



Sintesis Grafena Oksida Tereduksi Terdoping Nitrogen Dan Sulfur Dari Amonium Tiosianat Sebagai Elektroda Lawan Pada Sistem *Dye Sensitized Solar Cell* (DSSC)

Sayekti Wahyuningsih^{1*}, Ari Handono Ramelan², Mochammad Fuad¹, Qonita Awliya Hanif³

¹Program Studi Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Sebelas Maret Surakarta, Jl. Ir. Sutami No. 36 A, Surakarta 57126

²Program Studi Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Sebelas Maret Surakarta, Jl. Ir. Sutami No. 36 A, Surakarta 57126

³Ilmu Kimia, Program Pascasarjana, Universitas Sebelas Maret Surakarta, Jl. Ir. Sutami No. 36 A, Surakarta 57126

* Corresponding author

E-mail: sayekti@mipa.uns.ac.id

DOI: 10.20961/alchemy.16.1.34587.126-139

Received 17 September 2019, Accepted 20 February 2020, Published 01 March 2020

ABSTRAK

Pada penelitian ini telah berhasil disintesis komposit rGO-NS melalui pendopongan pada material berbasis grafena oksida tereduksi (rGO) dengan penambahan amonium thiosianat sebagai sumber dopan N dan S. Dopan N dan S pada rGO mempengaruhi struktur rGO yang ditunjukkan dengan pergeseran puncak difraktogram pada $2\theta=24,97$ (*hkl* 002). Spektra *Fourier transform infrared* (FTIR) material rGO-NS memberikan serapan puncak baru dari vibrasi C=N pada daerah $1501-1516\text{ cm}^{-1}$ dan dari vibrasi C-N serta C-S pada daerah $1130 - 1146\text{ cm}^{-1}$. Morfologi rGO-NS berupa lembaran tipis dua Dimensional (2D) bertumpuk dengan jarak antar lapis tertentu. Pengujian *I-V measurement* menggunakan Keithley 2602A, sistem DSSC dengan material rGO-NS digunakan sebagai bahan elektroda lawan menunjukkan efisiensi terbesar mencapai 0,1268%, dengan peningkatan efisiensi sebanyak 11,32 kali apabila dibandingkan dengan Pt.

Kata kunci: amonium thiosianat, DSSC, elektroda lawan, rGO-NS

ABSTRACT

Synthesis of Reduced Graphene Oxide doped with Nitrogen and Sulfur from Ammonium Thiocyanate as a Counter Electrode in Dye-Sensitized Solar Cell (DSSC) System. In this research, the rGO-NS composite was successfully synthesized through doping on reduced graphene oxide based-materials (rGO) with the addition of ammonium thiocyanate as nitrogen (N) and sulfur (S) source. N and S dopant influence the rGO structure indicated by the peak shifting into $2\theta=24.97$ (*hkl* 002). The Fourier transform infrared (FTIR) spectrum of material rGO-NS reveals new bands which correspond to C=N vibration within $1501 - 1516\text{ cm}^{-1}$ and C-N vibration together with C-S at area between $1130-1146\text{ cm}^{-1}$. The morphology of rGO-NS shows that the material consists of many 2 Dimensional (2D) thin layers. The current and voltage (*I-V*) measurement using Keithley 2602A with material rGO-NS as a counter electrode on DSSC system, demonstrates that the highest efficiency is 0.1268%. This performance is 11.32 times higher compare to the DSSC system with Pt.

Keywords: ammonium thiocyanate, counter electrode, DSSC, rGO-NS

PENDAHULUAN

Energi merupakan kebutuhan yang sangat penting dalam memenuhi segala kehidupan di dunia. Pada era modern saat ini, ketersediaan energi di dunia semakin lama semakin menipis (Hardani *et al.*, 2016). Cadangan sumber energi fosil di seluruh dunia terhitung sejak tahun 2002 yaitu 200 tahun untuk batu bara, 60 tahun untuk gas alam, dan 40 tahun untuk minyak (Gong *et al.*, 2017).

Salah satu energi alternatif yang mempunyai potensi sangat besar namun belum dimanfaatkan secara maksimal adalah sel surya (*photovoltaic*/sel surya) yang mampu mengonversi energy matahari menjadi energi listrik. Salah satu jenis sel surya yang berbasis organik yaitu sel surya tersensitasi zat warna atau yang lebih dikenal sebagai *Dye-Sensitized Solar Cell* (DSSC). DSSC pertama kali ditemukan oleh Professor Michael Grätzel pada tahun 1991 dengan efisiensi sebesar 7,1 – 7,9%. DSSC merupakan perangkat sel surya yang mudah difabrikasi, harga produksi rendah, efisiensi konversinya tinggi, dan bersifat non toksik (Liu *et al.*, 2013). Komponen-komponen di dalam DSSC pada umumnya terdiri dari elektroda kerja berupa elektroda kerja dari bahan semikonduktor (misalkan: TiO_2 dan ZnO), *dye* sebagai *sensitizer* yang menyerap cahaya matahari, pasangan redoks berupa triiodida/ iodida, dan elektoda lawan.

Platinum (Pt) adalah material yang paling sering digunakan sebagai elektroda lawan di DSSC, karena aktivitas elektrokatalitiknya yang baik terhadap reduksi I_3^- . Namun, karena harganya relatif mahal dan ketersediannya terbatas membuat Pt tidak bisa digunakan dalam skala yang lebih besar (Gao *et al.*, 2016). Material lain berbasis karbon yang konduktivitas materialnya baik, relatif murah, dan melimpah di alam berpotensi dapat menggantikan Pt. Grafena Oksida tereduksi (rGO) adalah salah satu material berbasis karbon yang dapat digunakan sebagai elektroda lawan pada DSSC (Cruz *et al.*, 2012). Preparasi rGO dapat melalui reduksi material GO dengan amonium thiosianat sebagai agen pereduksi oksigen di dalam strukturnya (Li *et al.*, 2017).

Selain sebagai reduktor, amonium thiosianat yang mengandung N dan S yang aktif dapat dijadikan material sumber N dan S pada proses pendopongan berbagai material karbon berbasis grafena (Su *et al.*, 2013). Substitusi doping heteroatom ini (N dan S) merupakan salah satu teknik yang dapat ditempuh untuk meningkatkan sifat elektronik dan kimia dari material GO yang akan direduksi (Kannan *et al.*, 2014; Duan *et al.*, 2015).

