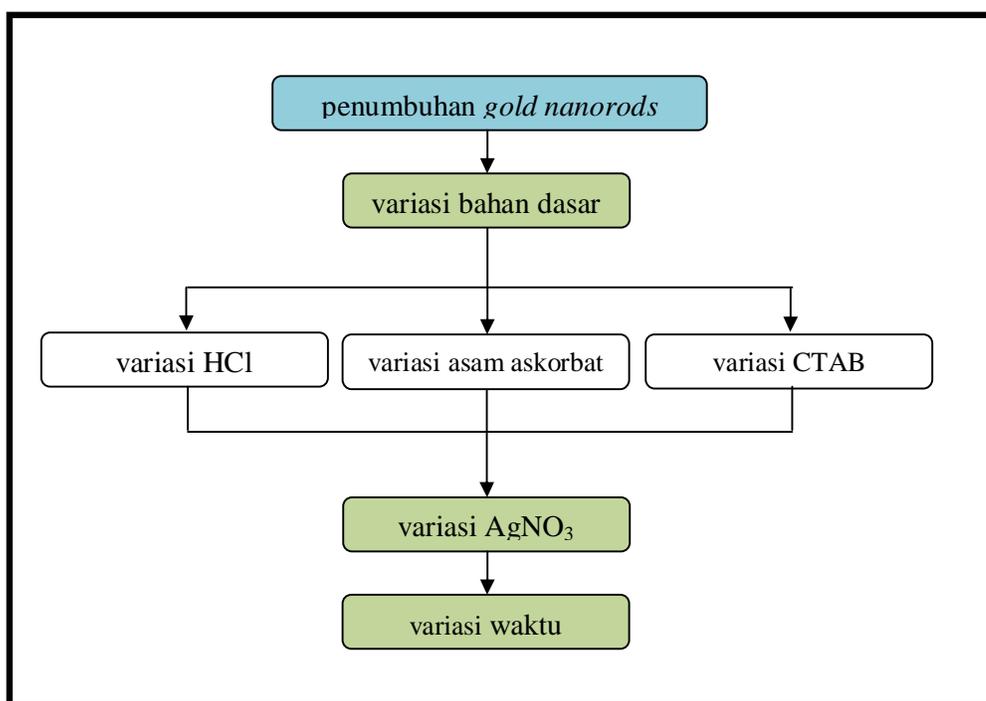
Gambar 5.2. Mekanisme pembuatan larutan dan pbenihan nanopartikel emas (a) 0,5 ml HAuCl_4 0,01 M (b) larutan a ditambah 0,5 ml trisodium sitrat 0,01 M (c) larutan b ditambah 20 ml air murni (d) substrat dimasukkan ke dalam larutan c dan (e) larutan c yang telah ditambah 0,5 ml NaBH_4 0,1 M

Proses pbenihan dilakukan dengan cara merendam substrat ke dalam larutan yang terdiri dari 0,5 ml HAuCl_4 dengan konsentrasi 0,01 M dan 0,5 ml trisodium sitrat dengan konsentrasi 0,01 ml dan dicampur dengan 20 ml air murni yang telah diionisasi. Dalam larutan ini substrat ITO direndam selama 30 menit. Selama proses ini, larutan pbenih tidak mengalami perubahan warna dan tetap berwarna bening. Setelah 30 menit, dimasukkan larutan NaBH_4 dengan molaritas 0,1 M sebanyak 0,5 ml dan dibiarkan selama 1 jam. Ketika dimasukkan NaBH_4 , larutan pbenih mengalami perubahan warna menjadi kecoklatan. Hal ini dikarenakan terjadinya proses reduksi ion Au^{3+} menjadi atom Au oleh NaBH_4 . Dalam merendam substrat, permukaan substrat yang memiliki sifat konduktivitas berada pada bagian atas selama proses pbenihan berlangsung. Suhu ruangan yang digunakan selama proses pbenihan adalah 28-30 °C.

Setelah selesai, substrat diangkat dari larutan pbenih dan dibilas dengan air murni yang telah disonikasi dan selanjutnya dikeringkan dengan menggunakan gas nitrogen. Langkah terakhir adalah *annealing*. Sampel yang telah dibenihkan dibakar dalam *furnace* selama 2 jam pada suhu 200 °C. Proses *annealing* ini bertujuan untuk menghilangkan senyawa-senyawa organik yang ada pada substrat setelah direndam dalam larutan pbenih.

5.2.3 Proses Penumbuhan

Seperti halnya pada proses pembenihan, pada proses penumbuhan juga harus disediakan larutan penumbuh terlebih dahulu. Larutan penumbuh merupakan larutan campuran dengan bahan dasar HAuCl_4 , CTAB dan HCl. Adapun bahan-bahan lain yang ditambahkan dalam larutan penumbuh untuk mendapatkan *gold nanorods* adalah AgNO_3 . Bahan-bahan larutan penumbuh akan divariasikan konsentrasinya untuk mendapatkan *gold nanorods* yang diinginkan. Adapun mekanisme variasi penumbuhan digambarkan dengan bagan seperti pada gambar 5.3.



Gambar 5.3. Diagram mekanisme variasi penumbuhan *gold nanorods*

5.2.4 Efek Masing-masing Bahan Dasar dalam Penumbuhan *Gold Nanorods*

a. Variasi HCl

Salah satu aspek penting yang mempengaruhi pembentukan *gold nanorods* adalah pH atau tingkat keasaman larutan penumbuh. Salah satu cara untuk mengatur tingkat keasaman pada larutan penumbuh dilakukan dengan memvariasikan konsentrasi HCl pada larutan penumbuh.

Pada penumbuhan dengan variasi HCl, disediakan lima buah sampel dan lima buah larutan pembenih. Larutan pembenih dibuat dengan cara mencampur sebanyak 0,1 ml larutan asam askorbat dengan konsentrasi 0,1 M ke dalam larutan yang terdiri dari 0,5 ml HAuCl₄ dengan molaritas 0,01 M dan 20 ml CTAB dengan molaritas 0,1 M. Kemudian ke dalam masing-masing larutan ini dicampurkan larutan HCl 38 % dengan volume yang berbeda-beda mulai dari 0,02 ml; 0,05 ml; 0,10 ml; 0,15 ml dan 0,20 ml. Kemudian botol yang berisi larutan penumbuh diguncang-guncang secara perlahan agar larutan penumbuh merata. Selanjutnya lima buah substrat ITO yang telah dibenihkan masing-masing direndam ke dalam larutan penumbuh dan dibiarkan selama 2 jam. Setelah 2 jam, sampel dibilas dengan air murni yang telah diionisasi dan selanjutnya dikeringkan dengan gas nitrogen untuk dikarakterisasi.

b. Variasi Asam Askorbat

Larutan penumbuh pada variasi asam askorbat sama dengan larutan penumbuh pada variasi HCl (0,5 ml HAuCl₄ 0,01 M; 20 ml CTAB 0,1 M), dengan konsentrasi HCl yang digunakan adalah HCl yang menghasilkan pertumbuhan optimum dan asam askorbat 0,1 M divariasikan dari volume 0,1 ml; 0,2 ml; 0,3 ml; 0,4 ml; 0,5 ml dan 0,6 ml. Selanjutnya substrat ITO yang telah dibenihkan direndam ke dalam larutan penumbuh dengan variasi asam askorbat dan ditumbuhkan selama 2 jam.

Adapun proses reduksi ion Au³⁺ menjadi ion Au⁺ oleh asam askorbat dapat dituliskan dalam persamaan setengah reaksi sebagai berikut:



Adapun proses reduksi ion Au⁺ menjadi atom Au terjadi melalui transfer elektron pada permukaan atom Au yang kaya elektron hasil dari proses pembenihan dan dituliskan dalam persamaan setengah reaksi sebagai berikut:



c. Variasi CTAB

Larutan penumbuh untuk variasi CTAB dibuat dengan mencampurkan 0,5 ml HAuCl₄ 0,01 M, HCl yang menghasilkan pertumbuhan optimum, serta asam askorbat 0,1 M yang menghasilkan pertumbuhan optimum ke dalam 20 ml larutan CTAB yang konsentrasinya divariasikan dari 0,05 M; 0,1 M; 0,15 M; 0,20 M dan 0,25 M untuk selanjutnya didapat larutan penumbuh dengan konsentrasi bahan dasar (HAuCl₄, HCl, asam

askorbat dan CTAB) yang menghasilkan *gold nanorods* optimum. Selanjutnya substrat ITO yang telah dibenihkan direndam ke dalam larutan penumbuh dengan variasi CTAB dan ditumbuhkan selama 2 jam

5.2.5 Pengaruh Penambahan AgNO_3 Terhadap Penumbuhan *Gold Nanorods*

Kajian penambahan ion Ag^+ dilakukan dengan menambahkan 0,1 ml larutan AgNO_3 yang divariasikan konsentrasinya dari 2 μM ; 5 μM ; 10 μM ; 15 μM ; 20 μM dan 25 μM ke dalam larutan penumbuh dengan bahan dasar yang menghasilkan *gold nanorods* optimum. Selanjutnya substrat ITO yang telah dibenihkan direndam ke dalam larutan penumbuh yang telah ditambahkan AgNO_3 dengan berbagai variasi konsentrasi dan ditumbuhkan selama 2 jam.

5.2.6 Pertumbuhan *Gold Nanorods*

Evolusi pertumbuhan *gold nanorods* diamati dengan menumbuhkan *gold nanorods* pada konsentrasi larutan penumbuh yang menghasilkan *gold nanorods* optimum. Kajian dilakukan dengan memvariasikan waktu penumbuhan. Adapun waktu penumbuhan divariasikan mulai dari 5 menit, 10 menit, 20 menit, 30 menit, 1 jam, 2 jam dan 2,5 jam.

5.2.7 Karakterisasi

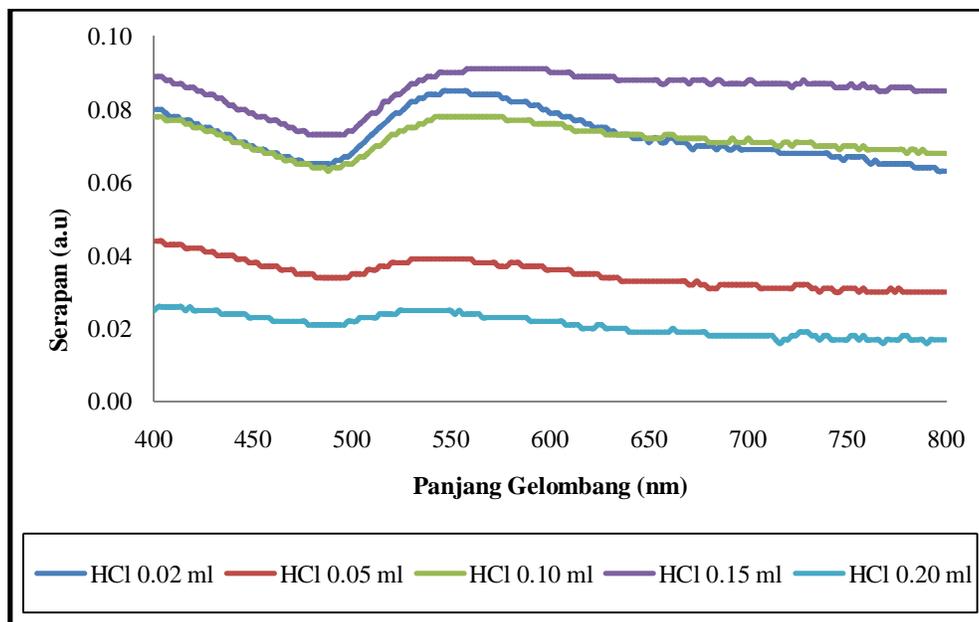
Setelah nanopartikel emas berhasil ditumbuhkan di atas permukaan substrat ITO, dilakukan karakterisasi untuk mengetahui karakteristik nanopartikel yang telah terbentuk. Karakterisasi ini meliputi spektroskopi Uv-Vis untuk mengetahui bentuk kurva serapan sampel, SEM untuk mengetahui bentuk nanopartikelnya serta difraksi sinar-X untuk memastikan bahwa nanopartikel yang telah berhasil disintesis merupakan nanopartikel emas.

5.2.8. Efek Masing-masing Bahan Dasar pada Penumbuhan *Gold Nanorods*

Efek masing-masing bahan pada penumbuhan *gold nanorods* meliputi efek variasi HCl, variasi asam askorbat dan variasi CTAB.

1. Variasi HCl

Kurva serapan dari hasil karakterisasi UV-Vis dari sampel yang telah ditumbuhkan *gold nanorods* pada konsentrasi HCl 0,02 ml; 0,05 ml; 0,10 ml; 0,15 ml; dan 0,20 ml diperlihatkan pada gambar 5.4.



Gambar 5.4. Kurva serapan sampel yang ditumbuhkan pada berbagai konsentrasi HCl

Pada gambar 5.5, ditunjukkan bahwa kelima sampel yang telah ditumbuhkan *gold nanorods* dengan berbagai konsentrasi HCl menghasilkan satu puncak serapan, yaitu pada panjang gelombang disekitar 550 nm. Fenomena ini memberikan gambaran kemungkinan bahwa nanopartikel emas yang telah ditumbuhkan berbentuk spheris. Dari gambar tersebut juga terlihat bahwa nanopartikel yang ditumbuhkan pada larutan penumbuh dengan konsentrasi HCl 0,02 ml; 0,10 ml dan 0,15 ml memiliki nilai serapan lebih tinggi jika dibandingkan dengan sampel yang ditumbuhkan pada larutan penumbuh dengan konsentrasi HCl 0,05 ml dan 0,20 ml. Puncak serapan dari nanopartikel yang ditumbuhkan dengan konsentrasi HCl 0,02; 0,10 dan 0,15 ml masing-masing bernilai 0,085 au, 0,078 au dan 0,090 au. Sedangkan untuk konsentrasi HCl 0,05 ml puncak serapannya bernilai 0,039 au dan untuk konsentrasi HCl 0,05 ml puncak serapannya bernilai 0,025 au. Ini dapat diprediksikan bahwa jumlah nanopartikel pada sampel dengan konsentrasi HCl 0,02; 0,10 dan 0,15 ml lebih banyak jika dibandingkan dengan sampel pada konsentrasi HCl 0,05 dan 0,15 ml sehingga untuk penumbuhan selanjutnya dipilih konsentrasi HCl 0,02; 0,10 dan 0,15 ml.

