

Analisis Karakteristik *Graphene Oxide* dan Reduksinya melalui Gelombang Mikro

Fika Fauzi^{1,2✉} dan Wipar Sunu Brams Dwandaru^{1,2}

¹Research Center for Sustainable Nanomaterials, Universitas Negeri Yogyakarta, Jl. Colombo No. 1, Karangmalang, Yogyakarta, 55281

²Jurusan Pendidikan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Yogyakarta, Jalan Colombo No. 1, Karangmalang, Yogyakarta, 55281

Info Artikel

ABSTRAK

Sejarah Artikel:

Diterima:
30 Desember 2020

Disetujui:
30 Juni 2021

Dipublikasikan:
26 Juli 2021

Keywords:
graphene oxide,
reduced graphene
oxide, microwave
radiation

Telah dilakukan preparasi *graphene oxide* (GO) dengan metode Hummer dan direduksi menjadi *reduced graphene oxide* (rGO) melalui penyinaran gelombang mikro. Serbuk GO hasil preparasi dimasukkan ke dalam *microwave* selama 20 menit dan divibrasi menggunakan ultrasonik agar diperoleh larutan dispersi rGO. Selain itu, karakterisasi menggunakan XRD pada sampel GO. Hasil karakterisasi UV-Vis pada sampel GO dan rGO masing-masing menunjukkan serapan pada panjang gelombang 230 nm dan 300 nm, dan serapan tunggal pada 267 nm. Hal ini menunjukkan bahwa penyinaran gelombang mikro berhasil mereduksi oksigen dari GO. Reduksi oksigen dari GO dapat diketahui berdasarkan analisis SEM-EDS yang mampu menunjukkan perubahan morfologi dari GO menuju rGO sekaligus perbedaan kadar unsur atom dalam kedua sampel tersebut. Data SEM menunjukkan lekukan permukaan rGO berubah menjadi lebih kusut daripada permukaan GO yang disebabkan tipisnya permukaan rGO. Ketipisan rGO ini disebabkan oleh penyusutan kadar oksigen dan pemulihan ikatan karbon sp^2 .

ABSTRACT

Graphene oxide (GO) has been prepared using the Hummer method and was reduced to be reduced graphene oxide (rGO) by microwave irradiation. The prepared GO powder was put in the microwave for 20 minutes and vibrated using ultrasonic to obtain rGO dispersion solution. Furthermore, characterization using XRD was performed on GO sample. The results of UV-Vis characterization on GO and rGO samples show that the characteristic of absorption at wavelengths of 230 nm and 300 nm, and single absorption at 267 nm, respectively. It shows that microwave irradiation was successful to reducing oxygen from GO. The oxygen reduction of GO was known by SEM-EDS analysis which shows morphological changes GO to rGO and differences in atomic elements in the samples. SEM data showed that rGO surface was more wrinkled than GO surface due to the thinness of rGO surface. The thinness of rGO was due to reduction of oxygen content and restoration of the sp^2 bonds.

✉ Alamat korespondensi:
Jurusan Pendidikan Fisika, FMIPA, Universitas Negeri Yogyakarta
E-mail: fika.fauzi@uny.ac.id

PENDAHULUAN

Graphene dan turunannya termasuk *Graphene Oxide* (GO) dan *reduced* GO (rGO) merupakan material yang paling populer untuk riset dalam beberapa tahun terakhir ini (Carminati dkk, 2021). *Graphene* adalah material lapisan tunggal berstruktur kristal dua dimensi (2D) dari karbon yang memiliki hibridisasi sp^2 . Struktur 2D menyebabkan material *graphene* dan turunannya memiliki luas permukaan spesifik yang tinggi, fleksibilitas, sifat elektronik, konduktivitas yang sangat baik, dispersi yang baik, dan stabilitas termal yang baik (Osman dkk, 2021; Hu dkk, 2013). Namun, kendala yang dihadapi saat ini adalah cara memproduksi material *graphene* yang efektif dan efisien dalam skala industri.