Atom N dipilih karena menjanjikan untuk digunakan dalam menciptakan lebih banyak situs aktif secara katalitik. Penelitian Yu *et al.* (2016) menunjukkan bahwa GO yang di *doping* N dapat meningkatkan sifat elektronik dan optik. Kombinasi *doping*

heteroatom N dengan S pada grafena dapat lebih meningkatkan performa secara signifikan daripada yang hanya di *doping* dengan atom N ataupun S saja sebagai *counter* elektroda pada DSSC. Hal ini karena efek sinergi antara heteroatom N dan S pada material *graphene* sehingga dapat meningkatkan sifat elektronik dan optik (Li *et al.*, 2017).

Pada penelitian mengenai *doping* namun dengan material yang berbeda (Jayaraman *et al.*, 2017), dapat disimpulkan bahwasanya massa prekursor material pendoping berpengaruh pada sifat material yang dihasilkan. Sifat material dengan massa pendoping yang berbeda menunjukkan kristalinitas, ukuran kristal, morfologi, sifat optik, hingga sifat kelistrikan yang berbeda pula. Sejauh pengetahuan penulis, kajian mengenai pengaruh rasio massa prekursor pendoping terhadap sifat material dan aplikasi dari rGO terdoping N dan S belum pernah dilakukan. Oleh karenanya pada penelitian ini dilakukan sintesis rGO kombinasi *doping* N dan S dari amonium thiosianat dilakukan dengan penambahan 6 variasi massa untuk mengkaji pengaruhnya terhadap sifat material yang dihasilkan. rGO diperoleh dari reduksi material GO yang disintesis melalui metode Hummer termodifikasi. Metode Hummer termodifikasi dinilai lebih baik karena pada saat proses oksidasi tidak mengeluarkan gas ClO_2 yang bersifat toksik (Syakir *et al.*, 2015) dan proses produksinya murah serta sederhana (Eluyemi *et al.*, 2016). Reduksi GO menjadi rGO menggunakan amonium thiosianat yang sekaligus dapat berfungsi sebagai sumber pendopingan N dan S (Xu *et al.*, 2013) akan menghasilkan material komposit rGO-NS. Selain karakterisasi material hasil sintesis, perbandingan performa antar rangkaian DSSC yang menggunakan rGO-NS sebagai *counter electrode* yang dikalkulasi dari hasil pengukuran arus dan tegangan juga dilakukan.

METODE PENELITIAN

Pembuatan Grafena Oksida

Sintesis GO dilakukan menggunakan metode Hummer. Sebanyak 2 g serbuk grafit dilarutkan dalam 98 mL H_2SO_4 98% dan ditambahkan 4 g NaNO_3 saat pengadukan berlangsung selama 1 jam. Penambahan 8 g KMnO_4 dilakukan secara bertahap ke dalam campuran setelah pengadukan berlangsung selama 2 jam. Selama 4 jam proses pengadukan, temperatur dijaga pada rentang suhu 0–20 °C. Campuran diaduk sampai berubah warna menjadi hijau kehitaman. Proses pengadukan dilakukan selama 20 jam pada suhu 35 °C. Campuran berubah warna menjadi coklat muda dan ditambahkan dengan akuades sebanyak 200 mL dan diaduk selama 1 jam. Larutan kemudian ditambahkan 20 mL H_2O_2 30% secara tetes demi tetes. Campuran yang diperoleh disentrifugasi dan

dilakukan proses pencucian dengan HCl 0,15 M dan akuades sampai pH netral. Proses yang dilakukan setelah pH netral adalah campuran dioven selama 12 jam pada suhu 110 °C, kemudian diperoleh serbuk grafit oksida. Sebanyak 50 mg grafit oksida diambil dan digerus sampai halus yang kemudian ditambahkan 50 mL akuades dan diaduk selama 1 jam untuk mendapatkan larutan yang homogen. Larutan yang telah homogen selanjutnya disonikasi selama 30 menit untuk memperoleh suspensi GO. Serbuk GO yang didapat dikarakterisasi menggunakan XRD dan FTIR.

Pembuatan Grafena Oksida tereduksi ko-doping N dan S (rGONS)

Larutan suspensi GO (1 mg/mL) yang dibuat ditambahkan dengan variasi massa amonium thiosianat yaitu sebanyak 0,75; 1; 1,5; dan 2 g. Larutan yang telah dicampurkan dengan variasi amonium thiosianat dilakukan pengadukan selama 30 menit sehingga diperoleh larutan yang homogen. Larutan suspensi kemudian dilakukan proses hidrotermal dengan suhu 180 °C selama 12 jam. Hasil produk hidrotermal dicuci dengan akuades. Proses selanjutnya adalah *freeze-drying* terhadap larutan selama 16 jam. Produk hasil akhir yang didapat adalah rGO-NS dengan variasi massa amonium thiosianat. Material tersebut dan rGO tanpa doping selanjutnya dikarakterisasi menggunakan XRD, SEM, dan FTIR.

Fabrikasi DSSC

Preparasi Kaca FTO

Pembuatan counter elektroda menggunakan kaca FTO ukuran 2,5 x 2,5 cm sebagai substrat material DSSC. Kaca FTO dibersihkan menggunakan etanol dan disonikasi selama 30 menit, kemudian dikeringkan dan ditentukan sisi konduktif kaca FTO. Kaca FTO diberikan pembatas *scotch tape* dengan sisi aktif 1,0 x 1,0 cm.

Preparasi Deposisi rGO-NS sebagai Counter Elektroda

Material rGO-NS dengan berbagai variasi massa sebanyak 20 mg dilarutkan dalam etanol 20 mL kemudian distirer sehingga dihasilkan pasta rGO-NS yang didapat dilapiskan ke kaca FTO dengan metode slip casting ke kaca FTO. Kaca FTO yang telah dilapisi dengan variasi rGO-NS masing-masing kemudian dipanaskan pada suhu 300 °C selama 30 menit. Pasta Platina juga dilapiskan pada kaca FTO sebagai pembanding.

