

Perhitungan Konstanta Dielektrik Lapisan Tipis *Graphene Monolayer Si-Face* Hasil Pengukuran Synchrotron dengan Metode *Kramers-Kronig* dan *Newton-Raphson*

Lisa' Yihaa Roodhiyah^{1*}, Andrivo Rusydi² dan Iman Santoso^{1**}

¹Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta 55281, Indonesia

²Department of Physics, National University of Singapore, Singapore 117542, Singapore

* Email: yihaa92@gmail.com

**Email: iman.santoso@ugm.ac.id

Abstrak – Telah dilakukan perhitungan konstanta dielektrik nanostruktur epitaxial *graphene monolayer* pada substrat *Si-face SiC* dari hasil pengukuran data reflektivitas dengan metode *Kramers-Kronig* dan *Newton-Raphson*. Data yang digunakan yaitu data reflektivitas pada rentang energi 0.5 – 30 eV dari pengukuran di *Hasylab Synchrotron*. Metode *Kramers-Kronig* menghasilkan beda fase δ dan dengan menggunakan persamaan *Fresnel* dan persamaan *Snellius* digunakan untuk mengekstraksi konstanta dielektrik. Permasalahan pencarian titik nol dalam persamaan *Fresnel* ketika mengekstraksi konstanta dielektrik dapat diselesaikan dengan metode numerik *Newton-Raphson*. Hasil yang diperoleh menunjukkan beberapa hal penting : 1) metode *Kramers-Kronig* dan numerik *Newton-Raphson* dapat digunakan untuk mengekstraksi konstanta dielektrik *graphene monolayer Si-face*, 2) adanya puncak absorpsi asimetri pada energi 4,6, 6,1 dan 8,4 eV ditinjau dari bagian imajiner konstanta dielektrik dan indeks bias, 3) puncak pada energi 6,1 dan 8,4 eV berasal dari resonansi excitonic akibat adanya interaksi elektron-elektron dan elektron-hole dan puncak pada energi 4,6 eV berasal transisi antar pita (interband) dari π band ke π^* band yang dimiliki material *graphene monolayer*.

Kata kunci : *Graphene*, Konstanta dielektrik, *Kramers-Kronig*, *Newton-Raphson*, *synchrotron*

Abstract – Calculation of the dielectric constant of epitaxial monolayer-*graphene* nanostructure grown on *Si-face SiC* substrate of reflectivity measurement using *Kramers-Kronig* and *Newton-Raphson* method has been done. The data was taken from Reflectivity data measured from *Hasylab Synchrotron* radiation with energy of 0.5-30 eV. The result of *Kramers-Kronig* method is phase shift δ . Using *Fresnel* and *Snellius* equation the phase shift can be used to extract the dielectric constant. The problem in determining the root of *Fresnel* equation is resolved using *Newton-Raphson* method. The results showed three important things : 1) the method of *Kramers-Kronig* and *Newton-Raphson* can be used to extract the dielectric constant of *Si-face monolayer graphene*, 2) asymmetric absorption peak at 4,6, 6,1 and 8,4 eV in terms of the imaginary part of the dielectric constant and refractive index, 3) The asymmetric absorption peak at 6,1 and 8,4 eV are originally from excitonic resonance arising from a background single-particle continuum of dipole forbidden transitions whereas the asymmetric absorption peak at 4,6 eV is originally from interband transition of *graphene* from π band to π^* band.

Keywords: *Graphene*, Dielectric constant, *Kramers-Kronig*, *Newton-Raphson*, *synchrotron*.

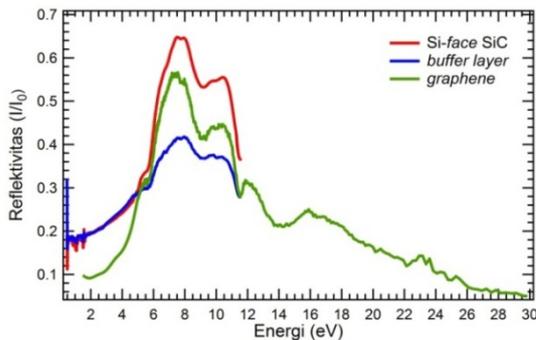
I. PENDAHULUAN

Metode pengkajian konstanta dielektrik (ϵ) menggunakan pendekatan makroskopis yang banyak digunakan seperti pemodelan fungsi dielektrik misalnya model *Drude-Lorentz*, *Sellmeier* dan *Cauchy* diketahui masih mempunyai beberapa kelemahan dalam penerapannya, antara lain yaitu untuk model *Drude-Lorentz*, diperlukan sistem banyak osilator dengan jumlah parameter yang banyak untuk mengekstraksi konstanta dielektrik dan indeks bias pada data dengan rentang energi yang lebar sehingga kurang efisien dalam pengerjaannya, untuk model *Sellmeier* dan *Cauchy*, hanya berlaku untuk daerah non-dispersif, sedangkan untuk metode numerik inversi *Gauss-Newton*, diperlukan pengelolaan matriks invers pada metode *Newton-*