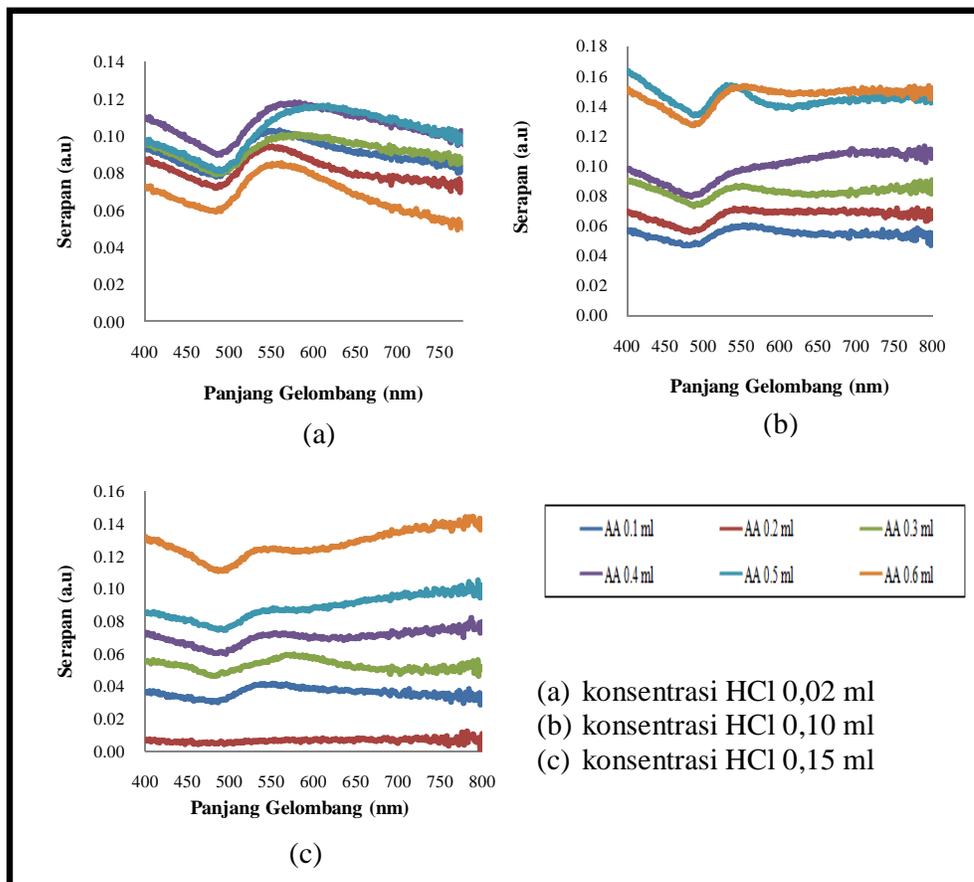
Dari pengukuran pH yang dilakukan pada larutan penumbuh dengan konsentrasi HCl 0,15 ml diperoleh bahwa pH larutan pada awal reaksi penumbuhan adalah sebesar 3. Hal ini menunjukkan bahwa dengan mediasi pembedahan, nanopartikel emas dapat ditumbuhkan pada kondisi larutan penumbuh yang bersifat asam.

2. Variasi Asam Askorbat

Pada gambar 5.5 (a), dapat dilihat bahwa sampel yang disiapkan pada berbagai konsentrasi asam askorbat dan konsentrasi HCl 0,02 ml hanya memiliki satu puncak serapan, yaitu pada panjang gelombang 550 nm. Namun, kurva serapan dari sampel yang ditumbuhkan dengan konsentrasi asam askorbat 0,3 ml; 0,4 ml dan 0,5 ml mengalami pelebaran. Fenomena ini memberikan gambaran kemungkinan bahwa pada konsentrasi tersebut, *gold nanorods* sudah mulai terbentuk meskipun masih dalam jumlah yang sedikit.

Gambar 5.5 (b) memperlihatkan bahwa nanopartikel yang ditumbuhkan pada konsentrasi HCl 0,10 ml dengan konsentrasi asam askorbat 0,5 ml dan 0,6 ml memiliki kurva serapan yang lebih tinggi dibandingkan dengan kurva serapan sampel lainnya. Kurva serapan pada sampel dengan konsentrasi asam askorbat 0,4 ml memiliki kecenderungan naik pada daerah panjang gelombang di atas 550 nm. Sedangkan dari gambar 5.5 (c) dapat dilihat bahwa kurva serapan nanopartikel yang ditumbuhkan pada konsentrasi HCl 0,15 ml dan konsentrasi asam askorbat 0,3 ml memiliki kecenderungan munculnya dua puncak serapan, yaitu pada daerah panjang gelombang 550 nm (TSPR) dan 570 nm (LSPR).

Dari penumbuhan dengan variasi konsentrasi asam askorbat, dapat diamati bahwa semakin kecil konsentrasi asam askorbat yang ditambahkan pada larutan penumbuh, maka semakin sedikit pula nanopartikel yang terbentuk, terlihat dari kurva serapannya yang rendah. Begitu juga sebaliknya, dimana sampel yang ditumbuhkan dengan konsentrasi asam askorbat yang tinggi (0,6 ml) memiliki kurva serapan yang tinggi seperti terlihat pada gambar 5.5 (b) dan (c). Hal ini diprediksikan bahwa semakin banyak konsentrasi asam askorbat yang ditambahkan pada larutan penumbuh maka akan semakin banyak pula ion emas yang tereduksi menjadi atom emas sesuai dengan persamaan (5.3) sehingga terbentuk lebih banyak nanopartikel emas.

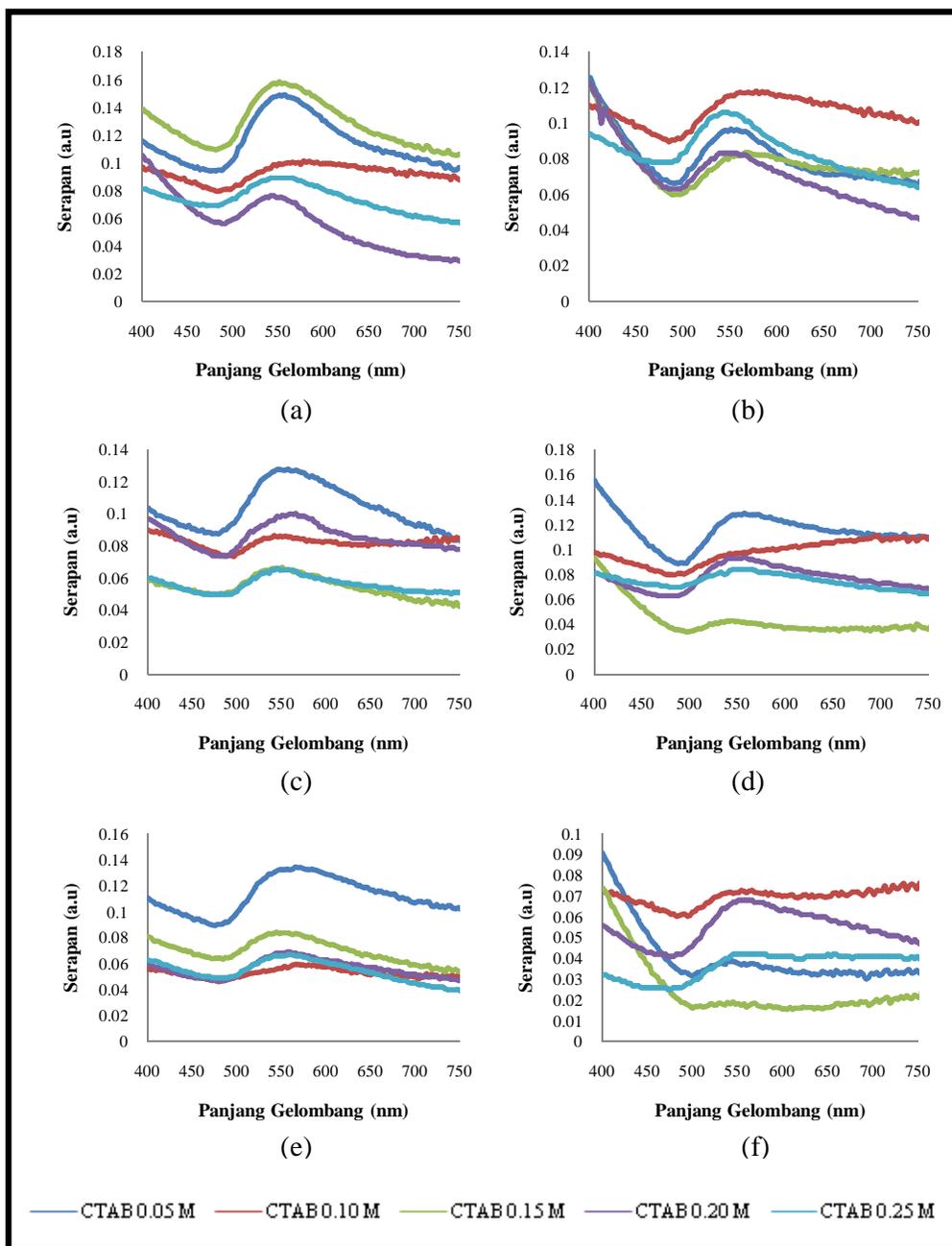


Gambar 5.5. Kurva serapan sampel yang ditumbuhkan pada berbagai konsentrasi asam askorbat

3. Variasi CTAB

Berdasarkan hasil optimum yang diperoleh pada penumbuhan nanopartikel dengan variasi HCl dan asam askorbat, maka untuk mendapatkan sampel yang lebih baik kajian efek CTAB juga dilakukan dengan enam variasi konsentrasi HCl dan asam askorbat yang optimum.

Dari gambar 5.6 dapat dilihat bahwa nanopartikel yang ditumbuhkan pada konsentrasi CTAB 0.10 M memiliki karakteristik yang sedikit berbeda dibandingkan dengan nanopartikel yang ditumbuhkan dengan konsentrasi CTAB lainnya. Nanopartikel yang ditumbuhkan dengan konsentrasi CTAB 0,10 M serapannya memiliki kecenderungan naik setelah melewati daerah panjang gelombang 550 nm. Kurva serapan yang naik pada daerah panjang gelombang di atas 540 nm merupakan indikasi terbentuknya LSPR.

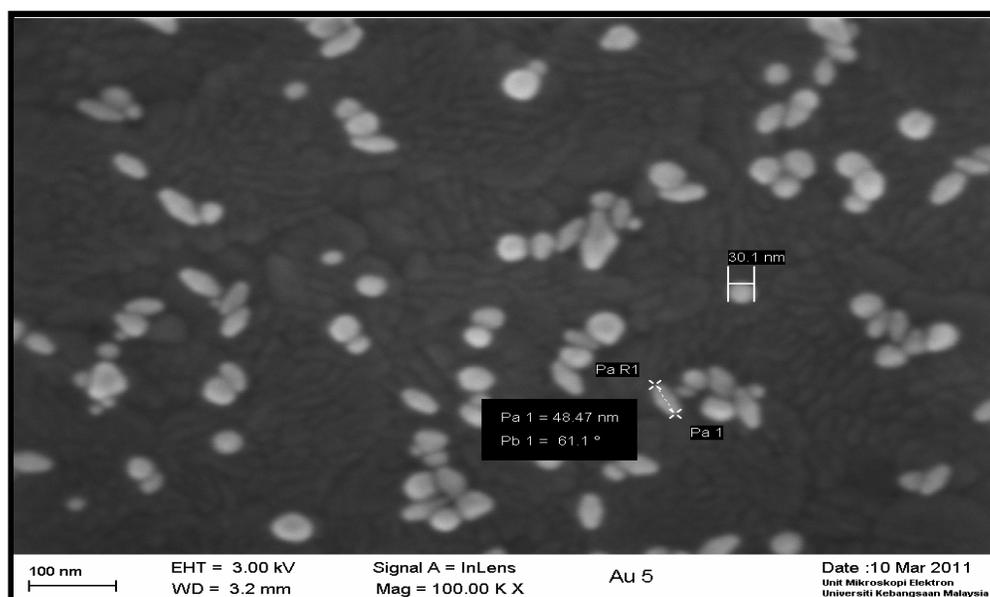


Gambar 5.6. Kurva serapan sampel yang ditumbuhkan pada berbagai konsentrasi CTAB (0,05 M; 0,10 M; 0,15 M; 0,20 M dan 0,25 M) dengan konsentrasi HCl dan asam askorbat: (a) 0,02 ml HCl dan 0,3 ml asam askorbat (b) 0,02 ml HCl dan 0,4 ml asam askorbat (c) 0,10 ml HCl dan 0,3 ml asam askorbat (d) 0,10 ml HCl dan 0,4 ml asam askorbat (e) 0,15 ml HCl dan 0,3 ml asam askorbat serta (f) 0,15 ml HCl dan 0,4 ml asam askorbat

Gambar 5.6. menginformasikan bahwa konsentrasi CTAB berperan penting dalam pembentukan *gold nanorods*. Ketika konsentrasi CTAB yang ditumbuhkan pada larutan penumbuh dibawah 0,10 M, nanopartikel emas tumbuh secara radial. Jadi, sebagai agen

pembungkus yang malapisi permukaan atom emas ketika proses penumbuhan, CTAB berperan penting dalam mengontrol proses pemanjangan *gold nanorods*. Pada saat CTAB yang ditambahkan ke dalam larutan penumbuh memiliki konsentrasi yang rendah (di bawah 0,10 M), kemungkinan permukaan atom emas tidak terlapisi secara sempurna sehingga atom-atom emas pada larutan sumber lebih mudah tertarik ke semua sisi benih atom emas, sehingga terjadi penumbuhan nanopartikel dalam semua arah. Ketika konsentrasi CTAB dinaikkan, ada kemungkinan bahwa benih atom yang direndam pada larutan penumbuh terkapsul secara sempurna, sehingga selama proses penumbuhan, hanya bidang yang memiliki energi permukaan lebih besar yang mampu menarik atom-atom emas pada larutan sumber. Dengan demikian, selama proses penumbuhan, bidang permukaan yang memiliki energi permukaan lebih besar akan lebih cepat memanjang dibandingkan dengan bidang permukaan yang lainnya sehingga terbentuklah *gold nanorods* yang tumbuh dalam arah salah satu bidang permukaan. Penambahan konsentrasi CTAB akan menyebabkan permukaan atom emas pada larutan penumbuh tertutupi oleh ion CTA^+ , sehingga penambahan konsentrasi CTAB yang terlalu besar akan menghalangi atom-atom emas dari larutan sumber tertarik ke benih atom emas sehingga menghambat proses pertumbuhan..

Gambar 5.7 menunjukkan bentuk nanopartikel emas yang telah ditumbuhkan pada kondisi optimum nanopartikel yang ditumbuhkan pada konsentrasi HCl 0,15 ml; konsentrasi asam askorbat 0,3 ml dan konsentrasi CTAB 0,10 M. ini dari hasil karakterisasi SEM.