Preparasi Deposisi TiO₂ sebagai fotoanoda

Pasta TiO₂ dibuat dengan melarutkan 1 g dalam 1 mL etanol. Setelah itu campuran diaduk hingga homogen. Pasta TiO₂ dilapiskan pada kaca FTO dengan metode *slip casting*. Kaca FTO yang telah terlapisi TiO₂ dipanaskan dengan suhu 550 °C. Kemudian kaca FTO

tersebut direndam pada dye kompleks ruthenium N3 (5 mg dalam 50 mL etanol) selama 24 jam.

Pembuatan Elektrolit

Elektrolit dibuat dari 0,8 g kalium iodida (KI) yang dilarutkan dalam 10 mL PEG dan 0,127 g Iodin I₂ dalam 10 mL PEG. Kemudian kedua larutan tersebut dicampur dan diaduk menggunakan pengaduk magnetik selama 30 menit.

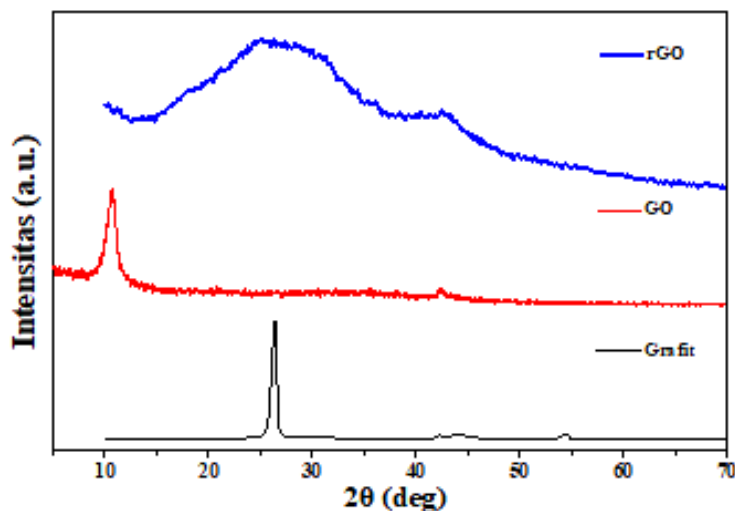
Fabrikasi Sandwich DSSC

FTO terdeposisi oleh TiO₂/dye dan rGO-NS atau platina disatukan dan diberi jarak untuk tempat larutan elektrolit. Celah antara lapisan 2 kaca FTO dari kaca FTO sebagai fotoanoda dan *counter* elektroda diberi larutan elektrolit. Setelah proses preparasi selesai maka dilakukan uji Keithley 2602 A.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil Karakterisasi XRD GO, rGO, dan rGO NS adalah, pada Gambar 1 dan Gambar 2. GO memiliki puncak difraksi yang tajam pada nilai $2\theta = 10,74^\circ$ (*hkl* 001) dan puncak kecil pada nilai $2\theta = 42,42^\circ$ (*hkl* 100). Puncak yang tajam tersebut menunjukkan bahwa pada GO terdapat gugus fungsional oksigen di dalam strukturnya (Sarkar *et al.*, 2014). pada rGO menunjukkan difraktogram puncak yang lebar pada nilai $2\theta = 24,97^\circ$ (*hkl* 002) dan puncak kecil pada nilai $2\theta = 42,42^\circ$ (*hkl* 100). Hasil tersebut sesuai dengan penelitian sebelumnya bahwa rGO menghasilkan puncak yang lebar pada posisi 2θ sebesar $25,00^\circ$ (Razmjooei *et al.*, 2014). Puncak difraksi tajam menghilang pada GO menjadi puncak yang lebar pada rGO sehingga menunjukkan eksfoliasi atau pengelupasan dari beberapa lapisan GO selama proses reduksi.

Adapun nilai jarak antar *layer* ($d_{spacing}$) masing-masing pada grafit, GO, dan rGO sebesar 3,37 Å; 8,22 Å; dan 3,56 Å yang ditunjukkan pada Tabel 1. Terjadinya penurunan $d_{spacing}$ menandakan bahwa proses reduksi GO telah berhasil. Hal ini menunjukkan bahwa $d_{spacing}$ rGO kembali mendekati nilai $d_{spacing}$ grafit namun sedikit lebih besar dari grafit yang menunjukkan bahwa terdapat sedikit gugus fungsional oksigen yang tersisa pada rGO (Xiang *et al.*, 2014).



Gambar 1. Pola difraktogram grafit, GO, dan rGO

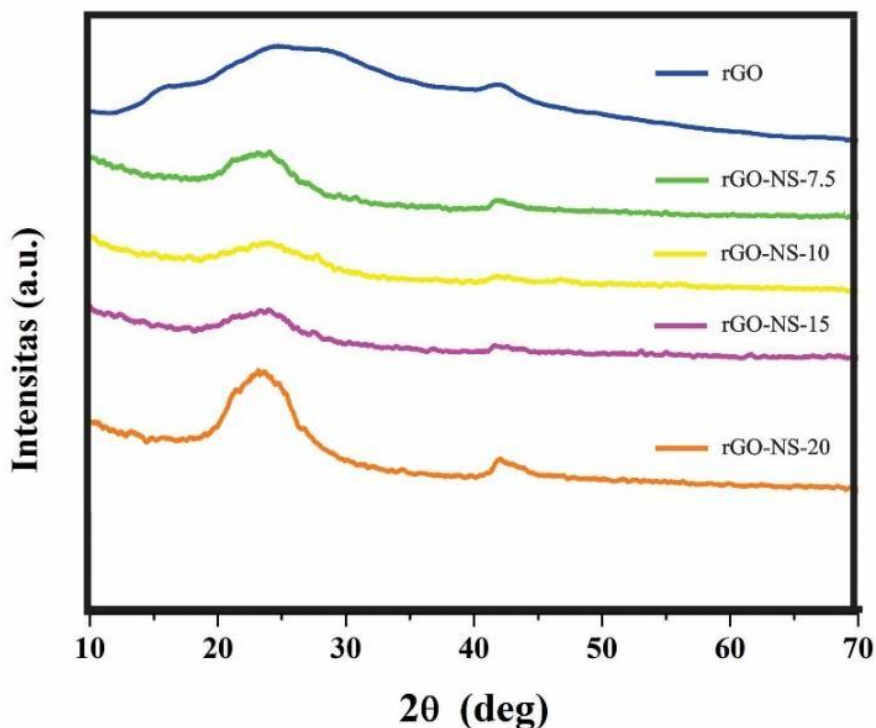
Tabel 1. Hasil perhitungan nilai $d_{spacing}$ dari sampel grafit, GO, dan rGO

