

NGHIÊN CỨU ẢNH HƯỞNG CỦA MẬT ĐỘ LÊN CẤU TRÚC VÀ ỨNG XỬ CƠ TÍNH CỦA VẬT LIỆU GỖM $(\text{AlN})_{0,9}(\text{Si}_3\text{N}_4)_{0,1}$

Nguyễn Thị Thảo¹ và Lê Văn Vinh²

¹*Khoa Vật lý, Trường đại học Sư Phạm Hà Nội*

²*Khoa Công nghệ thông tin, Trường Đại học Phenikaa, Hà Nội*

Tóm tắt. Phương pháp động lực học phân tử (DLHPT) được sử dụng để mô phỏng ba mẫu vật liệu gốm $(\text{AlN})_{0,9}(\text{Si}_3\text{N}_4)_{0,1}$ có mật độ thay đổi từ 2,95 đến 3,88 g.cm⁻³. Sự ảnh hưởng của mật độ lên vi cấu trúc, như sự thay đổi các đơn vị cấu trúc, độ dài liên kết, lân cận chung gần nhất và lỗ hổng, được tiến hành nghiên cứu chi tiết. Các phân tích cho thấy các mẫu vật liệu gốm các vùng vật liệu AlN và vùng vật liệu Si_3N_4 . Vật liệu AlN gồm phần lớn là các tinh thể AlN với một phần nhỏ vật liệu vô định hình (VDH) AlN. Vật liệu Si_3N_4 có cấu trúc vô định hình. Các phân tích về lỗ hổng chỉ ra có sự khuếch tán các nguyên tử Si vào vùng vô định hình AlN và ngược lại có sự khuếch tán các nguyên tử Al vào vùng vô định hình Si_3N_4 . Các lỗ hổng có bán kính lớn định xứ trong vùng có cấu trúc vô định hình. Số lượng các lỗ hổng có bán kính lớn giảm nhanh chóng khi mật độ tăng lên. Sự giảm các lỗ hổng có bán kính lớn làm cơ tính của mẫu vật liệu cải thiện một cách rõ rệt.

Từ khóa: phương pháp động lực học phân tử, AlSiN, tinh thể, vô định hình, cơ tính.

1. Mở đầu

Hệ vật liệu ba nguyên Al-Si-N đã và đang nhận được nhiều sự quan tâm cho các ứng dụng công nghiệp bởi các vật liệu này có độ bền cơ học tuyệt vời, có độ cứng cao, chống lại sự mài mòn và ăn mòn tốt [1-3]. Các màng mỏng Al-Si-N này đã được chế tạo bằng phương pháp phun xạ magnetron [1], phun xạ magnetron phản ứng [2] và phun xạ magnetron xung năng lượng cao [3]. Màng mỏng Al-Si-N đã cho thấy các tinh thể AlN có cấu trúc lục giác xếp chặt (hexagonal closed packed – HCP) được hình thành trong các ma trận vật liệu vô định hình (VDH) Al-Si-N có độ cứng lên đến 24,5 GPa [1]. Trong khi đó các màng mỏng Al-Si-N được chế tạo bằng phương pháp phun xạ magnetron xung năng lượng cao cho thấy các tinh thể AlN được hình thành có cấu trúc lập phương (cubic) và cả cấu trúc HCP trên nền VDH Si_3N_4 [3]. Cơ tính của các màng mỏng này phụ thuộc vào điện thế chệch lệch (bias voltage) bởi vì điện thế chệch lệch làm thay đổi năng lượng bắn phá của các chùm ion làm ảnh hưởng đến mật độ cấu trúc của các màng mỏng. Cũng bằng phương pháp lắng đọng magnetron, Musil và cộng sự [4] đã chỉ ra rằng màng mỏng Al-Si-N có cấu trúc đa tinh thể với tỉ phần của Si dưới 10%, ngược lại nếu tỉ phần của Si lớn hơn 25% màng mỏng Al-Si-N có cấu trúc VDH. Bằng phương pháp mô phỏng sử dụng nguyên lý ban đầu, Sheng và cộng sự [5] cho thấy rằng sự trộn lẫn ba nguyên Al-Si-N có thể tách thành cấu trúc HCP-AlN và pha giả thuyết HCP-SiN. Sự ảnh hưởng của tỉ phần Si lên cấu trúc và cơ tính của vật liệu Al-Si-N cũng đã được nghiên cứu bằng phương pháp động lực học

