



Research article

Analisis Potensi Material Silisena Terdoping Nikel dalam Menyerap Gas Emisi CO, NO, NO₂, dan NH₃ Menggunakan Pendekatan Simulasi Kuantum

Siti Zulaehah^{1,*}, Syaukaty Yasinta¹, Muhammad Fachrudin¹, Alfiah Zahro Nuraini¹

^{1,*}Program Studi Teknik Mesin, Fakultas Teknik dan Sains, Universitas Muhammadiyah Purwokerto, Indonesia

*Corresponding author: e-mail: s.zulaehah@ump.ac.id

ARTICLE INFO

Article History:

Received: 06 June 2025

Revised: 12 July 2025

Accepted: 16 July 2025

Available online: 31 July 2025

Keywords: Silicene, Ni-doped, gas adsorption, DFT, emission control, 2D materials.

ABSTRACT

Air pollution caused by toxic gas emissions such as carbon monoxide (CO), nitrogen monoxide (NO), nitrogen dioxide (NO₂), and ammonia (NH₃) poses a serious threat to human health and the environment. Therefore, the development of efficient gas-absorbing materials is crucial to address this issue. This study evaluates the potential of nickel-doped silicene (NiSL) as a gas adsorbent material using quantum simulations based on Density Functional Theory (DFT). Structural optimization reveals that Ni doping creates active sites that enhance adsorption energy through hybridization between d-orbitals of Ni and molecular orbitals of the gas, accompanied by significant charge redistribution. Negative adsorption energies were observed for all systems, with the interaction strength following the order: NO > NO₂ > CO > NH₃, where the strongest interaction occurs at the top Ni site. Band structure and density of states (DOS) analyses indicate a transition in the electronic properties of the material from semi-metallic to semiconducting upon gas adsorption. With high energetic stability and selective affinity toward toxic gases, Ni-doped silicene demonstrates strong potential as an adsorbent material for industrial emission control systems.

ABSTRAK

Pencemaran udara akibat emisi gas beracun seperti karbon monoksida (CO), nitrogen monoksida (NO), nitrogen dioksida (NO₂), dan amonia (NH₃) merupakan ancaman serius bagi

Kata Kunci: Silisena, doping Ni, adsorpsi gas, DFT, polusi udara, material 2D.

kesehatan manusia dan lingkungan. Oleh karena itu, pengembangan material penyerap yang efisien menjadi sangat penting. Penelitian ini mengevaluasi potensi silisena terdoping nikel (NiSL) sebagai material penyerap gas emisi menggunakan pendekatan simulasi kuantum berbasis *Density Functional Theory* (DFT). Hasil optimisasi struktur menunjukkan bahwa doping Ni menciptakan situs aktif yang memperkuat interaksi dengan molekul gas melalui hibridisasi antara orbital *d*-Ni dan orbital molekuler gas, disertai dengan transfer muatan yang signifikan. Energi adsorpsi negatif diperoleh untuk seluruh sistem, dengan urutan kekuatan interaksi: $\text{NO} > \text{NO}_2 > \text{CO} > \text{NH}_3$, di mana interaksi paling kuat terjadi pada situs top Ni. Analisis struktur pita energi (*band structure*) dan densitas keadaan (*density of states*) mengindikasikan perubahan karakter elektronik material dari semimetalik menjadi semikonduktor setelah adsorpsi. Dengan stabilitas energetik yang tinggi dan afinitas selektif terhadap gas beracun, silisena terdoping Ni menunjukkan potensi besar sebagai material penyerap dalam sistem pengendalian emisi gas industri dan lingkungan.

1. PENDAHULUAN

Penanganan gas polutan di atmosfer merupakan isu kritis dalam menjaga kesehatan masyarakat dan melindungi lingkungan hidup. Emisi gas beracun seperti karbon monoksida (CO), nitrogen monoksida (NO), nitrogen dioksida (NO₂), dan amonia (NH₃) dari kendaraan bermotor, industri, dan aktivitas manusia lainnya telah menjadi salah satu penyebab utama pencemaran udara [1]. Pencemaran ini tidak hanya memengaruhi kualitas udara tetapi juga dapat menyebabkan masalah kesehatan serius, termasuk gangguan pernapasan, penyakit jantung, dan bahkan kematian dini [2]. Oleh karena itu, pengembangan teknologi efektif dan inovatif untuk mengontrol konsentrasi polutan lingkungan menjadi sangat mendesak. Salah satu solusi yang menjanjikan adalah pemanfaatan material dua dimensi (2D) yang memiliki karakteristik unik, seperti struktur atomik yang tipis, luas permukaan tinggi, dan sifat elektronik yang dapat direkayasa. Material 2D telah menunjukkan potensi besar dalam berbagai aplikasi teknologi modern, terutama dalam bidang penangkapan gas, sensor kimia, dan katalisis [3, 4].

Banyak peneliti secara sistematis mengevaluasi kemampuan sistem berbasis material 2D dalam mendeteksi dan menyerap berbagai jenis gas seperti pada material grafena [5, 6]. Dalam pengembangan tersebut, silisena juga diusulkan sebagai perangkat deteksi gas yang efisien, dengan sensitivitas dan selektivitas yang tinggi [7–9]. Silisena, sebuah alotrop silikon dengan struktur heksagonal yang menyerupai grafena dengan struktur *buckled*, telah menarik perhatian sebagai kandidat material sensor gas karena konduktivitasnya yang dapat dimodifikasi melalui doping logam transisi [10]. Doping logam transisi telah terbukti menjadi strategi efektif untuk meningkatkan reaktivitas permukaan dan interaksi antarmuka pada material 2D. Di antara berbagai logam transisi seperti Fe, Co, Cu, dan Pd, dan nikel (Ni) digunakan karena beberapa keunggulannya yang spesifik. Adapun atom nikel (Ni) dipilih dalam penelitian ini karena memberikan pengaruh signifikan terhadap sifat reaktivitas permukaan silisena. Dengan adanya orbital *d* yang aktif, Ni meningkatkan kemampuan adsorpsi dan transfer muatan antara permukaan dan molekul gas [11], sehingga membuka peluang untuk aplikasi dalam sistem kontrol dan penyerapan emisi gas beracun. Doping Ni pada silisena telah dilaporkan menghasilkan perubahan

distribusi muatan serta hibridisasi orbital d yang memperkuat interaksi dengan molekul gas. Beberapa studi sebelumnya telah membuktikan bahwa doping Ni pada material 2D seperti silisena dapat meningkatkan kemampuan adsorpsi dan transfer muatan antara permukaan dan molekul gas [12].

