

STUDI KAPASITANSI KUANTUM BERBASIS DFT PADA GRAFENA DAN GRAFENA TERHIDROGENASI (SUPERSEL 1×1): ANALISIS MENGGUNAKAN SIMULASI QUANTUM ESPRESSO

Albert Zicko Johannes¹, Jonshon Tarigan¹, Agustinus D. Betan² dan Hery L. Sianturi¹

1. Program Studi Fisika, Fakultas Sains dan Teknik, Universitas Nusa Cendana, Penfui, Kota Kupang, Kode Pos, 85360
2. Jurusan Teknik Mesin, Politeknik Kupang, Penfui, Kota Kupang, Kode Pos, 85360
E-mail: zickojohannes@staf.undana.ac.id

Abstrak

Telah dilakukan studi kapasitansi kuantum dari Grafena (Graphene) dan Grafena terhidrogenasi (Graphane) menggunakan simulasi teori fungsional kerapatan (DFT) yang dilakukan dengan bantuan aplikasi Quantum Espresso (QE). Graphene, graphane, dan graphene terhidrogenasi sebagian (adatom hidrogen 50%) dimodelkan menggunakan struktur supercell 1×1. Langkah pertama yang dilakukan dalam perhitungan adalah optimasi struktural untuk mendapatkan geometri yang stabil. Selanjutnya, dilakukan perhitungan kerapatan keadaan elektronik (DOS) untuk mengetahui sifat elektronik dari setiap struktur. Kapasitansi kuantum dan kerapatan muatan permukaan kemudian dihitung pada daerah potensial listrik -1 V s/d 1 V. Hasil penelitian ini menunjukkan bahwa Graphene memiliki sifat konduktivitas semi-metal dengan titik Dirac pada tingkat energi Fermi. Selain itu Graphene menghasilkan kapasitansi kuantum sebesar 31.42 – 35.85 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. Pada Graphene terhidrogenasi 50% terbentuk celah pita energi (semikonduktor) sebesar 1,07 eV karena akibat perubahan ikatan sp^2 menjadi sp^3 . Hal ini mengakibatkan peningkatan nilai kapasitansi kuantum dibandingkan dengan Graphene murni yaitu sebesar 52.06 – 55.19 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. Sebaliknya, Graphane menunjukkan celah pita energi lebar yang menekan keadaan elektronik didekat tingkat energi Fermi dan mengakibatkan nilai kapasitansi kuantum sampai mendekati 0. Penelitian ini menunjukkan bahwa fungsionalisasi hidrogen yang terkontrol secara efektif dapat mengatur nilai kapasitansi kuantum material khususnya Graphene. Hidrogenasi yang terkontrol pada Graphene merupakan potensi yang menjanjikan dalam pemanfaatannya sebagai material elektroda superkapasitor.

Kata Kunci : Kapasitansi Kuantum; grafena; graphane; hidrogenasi; DFT; superkapasitor

Abstract

[Title : DFT-Based Study of Quantum Capacitance for Graphene and Hydrogenated Graphene (1×1 Supercell) : Insights from Quantum Espresso Simulations] A study of the quantum capacitance of graphene and hydrogenated graphene (graphane) has been carried out using Density Functional Theory (DFT) simulations performed with the Quantum Espresso (QE) application. Graphene, graphane, and partially hydrogenated graphene (50% hydrogen adatoms) were modeled using a 1×1 supercell structure. The first step in the calculation was structural optimization to obtain a stable geometry. Next, calculations of the electronic density of states (DOS) were performed to determine the electronic properties of each structure. Quantum capacitance and surface charge density were then calculated in the electric potential range of -1 V to 1 V. The results of this study show that graphene exhibits semi-metallic conductivity with a Dirac point at the Fermi energy level. In addition, graphene produces a quantum capacitance of 31.42–35.85 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. In 50% hydrogenated graphene, an energy band gap (semiconductor) of 1.07 eV is formed due to the change in bonding from sp^2 to sp^3 . This results in an increase in the quantum capacitance value compared with pure graphene, reaching 52.06–55.19 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$. In contrast, graphane shows a wide energy band gap that suppresses electronic states near the Fermi energy level, causing the quantum capacitance value to approach 0. This study demonstrates that controlled hydrogen functionalization can effectively tune the quantum capacitance value of materials, particularly graphene. Controlled hydrogenation of graphene represents a promising potential for its use as a supercapacitor electrode material.

Keywords : quantum capacitance; graphene; graphane; hydrogenation; DFT; supercapacitors

PENDAHULUAN

Material dua dimensi (2D) adalah material yang atom-atomnya tersusun pada sebuah bidang datar. Saat ini material 2D merupakan salah satu material yang menjadi trend dalam bidang teknologi energi dan elektronika, seperti pada superkapasitor [1–6], sensor [7,8] dan transistor [9]. Material 2D mempunyai berbagai keunggulan dibanding material biasa [10–13], salah satunya adalah memiliki luas permukaan yang jauh lebih besar daripada material 3D.