Ngày nhận bài: 19/2/2022. Ngày sửa bài: 16/3/2022. Ngày nhận đăng: 23/3/2022.
Tác giả liên hệ: Nguyễn Thị Thảo. Địa chỉ e-mail: ntthao.hnue@gmail.com

phân tử (ĐLHPT) [6]. Nghiên cứu này cho thấy pha tinh thể AlN được tạo thành trên nền ma trận VDH Si₃N₄. Tinh thể AlN hầu hết có cấu trúc lập phương tâm mặt (face centered cubic - FCC) và rất ít cấu trúc tinh thể HCP-AlN. Các cấu trúc tinh thể AlN bị nén lại bởi các vật liệu nền ma trận VDH Si₃N₄ khi tỉ phần của Si tăng lên. Điều này đã ảnh hưởng đến cấu trúc và cơ tính của hệ vật liệu Al-Si-N. Tuy nhiên ở đây có hai hiện tượng chưa được làm rõ ràng tách riêng ra là sự nén lại của cấu trúc vật liệu Al-Si-N và sự thay đổi tỉ phần của Si. Để làm rõ hiện tượng nén cấu trúc của vật liệu Al-Si-N dẫn tới thay đổi cấu trúc và cơ tính của chúng, chúng tôi tiến hành nghiên cứu hệ vật liệu Al-Si-N với các tỉ phần của các nguyên tử Al, Si và N không thay đổi mà chỉ thay đổi mật độ của chúng bằng phương pháp mô phỏng ĐLHPT. Ba mẫu vật liệu Al-Si-N với ba mật độ khác nhau được tạo ra bằng cách làm nguội nhanh từ nhiệt độ 5000 K xuống nhiệt độ 300 K. Cấu trúc, phân bố lỗ hổng (voids) và cơ tính của các mẫu Al-Si-N được tiến hành nghiên cứu chi tiết.