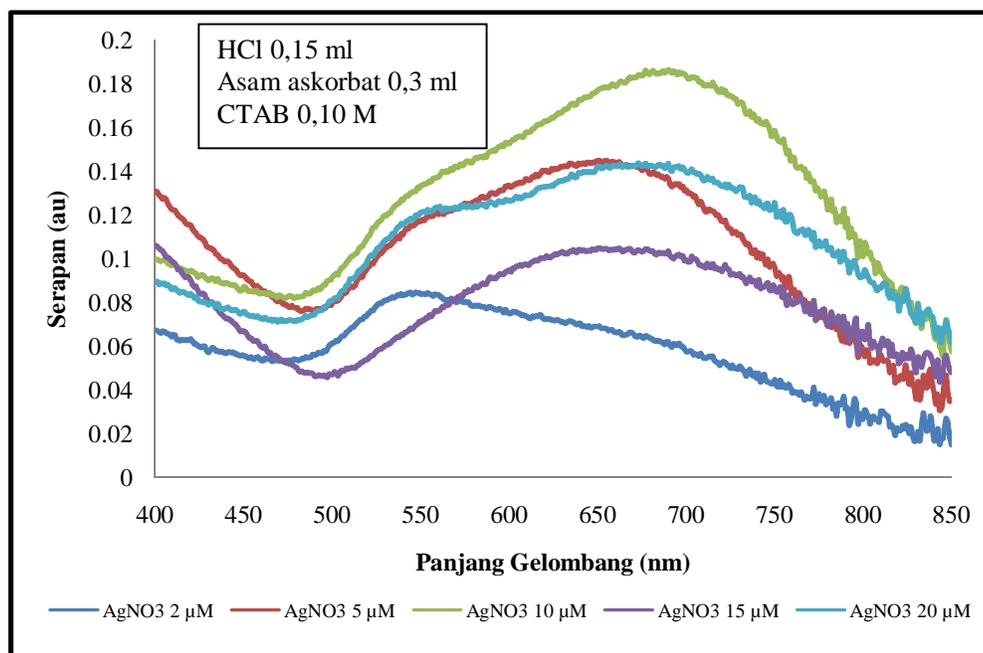


Gambar 5.7. Bentuk nanopartikel emas yang ditumbuhkan pada kondisi HCl, asam askorbat dan CTAB maksimum

Dari gambar 5.7. dapat dilihat bahwa nanopartikel emas yang terbentuk sebagian besar masih berbentuk spheris dengan diameter 30 nm. Namun, bentuk *nanorods* sudah mulai muncul meskipun jumlahnya masih sangat sedikit. *Gold nanorods* yang terbentuk memiliki diameter sekitar 30,1 nm dan panjang 48,47 nm, sehingga dapat dihitung nilai aspek rasionya dengan menggunakan persamaan (5.3) dan diperoleh nilai aspek rasio sebesar 1,6.

4. Pengaruh Penambahan AgNO_3 Terhadap Penumbuhan *Gold Nanorods*

Kurva serapan nanopartikel yang ditumbuhkan pada kondisi HCl, asam askorbat dan CTAB yang optimum serta dengan penambahan AgNO_3 yang divariasikan konsentrasinya diperlihatkan pada gambar 5.8.

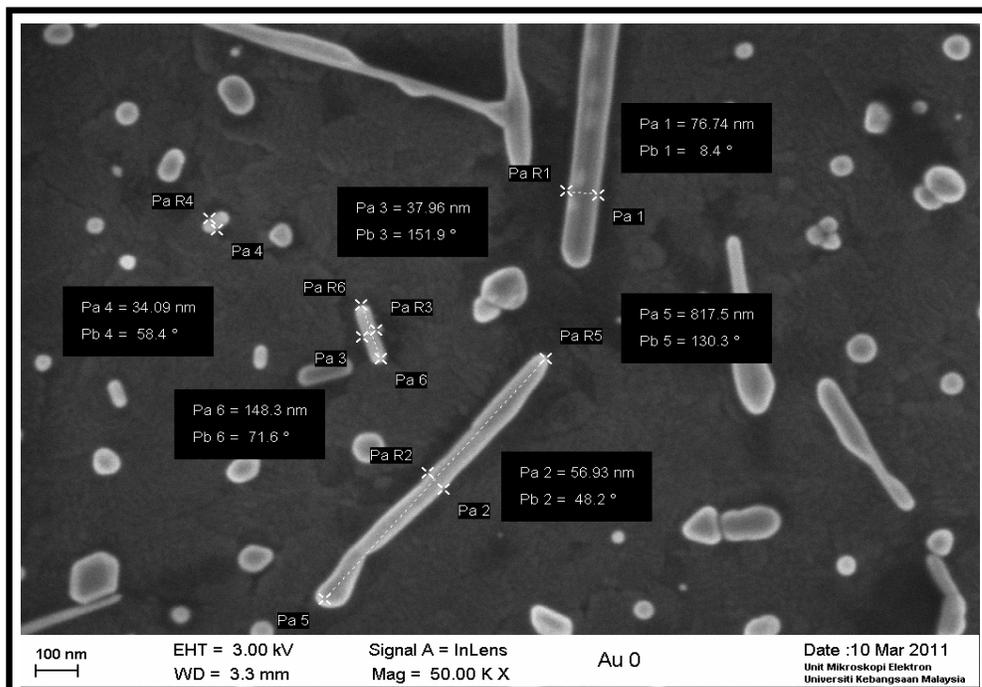


Gambar 5.8. Kurva serapan sampel yang ditumbuhkan pada berbagai konsentrasi AgNO_3

Gambar 5.8 memperlihatkan bahwa dengan penambahan AgNO_3 , selain kurva serapan TSPR pada daerah panjang gelombang 550 nm juga muncul kurva serapan LSPR pada daerah panjang gelombang 650 nm – 700 nm tergantung dari konsentrasi AgNO_3 yang ditambahkan dalam larutan penumbuh. Namun, fenomena ini tidak berlaku untuk nanopartikel yang ditumbuhkan dengan penambahan AgNO_3 paling sedikit (2 μM) dimana puncak kurva serapannya hanya muncul pada daerah panjang gelombang 550 nm. Hal ini terjadi diperkirakan karena konsentrasi AgNO_3 yang ditambahkan sangat sedikit sekali sehingga tidak mempengaruhi dalam proses pertumbuhan *nanorods*. Kurva serapan tertinggi

terjadi pada nanopartikel yang ditumbuhkan dengan konsentrasi AgNO_3 $10 \mu\text{M}$ dengan nilai serapan pada daerah TSPR 0.1331 au dan pada daerah LSPR sebesar 0,2 au. Dari gambar tersebut juga dapat dilihat bahwa pada nanopartikel yang telah ditumbuhkan dengan konsentrasi AgNO_3 $10 \mu\text{M}$ memiliki daerah serapan TSPR paling besar (yaitu pada panjang gelombang 700 nm) dibandingkan dengan sampel lainnya. Dengan demikian, konsentrasi AgNO_3 yang optimum dalam penumbuhan *gold nanorods* adalah $10 \mu\text{M}$.

Penambahan AgNO_3 memiliki pengaruh yang signifikan dalam pembentukan *gold nanorods* selama proses penumbuhan (terlihat dari kurva serapan sampel yang ditumbuhkan dengan penambahan AgNO_3 rata-rata memiliki dua puncak serapan). Hal ini diperkirakan bahwa dengan penambahan AgNO_3 ke dalam larutan penumbuh yang terdiri dari CTAB, selama proses penumbuhan kation dari AgNO_3 dan anion dari CTAB bersatu membentuk senyawa AgBr . Menurut hipotesis, kehadiran senyawa AgBr dalam larutan penumbuh akan mengabsorpsi lapisan pada permukaan partikel emas sehingga terbentuk *gold nanorods* (Garg et al, 2010). Bentuk nanopartikel emas yang telah ditumbuhkan dengan penambahan AgNO_3 dengan konsentrasi $10 \mu\text{M}$ dari hasil karakterisasi dengan SEM diperlihatkan pada gambar 5.9.

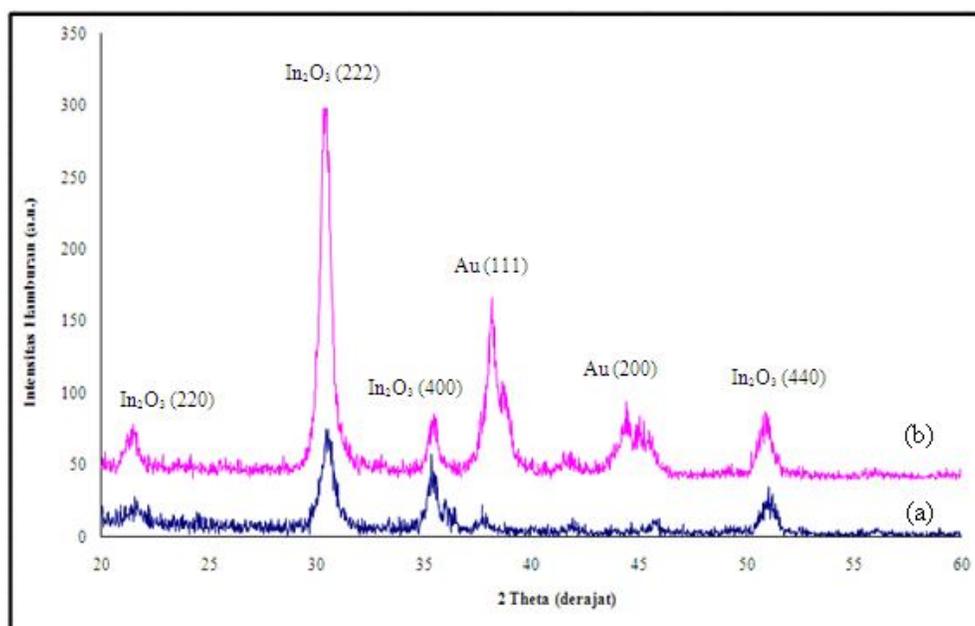


Gambar 5.9. Bentuk nanopartikel emas yang ditumbuhkan dengan penambahan AgNO_3

Dari hasil foto SEM (gambar 5.9) dapat dilihat bahwa sampel yang telah ditumbuhkan dengan penambahan AgNO_3 memiliki konsentrasi *rods* yang lebih tinggi dibandingkan dengan sampel yang ditumbuhkan tanpa penambahan AgNO_3 (gambar 4.4), meskipun ukuran diameter dan panjang *gold nanorods*nya belum seragam. Dari gambar tersebut, dapat diketahui bahwa *gold nanorods* yang terbentuk memiliki nilai aspek rasio yang berkisar dari 1,1 – 5,6.

Dari gambar 5.9. juga dapat diamati bahwa ada beberapa *gold nanorods* yang terbentuk memiliki bentuk *rods* yang tidak sempurna. Hal ini diperkirakan akibat efek *Ostwald ripening*, dimana selama waktu penumbuhan 2 jam pada larutan penumbuh konsentrasi ion-ion pembentuk *gold nanorods* mengalami pengurangan sehingga atom-atom yang telah membentuk *gold nanorods* meluruh kembali ke dalam larutan penumbuh.

Untuk memastikan bahwa nanopartikel yang telah tumbuh merupakan nanopartikel emas, diperlihatkan hasil karakterisasi difraksi sinar-X yang di analisa dengan menggunakan aplikasi *Eva Diffrac Plus Evaluation* versi 10.00.3 seperti pada gambar 5.10.

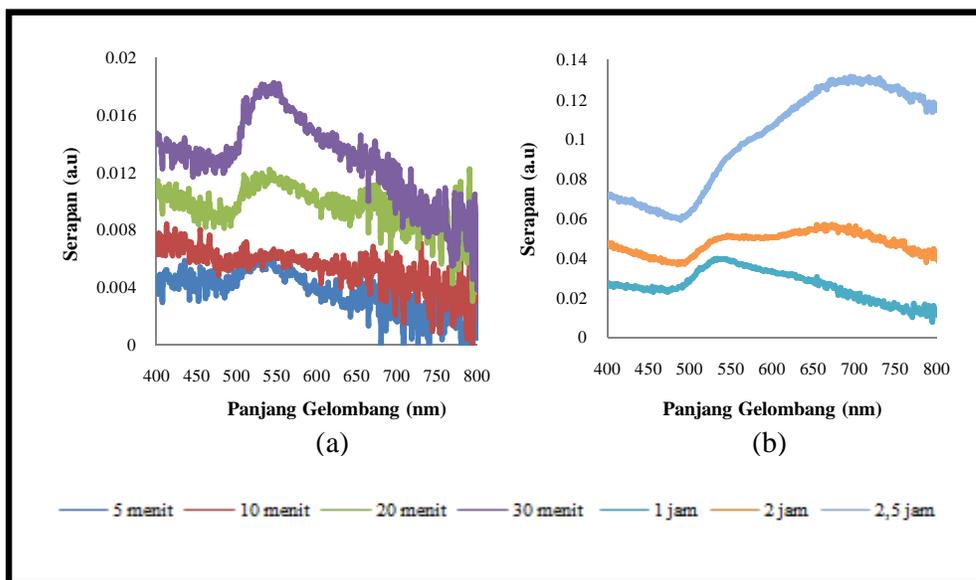


Gambar 5.10. Hasil karakterisasi difraksi sinar-X (a) Substrat kosong dan (b) nanopartikel emas yang ditumbuhkan di atas substrat

Dari gambar difraksi sinar-X terlihat bahwa muncul dua puncak difraksi untuk unsur emas (nomor JCPDS 00-004-0784) yang terjadi pada sudut $38,185^\circ$ dan $44,393^\circ$ dengan bidang orientasi kristal (111) dan (200).

5. Pertumbuhan *Gold Nanorods*

Hasil karakterisasi spektroskopi UV-Vis terhadap sampel dengan variasi waktu penumbuhan diperlihatkan pada gambar 5.11.