Sejumlah penelitian telah mengevaluasi performa material 2D dalam mendeteksi gas beracun menggunakan metode teori fungsi kerapatan (*Density Functional Theory*/DFT)[13, 14]. Misalnya, Heriberto dkk. melakukan analisis perilaku adsorpsi molekul gas toksik pada lapisan berbasis grafena monolayer [15], sementara Chang dkk. melaporkan bahwa lapisan stanena yang didoping paladium (Pd) menunjukkan chemisorpsi kuat terhadap berbagai molekul gas melalui pembentukan ikatan kovalen yang stabil di situs adsorpsi [16]. Penelitian-penelitian ini memberikan dasar bagi pengembangan material berbasis 2D untuk aplikasi sensor dan penangkap gas berbasis silisena. Meskipun beberapa studi telah mengevaluasi kemampuan silisena murni dalam mendeteksi atau menyerap gas beracun, material ini secara alami memiliki sifat inert karena karakter semimetalik lemah dan rendahnya afinitas kimia terhadap molekul gas. Oleh karena itu, doping logam transisi seperti nikel (Ni) diperkenalkan untuk meningkatkan reaktivitas permukaan melalui modifikasi elektronik. Namun, meskipun doping Ni-silisena telah dilaporkan memiliki potensi sebagai material sensor gas, pemahaman sistematis tentang variasi kekuatan interaksi antara Ni-silisena dan berbagai jenis gas emisi beracun (CO, NO, NO₂, NH₃) masih terbatas. Sebagian besar studi hanya fokus pada satu atau dua gas target, tanpa membandingkan secara kuantitatif efek doping Ni terhadap mekanisme adsorpsi dan redistribusi muatan dari berbagai jenis gas polutan. Oleh karena itu, penelitian ini memberikan analisis komprehensif mengenai perbandingan energi adsorpsi serta kontribusi elektronik dari atom Ni dalam meningkatkan afinitas silisena terhadap empat gas emisi utama.

Dalam penelitian ini, kami menganalisis kemampuan adsorpsi dari permukaan silisena dengan atom Ni sebagai doping substitusi termasuk perubahan struktur elektronik dan geometri kesetimbangan. Adapun tujuan dari penelitian ini adalah menganalisis potensi silisena yang didoping dengan atom Ni dalam menyerap gas CO, NO, NO₂, dan NH₃ menggunakan simulasi kuantum berbasis DFT. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa peningkatan kekuatan adsorpsi akibat modifikasi dengan atom Ni dapat dimanfaatkan untuk merancang penyerap gas yang lebih efisien dan selektif. Studi ini diharapkan dapat memberikan dasar teoretis untuk pengembangan teknologi penangkapan emisi beracun dan sistem pemantauan kualitas udara berbasis silikon di masa depan.

2. METODE PENELITIAN

Simulasi kuantum berbasis teori fungsi kerapatan (*Density Functional Theory*, DFT) [13, 14] dilakukan menggunakan paket Quantum ESPRESSO [17, 18]. Struktur permukaan silisena yang didoping dengan atom nikel (Ni) dimodelkan dalam supercell (4×4) untuk meminimalkan pengaruh periodik antar sel satuan. Sistem ini terdiri dari lapisan silisena *buckled* dengan satu atom Si digantikan oleh atom Ni, dan molekul gas (CO, NO, NO₂, NH₃) ditempatkan di atas permukaan pada lokasi adsorpsi yang berpotensi stabil. Pseudopotensial jenis ultrasoft (*Generalized Gradient Approximation* (GGA), fungsional *Perdew–Burke–Ernzerhof* (PBE)) [19] digunakan untuk menggambarkan interaksi antara inti atom dan elektron valensi. Energi *cutoff* gelombang bidang (*plane-wave cutoff energy*) diatur pada nilai 816,34 eV (setara dengan 60 Ry), sedangkan energi *cutoff* untuk densitas muatan (*charge density cutoff*) diatur hingga 4898,05 eV (setara dengan 360 Ry) untuk memastikan konvergensi hasil perhitungan. Untuk sampling zona

Brillouin, grid k -point tipe Monkhorst – Pack [20] sebesar $4 \times 4 \times 1$ dengan skema *smearing Methfessel–Paxton* ($\sigma = 0,01$ eV) digunakan agar distribusi elektronik dapat dianalisis secara akurat. Geometri sistem dioptimalkan menggunakan metode relaksasi BFGS (*Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno*) [21], yaitu algoritma optimisasi *Quasi-Newton* yang efektif dalam menentukan struktur paling stabil secara energetik. Jumlah maksimum iterasi SCF diatur hingga 200 iterasi untuk memastikan konvergensi muatan elektronik. Perhitungan *self-consistent field* (SCF) dijalankan hingga kriteria konvergensi tercapai, yaitu ketika perubahan total energi lebih kecil dari $1,36 \times 10^{-5}$ eV (setara dengan 10^{-6} Rydberg) antar iterasi dan gaya maksimum pada atom kurang dari 0,04 eV/Å. Semua perhitungan dilakukan tanpa mempertimbangkan efek spin, sehingga tidak ada analisis *spin-polarized* yang dilakukan.

Setelah sistem struktur dioptimalkan dan konvergensi energi total tercapai, dilakukan analisis adsorpsi untuk mengevaluasi kekuatan interaksi antara molekul gas (CO, NO, NO₂, dan NH₃) dengan permukaan silisena terdoping nikel (NiSL). Energi adsorpsi (E_{ads}) dihitung menggunakan persamaan: $E_{ads} = E_{total} - (E_{permukaan} + E_{adsorbat})$, dimana E_{total} adalah energi total sistem gabungan (permukaan + molekul gas) setelah relaksasi, $E_{permukaan}$ adalah energi permukaan murni (sebelum adsorpsi), dan $E_{adsorbat}$ merupakan energi molekul bebas (CO, NO, NO₂, NH₃). Nilai negatif dari E_{ads} menunjukkan bahwa proses adsorpsi bersifat eksotermik dan stabil secara energetik, sedangkan nilai positif mengindikasikan interaksi endotermik yang tidak *favorabel* (cenderung kurang stabil). Setelah relaksasi geometri selesai, analisis sifat elektronik seperti *density of states* (DOS), struktur pita energi (*band structure*), serta transfer muatan (*Bader charge analysis*) [22] dilakukan untuk mengevaluasi interaksi antara gas polutan dan permukaan material. Seluruh simulasi dilakukan dalam kondisi vakum untuk menghindari pengaruh lingkungan eksternal, dengan jarak vakum sekitar 20 Å ke arah sumbu-z guna mencegah interaksi periodik. Seluruh simulasi dilakukan pada kondisi temperatur 0 K dan tekanan ideal (vakum), yang merupakan asumsi umum dalam pendekatan DFT untuk menggambarkan keadaan dasar sistem. Asumsi ini memungkinkan analisis interaksi atomik dan elektronik tanpa pengaruh termal atau tekanan eksternal.