Pada bidang penyimpanan energi berbasis superkapasitor, luas permukaan yang besar jauh lebih besar pada material menjadi keunggulan tersendiri. Superkapasitor menyimpan energi melalui akumulasi muatan di antarmuka elektroda dan elektrolit bila luas permukaan semakin besar maka semakin banyak muatan terakumulasi sehingga energi yang tersimpan menjadi semakin besar. Besar nilai akumulasi muatan ini dinyatakan dengan nilai kapasitansi.

Secara umum kapasitansi total C_{total} ditentukan oleh kapasitansi geometri (C_g) dan kapasitansi kuantum (C_q):

$$1/C_{total} = 1/C_g + 1/C_q \quad (1)$$

Dalam kapasitor konvensional, kapasitansi didominasi oleh C_g . Namun, pada Superkapasitor dimana akumulasi muatan terjadi pada skala nano, C_q menjadi lebih signifikan. C_q menjadi komponen sangat penting dalam superkapasitor, karena mempengaruhi kapasitansi total dalam hal ini efisiensi penyimpanan energi. Dalam nanoelektronika, C_q dapat diaplikasikan sebagai transistor karena mempengaruhi transport muatan sehingga menentukan performa perangkat dan dalam hal sensor perubahan C_q akibat interaksi dengan molekul dapat dimanfaatkan. C_q didefinisikan sebagai [14–17]:

$$C_q = e^2 D(E_F) \quad (2)$$

Dimana $D(E_F)$ adalah integral dari kerapatan keadaan (*density of states*, $DOS(E)$) dikalikan fungsi *broadening thermal* pada temperatur rendah (keadaan energi Fermi). Persamaan (2) menunjukkan ketergantungan C_q pada struktur elektronik dari material.

Selain dari nilai C_q dapat dihitung juga Densitas muatan permukaan *Surface Charge Density* (σ_s) [15–17]:

$$\sigma_s = \int_0^\varphi C_q d\varphi \quad (3)$$

Dimana φ adalah potensial yang diaplikasikan.

Salah satu material 2D, *Graphene* merupakan pionir dan material terpopuler dalam pengembangannya sebagai superkapasitor karena luas permukaan besar dan kemudahannya untuk disintesis [18]. Tetapi *Graphene* sebagai superkapasitor nanomaterial memiliki keterbatasan yaitu nilai C_q yang masih rendah. Pada *Graphene*, yang memiliki *zero band gap*, DOS menjadi sangat kecil di dekat titik Dirac yang merupakan titik dalam struktur pita elektronik graphene dimana pita valensi dan pita konduksi bertemu. Akibatnya nilai C_q pada graphene menjadi rendah.

Salah satu cara untuk memodifikasi sifat elektronik dan meningkatkan kapasitansi kuantum material adalah dengan melakukan doping atau menambahkan keberadaan atom lain di sekitarnya. Dalam hal material graphene dapat dilakukan dengan melakukan fungsionalisasi kimia seperti hidrogenasi dan oksidasi. Pada *Graphene* proses hidrogenasi dapat membuat terjadinya pembukaan celah pita melalui ikatan hidrogen, sehingga memiliki potensi peningkatan kapasitansi kuantum.

Penelitian sebelumnya secara simulasi C_q pada graphene murni atau pristine memiliki nilai terendah $2.55 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ pada 0 V. Dampak berbagai *doping*, *defect*, dan *adatom* menunjukkan bahwa C_q dapat meningkat. Studi pengaruh *doping/defect/adatom* pada *Graphene* sudah banyak dilakukan tetapi analisis komparatif C_q antara graphene dan graphene masih jarang dilakukan, dan pemahaman terbatas tentang efek spesifik gugus fungsional pada nilai C_q .

Oleh karena itu penelitian ini memiliki motivasi untuk mengetahui lebih jauh potensi *Graphene* terhidrogenasi / *Graphane* (adatom Hidrogen)[19–22] sebagai material alternatif superkapasitor. Dengan demikian penelitian ini bertujuan yaitu : analisis komparasi C_q dari *Graphene* dan *Graphane*.

Dalam penelitian ini metodologi yang dipilih adalah penelitian pemodelan simulasi kuantum dengan menggunakan metode *Density Fungsional Theory* (DFT) [23–26] menggunakan bantuan aplikasi *Quantum*

Espresso (QE) [27]. Pemilihan metode DFT dan QE sebagai alat perhitungan adalah karena kemampuannya memprediksi sifat elektronik dan struktur secara akurat yang sudah dibuktikan pada penelitian-penelitian sebelumnya [28,29]. Hasil perhitungan DFT yang berupa DOS dapat digunakan dalam perhitungan nilai C_q sesuai dengan persamaan (2).

Hasil penelitian ini diharapkan dapat memberikan kontribusi ilmiah dan dampak praktis dalam penelitian selanjutnya dibidang Superkapasitor, seperti sebagai pemetaan material turunan *Graphene* fungsionalisasi, sebagai rekomendasi material untuk aplikasi energi (Superkapasitor), dan sebagai acuan optimasi material berbasis *Graphene* untuk teknologi penyimpanan energi berkinerja tinggi.