Raphson multivariable yang tidak mudah dan memerlukan tingkat ketelitian yang tinggi untuk data dengan rentang energi yang lebar. Dalam penelitian ini, metode *Kramers-Kronig* diasumsikan akan lebih mudah. Hal ini karena metode *Kramers-Kronig* menggunakan prinsip relasi bagian imajiner dan bagian real dari suatu fungsi kompleks, dimana jika bagian real diketahui maka bagian imajiner dapat diekstrak maupun sebaliknya yang diturunkan secara terpisah oleh *Kramers* (1926) dan *Kronig* (1927) [1].

Dalam penelitian ini metode *Kramers-Kronig* digunakan untuk mengekstrak ϵ dari data sekunder berupa reflektivitas *Si-face SiC* dan reflektivitas *graphene Si-face* yang berupa *graphene monolayer* yang ditumbuhkan pada substrat *Si-face SiC* yang mana data

tersebut diperoleh dari grup riset Prof. Andriwo Rusydi National University of Singapore (NUS). Data diperoleh dari pengukuran spektroskopi *ellipsometry* untuk rentang energi 1,5-5,3 eV dan pengukuran reflektivitas di HASYLAB (*Hamburg synchrotron laboratory*) untuk rentang energi 3,6-30 eV seperti pada Gambar 1[2]. Pada penelitian sebelumnya Ref. [2] dengan data yang sama telah berhasil diperoleh konstanta dielektrik *graphene* dengan menggunakan pemodelan fungsi dielektrik Drude-Lorentz. Pemodelan fungsi dielektrik Drude-Lorentz pada penelitian sebelumnya menggunakan 50 osilator sehingga terdapat 150 parameter yang harus di-*fitting* satu per satu untuk mendapatkan hasil konstanta dielektrik yang tepat[2]. Dapat disimpulkan bahwa metode Drude-Lorentz masih kurang efisien dalam pengerjaannya untuk rentang data energi yang lebar. Oleh karena itu, penerapan metode Kramers-Kronig dalam penelitian ini akan sangat membantu dalam menghasilkan ekstraksi konstanta dielektrik dan indeks bias dengan lebih mudah dan lebih efisien karena pada pengelolaan terhadap data reflektansi dengan rentang energi yang lebar tidak memerlukan sistem banyak osilator dengan banyak parameter yang harus diatur satu per satu seperti pada penelitian sebelumnya Ref. [2].



Gambar 1. Data reflektivitas versus energi untuk material monolayer epitaxial *graphene* yang ditumbuhkan di atas substrat SiC Si-face. (Ref. [2])

II. METODE PENELITIAN

Relasi Kramers-Kronig merupakan relasi bagian imajiner dan bagian real dari suatu fungsi kompleks, dimana jika bagian real diketahui maka bagian imajiner dapat diekstrak maupun sebaliknya. Secara umum, relasi Kramers-Kronig diberikan sebagai berikut[1]

$$x_1(\omega) = \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \omega' \frac{x_2(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (1)$$

$$x_2(\omega) = -\frac{2}{\pi} P \omega \int_0^\infty \frac{x_1(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (2)$$

dimana $x_1(\omega)$ merupakan bagian real yang dihasilkan dari perhitungan jika $x_2(\omega')$ merupakan bagian imajiner yang diketahui, $x_2(\omega)$ merupakan bagian imajiner yang

dihasilkan dari perhitungan jika $x_1(\omega')$ merupakan bagian real yang diketahui, P merupakan nilai Cauchy (*Cauchy principal value*) serta ω dan ω' merupakan parameter yang digunakan. Jika diketahui melalui persamaan Fresnel bahwa reflektivitas merupakan bagian real dan beda fase merupakan bagian imajiner dari suatu material [1] maka beda fase δ yang merupakan bagian imajiner dapat dihitung dengan menggunakan relasi Kramers-Kronig pada persamaan (2) sehingga menghasilkan

$$\delta(\omega) = -2 \left(\frac{\omega}{\pi} \right) P \int_0^\infty \frac{\ln(R(\omega'))}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega', \quad (3)$$

yang kemudian digunakan untuk menghitung beda fase dari data reflektivitas pada rentang energi yang diketahui.