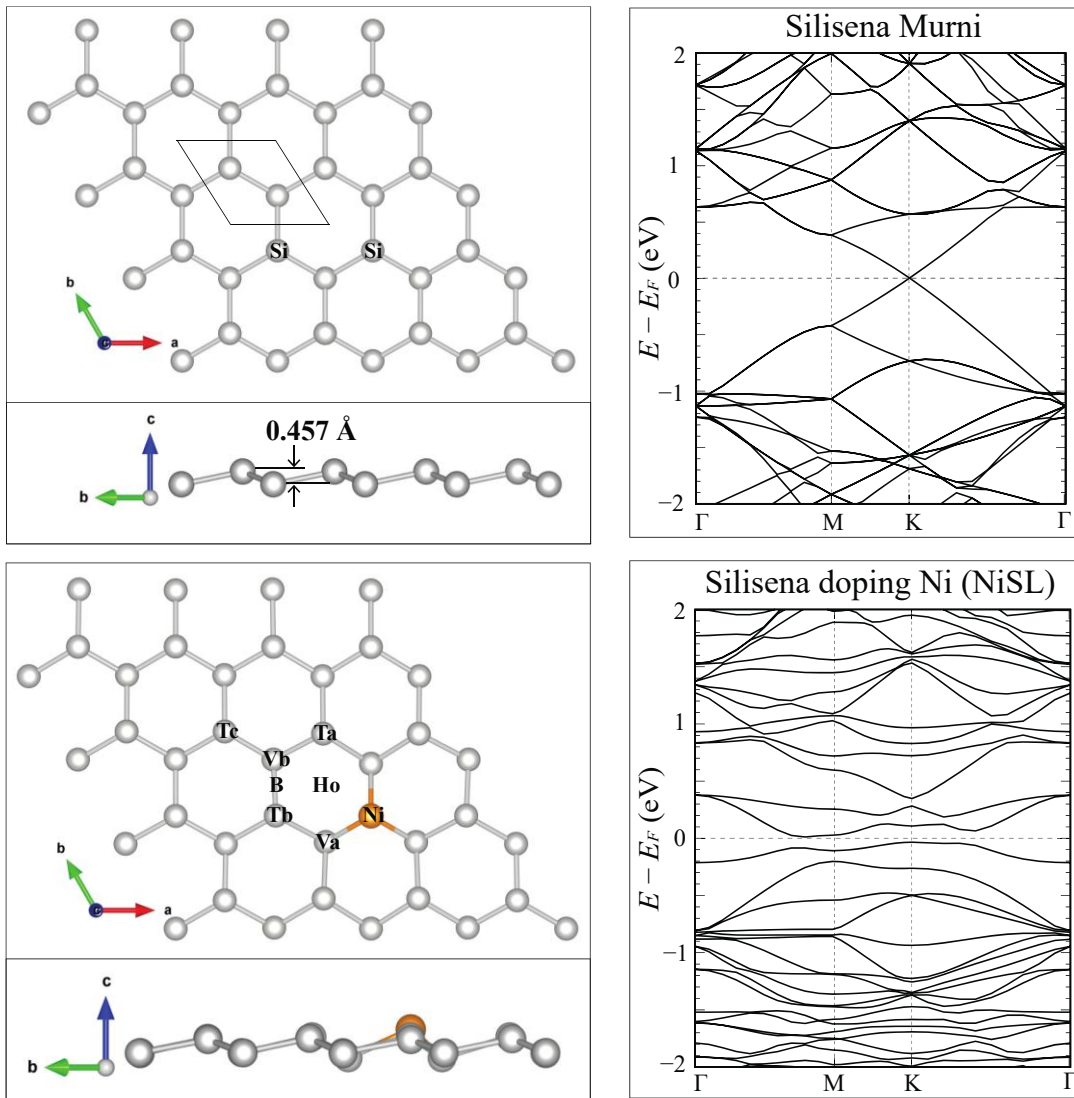
3. HASIL DAN DISKUSI

3.1. Struktur Geometri dan Elektronik Silisena Murni dan Silisena Terdoping-Ni

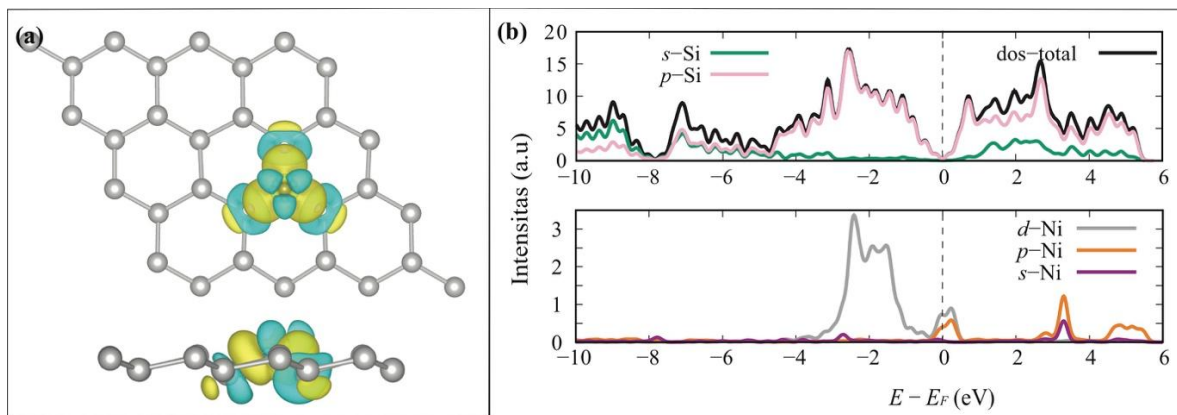
Berdasarkan optimasi struktur silisena murni (4×4) unit sel, memiliki struktur heksagonal dengan konfigurasi *buckled*, dimana atom-atom silikon terletak pada dua bidang datar yang berbeda secara vertikal. Panjang ikatan Si–Si rata-rata sebesar 2,27 Å dengan sudut ikatan sekitar 116,04°, sementara tinggi *buckling* mencapai 0,45 Å. Struktur ini menunjukkan karakter semimetalik dengan keadaan *Dirac* di dekat level Fermi dan memiliki densitas yang rendah, seperti yang terlihat pada **Gambar 1(a)** untuk silisena murni.

Setelah doping atom Ni, yakni dengan menggantikan satu atom silikon seperti tergambar pada **Gambar 1(b)**, terjadi perubahan geometri yang cukup signifikan. Atom Ni menonjol sedikit di atas permukaan lapisan silisena, mengakibatkan sudut Si–Ni–Si menyusut menjadi 104,5°. Panjang ikatan rata-rata antara atom Ni dan Si sekitarnya adalah 2,25 Å. Nilai - nilai ini sesuai dengan hasil penelitian sebelumnya pada logam transisi yang didopingkan pada silisena [9, 11]. Setelah dilakukan doping atom nikel (Ni) pada silisena, terjadi perubahan signifikan pada sifat elektronik material. Struktur pita energi (*band structure*) menunjukkan bahwa silisena yang semula bersifat semimetalik mengalami transisi menjadi semikonduktor sempit

(Gambar 1(b) bagian kanan), ditandai dengan terbentuknya celah energi (bandgap) di sekitar titik M dalam zona Brillouin. Perubahan ini mengindikasikan bahwa doping Ni berhasil menciptakan situs aktif yang memodifikasi distribusi elektron dan meningkatkan reaktivitas permukaan.



