# FABRIKASI SUPERKAPASITOR BERASASKAN ELEKTROD DARIPADA BIOJISIM DAN ELEKTROLIT POLIMER GEL

(Fabrication of Supercapacitor Based on Electrode Prepared from Biomass and Gel Polymer Electrolyte)

## Nur Izyani Aini Abd Ghani, Mohamad Redwani Mohd Jasni, Mohamad, Deraman & Siti Aisyah Shamsudin

Pusat Pengajian Fizik Gunaan, Fakulti Sains Dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 Bangi, Selangor, Malaysia

Pengarang rujukan: aisyah@ukm.edu.my, +60389213343

## ABSTRAK

Elektrod superkapasitor dihasilkan daripada bahan tambahan minyak kelapa sawit (MKS) serta serbuk karbon swa-merekat terawat KOH (SKSMT), yang mana disediakan daripada serabut tandan kelapa sawit. Empat jenis elektrod karbon teraktif (KT) telah dihasilkan melalui proses karbonisasi dan aktivasi dengan komposisi seperti (a) pelet KT-A (SKSMT), (b) pelet KT-B (95 bt.% SKSMT + 5 bt.% MKS), (c) serbuk KT-C (SKSMT) dan (d) serbuk KT-D (95 bt.% SKSMT + 5 bt.% MKS). Keempat-empat elektrod telah difabrikasi dengan menggunakan elektrolit polimer gel (GPE) yang juga bertindak sebagai pemisah untuk dijadikan sel superkapasitor yang dilabel sebagai sel A, B, C dan D. Analisis XRD menunjukkan pembelauan dua puncak lebar berada pada sudut belauan 24° dan 40° dan serbuk KT yang mengandungi MKS mempunyai nilai nisbah dimensi mikrohablur  $(L_c/L_a)$  yang paling tinggi. Analisis FESEM pula menunjukkan penambahan MKS dalam elektrod KT menyebabkan saiz liang berkurang. Selain itu, kesan penambahan MKS ke atas SKSMT dan penggunaan GPE dapat dilihat dalam pencirian elektrokimia sel superkapasitor apabila sel KT-B mempunyai peningkatan kapasitan spesifik dalam kitaran voltammetri (CV) dan galvanostatik cas-nyahcas (GCD) iaitu 143 Fq  $^{1}$  dan 268.57 Fq<sup>1</sup> serta tenaga spesifik yang tinggi iaitu 7.169 Wh kq<sup>1</sup> jika dibandingkan dengan sel-sel yang lain. Manakala, pencirian daripada impedans elektrokimia (EIS) menukkan sel KT-D dengan penambahan MKS didapati berjaya meningkatkan nilai kapasitan kepada 129 Fg<sup>1</sup> dan mengurangkan rintangan dalaman elektrod kepada 14.25  $\Omega$ .

Kata kunci: Elektrod karbon teraktif; Minyak kelapa sawit; Elektrolit polimer gel; Pencirian elektrokimia; Keliangan

## ABSTRACT

Supercapacitor electrodes were prepared from palm oil (PO) and mixed with KOH treated selfadhesive carbon grains (SACGT) were converted from oil palm empty fruit bunches (EFB). There

were four type of activated carbon (AC) electrodes prepared via carbonization and activation which labeled as pellet AC-A (SACGT), pellet AC-B (95 wt.% SACGT + 5 wt.% PO), powder AC-C (SACGT) and powder AC-D (95 wt.% SAGCT + 5 wt.% PO). All these electrodes were fabricated as supercapacitor cells by using gel polymer electrolyte (GPE) which also acted as a separator, and labeled as cell A, B, C and D. XRD analysis showed diffraction with two broad peaks at diffraction angles of 24° and 40° beside AC powder contained PO have high ratio of microcrystallite dimension  $(L_c/L_a)$ . In FESEM analysis has shown the addition of PO in AC electrodes give smaller grain sizes. Beside that, effect of additional of PO in SACGT and GPE is used as electrolyte for electrochemistry characterization have shown pellet AC-B has increased the specific capacitance for cyclic voltammetry (CV) and galvanostatic charge-discharge (GCD) which are 143  $Fq^{1}$  and 268.57  $Fq^{1}$ , respectively. While the energy specific gave the highest value which is 7.169 Wh  $kg^{-1}$  if compared to other cells. Furthermore, electrochemical impedance spectroscopy (EIS) shows AC-D with additional of OP has succeeded increase the specific capacitance to  $129 \ Fq^1$  and decrease internal resistance of electrode to  $14.25 \ \Omega$ .

Keywords: Activated carbon electrodes; Palm oil; Gel polymer electrolyte; Electrochemical properties; Porosity.