2. Nội dung nghiên cứu

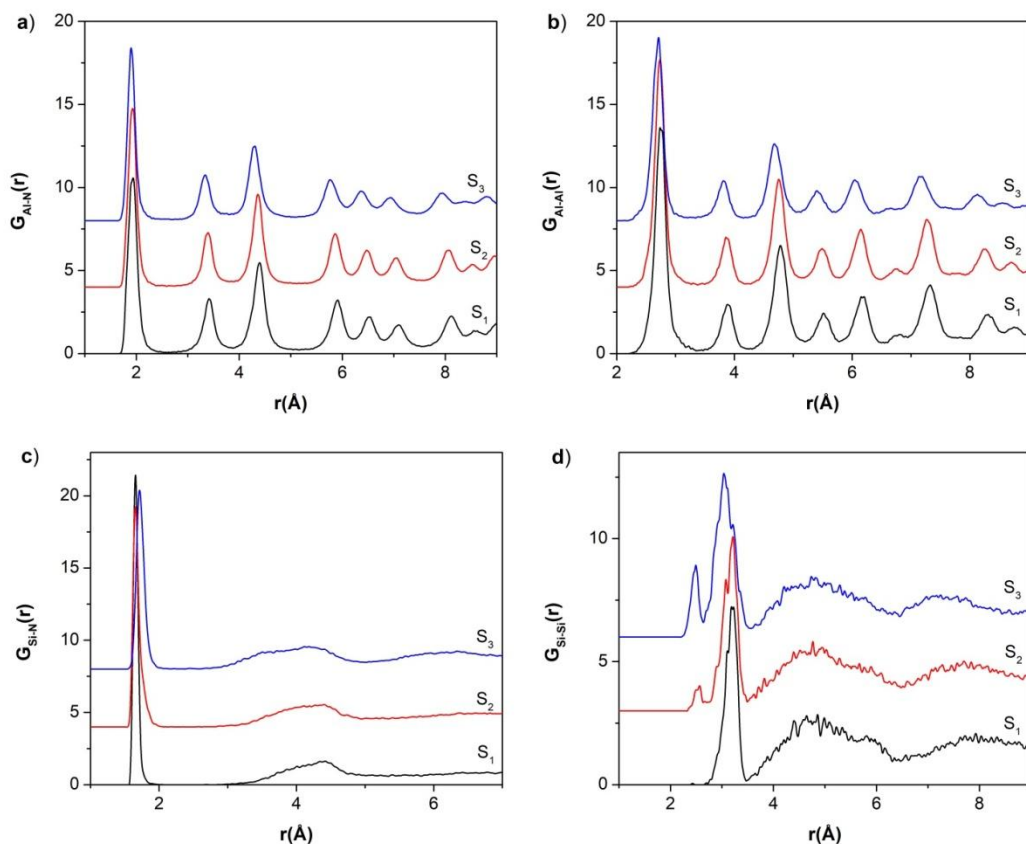
2.1. Phương pháp tính toán

Phương pháp ĐLHPT được sử dụng để mô phỏng ba mẫu vật liệu gồm (AlN)_{0,9}(Si₃N₄)_{0,1}. Thế tương tác cặp được dùng cho các tương tác giữa các nguyên tử của các mẫu vật liệu. Cụ thể, tương tác Morse áp dụng cho các cặp tương tác Si-N và Al-N và tương tác cặp Born-Mayer áp dụng cho các cặp tương tác Al-Al, Al-Si, Si-Si và N-N. Các thông số chi tiết cho các thế tương tác được trình bày chi tiết ở công trình [6]. Chúng tôi đã sử dụng chương trình GULP [7] để nhận các thông số thế tương tác cho Si₃N₄. Đối với AlN, thông số của thế tương tác nhận được từ đường cong tổng năng lượng của AlN trong công trình [8]. Ngoài ra, với tương tác Al-Si chúng tôi sử dụng quy tắc Lorentz - Berteloth [9] để nhận thông số thế cho cặp tương tác này. Độ chính xác cũng như sự hợp lí của thế tương tác cho mô phỏng vật liệu Al-Si-N đã được thảo luận và so sánh với các kết quả thực nghiệm cũng như các tính toán khác một cách chi tiết ở nghiên cứu trước [6]. Trong phương pháp ĐLHPT, chúng tôi dùng thuật toán Verlet với bước thời gian mô phỏng là 0,5 fs. Điều kiện biên tuần hoàn được sử dụng trong các mô phỏng này. Ba mẫu vật liệu chứa 10000 nguyên tử (5200 nguyên tử N + 3600 nguyên tử Al + 1200 nguyên tử Si). Các mẫu vật liệu này được mô phỏng với thể tích không thay đổi (điều kiện NVT). Mật độ các mẫu lần lượt là 2,95, 3,20 và 3,88 g.cm⁻³ và được kí hiệu là S₁, S₂ và S₃ tương ứng. Ban đầu tọa độ các nguyên tử trong mẫu được gieo ngẫu nhiên trong không gian mô phỏng với điều kiện là khoảng giữa hai nguyên tử bất kỳ luôn lớn hơn 1 Å. Chúng tôi nung nóng ba mẫu này tại nhiệt độ 5000 K trong khoảng thời gian 100 ps. Sau đó, các mẫu được làm lạnh xuống nhiệt độ 300 K với hệ số làm lạnh là 10¹³ K/s. Tại nhiệt độ 300 K, các mẫu được tiến hành phân tích cấu trúc thông qua hàm phân bố xuyên tâm (PBXT), số phối trí (SPT), phân tích lân cận chung (common neighbor analysis - CNA) [10] và phân tích lỗ hổng (voids) [6]. Chúng tôi tiến hành kéo biến dạng một trục trên ba mẫu này tại nhiệt độ 300 K với tốc độ biến dạng 0,04 ps⁻¹. Chi tiết về các mô tả biến dạng một trục được mô tả chi tiết ở nghiên cứu [11].

2.2. Kết quả và thảo luận

Hình 1 trình bày HPBXT của ba mẫu S₁ ÷ S₃ tại nhiệt độ 300 K. Quan sát trên Hình 1a và 1b chúng ta thấy rằng hàm G_{Al-N}(r) và G_{Al-Al}(r) của ba mẫu S₁ ÷ S₃ đều thể hiện cấu trúc tinh thể với các đỉnh phổ thể hiện cấu trúc pha lập phương rocksalt (cấu trúc FCC – NaCl) của AlN. Từ vị trí đỉnh phổ thứ nhất của HPBXT có thể suy ra độ dài liên kết của các nguyên tử. Vị trí đỉnh phổ thứ nhất của hàm G_{Al-N}(r) giảm từ 1,94 Å xuống 1,90 Å khi mật độ của mẫu tăng từ 2,95 đến 3,88 g.cm⁻³, trong khi đó vị trí đỉnh phổ của hàm G_{Al-Al}(r) cũng giảm từ 2,79 Å xuống 2,75 Å một cách tương ứng. Điều này cho thấy rằng mạng tinh thể của AlN giảm từ 3,95 Å xuống 3,89 Å khi tăng mật độ từ 2,95 đến 3,88 g.cm⁻³. Các hằng số mạng này, hằng số mạng a₀ = 3,95 ÷ 3,89 Å ở

các mẫu S₁÷ S₃, là khá phù hợp với các kết quả, a₀ = 3,982 ÷ 3,906 Å, từ tính toán mô phỏng sử dụng các bằng nguyên lí ban đầu [12]. Quan sát trên hình 1c và 1d chúng ta thấy rằng hàm G_{Si-N}(r) và G_{Si-Si}(r) thể hiện phổ của vật liệu vô định hình có cấu trúc trật tự gần. Khi mật độ của mẫu tăng lên từ 2,95 đến 3,88 g.cm⁻³, vị trí đỉnh phổ của hàm G_{Si-N}(r) cũng tăng lên từ 1,67 Å tới 1,73 Å, sự tăng lên này liên quan tới sự chuyển đổi cấu trúc đơn vị từ SiN₃ sang SiN₄ như số liệu đưa ra ở Bảng 1. Ở đây, sự tách đỉnh phổ đầu tiên của hàm G_{Si-Si}(r) có thể liên quan tới các nguyên tử N liên kết cạnh trong việc liên kết các đơn vị cấu trúc SiN_x như là của các cấu trúc mạng của vật liệu SiO₂ [13].