Gambar 1. Konfigurasi optimal dari unit sel (4×4) disajikan untuk (a) silisena murni dan (b) silisena yang didoping atom nikel (NiSL). Bagian kiri merupakan konfigurasi paling stabil, dan bagian kanan menggambarkan struktur pita energi relatif terhadap level Fermi untuk silisena murni dan doping Ni-silisena secara berurutan. Gambar jajar genjang kecil menunjukkan sel satuan dasar silisena. Untuk situs adsorpsi ditunjukkan oleh beberapa kode, dimana Ta , Tb , Tc menunjukkan situs top atau posisi atas atom Si pada lembah atas, Va dan Vb menunjukkan posisi atas atom Si di lembah bawah, dan Ho menunjukkan situs kosong (*hollow site*). Energi Fermi dari struktur pita energi di atur pada angka nol.



Gambar 2. (a) *Charge Density Difference* (CDD) dan (b) *Density of States* (DOS) untuk NiSL. Warna kuning menunjukkan penambahan elektron, dan warna cyan menunjukkan kehilangan elektron. Nilai isosurface digunakan sebesar $0,0016 \text{ e}/\text{\AA}^3$.

Adapun energi ikat (*binding energy*) atom Ni pada silisena vakansi dihitung menggunakan persamaan: $E_{bind} = E_{Ni/SV-SL} - (E_{SV-SL} + E_{Ni})$, dimana E_{bind} adalah energi ikat atom Ni, $E_{Ni/SV-SL}$ merupakan energi total dari silisena terdoping substitusi dengan atom Ni, dan E_{SV-SL} merupakan energi total vakansi dari silisena tanpa satu atom Si, serta energi dari 1 atom Ni (E_{Ni}). Berdasarkan hasil perhitungan, nilai energi ikat diperoleh sebesar $-6,72 \text{ eV}$ dimana lebih besar dari energi kohesif atom Ni bebas. Hal ini menunjukkan bahwa atom Ni sangat stabil secara energetik ketika terikat pada kisi silisena, sehingga risiko agregasi atau pembentukan kluster atom Ni dapat dihindari. Hasil ini selaras dengan studi sebelumnya tentang doping atom Ni pada material 2D [23].

Untuk memvisualisasikan distribusi muatan akibat doping Ni, dilakukan analisis *Charge Density Difference* (CDD) menggunakan persamaan berikut: $\Delta\rho = \rho_{Ni/SV-SL} - \rho_{SV-SL} - \rho_{Ni}$, di mana $\rho_{Ni/SV-SL}$, ρ_{SV-SL} , dan ρ_{Ni} berturut-turut merupakan densitas muatan sistem Ni-doped Silisena, silisena murni, dan atom Ni bebas. Hasil analisis CDD digambarkan dalam **Gambar 2(a)**, di mana daerah penurunan muatan dinyatakan dengan isosurface *cyan*, sedangkan daerah peningkatan muatan atau akumulasi electron, dinyatakan dengan isosurface kuning. Diagram CDD menunjukkan bahwa atom Ni mengalami penambahan elektron sebesar $3,58e^-$, yang tercermin dalam akumulasi muatan positif di sekitar atom Ni. Sebaliknya, terjadi kehilangan muatan negatif pada atom Si di sekitar lokasi doping Ni. Hal ini menunjukkan adanya proses transfer muatan dominan secara ionik, dimana Ni bertindak sebagai akseptor elektron, sementara Si memberikan elektron kepada Ni. Proses transfer muatan ini menciptakan medan listrik lokal di sekitar atom Ni, yang dapat meningkatkan interaksi antara Ni dengan molekul gas target. Medan listrik ini meningkatkan interaksi dengan molekul gas target melalui atraksi elektrostatis, modifikasi sifat elektronik, dan penurunan energi aktivasi, sehingga menjadikan Ni-silisena sebagai platform yang sangat efektif untuk deteksi gas atau katalisis.

Interaksi kimia antara atom Ni dan lapisan silisena lebih lanjut dieksplorasi melalui analisis *Density of States* (DOS), seperti ditampilkan pada **Gambar 2(b)**. Analisis *Density of States* (DOS) memperkuat temuan ini, di mana orbital *d*-Ni menunjukkan puncak intensitas tinggi di sekitar level Fermi, menandakan hibridisasi kuat dengan orbital *p*-Si. Interaksi ini membentuk ikatan kovalen yang stabil antara Ni dan Si, serta berkontribusi terhadap pembukaan celah energi.

3.2 Adsorpsi Molekul Gas pada Silisena Terdoping-Ni

Setelah struktur silisena terdoping nikel (NiSL) dioptimalkan, dilakukan analisis adsorpsi terhadap empat jenis gas polutan utama, yaitu karbon monoksida (CO), nitrogen monoksida (NO), nitrogen dioksida (NO₂), dan amonia (NH₃). Molekul-molekul gas tersebut ditempatkan di atas permukaan Ni-silisena pada berbagai lokasi potensial, seperti yang ditunjukkan pada **Gambar 1(b)**, meliputi posisi top Ni (di atas atom Ni), top Si (*Ta*, *Tb*, *Tc*), *hollow* (*Ho*), dan bridge (di antara dua atom Si). Setiap konfigurasi adsorpsi kemudian dioptimalkan secara geometri untuk memperoleh struktur paling stabil secara energetik dan ditunjukkan pada **Gambar 3**.

Hasil perhitungan menunjukkan bahwa semua konfigurasi menghasilkan energi adsorpsi negatif, yang mengindikasikan bahwa proses adsorpsi bersifat eksotermik dan stabil. Urutan kekuatan interaksi berdasarkan nilai energi adsorpsi adalah sebagai berikut: NO > NO₂ > CO > NH₃. Molekul NO menunjukkan interaksi paling kuat dengan permukaan Ni-silisena, terutama pada situs top Ni, yang ditandai dengan nilai energi adsorpsi paling negatif. **Tabel 1** menyajikan rincian lengkap nilai energi adsorpsi untuk masing-masing konfigurasi dan lokasi adsorpsi, yang menunjukkan preferensi spesifik molekul terhadap situs aktif tertentu pada permukaan material.