## PENGENALAN

Superkapasitor adalah salah satu sistem penyimpanan tenaga yang mampu untuk menyimpan dan membekalkan tenaga pada kadar yang tinggi kerana mekanisme penyimpanan tenaga adalah cas-nyahcas elektrokimia antara elektrod dan elektrolit. Salah satu kelebihan superkapasitor adalah mempunyai beberapa peringkat magnitud ketumpatan tenaga yang lebih tinggi daripada kapasitor dielektrik konvensional (Pandolfo & Hollenkamp 2006). Jenis elektrod superkapasitor yang sering dihasilkan adalah karbon teraktif. Superkapasitor yang berasaskan karbon ini digunakan secara meluas disebabkan oleh harganya yang murah, kapasitan tinggi dan jangka hayat penggunaannya yang panjang (Xu et al. 2010). Selain itu, struktur superkapasitor adalah terdiri daripada sepasang elektrod, elektrolit, pemisah dan pemungut arus yang menyimpan tenaga elektrik dalam bentuk dua lapisan elektrokimia pada antaramuka permukaan elektrod tercas dan pengecasan ionik dalam larutan elektrolit (Elmouwahidi et al. 2012).

Penggunaan bahan biojisim seperti jerami gandum (Li et al. 2010), habuk papan kayu getah (Taer et al. 2011), kulit ubi kayu (Taer et al. 2013) dan serabut tandan kelapa sawit (STKS) (Farma et al. 2013), telah digunakan sebagai bahan pemula bagi menghasilkan sel elektrod superkapasitor. Di samping itu juga, STKS boleh diproses untuk menghasilkan serbuk kabon swa-merekat (SKSM) serta dirawat dengan rawatan KOH yang menjadi serbuk karbon swa-merekat terawat (SKSMT) (Jasni et al. 2016). Penghasilan elektrod karbon teraktif (KT) dilakukan melalui proses karbonisasi N<sub>2</sub> dan pengaktifan CO<sub>2</sub> (Dolah et al. 2014). Dalam kajian ini, minyak kelapa sawit (MKS) telah digunakan sebagai bahan tambahan dalam SKSMT bagi menghasilkan pelet KT-A (SKSMT), pelet KT-B (95 bt.% SKSMT + 5 bt.% MKS), serbuk KT-C (SKSMT) dan serbuk KT-D (95 bt.% SKSMT + 5 bt.% MKS).

Selain itu, keempat-empat elektrod telah difabrikasi dengan menggunakan elektrolit polimer gel (GPE) untuk menentukan kapasitans spesifik sel superkapasitor melalui pencirian elektrokimia. Dalam kajian ini juga, GPE yang bertindak sebagai pemisah antara dua elektrod digunakan dalam pengujian prestasi elektrokimia elektrod karbon teraktif yang telah dihasilkan. Elektrolit berasaskan polimer mampu menjadi pengganti yang sesuai untuk elektrolit cecair (akues atau organik) terutamanya GPE. Penggantian GPE ini mampu meningkatkan ciri-ciri antaramuka elektrod dan selamat untuk digunakan serta kekonduksian ionik dan kestabilan terma yang tinggi (Hashmi et al. 2011).

### BAHAN DAN KAEDAH

Sebelum proses pra-karbonisasi dijalankan, STKS dileraikan menjadi satu-satu untaian dan bahagian yang keras dipotong untuk memudahkan semasa proses pengisaran STKS dilakukan. Kemudian, STKS ini dimasukkan ke dalam relau karbonisasi (model CMTS B46) pada suhu awal 27°C dan suhu akhir 280°C untuk proses pra-karbonisasi. Diikuti dengan penyejukkan di dalam relau sehingga suhu menjadi lebih rendah daripada 100°C untuk mengelakkan pengoksidaan STKS kepada persekitaran (Deraman et al. 2010; Taer et al. 2011). Proses pengisaran STKS dilakukan menggunakan mesin pengisar dengan penapis bersaiz 0.5 mm dan 0.3 mm yang dimasukkan ke dalam mesin pengisar sedikit demi sedikit untuk mendapatkan pengisaran yang seragam. Selepas dikisar, STKS ini digiling selama 18 jam menggunakan penggiling bebola elektrik (model GEC BS 2206H). Tujuan pengisaran dan penggilingan bebola adalah untuk menghasilkan serbuk karbon swamerekat (SKSM) pada saiz mikrometer. SKSM yang telah dikisar dan diayak menjadi serbuk karbon swamerekat terawat (SKSMT) dengan menjalani rawatan 5 bt.% kalium hidroksida (KOH) dan dimasukkan ke dalam 300 ml air suling yang telah dipanaskan pada suhu 100°C (Jasni et al. 2016).

