

ARTIKEL RISET

Kestabilan Struktur SnS Monolayer Berkekisi Persegi Tertekek

Ibnu Jihad*, Amirul Adlil Hakim and Moh. Adhib Ulil Absor

Received: July 17, 2021 | Accepted: Apr 18, 2022 | Published: July 28, 2022 | DOI: 10.22146/jfi.v25i2.67712

Ringkasan

Ketidakstabilan struktur kekisi persegi tertekuk monolayer pada SnS telah diuji menggunakan tiga indikasi yaitu energi ikat antar lapisan, dispersi phonon serta dinamika molekular pada suhu tetap. Sebagai pembandingan telah diuji pula ketiga indikasi tersebut pada struktur SnS blackphosphorene yang telah terbukti stabil. Pengujian kestabilan ini telah dilakukan menggunakan software bebas lisensi yaitu OpenMX dan Alamode.

Kata Kunci : kestabilan struktur, energi ikat antar layer, dispersi phonon, dinamika molekular, SnS persegi tertekuk monolayer, alamode, openmx.

Abstract

The stability of monolayer buckled-square lattice of SnS has been studied based on three indicators; inter-layers bond energy, phonon dispersion, and molecular dynamics in constant temperature. As a comparison, those three indicators also have been studied for blackphosphorene SnS structure which the stability has been proved. This study of stability has been done using two kind freeware: OpenMX and Alamode.

Keywords: structure stability; interlayers bond energy; phonon dispersion; molecular dynamics; monolayer buckled-square lattice SnS; alamode; openmx

1 PENDAHULUAN

Penelitian terhadap material 2D mulai berkembang semenjak munculnya graphene sebagai material 2D yang memiliki banyak sifat-sifat unggul ([1],[2],[3]). Perkembangan tersebut berjalan baik dalam ranah eksperimental maupun teoritik komputasional. Para peneliti eksperimental berusaha memproduksi dan menguji langsung sifat-sifat material yang berbentuk lapisan tersebut. Sementara itu peneliti teoritik komputasional berusaha mengkaji sifat-sifat material tersebut menggunakan permodelan dan simulasi berdasarkan teori-teori yang telah mapan. Permodelan dan simulasi tersebut tentu sangat menguntungkan karena seorang peneliti dapat melakukan kajian tanpa harus memproduksi material sebenarnya, bahkan ia dapat melakukan prediksi terhadap material sebelum material tersebut difabrikasi ataupun diuji secara nyata.

Namun, perkembangan penelitian komputasi ini kadang terlalu lepas kendali. Misalnya pembuatan model material-material yang sesuai dengan kehendak peneliti dan memang diprediksi memiliki sifat-sifat unggulan yang sangat menguntungkan akan tetapi belum tentu stabil dan dapat difabrikasi. Maka berdasarkan persoalan ini kajian mengenai stabilitas struktur suatu material perlu dilakukan sebelum melangkah lebih jauh dalam menganalisa sifat-sifat material tersebut.