Dari **Tabel 1**, terlihat bahwa molekul NO memiliki energi adsorpsi paling negatif sebesar $-2,97$ eV ketika berinteraksi pada situs top Ni melalui atom nitrogen (N), menunjukkan interaksi kimia yang sangat kuat dan stabil secara energetik. Nilai ini jauh lebih besar dibandingkan energi adsorpsi NO pada silisena murni, yaitu $-1,22$ eV, yang mengindikasikan peningkatan signifikan akibat doping Ni. Interaksi ini didorong oleh hibridisasi antara orbital *d*-Ni dan orbital *p*-N, serta transfer muatan signifikan dari atom Ni ke molekul NO.

Tabel 1. Energi adsorpsi dari empat jenis molekul gas (CO, NO, NO₂, NH₃) pada berbagai situs adsorpsi di permukaan silisena terdoping nikel (NiSL). Nilai energi adsorpsi negatif menunjukkan bahwa proses adsorpsi bersifat eksotermik dan stabil secara energetik.

Adsorbat	Situs	Energi Adsorpsi (eV)	Energi Adsorpsi (eV) Ref. [25]
CO	top Ni	-1,95	CO@silisena murni: $-0,71$
	top T3	$-0,14$	
	top V2	$-0,33$	
NO	top Ni	-2,97	NO@silisena murni: $-1,22$
	Bridge TaVb	$-1,05$	
	Bridge TcVb	$-1,07$	
	Hollow Ho	$-1,13$	
NO ₂	top Ni	-2,27	NO ₂ @silisena murni: $-2,19$
	top-Ta	$-2,01$	
	top-Tc	$-1,97$	
	Bridge TaVb	$-2,04$	
NH ₃	top Ni	-1,40	NH ₃ @silisena murni: $-1,47$
	top Ta	$-0,82$	
	top Vb	$-0,47$	
	top Tc	$-0,79$	

Jarak ikatan Ni–O yang pendek, yaitu sekitar 1,67 Å, mendukung terbentuknya ikatan kovalen yang kuat. Molekul NO₂ juga menunjukkan interaksi kuat dengan permukaan NiSL, terutama pada situs top Ni, dengan energi adsorpsi sebesar –2,27 eV, sedikit lebih tinggi dibandingkan silisena murni (–2,19 eV). Jarak ikatan Ni–O sekitar 2,04 Å menunjukkan keterlibatan orbital *d*-Ni dalam pembentukan ikatan. Pada kasus CO, energi adsorpsi tertinggi tercatat sebesar –1,95 eV pada situs top Ni, jauh lebih besar dibandingkan silisena murni (–0,71 eV), dengan interaksi yang terjadi melalui atom karbon (C). Jarak ikatan Ni–C sekitar 1,76 Å menunjukkan bahwa meskipun interaksinya lebih lemah dibandingkan NO dan NO₂, tetap terjadi hibridisasi antara orbital *d*-Ni dan orbital π^* dari CO. Sementara itu, molekul NH₃ menunjukkan energi adsorpsi paling rendah di antara keempat gas, yaitu –1,40 eV pada situs top Ni, sedikit lebih kecil dibandingkan silisena murni (–1,47 eV). Jarak ikatan Ni–N sekitar 2,01 Å menunjukkan bahwa interaksi ini didominasi oleh ikatan hidrogen dan transfer muatan dari atom Ni ke atom N, namun tidak sekuat interaksi yang terjadi pada molekul NO dan NO₂.

Analisis geometri menunjukkan variasi jarak ikatan antara atom pusat gas dan atom Ni/Si tergantung pada lokasi adsorpsi. Misalnya: Pada NO, jarak Ni–O terpendek di lokasi top Ni (1,67 Å), NO₂, jarak Ni–O juga terpendek di lokasi top Ni (2,04 Å), CO, jarak Ni–C terpendek di lokasi top Ni (1,76 Å) serta pada NH₃, jarak Ni–N terpendek di lokasi top Ni (2,01 Å). Variasi jarak ini menunjukkan bahwa lokasi adsorpsi top Ni menjadi titik optimal untuk semua gas, karena memberikan interaksi yang paling kuat dan stabil secara energetik.

Tabel 2. Transfer Muatan Elektron (dalam satuan elektron, e^-) antara atom-atom penyusun sistem dan molekul gas yang teradsorpsi pada permukaan silisena terdoping nikel (NiSL). Tanda positif (+) menunjukkan bahwa atom menerima elektron, sedangkan tanda negatif (–) menunjukkan bahwa atom kehilangan elektron.

No.	Konfigurasi	Nama Atom	Transfer Muatan (e^-)
1	Permukaan NiSL	Ni	3,5819
2.	CO@NiSL	Ni	1,4861
		C	0,1453
		O	0,0794
3.	NO@NiSL	Ni	–0,3037
		N	0,3151
		O	0,0339
4.	NO ₂ @NiSL	Ni	–0,3351
		N	0,0793
		O1	0,2793
		O2	0,2882
5.	NH ₃ @NiSL	Ni	–0,1423
		N	0,0003
		H1	–0,0455
		H2	–0,0345
		H3	–0,0416