Kemudian, minyak kelapa sawit (MKS) digaulkan bersama SKSMT dengan penggiling bebola elektrik selama sejam bagi mencapai sebatian yang optimum. Jadual 1 menunjukkan empat sampel dihasilkan iaitu pelet KT-A (SKSMT), pelet KT-B (95 bt.% SKSMT + 5 bt.% MKS), serbuk KT-C (SKSMT) dan serbuk KT-D (95 bt.% SKSMT + 5 bt.% MKS). Pelet KT-A dan KT-B dibentuk dengan memasukkan SKSMT dengan campuran MKS ke dalam acuan berdiameter 20 mm. Serbuk yang dimasukkan mestilah rata sepenuhnya bagi memastikan tekanan mampatan yang dikenakan adalah sekata selain pelet yang dihasilkan mempunyai ketumpatan yang optimum (Deraman et al. 2010). Seterusnya, kesemua sampel dijadikan karbon teraktif melalui proses karbonisasi N<sub>2</sub> dengan suhu sehingga 700°C pada kadar pemanasan 3°C/min selama 1 jam untuk mengoptimumkan pengeluaran bahan-bahan yang meruap daripada pelet. Proses pengaktifan CO<sub>2</sub> turut dilakukan pada suhu bilik hingga suhu 700°C dengan kadar pemanasan 5°C/min dan dikekalkan selama 1 jam (Ishak et al. 2015). Pelet KT-A dan KT-B tersebut kemudiannnya digilap sehingga mencapai ketebalan 0.4mm untuk dijadikan elektrod. Manakala bagi penvediaan serbuk KT-C dan KT-D vang telah melaui proses karbonisasi dan pengaktifan, kemudiannya dicampur dengan 5 bt.% poli(vinilidin florida ko-heksafloropropilin) (PVDF-HFP) untuk menghasilkan pes yang diletakkan di atas pemungut arus (pita grafit) bersaiz 1 cm  $\times$  1 cm dan dikeringkan selama 24 jam pada suhu 110 °C untuk dijadikan elektrod. Keempat-empat elektrod telah difabrikasikan menggunakan elektrolit polimer gel (GPE) untuk dijadikan sel superkapasitor. Berbanding penggunaan asid atau alkali, GPE dipilih sebagai elektrolit bagi ujikaji ini. GPE ini adalah dihasilkan daripada campuran cecair organik Lithium Perchloride (LiClO<sub>4</sub>), larutan PVDF-HFP dalam 20 ml aseton, etilina karbonat (EC) dan propilina karbonat (PC) yang dikacau selama 12 jam pada suhu bilik.

Elektrod	Komponen sampel			
KT-A	Pelet SKSMT sahaja			
KT-B	Pelet (95 bt.% SKSMT $+5$ bt.% MKS)			
KT-C	SKSMT sahaja			
KT-D	Serbuk (95 bt.% SKSMT + 5 bt.% MKS)			

Jadual 1 Penyediaan sampel

Berat, ketebalan dan diameter elektrod karbon berbentuk palet telah diukur bagi menentukan ketumpatan elektrod karbon teraktif sebelum dan selepas proses karbonisasi dan pengaktifan. Beberapa kaedah pencirian telah dilakukan untuk mengenalpasti sifat elektrod yang telah dihasilkan. XRD (model Bruker D8 Advance) yang menggunakan sinaran  $CuK_{\alpha}$  dengan panjang gelombang 1.54Å sebagai alur tuju sinar X telah digunakan bagi menentukan pembelauan XRD elektrod karbon teraktif selain FESEM (model Zeiss SUPRA 55VP) turut digunakan untuk mengenalpasti mikrostruktur monolit karbon teraktif. Di samping itu juga, prestasi elektrokima sel superkapasitor yang telah difabrikasi sebagai elektrod karbon teraktif telah diuji melalui kaedah EIS, CV dan GCD yang menggunakan peranti antaramuka elektrokimia (Solatron 1286).

## HASIL KAJIAN DAN PERBINCANGAN

## Jadual 2 menunjukkan purata berat, dimensi dan ketumpatan elektrod karbon teraktif.

Elektrod	Sebelum karbonisasi			Selepas pengaktifan				
Lickirou	m (g) t	t (mm)	d (mm)	$\rho \; (\mathrm{g} \; cm^{-3})$	m(g)	t (mm)	d (mm)	ρ (g <b>cm<sup>-3</sup></b> )
KT-A	0.73	2.37	20.19	0.00097	0.29	1.63	14.62	0.0011
KT-B	0.75	2.55	20.43	0.00089	0.21	1.78	14.45	0.00071

Kesemua elektrod pelet KT mengalami kadar susutan jisim dan isipadu selepas proses pengaktifan berikutan kekonduksian elektrik sampel karbon adalah berkadar terus terhadap ketumpatannya (Deraman 1994). Pengurangan ketebalan, diameter dan ketumpatan selepas proses pengaktifan juga berlaku secara mendadak. Hal ini kerana pembebasan atom-atom karbon tambahan daripada sel elektrod ketika proses pengaktifan dilakukan selama 3 jam (Dolah et al. 2014).