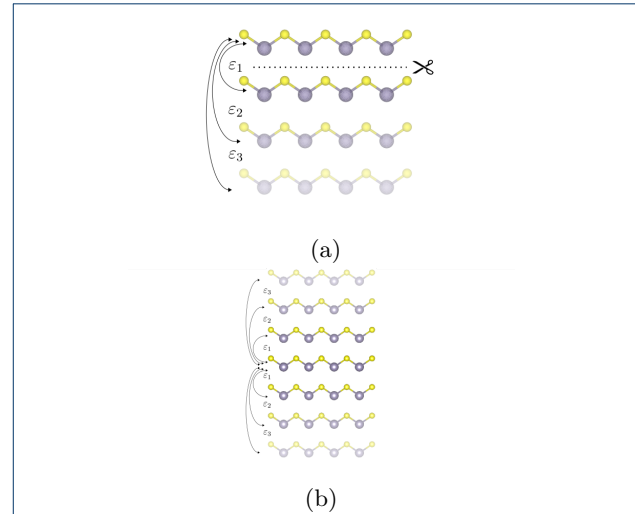
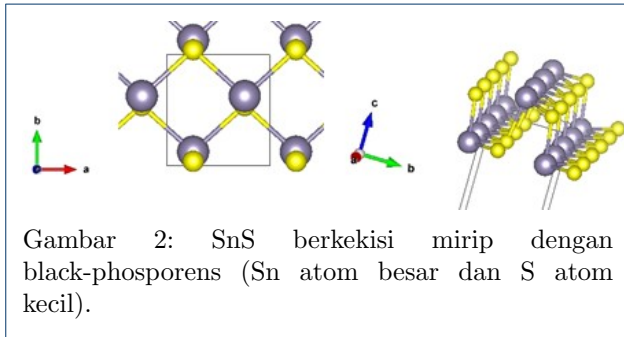
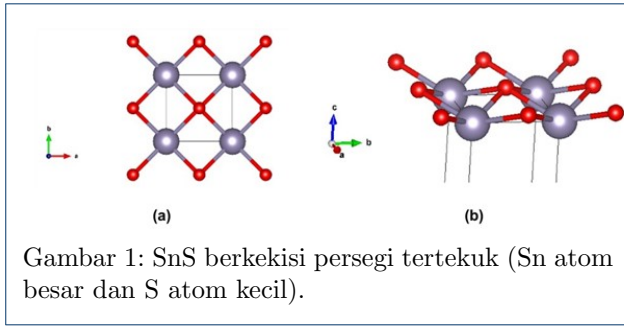
Penelitian ini menjelaskan metode yang dapat dipakai untuk menentukan stabilitas suatu struktur berdasarkan kriteria energi ikat antar layer, dispersi phonon dan dinamika molekular([4],[5]) menggunakan software komputasi yang open source dan gratis yaitu OpenMX([6]) dan Alamode([7]). Material dan struktur yang diuji dalam penelitian ini adalah SnS (Tin Sulfida) berstruktur persegi tertekuk 2D. Metode yang sama juga diujikan pada SnS₂ berstruktur seperti blackphosphorene yang sudah teruji stabil secara experimental dan dapat dibuat di laboratorium([5]). Hasilnya menunjukkan bahwa meskipun SnS berstruktur persegi tertekuk 2D memiliki sifat-sifat yang sangat menguntungkan([8],

*Correspondence: ibnu.jihad@ugm.ac.id

Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan, Universitas Gadjah Mada, Sekip Utara, Bulaksumur, Sinduadi, Mlati, Kota Yogyakarta, Daerah Istimewa Yogyakarta, Indonesia

Full list of author information is available at the end of the article

†Equal contributor



[9]), ternyata struktur tersebut tidaklah stabil sehingga diprediksi bahwa material tersebut tidak dapat diwujudkan di pabrik atau di laboratorium.

2 METODE KOMPUTASI

Simulasi pada kekisi persegi tertekuk 2D dimodelkan dengan software OpenMX dengan mengatur input file sesuai dengan Gambar 1. Geometri dari kekisi tersebut telah direlaksasi hingga gaya-gaya antar atomnya kurang dari 1 meV/Å. Perhitungan dilakukan menggunakan pendekatan density functional theory (DFT) yang didalamnya menggunakan pendekatan gradien umum perdew-burke-ernzerhof (GGA-PBE). Energi cut-off untuk rapat muatannya diset pada 300 rydberg. K-point sampling yang digunakan adalah 8x8x8.

Perhitungan energi ikat antar layer dikerjakan dengan membuat dua lapis kekisi yang diatur jarak antaranya dan ruang disekitarnya diberikan jarak 20 Å untuk menghindari interaksi dengan kekisi periodik setelahnya. Pada perhitungan ini cukup digunakan sel primitif saja. Pada proses permodelan dinamika molekular menggunakan OpenMX digunakan supercell 2x2 karena jika menggunakan sel primitif ketidakstabilan sulit dideteksi.

Pada simulasi perhitungan dispersi phonon digunakan software Alamode untuk menghitung dispersi phonon yang data pita tenaganya diperoleh dari perhitungan OpenMX. Perhitungan

menggunakan supercell 2x2 untuk menghindari ketidakakuratan perhitungan dispersi phonon.

3 HASIL DAN PEMBAHASAN

Energi Ikat Antar Lapisan dan Energi Pengelupasan Lapisan

Pembuatan material berbentuk dua dimensi atau lapisan dari bentuk padatnya dapat dilakukan menggunakan cara deposisi gas-kimiawi (*chemical-vapour deposition*)[10] atau menggunakan pengelupasan mekanik (*mechanical exfoliation*)[11]. Cara pertama dikatakan lebih sulit untuk diterapkan secara praktis[10], sehingga kita fokus pada cara kedua yakni proses pengelupasan lapisan secara mekanis. Proses pengelupasan berarti kita memisahkan sebuah lapisan dari bentuk padatnya dengan metode tertentu. Besar energi yang diperlukan untuk memisahkan satu lapisan dengan lapisan lainnya dapat dihitung menggunakan bantuan Gambar 3.