METODE PENELITIAN

Penelitian ini menggunakan aplikasi QE untuk melakukan perhitungan metode DFT untuk *Graphene*, *Graphane* dan *Graphene* terhidrogenasi 50%. Setelah itu dilanjutkan dengan melakukan perhitungan C_q dan σ_s sesuai persamaan (2) dan persamaan (3). Kemudian hasil yang diperoleh diplot dengan bantuan *Jupyter Notebook*. Langkah-langkah penelitian ini secara berurutan adalah :

1. Pembuatan model *Graphene*, *Graphane*, dan *Graphene* terhidrogenasi 50%. bentuk struktur zigzag dengan ukuran supersel *Graphene* 1×1 (2 atom C) dengan jarak antar lapisan 20 Å. Dari hasil penelitian Paz, dkk [16] diketahui ukuran sel yang kecil tidak terlalu mempengaruhi nilai C_q . Selanjutnya dari model *Graphene* ditambahkan atom H sehingga terbentuk *Graphane* dan *Graphene* terhidrogenasi.
2. Setelah model struktur dibentuk dilakukan perhitungan relaksasi posisi-posisi atom pada model sehingga diperoleh energi total minimum.
3. Langkah berikutnya dilakukan perhitungan DFT untuk mendapatkan struktur elektronik dan DOS. Pada perhitungan ini digunakan pseudo potensial GGA-PBE-RRKJUS dari library QE, *cutoff energy* untuk fungsi gelombang dan kerapatan muatan sebesar

80 Ry dan 400 Ry , *k-point grid* $33 \times 33 \times 1$ dan kriteria konvergensi energi sebesar 10^{-8} Ry.

4. Terakhir dilakukan perhitungan dengan bantuan *Jupyter Notebook* menyelesaikan persamaan (2), persamaan (3) dengan menerapkan integrasi numerik di daerah potensial -1 V s/d +1 V dan memplot hasil.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Model Struktur

Model struktur *Graphene*, *Graphane* dan *Graphene* terhidrogenasi 50% dilihat pada Gambar 1. Pada Gambar 2 dapat dilihat hasil perhitungan DOS dari tiap model. Terlihat model *Graphene* menunjukkan bentuk DOS sesuai dengan hasil penelitian-penelitian sebelumnya [14–16]. Selanjutnya Gambar 3 adalah hasil perhitungan C_q dengan menggunakan persamaan (2). Terlihat nilai C_q mengalami perubahan dengan adanya adatom Hidrogen atau terjadi proses hidrogenasi. Untuk Gambar 4 merupakan hasil perhitungan σ_s dengan menggunakan persamaan (3).

Model-model pada Gambar 1 dibangun menggunakan supersel *Graphene* 1×1 yang terdiri dari dua atom karbon yang tersusun dalam kisi heksagonal. Atom hidrogen dimasukkan untuk membentuk struktur *Graphane* dan *Graphene* yang terhidrogenasi 50%. Relaksasi struktural dilakukan untuk mendapatkan konfigurasi energi terendah. Struktur yang dioptimalkan menunjukkan bahwa adsorpsi hidrogen sedikit mendistorsi geometri planar *Graphene* karena perubahan hibridisasi keadaan karbon dari sp^2 menjadi sp^3 . Modifikasi struktural ini secara signifikan memengaruhi sifat elektronik material tersebut.

Struktur Elektronik dan DOS

Graphene murni menunjukkan DOS linier karakteristik di dekat tingkat Fermi dengan titik Dirac yang terletak tepat pada energi Fermi. Pada titik ini, pita valensi dan pita konduksi bertemu tanpa membentuk celah pita. Akibatnya, kerapatan keadaan pada tingkat Fermi mendekati nol.

Struktur elektronik ini menjelaskan perilaku semi-metal *Graphene*. Meskipun elektron dapat bergerak secara efisien melalui kisi, kerapatan keadaan yang sangat kecil di

dekat tingkat Fermi membatasi jumlah pembawa muatan yang dapat terakumulasi.

Adsorpsi hidrogen secara signifikan memodifikasi struktur elektronik. Ketika atom hidrogen berikatan dengan atom karbon, hibridisasi berubah dari sp^2 menjadi sp^3 . Modifikasi ini memutus konjugasi elektron- π yang bertanggung jawab atas kerucut Dirac grafena.

Pada *Graphane* DOS di dekat tingkat Fermi menjadi hampir nol pada rentang energi yang luas, menunjukkan pembentukan celah pita. Pada *Graphane* yang terhidrogenasi 50%, koeksistensi hibridisasi keadaan karbon sp^2 dan sp^3 yang membentuk keadaan terlokalisasi tambahan di dekat tingkat energi Fermi. Keadaan tambahan ini memainkan peran penting dalam meningkatkan kemampuan penyimpanan muatan material.

Model paling sederhana supersel 1x1 sudah mampu menunjukkan perubahan sifat konduktivitas *Graphene*, tetapi ukuran supersel 1x1 memiliki kelemahan belum bisa menunjukkan variasi keadaan hidrogenasi selain 100% dan 50% sehingga tidak semua variasi bisa dilakukan.

Estimasi Celah Pita Energi dari DOS

Hasil estimasi celah pita energi dari kurva DOS untuk setiap model struktur dapat dilihat pada Gambar 2. Hasil diperoleh dengan mengidentifikasi wilayah energi di sekitar tingkat Fermi dimana kerapatan keadaan menjadi nol.