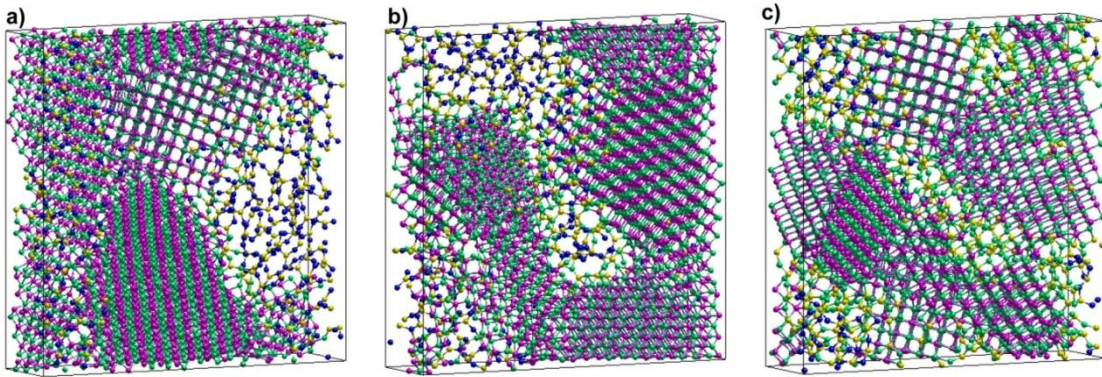


Hình 1. Các hàm PBXT của các mẫu tại nhiệt độ 300 K: a) cặp Al-N, b) cặp Al-Al, c) cặp Si-N và d) cặp Si-Si

Bảng 1. Tỷ phần (%) của các đơn vị cấu trúc AlN_x (x = 4, 5 và 6), SiN_y (y = 3 và 4) và liên kết N(Al,Si)_z (z = 2, 3, 4 và 5).

	AlN ₄	AlN ₅	AlN ₆	SiN ₃	SiN ₄	NAl ₄	NAl ₅	NAl ₆	NSi ₂	NSi ₃	N(Al,Si) ₂	N(Al,Si) ₃	N(Al,Si) ₄	N(Al,Si) ₅
S1	19,39	28,22	52,19	96,75	3,17	3,00	10,15	47,81	29,87	0,42	2,04	3,42	1,73	0,42
S2	12,67	27,94	59,33	74,75	25,25	1,98	9,52	47,69	22,92	5,13	0,92	4,17	4,21	1,77
S3	2,33	23,42	74,11	5,58	91,25	1,21	9,23	43,83	2,60	15,96	0,02	3,73	10,87	8,02

Hình 2 trình bày các cấu trúc cắt ngang của các mẫu $S_1 \div S_3$. Quan sát trên Hình 2 chúng ta có thể nhận thấy rằng các cấu trúc mạng AlN được sắp xếp có trật tự còn ngược lại các cấu trúc Si_3N_4 ở dạng mất trật tự của cấu trúc VĐH. Rõ ràng rằng, các tinh thể AlN được hình thành trên các nền ma trật vật liệu Si_3N_4 . Chúng ta biết rằng ở cấu trúc lập phương rocksalt hoàn hảo AlN thì cả hai nguyên tử Al và N đều có số phối trí (SPT) là 6. Tuy nhiên, như số liệu đưa ra ở Bảng 1, các tinh thể AlN trong các mẫu $S_1 \div S_3$ gồm cả các cấu trúc đơn vị AlN_4 , AlN_5 và AlN_6 cùng các liên kết NAI_4 , NAI_5 và NAI_6 . Ở cả ba mẫu, chúng tôi tính toán và nhận thấy rằng các đơn vị cấu trúc AlN_4 và AlN_5 ở bề mặt của tinh thể AlN, trong khi đó ở bên trong của tinh thể AlN chỉ chứa đơn vị cấu trúc AlN_6 . Điều này cũng tương tự cho các liên kết NAI_4 , NAI_5 và NAI_6 , khi các liên kết NAI_4 và NAI_5 ở bề mặt tinh thể AlN còn bên trong tinh thể AlN chỉ chứa liên kết NAI_6 .



