

**ANALISIS KOMPARATIF KAPASITANSI KUANTUM MATERIAL DUA
DIMENSI : STUDI DFT PADA GRAFENA DAN GRAFENA TERDOPING
SILIKON (SUPERSEL 1X1)**

***Comparative Analysis of Quantum Capacitance in Two-Dimensional Materials: A DFT
Study on Graphene and Silicon-Doped Graphene (1x1 Supercell)***

Albert Zicko Johannes¹⁾, Gerard Alessandro Maak²⁾ dan Jonshon Tarigan³⁾

^{1, 2, 3)}Program Studi Fisika, Fakultas Sains dan Teknik, Universitas Nusa Cendana

¹⁾e-mail: zickojohannes@staf.undana.ac.id

ABSTRAK

Penelitian ini melaporkan studi komparatif mengenai kapasitansi kuantum grafena murni dan grafena terdoping silikon menggunakan teori fungsi kerapatan (DFT) dengan fungsional PBE. Model supercell 1×1 digunakan untuk menghitung kerapatan keadaan (DOS), yang kemudian menjadi dasar perhitungan kapasitansi kuantum. Grafena murni menunjukkan titik dirac dengan DOS yang hilang pada tingkat Fermi, menghasilkan profil kapasitansi kuantum simetris dan kapasitansi kuantum maksimum sebesar 36 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. Sebaliknya, substitusi silikon pada salah satu atom karbon memodifikasi simetri sublattice yang menginduksi terbentuknya celah pita energi sebesar 2.56 eV. Perubahan ini memengaruhi DOS di sekitar tingkat Fermi dan menghasilkan peningkatan signifikan pada profil kapasitansi kuantum pada daerah tegangan negatif region 40 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. Hasil penelitian ini menunjukkan pentingnya substitusi atom dalam merekayasa sifat elektronik dan kapasitif material dua dimensi, serta membuka jalur untuk optimalisasi kinerjanya pada aplikasi nanoelektronik dan penyimpanan energi.

Kata Kunci: DFT, DOS, Kapasitansi Kuantum, Grafena, dan Grafena terdoping Silikon

ABSTRACT

The research report a comparative study of the quantum capacitance of pristine graphene and silicon-doped graphene using DFT with the PBE functional. A 1×1 supercell model was employed to calculate DOS, from which quantum capacitance was derived. Pristine graphene exhibits a Dirac point with a vanishing density of states (DOS) at the Fermi level, resulting in a symmetric quantum capacitance profile and a maximum quantum capacitance of 36 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. In contrast, silicon substitution on one carbon modifies the sublattice symmetry, which induce a finite band gap 2.56 eV. These changes alter the DOS near the Fermi level and lead to significant increase in the quantum capacitance profile in negative region 40 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. The results emphasize the importance of atomic substitution in engineering the electronic and capacitive properties of two-dimensional materials, offering pathways for optimizing their performance in nanoelectronic and energy storage applications.

Keywords: DFT, DOS, Quantum Capacitance, Graphene and Silicon-doped Graphene.

PENDAHULUAN

Grafena adalah lapisan atom karbon satu lapis dengan kisi honeycomb, yang dikenal sebagai semimetal dengan struktur pita linear dan Dirac cone pada titik K (Novoselov et al., 2004; Neto et al., 2009). Pada grafena, rapatan keadaan (density of states, DOS) bersifat