Dalam penelitian ini, diperlukan pemodelan optik untuk memudahkan dalam proses perumusan persamaan Fresnel yang digunakan. Pemodelan optik yang pertama yaitu berupa model optik *bulk* yang terdiri dari udara dan SiC. Selanjutnya, model optik kedua yaitu model optik lapisan tipis *buffer layer* yang terdiri dari udara, *buffer layer* dan SiC. Model sistem optik yang terakhir yaitu model optik lapisan tipis *graphene* yang terdiri dari udara, *graphene*, *buffer layer* dan SiC. Persamaan Fresnel yang digunakan yaitu persamaan Fresnel untuk empat layer yaitu sebagai berikut :^[1]

$$\tilde{r}_{0123} = \frac{\tilde{r}_{01} + \tilde{r}_{123}(-i2\beta_1)}{1 + \tilde{r}_{01}\tilde{r}_{123}(-i2\beta_1)}, \quad (4)$$

dengan diketahui bahwa

$$\tilde{r}_{123} = \frac{\tilde{r}_{12} + \tilde{r}_{23}(-i2\beta_2)}{1 + \tilde{r}_{12}\tilde{r}_{23}(-i2\beta_2)}, \quad (5)$$

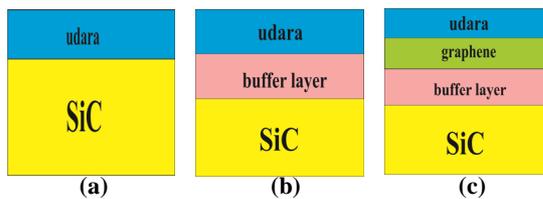
$$\tilde{r}_{01} = \frac{\tilde{N}_1^2 \cos\theta_0 - N_0(\tilde{N}_1^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0)^{1/2}}{\tilde{N}_1^2 \cos\theta_0 + N_0(\tilde{N}_1^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0)^{1/2}} \quad (6)$$

$$\tilde{r}_{12} = \frac{\tilde{N}_2^2(\tilde{N}_1^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0)^{1/2} - N_1^2(\tilde{N}_2^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0)^{1/2}}{\tilde{N}_2^2(\tilde{N}_1^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0)^{1/2} + N_1^2(\tilde{N}_2^2 - N_0^2 \sin^2\theta_0)^{1/2}} \quad (7)$$

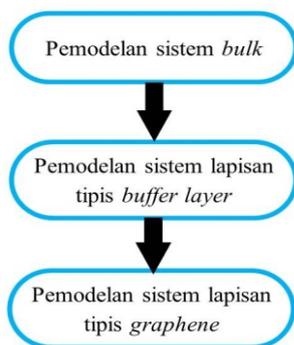
dimana diketahui bahwa \tilde{r}_{01} , \tilde{r}_{12} , \tilde{r}_{0123} , \tilde{r}_{123} merupakan amplitudo koefisien refleksi, d_1 dan d_2 berturut-turut yaitu ketebalan *graphene* dan ketebalan *buffer layer* serta diketahui bahwa $\beta_1 = \frac{2\pi d_1}{\lambda} (\tilde{N}_1^2 - \sin^2\theta_0)^{1/2}$ dan $\beta_2 = \frac{2\pi d_2}{\lambda} (\tilde{N}_2^2 - N_1^2 \sin^2\theta_1)^{1/2}$.

Berikut ini diberikan model optik yang digunakan pada Gambar 2 dan diagram alir penelitian secara garis besar pada Gambar 3. Alur penelitian ini diawali dengan permodelan sistem optik *bulk*, yang mana hasil ekstraksi

dari pemodelan ini yaitu indeks bias kompleks Si-face SiC. Selanjutnya, indeks bias kompleks Si-face SiC digunakan sebagai input dalam pemodelan optik sistem lapisan tipis *buffer layer*, yang mana akan menghasilkan hasil ekstraksi yang berupa indeks bias kompleks *buffer layer* Si-face SiC. Kemudian, hasil ekstraksi yang berupa indeks bias kompleks *buffer layer* Si-face SiC dan indeks bias kompleks Si-face SiC digunakan pada tahap pemodelan optik sistem lapisan tipis *graphene* untuk mengekstraksi indeks bias dan konstanta dielektrik kompleks *graphene*. Pada ekstraksi konstanta dielektrik kompleks digunakan metode Newton-Raphson untuk menyelesaikan persamaan Fresnel (4).