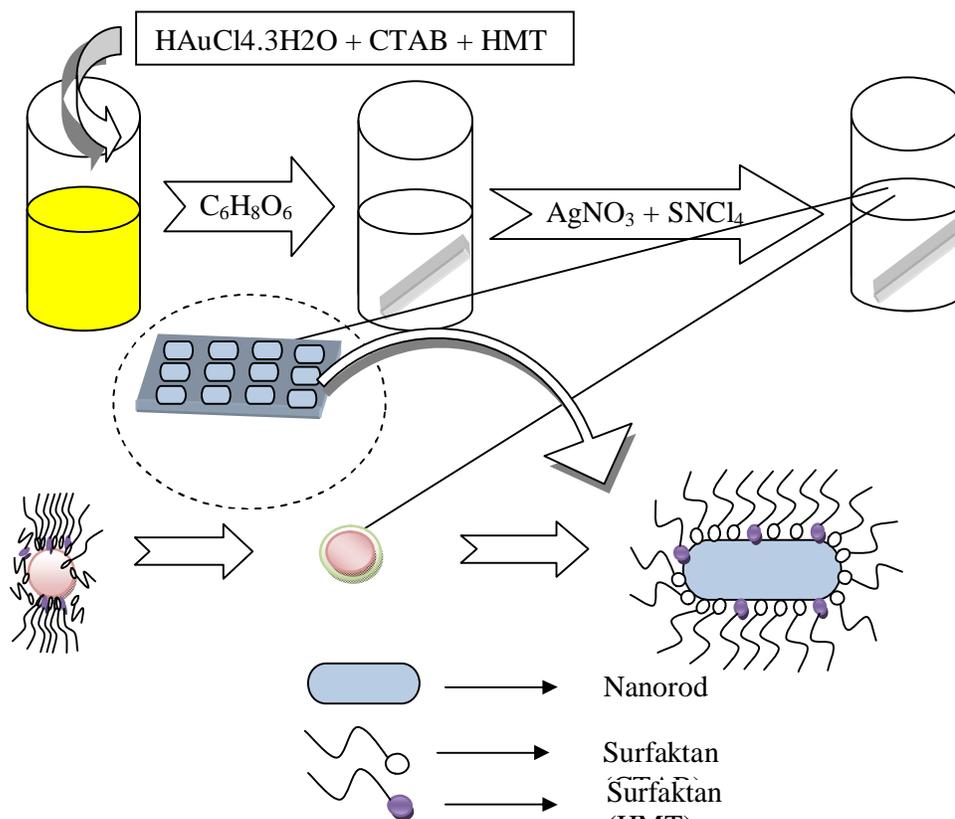


Gambar 5.11 Kurva serapan sampel yang ditumbuhkan dengan berbagai variasi waktu penumbuhan (a) penumbuhan dalam waktu 5 menit, 10 menit, 20 menit dan 30 menit (b) penumbuhan dalam waktu 1 jam, 2 jam dan 2,5 jam

Dari kurva serapan nanopartikel yang ditumbuhkan dengan berbagai variasi waktu penumbuhan (gambar 5.11), dapat dilihat bahwa semakin lama waktu penumbuhan, kurva serapannya semakin tinggi. Ini berarti jumlah nanopartikel yang terbentuk juga semakin bertambah seiring dengan bertambahnya waktu penumbuhan. Untuk waktu penumbuhan dari 5 menit sampai 1 jam, nanopartikel emas yang terbentuk sebagian besar berupa sferis, dilihat dari kurva serapannya yang hanya memiliki satu puncak serapan yang dominan, yaitu pada daerah panjang gelombang 550 nm. namun, jika diamati lebih teliti, pada daerah panjang gelombang sekitar 660 nm juga terbentuk puncak serapan, meskipun hanya sedikit sekali. *Gold nanorods* mulai jelas terbentuk saat waktu penumbuhan dibiarkan berlangsung selama 2 jam dan dari hasil karakterisasi UV-Vis menunjukkan bahwa sampel yang ditumbuhkan dengan waktu penumbuhan selama 2,5 jam memiliki kurva serapan tertinggi dibandingkan dengan sampel lainnya. Namun, waktu penumbuhan juga tidak boleh dibiarkan terlalu lama karena saat larutan penumbuh kehabisan ion-ion pembentuk *gold nanorods*, maka akan terjadi efek *Ostwald annealing* sehingga bentuk *rods*nya menjadi tidak sempurna.

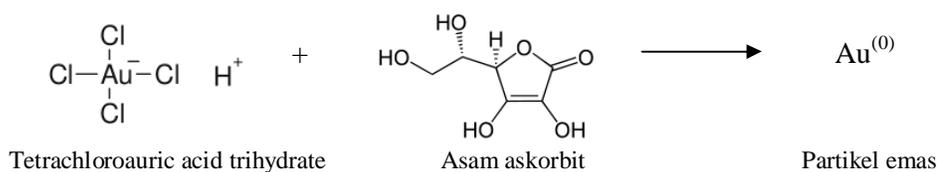
5.3. Penumbuhan dan Karakterisasi Nanopartikel gold nanorods melalui metode penumbuhan dengan mediasi pbenihan (seed-mediated growth) dengan surfaktan biner (CTAB dan HMT)

Proses penumbuhan nanorod emas terdiri dari larutan tetrachloroauric acid trihydrate (0.01 M, 0.5 ml), CTAB (divariasikan), HMT (divariasikan), asam askorbit (0.1 M, 0.3 ml), AgNO₃ (divariasikan) dan SNCl₄ (divariasikan). Proses ini harus didahului dengan pbenihan terlebih dahulu karena tanpa pbenihan nanopartikel tidak bisa ditumbuhkan. Proses penumbuhan pada larutan penumbuh diperlihatkan pada gambar 5.12.

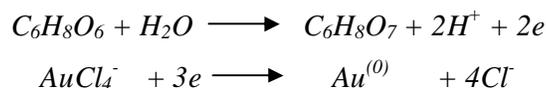


Gambar 5.12. Mekanisme Penumbuhan Pada Permukaan ITO

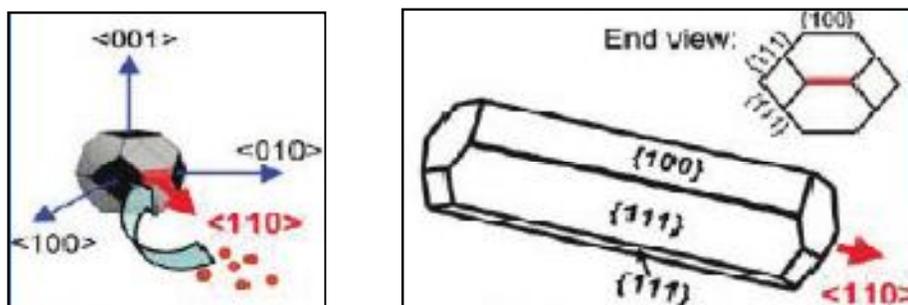
Dalam pembuatan nanopartikel dengan metode pbenihan reaksi reduksi di dalam larutan terhadap AuCl₄⁻ sangat penting. Dalam larutan penumbuhan AuCl₄⁻ direduksi oleh askorbig acid. Reaksinya sebagai berikut.



Dalam setengah reaksi dapat ditulis



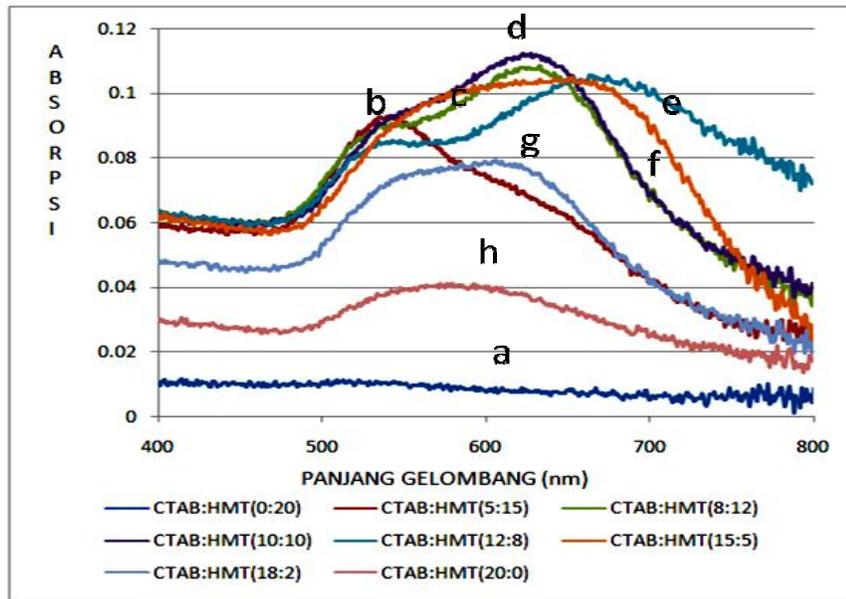
Pada setengah reaksi diatas bahwa 3 mol asam askorbik mereduksi 2 mol $AuCl_4^-$ yang mereduksi Au^{3+} menjadi $Au^{(0)}$. Partikel emas ($Au^{(0)}$) kemudian dibungkus oleh surfaktan CTAB dan HMT. Partikel yang terbungkus akan tumbuh melekat pada benih partikel emas dipermukaan ITO. Melekatnya partikel emas pada benih emas disebabkan adanya ion sitrat yang berada disekeliling benih emas yang bermuatan negative. Karena ion sitrat bermuatan negative dan surfaktan CTAB bermuatan positif (CTA^+) maka partikel emas yang dibungkus CTAB akan tertarik menuju benih emas pada permukaan ITO oleh ion sitrat. Selain itu terbentuknya nanorod emas juga dipengaruhi oleh energi permukaan kristal dengan bidang (100), (110) dan (111). Pada benih partikel bentuk yang sebenarnya bukan bulat sempurna melainkan berbentuk decahedron (Murphy, 2004) diperlihatkan pada gambar 5.13.



Gambar 5.13. Bidang Permukaan Emas. (A) Benih Emas (Au Seed) dan (B) Nanorod Emas. (Niti et al, 2010)

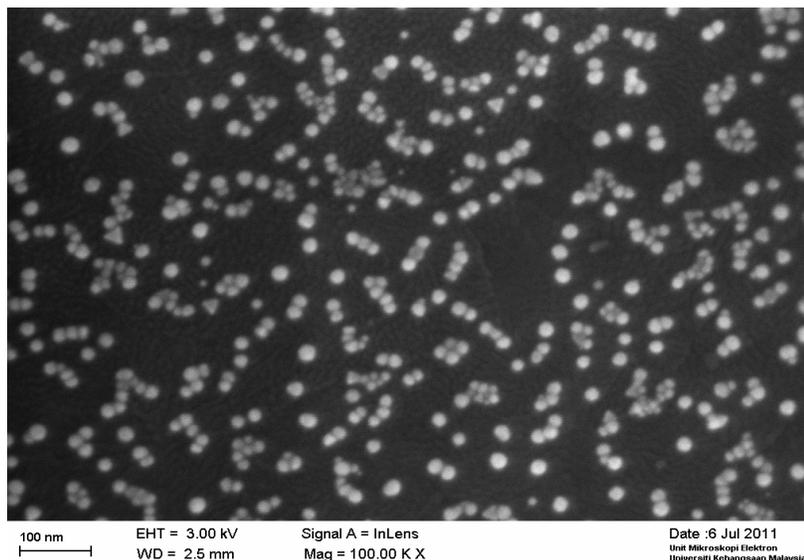
1. Penumbuhan Dengan CTAB

Pembuatan nanopartikel melalui metode kimia basah tidak lepas dari peranan CTAB sebagai agen pembungkus (capping agent) ataupun sebagai stabilisator. Pada penelitian ini CTAB yang digunakan adalah 0.01 mM dengan berbagai variasi volum. Penelitian ini juga menggunakan surfaktan biner yaitu mencampurkan CTAB dengan HMT. Perlu diketahui bahwa variasi larutan hanya dilakukan pada larutan penumbuh, sedangkan larutan pembenih dibuat sama. Penumbuhan dengan CTAB dilakukan dengan mereaksikan larutan emas (0.01 M, 0.5 mL), CTAB (0.01 M, 20 mL), asam askorbit (0.1 M, 0.3 mL), $AgNO_3$ (0.01 M, 40 μ L) dan $SNCl_4$ (0.01 M, 10 μ L). Hasil dari reaksi tersebut pada karakteristik UV-Vis diperlihatkan pada grafik 15h.



Gambar 5.14. Grafik hasil Spektrofotometri Uv-Vis. a = CTAB:HMT (0:20), b = CTAB:HMT (5:15), c = CTAB:HMT (8:12), d = CTAB:HMT (10:10), e = CTAB:HMT (12:8), f = CTAB:HMT (15:5), g = CTAB:HMT (18:2), h = CTAB:HMT (20:0)

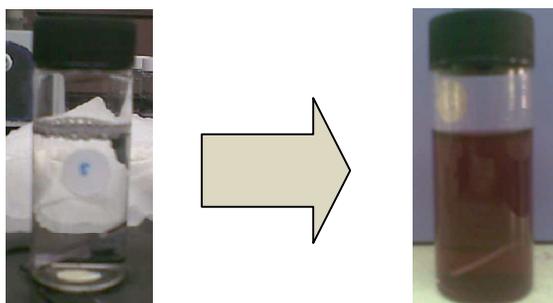
Grafik hasil Uv-Vis diatas menjelaskan tingkat absorpsi dari partikel emas yang tumbuh pada ITO sesuai panjang gelombang tertentu. Konsentrasi (h) dengan perbandingan CTAB:HMT (20:0) artinya penumbuhan hanya menggunakan surfaktan CTAB. Terlihat pada grafik hasil Uvi-Vis puncak grafik hanya satu maka dapat disimpulkan pada permukaan ITO tumbuh nanopartikel yang berbentuk sferikal. Hasil ini diperjelas dengan hasil SEM dengan pembesaran 100.000X pada gambar 5.15.



Gambar 5.15. Hasil SEM dari sampel dengan CTAB 0,01 M, 20 ml

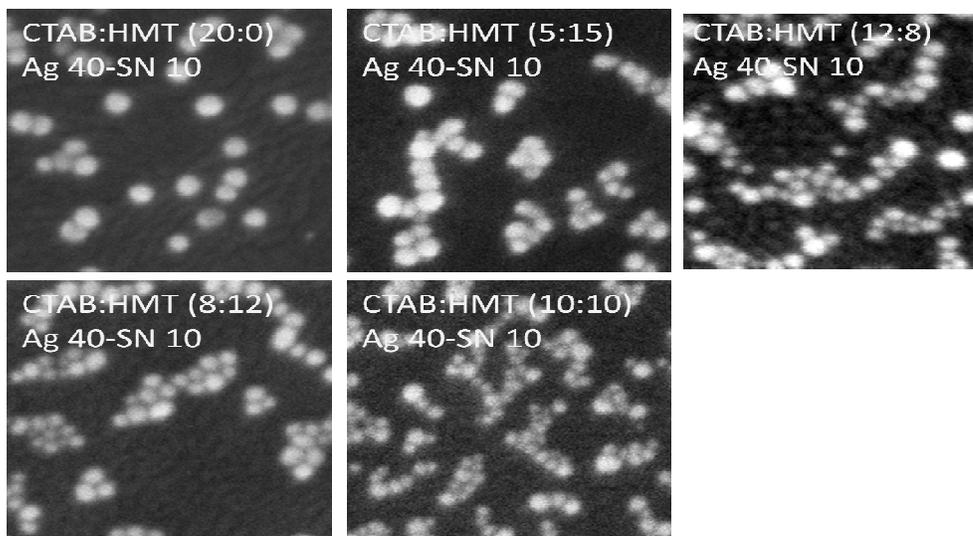
2. Penumbuhan Nanorod Emas dengan HMT

Pada proses ini larutan penumbuh disiapkan dengan campuran larutan emas (0.01 M, 0.5 mL), HMT (0.01 M, 20 mL), asam askorbit (0.1 M, 0.3 mL), AgNO_3 (0.01 M, 40 μL) dan SNCl_4 (0.01 M, 10 μL). Penumbuhan nanorod emas dengan menggunakan surfaktan HMT sangat tidak efektif. Hal ini dapat dilihat pada gambar grafik 4.5 diatas pada konsentrasi (a). Perbandingan CTAB:HMT (0:20) menghasilkan hasil penyerapan yang sangat kecil dimana tidak terbentuk puncak transversal dan longitudinal. Hal ini menandakan sangat sedikitnya nanopartikel yang tumbuh pada ITO. Pada konsentrasi ini nanopartikel akan tumbuh lebih cepat dalam larutan dari pada di permukaan ITO. Hal ini terlihat pada saat penumbuhan larutan yang semulanya berwarna bening akan berubah warna menjadi ungu sedangkan pada permukaan ITO tidak mengalami perubahan warna (gambar 5.16). Perubahan warna dalam larutan sebagai tanda telah terbentuknya nanopartikel dalam larutan.



Gambar 5.16. Perubahan Warna Dalam Larutan Penumbuh Dengan Surfaktan HMT. Partikel Tumbuh Dalam Larutan.