Beberapa metode sintesis *graphene* yang konvensional adalah pengelupasan mikro mekanis dari grafit (Sinclair dkk, 2019), sonikasi langsung dari grafit (Guler dkk, 2021), pengelupasan elektrokimia (Gurunlu dkk, 2020), *chemical vapor deposition* (CVD) (Lee dkk, 2021), pertumbuhan *epitaxial* pada SiC (Wang dkk, 2021), dan mereduksi GO (Zhang dkk, 2021). Reduksi material GO menjadi rGO berpotensi menjadi metode yang efektif dan efisien untuk memproduksi *graphene* dalam skala industri. GO dan rGO merupakan material yang relatif mudah untuk dimodifikasi (Hu dkk., 2013). Dua material ini adalah bahan dasar yang sangat baik untuk mengikat dan menginternalisasi zat-zat fungsional, seperti molekul kecil, polimer, dan bahan nano lainnya karena luas permukaan spesifik yang tinggi dan gugus fungsi yang melimpah (Georgakilas dkk, 2012). Selain itu, gaya antarmolekul yang kuat antar lapisan *graphene* memfasilitasi agregasi dan penyisipan molekul fungsional.

Analisis struktur GO dan rGO sangat dibutuhkan agar dapat memberikan gambaran jelas tentang modifikasi material berbasis *graphene* untuk keperluan aplikasi lebih lanjut. Hal ini mengurangi biaya produksi material berbasis *graphene* (Ahmad dkk, 2018; Perrozzi dkk, 2014). Selain itu, pemahaman tentang struktur GO dan rGO dapat membantu memahami fenomena fisis yang terjadi pada material tersebut seperti transpor elektron ataupun transpor molekuler (Bouša dkk, 2017; Chi dkk, 2016; Li dkk, 2013). Meskipun GO dan rGO telah diaplikasikan dalam berbagai bidang, pemahaman tentang struktur dan mekanisme pembentukannya masih menjadi perdebatan dan membutuhkan penelitian lebih lanjut. Aliyev dkk (2019) berusaha mengungkap gugus fungsional yang menyusun GO menggunakan berbagai alat dengan menganalisis permukaan GO, namun belum untuk rGO. Dengan demikian, analisis material GO menjadi rGO via gelombang mikro menjadi esensial untuk pengembangan material berbasis *graphene* yang sejauh ini belum dilakukan sebelumnya.

Artikel ini menganalisis permukaan GO dan rGO menggunakan metode *scanning electron microscopy* (SEM) dan *energy dispersive x-ray spectroscopy* (EDS) atau SEM-EDS. Teknik karakterisasi SEM digunakan untuk mendeskripsikan morfologi permukaan GO dan rGO, sedangkan karakterisasi EDS untuk mendapatkan gambaran tentang kadar karbon dan oksigen dalam material GO dan rGO. Dengan demikian, karakterisasi SEM-EDS ini sangat penting untuk mengungkap terjadinya perubahan struktur permukaan dari GO menjadi rGO via gelombang mikro. Selain itu, kadar oksigen yang semakin berkurang akibat perlakuan gelombang mikro pada GO juga dapat menjadi indikasi diperolehnya rGO. Dalam penelitian ini, metode Hummer digunakan untuk mensintesis sampel GO dari bubuk grafit. Sedangkan sampel rGO disiapkan dengan cara mereduksi GO dengan metode penyinaran gelombang mikro dan sonikasi. Metode ini tidak melibatkan komponen berbahaya seperti hidrazin untuk menghasilkan rGO sehingga dapat dianggap sebagai metode yang ramah lingkungan.

METODE

Sintesis Sampel GO

Serbuk grafit diubah menjadi GO menggunakan metode Hummer seperti yang telah dilaporkan oleh Nawaz dkk (2017). 1,0 g serbuk grafit dan 0,5 g NaNO_3 dicampurkan dengan 23 mL H_2SO_4 (98 wt%) dalam gelas reaksi. Setelah itu, KMnO_4 sebanyak 3,0 g ditambahkan ke dalam campuran secara perlahan di dalam *ice bath* dengan suhu di bawah 20°C . Campuran tersebut diaduk dalam mesin *stirring* selama 20 jam dengan menjaga suhu campuran sebesar 40°C dalam *heat bath*. Campuran ditambah H_2O sebanyak 200 mL secara perlahan dan diaduk selama 1 jam sampai larutan berwarna kecoklatan. H_2O_2 (30%) sebanyak 5 mL digunakan untuk mengikat sisa KMnO_4 yang ditandai dengan berubahnya warna larutan menjadi kuning keemasan. Larutan disentrifugasi dan dibilas sampai pH-nya mendekati netral yang kemudian dioven pada suhu 80°C untuk mendapatkan serbuk GO. Untuk mendapatkan larutan dispersi GO, serbuk GO sebanyak 5 mg dicampurkan dengan 15 mL H_2O dan disonikasi dengan gelombang ultrasonik dengan daya 130 W selama 30 menit.