Manakala KT-C dan KT-D dihasilkan sebagai karbon teraktif untuk penyediaan elektrod perekat. Berat efektif bagi kedua-dua elektrod ini adalah 96 bt.% karbon (0.2g) dan 4 bt.% sebagai agen perekat. Kemudian kesemua sampel melalui ujian XRD.

Teknik pencirian XRD digunakan bagi menentukan pembelauan XRD elektrod karbon teraktif. Secara umumnya, karbon teraktif mempamerkan puncak lebar belauan maksimum pada satah 002 iaitu sekitar  $2\theta \approx 25^{\circ}$  dan lebar puncak belauan yang bertindih pada satah 100 iaitu sekitar  $2\theta \approx 42^{\circ}$  yang membuktikan pembentukan struktur turbostratik apabila mikrostalit grafit dihubungkan secara taut silang dan tersusun secara rawak (Coutinho et al. 2000, Awitdrus et al. 2010). Berdasarkan Rajah 1, keempat-empat elektrod berjaya menunjukkan corak pembelauan yang sama apabila dua lebar puncak belauan untuk satah 002 dan 100 berada pada sudut belauan 24° dan 40°. Jarak antara lapisan (d<sub>002</sub> dan d<sub>100</sub>) dan dimensi mikrohablur L<sub>c</sub> dan L<sub>a</sub> ditentukan berdasarkan persamaan Bragg;

$$n\lambda = 2d\sin\theta \qquad (4.1)$$

dimana, n = tertib pantulan,  $\lambda$  = panjang gelombang, d = jarak antara satah hablur,  $\theta$  = sudut belauan.

Pelebaran garis XRD ditentukan dengan menggunakan persamaan Scherrer;

$$L = \frac{K\lambda}{B\,\cos\theta} \tag{4.2}$$

dimana, L = dimensi kristalit (nm), B = pelebaran barid (radian),  $\lambda$  = panjang gelombang sinar-X, K = pemalar (susunan kira-kira 1, dikenali sebagai pemalar Scherrer).



Rajah 1 Profil XRD untuk elektrod karbon teraktif

Difraktogram yang diperolehi telah diproses bagi mendapatkan nilai-nilai lain seperti jarak antara lapisan satah hablur  $d_{002,100}$ , lebar timbunan  $(L_a)$  dan tinggi timbunan mikrostalit karbon  $(L_c)$  seperti yang ditunjukkan dalam Jadual 3. Penambahan MKS ke atas SKSMT tidak memberi kesan pada nisbah dimensi mikrohablur  $L_c/L_a$  untuk sampel pelet KT apabila pelet KT-B didapati mempunyai nisbah dimensi  $L_c/L_a$  yang rendah berbanding pelet KT-A kerana luas permukaan pelet KT-B berkurang semasa proses karbonisasi dan aktivasi. Namun ia meningkatkan nilai  $L_c/L_a$  untuk serbuk KT-D kerana mempunyai luas permukaan yang tinggi. Oleh itu, sifat ini berkait rapat dengan peningkatan struktur liang elektrod dan dipengaruhi oleh penambahan MKS dalam SKSMT.

Jadual 3 Data XRD untuk elektrod karbon teraktif

Elektrod	$\mathbf{d}_{002}(\mathbf{nm})$	$\mathbf{d}_{100}\left(\mathbf{nm} ight)$	$L_c (nm)$	$L_{a} (nm)$	${ m L_c}/{ m L_a}$	$\mathbf{L}_{\mathrm{c}} \ / \ \mathbf{d}_{002}$
KT-A	0.37	0.11	0.77	1.60	0.48	2.08
KT-B	0.36	0.20	0.74	2.28	0.32	2.03
KT-C	0.34	0.20	0.76	1.58	0.48	2.27
KT-D	0.34	0.20	0.63	1.27	0.50	1.88

Teknik pencirian FESEM turut digunakan untuk mengkaji mikrostruktur elektrod karbon teraktif terhadap penambahan MKS dalam SKSMT. Secara umumnya, liang karbon mempunyai banyak mikrohablur yang tersusun secara rawak antara liang (Liu et al. 2012). Mikrograf permukaan elektrod patahan untuk pelet KT-A, KT-B juga untuk serbuk KT-C dan KT-D telah diperolehi pada skala pembesaran (a) 1000× dan (b) 30000× seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 2 – 5. Berdasarkan Rajah 2 dan 3, pelet KT-A dan KT-B menunjukkan

perbandingan luas permukaan liang yang berbeza disebabkan oleh penambahan MKS apabila pelet KT-B mempunyai saiz liang yang lebih kecil. Ini adalah kerana sebahagian daripada liang-liang tersebut telah ditutupi atau diselaputi oleh MKS ketika proses karbonosasi dan aktivasi dilakukan. Manakala, serbuk KT-C dan KT-D pula tidak memberikan perbezaan saiz liang yang ketara seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 4 dan 5, dan didapati penambahan MKS tidak dapat memenuhi liang elektrod yang turut menghalang ion elektrolit daripada memasuki liang dalaman.