Energi pengelupasan sebuah lapisan sama dengan jumlah energi antara lapisan tersebut dengan lapisan lainnya atau dapat dituliskan sebagai:

$$E_{ex} = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \dots = \sum_{n=1}^{\infty} \varepsilon_n \quad (1)$$

dengan ε_n adalah energi interaksi antara lapisan tersebut dengan lapisan ke-n lainnya. Adapun energi ikat dapat dihitung dengan merenggangkan semua

lapisan-lapisan kristal sehingga tidak ada interaksi satu sama lain sesuai dengan skema sebelah kanan di Gambar 3, maka jumlah energi ikat antar lapisannya adalah

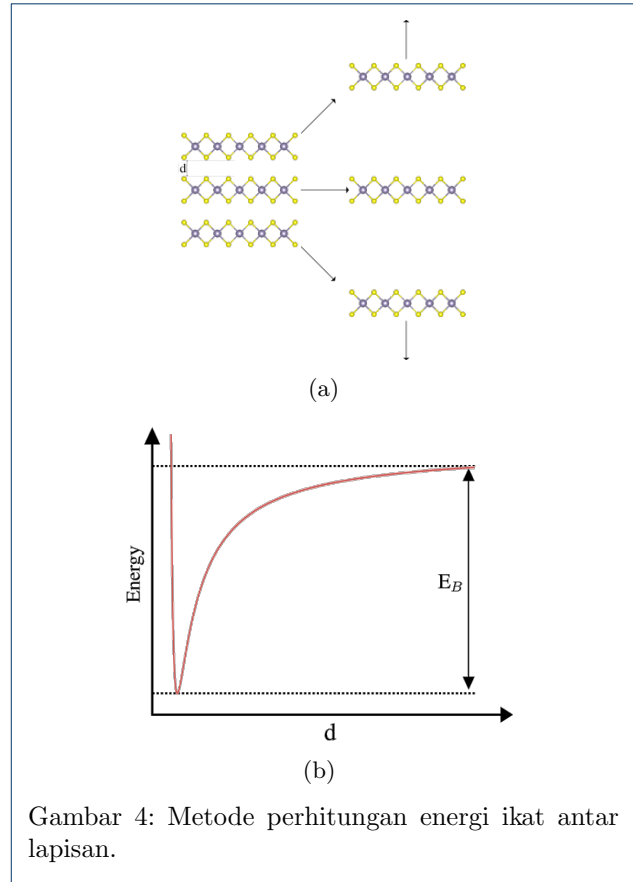
$$E_{ex} = \frac{1}{2}(2\varepsilon_1 + 2\varepsilon_2 + \dots) = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^{\infty} 2\varepsilon_n = \sum_{n=1}^{\infty} \varepsilon_n \quad (2)$$

Faktor 1/2 muncul karena pada proses perenggangan kristal kita memecah dua masing-masing ikatan, dan karena ikatan-ikatan ini terbagi dua antar lapisan maka kita perlu membaginya lagi dengan dua[12]. Jadi menghitung energi pengelupasan sama besarnya dengan menghitung energi ikat antar lapisan. Energi ikat ini lebih mudah untuk dihitung dalam simulasi komputer, sehingga metode inilah yang dipakai dalam penelitian ini.

Metode perhitungan energi ikat antar lapisan secara detil dapat dilihat dalam Gambar 4. Kristal divariasikan jarak antar lapisannya dan diplot energi terhadap variasi jaraknya. Hasilnya akan diperoleh grafik sebagaimana di Gambar 4.b. Energi ikat adalah selisih antara energi minimum pada jarak kesetimbangan/equilibrium dengan energi pada jarak yang cukup jauh saat lapisan-lapisan tersebut tidak lagi berinteraksi.

Pada perhitungan yang telah kami lakukan, metode ini disederhanakan dengan menggunakan dua lapisan saja dalam satu sel kristal. Lalu divariasikan jarak antar layer-nya. Karena dipakai dua lapisan kristal pada satu sel maka energinya dibagi dengan faktor dua. Grafik energi terhadap variasi jarak antar lapisan untuk material SnS berkecisi mirip dengan blackphosphorene disajikan pada Gambar 5. Didapatkan energi ikatnya adalah 17.6 meV/Å dan dapat dibandingkan dengan rujukan yaitu 11.6 meV/Å[5]. Perlu diketahui juga bahwa pemilihan metode pendekatan GGA-PBE dalam metode DFT yang berbeda dengan literatur dapat menyebabkan perbedaan dalam hasil semacam ini.