Graphene murni menunjukkan tidak terdapat celah pita energi, yang mengkonfirmasi karakter semi-logamnya yang terkenal. Pita valensi dan konduksi bertemu di titik Dirac, yang menyebabkann tidak ada pemisahan keadaan energi.

Lain halnya dengan *Graphane* yang menunjukkan celah pita yang besar yang diestimasi dari DOS sekitar 3.02 eV . Celah pita energi yang besar ini muncul dari transisi hibridisasi karbon dari sp^2 ke sp^3 , yang menghilangkan jaringan elektron π yang terdelokalisasi.

Untuk *Graphene* yang terhidrogenasi 50% celah pita yang diestimasi menjadi jauh lebih kecil. Kehadiran dua keadaan ikatan sp^2 dan sp^3 memperkenalkan keadaan elektronik tambahan di dekat tingkat Fermi, secara efektif mengurangi celah pita energi dibandingkan *Graphane*.

Hasil ini menunjukkan bahwa fungsionalisasi hidrogen memberikan metode yang efektif untuk menyesuaikan sifat elektronik material berbasis *Graphene*.

Kapasitansi Kuantum dan hubungannya dengan DOS

Perhitungan nilai C_q dengan persamaan (2) dilakukan pada daerah ± 1 V dirangkum dalam Tabel 1, berdasarkan komparasi terlihat bahwa penambahan atom Hidrogen meningkatkan nilai C_q . *Graphene* menunjukkan nilai C_q sebesar 31,42 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$ pada -1 V dan 35,85 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$ pada $+1$ V. Nilai-nilai ini dibatasi oleh DOS kecil di dekat titik Dirac. *Graphene* yang terhidrogenasi 50% menunjukkan nilai yang jauh lebih besar, yaitu 52,06 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$ pada -1 V dan 55,19 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$ pada $+1$ V. Peningkatan kapasitansi kuantum dapat secara langsung dikaitkan dengan peningkatan DOS di dekat tingkat Fermi karena adsorpsi hidrogen. Sebaliknya, *Graphane* menunjukkan nilai kapasitansi kuantum mendekati nol, yang konsisten dengan celah pita yang besar yang menghilangkan keadaan elektronik di dekat tingkat Fermi. Hasil ini dengan jelas mengkonfirmasi hubungan yang kuat antara DOS dan perilaku kapasitansi kuantum dari material berbasis *Graphene*.

Tabel 1. Komparasi C_q pada ± 1 V dari model struktur *Graphene*, *Graphane* dan *Graphene* terhidrogenasi 50%.

Model Struktur	C_q ($\mu\text{F}/\text{cm}^2$)	
	-1 V	1 V
<i>Graphene</i>	31.42	35.85
<i>Graphane</i>	0	0
<i>Graphene</i> terhidrogenasi 50%	52.06	55.19

Densitas Muatan Permukaan

Perhitungan nilai σ_s menggunakan persamaan (3) dengan hasilnya dirangkum pada Tabel 2. *Graphene* menunjukkan kerapatan muatan permukaan sebesar $-14,55$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ pada -1 V dan $16,12$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ pada $+1$ V, yang menunjukkan akumulasi muatan yang relatif simetris di sekitar tingkat Fermi. *Graphene* yang terhidrogenasi 50% menunjukkan $-11,17$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ pada -1 V dan $2,67$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ pada $+1$ V. Terjadi akumulasi

muatan yang lebih kuat pada daerah potensial negatif. *Graphane* menunjukkan kerapatan muatan permukaan yang dapat diabaikan karena tidak adanya keadaan elektronik di dalam wilayah celah pita.

Dari hasil perbandingan Tabel 2 diketahui bahwa terjadinya peningkatan σ_s berbanding lurus dengan penambahan atom hidrogen, hal ini disebabkan karena keberadaan keadaan ikatan sp^3 yang terus bertambah mengganti ikatan sp^2 . Hal lain yang juga teramati adalah ketika penambahan atom Hidrogen mencapai maksimum mengakibatkan terjadi celah energi yang terlalu besar sehingga membuat celah energi terlalu besar dan membutuhkan bias voltage yang besar baru mengalirkan arus.

Selain itu terlihat pada *Graphene* terhidrogenasi 50% peningkatan σ_s bagian potensial negatif cenderung meningkat lebih tajam dibandingkan dengan bagian potensial positif atau terjadi akumulasi muatan pada potensial negatif. Hal ini terjadi karena keberadaan atom H pada salah satu sisi yang menyebabkan terbentuknya penambahan keadaan tingkat energi di bawah energi Fermi yang jauh lebih banyak dibanding di atas energi Fermi sehingga membuat permukaan dengan muatan negatif menjadi lebih dominan dan terjadi ketidakseragaman antara pita konduksi dan valensi pada DOS yang berakibat terbentuk pita asimetris pada C_q dan σ_s .

Tabel 2. Komparasi σ_s pada ± 1 V dari model struktur *Graphene*, *Graphane* dan *Graphene* terhidrogenasi 50%.