linear di sekitar energi Fermi dan bernilai nol tepat pada titik Dirac (Neto et al., 2009), menjadikannya komoditas menarik untuk aplikasi elektronika dan penyimpanan energi (Geim & Novoselov, 2007). *Silicene*, struktur 2D analog dari silikon, diprediksi stabil dalam konfigurasi *honeycomb* bersifat *low-buckled*, dan, mirip grafena, memiliki pita π dan π^* yang bersilang secara linear pada Fermi (Cahangirov et al., 2009). Kedua material ini memiliki DOS rendah di sekitar Fermi, sehingga kapasitansi kuantum intrinsiknya cenderung kecil (Fang et al., 2007). Misalnya, studi Xu et al. (2019) menunjukkan bahwa *silicene* murni memiliki DOS sangat rendah di dekat Fermi sehingga kapasitansi kuantumnya terbatas. Untuk meningkatkan kapasitansi kuantum, manipulasi struktur elektronik melalui doping atau kekurangan (defek) sering ditempuh, karena pengenalan keadaan terlokalisasi di dekat Fermi dapat merubah DOS dan menaikkan nilai kapasitansi kuantum (Xu et al., 2019). Studi substitusi atom karbon (C) dengan silikon (Si) pada grafena oleh Pan et al. (2020) menunjukkan perubahan DOS dan pita energi; pada doping substitusi Si 50%, konfigurasi ini menghasilkan semikonduktor dengan celah pita energi sebesar 2.56 eV. Hasil ini menegaskan bahwa doping silikon 1×1 (C:Si=1:1) dapat membuka celah pita energi yang memungkinkan menaikkan kapasitansi kuantum (Pan et al., 2020).

METODOLOGI PENELITIAN

Alat dan Bahan

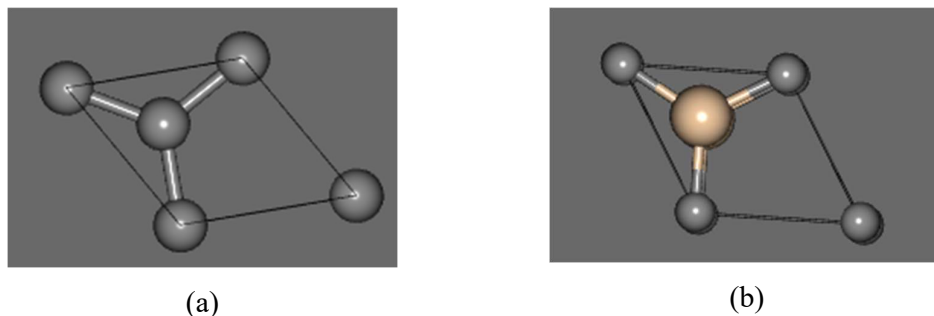
Untuk penelitian yang menggunakan alat bantu perhitungan Laptop Lenovo dengan spesifikasi Intel(R) Core(TM) i3-8145U CPU @ 2.10GHz (2.30 GHz), RAM 8 GB. Selain itu digunakan aplikasi QUANTUM ESPRESSO (QE) (Giannozzi et al., 2009). dan bahasa pemrograman Python pada Jupyter notebook.

Prosedur Penelitian

Perhitungan *ab initio* dilakukan menggunakan teori DFT melalui aplikasi QE. Metode ini berbasis plane-wave dan pseudopotensial, dengan fungsional pertukaran-korelasi GGA–PBE (*Generalized Gradient Approximation* Perdew–Burke–Ernzerhof). Supersel ukuran 1×1 dengan dua atom per sel unit digunakan pada model (Gambar 1) dimana jarak antara atom C-C sebesar 0.142 nm untuk model grafena dan ikatan antara atom C-Si sebesar 0.178 nm untuk model grafena terdoping Si. Penggunaan Supersel 1x1 berdasarkan penelitian Kyle, et al. (2022) sudah dapat menangkap fenomena terbentuknya celah pita energi dan perhitungan kapasitansi kuantum yang akurat. Pita energi dan DOS ($Dos(E)$) pada penelitian ini dihitung pada struktur relaksasi dasar dengan mesh k-point 33x33x1 untuk memastikan konvergensi energi. Kapasitansi kuantum C_q dievaluasi dari formula :

$$C_q = e^2 \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \text{Dos}(E) \cdot F_t(E) dE \quad (1)$$

Dimana $F_t(E)$ adalah fungsi *boardening thermal*.