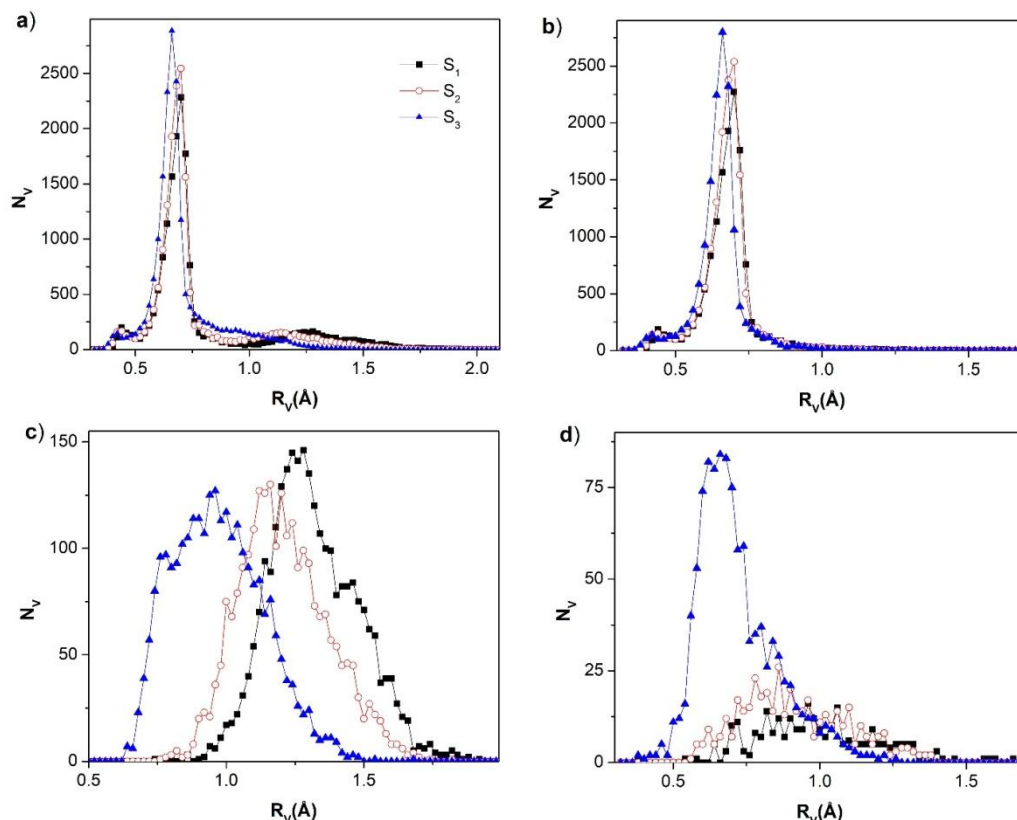
Hình 2. Mặt cắt của các mẫu vật liệu tại nhiệt độ 300 K: a) S_1 , b) S_2 và c) S_3

Sử dụng phân tích CNA chúng tôi đã xác định được chính xác tỉ phần các nguyên tử Al thuộc các cấu trúc FCC, HCP và VĐH như chỉ ra trên Bảng 2. Ở mẫu S_1 , tỉ phần các nguyên tử Al thuộc cấu trúc FCC, HCP và VĐH lần lượt là 93,39%, 0,08% và 6,53%. Điều này cho thấy rằng hầu hết mạng cấu trúc AlN là tinh thể có cấu trúc FCC, vài chục nguyên tử của cấu trúc AlN là tinh thể có cấu trúc HCP và một phần nhỏ có cấu trúc VĐH. Khi mật độ mẫu tăng từ 2,95 đến 3,88 g.cm⁻³, tỉ phần các nguyên tử Al thuộc cấu trúc FCC từ từ giảm nhẹ xuống còn 87,67 % ngược lại tỉ phần của các nguyên tử Al thuộc cấu trúc VĐH tăng đến 11,66 %. Trong khi đó tỉ phần các nguyên tử Al thuộc cấu trúc HCP dao động nhưng luôn nhỏ hơn 1%. Điều này cho thấy rằng mật độ đã ảnh hưởng đến sự kết tinh của tinh thể AlN. Khi mật độ tăng lên, các đơn vị cấu trúc bị nén lại dẫn tới các khoảng cách liên kết Al-N và Si-N bị ngắn lại như HPBXT đã chỉ ra ở trên. Sự nén lại này cũng đã gây ra sự chuyển đổi cấu trúc như trình bày trên Bảng 1. Cụ thể, các đơn vị cấu trúc AlN_4 và SiN_3 đã giảm nhanh chóng trong khi các đơn vị cấu trúc AlN_5 giảm nhẹ, ngược lại các đơn vị cấu trúc AlN_6 và SiN_4 đã tăng lên nhanh chóng. Cùng với sự thay đổi tỉ phần các đơn vị cấu trúc, các liên kết NAI_4 , NAI_5 , NAI_6 , NSi_2 , $N(Al,Si)_2$ đều giảm khi mật độ mẫu tăng lên. Trong khi đó các liên kết NSi_3 , $N(Al,Si)_4$ và $N(Al,Si)_5$ tăng lên cùng với sự tăng của mật độ mẫu. Sự thay đổi này có thể làm thay đổi độ xốp của các vùng vật liệu bởi sự thay đổi đơn vị cấu trúc và độ dài liên kết Al-N và Si-N.