Model Struktur	$\sigma_s(\mu C/cm^2)$	
	-1 V	1 V
<i>Graphene</i>	-14.55	16.12
<i>Graphane</i>	0	0
<i>Graphene</i> terhidrogenasi 50%	-11.17	2.67

Komparasi dengan Penelitian Sebelumnya

Perbandingan antara celah pita energi, C_q , dan σ_s penelitian ini dengan nilai-nilai yang dilaporkan dalam penelitian sebelumnya dapat dilihat pada Tabel 3. Perbandingan menunjukkan bahwa sifat elektronik yang dihitung dalam penelitian ini secara umum konsisten dengan studi teoritis yang dilaporkan sebelumnya [13,16,19]. *Graphene*

menunjukkan celah pita nol, yang sesuai dengan struktur elektronik *Graphene* yang terkenal dimana pita valensi dan konduksi bertemu di titik Dirac. Studi sebelumnya juga melaporkan bahwa *Graphene* memiliki σ_s yang sangat kecil di dekat tingkat Fermi, yang membatasi C_q . C_q *Graphene* yang dihitung dalam penelitian ini berada dalam kisaran tipikal yang dilaporkan. Nilai serupa telah diperoleh dalam studi DFT sebelumnya yang menyelidiki elektroda *Graphene* untuk aplikasi superkapasitor. Untuk *Graphane*, perhitungan saat ini menunjukkan celah pita yang besar (3.02 eV) dan C_q yang dapat diabaikan. Hasil ini konsisten dengan karya teoritis sebelumnya oleh Lebègue, dkk. [19] yang melaporkan bahwa *Graphane* menjadi semikonduktor celah pita lebar setelah hidrogenasi. *Graphene* terhidrogenasi 50% menunjukkan nilai C_q tertinggi (52,06–55,19 $\mu F/cm^2$) di antara model struktur yang diteliti. Peningkatan ini dikaitkan dengan keadaan elektronik tambahan yang diperkenalkan oleh atom hidrogen di dekat tingkat Fermi. Tren serupa telah dilaporkan dalam penelitian sebelumnya di mana fungsionalisasi kimia meningkatkan kepadatan keadaan dan meningkatkan kemampuan penyimpanan muatan material berbasis *Graphene*. Secara keseluruhan, perbandingan ini menegaskan bahwa fungsionalisasi hidrogen memberikan strategi yang efektif untuk menyesuaikan struktur elektronik dan meningkatkan kinerja elektrokimia material superkapasitor berbasis *Graphene*.

Berdasarkan persamaan (1) nilai C_q mempengaruhi nilai C_{tot} . Peningkatan nilai C_q melalui hidrogenasi menjadi sangat krusial karena pada perangkat superkapasitor berbasis material *Graphene*, C_q sering kali menjadi faktor pembatas utama (*bottleneck*) yang menentukan C_{tot} perangkat. Dengan memperbesar nilai C_q limitasi pada akumulasi muatan dapat diminimalisir sehingga performa penyimpanan energi menjadi lebih optimal.

Dibandingkan dengan material 2D lain seperti *silicene* atau *phosphorene* yang secara intrinsik memiliki C_q tinggi, *graphene* terhidrogenasi menawarkan keunggulan dalam hal stabilitas kimia dan kemudahan modifikasi struktur elektronik. Simulasi modifikasi melalui DFT ini menunjukkan bahwa *graphene* dapat melampaui limitasi kapasitas alaminya

tanpa mengorbankan integritas struktural material secara signifikan.

Analisis Error dan Keterbatasan

Meskipun DFT merupakan metode yang ampuh untuk memprediksi sifat elektronik, beberapa keterbatasan perlu dipertimbangkan. Pertama, fungsional pendekatan gradien umum (GGA-PBE-RRKJUS) yang digunakan dalam penelitian ini mungkin meremehkan nilai celah pita material semikonduktor. Kedua, penggunaan supersel 1×1 yang kecil membatasi kemungkinan konfigurasi adsorpsi hidrogen. Supersel yang lebih besar akan memungkinkan penyelidikan distribusi hidrogen yang lebih realistis dan mengurangi interaksi periodik buatan.

Terlepas dari keterbatasan ini, tren yang diamati dalam penelitian ini tetap konsisten secara fisika. Hidrogenasi parsial meningkatkan kerapatan keadaan di dekat tingkat Fermi dan meningkatkan kapasitansi kuantum, sementara hidrogenasi penuh menekan keadaan elektronik dan mengurangi kemampuan penyimpanan muatan.

KESIMPULAN DAN SARAN

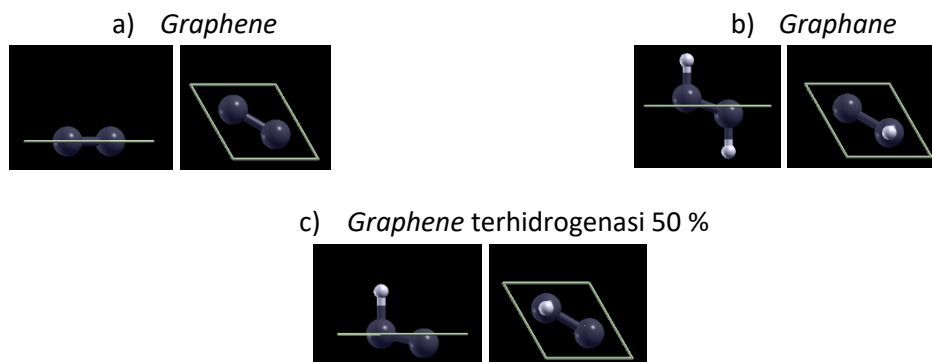
Berdasarkan hasil simulasi DFT menggunakan QE, dapat disimpulkan bahwa hidrogenasi pada *Graphene* memberikan pengaruh signifikan terhadap sifat elektronik dan C_q material. *Graphene* murni menunjukkan sifat semi-metal dengan nilai C_q relatif kecil. Sebaliknya, proses hidrogenasi mengubah struktur elektronik *Graphene* secara signifikan berupa pembukaan celah pita energi