Gambar 2. Model sistem optik (a) *bulk*, (b) lapisan tipis *buffer layer*, (c) lapisan tipis *graphene*



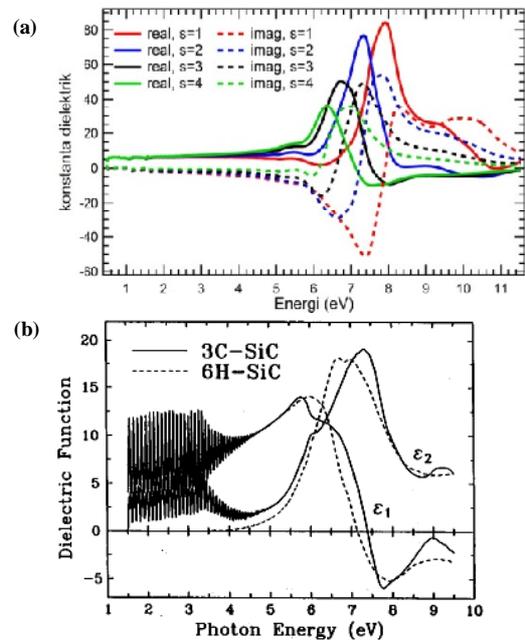
Gambar 3. Diagram alir perhitungan secara garis besar

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

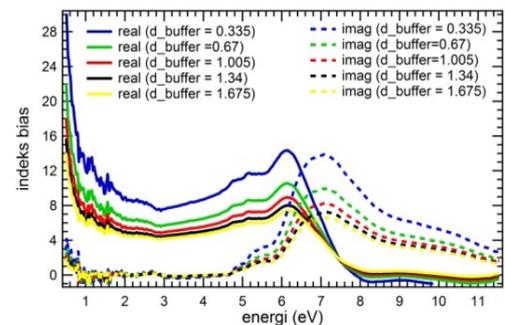
Ekstraksi konstanta dielektrik *graphene* pada substrat Si-face SiC diawali dengan menghasilkan ekstraksi nilai indeks bias Si-face SiC murni, yang diawali dengan melakukan interpolasi dan ekstrapolasi data reflektivitas Si-face SiC yang dilanjutkan dengan penerapan persamaan relasi Kramers-Kronig sehingga menghasilkan beda fase. Beda fase dan persamaan Fresnel digunakan untuk menghasilkan ekstraksi nilai indeks bias Si-face SiC dengan menggunakan bantuan metode Newton-Raphson. Hasil ekstraksi konstanta dielektrik kompleks Si-face SiC yaitu ditunjukkan pada Gambar 4a, yang mana kemudian dibandingkan dengan referensi [3] untuk menentukan parameter ekstrapolasi s yang digunakan, yaitu $s=4$.

Tahap selanjutnya yang dilakukan yaitu mengekstrak indeks bias dan konstanta dielektrik *buffer*

layer Si-face SiC dengan menyelesaikan persamaan Fresnel untuk sistem 3 layer pada model optik *buffer layer*. Dengan tahapan yang sama dengan pengestraksian Si-face SiC, dilakukan pengestraksian indeks bias dan konstanta dielektrik *buffer layer* Si-face SiC dengan ketebalan *buffer layer* yang divariasi. Berikut ini merupakan hasil ekstraksi indeks bias *buffer layer* Si-face SiC ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 4. Konstanta dielektrik Si-face SiC murni (a) dengan metode Kramers-Kronig dan Newton-Raphson (b) hasil eksperimen Ref. [3]

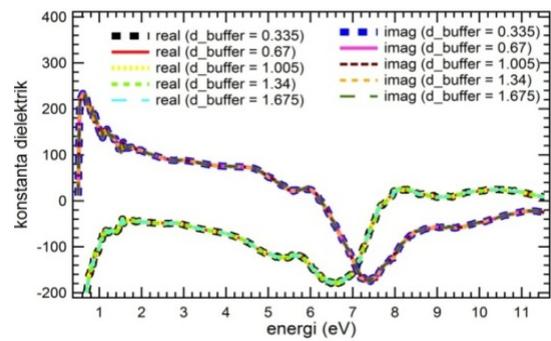


Gambar 5. Indeks bias *buffer layer* dengan metode Kramers-Kronig dan Newton-Raphson dengan variasi ketebalan *buffer layer*.