Penumbuhan ini dilakukan dengan pencampuran larutan emas (0.01 M, 0.5 mL), CTAB (divariasikan), HMT (divariasikan), asam askorbit (0.1 M, 0.3 mL), AgNO_3 (0.01 M, 40 μL) dan SNCl_4 (0.01 M, 10 μL). Pada perbandingan konsentrasi dari a-d terjadi peningkatan penyerapan terhadap cahaya tampak yang signifikan sedangkan pada konsentrasi e-f terjadi penurunan serapan terhadap cahaya tampak. Serapan yang tertinggi terjadi pada konsentrasi dengan perbandingan (10:10) yang memberikan penafsiran tumbuhnya nanopartikel yang lebih seragam dan memiliki kepadatan yang lebih padat dibanding konsentrasi yang lain. Konsentrasi (d) memiliki bentuk serapan yang hampir sama dengan konsentrasi (c) namun serapannya lebih kecil dari konsentrasi (d). Kedua konsentrasi ini juga memiliki bentuk transversal sekitar 530 nm dan bentuk longitudinal sekitar 630 nm. Konsentrasi lainnya yang menyerap cahaya tampak pada panjang gelombang yang lebih besar adalah konsentrasi (e) dengan bentuk transversal sekitar 530 nm dan longitudinal sekitar 680 nm bentuk ini menghasilkan nanopartikel yang tidak seragam.



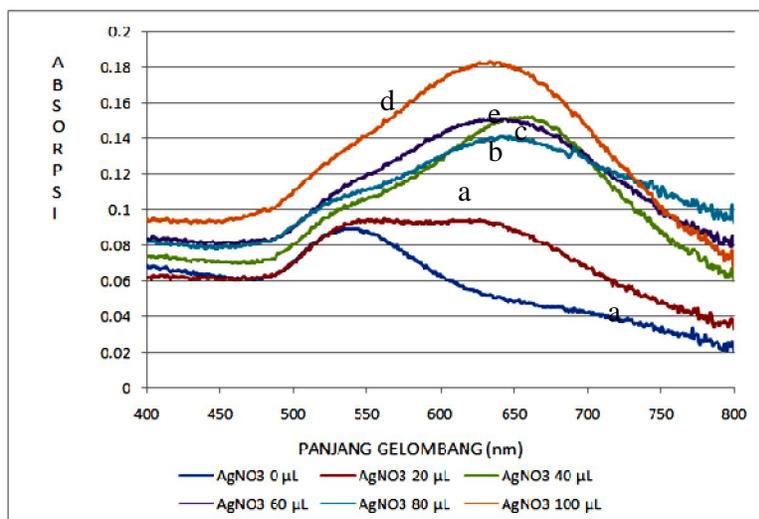
Gambar 5.17. Hasil SEM dari samping dengan variasi perbandingan CTAB:HMT

Hasil di atas memperlihatkan bahwa dengan menggunakan surfaktan biner hasil yang didapat lebih banyak dan seragam. Penggunaan surfaktan biner juga menghasilkan bentuk quasi nanorod satu dimensi (rice-shape) dibanding hanya menggunakan CTAB atau HMT. Jadi perbandingan CTAB:HMT (10:10) merupakan hasil maksimum pada penelitian ini, sehingga perbandingan ini yang akan dijadikan sebagai standar penumbuhan emas bentuk padi (rice-shape) selama melakukan pembuatan nanopartikel.

3. Penumbuhan Tanpa AgNO_3

Hasil dari penelitian awal menjelaskan bahwa AgNO_3 sebagai faktor pembentuk nanorod (Murphy et al, 2004). Dalam penelitian ini juga didapatkan bahwa penumbuhan tanpa menggunakan AgNO_3 menghasilkan nanopartikel emas yang berbentuk sferikal bukan nanorod. Hal ini terlihat pada grafik spektrofotometri (gambar 5.18).

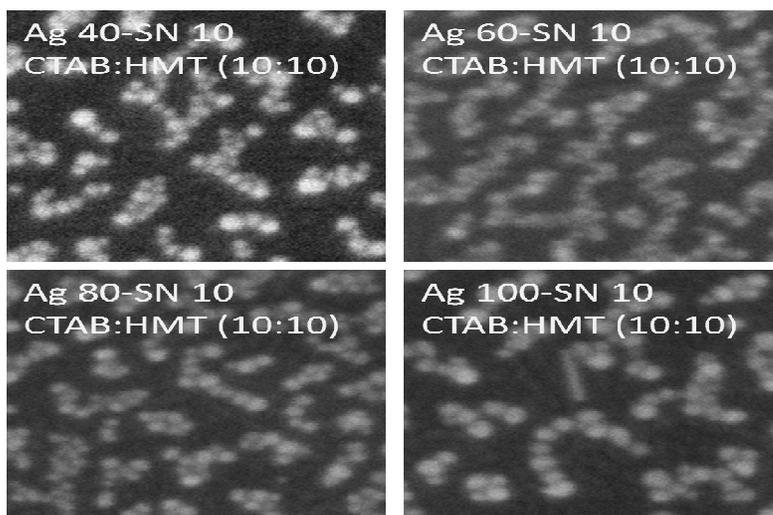
Grafik (a) menggunakan AgNO_3 0 μL ternyata menghasilkan grafik dengan satu puncak sekitar 550 nm. Ciri grafik dengan satu puncak ini merupakan bentuk sferikal dari nanopartikel emas. Jadi penumbuhan tanpa AgNO_3 tidak dapat menghasilkan nanopartikel yang berbentuk rod (rice-shape). Proses penumbuhan ini dilakukan dengan pencampuran larutan emas (0.01 M, 0.5 mL), CTAB (0.01 M, 10 ml), HMT (0.01 M, 10 ml), asam askorbit (0.1 M, 0.3 mL), dan SNCl_4 (0.01 M, 10 μL).



Gambar 5.18. grafik hasil UV-Vis variasi konsentrasi AgNO_3 1mM. (a) AgNO_3 0 μL , (b) AgNO_3 20 μL , (c) AgNO_3 40 μL , (d) AgNO_3 60 μL , (e) AgNO_3 80 μL , (f) AgNO_3 100 μL

4. Penumbuhan Dengan AgNO_3

Pada proses ini larutan penumbuh berisi larutan emas (0.01 M, 0.5 mL), CTAB (0.01 M, 10 ml), HMT (0.01 M, 10 ml), asam askorbit (0.1 M, 0.3 mL), AgNO_3 (divariasikan) dan SNCl_4 (0.01 M, 10 μL). Dari hasil UV-Vis dari variasi konsentrasi AgNO_3 tersebut menunjukkan bahwa konsentrasi (b-f) pada grafik memperlihatkan bentuk dari nanorod, dengan terbentuknya dua puncak transversal dan longitudinal. Peningkatan konsentrasi (b-f) AgNO_3 menghasilkan peningkatan penumbuhan nanopartikel, terlihat puncak tertinggi pada konsentrasi AgNO_3 100 μL . Untuk lebih jelas hasil penumbuhan pada permukaan ITO dapat dilihat pada hasil SEM dibawah ini.

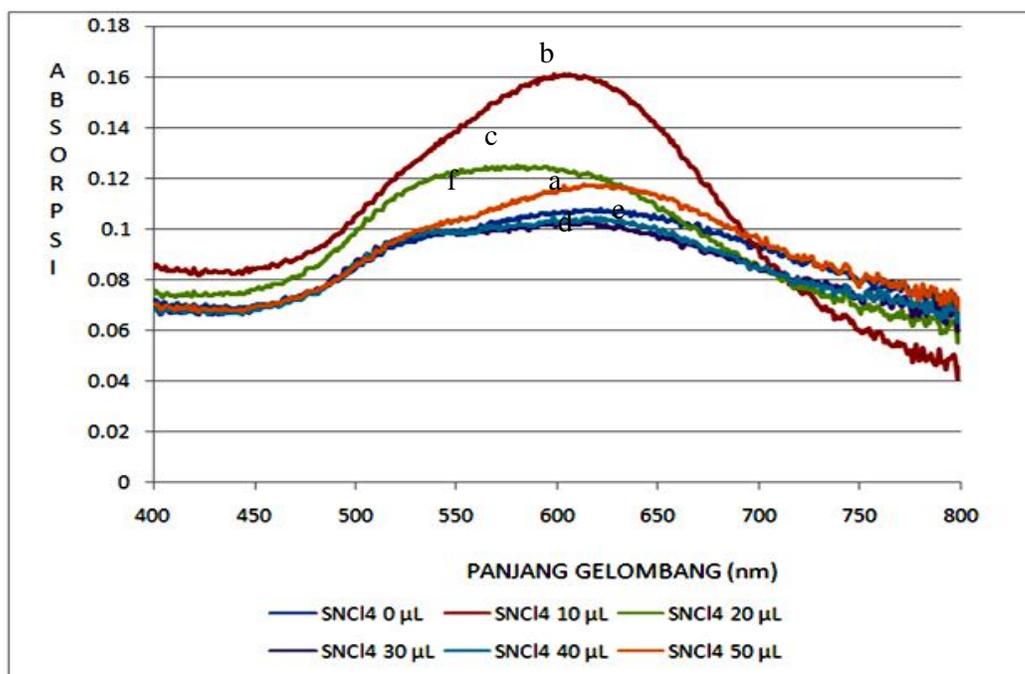


Gambar 5.19. Hasil SEM dari sampel dengan variasi AgNO_3

Ketika konsentrasi dinaikan dari 20 μL – 100 μL hasil yang didapatkan juga meningkat. Pada hasil SEM terlihat nanopartikel yang berbentuk bukan sferikal akan tetapi bentuknya merupakan quasi rod satu dimensi. Bentuk tersebut dikuatkan dengan bentuk dari grafik pada gambar 5.18 dimana terbentuk dua puncak yaitu puncak transversal dan longitudinal yang berbeda-beda pada tiap konsentrasi. Pada AgNO_3 40 μL - 60 μL menghasilkan quasi rod yang kecil sedangkan pada AgNO_3 80 μL – 100 μL menghasilkan quasi rod yang lebih besar. Jadi semakin konsentrasi dinaikan maka hasil quasi rod yang didapatkan akan lebih banyak dan ukurannya juga lebih besar. Pada konsentrasi AgNO_3 100 μL sudah memperlihatkan quasi rod yang lebih sempurna dan sudah tampak nanorodnya. Jadi dapat disimpulkan bahwa AgNO_3 sebagai faktor pembentuk nanorod dan pada penelitian ini AgNO_3 mencapai maksimum diambil pada konsentrasi 0.01 M, 100 μL , akan tetapi kemungkinan masih dapat ditingkatkan lagi konsentrasinya.

5. Penumbuhan Tanpa SNCl_4

Penumbuhan ini menggunakan larutan perbandingan CTAB dan HMT maksimum serta AgNO_3 maksimum tanpa menggunakan SNCl_4 . Hasil karakterisasi UV-Vis pada proses penumbuhan ini diperlihatkan pada gambar 5.20.

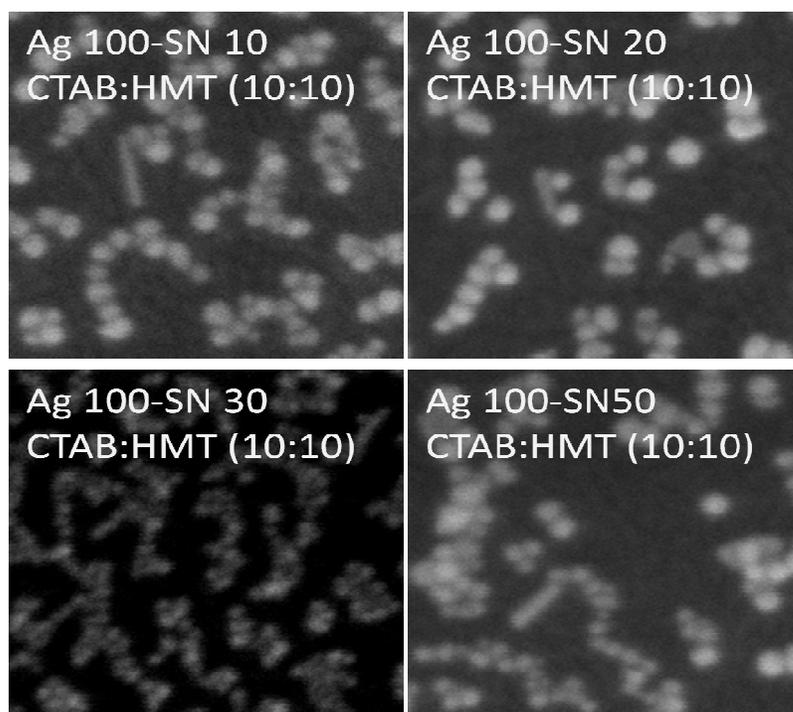


Gambar 5.20. Grafik Hasil UV-Vis variasi SNCl_4 . (a) 0 μL , (b) 10 μL , (c) 20 μL , (d) 30 μL , (e) 40 μL , (f) 50 μL .

Variasi SNCl_4 dilakukan untuk mencari pengaruhnya dalam pembentukan nanorod pada permukaan substrat. Beberapa variasi yang dibuat adalah 0 μL , 10 μL , 20 μL , 30 μL , 40 μL , 50 μL seperti pada gambar 5.19. Pada grafik diatas terlihat pada konsentrasi (a) bentuk grafik memiliki dua puncak begitu juga pada konsentrasi (b-f). Walaupun penumbuhan tanpa SNCl_4 juga memperoleh ciri grafik nanorod namun penyerapannya masih rendah maka perlu dilakukan penambahan SNCl_4 pada penumbuhan quasi rod emas.

6. Penumbuhan Dengan SNCl_4

Pada gambar 5.21 peningkatan konsentrasi SNCl_4 mendapatkan hasil grafik yang semakin menurun. Hal ini menandakan hasil yang terdapat pada permukaan substrat juga menurun. Namun pada konsentrasi (b) mendapatkan hasil yang maksimum dengan puncak transversal sekitar 530 nm dan puncak longitudinal sekitar 600 nm. Jadi penelitian ini mendapatkan konsentrasi SNCl_4 maksimum pada SNCl_4 (0,1 M, 10 μL). Untuk lebih jelasnya perhatikan hasil SEM dibawah ini.