No	Sampel	2θ (°)	$d_{spacing}$ (Å)
1.	Grafit	26,42	3,37
2.	GO	10,74	8,22
3.	rGO	24,97	3,56

Hasil XRD perbandingan rGO dengan rGO-NS dengan variasi massa *doping* heteroatom N dan S dari amonium thiosianat ditunjukkan pada Gambar 2. Puncak 2θ didapatkan masing-masing pada material rGO-NS-7,5 sebesar $23,81^\circ$ (*hkl* 002), rGO-NS-10 sebesar $23,95^\circ$ (*hkl* 002), rGO-NS-15 sebesar $24,06^\circ$ (*hkl* 002), dan rGO-NS-20 sebesar $24,35^\circ$ (*hkl* 002). Nilai 2θ pada variasi material rGO-NS mengalami perubahan yang tidak terlalu besar apabila dibandingkan dengan rGO. Perubahan nilai puncak 2θ dikarenakan adanya penambahan *doping* N dan S dari amonium thiosianat apabila dibandingkan dengan material rGO. Berdasarkan pada Tabel 2 didapatkan nilai $d_{spacing}$ masing-masing dari variasi rGO-NS.

Pada variasi rGO-NS didapatkan nilai $d_{spacing}$ masing-masing sebesar $3,73$ Å (rGO-NS-7.5), $3,71$ Å (rGO-NS-10), $3,69$ Å (rGO-NS-15), dan $3,65$ Å (rGO-NS-20). Perbedaan ukuran dapat pula menyebabkan terjadinya *defect* pada kerangka grafena. Adanya *defect* menyebabkan aktivitas katalis pada material rGO-NS meningkat. Selain itu, penambahan *doping* akan menyebabkan *defect* sehingga mengakibatkan ketidakseragaman panjang ikatan pada rGO karena adanya atom-atom C yang hilang selama proses *doping* dan kekosongan pada kristal yang tidak seluruhnya tertutup oleh atom N maupun S, sedangkan

pada proses sintesis rGO tanpa *doping* akan menghasilkan *defect* yang lebih sedikit karena tidak ada pengaruh pemaksaan masuknya dopan pada rGO. Hal itu sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Andrameda *et al.*, (2018) bahwa penambahan *doping* akan mengakibatkan *defect* pada rGO dan perubahan $d_{spacing}$.



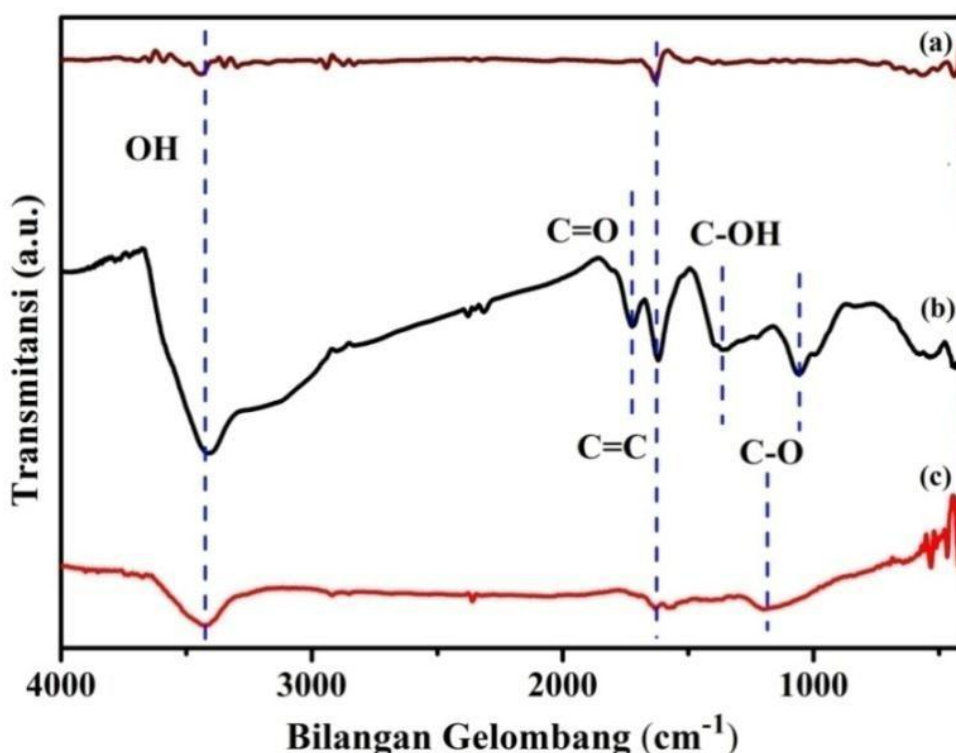
Gambar 2. Pola difraktogram rGO dan variasi rGO-NS

Tabel 4. Hasil perhitungan nilai $d_{spacing}$ dari sampel rGO dan rGO-NS

No	Sampel	2θ (°)	$d_{spacing}$ (Å)
1.	rGO	24,97	3,56
2.	rGO-NS-7,5	23,81	3,73
3.	rGO-NS-10	23,95	3,71
4.	rGO-NS-15	24,06	3,69
5	rGO-NS-20	24,35	3,65