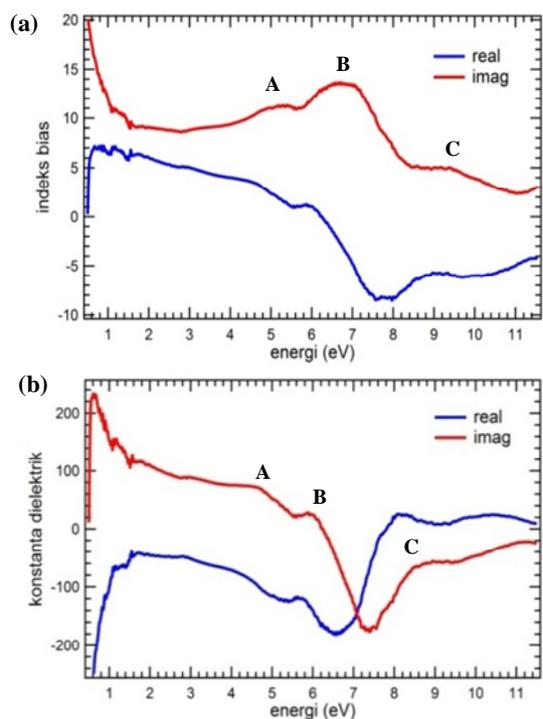
Tahap terakhir yaitu mengekstraksi indeks bias dan konstanta dielektrik *graphene* monolayer dengan menghitung beda fase data reflektivitas *graphene* monolayer menggunakan metode Kramers-Kronig dan menyelesaikan persamaan Fresnel 4 layer pada model optik lapisan tipis *graphene* menggunakan Newton-

Raphson. Hasil ekstraksi konstanta dielektrik *graphene* monolayer ditampilkan pada Gambar 6. Walaupun ketebalan *buffer layer* tidak mempengaruhi hasil ekstraksi indeks bias *graphene* monolayer, ketebalan *buffer layer* yang logis untuk dipilih, yaitu 0,67 nm. Ketebalan ini ditetapkan berdasar pada referensi [4] bahwa terbentuknya *buffer layer* terjadi bersamaan dengan terbentuknya *graphene*, sehingga ketebalan *buffer layer* yang sama dengan ketebalan *graphene* yaitu 0,67 nm diasumsikan ketebalan paling logis. Sedangkan hasil akhir ekstraksi *graphene* monolayer diberikan pada Gambar 7. Hasil tersebut kemudian dibandingkan dengan referensi [5] pada Gambar 8 untuk membantu menjelaskan puncak-puncak serapan pada *graphene* monolayer yaitu puncak A, B, dan C.

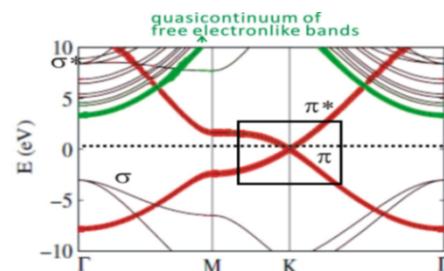
Puncak B yaitu konstanta *extinction graphene* monolayer pada energi 6,1 eV yang berhasil diekstrak dalam penelitian ini merupakan bukti adanya *resonant exciton* pada energi tinggi yang dimiliki material *graphene* monolayer. *Resonant exciton* terjadi karena transisi dipol dari serangkaian partikel tunggal (*single-particle continuum*) [2]. Hal ini dibuktikan dengan Gambar 8 yang menunjukkan bahwa terdapat transisi dari σ band ke *quasicontinuum of free electronlike bands* di sekitar 6,3 eV. Puncak A yaitu konstanta *extinction graphene* monolayer pada energi 4,6 eV yang berhasil diekstrak dalam penelitian ini merupakan bukti adanya transisi antar pita (*interband*) dari π band ke π^* band yang dimiliki material *graphene* monolayer. Selain puncak A dan B, dalam penelitian ini diketahui terdapat pula puncak C dari hasil ekstraksi konstanta *extinction* dan konstanta dielektrik *graphene* monolayer. Posisi puncak C ini yaitu pada energi 8,4 eV. Berdasarkan referensi [2], puncak C ini diketahui tidak ada. Namun, pada referensi lain yang berupa referensi teoritik [6] menyebutkan bahwa berdasarkan perhitungan *ab initio* GW-BSE (GW-Bethe-Salpeter equation) dari spektrum absorpsi optik dengan melibatkan efek elektron dengan elektron, elektron dengan *hole* dan *local field effect* (LE) memprediksi adanya efek *excitonic* pada *graphene* pada tingkat energi tinggi >8 eV, diatas tingkat energi transisi pita π ke pita π^* . Selain itu, berdasarkan Gambar 8, dapat ditunjukkan bahwa adanya serapan *graphene* monolayer di sekitar 8,4 eV dari σ band ke *quasicontinuum of free electronlike bands* di sekitar titik Γ dan M. Sehingga dimungkinkan puncak C ini dapat berasal dari efek *excitonic*. Namun, analisis ini masih belum cukup akurat untuk membuktikan asal puncak C pada energi 8,4 eV ini. Perlu adanya kajian lebih lanjut baik secara teoritik maupun eksperimen terhadap keakuratan asal puncak C.