Rajah 2 Mikrograf FESEM untuk pelet KT-A pada skala pembesaran (a) 1000× dan (b) $_{30000\times}$ 



Rajah 3 Mikrograf FESEM untuk pelet KT-B pada skala pembesaran (a) $1000\times$ dan (b) $30000\times$ 



Rajah 4 Mikrograf FESEM untuk serbuk KT-C pada skala pembesaran (a) 1000× dan (b) $_{30000\times}$ 



Rajah 5 Mikrograf FESEM untuk serbuk KT-D pada skala pembesaran (a) 1000× dan (b) $_{30000\times}$ 

Pencirian menggunakan teknik spektroskopi impedans elektrokimia (EIS) untuk sebuah sel superkapasitor kebiasaannya dilakukan dengan litar terbuka menggunakan amplitud voltan yang kecil (contohnya  $\pm 5$  dan  $\pm 10$  mV) dengan pelbagai frekuensi (contohnya 1 mHz hingga 1 MHz) (Basri et al. 2013). Rajah 6 menunjukkan plot Nyquist lazim yang digunakan untuk menentukan nilai kapasitan spesifik (C<sub>sp</sub>), rintangan dalaman elektrod (R<sub>et</sub>) dan rintangan siri setara (ESR) (Taer et al. 2011), dan nilai yang diperolehi melalui kaedah piawai ini telah disenaraikan seperti dalam Jadual 4.

Berdasarkan Rajah 6, bentuk lengkungan menunjukkan kesemua sel mempunyai sifat kapasitif yang memuaskan manakala bentuk separa bulat mewakili kesan resistif major serta kapasitif minor pada antaramuka elektrod atau elektrolit. Nilai resistif major meningkat disebabkan oleh rintangan elektronik elektrod, rintangan antaramuka antara elektrod dan pemungut arus atau penyerapan ion yang bergerak melaui liang. Nilai kapasitif minor pula dipengaruhi oleh proses cas-nyahcas yang berlaku pada permukaan luar bahan elektrod. Oleh itu, dengan berpandukan nilai kapasitif dan resistif nilai kapasitan maksimum setiap sel dapat ditentukan

melalui luas permukaan keseluruhan liang elektrod karbon. Kapasitan spesifik  $(C_{sp})$  ditentukan menggunakan persamaan berikut;

$$C_{\rm sp} = -\frac{1}{\pi f Z'' m} \tag{4.3}$$

dimana, f = frekuensi, Z'' = impedans maya, m = berat elektrod (Portet et al. 2005).



Rajah 6 Plot Nyquist untuk sel elektrod

Berdasarkan Jadual 4, untuk kes bagi pelet KT dengan penambahan MKS didapati gagal meningkatkan nilai kapasitan namun ia dapat mengurangkan rintangan dalaman elektrod. Namun, ia juga gagal mengurangkan nilai rintangan siri setara. Pengurangan kapasitan spesifik ( $C_{sp}$ ) ini adalah disebabkan oleh pemindahan ion-ion ke permukaan liang elektrod menjadi semakin terbatas dan mengakibatkan sebahagian liang tidak dapat ditembusi oleh ion-ion. Bagi sel untuk elektrod serbuk KT-D, menunjukkan dengan penambahan MKS didapati berjaya meningkatkan nilai kapasitan dan mengurangkan rintangan dalaman elektrod. Namun, ia juga gagal mengurangkan rintangan siri setara. Oleh itu, dalam sel dengan elektrod KT-D ada cas-cas daripada ion-ion larutan GPE yang dapat memenuhi liang elektrod kerana cas-cas tersebut mempunyai masa yang cukup untuk menembusi ke dalam liang dan membentuk dua lapisan elektrik pada antaramuka elektrod/elektrolit.

Jadual 4 Nilai kapasitan spesifik  $(C_{sp)}$ , rintangan dalaman elektrod  $(R_{ct})$ , rintangan siri setara (ESR)

Sel	А	В	С	D
$\mathrm{C_{sp}}~(\mathrm{Fg^{-1}})$	100	70	62	129
$\mathrm{R}_{\mathrm{ct}}\left(\Omega ight)$	27.94	9.17	30.40	14.25
ESR $(\Omega)$	1.15	5.52	3.14	4.31

Susunan pengukuran voltammetri berkitar (CV) dijalankan dengan dikawal pada nilai voltan 0 hingga 1.8 V dengan kadar imbasan 1, 5, 10, 30, 50 dan 100 mV/s. Rajah 7 menunjukkan voltammetri berkitar terbentuk

seperti tetingkap segi empat selain puncak yang menonjol pada tetingkap voltan yang sempit yang merupakan antara bukti sifat pseudokapsitan. Kadar imbasan yang lebih pantas pula menunjukkan tahap cas-nyahcas yang lebih tinggi (Farma et al. 2013). Nilai  $C_{sp}$  dikira dengan menggunakan persamaan berikut;

$$C_{\rm sp} = \frac{2i}{Sm} \tag{4.4}$$

Dimana, i = arus elektrik dan S = kadar imbasan (Farma et al. 2013).