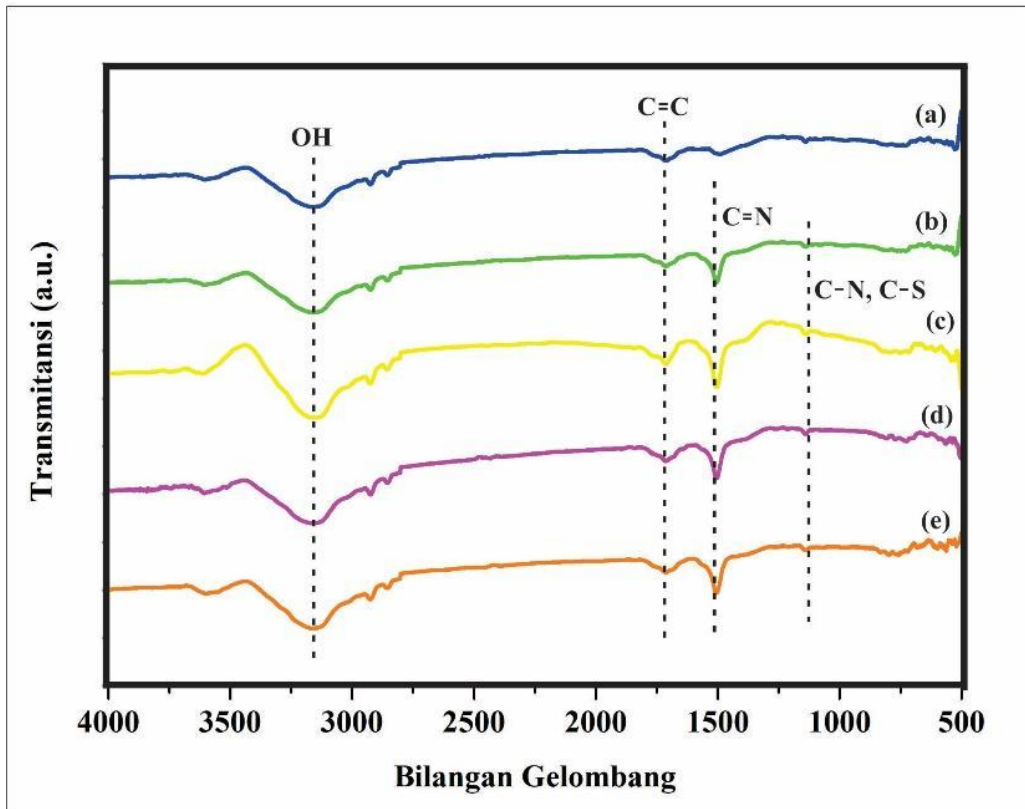
Hasil Karakterisasi FTIR grafit, GO, dan rGO tercantum pada Gambar 3. Spektra FTIR grafit, GO, dan rGO menunjukkan serapan beberapa gugus fungsi pada material grafit, GO, dan rGO. Material grafit memiliki gugus fungsi OH (3441 cm^{-1}) dan C=C (1632 cm^{-1}). Material GO juga memiliki gugus fungsi OH (3415 cm^{-1}) dan C=C (1618 cm^{-1}) serta muncul serapan baru berupa C=O (1722 cm^{-1}), C-OH (1361 cm^{-1}), dan C-O (1057

cm^{-1}) yang mengindikasikan bahwa GO telah terbentuk dari grafit. Sementara pada rGO memiliki gugus OH (3426 cm^{-1}), C=C (1631 cm^{-1}), dan C-O (1198 cm^{-1}) dengan mengalami penurunan intensitas puncak apabila dibandingkan dengan GO. Serapan C-OH dan C=O pada material rGO tidak terlihat lagi apabila dibandingkan dengan GO yang mengindikasikan bahwa GO telah berhasil direduksi (Mu *et al.*, 2016). Hal itu menunjukkan pula bahwa rGO telah terbentuk dengan terjadinya pengurangan gugus OH dan hilangnya gugus C=O.



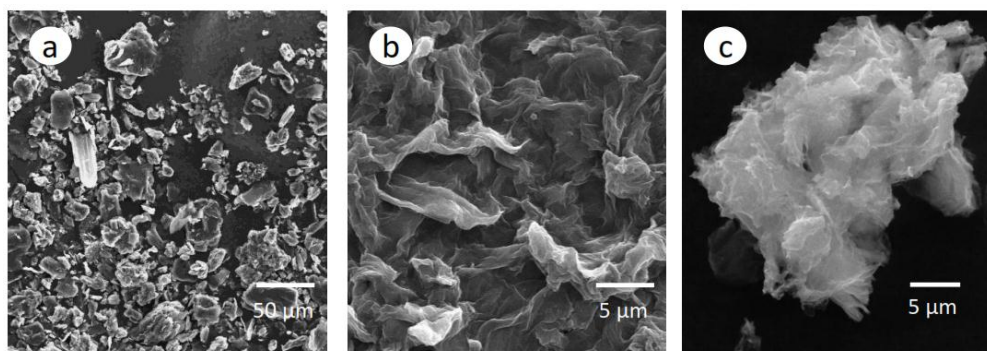
Gambar 3. Spektra FTIR pada (a) grafit, (b) GO, dan (c) rGO

Serapan baru hasil *pendopingan* dari amonium thiosianat menjadi material rGO-NS ditunjukkan pada Gambar 4. Material rGO-NS-7,5, rGO-NS-10, rGO-NS-15, dan rGO-NS-20 pada Gambar 4 menunjukkan daerah serapan baru pada bilangan gelombang $1501\text{-}1516 \text{ cm}^{-1}$ yang merupakan vibrasi C=N. Adanya vibrasi C=N pada daerah serapan tersebut menandakan terjadinya ikatan C rangkap pada GO dengan dopan N yang berasal dari amonium thiosianat. Sedangkan pada daerah bilangan gelombang $1130\text{-}1146 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi C-N dan atau C-S yang menandakan adanya ikatan C tunggal pada GO dengan dopan N dan atau S yang berasal dari amonium thiosianat.