Sintesis Sampel rGO

Sintesis rGO dilakukan dengan cara serbuk GO sebanyak 50 mg dimasukkan ke dalam wadah keramik dan dimasukkan ke dalam mesin gelombang mikro (*microwave*) dengan output 2,45 GHz dan daya sebesar 800 W. Serbuk tersebut diradiasi oleh gelombang mikro selama 20 menit. Hal ini dimaksudkan untuk mereduksi oksigen dari GO menjadi rGO dalam bentuk serbuk. Serbuk hasil radiasi ini kemudian divibrasi menggunakan gelombang ultrasonik untuk mendapatkan larutan dispersi rGO.

Karakterisasi XRD

Analisis struktur kristal dilakukan menggunakan *X-ray diffraction* (XRD) Rigaku Miniflex 600 40 kW 15 mA dengan sumber X-Ray Cu K – α (panjang gelombang 0,154185 nm). Sampel yang diukur adalah grafit dan GO.

Karakterisasi UV-Vis

Pengukuran absorbansi sampel dilakukan menggunakan alat UV-Vis spektrometer *Shimadzu UV-2450*. Sampel yang diukur adalah GO dan rGO. Dalam pengukuran ini, sampel GO dan rGO dibuat dalam bentuk larutan terdispersi dan disesuaikan dengan kuvet dari alat spektrometer UV-Vis.

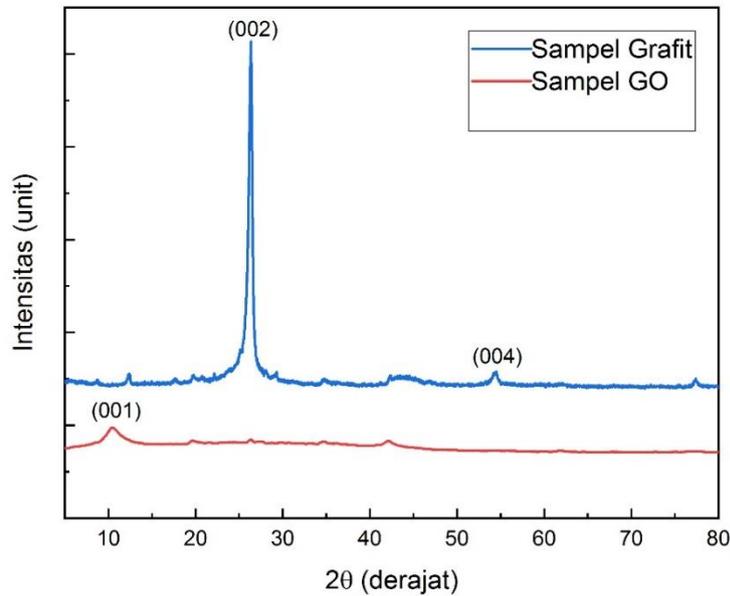
Karakterisasi SEM-EDS

Pengukuran struktur permukaan dan kadar karbon dan oksigen dalam sampel menggunakan SEM-EDS dengan spesifikasi alat *JEOL 6510 LA* dengan tegangan operasional sebesar 20 kV. Agar hasil gambar morfologi SEM yang diperoleh terlihat halus maka sampel GO dan rGO yang sudah didispersi dilapiskan ke atas substrat kaca.

HASIL DAN PEMBAHASAN

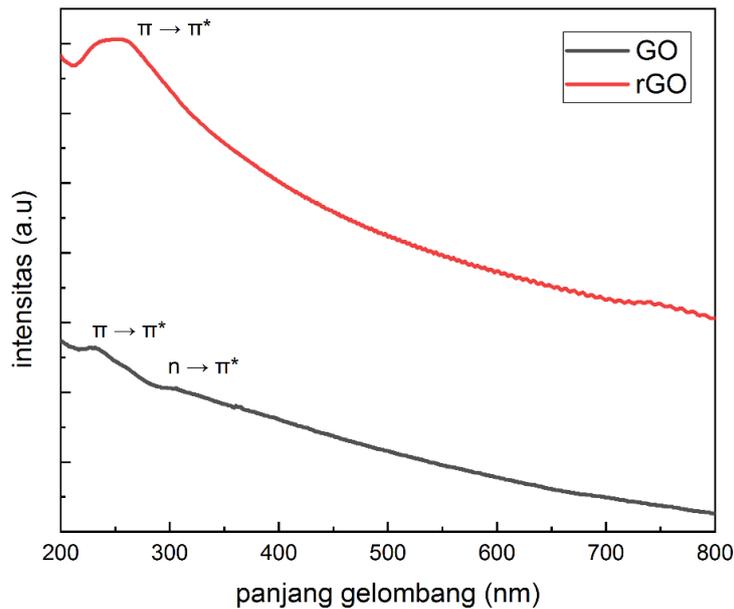
Sampel serbuk grafit dan serbuk GO hasil sintesis dikarakterisasi dengan XRD untuk mendapatkan gambaran perubahan struktur grafit menjadi GO, terutama perubahan jarak antar lapisan karbonnya. Karakterisasi ini bertujuan untuk melihat keberhasilan metode Hummer dalam mengubah serbuk grafit menjadi serbuk GO. Gambar 1 menunjukkan pola spektrum dari grafit dan GO. Sampel grafit memiliki puncak pada 2θ sebesar $26,50^\circ$ dan $54,64^\circ$ yang masing-masing berhubungan dengan bidang (002) dan (004) dari kristal berkisi heksagonal. Sedangkan dalam pola spektrum GO, terdapat puncak spektrum yang dideteksi pada 2θ sebesar $10,6^\circ$ yang berhubungan