Berdasarkan Rajah 7 (a), sel B mempunyai tetingkap potensi elektrokimia yang luas berbanding sel A manakala sel D juga menunjukkan luas tetingkap potensi elektrokimia yang besar berbanding sel C. Kadar imbasan  $1 \text{mVs}^{-1}$  digunakan sebagai parameter utama kerana pada kadar ini setiap sel mengambil masa yang sangat lama untuk mencapai tahap voltan sehingga 1.8 V dan dapat mengukur peningkatan nilai kapasitan sel superkapasitor. Ini membuktikan bahawa penambahan MKS serta penggunaan GPE dapat meningkatkan luas permukaan elektrod serta kekonduksian ionik untuk sel superkapasitor.

Berdasarkan Rajah 7 (b), sel A dan sel B mempunyai nilai kapasitan spesifik yang lebih tinggi berbanding sel C dan sel D. Akan tetapi, nilai kapasitan untuk elektrod yang mempunyai penambahan MKS memberi nilai yang lebih tinggi berbanding elektrod yang hanya mengandungi SKSMT sahaja. Hal ini membuktikan bahawa penambahan MKS ke dalam SKSMT memberikan prestasi kapasitan yang bagus untuk sel superkapasitor serta meningkatkan luas permukaan elektrod tersebut.



Rajah 7 (a) Lengkungan CV pada kadar imbasan 1mV/s untuk sel elektrod (b) Kapasitan spesifik pada kadar imbasan berbeza

Pencirian berasaskan kaedah galvanostatik cas-nyahcas (GCD) digunakan untuk menentukan dan mengira ketumpatan kuasa dan tenaga superkapasitor bagi sel superkapasitor. Proses cas-nyahcas sel tersebut adalah pada arus malar yang merupakan kesan daripada tindak balas voltan (Beidaghi et al. 2011). Julat voltan yang digunakan adalah antara 0 – 1.8 V. Daripada data lengkung GCD, kapasitan spesifik  $C_{sp}$  untuk elektrod karbon dapat ditentukan melalui persamaan berikut;

$$C_{\rm sp} = \frac{2\iota}{\frac{\Delta V}{\Delta t}m} \tag{4.5}$$

Dimana,  $i = \text{arus elektrik}, \Delta t = \text{masa nyahcas dan } \Delta V = \text{voltan (Beidaghi et al. 2011; Valante-Nabais et al. 2011; Tsay et al. 2012; Elmouwahidi et al. 2012).}$ 

Berdasarkan data GCD juga, nilai kuasa spesifik (P) dan tenaga spesifik (E) dapat ditentukan menggunakan persamaan di bawah;

$$P = \frac{V i}{m}$$
(4.6)  
$$E = \frac{V i t}{m}$$
(4.7)

Dimana, V = voltan dan i = arus elektrik (Pandolfo & Hollenkamp 2006; Yu et al. 2011).

Rajah 8 (a) menunjukkan graf lengkungan GCD untuk elektord KT yang mempunyai bentuk lengkungan yang hampir simetri dan keempat-empat sel elektrod juga mencapai voltan antara 1.7 V -1.8 V. Berdasarkan Rajah 8, didapati sel B mengambil masa yang sangat panjang untuk proses potensi cas-nyahcas iaitu 1550s berbanding sel A. Manakala sel D juga mengambil yang lama bagi mencapai potensi voltan 1.8 V berbanding sel KT-C iaitu 1400s. Ini menunjukkan bahawa penambahan MKS dan penggunaan GPE amat mempengaruhi kitaran cas-nyahcas sel superkapasitor selain meningkatkan kestabilan terma. Kuasa spesifik dan tenaga spesifik untuk semua sel elektrod dikira menggunakan persamaan 6 dan 7 dan ditunjukkan pada plot *Ragone* seperti ditunjukkan dalam Rajah 8 (b).