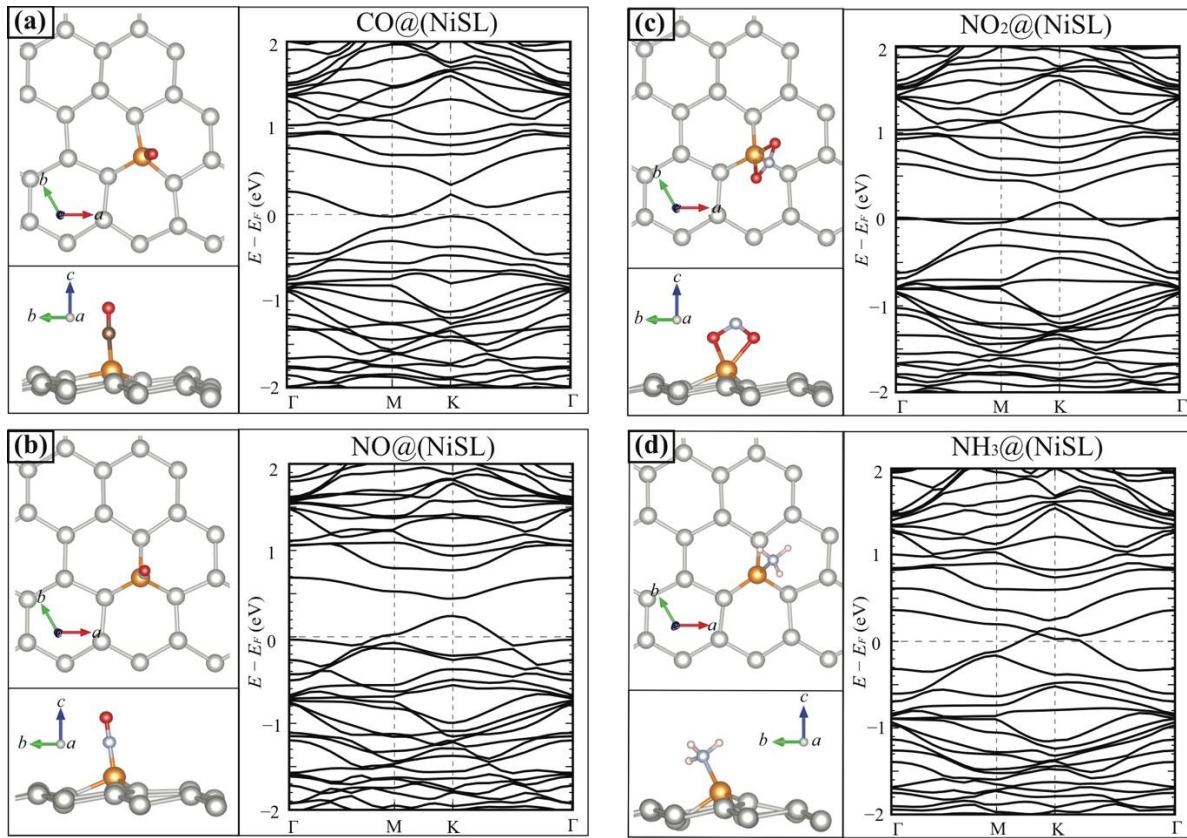
Tabel 2 menunjukkan data transfer muatan elektron (*Charge Density Difference*, CDD) untuk berbagai konfigurasi molekul yang teradsorpsi pada permukaan silisena terdoping nikel (NiSL). Dalam tabel ini, tanda positif (+) menunjukkan bahwa atom menerima elektron, sedangkan tanda negatif (−) menunjukkan bahwa atom kehilangan elektron. Pada kondisi dasar tanpa adsorbat, atom Ni menerima elektron sebesar $+3,5819 e^-$ dari atom Si di sekitarnya, menandakan bahwa Ni berperan sebagai akseptor elektron dan membentuk medan listrik lokal yang mendukung interaksi dengan molekul gas. Ketika molekul gas teradsorpsi, pola transfer muatan berubah tergantung pada jenis molekul.

Pada konfigurasi CO@NiSL, atom Ni tetap menerima elektron ($+1,4861 e^-$), meskipun jumlahnya lebih rendah dibandingkan kondisi murni. Atom karbon (C) dan oksigen (O) masing-masing menyumbang $+0,1453 e^-$ dan $+0,0794 e^-$, menunjukkan bahwa CO bertindak sebagai donor elektron lemah melalui orbital π^* dari atom C yang berinteraksi dengan orbital d -Ni. Sebaliknya, pada konfigurasi NO@NiSL, atom Ni kehilangan elektron sebesar $-0,3037 e^-$, sementara atom N dan O menerima $+0,3151 e^-$ dan $+0,0339 e^-$. Ini menunjukkan bahwa NO bertindak sebagai akseptor elektron kuat, dengan dominasi interaksi melalui atom N yang memiliki pasangan elektron bebas dalam orbital p . Interaksi serupa terjadi pada NO₂@NiSL, di mana atom Ni kehilangan $-0,3351 e^-$, dan dua atom oksigen (O₁ dan O₂) masing-masing menerima $+0,2793 e^-$ dan $+0,2882 e^-$. Hal ini menunjukkan bahwa NO₂ juga bertindak sebagai akseptor elektron kuat, terutama melalui atom O yang memiliki elektronegativitas tinggi. Untuk konfigurasi NH₃@NiSL, atom Ni kehilangan $-0,1423 e^-$, sedangkan atom nitrogen (N) hampir netral ($+0,0003 e^-$), dan tiga atom hidrogen (H₁, H₂, H₃) masing-masing menyumbang elektron sebesar $-0,0455 e^-$, $-0,0345 e^-$, dan $-0,0416 e^-$. Ini menunjukkan bahwa interaksi NH₃ lebih kompleks, melibatkan ikatan hidrogen dan efek polarisasi, dengan kontribusi utama berasal dari atom H.

Korelasi antara **Tabel 1** dan **Tabel 2** menunjukkan bahwa semakin besar transfer muatan antara molekul gas dan permukaan NiSL, semakin kuat dan stabil interaksi yang terbentuk, yang tercermin dari nilai energi adsorpsi yang lebih negatif. Molekul seperti NO dan NO₂ yang menunjukkan transfer muatan signifikan memiliki energi adsorpsi tinggi ($-2,97 eV$ dan $-2,27 eV$), sedangkan molekul seperti CO dan NH₃ dengan transfer muatan lebih kecil menunjukkan interaksi yang lebih lemah ($-1,95 eV$ dan $-1,40 eV$). Hal ini menegaskan bahwa mekanisme adsorpsi pada NiSL sangat dipengaruhi oleh dinamika elektron antar atom, dengan atom Ni berperan sebagai pusat aktif yang responsif terhadap keberadaan molekul gas beracun.

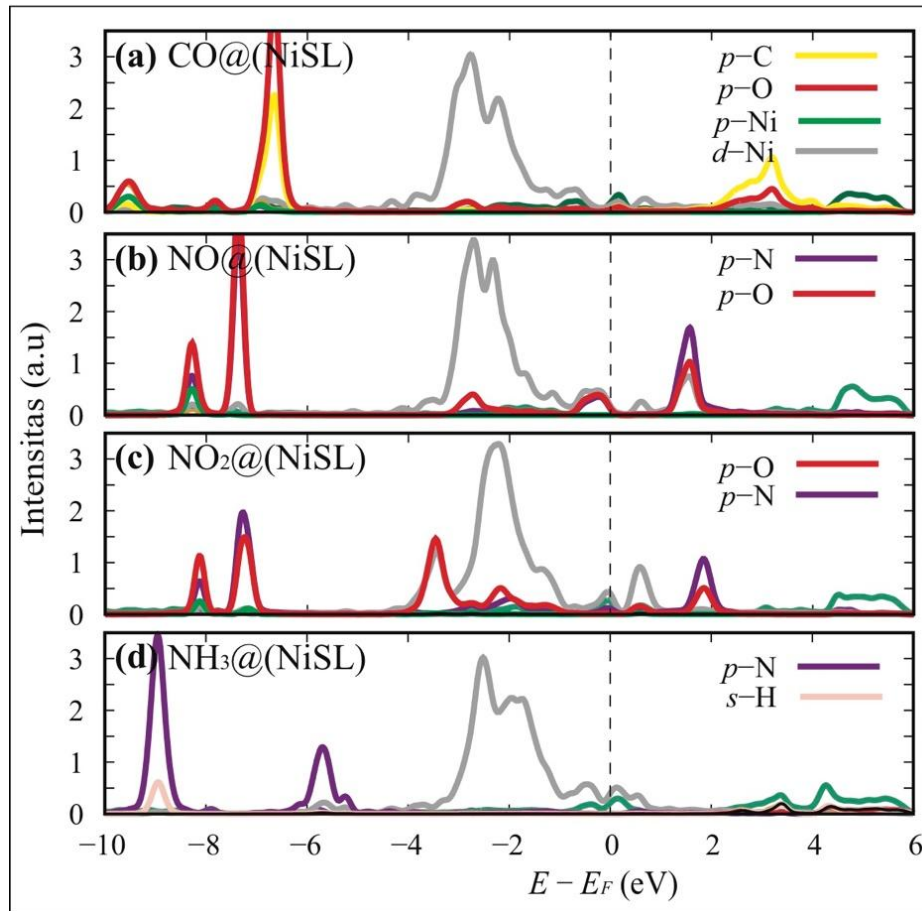
Gambar 3 menyajikan konfigurasi paling stabil dari masing-masing molekul gas (CO, NO, NO₂, dan NH₃) yang teradsorpsi pada permukaan NiSL, serta struktur pita energi (*band structure*) dari sistem adsorpsi tersebut. Terlihat bahwa semua molekul gas berinteraksi langsung dengan atom Ni, sebagaimana ditunjukkan oleh nilai energi adsorpsi dalam **Tabel 1** dan transfer muatan dalam **Tabel 2**. Untuk setiap konfigurasi yang paling stabil, perubahan sifat elektronik dianalisis melalui *band structure* dan diverifikasi lebih lanjut menggunakan *density of states* (DOS) yang ditampilkan pada **Gambar 4**. Berikut rincian penjelasannya untuk setiap konfigurasi pada **Gambar 3**.