Bảng 2. Tỉ phần (%) các nguyên tử Al có cấu trúc FCC, HCP và VĐH.

	FCC	HCP	VĐH
S1	93,39	0,08	6,53
S2	91,89	0,75	7,36
S3	87,67	0,67	11,66

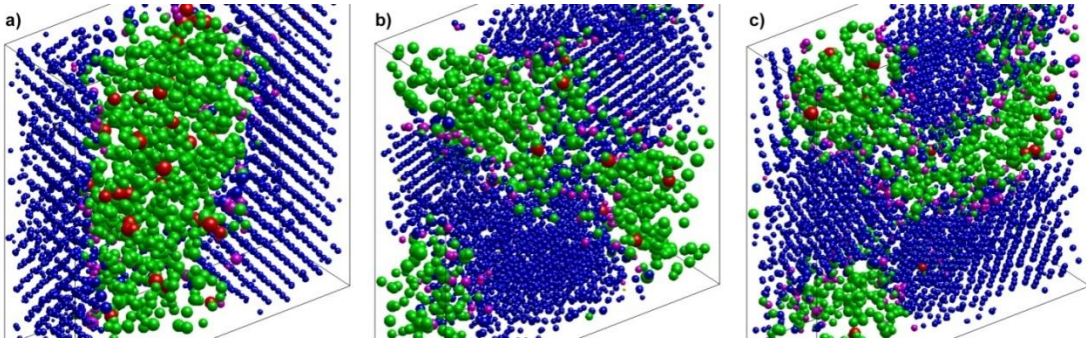
Để làm rõ tính xấp của các mẫu chúng tôi đã phân tích các lỗ hổng trong các mẫu. Vì các liên kết Al-N và Si-N là các liên kết cộng hóa trị, do vậy trong quá trình tính toán bán kính các lỗ hổng chúng tôi đã chọn bán kính của nguyên tử Al, Si và N là các bán kính liên kết cộng hóa trị. Giá trị bán kính của Al, Si và N lần lượt là $\sim 1,23$ Å, $\sim 1,1$ Å và $\sim 0,7$ Å. Các lỗ hổng là các quả cầu trống rỗng không giao cắt với bất cứ quả cầu nguyên tử nào và nó tiếp xúc với 4 nguyên tử lân cận. Lỗ hổng chỉ tiếp xúc với nguyên tử N và Al gọi là lỗ hổng N-Al. Tương tự lỗ hổng chỉ tiếp xúc với nguyên tử N và Si gọi là lỗ hổng N-Si và lỗ hổng tiếp xúc với các nguyên tử N, Al và Si gọi là lỗ hổng N-Al-Si.



Hình 3. Phân bố bán kính các lỗ hổng trong các mẫu vật liệu: a) tổng các lỗ hổng, b) lỗ hổng N-Al, c) lỗ hổng N-Si và d) lỗ hổng N-Al-Si (N_v – số lượng lỗ hổng)

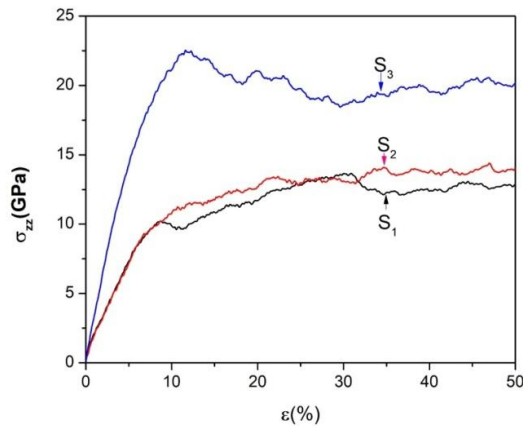
Hình 3 đưa ra các phân bố bán kính của các lỗ hổng trong các mẫu. Ở đây, phân bố bán kính tổng các lỗ hổng ở hình 3a và chúng ta thấy phân bố này có ba đỉnh phổ với đỉnh thứ nhất thấp nhỏ, đỉnh thứ hai cao hẹp và đỉnh thứ ba thấp trải rộng. Để làm rõ sự đóng góp vào các phổ ở hình 3a, chúng tôi đã phân tách các phân bố bán kính của từng loại lỗ hổng. Hình 3b đưa ra phân bố bán kính của các lỗ hổng N-Al của ba mẫu vật liệu. Quan sát chúng ta thấy rằng phân bố bán kính của các lỗ hổng N-Al này đóng góp chính vào đỉnh thứ nhất và thứ hai của phân bố bán kính tổng thể. Đỉnh chính của phân bố này tăng dần độ cao và vị trí đỉnh dịch chuyển sang trái từ vị trí 0,70 Å xuống vị trí 0,66 Å khi mật độ của mẫu tăng lên. Điều này cho thấy rằng sự chuyển đổi đơn vị cấu trúc AlN_4 sang AlN_6 đã làm tăng số lượng các quả cầu lỗ hổng N-Al và sự giảm độ dài liên kết Al-N làm các bán kính lỗ hổng N-Al cũng giảm đi. Hình 3c đưa ra phân bố bán kính của các lỗ hổng N-Si. Quan sát trên hình chúng ta nhận thấy rằng phân bố bán kính của loại lỗ hổng này đóng góp vào đỉnh nhỏ trải rộng bên phải trong phân bố bán kính tổng thể. Các đỉnh phổ này có bề ngang rộng. Độ cao của đỉnh giảm nhẹ và vị trí đỉnh phổ dịch chuyển từ vị trí 1,29 Å xuống vị trí 0,96 Å khi mật độ mẫu tăng lên. Rõ ràng sự chuyển đổi đơn vị cấu trúc