Sedangkan pada material SnS berkecisi persegi tertekuk, dengan grafik berskala sama (Gambar 6) nampak bahwa energi ikatnya jauh lebih besar yaitu sebesar 61.2 meV/Å meskipun kita sudah mengira akan ada selisih karena pemakaian pendekatan GGA-PBE yang berbeda dengan literatur, namun perbedaan sebesar ini tidaklah dapat diabaikan. Adapun menurut literatur dilaporkan bahwa rata-rata material yang stabil dan dapat dibuat menjadi lapisan tunggal 2D memiliki rentang energi berkisar antara 10 meV/arsmtrong2 (misalnya graphene) hingga 15 meV/Å (MoS2)[12]. Hal ini menjadi indikasi bahwa material SnS berkecisi persegi tertekuk ini belum memungkinkan untuk dibuat bentuk monolayernya



Gambar 4: Metode perhitungan energi ikat antar lapisan.

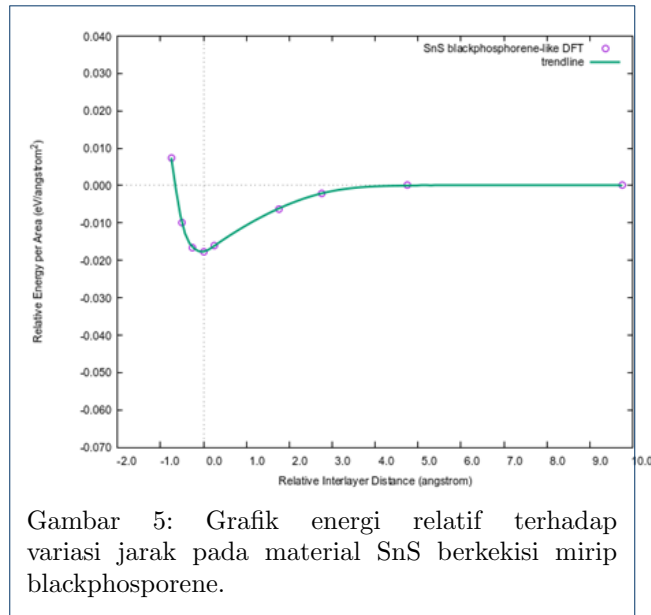
atau dengan kata lain hal ini menandakan ketidakstabilan strukturnya menurut tinjauan energi ikat ini.

Perhitungan Dispersi Phonon

Kriteria kestabilan kedua yang kita tinjau adalah dispersi phonon untuk SnS berstruktur keci persegi tertekuk yang ternyata menunjukkan adanya nilai dispersi phonon negatif. Kaitan dispersi phonon menunjukkan hubungan antara frekuensi getaran atom ω terhadap vektor gelombangnya k . Struktur yang stabil tidak memiliki nilai dispersi phonon negatif yang berarti frekuensi getaran atom-atom pada kekisi bernilai negatif yang tentu tidak boleh terjadi. Gambar perhitungan dispersi phonon menggunakan software Alamode dan openMX pada kekisi ini nampak pada Gambar 7. Sementara ini menurut rujukan struktur stabil SnS berkecisi black phosphorene tidak memiliki frekuensi negatif pada dispersi phononnya[5].

Dinamika Molekular pada Suhu Tetap

Kriteria kestabilan ketiga adalah pada proses simulasi dinamika molekular pada suhu tetap yang hasilnya ditunjukkan pada Gambar 8. Nampak bahwa kekisi persegi tertekuk menunjukkan kestabilan dengan