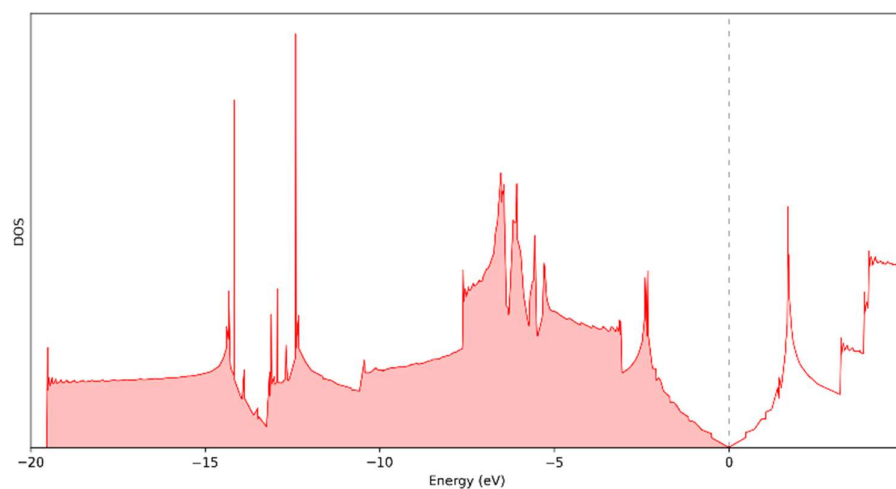


Gambar 1.

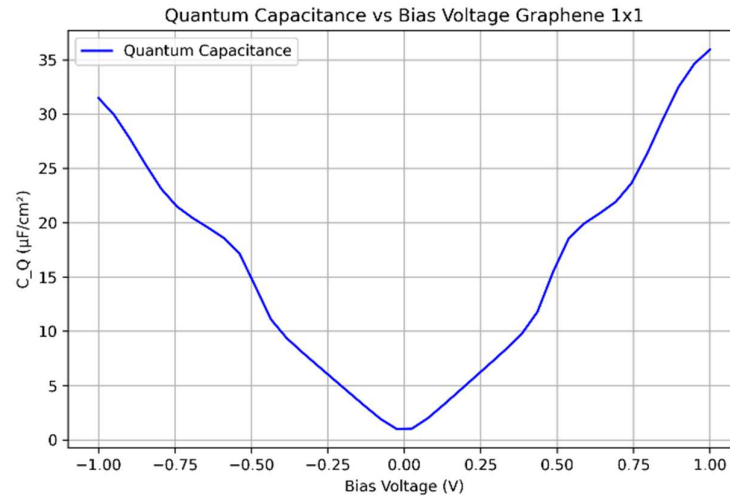
(a) Grafena murni (2 atom C), (b) Grafena terdoping Si (1 atom C dan 1 atom Si)

HASIL DAN PEMBAHASAN

Grafena menunjukkan struktur pita konduksi–valensi khas dengan kerucut Dirac (Novoselov et al., 2004; Neto et al., 2009), pada Gambar 2 hasil perhitungan DOS grafena terbentuk garis linear simetris menuju nol saat mendekati energi Fermi yang menunjukkan keberadaan titik Dirac. Karena DOS adalah nol di energi Fermi, kapasitansi kuantum grafena (Gambar 3) pada keadaan tegangan bias sangat rendah (hampir nol). Secara khas, C_q meningkat linier secara simetris mengikuti pola DOS. Nilai maksimum C_q sebesar $36 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ dicapai pada 1 V saat pita berpindah jauh dari EF, sedangkan pada EF nilai C_q mendekati nol. Fenomena ini konsisten dengan fakta bahwa grafena semula adalah Dirac semimetal dengan DOS nol (Neto et al., 2009; Zhang et al., 2005).