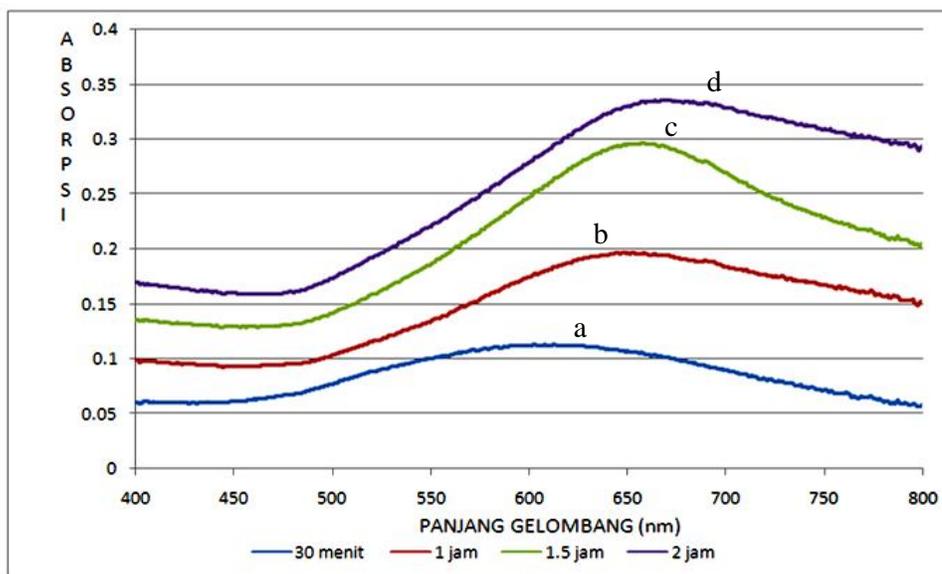
Gambar 5.21. Hasil SEM Variasi SNCl_4

Hasil SEM diatas memperlihatkan bentuk quasi rod yang membentuk rantai dan bukan merupakan bentuk sperikal karena bentuk sperikal tidak memiliki grafik dengan dua puncak. Pada gambar 5.21 terlihat bahwa jika konsentrasi SNCl_4 ditingkatkan maka hasil yang didapat adalah ukurannya semakin kecil dengan jumlah yang semakin sedikit yang

mengakibatkan penyerapan pada UV-Vis semakin kecil. Hasil yang maksimum diperlihatkan adalah pada konsentrasi SnCl_4 mencapai $10 \mu\text{L}$ maka konsentrasi ini yang dipakai dalam penumbuhan quasi rod satu dimensi pada penelitian ini.

7. Variasi Waktu Penumbuhan

Hasil dari UV-Vis variasi waktu penumbuhan dapat dilihat pada grafik dibawah ini.

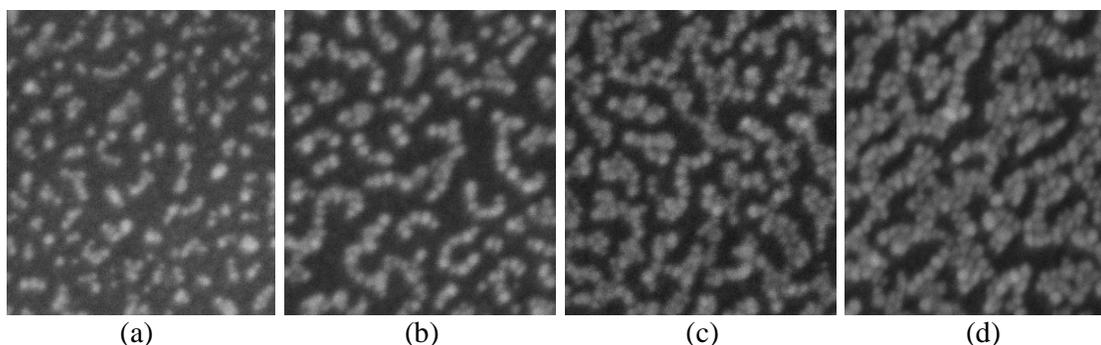


Gambar 5.22. Grafik Hasil UV-Vis Variasi Waktu Penumbuhan.
(a) 30 menit, (b) 1 jam, (c) 1,5 jam, (d) 2 jam

Grafik diatas memperlihatkan hasil yang signifikan ketika waktu penumbuhan dinaikan. Pada konsentrasi (grafik a) dapat disimpulkan bahwa nanopartikel yang tumbuh sangat sedikit dengan tingkat kepadatan yang kurang. Puncak longitudinal juga semakin besar pada panjang gelombang tiap waktu penumbuhan. Akan tetapi puncak transversalnya hampir sama pada 550 nm dan kedua puncak memiliki batas pisah yang jelas ketika waktu penumbuhannya semakin lama. Hasil diatas juga menjelaskan bahwa semakin lama waktu penumbuhan mencapai 2 jam hasil yang diperoleh akan lebih seragam dengan densitas partikel yang padat.

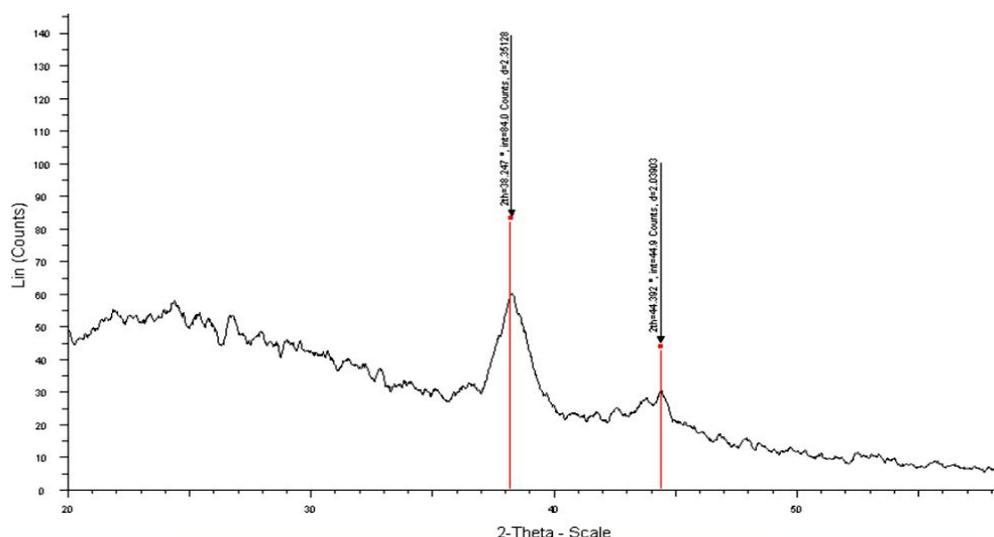
Hasil SEM (gambar 5.23) menjelaskan bahwa semakin lama waktu penumbuhan dilakukan maka banyak quasi rod yang tumbuh pada permukaan substrat dengan densitas yang semakin padat dan ukuran yang rata-rata seragam. Pada waktu 30 menit sampai 1 jam quasi rod belum banyak yang tumbuh pada permukaan substrat namun setelah 1,5 – 2 jam quasi rod sudah banyak yang tumbuh. Terlihat juga bahwa pada 1,5 – 2 jam quasi rod yang

tumbuh ukuranya sudah seragam dan dengan densitas yang cukup tinggi. Dengan melakukan variasi waktu penumbuhan yang dilakukan dengan cara ini waktu penumbuhan dapat dilakukan selama berjam-jam melebihi 2 jam karena setiap 30 menit dilakukan pembaharuan larutan penumbuh akan tetapi kemungkinan hasil quasi rodnya akan sama dengan hasil yang ditunjukkan pada waktu 2 jam, jadi waktu 2 jam merupakan waktu yang maksimum sebagai waktu penumbuhan pada penelitian ini.



Gambar 5.23. Hasil SEM Variasi Waktu Penumbuhan (a) 30 menit, (b) 1 jam, (c) 1,5 jam, (d) 2 jam

Pada gambar 5.24. memperlihatkan hasil XRD pada sudut 20° - 60° dari quasi rod satu dimensi emas yang ditumbuhkan pada permukaan substrat. Pada hasil XRD tersebut didapatkan dua puncak yaitu pada sudut 2θ ($38,247^{\circ}$ dan $44,392^{\circ}$). Dari data tersebut memberikan informasi bahwa nanopartikel yang tumbuh pada ITO merupakan partikel emas dengan bentuk kristal face-centered cubic (FCC) dengan nilai hkl [111] dan [200].



Gambar 5.24. Hasil XRD Quasi Rod Satu Dimensi Emas

Hasil XRD diatas merupakan hasil dari senyawa emas, hal ini dapat dilihat pada data hasil JCPDS. Dari data tersebut memberikan informasi bahwa nanopartikel yang tumbuh merupakan partikel emas dengan bentuk kristal face-centered cubic (FCC) dengan nilai hkl [111] dan [200] pada nilai 2θ di atas.

Hasil karakterisasi XRD dari sampel nanorod emas pada stainless steel diperlihatkan gambar di bawah ini. Sampel tersebut ditumbuhkan dengan menggunakan metode penumbuhan dengan mediasi pembedihan dengan menggunakan surfaktan biner (CTAB dan HMT) seperti yang dijelaskan secara detail di atas.

5.5. Penumbuhan dan Karakterisasi *Nanopartikel Palladium dan Platinum* melalui metode penumbuhan dengan mediasi pembedihan di atas Stainless Steel

Penumbuhan nanopartikel palladium di atas stainless steel dimulai dengan proses pembedihan dengan merendam sampel pada larutan PLL 5% yang diperoleh dengan mencampurkan 0,2 ml PLL ke dalam 5 ml air murni. Selanjutnya sampel direndam selama 30 menit ke dalam larutan pembedihan nanopartikel palladium yang dibuat dengan mencampurkan 0,5 ml K_2PdCl_6 0,01 M ke dalam 0,5 ml trisodium sitrat 0,01 M, 20 ml air murni dan 0,5ml $NaBH_4$ 0,1 M, kemudian sampel dicuci dengan air suling. Perendaman dalam larutan PLL 5% dan larutan pembedihan dilakukan sampai tiga kali. Selanjutnya dilakukan proses penumbuhan nanopartikel palladium, dengan merendam sampel pada larutan penumbuh nanopartikel palladium yang diperoleh dengan mencampurkan 20 ml CTAB 0,1 M dengan 0,5 ml K_2PdCl_6 0,01 M, larutan 0,5 ml NaOH 0,1 M dan larutan Ascorbid Acid, dalam waktu selama 5 jam.

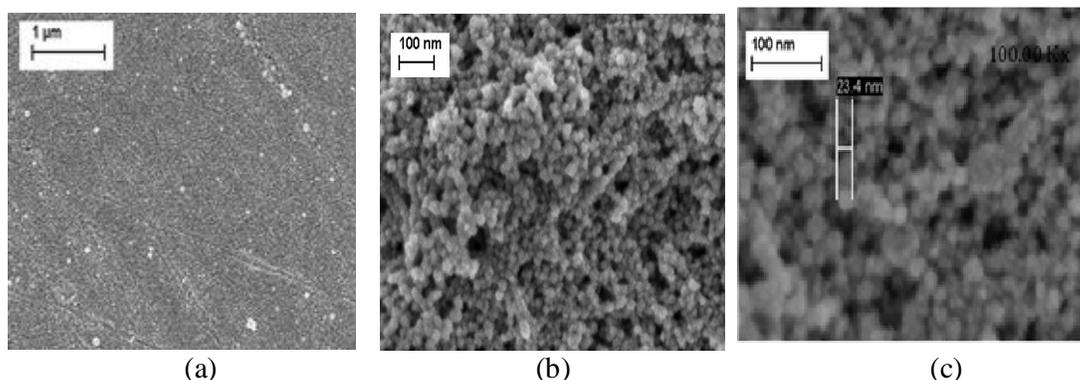
Untuk mendapatkan nanopartikel palladium yang optimum, maka perendaman sampel pada larutan penumbuhan dilakukan dengan memvariasikan konsentrasi ascorbit acid: 0,1 M 0,1 mL; 0,2 M 0,1 mL; 0,3 M 0,1 mL; 0,4 M 0,1 mL dan 0,5 M 0,1 mL. Setelah didapat hasil optimal dari variasi konsentrasi ascorbit acid, maka konsentrasi optimal tersebut akan dicampurkan dengan larutan CTAB yang juga dibedakan dengan lima variasi konsentrasi yaitu: 0,05 M 20 mL; 0,1 M 20 mL; 0,15 M 20 mL; 0,2 M 20 mL dan 0,25 M 20 mL.

Penumbuhan nanopartikel platinum pada stainless steel tidak melewati proses pembedihan, tapi langsung substrat direndam dalam larutan penumbuhan yang divariasikan konsentrasi larutan ascorbit acid (0,1M; 0,2M; 0,3M; 0,4 M dan 0,5M). Selanjutnya penumbuhan nanopartikel platinum juga dilakukan dengan memvariasikan larutan penumbuh

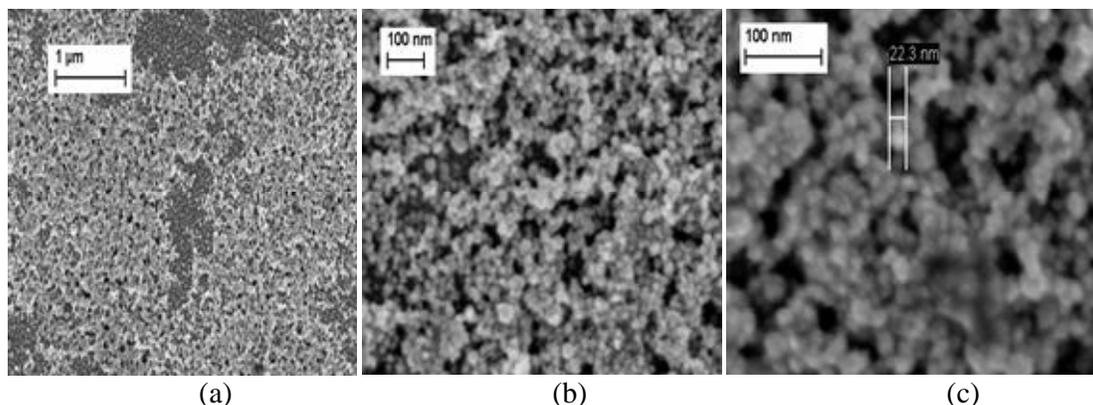
platinum (K_2PtCl_4), yaitu 0,5M; 0,7M; 0,9M, 1M dan 1,3M. Selanjutnya konsentrasi optimum dari ascorbit acid dan larutan penumbuh yang telah diperoleh, dipilih untuk menumbuhkan nanopartikel platinum pada pellet karbon. Penumbuhan nanopartikel platinum dilakukan dalam dua kali penumbuhan (multigrowth). Waktu penumbuhan juga divariasikan, yaitu 2 jam + 2 jam; 3 jam + 3 jam; 4 jam + 4 jam dan 5 jam + 5 jam.

1. Tinjauan SEM dan EDX

Hasil penumbuhan nanopartikel platinum pada permukaan stainless steel untuk mendapatkan penumbuhan optimal. Uji SEM untuk sampel dengan variasi konsentrasi ascorbit acid diamati menggunakan peralatan SEM model supra 55 pv, hasil uji SEM untuk nanopartikel platinum ditunjukkan pada gambar di bawah ini.