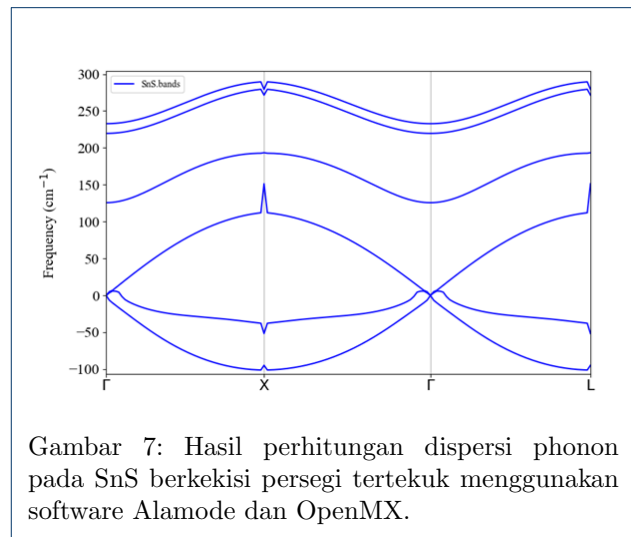
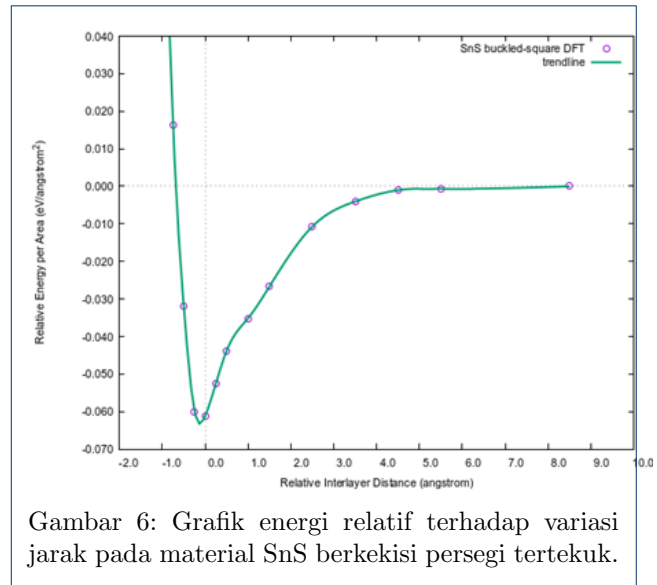
perubahan energi total yang cukup stabil, demikian itu kekisi stabil blackphosphorene menunjukkan trend stabil. Supercell yang dipakai untuk perhitungan ini adalah 2x2, sementara literatur menggunakan supercell 3x3.

4 KESIMPULAN

Struktur SnS berkekisi persegi diprediksi tidak stabil dan tidak dapat difabrikasi berdasarkan kriteria energi ikat antar lapisan dan kriteria dispersi phonon, dan nampak stabil menurut dinamika molekular pada suhu tetap. Perhitungan energi ikat antar lapisan menghasilkan nilai yang terlalu besar untuk dapat dieksfoliasi secara mekanik. Demikian pula perhitungan dispersi phononnya menghasilkan frekuensi getaran negatif yang tidak mungkin terjadi pada kekisi meskipun dinamika molekular menunjukkan kestabilan energi pada struktur ini, meskipun perlu dihitung lebih lanjut dinamika molekular pada supercell yang lebih besar daripada yang dihitung pada penelitian ini, misalnya menggunakan supercell 3x3. Metode yang digunakan untuk menguji kestabilan ini dapat membantu peneliti sebelum memutuskan membuat suatu material. Selain itu software yang digunakan gratis dan opensource sehingga membuka peluang besar para peneliti untuk mengembangkannya.

Ucapan Terima Kasih

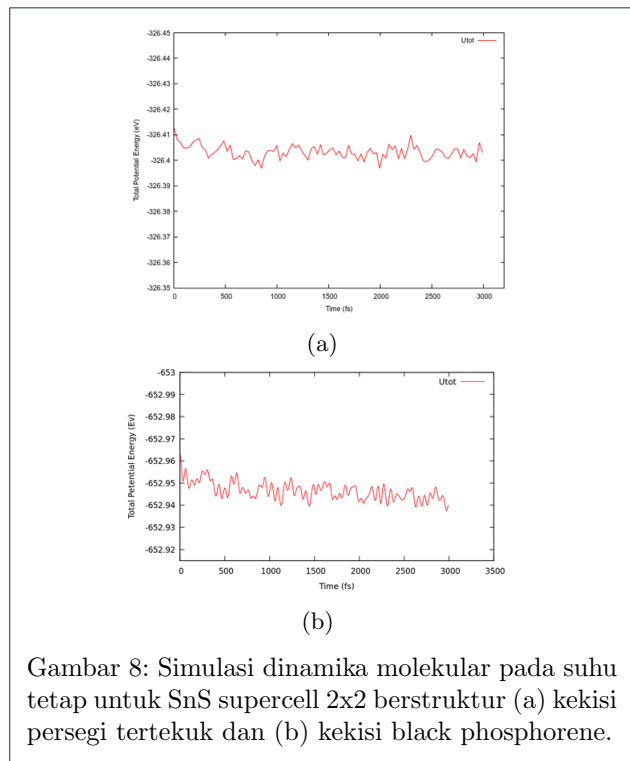
Ucapan terima kasih disampaikan kepada segenap dosen di Departemen Fisika FMIPA Universitas Gadjah Mada. Ucapan terimakasih juga disampaikan kepada Fakultas MIPA Universitas Gadjah Mada



yang telah mendanai kegiatan ini melalui Hibah Penelitian Dosen Dana Masyarakat Alokasi Fakultas MIPA Universitas Gadjah Mada tahun anggaran 2021 dengan nomor kontrak 132/J01.1.28/PL.06.02/2021.

