

Sintesis Material Berbasis Grafena untuk Elektroda Kerja dan Aplikasinya pada Penentuan Ion Merkuri dan Timbal dengan *Square Wave Anodic Stripping Voltammetry*

Lia Destiarti

20/471777/SPA/00767

INTISARI

Pada penelitian ini telah dilakukan sintesis derivat grafena dengan menggunakan cara eksfoliasi elektrokimia dan penggunaan reduktor alami. *Reduced graphene oxide* (rGO) yang dihasilkan kemudian dikompositkan dengan pengompleks ditizon (Dtz); dan komposit yang diperoleh digunakan sebagai elektroda kerja. Kajian yang dipelajari meliputi uji penetapan kadar logam berat Hg(II) dan Pb(II) dengan metode *square wave anodic stripping voltammetry* (SWASV). Parameter yang dioptimasi terdiri dari pH elektrolit dan waktu deposisi pada proses deteksi secara elektrokimia. Setelah mendapatkan kondisi optimum pengukuran, selanjutnya dilakukan penentuan parameter analisis metode uji.

Pada sintesis *exfoliated graphene*, penggunaan elektrolit yang merupakan kombinasi amonium sulfat dan oksidan amonium persulfat menghasilkan produk dengan massa *exfoliated graphene* (EG) paling banyak diperoleh dan langkah sonikasi memberikan pengaruh pada ukuran partikel. Konduktivitas listrik material hasil sintesis mencapai 52 S/cm. Material *graphene oxide* (GO) diperoleh dengan *improved Hummer method*. Reduksi GO menggunakan ekstrak *Caesalpinia sappan* dengan variasi konsentrasi ekstrak dilakukan bersamaan dengan pemanasan dalam reaktor *hydrothermal autoclave*. Hasil penelitian menunjukkan bahwa material rGO telah diperoleh, dan hasil reduksi paling baik dapat diperoleh pada konsentrasi ekstrak 10 mL. Hal ini diperkuat dengan data voltamogram siklik material hasil sintesis. Ekstrak air *Caesalpinia sappan* dengan pH yang berbeda memberikan kinerja yang berbeda dalam proses reduksi. Material rGO pH=10 menunjukkan proses reduksi lebih baik dari pH lainnya, dan memiliki kemampuan empat kali lipat lebih baik dalam mendeteksi Pb(II).

Komposit rGO dengan ditizon (rGO/Dtz) berhasil disintesis dalam pelarut air pada suasana basa. Karakterisasi elektrokimia menunjukkan bahwa rGO/Dtz memiliki luas permukaan aktif lebih besar dibandingkan dengan rGO dan GCE (*bare electrode*). Selain itu, diketahui bahwa mekanisme transfer elektron yang terjadi pada elektroda adalah difusi. Hasil pengujian elektroda pada larutan simultan Pb(II)-Hg(II) menunjukkan rGO hanya mendeteksi Pb(II), sedangkan rGO/Dtz dapat secara simultan mendeteksi Pb(II) dan Hg(II) pada lokasi yang berbeda. Hasil penelitian menunjukkan bahwa rentang linieritas untuk Pb(II) dan Hg(II) masing-masing adalah 8–16 mg/L dan 16–24 mg/L, sedangkan LOD metode sebesar 1,06 dan 1,02 mg/L. Elektroda rGO/Dtz stabil hingga hari ke-7 untuk penentuan kadar Pb(II), sedangkan untuk Hg(II) hingga hari ke-5. Hasil uji selektivitas melalui



keberadaan interferensi Cd(II) dan Cu(II) menunjukkan bahwa material bersifat selektif, dengan nilai *recovery* 96 dan 103% masing-masing untuk Pb(II) dan Hg(II).

Hasil penelitian ini menunjukkan keberhasilan proses sintesis material berbasis grafena (*exfoliated graphene*, *graphene oxide*, dan *reduced graphene oxide*). Komposit rGO dengan ligan ditizon juga meningkatkan sensitivitas dan selektivitas terutama untuk pendeteksian Hg(II). Dengan demikian, hal ini dapat digunakan sebagai dasar untuk penelitian lainnya, baik untuk pengembangan teknis sintesis material maupun aplikasinya pada penentuan ion logam berat lain.

Kata kunci: *reduced graphene oxide*, ditizon, *Caesalpinia sappan*, *square wave voltammetry*, Hg(II) dan Pb(II)

Synthesis of Graphene-Based Working Electrode Materials and Their Application in Determining Mercury and Lead Ions Using Square Wave Anodic Stripping Voltammetry

Lia Destiarti

20/471777/SPA/00767

ABSTRACT

In this study, graphene derivatives were synthesized through electrochemical exfoliation and natural reductants. The resulting reduced graphene oxide (rGO) was then combined with dithizone (Dtz) to create a composite for use as a working electrode. The research included testing for levels of the heavy metals Hg(II) and Pb(II) using the square wave anodic stripping voltammetry (SWASV) method. The optimized parameters included electrolyte pH and deposition time for electrochemical detection. Once the optimum measurement conditions were established, the analysis parameters for the test method were determined.

In the synthesis of exfoliated graphene, the use of an electrolyte composed of combination of ammonium sulfate and ammonium persulfate yields the product with the highest mass of exfoliated graphene (EG). The size of the particles was influenced by the sonication step. The electrical conductivity of the synthesized material reached 52 S/cm. The improved Hummer method was used to obtain graphene oxide (GO). The reduction of GO was carried out using *Caesalpinia sappan* extract with varying concentrations simultaneously with heating in a hydrothermal autoclave reactor. The research results indicated that rGO material had been obtained, and the best reduction results were achieved at 10 mL extract concentrations. Cyclic voltammogram data of the synthesized material reinforced this. *Caesalpinia sappan* water extract with different pH levels performed differently in the reduction process. The rGO material at pH 10 showed a better reduction process than other pH levels and had four times the ability to detect Pb(II).

The rGO composite with dithizone (rGO/Dtz) was successfully synthesized in a water solvent under alkaline conditions. Electrochemical characterization showed that rGO/Dtz had a larger active surface area than rGO and GCE (bare electrode). Additionally, it was found that the electron transfer mechanism at the electrode is diffusion controlled. The results of electrode testing in a simultaneous Pb(II)-Hg(II) solution showed that rGO only detects Pb(II), while rGO/Dtz can simultaneously detect Pb(II) and Hg(II) at different locations. The results indicated that the linearity range for Pb(II) and Hg(II) was 8–16 mg/L and 16–24 mg/L, respectively, while the limit of detection (LOD) was 1.06 and 1.02 mg/L for Pb(II) and Hg(II), respectively. The rGO/Dtz electrode was stable until the seventh day for determining Pb(II) levels and until the fifth day for Hg(II) levels. Selectivity test results, with the presence of Cd(II) and Cu(II) interference, showed that the material

is selective, with recovery values of 96% and 103% for Pb(II) and Hg(II), respectively.

The research findings demonstrate the effectiveness of the synthesis process for graphene-based materials, including exfoliated graphene, graphene oxide, and reduced graphene oxide. The incorporation of dithizone ligands into rGO composites significantly enhances sensitivity and selectivity, particularly for the detection of Hg(II). This breakthrough paves the way for further advancements in material synthesis and the detection of various heavy metal ions.

Keywords: reduced graphene oxide, dithizone, *Caesalpinia sappan*, square wave voltammetry, Pb(II) and Hg(II)