Rajah 8 (a) Lengkungan GCD untuk elektrod karbon teraktif (b) Plot Ragone bagi setiap elektrod karbon teraktif

Berdasarkan Jadual 5, dengan penambahan MKS pada elektrod karbon dan menggunakan GCE sebagai medium elektrolit, KT-B menunjukkan peningkatan kapasitan spesifik dalam kitaran CV dan GCD iaitu 143

Fg<sup>1</sup> dan 268.57 Fg<sup>1</sup>. Manakala, pencirian daripada EIS bagi sel D menunjukkan dengan penambahan MKS didapati berjaya meningkatkan nilai kapasitan kepada 129 tenaga spesifik daripada GCD untuk semua sel superkapasitor menurun secara seragam dan ia meningkatkan nilai kapasitan spesifik. Selain itu, kuasa spesifik setiap sel superkapasitor bagi sel A didapati mempunyai nilai kuasa yang optimum berbanding sel B yang mempunyai nilai optimum bagi tenaga. Nilai tenaga sel C pula adalah optimum berbanding sel D. Hal ini membuktikan bahawa penambahan MKS serta penggunaan GPE berjaya meningkatkan nilai tenaga spesifik dalam sel superkapasitor kerana saiz ion yang lebih kecil memudahkan pengakutan cas ionik ke dalam elektrolit. Luas permukaan elektrod juga tinggi disebabkan oleh peningkatan kekonduksian ionik dalam GPE. Nilai-nilai tenaga spesifik dan kuasa spesifik ini berada dalam julat tipikal tenaga spesifik dan kuasa spesifik (Simon & Gogotsi 2008).

Sel	EIS	GCD	$\mathbf{CV}$	GCD		
	$C_{sp} \ \left(F \ g^{\text{-1}}\right)$		$P (W kg^{-1})$	E (Wh kg <sup>-1</sup> )		
А	100	152.76	127	345.22	4.852	
В	70	268.57	143	326.45	7.169	
С	62	100.52	65	342.22	3.192	
D	129	140.68	116	320.41	6.892	

Jadual 5 Nilai tenaga spesifik bagi EIS, CV dan GCD juga kuasa spesifik dalam GCD

## **KESIMPULAN**

Sel elektrod superkapasitor dihasilkan daripada serbuk karbon swa-merekat terawat KOH (SKSMT) yang diproses daripada serabut tandan kelapa sawit (STKS) dicampur bersama bahan tambahan minyak kelapa sawit (MKS). Elektrod karbon teraktif yang terhasil daripada proses karbonisasi dan aktivasi ini telah difabrikasikan menggunakan elektrolit polimer gel (GPE) yang juga bertindak sebagai pemisah untuk dijadikan sel superkapasitor. Kesan penambahan MKS ke atas SKSMT dan penggunaan GPE dapat dilihat dalam pencirian elektrokimia sel superkapasitor apabila elektrod pelet KT-B sesuai dijadikan sel superkapasitor kerana mempunyai peningkatan kapasitan spesifik dalam kitaran voltammetri (CV) dan galvanostatik cas-nyahcas (GCD) iaitu 143 Fg<sup>-1</sup> dan 268.57 Fg<sup>-1</sup> serta tenaga spesifik yang tinggi iaitu 7.169 Wh kg<sup>-1</sup>. Manakala, pencirian daripada impedens elektrokimia (EIS) bagi elektrod KT-D menunjukkan dengan penambahan MKS didapati berjaya meningkatkan nilai kapasitan dan mengurangkan rintangan dalaman elektrod.

### PENGHARGAAN

Setinggi-tinggi penghargaan kepada Universiti Kebangsaan Malaysia yang menaja projek penyelidikan ini melalui Geran GGPM-2014-034. Ucapan terima kasih juga kepada Centre for Research and Instrumentation Management (CRIM) untuk penggunaan mesin XRD.

## RUJUKAN

Awitdrus, Deraman, M., Talib, I. A., Omar, R., Jumali, M. H. H., Taer, E. and Saman, M. M., (2010), Microcrystallite dimension and total active surface area of carbon electrode from mixtures of precarbonized oil palm empty fruit bunches and green petroleum cokes, Sains Malaysiana 39(1): 83 - 86.