SiN_3 sang SiN_4 cùng với sự ngắn lại của độ dài liên kết Si-N đã làm tăng số lượng và làm giảm bán kính của các lỗ hổng loại này. Hình 3d đưa ra phân bố bán kính lỗ hổng N-Al-Si. Chúng ta thấy rằng phân bố bán kính này đóng góp vào cả đỉnh chính và đỉnh phụ bên phải của phân bố bán kính tổng thể. Vị trí của đỉnh phân bố bị dịch chuyển từ 0,96 Å xuống 0,66 Å và độ cao đỉnh tăng lên khi mật độ mẫu tăng lên.



Hình 4. Hình chụp mặt cắt hiển thị các lỗ hổng trong các mẫu: a) S1, b) S2 và c) S3

Để quan sát trực quan các phân bố của các lỗ hổng chúng tôi đã hiển thị trực quan hóa mặt cắt của mẫu để dễ dàng quan sát các lỗ hổng như trên Hình 4. Ở đây ngoài các lỗ hổng N-Al, N-Si và N-Al-Si, chúng tôi còn tìm thấy trong các mẫu có vài chục lỗ hổng chỉ tiếp xúc với các nguyên tử N được gọi là lỗ hổng N. Các lỗ hổng loại N này ở mẫu S₃ có bán kính nhỏ nhất là 0,94 Å và bán kính lớn nhất là 1,7 Å. Trong khi đó ở mẫu S₁ bán kính lỗ hổng N nhỏ nhất là 1,0 Å và lớn nhất là 2,12 Å. Các lỗ hổng N này chỉ định xứ ở vùng vật liệu Si₃N₄ và vùng biên giữa vật liệu AlN và Si₃N₄. Như quan sát trên hình, chúng ta thấy rằng hầu hết các lỗ hổng N-Al sắp xếp theo trật tự và lập thành các vùng rõ rệt. Các lỗ hổng N-Si lớn hơn sắp xếp mất trật tự ở những vùng xác định. Các lỗ hổng N-Al-Si phân bố ở những vùng tiếp giáp AlN và Si₃N₄. Ở đây chúng ta thấy rằng có vài lỗ hổng N-Al khuếch tán vào vùng lỗ hổng N-Si và ngược lại vài lỗ hổng N-Si khuếch tán vào vùng AlN. Điều này chứng tỏ rằng có những nguyên tử Al khuếch tán lẫn vào vùng Si₃N₄ và nguyên tử Si khuếch tán vào vùng AlN. Khi mật độ của mẫu tăng lên, vùng lỗ hổng N-Si trở thành các dải hẹp hơn. Điều này tương ứng với quan sát ở Hình 2 là vùng vật liệu Si₃N₄ trở thành các dải hẹp hơn khi mật độ mẫu tăng lên.