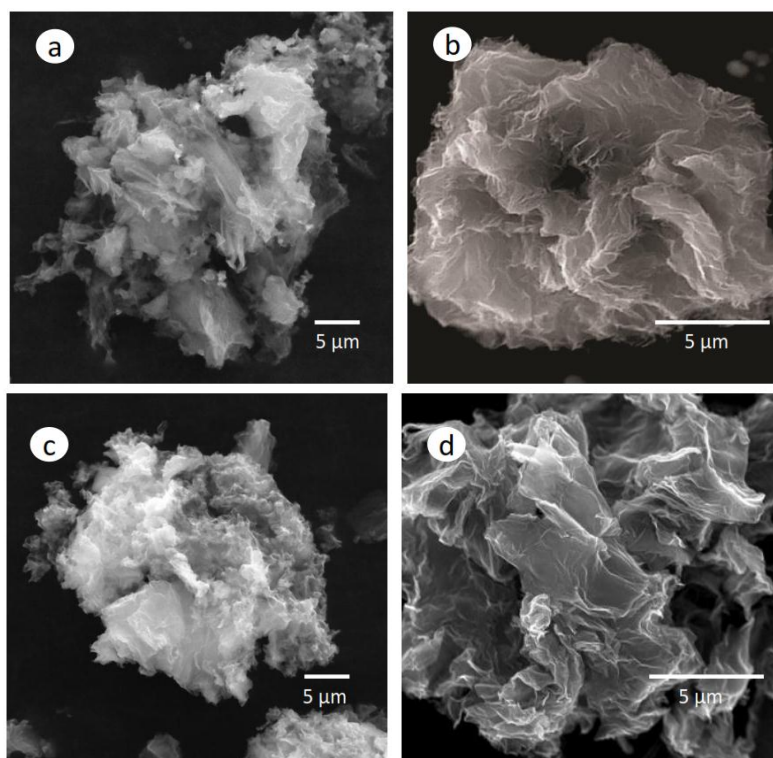
Gambar 4. Spektra FTIR (a) rGO, (b) rGO-NS-7,5, (c) rGO-NS-1, (d) rGO-NS-15, dan (e) rGO-NS-20

Hasil Karakterisasi SEM-EDX GO, rGO, dan rGO NS ditunjukkan pada Gambar 5. Analisis SEM Material grafit memiliki bentuk berupa serpihan atau *flakes* kasar yang menyebar dengan ukuran yang bervariasi dan tidak beraturan seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5(a). Setelah grafit mengalami oksidasi dan sonikasi maka morfologi yang terjadi ditunjukkan pada Gambar 5(b) berupa lembaran-lembaran berlapis sehingga terlihat tebal dan jarak antar lapisannya terlihat jelas. Ketebalan pada morfologi GO dikarenakan adanya gugus fungsional oksigen yang terikat di dalamnya. Hal tersebut mengindikasikan bahwa grafit telah terkelupas selama proses oksidasi. Sedangkan morfologi rGO ditunjukkan pada Gambar 5(c) yang memperlihatkan bahwa rGO memiliki morfologi lembaran yang tipis apabila dibandingkan dengan GO dan terlihat jarak antar lapisannya yang menurun.



Gambar 5. Morfologi hasil karakterisasi SEM material (a) Grafit, (b) GO dan (c) rGO

Pada Gambar 6 menunjukkan hasil analisa SEM untuk rGO-NS-7.5, rGO-NS-10, rGO-NS-15, dan rGO-NS-20. Material-material tersebut terlihat memiliki morfologi berupa lembaran tipis dan menumpuk yang terdiri dari beberapa lapisan. Lapisan tersebut menandakan adanya jarak antar lembaran satu dengan lainnya (Fu *et al.*, 2016). Pengamatan morfologi untuk rGO yang ditunjukkan pada Gambar 5 dengan rGO-NS (Gambar 6) terlihat sama dan sulit untuk dibedakan karena atom terdoping akan larut dan sedikit sehingga sulit untuk merubah morfologi rGO (Andrameda *et al.*, 2018). Keberadaan atom N dan S pada variasi massa prekursor pendoping rGO-NS dibuktikan dengan hasil dari pengujian EDX yang ditunjukkan pada Tabel 3.



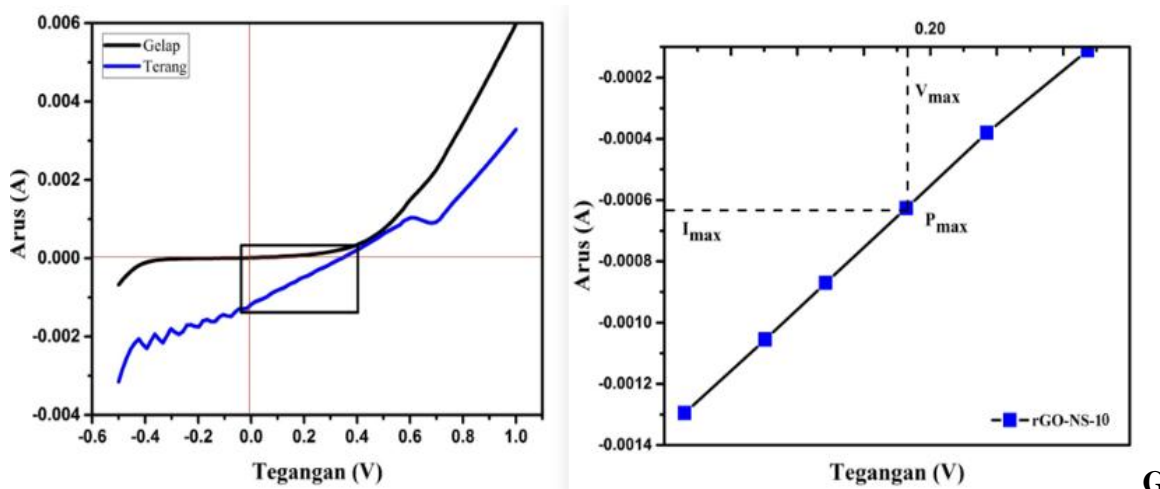
Gambar 6. Morfologi hasil karakterisasi SEM material (a) rGO-NS-7.5, (b) rGO-NS-10, (c) rGO-NS-15, dan (d) rGO-NS-20

Hasil analisa elemen yang terdapat pada Tabel 3 menunjukkan bahwa doping N dan S, dengan amonium thiosianat sebagai sumber dopan, telah berhasil dilakukan. Namun, semakin meningkat penambahan massa amonium thiosianat tidak menjadikan dopan N dan S selalu bertambah persentasenya. Hal itu dikarenakan komposisi yang optimum ada pada penambahan massa 1 g amonium thiosianat.