dengan bidang kristal (001) dari struktur heksagon GO. Hasil ini sesuai dengan Al-Gaashania dkk (2019) yang menunjukkan bahwa GO memiliki jarak antar lapisan sekitar $7 \text{ \AA} - 9 \text{ \AA}$. Jarak antar lapisan ini jauh lebih besar daripada jarak antar lapisan pada grafit yang bernilai sekitar 3.4 \AA (Al-Gaashania dkk, 2019). Perubahan jarak antar lapisan ini dipengaruhi oleh tambahan gugus fungsional pada GO yang dikonfirmasi oleh data UV-Vis dan SEM-EDS.



Gambar 1. Spektrum XRD sampel grafit dan GO yang menunjukkan puncak karakteristiknya masing-masing.

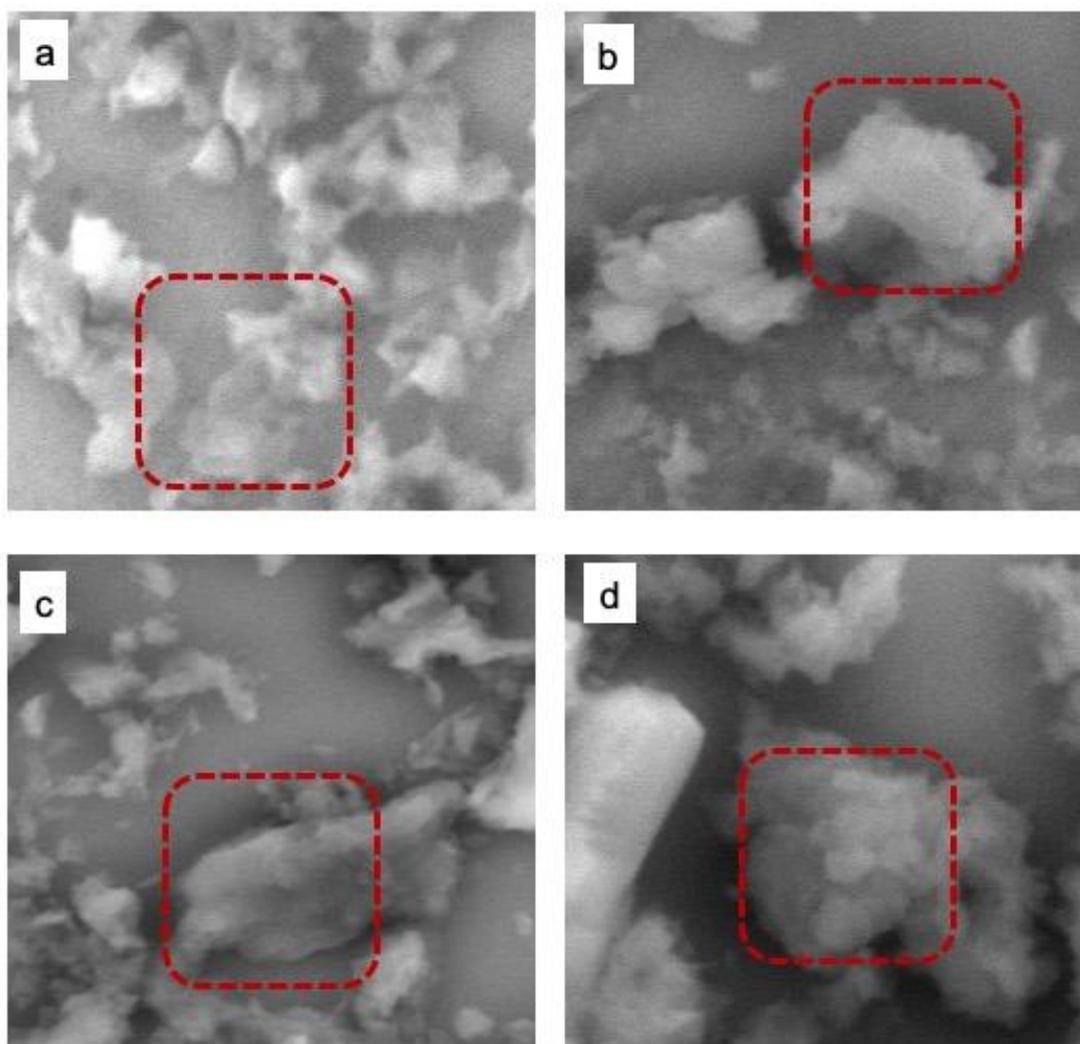
Karakterisasi UV-Vis dilakukan untuk membuktikan keberhasilan reduksi GO menjadi rGO melalui metode penyinaran gelombang mikro. Hasil spektrum UV-Vis dari GO dan rGO dapat dilihat pada Gambar 2. Sampel GO memiliki serapan khas pada panjang gelombang 230 nm dan puncak bahu pada 300 nm. Puncak pada 230 nm menunjukkan adanya transisi elektronik dari tingkat energi $\pi \rightarrow \pi^*$, sedangkan puncak bahu pada 300 nm menunjukkan adanya transisi elektronik dari orbital $n \rightarrow \pi^*$ (Saleem dkk, 2018). Adanya transisi elektronik $n \rightarrow \pi^*$ menunjukkan kluster sp^3 yang membuktikan adanya gugus fungsional dalam GO. Selain itu, pada daerah panjang gelombang tinggi, spektrum absorbansi GO teramati menuju nol. Hal ini mengindikasikan bahwa GO memiliki sifat semikonduktor yang berbeda dengan *graphene* murni yang bersifat konduktor (Gogoi dkk, 2012).