Gambar 6. Konstanta dielektrik *graphene* monolayer dengan metode Kramers-Kronig dan Newton-Raphson dengan variasi ketebalan *buffer layer*



Gambar 7. Hasil ekstraksi (a) indeks bias (b) konstanta dielektrik *graphene* monolayer dengan metode Kramers-Kronig dan Newton-Raphson



Gambar 8. Struktur pita energi *graphene free-standing* hasil perhitungan berbasis LDA+GW (*many-body*) (Ref.[5]).

IV. KESIMPULAN

Berdasarkan analisis data yang telah dilakukan, didapatkan kesimpulan sebagai berikut:

- 1) Telah berhasil dilakukan perhitungan sifat optik dan listrik berupa indeks bias dan konstanta dielektrik *graphene monolayer* yang ditumbuhkan diatas substrat *Si-face SiC* dengan metode langsung *Kramers-Kronig* menggunakan bantuan metode numerik *Newton-Raphson*.
- 2) Adanya puncak serapan pada koefisien *extinction* (garis merah) di energi 4,6 eV, 6,1 eV dan 8,4 eV pada material *graphene monolayer* yang ditumbuhkan diatas substrat *Si-face SiC*.
- 3) Puncak pada energi 6,1 eV berasal dari *excitonic resonance* yang terjadi karena transisi dipol dari serangkaian partikel tunggal (*single-particle continuum*) dan puncak 4,6 eV berasal dari transisi antar pita (*interband*) dari π band ke π^* band yang dimiliki material *graphene monolayer*. Sedangkan puncak pada energi 8,4 eV dimungkinkan berasal dari *excitonic resonance*, perlu adanya kajian lebih lanjut baik secara teoritik maupun eksperimen terhadap keakuratan asal puncak ini.

- [6] Trevisanutto, P.E., Holzmann, M., Cote, M. dan Olevano, V., 2010, Ab initio High-energy Excitonic Effects in Graphite and Graphene, *Phys. Rev. B*, 12, 81, 121405.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis menyampaikan ucapan terima kasih banyak kepada bapak Iman Santosa yang telah memberikan bimbingan kepada penulis sehingga karya ini dapat dihasilkan dan kepada grup riset Prof. Andrivo Rusydi National University of Singapore (NUS) yang datanya digunakan dalam penelitian ini.

PUSTAKA

- [1] Fujiwara, Hiroyuki., 2007, *Spectroscopic Ellipsometry Principles and Applications*, John Wiley & Sons, Ltd., England.
- [2] Santoso, I., Gogoi, P.K., Su, H.B., Huang, H., Lu, Y., Qi, D., Chen, W., Majidi, M.A., Feng, Y.P., Wee, A.T.S., Loh, K.P., Venkatesan, T., Saichu, R.P., Goos, A., Kotlov, A., Rubhausen, M. dan Rusydi, A., 2011, Observation of Room-temperature High-energy Resonant Excitonic Effects in Graphene, *Phys. Rev. B*, 8, 84, 081403.
- [3] Logothetidis, S. dan Petalas, J., 1995, Dielectric Function and Reflectivity of 3C-Silicon Carbide and The Component Perpendicular to The *c* Axis of 6H-Silicon Carbide in The Energy Region 1,5-9,5 eV, *J.Appl.Phys.*, 3, 80, 1769.
- [4] Raza, H., 2012, *Graphene Nanoelectronic: Metrology, Synthesis, Properties and Application*, Springer, New York.
- [5] Wehling, T.O., Grigorenko, I., Lichtensetein, A.I. dan Balatsky, A.V., 2008, Phonon-Mediated Tunneling into Graphene, *Phys.Rev.Lett.*, 08, 101, 216803.