- Beidaghi, M., Chen, W. and Wang, C., (2011), Electrochemically activated carbon micro-electrode arrays for electrochemical micro-capacitors, Journal of Power Sources 196: 2403 2409.
- Coutinho, A. R., Rocha, J. D. and Luengo, C. A., (2000), Preparing and characterizing biocarbon electrodes, Fuel Processing Technology 67: 93 - 102.
- Deraman, M., (1994), Resistivity of carbon from oil palm bunches: percolation theory, Journal of Physics D: Applied Physics 27: 1060 - 1062.
- Deraman, M., Saad, S. K. M., Ishak, M. M., Awitdrus, Taer, E., Talib, I. A., Omar, R. and Jumali, M. H., (2010), Carbon/carbon nanotubes (CNTs) composites from green pellets contain CNTs and self-adhesive carbon garins from fibres of oil palm empty fruit bunch, AIP Proceedings 1284: 179 - 186.
- Deraman, M., Awitdrus, A., Talib, I. A., Omar, R., Jumali, M. H., Ishak, M. M., Saad, S. K. M., Taer, E., Saman, M. M., Farma, R. and Yunus, R. M., (2010), Electrical conductivity of carbon pellets prepared from mixtures of pyropolymers from oil palm bunches and petroleum greeen coke, AIP Proceedings 1325: 50 - 54.
- Dolah, B. N. M., Deraman, M., Othman, M. A. R., Farma, R., Taer, E., Awitdrus, Basri, N. H., Talib, I. A. Omar, R. and Nor, N. S. M., (2014), A method to produce binderless supercapacitor electrodes monoliths from biomass carbon and carbon nanotubes, Materials Research Bulletin 60: 10 19.
- Elmouwahidi, A., Zapata, B. Z., Carrasco, M. F. and Moreno, C. C., (2012), Activated carbons from KOH activation of argan (Argania spinosa) seed shells as supercapacitor electrode, Bioresouce Technology 111: 185 190.
- Farma, R., Deraman, M., Awitdrus, A., Talib, I. A., Taer, E., Basri, N. H., Manjunatha, J. G., Ishak, M. M., Dolah, B. N. M., and Hashmi, S. A., (2013), Preparation of highly porous binderless activated carbon electrodes from fibres of oil palm empty fruit bunches for applications in supercapacitors, Bioresource Technology 132: 254-261.
- Farma, R., Deraman, M., Awitdrus, A., Talib, I. A., Taer, E., Basri, N. H., Manjunatha, J. G., Ishak, M. M., Dolah, B. N. M., & Hashmi, S. A., (2013), Physical and electrochemical properties of supercapacitor electrodes derived from carbon nanotube and biomass carbon, International Journal of Electrochemical Science 8: 366-375.
- Hashmi, S. A., Kumar, D. and Suleman, M., (2011), Studies on poly(vinylidene fluoride-cohexafluoropropylene) based gel electrolyte nanocomposite for sodium-sulfur batteries, Solid State Ionics 202: 45 - 53.
- Ishak, M. M., Deraman, M., Dolah, B. N. M., Othman, M. A. R., Omar, R., Basri, N. H., Nor, N. S. M., Taer, E., Awitdrus, Farma, R. and Aziz., (2015), Effects of activation time on the performance of supercapacitor binderless activated carbon electrodes derived from fibers of oil palm empty fruit bunches, Advanced Materials Research 1112: 308 - 312.
- Li, X., Han, C., Chen, X. and Shi, C., (2010), Preparation and performancen of straw based activated carbon for supercapacitors in non-aqueous electrolytes, Microporous Mesoporous Material 131 (1 - 3): 303 - 309.
- Liu, M. C., Kong, L. B., Zhang, P., Luo, Y. C. and Kang, L., (2012), Porous wood carbon monolith for highperformance supercapacitor, Electrochimica Acta 60: 443 - 448.
- Pandolfo A. G. and Hollenkamp A.F., (2006), Carbon properties and their role in supercapacitors, Journal of Power Sources 157: 11-27.
- Portet, C., Taberna, O. L., Simon, P., Flahaut, E. and Laberty, R. C., (2005). High power density electrodes for carbon supercapacitor applications, Electrochimica Acta 50: 4147 4181.
- Simon, P. and Gogotsi, Y., (2008), Material for electrochemical capacitors, Nature Material 7: 848 854.

- Taer, E., Deraman, M., Talib, I. A., Awitdrus, A., Hashmi, S. A. and Umar, A. A., (2011), Preparation of a highly porous binderless activated carbon monolith from rubber wood sawdust by a multu-step activation process for application in supercapacitors, International Journal of Electrochemical Science 6: 3301 - 3315.
- Taer, E., Iwantono, Yulita, M., Taslim, R., Subagio, A., Salomo and Deraman, M., (2013), Composite electrodes of activated carbon derived from cassava peel and carbon nanotubes for supercapacitor applications, AIP Proceedings 1554: 70 - 74.
- Tsay, K. C., Zhang, L. and Zhang, J., (2012), Effects of electrode layer composition/thickness and electrolyte concentration on both specific capacitance and energy density of supercapacitor, Electrochimica Acta 60: 428 - 436.
- Valante-Nabais, J. M., Teixeira, J. G. and Almeida, I., (2011), Development of easy made low cost binderless monolithic electrodes from biomass with controlled properties to be used as electrochemical capacitors, Bioresource Technology 102: 2781 - 2787.
- Xu, B., Chen, Y., Wei, G., Cao, G., Zhang, H. and Yang, Y., (2010), Activated carbon with high capacitance prepared by NaOH activation for supercapacitors, Materials Chemistry and Physics 124: 504 509.
- Yu, H., Wu, J., Fan, L., Xu, K., Zhong, X. and Lin, Y., (2011), Improvement of the performance for quasisolid-state supercapacitor by using PVA-KOH-KI polymer gel electrolyte, Electrochimica Acta 56(20): 6881 - 6886.