Gambar 2. Spektrum UV-Vis sampel GO dan rGO dengan puncak serapan karakteristiknya

Sampel rGO menunjukkan serapan karakteristik yang berbeda dengan GO. Puncak serapan rGO berada pada 267 nm yang merupakan transisi elektronik $\pi \rightarrow \pi^*$ pada daerah Brillouin yang berkompetisi dengan interaksi *many-body* dan eksiton resonan dalam material *graphene* (Gogoi dkk, 2012; Santoso dkk, 2014). Selain itu, pada sampel rGO tidak ditemukan serapan pada 300 nm yang menunjukkan bahwa kluster sp^3 sudah tereduksi. Saleem dkk (2018) menyatakan bahwa hilangnya struktur sp^3 dalam GO dibarengi dengan terbentuknya struktur sp^2 yang memulihkan struktur heksagonal *graphene*. Fenomena tereduksinya struktur sp^3 dan terbentuknya struktur sp^2 ini dikarenakan proses radiasi gelombang mikro (Saleem dkk, 2018).

Analisis SEM digunakan untuk memahami morfologi permukaan material GO dan rGO sedangkan analisis EDS digunakan untuk menentukan kadar karbon dan oksigen dalam GO dan rGO. Analisis jumlah unsur atom yang terdapat pada *graphene* dan substratnya pernah dilakukan oleh Fauzi dkk (2018). Hasil analisis morfologi permukaan GO berbeda dengan rGO. Perbandingan atom karbon dengan oksigen dari GO lebih kecil dibandingkan dengan rGO. Gambar 3 menunjukkan data SEM sampel GO dan rGO yang diambil dari beberapa titik sampel.