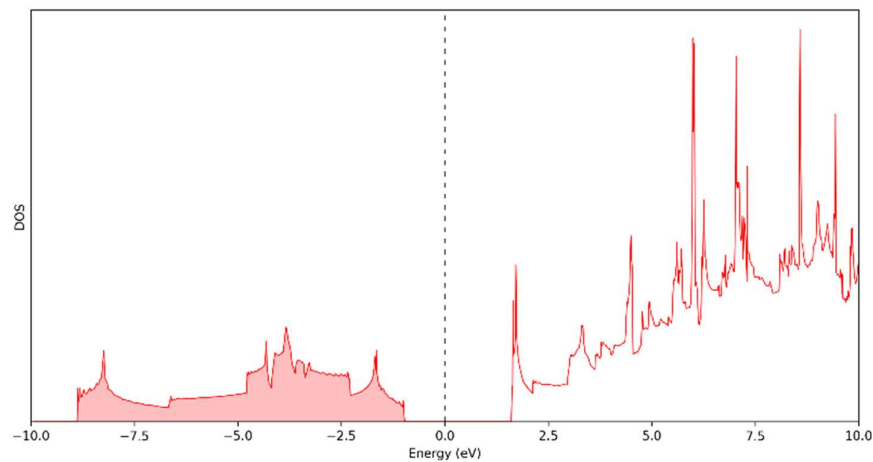


Gambar 2. Grafik DOS Grafena

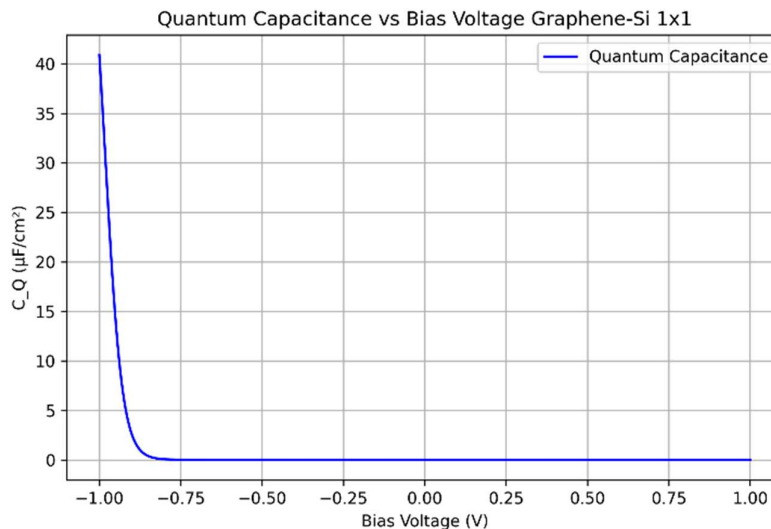


Gambar 3. Kapasitansi Kuantum vs Tegangan Bias Grafena

Pada Gambar 4 merupakan DOS grafena terdoping Si dengan komposisi campuran C dan Si bergantian, aturan simetri sub-lattice pecah. Perhitungan menunjukkan bahwa komposisi campuran ini menimbulkan perilaku semikonduktor, substitusi Si 50% pada grafena menghasilkan celah pita energi sebesar 2.56 eV, dimana hasil tersebut sesuai dengan penelitian Pan et al. (2020) untuk ukuran supercell lebih besar. Nilai C_q maksimum meningkat pada nilai tegangan bias negatif sebesar 40 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. Secara keseluruhan, grafik band grafena terdoping Si berbeda dari grafena murni, tetapi pada daerah mendekati 0.75 V kapasitansi kuantumnya meningkat.