PENULIS

1. Ibnu Jihad
Dari :
(1) Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Gadjah Mada
2. Amirul Adil Hakim
Dari :
(1) Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Gadjah Mada
3. Moh. Adhib Ulil Absor
Dari :
(1) Departemen Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Gadjah Mada



Jurnal Fisika Indonesia, its website and the articles published are licensed under a [Creative Commons Attribution-ShareAlike 4.0 International License](https://creativecommons.org/licenses/by-sa/4.0/). © Departemen of Physics Universitas Gadjah Mada.

Pustaka

1. Tombros N, Jozsa C, Popinciuc M, Jonkman HT, van Wees BJ. Electronic spin transport and spin precession in single graphene layers at room temperature. *Nature*. 2007 aug;448(7153):571-4. Available from: <http://www.nature.com/articles/nature06037>.
2. Yan W, Phillips LC, Barbone M, Hämäläinen SJ, Lombardo A, Ghidini M, et al. Long Spin Diffusion Length in Few-Layer Graphene Flakes. *Physical Review Letters*. 2016 sep;117(14):147201. Available from: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.147201>.
3. Dlubak B, Martin MB, Deranlot C, Servet B, Xavier S, Mattana R, et al. Highly efficient spin transport in epitaxial graphene on SiC. *Nature Physics*. 2012 jul;8(7):557-61. Available from: <http://www.nature.com/articles/nphys2331>.
4. Malyi OI, Sopiha KV, Persson C. Energy, Phonon, and Dynamic Stability Criteria of Two-Dimensional Materials. *ACS Applied Materials & Interfaces*. 2019 jul;11(28):24876-84. Available from: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acsami.9b01261>.
5. Xin C, Zheng J, Su Y, Li S, Zhang B, Feng Y, et al. Few-Layer Tin Sulfide: A New Black-Phosphorus-Analogue 2D Material with a Sizeable Band Gap, Odd-Even Quantum Confinement Effect, and High Carrier Mobility. *The Journal of Physical Chemistry C*. 2016 oct;120(39):22663-9. Available from: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acs.jpcc.6b06673>.
6. T Ozaki, H Kino, J Yu, M J Han, N Kobayashi MO, F Ishii, T Ohwaki, H Weng, Terakura K. OpenMX: Open source package for Material eXplorer; 2009. Available from: <http://www.openmx-square.org/>.
7. (NIMS) TT. Alamode;. Available from: <http://ttadano.github.io/alamode/>.
8. Jihad I, Hendrawan J, Putra AS, Triyana K, Absor MAU. Prediction of rashba effect on two-dimensional MX monochalcogenides (M = Ge, Sn and X = S, Se, Te) with buckled square lattice. *Indonesian Journal of Chemistry*. 2020 may;20(3):697-704. Available from: <https://jurnal.ugm.ac.id/ijc/article/view/49331>.
9. Hendrawan J, Absor MAU, Arifin M, Jihad I, Abraha K. Electronics Structure of Monochalcogenide Materials MX (M = Ge, Sn and Pb; X = S and Se) Buckled Square Lattice. *IOP Conference Series : Material Science and Engineering*. 2019;515(1):012105. Available from: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1757-899X/515/1/012105>.
10. Leong W. Versatile strategy for making 2D materials. *Nature*. 2020 jan;577(7791):477-8. Available from: <http://www.nature.com/articles/d41586-020-00094-5>.
11. Gao E, Lin SZ, Qin Z, MJ B, Feng XQ, Xu Z. Mechanical exfoliation of two-dimensional materials. *J Mech Phys Solids*. 2018 jun;115:248-62. Available from: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0022509618300280>.
12. Bjorkman T, Gulans A, Krasheninnikov A, Nieminen R. van der Waals Bonding in Layered Compounds from Advanced Density-Functional First-Principles Calculations. *Physical Review Letter*. 2012 jun;108(23):235502. Available from: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.235502>.