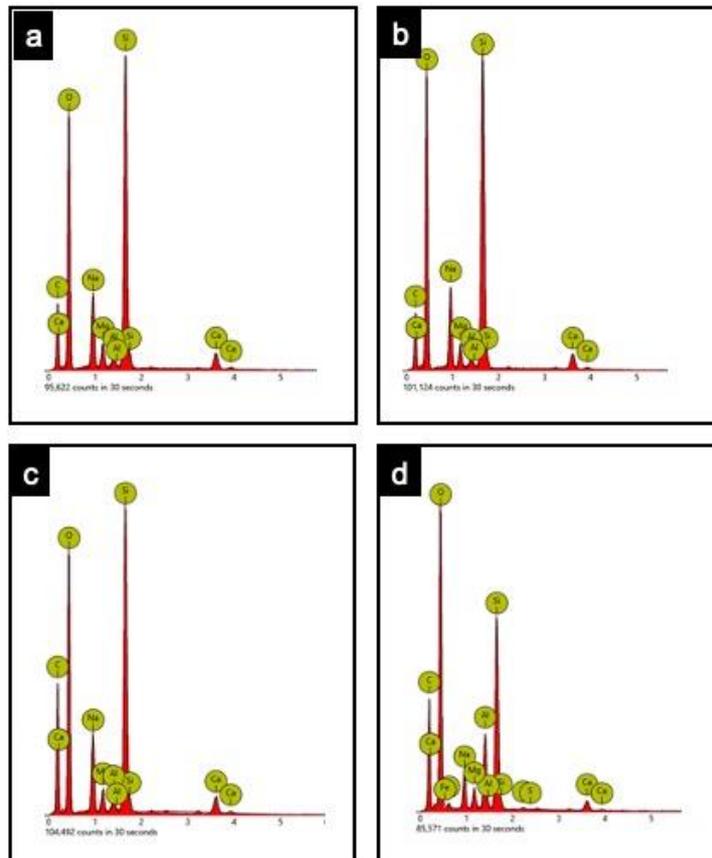


Gambar 3. Hasil SEM untuk a)-b) sampel GO dan c)-d) rGO yang diambil pada daerah dalam kotak merah.

Gambar 3a-b menunjukkan morfologi permukaan GO yang diambil dari dua titik yang berbeda. Pada gambar tersebut dapat dilihat garis-garis lekukan atau lipatan pada permukaan GO. Garis lekukan pada Gambar 3b terlihat jelas menandakan bahwa permukaan GO sangat tipis dalam orde nanometer dan terlipat karena ketidakstabilan termodinamik dari material 2D yang membentuk lipatan untuk mengurangi energinya. Lipatan permukaan GO ini juga sesuai dengan hasil observasi Janowska dkk (2010). Lekukan tersebut juga terlihat pada permukaan rGO (Gambar 3c-d), namun permukaan rGO juga menunjukkan lekukan yang lebih kusut menyerupai gumpalan (Gambar 3d). Hal ini menandakan bahwa lembaran rGO lebih tipis daripada GO sehingga permukaannya lebih mudah untuk tergulung dan lebih kusut. Lekukan yang kusut pada permukaan rGO ini terjadi karena rasio permukaan dan volume pada rGO lebih tinggi daripada GO (Janowska dkk, 2010). Hal ini menjadi alasan karakteristik rGO lebih bagus untuk penyerap molekul daripada GO meskipun gugus fungsionalnya tereduksi.

Kekusutan pada permukaan rGO ini disebabkan oleh berkurangnya gugus fungsional oksigen dalam GO akibat proses reduksi oleh gelombang mikro. Proses reduksi oleh gelombang mikro ini juga menyebabkan pemulihan kisi heksagonal dalam GO yang diwujudkan dalam peningkatan ikatan sp^2 dalam GO. Untuk membuktikan adanya reduksi gugus fungsional oksigen dan pemulihan ikatan sp^2

dalam GO menjadi rGO, diperlukan analisis EDS. Analisis ini didapatkan perbandingan jumlah unsur karbon dan oksigen dalam GO dan rGO. Perbandingan dua unsur ini dapat menjadi indikator proses reduksi dari GO menjadi rGO. Jika perbandingan karbon dan oksigen meningkat maka terjadi reduksi oksigen sekaligus pemulihan ikatan sp^2 .



Gambar 4. Spektrum EDS untuk sampel GO (a-b) dan rGO (c-d) sesuai spot yang diidentifikasi pada Gambar 3.