yang membuat perubahan sifat semi-metal menjadi semikonduktor. Sementara itu, *Graphene* terhidrogenasi sebagian (50%) menunjukkan karakter elektronik yang berada di antara *Graphene* dan *Graphane*. Akibat hidrogenasi menyebabkan peningkatan nilai C_q dibandingkan *Graphene*.

Perhitungan σ_s juga menunjukkan bahwa variasi struktur dan tingkat hidrogenasi mempengaruhi kemampuan material dalam menghantar muatan listrik. Hasil ini menunjukkan bahwa rekayasa struktur melalui proses hidrogenasi dapat menjadi strategi efektif untuk meningkatkan performa *Graphene* sebagai material elektroda pada perangkat penyimpanan energi seperti superkapasitor.

Secara keseluruhan, penelitian ini menunjukkan bahwa modifikasi kimia melalui hidrogenasi merupakan pendekatan yang menjanjikan untuk mengontrol sifat elektronik dan meningkatkan nilai C_q pada material berbasis *Graphene*. Penelitian ini juga memiliki keterbatasan perlu ditingkatkan yaitu fungsional pendekatan gradien umum (GGA-PBE-RRKJUS) dan penggunaan supersel 1×1 yang kecil

Untuk penelitian selanjutnya, penggunaan DFT+GW, ukuran supersel yang lebih besar seperti 3×3 atau 4×4 , serta variasi konfigurasi hidrogenasi yang lebih kompleks disarankan agar dapat memberikan gambaran yang lebih realistis terhadap perilaku material dalam kondisi nyata.

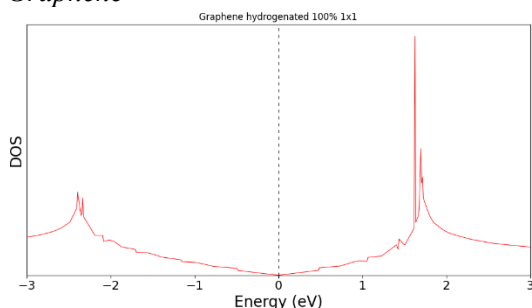


Gambar 1. Model struktur tampak samping dan atas : a) *Graphene*, b) *Graphane* dan c) *Graphene* terhidrogenasi 50%.

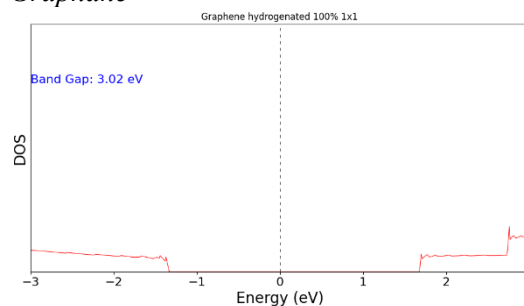
Tabel 3. Perbandingan antara celah pita energi, kapasitansi kuantum, dan kerapatan muatan permukaan penelitian ini dengan nilai-nilai yang dilaporkan dalam penelitian sebelumnya.

Penelitian	Material	Celah Pita Energi (eV)	Quantum Capacitance	Surface Charge Density	Metode
Neto, dkk. (2009)[13]	Graphene	0	-	-	DFT / theoretical review
Lebègue, dkk. (2009)[19]	Graphane	~3.5 – 5.4	-	-	DFT + GW
Paz ,dkk (2022)[16]	Graphene (variasi supersel)	0	~20 – 40 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$	~10 – 20 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$	DFT
Artikel ini	Graphene	0	31.42 – 35.85 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$	-14.55 – 16.12 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$	DFT (QE GGA-PBE)
Artikel ini	Graphane	3,02	~0	~0	DFT (QE GGA-PBE-RRKJUS)
Artikel ini	Graphene terhidrogenasi 50%	1,74	52.06 – 55.19 $\mu\text{F}/\text{cm}^2$	-11.17 – 2.67 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$	DFT (QE GGA-PBE)