Tabel 3. Persentase Elemen pada rGO dan variasi rGO-NS

No	Sampel	Persentase Elemen (%)			
		C	O	N	S
1.	GO	72,29	27,48	-	-
2.	rGO	78,92	21,08	-	-
3.	rGO-NS-7,5	83,16	13,63	2,21	1,00
4.	rGO-NS-10	78,44	16,97	3,25	1,34
5.	rGO-NS-15	86,24	10,53	2,20	1,03
6.	rGO-NS-20	89,21	8,12	2,31	0,36

Hasil yang diperoleh berupa kurva I-V yang ditunjukkan pada Gambar 7. Hasil perhitungan pada Tabel 4 menunjukkan bahwa adanya lapisan rGO-NS sebagai elektroda lawan mampu meningkatkan efisiensi dari DSSC. Nilai efisiensi DSSC tertinggi diperoleh pada rGO-NS-10 sebesar 0,1268% dengan peningkatan perbandingan efisiensi masing-masing sebesar 11,32 kali apabila dibandingkan dengan Pt. Sifat elektronik material rGO-NS yang baik telah dapat dimanfaatkan sebagai elektroda lawan pada sistem DSSC. Material rGO-NS.



Gambar 7. Karakteristik grafik dioda dalam uji kinerja DSSC pada rGO-NS-10

Dopan N dan S mampu meningkatkan efek katalitik melalui perubahan polaritas yang meningkat. Material rGO-NS yang memiliki sifat katalitik meningkat dapat mereduksi I_3^- menjadi I^- di dalam elektrolit sehingga proses siklus elektron di dalam DSSC berjalan lebih lancar maka telah menghasilkan peningkatan efisiensi konversi foton menjadi elektrik (listrik). Hal tersebut telah dibuktikan bahwa elektroda lawan rGO-NS mampu memberikan peningkatan efisiensi apabila dibandingkan dengan Pt dan rGO. Pt mungkin akan lebih tinggi pada sistem lain karena material tersebut adalah yang paling sering digunakan, namun dalam penelitian ini ditemukan bahwa Pt bernilai lebih rendah dari rGO-NS. Pada hasilnya menunjukkan rGO-NS lebih tinggi efisiensinya karena pada material rGO yang terdoping memungkinkan adanya efek sinergis antara rGO dengan atom tambahannya berupa N dan S. Sedangkan pada Pt kemungkinan tidak terjadi efek sinergis sebagaimana yang ada pada rGO-NS.

Tabel 4. Hasil perhitungan pengukuran DSSC menggunakan *I-V* Keithley

Sampel CE pada DSSC	Parameter						Peningkatan η (kali)
	V_{oc} (V)	I_{sc} (A)	V_{max} (V)	I_{max} (A)	P_{max} (W)	η (%)	
Platina	0,24	24×10^{-5}	0,10	11×10^{-5}	$1,12 \times 10^{-5}$	$1,12 \times 10^{-2}$	0,00
Grafit	0,12	4×10^{-5}	0,11	2×10^{-5}	$0,22 \times 10^{-5}$	$0,22 \times 10^{-2}$	-0,80
GO	0,04	3×10^{-5}	0,03	6×10^{-5}	$0,17 \times 10^{-5}$	$0,17 \times 10^{-2}$	-0,85
rGO	0,15	15×10^{-5}	0,09	8×10^{-5}	$0,73 \times 10^{-5}$	$0,73 \times 10^{-2}$	-0,35
rGO-NS-7,5	0,29	97×10^{-5}	0,15	64×10^{-5}	$9,71 \times 10^{-5}$	$9,71 \times 10^{-2}$	8,66
rGO-NS-10	0,32	129×10^{-5}	0,19	64×10^{-5}	$12,68 \times 10^{-5}$	$12,68 \times 10^{-2}$	11,32
rGO-NS-15	0,23	62×10^{-5}	0,20	22×10^{-5}	$2,36 \times 10^{-5}$	$2,36 \times 10^{-2}$	2,10
rGO-NS-2	0,12	30×10^{-5}	0,08	25×10^{-5}	$0,91 \times 10^{-5}$	$0,91 \times 10^{-2}$	-0,12

KESIMPULAN

Amonium thiosianat sebagai agen dopan N dan S dapat mempengaruhi struktur, sifat kimia, dan morfologi rGO-NS yang ditunjukkan dengan adanya perubahan hasil karakterisasi dari uji XRD, FTIR, dan SEM-EDX. Hal itu dibuktikan dengan adanya perubahan material rGO-NS dengan $d_{spacing}$ sebesar 3,65-3,73 Å, karakter gugus fungsional muncul serapan baru C=N, C-N, dan C-S, dan adanya perbedaan morfologi dan distribusi unsur apabila dibandingkan dengan material GO dan rGO. Struktur rGO-NS mampu

meningkatkan performa efisiensi DSSC sebagai elektroda lawan. Hasil efisiensi tertinggi diperoleh pada material rGO-NS-10 sebesar 0,1268% dengan menunjukkan peningkatan efisiensi sebesar 11,32 kali lebih baik daripada elektroda lawan Pt.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis berterima kasih kepada Direktorat Riset dan Pengabdian Masyarakat, Direktorat Jenderal Penguatan Riset dan Pengembangan, Kementerian Riset Teknologi dan Pendidikan Tinggi, Penelitian Pascasarjana, Thesis Magister, yang telah mendanai kegiatan penelitian ini. (Kontrak penelitian Tahun Anggaran 2019 Nomor: 092/SP2H/LT/DRPM/209 dan 718/UN27.21/PN/2019).