Gambar 4 menunjukkan spektrum EDS sampel GO dan rGO. Gambar 4a-d menunjukkan spektrum EDS dari daerah yang ditandai (kotak dengan garis warna merah) pada Gambar 3a-d. Untuk sampel GO, Gambar 4a-b menunjukkan secara kualitatif rasio intensitas spektrum unsur karbon : oksigen sekitar 1 : 3, sedangkan untuk sampel rGO pada Gambar 4c-d menunjukkan rasio 1 : 2. Meskipun masih secara kualitatif, hal ini dapat menjadi acuan bahwa terjadi proses reduksi gugus oksigen dan pemulihan ikatan sp^2 pada GO dibuktikan dengan meningkatnya rasio karbon dan oksigen pada sampel rGO. Unsur-unsur yang terdapat pada sampel GO dan rGO ditunjukkan pada Tabel 1. Berdasarkan tabel tersebut dapat dilihat bahwa persentase atom dari unsur karbon dan oksigen pada GO adalah 38,35% dan 44,25% pada daerah Gambar 3a, serta 33,93% dan 48,03% pada daerah Gambar 3b. Kedua daerah ini memiliki kadar karbon dan oksigen yang hampir sama. Hal ini berbeda dengan kadar atom dari unsur karbon dan oksigen pada rGO. Pada daerah Gambar 3c kadar karbon dan oksigennya adalah 46,97% dan 39,37% dan untuk daerah Gambar 3d kadar karbon dan oksigennya adalah 43,00% dan 44,79%. Unsur silikon muncul pada semua sampel dikarenakan sampel GO dan rGO dilapiskan di atas substrat kaca pada saat pengukuran SEM-EDS. Hal ini menunjukkan bahwa kadar karbon pada rGO naik sedangkan kadar oksigen turun. Hal ini sesuai

dengan penjelasan hasil analisis data SEM dan UV-Vis.

Tabel 1. Unsur-unsur yang terdeteksi pada sampel GO dan rGO berdasarkan data EDS

Sampel	Unsur	Konsentrasi atom (at. %)	Konsentrasi berat (Wt. %)
GO (Gambar 3a)	C	38,35	28,25
	O	44,25	43,11
	Si	10,83	18,52
	lainnya	6,58	10,32
GO (Gambar 3b)	C	33,93	24,48
	O	48,03	46,17
	Si	10,89	18,37
	lainnya	7,14	10,98
rGO (Gambar 3c)	C	46,97	36,05
	O	39,37	40,25
	Si	8,17	14,66
	lainnya	5,49	9,03
rGO (Gambar 3d)	C	43,00	32,77
	O	44,79	45,48
	Si	5,93	10,57
	lainnya	6,28	11,17

SIMPULAN

Penelitian ini telah membuktikan keberhasilan sintesis GO menggunakan metode Hummer dan reduksinya menjadi rGO dengan penyinaran gelombang mikro. Analisis XRD menunjukkan bahwa GO telah berhasil disintesis dari grafit. Grafik UV-Vis menunjukkan bahwa GO berhasil direduksi menjadi rGO menggunakan gelombang mikro. Analisis SEM-EDS terhadap GO dan rGO menunjukkan perbedaan morfologi permukaan antar keduanya dan juga menunjukkan kadar karbon dan oksigen dalam kedua sampel tersebut, baik secara kualitatif maupun kuantitatif. Analisis SEM-EDS dan UV-Vis menunjukkan bahwa proses radiasi gelombang mikro menyebabkan berkurangnya gugus fungsi oksigen dari GO dan menyebabkan pemulihan ikatan sp^2 pada karbon dalam GO.

REFERENSI

- Ahmad, H., Fan, M., & Hui, D. (2018). Graphene Oxide Incorporated Functional Materials: A Review. *Composite Part B: Engineering*, 145, 270–280.
- Al-Gaashania, R., Najjar, A., Zakaria, Y., Mansour, S., & Atieh, M. A. (2019). XPS and Structural Studies of High Quality Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide Prepared by Different Chemical Oxidation Methods. *Ceramics International*, 45, 14439–14448.
- Aliyev, E., Filiz, V., Khan, M. M., Lee, Y. J., Abetz, C., & Abetz, V. (2019). Structural Characterization of Graphene Oxide: Surface Functional Groups and Fractionated Oxidative Debris. *Nanomaterials*, 9, 1180.