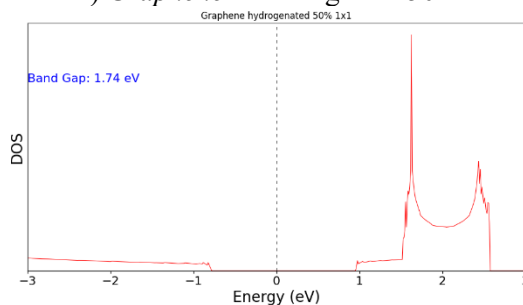
a) Graphene



b) Graphane

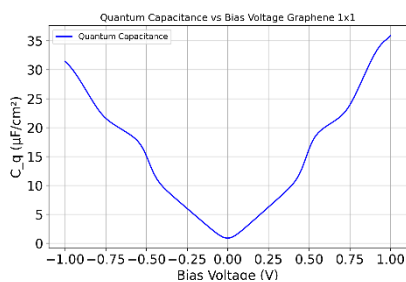


c) Graphene terhidrogenasi 50%

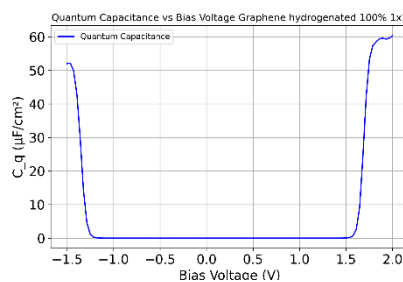


Gambar 2. DOS dari struktur a) Graphene, b) Graphane dan c) Graphene terhidrogenasi 50%.

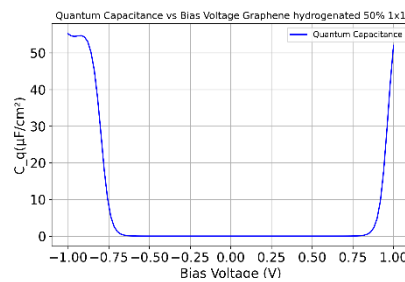
a) Graphene



b) Graphane

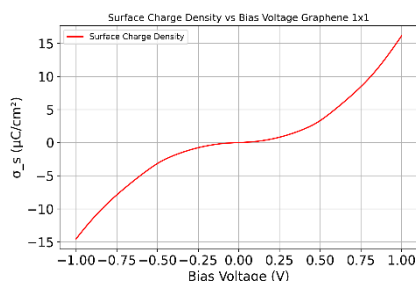


c) *Graphene* terhidrogenasi 50%

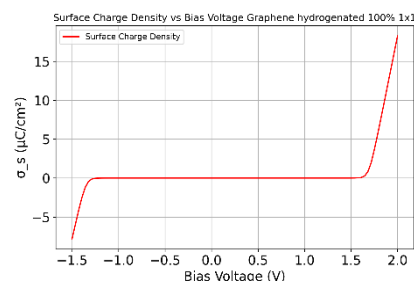


Gambar 3. Nilai C_q dari struktur a) *Graphene*, b) *Graphane* dan c) *Graphene* terhidrogenasi 50%.

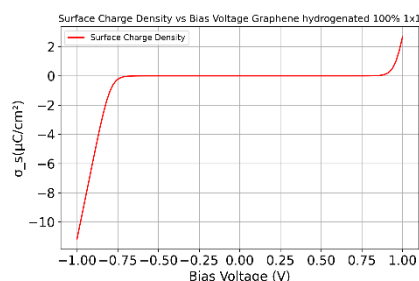
a) *Graphene*



b) *Graphane*



c) *Graphene* terhidrogenasi 50%



Gambar 4. σ_s dari struktur a) *Graphene*, b) *Graphane* dan c) *Graphene* terhidrogenasi 50%.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih diucapkan untuk Lab. Fisika FST, Universitas Nusa Cendana dan tim pengembang QE.

DAFTAR PUSTAKA

- Bakandritsos A, Jakubec P, Pykal M, Otyepka M. 2019. Covalently functionalized graphene as a supercapacitor electrode material. *FlatChem*. **13**: 25.
- Tran TX, Choi H, Che CH, Sul JH, Kim IG, Lee SM, Kim JH, In J Bin. 2018. Laser-Induced Reduction of Graphene Oxide by Intensity-Modulated Line Beam for Supercapacitor Applications. *ACS Appl. Mater. Interfaces*. **10**(46): 39777.
- Pereira GFL, Fileti EE, Siqueira LJA. 2023. Performance of supercapacitors containing graphene oxide and ionic liquids by molecular dynamics simulations. *Carbon N. Y.* **208**: 102.
- Qiu H, Wu X, Hong R, Wu G, Chen S, Hong R. 2020. Microfluidic-Oriented Synthesis of Graphene Oxide Nanosheets toward High Energy Density Supercapacitors. *Energy and Fuels*. **34**(9): 11519.
- Tsai WY, Lin R, Murali S, Li Zhang L, McDonough JK, Ruoff RS, Taberna PL, Gogotsi Y, Simon P. 2013. Outstanding performance of activated graphene based supercapacitors in ionic liquid electrolyte from -50 to 80 °C. *Nano Energy*. **2**(3): 403.