DAFTAR PUSTAKA

- Andrameda, Y.A., Susanti, D., and Nurdiansah, H. 2018. Analisa Pengaruh Doping Boron Terhadap Sifat Kapasitif Material Graphene untuk Aplikasi Superkapasitor. *Jurnal Teknik ITS* 7(1), 55-60. doi: 10.12962/j23373539.v7i1.28265.
- Cruz, R., Tanaka, D.A.P., and Mendes, A. 2012. Reduced Graphene Oxide Films As Transparent Counter-Electrodes for Dye-Sensitized Solar Cells. *Solar Energy* 86(2), 716-724. doi: 10.1016/j.solener.2011.11.010.
- Duan, X., O'Donnell, K., Sun, H., Wang, Y., and Wang, S. 2015. Sulfur and Nitrogen Co-Doped Graphene for Metal-Free Catalytic Oxidation Reactions. *Small Journal*. 11(25), 3036-3044. doi: 10.1002/smll.201403715.
- Eluyemi, M.S., Elureja, M.A., Adedeji, A.V., Olofinjana, B., Fasakin, O., Akinwunmi, O.O., Ilori, O.O., Famojuro, A.T., Ayinde, S.A., and Ajayi, E.O.B. 2016. Synthesis and Characterization of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide Thin Films Deposited by Spray Pyrolysis Method. *Graphene* 5(03), 143-154. doi: 10.4236/graphene.2016.53012.
- Fu, C., Song, C, Liu, L., Xie, X., and Zhao, W. 2016. Synthesis and Properties of Nitrogen-Doped Graphene as Anode Materials for Lithium-Ion Batteries. *International Journal of Electrochemical Science* 11, 3876-3886. doi: 10.20964/110391.
- Gao, Z., L. Wang, J. Chang, X. Liu, D. Wu, F. Xu, Y. Guo, and K. Jiang. 2016. Nitrogen Doped Porous Graphene as Counter Electrode for Efficient Dye-Sensitized Solar Cell. *Electrochimica Acta* 188, 441-449. doi: 10.1016/j.electacta.2015.12.008.
- Gong, J., Sumathy, K., Qiao, Q., dan Zhou, Z. 2017. Review on Dye-Sensitized Solar Cells (DSSCs): Advanced Techniques and Research Trends. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 68, 234-246. doi: 10.1016/j.rser.2016.09.097.
- Hardani, Hendra, Darmawan, M.I., Cari, and Supriyanto, A. 2016. Pengaruh Konsentrasi Ruthenium (N719) Sebagai Fotosensitizer dalam Dye-Sensitized Solar Cells (DSSC) Transparan. *Jurnal Fisika dan Aplikasinya* 12(3), 104-108. doi: <http://dx.doi.org/10.12962>.

- Jayaraman, V.K., Álvarez, AM, Bizarro, M., Koudriavtsev, Y., and de la Luz Olvera Amador, M., 2017. Effect of Precursor Type and Doping Concentration on the Physical Properties of Ultrasonically Sprayed Aluminium and Indium Co-Doped Zinc Oxide Thin Films. *Thin Solid Films* 642, 14-19. doi: 10.1016/j.tsf.2017.09.012.
- Kannan, A.G., Zhao, J., Jo, S.G., Kang, Y.S., and Kim, D. 2014. Nitrogen and Sulfur Co-doped Graphene Counter Electrodes with Synergistically Enhanced Performance for Dye-Sensitized Solar Cells. *Journal of Materials Chemistry* 31(2), 12232-12239. doi: 10.1039/C4TA01927J.
- Li, M., Guo, Q., Xie, J., Li, Y., and Feng, Y. 2017. CuO Nanoparticles Supported on Nitrogen and Sulfur Co-Doped Graphene Nanocomposites for Non Enzymatic Glucose Sensing. *Journal Nanopart Res* 19(11), 1-12. doi: 10.1007/s11051-016-3712-7.
- Liu, Q., Zhou, Y., Duan, Y., Wang, M., and Lin, Y. 2013. Improved Photovoltaic Performance of Dye-Sensitized Solar Cells (DSSCs) by Zn⁺ Mg Co-doped TiO₂ Electrode. *Electrochimica Acta* 95, 48-53. doi: 10.1016/j.electacta.2013.02.008.
- Razmjooei, F., Singh, K.P., Young, S.M., and Yu, J.S. 2014. Enhanced Electrocatalytic Activity by Addition *Doping* of Phosphorus in Nitrogen and Sulfur Graphene: A Comprehensive Study. *Carbon*. 78, 257-267. doi: 10.1016/j.carbon.2014.07.002.
- Sarkar, S.K., Raul, K.K., Pradhan, S.S., Basu, S., and Nayak, A. 2014. Magnetic Properties of Graphite Oxide and Reduced Graphene Oxide. *Physica E*. 64, 78-82. doi: 10.1016/j.physe.2014.07.014.
- Su, Y., Zhang, Y., Zhuang, X., Li, S., Wu, D., Zhang, F., and Feng, X. 2013. Low-temperature synthesis of nitrogen/sulfur co-doped three-dimensional graphene frameworks as efficient metal-free electrocatalyst for oxygen reduction reaction. *Carbon* 62, 296–301. doi: 10.1016/j.carbon.2013.05.067.
- Syakir, N., Nurlina, R., Anam, S., Aprilia, A., Hidayat, S., and Fitrilawati. 2015. Kajian Pembuatan Oksida Grafit untuk Produksi Oksida Grafena dalam Jumlah Besar. *Jurnal Fisika Indonesia* 19(55), 26-29. doi: 10.22146/jfi.24354.
- Xiang, Z., Zhou, X., Wan, G., Zhang, G., and Cao, D. 2014. Improving Energy Conversion Efficiency of Dye-Sensitized Solar Cells by Modifying TiO₂ Photoanodes with Nitrogen-Reduced Graphene Oxide. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*. 2(5), 1234-1240. doi: 10.1021/sc5000732.
- Xu, X., Huang, D., Coo, K., Wang, M., Zakaeruddin, S.M., and Gratzel, M. 2013. Electrochemically Reduced Graphene Oxide Multilayer Films as Efficient Counter for Dye-Sensitized Solar Cells. *Scientific Reports* 3(1489), 1-7. doi: 10.1038/srep01489.
- Yu, Z., Bai, Y., Wang, Y., Liu, Y., Zhao, Y., Liu, Y., and Sun, K. 2016. One-step Synthesis of Three-Dimensional Nitrogen and Sulfur Co-doped Graphene Networks As Low Cost Metal-Free Counter Electrodes for Dye-Sensitized Solar Cells. *Chemical Engineering Journal* 311, 302-309. doi: 10.1016/j.cej.2016.11.093.