- Bouša, D., Friess, K., Pilnácěk, K., Vopicčka, O., Lanc̃, M., Fónod, K., Pumera, M., Sedmidubsk, D., Luxa, J., & Sofer, Z. (2017). Thin, High-flux, Self-standing, Graphene Oxide Membranes for Efficient Hydrogen Separation from Gas Mixtures. *Chemistry A European Journal*, 23(47).
- Carminati, S. A., Rodriguez-Gutierrez, I., Morais, A., Silva, B. L., Melo, M. A., Souza, F. L., & Nogueira, A. F. (2021). Challenges and Prospects about the Graphene Role in the Design of Photoelectrodes for Sunlight-driven Water Splitting. *RSC Advances*, 11, 14374-14398.
- Chi, C., Wang, X., Peng, Y., Qian, Y., Hu, Z., Dong, J., & Zhao, D. (2016). Facile Preparation of Graphene Oxide Membranes for Gas Separation. *Chemistry of Materials*, 28, 2921–2927.
- Fauzi, F., Suhendar H., Kusumaatmaja, A., Nugroho, F., Triyana, K. Nugroho, A. A., & Santoso, I. (2018). A Simple Method to Examine Room-temperature Corrosion of Graphene-coated Copper Foil after Stored for 2.5 Years. *Materials Research Express*, 5, 105016.
- Georgakilas, V., Otyepka, M., Bourlinos, A. B., Chandra, V., Kim, N., Kemp, K. C., Hobza, P., Zboril, R., & Kim, K. S. (2012). Functionalization of Graphene: Covalent and Non-covalent Approaches, Derivatives and Applications. *Chemical Reviews*, 112, 6156–6214.
- Gogoi, P. K., Santoso, I., Saha, S., Wang, S., Castro Neto, A. H., Loh, K. P., Venkatesan, T., & Rusydi, A., (2012). Optical Conductivity Study of Screening of Many-body Effects in Graphene Interfaces. *Europhysics Letters.*, 99, 67009.
- Guler, O., Tekeli, M., Taskin, M., Guler, S. H., & Yahia, I. S. (2021). The Production of Graphene by Direct Liquid phase Exfoliation of Graphite at Moderate Sonication Power by Using Low Boiling Liquid Media: The Effect of Liquid Media on Yield and Optimization. *Ceramics International*, 47(1), 521-533.
- Gurunlu, B., Yucedag, C.T., & Bayramoglu, M. R. (2020). Green Synthesis from Graphite in Molten Salt Medium. *Journal of Nanomaterials*, 2020, 1-12.
- Hu, X., & Zhou, Q. (2013). Health and Ecosystem Risks of Graphene. *Chem. Rev.*, 113, 3815–3835.
- Janowska, I., Chizari, K., Ersen, O., Zafeiratos, S., Soubane, D, Da Costa, V., Speisser, V., Boeglin, C., Houllé, M., Bégin, D., Plee, D., Ledoux, M. -J., & Pham-Huu, C. (2010). Microwave Synthesis of Large Few-layer Graphene Sheets in Aqueous Solution of Ammonia. *Nano Research.*, 3, 126–137.
- Lee, I., Nam, J., Park, S. J., Bae, D. J., Hong, S., & Kim, K. S. (2021). Rapid Chemical Vapor Deposition of Graphene using Methanol as a Precursor. *Carbon Letters*, 31, 307-313.
- Li, H., Song, Z., Zhang, X., Huang, Y., Li, S., Mao, Y., Ploehn, H. J., Bao, Y., & Yu, M. (2013). Ultrathin, Molecular-sieving Graphene Oxide Membranes for Selective Hydrogen Separation. *Science*, 342, 95–98.
- Nawaz, M., Miran, W., Jang, J., & Lee, D. S. (2017). One-step Hydrothermal Synthesis of Porous 3D Reduced Graphene Oxide/TiO₂ Aerogel for Carbamazepine Photodegradation in Aqueous Solution. *Applied Catalysis B: Environmental*, 203, 85–95.
- Osman, A., Elhakeem, A., Kaytbay, S., & Ahmed A. (2021). Thermal, Electrical, and Mechanical Properties of Graphene/Nano-alumina/Epoxy Composites. *Materials Chemistry and Physics*, 257, 123809.
- Perrozzi, F., Prezioso, S., & Ottaviano, L. (2014). Graphene Oxide: From Fundamentals to Applications. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 27, 013002.
- Saleem, H., Haneef, M., & Abbasi H. Y. (2018). Synthesis Route of Reduced Graphene Oxide via Thermal Reduction of Chemically Exfoliated Graphene Oxide. *Materials Chemistry and Physics*, 204, 1–7.
- Sinclair, R. C, Suter, J. L., & Coveney, P. V. (2019). Micromechanical Exfoliation of Graphene on the Atomic Scale. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 21, 5716-5722.

- Wang, J., Kim, M., Chen, L., Ho, K.-M., Tringides, M., Wang, C.-Z., & Wang, S. (2021). Manipulation of Electronic Property of Epitaxial Graphene on SiC Substrate by Pb Intercalation. *Physical Review B*, 103, 085403.
- Zhang, L., Cai, P., Wei, Z., Liu, T., Yu, J., Al-Ghamdi, A. A., Wageh, S. (2021). Synthesis of Reduced Graphene Oxide Supported Nickel-Cobalt-Layered Double Hydroxide nanosheets for Supercapacitors. *Journal of Colloid and Interface Science*, 588, 637-645.