Gambar 5.25. Hasil SEM nanopartikel platinum pada stainless steel dengan konsentrasi ascorbit acid 0,1 M (a). perbesaran 10.000X (b). Perbesaran 50.000X dan (c). Perbesaran 100.000X

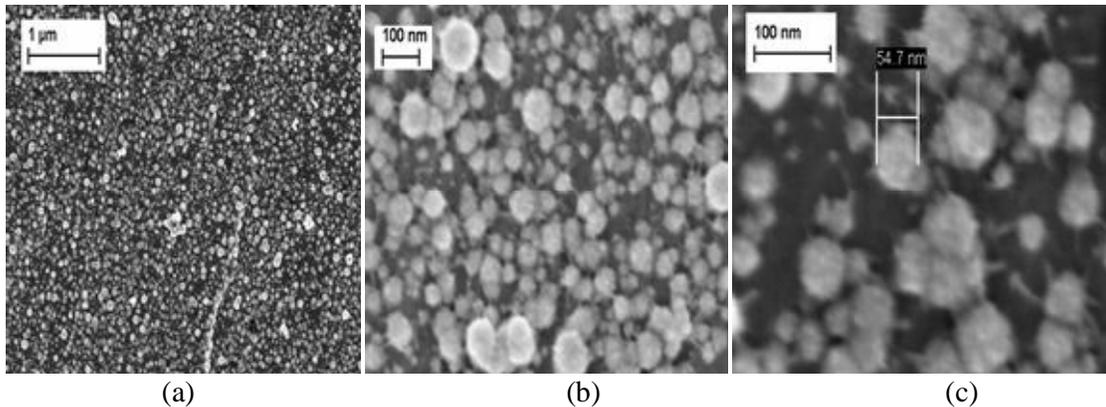


Gambar 5.26 Hasil SEM nanopartikel platinum pada stainless steel dengan konsentrasi ascorbit acid 0,5 M (a). perbesaran 10.000X (b). Perbesaran 50.000X dan (c). Perbesaran 100.000X

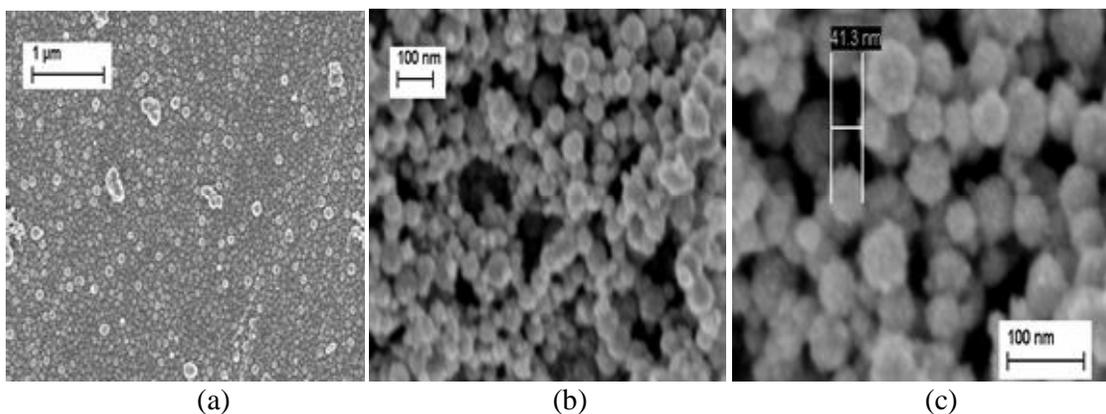
Pada gambar 5.25 dan 5.26, ditunjukkan bahwa nanopartikel platinum yang dihasilkan berbentuk lingkaran dan bergumpal-gumpal satu sama lain. Semakin besar konsentrasi

larutan ascorbit acid, nanopartikel platinum yang dihasilkan semakin kurang merata, namun ukuran partikel nampaknya tidak banyak dipengaruhi oleh konsentrasi larutan ascorbit acid. Ukuran rata-rata nanopartikel platinum yang tumbuh di atas permukaan stainless steel pada variasi konsentrasi larutan ascorbit acid adalah sekitar 22,3 dan 23,4 nm. Sedangkan variasi ukuran nanopartikel platinum nampak seragam dan merata menyebar ke seluruh bagian permukaan.

Selanjutnya hasil uji SEM untuk sampel nanopartikel platinum yang disiapkan dengan metode penumbuhan kimia basah multigrowth pada kondisi konsentrasi larutan ascorbit acid optimum (0,2 M) dan konsentrasi larutan penumbuh K_2PtCl_4 optimum (1 M) dengan variasi waktu penumbuhan ditunjukkan pada gambar 5.27 dan 5.28 di bawah ini.



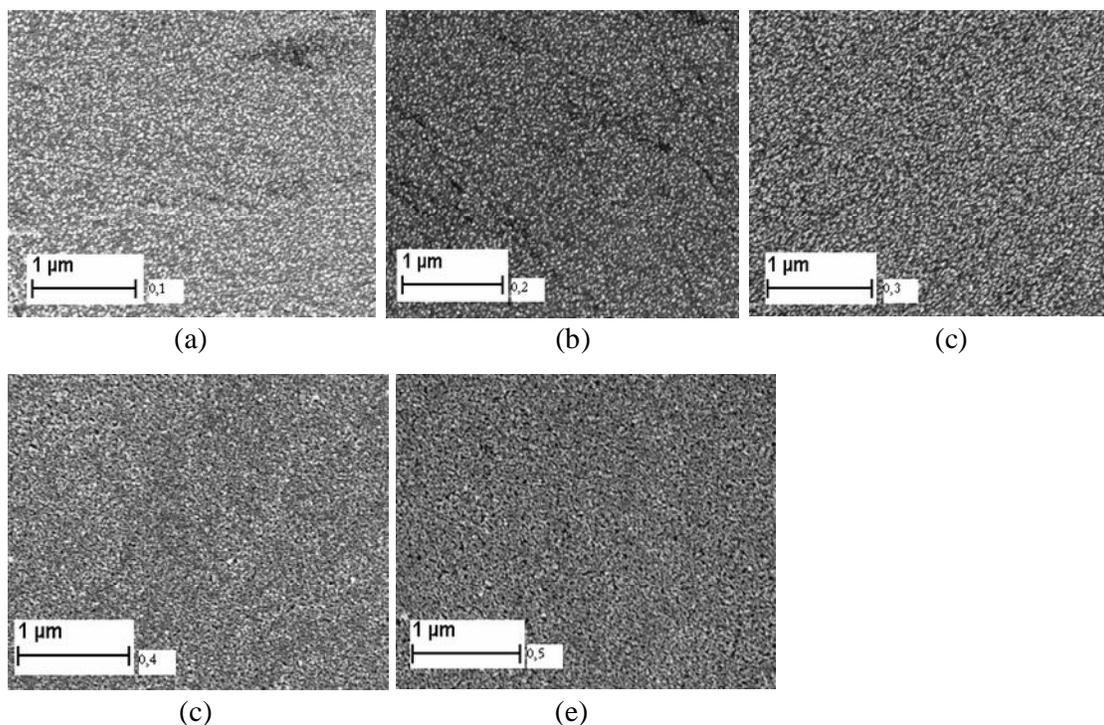
Gambar 5.27. Hasil SEM nanopartikel platinum dengan multigrowth pada konsentrasi ascorbit acid 0,2 M dan konsentrasi K_2PtCl_4 1 M dengan waktu penumbuhan 2 jam + 2 jam dan (a). 10.000X (b). 50.000X dan (c). 100.000X perbesaran



Gambar 5.28. Hasil SEM nanopartikel platinum pada stainless steel dengan metode multi growth pada konsentrasi ascorbit acid 0,2 M dan K_2PtCl_4 1 M dengan waktu penumbuhan 5 jam + 5 jam dan (a). 10.000X (b). 50.000X dan (c). 100.000X perbesaran

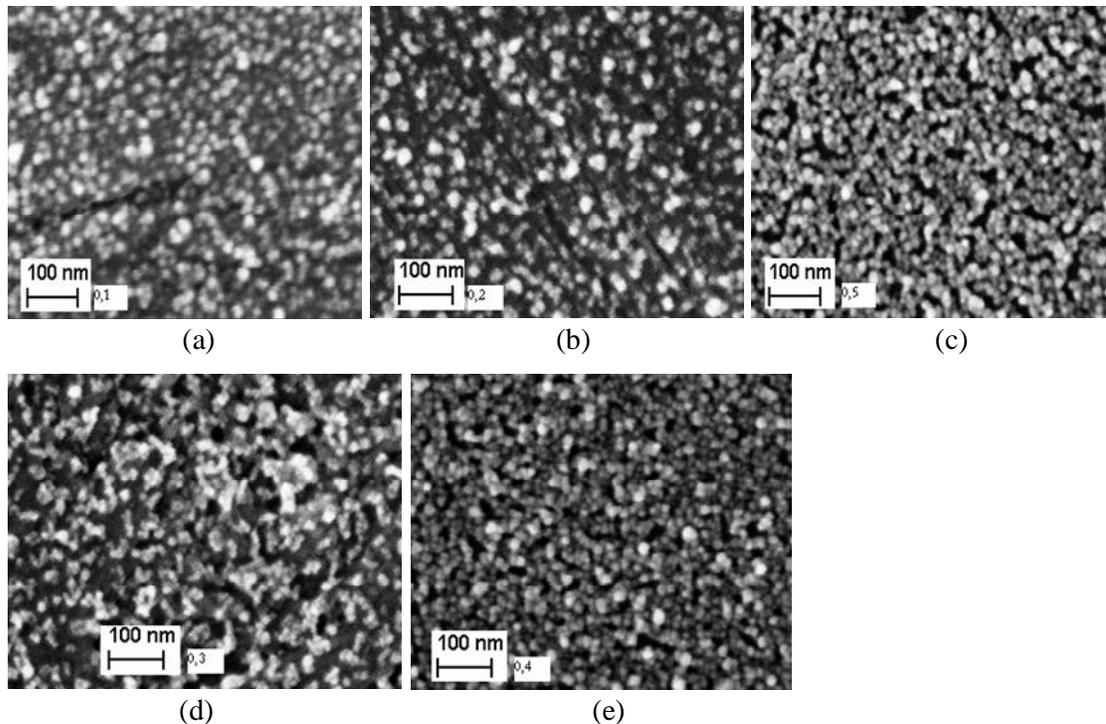
Gambar 5.27 dan 5.28 menunjukkan bahwa partikel yang dihasilkan berbentuk lingkaran dan bergumpal-gumpal satu sama lain. Semakin lama waktu penumbuhan berulang (multigrowth) terlihat nanopartikel yang terbentuk semakin merata dan distribusinya juga semakin baik. Ukuran rata-rata nanopartikel platinum yang tumbuh di atas permukaan stainless steel pada variasi waktu penumbuhan berulang (2 kali) lebih besar dibandingkan dengan penumbuhan sekali (tidak berulang). Adapun ukuran nanopartikel platinum yang terbentuk dengan metode multigrowth ini adalah sekitar 41,3 nm (5 jam + 5 jam) dan 54,7 nm (2 jam + 2 jam). Sedangkan variasi ukuran nanopartikel platinum nampak seragam dan merata menyebar ke seluruh bagian permukaan substrat.

Uji SEM untuk sampel nanopartikel palladium yang ditumbuhkan di atas permukaan stainless steel dengan variasi konsentrasi ascorbit acid dan konsentrasi CTAB diamati menggunakan peralatan SEM model supra 55 pv. Hasil uji SEM untuk nanopartikel palladium yang tumbuh di atas substrat stainless steel ditunjukkan pada gambar 32 s.d 35 di bawah ini. Gambar 5.29 memperlihatkan hasil SEM untuk nanopartikel palladium di atas stainless steel pada variasi konsentrasi ascorbit acid dengan perbesaran 10.000 kali.



Gambar 5.29. Hasil SEM nanopartikel palladium pada stainless steel dengan konsentrasi ascorbit acid (a). 0,1 M; (b). 0,2 M; (c). 0,3 M; (d). 0,4 M (e). 0,5 M dan perbesaran 10.000X

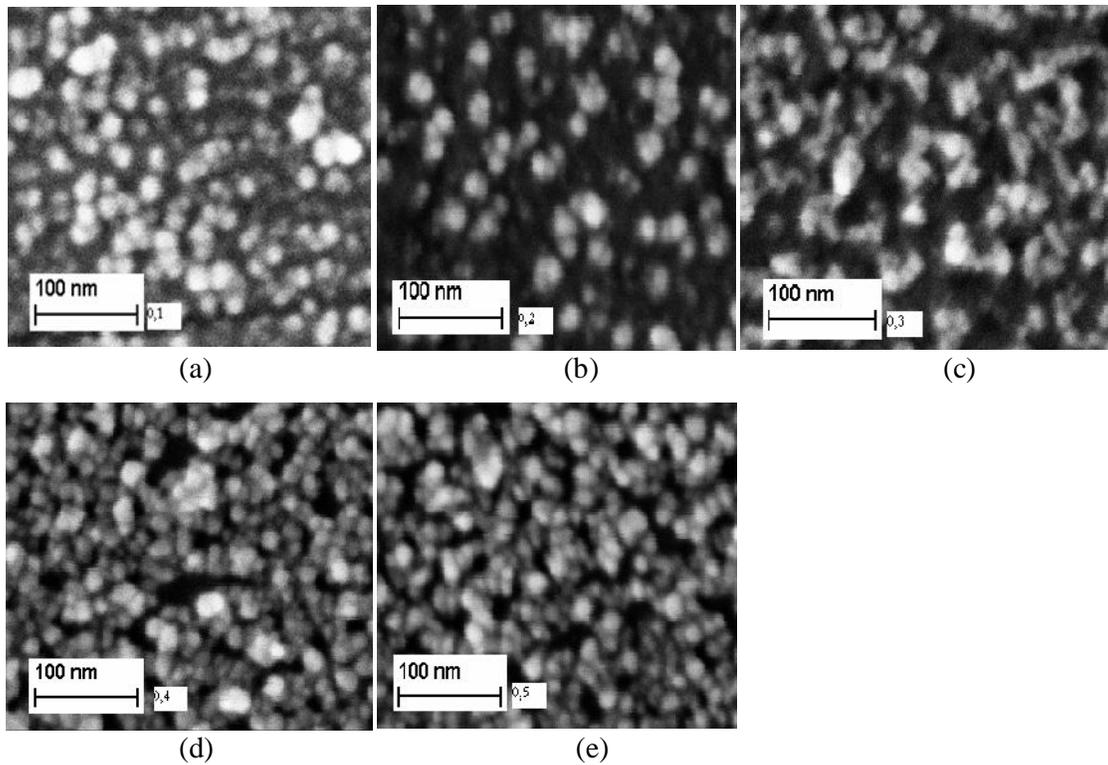
Hasil uji SEM untuk sampel nanopartikel palladium yang tumbuh di atas substrat stainless steel pada variasi konsentrasi ascorbit acid (0,1M; 0,2M; 0,3M, 0,4M dan 0,5M) dengan perbesaran 50.000 kali diperlihatkan pada gambar di bawah ini.