Gambar 4. Grafik DOS Grafena terdoping Si



Gambar 5. Kapasitansi Kuantum vs Tegangan Bias Grafena terdoping Si

KESIMPULAN

Perhitungan DFT menunjukkan bahwa dengan struktur supersel 1×1 ini (grafena, grafena–terdoping Si) memiliki DOS yang sangat kecil di titik Fermi, sehingga kapasitansi kuantumnya pada keadaan netral mendekati nol (Fang et al., 2007; Neto et al., 2009). Grafena mempertahankan dispersif linier khas Dirac (Novoselov et al., 2004; Neto et al., 2009). Struktur grafena terdoping Si mengubah simetri DOS (menghasilkan gap) yang sesuai dengan penelitian Pan et al.(2020) dan Das et al. (2014). Dengan demikian, untuk aplikasi superkapasitor diperlukan modifikasi lebih lanjut seperti doping, defek, atau tumpukan berlapis agar muncul keadaan elektronik baru di sekitar Fermi sehingga C_q dapat meningkat (Xu et al., 2019; Wang et al., 2008). Studi komparatif ini menegaskan kembali pentingnya struktur elektronik dan DOS dalam menentukan kapasitansi kuantum material 2D, serta perlunya rekayasa celah pita energi atau keadaan terlokalisasi untuk peningkatan performa penyimpanan energi (Castro et al., 2007; Wehling et al., 2011; Lee et al., 2008).

DAFTAR PUSTAKA

- Cahangirov, S., M. Topsakal, E. Aktürk, H. Şahin, & S. Ciraci. 2009. Two- and one-dimensional honeycomb structures of silicon and germanium. *Phys. Rev. Lett.* 102: 236804.
- Castro, E. V., K. S. Novoselov, S. V. Morozov, N. M. R. Peres, J. M. B. Lopes dos Santos, J. Nilsson, F. Guinea, A. K. Geim, & A. H. C. Neto. 2007. Biased bilayer graphene: semiconductor with a gap tunable by the electric field effect. *Phys. Rev. Lett.* 99: 216802.

- Das, S., R. Ghosh, & S. Banerjee. 2014. Tunable transport gap in silicene nanoribbons. *Nano Letters*. 14: 5733–5739.
- Fang, T., A. Konar, H. Xing, & D. Jena. 2007. Carrier statistics and quantum capacitance of graphene sheets and ribbons. *Appl. Phys. Lett.* 91: 092109.
- Geim, A. K., & K. S. Novoselov. 2007. The rise of graphene. *Nature Materials*. 6: 183–191.
- Giannozzi, P., S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, et al. 2009. Quantum ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials. *J. Phys.: Condens. Matter*. 21: 395502.
- Kyle, K. A. P., T. C. Calibara, M. A. E. De Guia, J. M. A. Janer, A. C. A. Mañosca, M. C. B. Orolfo, A. A. Salmorin, & M. R. A. Soriano. 2022. Density Functional Theory Calculations of Quantum Capacitance and Total Surface Charge of Graphene with Varying Supercells. *Proceedings of the DLSU Research Congress, SEE-12*. De La Salle University.
- Lee, C., X. Wei, J. W. Kysar, & J. Hone. 2008. Measurement of the elastic properties and intrinsic strength of monolayer graphene. *Science*. 321: 385–388.
- Neto, A. H. C., F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, & A. K. Geim. 2009. The electronic properties of graphene. *Rev. Mod. Phys.* 81: 109–162.
- Novoselov, K. S., A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, & A. A. Firsov. 2004. Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science*. 306: 666–669.
- Pan, H., Y. Wang, H. Wang, & J. Shi. 2020. Electronic properties of Si-doped graphene: a first-principles study. *Nanoscale Research Letters*. 15: 38.
- Perdew, J. P., K. Burke, & M. Ernzerhof. 1996. Generalized gradient approximation made simple. *Phys. Rev. Lett.* 77: 3865–3868.
- Wang, Y., X. Ouyang, & J. Wang. 2008. Room-temperature all-semiconducting sub-10-nm graphene nanoribbon field-effect transistors. *Phys. Rev. Lett.* 100: 206803.
- Wehling, T. O., E. Şaşıoğlu, C. Friedrich, A. I. Lichtenstein, M. I. Katsnelson, & S. Blügel. 2011. Strength of effective Coulomb interactions in graphene and graphite. *Phys. Rev. Lett.* 106: 236805.
- Xu, B., H. Zhang, W. Duan, & L. Yang. 2019. Quantum capacitance of silicene and its applications. *Nanoscale*. 11: 16727–16734.
- Zhang, Y., Y. W. Tan, H. L. Stormer, & P. Kim. 2005. Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene. *Nature*. 438: 201–204.