- 6 Venkateshalu S et al. 2022. Phosphorene, antimonene, silicene and siloxene based novel 2D electrode materials for supercapacitors-A brief review. *J. Energy Storage*. **48**: 104027.
- 7 Hassan JZ, Raza A, Din Babar ZU, Kumar U, Kaner NT, Cassinese A. 2023. 2D material-based sensing devices: an update. *J. Mater. Chem. A Mater.* **11**(12): 6016.
- 8 Sulleiro MV, Dominguez-Alfaro A, Alegret N, Silvestri A, Gómez IJ. 2022. 2D Materials towards sensing technology: From fundamentals to applications. *Sens. Biosensing Res.* **38**: 100540.
- 9 Nouchi R, Tanigaki K. 2010. Charge-density depinning at metal contacts of graphene field-effect transistors. *Appl. Phys. Lett.* **96**(25): 1.
- 10 Mortazavi B, Rahaman O, Makaremi M, Dianat A, Cuniberti G, Rabczuk T. 2017. First-principles investigation of mechanical properties of silicene, germanene and stanene. *Physica E Low. Dimens. Syst. Nanostruct.* **87**: 228.
- 11 Liu C-C, Feng W, Yao Y. 2011. Quantum Spin Hall Effect in Silicene. *Phys. Rev. Lett.* **107**(7): 076802.
- 12 Giovannetti G, Khomyakov PA, Brocks G, Karpan VM, Van Den Brink J, Kelly PJ. 2008. Doping graphene with metal contacts. *Phys. Rev. Lett.* **101**(2): 3.
- 13 Neto AHC, Guinea F, Peres NMR, Novoselov KS, Geim AK. 2009. The electronic properties of graphene. *Rev. Mod. Phys.* **81**(1): 109.
- 14 Johannes AZ, Gerard AM, Tarigan J. Analisis Komparatif Kapasitansi Kuantum Material Dua Dimensi : Studi Dft pada Grafena dan Grafena Terdoping Silikon (Supersel 1x1) . Prosiding Seminar Nasional SAINSTEK VII 2025 “Inovasi Teknologi untuk Mendukung Pembangunan Berkelanjutan Berbasis Green Economy dan Blue Economy di Wilayah 3T. Fakultas Sains dan Teknik, Universitas Nusa Cendana, Kota Kupang. pp 157–62.
- 15 Sanglaow T, Prasert K, Chanthad C, Liangruksa M, Sutthibutpong T. 2024. A DFT study on the fundamental mechanisms of quantum capacitance enhancement within the carbon-based electrodes through different classes of doped configurations from biomass-derived elements. *Results in Materials*. **21**: 100529.
- 16 Paz KAC, Chua SLB, Villagracia AR, David M. Density Functional Theory Calculations of Quantum Capacitance and Total Surface Charge of Graphene with Varying Supercells. DLSU Research Congress 2022. De La Salle University, Manila. pp 1–6.
- 17 Xu Q, Yang G, Fan X, Zheng W. 2019. Improving the Quantum Capacitance of Graphene-Based Supercapacitors by the Doping and Co-Doping: First-Principles Calculations. *ACS Omega*. **4**(8): 13209.
- 18 Perrozzi F, Prezioso S, Ottaviano L. 2015. Graphene oxide: from fundamentals to applications. *J. Phys. Condens. Matter*. **27**(1): 013002.
- 19 Lebègue S, Klintonberg M, Eriksson O, Katsnelson MI. 2009. Accurate electronic band gap of pure and functionalized graphane from GW calculations. *Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys.* **79**(24): 245117.
- 20 Ao Z, Li S. 2011. Hydrogenation of Graphene and Hydrogen Diffusion Behavior on Graphene/Graphane Interface. J R Gong, ed. *Graphene Simulation*. **4**: 53.
- 21 Brummans N. Hydrogen Covered Graphene. Radboud University, Nijmegen.
- 22 Şahin H, Ataca C, Ciraci S. 2010. Electronic and magnetic properties of graphane nanoribbons. *Phys. Rev. B*. **81**(20): 205417.
- 23 Petrushenko IK. 2018. DFT Calculations of Hydrogen Adsorption inside Single-Walled Carbon Nanotubes. *Advances in Materials Science and Engineering*. **1**: 9876015.
- 24 Xiang C, Li A, Yang S, Lan Z, Xie W, Tang Y, Xu H, Wang Z, Gu H. 2019. Enhanced hydrogen storage performance of graphene nanoflakes doped with Cr atoms: A DFT study. *RSC Adv*. **9**(44): 25690.

- 25 Johannes AZ. 2018. Simulasi Perubahan Densitas Muatan Adsorpsi Atom Hidrogen-Grafena Dengan Teori Fungsi Kerapatan. *Jurnal Fisika : Fisika Sains dan Aplikasinya*. **3**(3): 179.
- 26 Johannes AZ. 2018. Simulasi Dinamika Molekuler Kuantum dari Densitas Muatan Plasma untuk Sistem Sederhana. *Wahana Fisika*. **3**(1): 54.
- 27 Giannozzi P et al. 2009. QUANTUM ESPRESSO: A modular and open-source software project for quantum simulations of materials. *Journal of Physics Condensed Matter*. **21**(39): 395502.
- 28 Kristian Pingak R, Harbi A, Bouhmaidi S, Nitti F, Moutaabbid M, Setti L, Zicko Johannes A, U. J. Hauwali N. 2024. Vacancy-ordered CsRbGeCl₆ and CsRbGeBr₆ perovskites as new promising non-toxic materials for photovoltaic applications: A DFT investigation. *Chem. Phys*. **584**: 112348.
- 29 Pingak RK, Ngara ZS, Johannes AZ, Bukit M, Tanesib JL, Nitti F, Sianturi HL, Pasangka B. 2024. DFT Insights into the Structural, Mechanical, Electronic and Optical Properties of Novel InZnCl₃ and InCdCl₃ Chloro-Perovskites. *Indonesian Journal of Chemistry*. **24**(5): 1412.