- **CO@NiSL** menunjukkan *band structure* dengan celah energi yang tetap terbuka, meskipun lebih sempit dibandingkan NiSL murni. Level Fermi berada di tengah celah energi, menandakan stabilitas elektronik relatif. Dalam DOS (**Gambar 4a**), kontribusi dominan berasal dari orbital s -C dan p -C dari atom karbon, serta orbital d -Ni, yang menunjukkan hibridisasi antara orbital d -Ni dan p -C. Transfer muatan dari CO ke Ni relatif kecil ($+0,14 e^-$), sesuai dengan interaksi yang moderat



Gambar 3. Konfigurasi paling stabil dari berbagai adsorbat gas berinteraksi dengan permukaan NiSL. Panel (a), (b), (c), dan (d) menunjukkan konfigurasi adsorpsi molekul gas CO, NO, NO₂, dan NH₃ pada permukaan NiSL. *Band structure* (pita struktur) dari sistem adsorpsi diperlihatkan di bagian bawah masing-masing panel, memberikan wawasan tentang distribusi pita energi elektron.

- **NO@NiSL** menunjukkan perubahan band structure yang lebih signifikan, dengan celah energi yang menyempit dan level Fermi bergeser ke bawah. Hal ini menunjukkan interaksi elektronik yang kuat antara orbital *d*-Ni dan *p*-N. Dalam DOS (**Gambar 4b**), puncak dominan berasal dari orbital *d*-Ni dan *p*-N, mendukung adanya transfer muatan besar dari atom N ke Ni ($-0,3037 e^-$), yang menunjukkan ikatan ionik/kovalen yang kuat.
- **NO₂@NiSL** menghasilkan celah energi yang lebih sempit dibandingkan NO@NiSL, dengan level Fermi yang turun lebih jauh. DOS (**Gambar 4c**) menunjukkan kontribusi besar dari orbital *d*-Ni dan *p*-O, dengan dua puncak intensitas tinggi dari orbital *p*-O. Ini sesuai dengan transfer muatan besar dari dua atom O ke Ni ($0,2793 e^-$ dan $0,2882 e^-$), menandakan interaksi dominan melalui orbital *d*-Ni dan *p*-O.
- **NH₃@NiSL** menunjukkan band structure dengan celah energi yang tetap terbuka, tetapi lebih sempit dibandingkan NiSL murni. Level Fermi turun sedikit, menunjukkan bahwa Ni menerima elektron dari NH₃, meskipun jumlahnya lebih kecil dibandingkan NO dan NO₂. Dalam DOS (**Gambar 4d**), kontribusi dominan berasal dari orbital *s*-H1, *s*-H2, dan *s*-H3, menunjukkan bahwa hidrogen adalah donor elektron utama. Orbital *p*-N memberikan kontribusi kecil, sesuai dengan nilai transfer muatan yang hampir nol untuk atom N.



Gambar 4. *Density of States* (DOS) molekul gas (CO, NO, NO₂, NH₃) pada permukaan NiSL. Setiap panel menunjukkan kontribusi orbital atomik (*s*, *p*, *d*) dari atom penyusun sistem terhadap distribusi elektron sekitar energi Fermi, memberikan gambaran interaksi antara gas dan permukaan NiSL.

Gambar 3 dan **Gambar 4** secara komplementer menggambarkan perubahan sifat elektronik silisena terdoping nikel (NiSL) akibat adsorpsi molekul gas CO, NO, NO₂, dan NH₃. **Gambar 3** menunjukkan konfigurasi geometris paling stabil dari masing-masing molekul gas yang berinteraksi langsung dengan atom Ni, serta struktur pita energi (*band structure*) yang dihasilkan dari proses adsorpsi. Perubahan pada *band structure*, seperti penyempitan celah energi dan pergeseran level Fermi, mencerminkan tingkat kekuatan interaksi kimia antara molekul gas dan permukaan NiSL. Molekul NO dan NO₂, misalnya, menunjukkan penurunan level Fermi yang signifikan dan celah energi yang lebih sempit, menandakan interaksi elektronik yang kuat dan stabil. **Gambar 4** memperkuat analisis tersebut dengan menampilkan distribusi tingkat energi elektron melalui *Density of States* (DOS). Pada sistem CO@NiSL, kontribusi utama berasal dari orbital *s*-C dan *p*-C serta *d*-Ni, menunjukkan hibridisasi moderat yang sesuai dengan *band structure* yang relatif stabil. Sebaliknya, pada NO@NiSL dan NO₂@NiSL, puncak DOS yang dominan berasal dari orbital *d*-Ni dan *p*-N atau *p*-O, yang menunjukkan hibridisasi kuat dan transfer muatan besar dari molekul gas ke atom Ni. Hal ini sejalan dengan nilai energi adsorpsi yang tinggi dan perubahan signifikan pada *band structure*. Untuk NH₃@NiSL, kontribusi DOS berasal dari orbital *s*-H, dengan orbital *p*-N yang relatif kecil, menunjukkan interaksi yang lebih lemah dan celah energi yang tetap terbuka.