Gambar 5.30. Hasil SEM nanopartikel palladium pada stainless steel dengan konsentrasi ascorbit acid (a). 0,1 M; (b). 0,2 M; (c). 0,3 M; (d). 0,4 M (e). 0,5 M dan perbesaran 50.000X

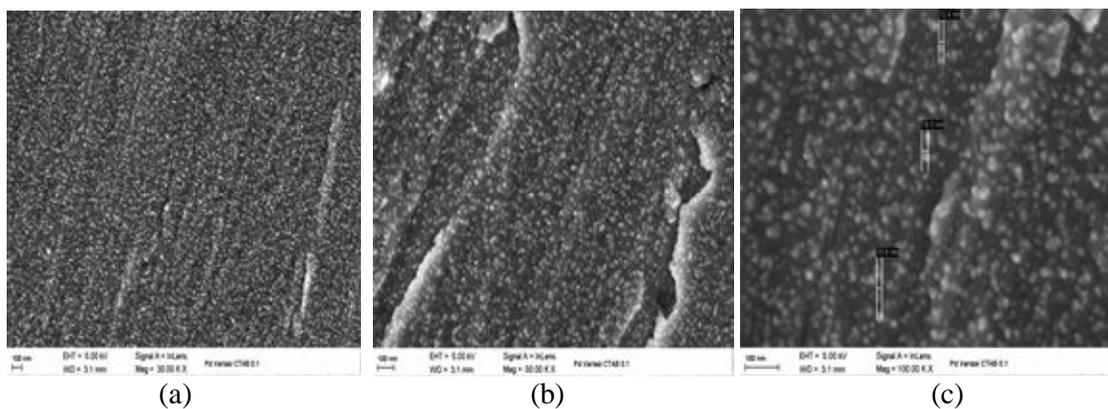
Gambar 5.31 memperlihatkan hasil uji SEM untuk sampel nanopartikel palladium yang tumbuh di atas substrat stainless steel pada variasi konsentrasi ascorbit acid (0,1M; 0,2M; 0,3M, 0,4M dan 0,5M) dengan perbesaran 100.000 kali.

Dari hasil SEM dari sampel substrat stainless steel yang ditumbuhkan nanopartikel palladium di atasnya dengan variasi konsentrasi ascorbid acid (0,1M; 0,2M; 0,3M; 0,4M dan 0,5M), terlihat bahwa nanopartikel palladium tumbuh cukup merata dengan bentuk butiran bulat (lingkaran) dan dengan ukuran yang seragam. Nanopartikel palladium tumbuh merata ke seluruh bagian permukaan stainless steel, sehingga densitasnya tinggi. Dengan membandingkan hasil SEM tersebut, maka sampel nanopartikel yang tumbuh dengan konsentrasi ascorbid acid 0,3 M dipilih sebagai yang paling baik dibandingkan sampel dengan konsentrasi yang lain. Selanjutnya konsentrasi ascorbit acid 0,3 M ini dipilih untuk proses selanjutnya.



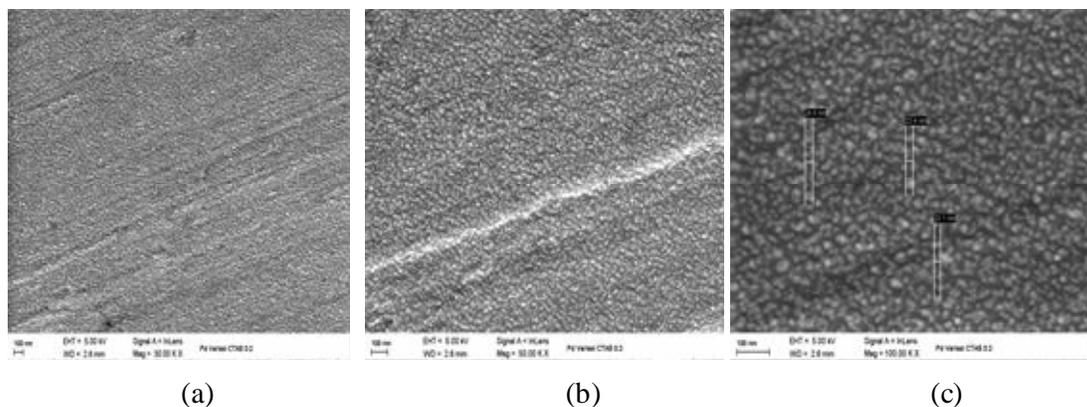
Gambar 5.31 Hasil SEM nanopartikel palladium pada stainless steel dengan konsentrasi ascorbit acid (a). 0,1 M; (b). 0,2 M; (c). 0,3 M; (d). 0,4 M (e). 0,5 M dan perbesaran 100.000X

Gambar 5.32 di bawah ini memperlihatkan hasil uji SEM untuk sampel nanopartikel palladium yang tumbuh di atas stainless steel dengan konsentrasi larutan CTAB sebesar 0,1M dengan perbesaran 30.000X, 50.000X dan 100.000X.



Gambar 5.32 Hasil SEM nanopartikel palladium di atas stainless steel dengan konsentrasi CTAB 0,1 M dan perbesaran (a). 30X; (b). 50X; (c). 100X

Gambar 5.33 di bawah ini memperlihatkan hasil uji SEM dari sampel nanopartikel palladium yang tumbuh di atas substrat stainless steel pada konsentrasi larutan CTAB 0,2M.



Gambar 5.33 Hasil SEM nanopartikel palladium di atas stainless steel dengan konsentrasi CTAB 0,2 M dan perbesaran (a). 30.000X; (b). 50.000X; (c). 100.000X

Dari hasil uji SEM untuk sampel nanopartikel palladium yang ditumbuhkan di atas stainless steel pada variasi konsentrasi larutan ascorbit acid (0,1M; 0,2M; 0,3M; 0,4M dan 0,5M) dan konsentrasi larutan CTAB (0,05M; 0,1M; 0,15M; 0,2M dan 0,25M) yang sebagian hasil uji SEMnya diperlihatkan pada gambar 5.30 s.d gambar 5.33, maka dengan membandingkan keseragaman ukuran partikel, distribusi partikel dan densitas partikel maka disimpulkan bahwa kondisi optimum variasi konsentrasi ascorbit acid dan CTAB adalah 0,3M ascorbit acid dan 0,1M CTAB.

BAB VI

KESIMPULAN DAN SARAN

6.1. Kesimpulan

Beberapa hal yang dapat disimpulkan dari hasil penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Dalam penelitian tahun pertama ini, telah berhasil dilakukan penumbuhan dan karakterisasi nanopartikel logam (Platinum, Palladium dan Emas) di atas permukaan pengumpul arus stainless steel 316L. Nanopartikel metal ini berfungsi sebagai antar muka (interface) antara pengumpul arus dan electrode sel superkapasitor.
2. Untuk mendapatkan kondisi optimum, penumbuhan nanopartikel metal tersebut dilakukan dengan memvariasikan jenis dan jumlah surfaktan, konsentrasi ascorbic acid, CTAB, larutan penumbuhan, waktu penumbuhan dan metode penumbuhan.
3. Nanopartikel platinum dengan kondisi penumbuhan optimum (metode multi-steps growth, konsentrasi ascorbic acid 0,2 M; konsentrasi larutan penumbuh (K_2PtCl_4) 1 mL dan waktu penumbuhan berulang 5 jam + 5 jam) memiliki karakteristik sebagai berikut: bentuk partikelnya bulat (spherical), densitas tinggi, tumbuh merata di atas permukaan stainless steel dan uniform, dengan ukuran partikel rata-rata adalah 24,6 – 26,8 nm).
4. Sedangkan nanopartikel palladium optimum yang tumbuh pada stainless steel current collector diperoleh dengan kondisi penumbuhan sebagai berikut: penumbuhan didahului proses mediasi /pembenihan (seed-mediated process), konsentrasi ascorbic acid 0,3M; konsentrasi CTAB 0,1 mL; waktu penumbuhan selama 5 jam. Hasil nanopartikel palladium yang tumbuh di atas current collector stainless steel adalah: nanopartikel tumbuh cukup merata di permukaan stainless steel, berbentuk bulat (spherical), densitas tinggi, uniform dengan ukuran partikel rata-rata antara 16,7 – 24,6 nm.
5. Kehadiran/tumbuhnya nanopartikel platinum dan palladium dibuktikan dengan hasil karakterisasi XRD dan EDAX. Unsur platinum yang muncul pada sampel cukup dominan, dengan prosentase lebih dari 80% berat keseluruhan unsur pada sampel.

6. Penumbuhan nanopartikel emas dilakukan dengan menggunakan metode seed-mediated growth (mediasi pembenihan), dengan memberi perlakuan variasi konsentrasi HCl, CTAB, ascorbic acid, AgNO₃ dan variasi waktu penumbuhan.
7. Kondisi optimum penumbuhan nanopartikel emas adalah konsentrasi larutan 0,5 ml HAuCl₄ 0,01M; 0,15 ml HCl; 0,3 ml ascorbic acid 0,1M; 20 ml CTAB 0,1M dan 0,1 ml AgNO₃ 10 μM. Nanopartikel emas yang tumbuh berbentuk nanorods yang memiliki struktur FCC dengan bidang Kristal (111) dan (200) yang terjadi pada sudut 38,185° dan 44,393°. Nilai aspek ratio dari nanorod emas ini adalah 1,7 – 14,3.
8. Untuk meningkatkan densitas nanopartikel emas, maka penumbuhan melibatkan 2 macam surfaktan, yaitu CTAB dan HMT. Nanopartikel emas yang terbentuk berbentuk rice-shape (bentuk biji beras) dengan struktur FCC dengan densitas yang jauh lebih besar dan seragam.

6.2. Saran-saran

1. Kondisi optimum yang diperoleh dalam penelitian ini sudah menunjukkan bahwa nanopartikel metal memiliki densitas yang tinggi dan dengan bentuk yang bermacam, namun demikian untuk mendapatkan hasil yang lebih, masih dimungkinkan dengan memvariasikan jenis surfaktan yang digunakan dan variasi konsentasinya
2. Selanjtnya perlu dikaji efek penumbuhan nanopartikel metal dengan kondisi optimum ini terhadap prestasi sel superkapasitor dengan elektrodanya pellet karbon, sehingga dapat diperoleh informasi jenis metal mana yang akan menghasilkan efek maksimum.

DAFTAR PUSTAKA

- A. Burke. 2000, Ultracapacitors: why, how, and where is the technology, *Journal of Power Sources* 91.37–50.
- A. K.Shukla, S. Sampath, K. Vijayamohanan, 2000. *Curr. Sci.* 79. 1656
- B. E. Conway, 1999. *Electrochemical Supercapacitors-Scientific fundamentals and Technological Applications*, Kluewer, New York,
- C. Arbizzani, M. Mastragostino, L. Meneghello, 1996. *Electrochim Acta* 41. 21.
- C-C. Wang, C-C. Hu. 2004. The capacitive performance of activated carbon–ruthenium oxide composites for supercapacitors: effects of ultrasonic treatment in NaOH and annealing in air, *Materials Chemistry and Physics* 83. 289–297
- C. Portet, P.L. Taberna, P. Simon, C. Laberty-Robert, Modification of Al current collector surface by sol–gel deposit for carbon–carbon supercapacitor applications, *Electrochimica Acta* 49 (2004) 905–912
- C. Portet, P.L. Taberna, P. Simon, E. Flahaut, C. Laberty-Robert , 2005. High power density electrodes for Carbon supercapacitor applications, *Electrochimica Acta* 50. 4174–4181
- C. Peng, S. Zhang, D. Jewell, George Z. Chen, 2008. Carbon nanotube and conducting polymer composites for supercapacitors, *Progress in Natural Science* 18. 777–788.
- D. Qu, H. Shi, 1988. *J. Power sources* 74. 99.
- E. Frankowiak, F. Beguin, 2001. Carbon materials for the electrochemical storage of energy in capacitors, *carbon* 39. 937-950.
- E. Taer, Iwantono, Akrajas Ali Umar, Peningkatan Sifat Elektrokimia Pellet Karbon Superkapasitor Menggunakan Nano Partikel Platinum, makalah disampaikan pada seminar nasional fisika di Padang, 18 NOV 2009-12-14
- E. Taer, M. Deraman, I. A. Talib, A. A. Umar, M. Oyama, Deposition and characterization of platinum and gold nanoparticles on carbon pellets electrodes from mixture of green petroleum coke and self-adhesive carbon grains from biomass precursor, *prosiding natural science, scientific conference 4*, (2009) 125-132.
- E. Taer, M. Deraman, I. A. Talib, A. A. Umar, M. Oyama, R. M. Yunus. 2010 Physical, electrochemical and supercapacitive properties of activated carbon pellets from pre-carbonized rubber wood sawdust by CO₂ activation. *Curr Appl Phys.* (in Press).
- E. Taer, M. Deraman, I. A. Talib, A. A. Umar, M. Oyama, R. M. Yunus. 2010. Preparation of highly porous carbon pellet from rubber wood sawdust for supercapacitor application: Effect of carbonization temperature, submitted paper to *Carbon*.

Gang Chang , Munetaka Oyama , Kazuyuki Hirao,2007, Facile synthesis of monodisperse palladium nanocubes and the characteristics of self-assembly, *Acta Materialia* Vol 55 pp 3453–3456

Gang Chang , Munetaka Oyama , Kazuyuki Hirao,2007, Platinum nano-cluster thin film formed on glassy carbon and the application for methanol oxidation ,*Thin Solid Films*,Vol 515 ,pp 3311–3314

Hsien-ChangWua, Yen-Po Lina, Eric Leea,Wen-Ting Linb, Jui-Kai Hub, Hung-Chang Chenb, Nae-LihWua, High-performance carbon-based supercapacitors using Al current-collector with conformal carbon coating, *Materials Chemistry and Physics* 117 (2009) 294–300

H. Li, R. Wang, R. Cao, 2008. Physical and electrochemical characterization of hydrous ruthenium oxide/ordered mesoporous carbon composites as supercapacitor, *Microporous and Mesoporous Materials* 111. 32–38

Iwantono, Nazif Mulyanas, Akrajas Ali Umar, Erman Taer, Scanning Electron Microscopy (SEM) dari Nanopartikel Palladium Spheris Pada Permukaan Indium Tin Oxide (ITO) dengan Variasi Waktu Pembentukan dan Penumbuhan, makalah disampaikan pada SEMIRATA wilayah barat di Pekanbaru, 10-11 May 2010.

K. Naoi. 1998. Extended abstracts. 49th Annual meeting of the international society of electrochemistry. Kitakyushu. Japan. September. Pp.647.

K. Babela, K. Jurewicz, 2004. KOH activated carbon fabrics as supercapacitor material, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 65. 275–280.

Oyama, M, Wet Chemical Preparation and Electrochemical Application of Metal Nanoparticle-Attached Indium Tin Oxide Electrodes, *Review of Polarography*. 2007, 53.

R. Kotz, M. Carlen, 2000. Principles and applications of electrochemical capacitor, *Electrochimica Acta* 45. 2483-2498.

Szu-Jung Pan, Yi-Ju Shih, Jhen-Rong Chen, Jeng-Kuei Chang,Wen-Ta Tsai, Selective micro-etching of duplex stainless steel for preparing manganese oxide supercapacitor electrode, *Journal of Power Sources* 187 (2009) 261–267

V. Ruiz, C. Blanco, M. Granda, R. Menendez. 2007. Influence of electrode preparation on the electrochemical behavior of carbon-based supercapacitor. *J Appl Electrochem*. 37. 717-

X. Ren. S. Gottesfeld, J. P. Ferraris, in: F.M. Delnick, M. Tomkiewicz (Eds). 1996. Electrochemical capacitor. *Proceedings*. Vols. 95-29. The electrochemical society. Pennington. NJ. P. 138.