Secara keseluruhan, kombinasi antara *band structure* dan DOS memberikan gambaran menyeluruh tentang mekanisme interaksi elektronik antara NiSL dan molekul gas. Perubahan sifat elektronik ini berkorelasi langsung dengan data energi adsorpsi dan transfer muatan dalam **Tabel 1** dan **Tabel 2**, memperkuat kesimpulan bahwa NiSL memiliki sensitivitas tinggi terhadap molekul gas tertentu, terutama NO dan NO₂. Temuan ini mendukung potensi silisena terdoping-Ni sebagai material sensor dan penyerap gas beracun yang efektif dalam aplikasi industri dan lingkungan.

4. KESIMPULAN

Berdasarkan hasil analisis *Density Functional Theory* (DFT), silisena terdoping nikel (NiSL) menunjukkan potensi yang sangat menjanjikan sebagai material penyerap gas polutan, khususnya untuk molekul CO, NO, NO₂, dan NH₃. Interaksi antara molekul gas dan permukaan NiSL ditunjukkan oleh nilai energi adsorpsi yang negatif serta transfer muatan elektron yang signifikan, dengan urutan kekuatan adsorpsi sebagai berikut: NO > NO₂ > CO > NH₃. Adsorpsi paling kuat terjadi pada molekul NO dengan energi adsorpsi sebesar -2,97 eV dan transfer muatan sebesar -0,3037 e⁻ dari atom N ke atom Ni, diikuti oleh NO₂ dengan energi adsorpsi -2,27 eV dan transfer muatan -0,3351 e⁻ dari atom O ke Ni. Sementara itu, CO menunjukkan energi adsorpsi -1,95 eV dengan redistribusi muatan yang terbatas, dan NH₃ memiliki energi adsorpsi paling rendah (-1,40 eV) serta transfer muatan terkecil (-0,1423 e⁻), menandakan interaksi yang relatif lemah namun tetap stabil. Analisis struktur pita dan kerapatan keadaan (DOS) mengungkapkan adanya perubahan sifat elektronik setelah adsorpsi, seperti pembukaan celah energi dan pergeseran level Fermi, yang mengindikasikan keterikatan kuat antara molekul gas dan permukaan material. Interaksi dominan terjadi pada situs top Ni, di mana orbital *d*-Ni berperan penting dalam memperkuat ikatan dengan molekul gas melalui proses hibridisasi orbital. Secara keseluruhan, karakteristik ini menunjukkan bahwa silisena terdoping Ni merupakan kandidat kuat untuk aplikasi penyerapan gas berbasis nanomaterial dua dimensi. Selain itu, karakteristik elektrokimia yang kuat juga memungkinkan penggunaannya sebagai komponen filter udara dalam aplikasi pemurnian udara di dalam ruangan atau kendaraan.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini didukung oleh fasilitas komputasi dari Laboratorium Komputasi Design, Departemen Teknik Mesin, Universitas Muhammadiyah Purwokerto. Kami mengucapkan terima kasih atas pendanaan yang diberikan melalui Hibah Internal Universitas Muhammadiyah Purwokerto tahun 2025 melalui skema Penelitian Dosen Pemula, dengan nomor kontrak A.11-III/8418-S.Pj/LPPM/I/1970. Apresiasi juga kami sampaikan kepada semua pihak yang turut membantu dalam pelaksanaan penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Z. Zajkowska, A. Walsh, V. Zonca, N. Gullett, G. A. Pedersen, C. Kieling, J. R. Swartz, R. Karmacharya, H. L. Fisher, B. A. Kohrt, *et al.*, Journal of psychiatric research 138, 163 (2021).
- [2] C. Zhang, K. Yan, C. Fu, H. Peng, C. J. Hawker, and A. K. Whittaker, Chemical Reviews 122, 167 (2021).
- [3] S. M. Aghaei, M. Monshi, I. Torres, S. Zeidi, and I. Calizo, Applied Surface Science 427, 326 (2018).
- [4] Y. Yong, H. Cui, Q. Zhou, X. Su, Y. Kuang, and X. Li, Applied Surface Science 487, 488 (2019).
- [5] G. S. Natarajamani, V. P. Kannan, and S. Madanagurusamy, Materials Chemistry and Physics 316, 129036 (2024).
- [6] Y. Hu, L. Liu, S. Zhang, and X. Chen, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 689, 133716 (2024).
- [7] D. K. Nguyen, D.-Q. Hoang, and D. Hoat, RSC advances 12, 9828 (2022).
- [8] G. K. Walia, D. K. K. Randhawa, and K. S. Malhi, Journal of Molecular Modeling 27, 1 (2021).
- [9] S. Showket, K. A. Shah, and G. Dar, Physica Scripta 98, 085937 (2023).
- [10] J. Prasongkit, R. G. Amorim, S. Chakraborty, R. Ahuja, R. H. Scheicher, and V. Amornkitbamrung, The Journal of Physical Chemistry C 119, 16934 (2015).
- [11] Y. Lee, K.-H. Yun, S. B. Cho, and Y.-C. Chung, Chem Phys Chem 15, 4095 (2014).
- [12] S. Li, J.-C. Ren, Z. Ao, and W. Liu, Chemical Physics Letters 706, 202 (2018).
- [13] W. Kohn and L. J., Physical review 140, A1133 (1965).
- [14] P. Hohenberg and W. Kohn, Physical review 136, B864 (1964).
- [15] H. Cruz-Martínez, H. Rojas-Chávez, F. Montejo-Alvaro, Y. A. Peña-Castañeda, P. T. Matadamas-Ortiz, and D. I. Medina, Sensors 21, 1992 (2021).
- [16] Y.-Z. Chang, J.-N. Lin, S.-D. Li, and H. Liu, Surfaces and Interfaces 22, 100878 (2021).
- [17] P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, G. L. Chiarotti, M. Cococcioni, I. Dabo, *et al.*, Journal of physics: Condensed matter 21, 395502 (2009).
- [18] P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme, O. Bunau, M. B. Nardelli, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni,
- [19] D. Ceresoli, M. Cococcioni, *et al.*, Journal of physics: Condensed matter 29, 465901 (2017).
- [20] J. P. Perdew and Y. Wang, Physical review B 45, 13244 (1992).
- [21] H. J. Monkhorst and J. D. Pack, Physical review B 13, 5188 (1976).
- [22] S. R. Billeter, A. Curioni, and W. Andreoni, Computational materials science 27, 437 (2003).
- [23] G. Henkelman, A. Arnaldsson, and H. Jónsson, Computational Materials Science 36, 354 (2006).
- [24] K. I. M. Rojas, C. V. Al Rey, S. C. Narido, J. L. V. Moreno, and N. B. Arboleda, Materials Research Express 6, 055509 (2019).
- [25] J.W. Feng, Y. J. Liu, H. X. Wang, J. X. Zhao, Q. H. Cai, & X.Z. Wang, Computational Materials Science, 87, 218-226 (2014).