Hình 5. Đường cong ứng suất - biến dạng của các mẫu S₁ ÷ S₃

Ba mẫu vật liệu $S_1 \div S_3$ được tiến hành kéo dãn theo trục z. Đường cong ứng suất-biến dạng của ba mẫu này được trình bày trên Hình 5. Ở cả ba mẫu này ứng suất σ_{zz} tăng tuyến tính với biến dạng ϵ trong khoảng từ 0 đến 6% và khoảng biến dạng này ứng với biến dạng đàn hồi. Ứng suất σ_{zz} tiếp tục tăng đến giá trị cao nhất rồi biến đổi lên xuống là là theo phương ngang với độ tăng của biến dạng. Khoảng biến dạng này ứng với biến dạng dẻo. Ở biến dạng đàn hồi, chúng tôi xác định mô đun đàn hồi E của mẫu theo phương biến dạng z. Mô đun đàn hồi E của các mẫu S_1 , S_2 và S_3 lần lượt là 136 ± 2 GPa, 135 ± 2 GPa và 286 ± 2 GPa. Thực nghiệm đo mô đun đàn hồi của các màng mỏng E cho thấy giá trị của E này thay đổi trong khoảng từ 110 ± 2 GPa đến 143 ± 2 GPa phụ thuộc vào thể chên lệch làm thay đổi mật độ và vi cấu trúc của vật liệu Al-Si-N [3]. Ở các mẫu mô phỏng $S_1 \div S_3$, tỉ phần nguyên tử của Si là 12 % và ứng với tỉ phần này thực nghiệm đo được mô đun đàn hồi E của vật liệu Al-Si-N là 290 ± 3 GPa [14]. Điều này cho thấy rằng kết quả mô phỏng này là phù hợp. Dù mật độ của mẫu S_2 tăng làm các đơn vị cấu trúc trong mẫu thay đổi đáng kể nhưng tỉ phần tinh thể của mẫu S_1 lại cao hơn, và điều này gây bù trừ dẫn đến mô đun đàn hồi tương đương nhau. Mẫu S_3 tăng mật độ làm vi cấu trúc thay đổi mạnh mẽ và các lỗ trống lớn giảm mạnh so với hai mẫu S_1 và S_2 . Điều này làm cơ tính của S_3 được cải thiện rõ rệt.

3. Kết luận

Ba mẫu vật liệu $(AlN)_{0,9}(Si_3N_4)_{0,1}$ với các mật độ 2,95; 3,20 và 3,88 g.cm⁻³ (S_1 , S_2 và S_3 tương ứng) được mô phỏng nguội nhanh bằng phương pháp ĐLHPT. Các vật liệu AlN tạo thành các vùng tinh thể mạng lưới các đơn vị cấu trúc AlN_x (x=4, 5 và 6). Vùng vật liệu AlN này gồm phần lớn là tinh thể FCC AlN, cụm tinh thể HCP AlN vài chục nguyên tử và một phần đáng kể cấu trúc VDH AlN. Các vật liệu Si_3N_4 cũng tạo thành các vùng vật liệu VDH với mạng lưới các cấu trúc đơn vị SiN_3 và SiN_4 . Mật độ của mẫu tăng lên gây ra sự chuyển đổi cấu trúc từ SPT thấp chuyển sang SPT cao hơn và độ dài liên kết Al-N và Si-N bị giảm xuống. Tỉ phần các nguyên tử tinh thể cũng bị giảm đáng kể với sự tăng lên của mật độ. Sự tăng của mật độ cũng làm tăng số lượng các lỗ hổng trong mẫu nhưng lại làm số lượng các lỗ hổng có bán kính lớn giảm đi nhanh chóng ở vùng vật liệu VDH. Phân tích các lỗ hổng cho thấy có số lượng nhỏ các nguyên tử Al khuếch tán sang vùng vật liệu VDH Si_3N_4 và ngược lại có các nguyên tử Si khuếch tán sang vùng vật liệu VDH AlN. Các biến dạng kéo một trục trên mẫu cho thấy cả ba mẫu có vùng biến dạng đàn hồi và biến dạng dẻo. Cơ tính của mẫu S_3 có mật độ cao được cải thiện rõ rệt do sự thay đổi đơn vị cấu trúc ở vùng vật liệu VDH diễn ra mạnh mẽ gây ra sự giảm mạnh các lỗ hổng có bán kính lớn trong mẫu.

Lời cảm ơn. Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển khoa học và công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong đề tài mã số 103.05-2019.364.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Soni, M.J. Shekh, S.K. Sharma, S.K. Mishra, 2020. *Mater. Character.* 169, 110589.
- [2] G. Remnev, V. Tarbokov, S. Pavlov, F. Konusov, S. Zenkin, J. Musil, 2018. *Vacuum* 158, pp. 65-67.
- [3] J.C. Ding, Q.M. Wang, Z.R. Liu, S. Jeong, T.F. Zhang, K.H. Kim, 2019. *J. Alloys Compd.* 772, pp. 112-121.
- [4] J. Musil, M. Sasek, P. Zeman, R. Cerstvy, D. Heřman, J.G. Han, V. Satava, 2008. *Surf. Coat. Technol.*, 202, 3485.
- [5] S. H. Sheng, R. F. Zhang, S. Veprek, 2013. *Acta Mater.*, 61, 4226.

- [6] T.T. Nguyen, T.T. Nguyen, G.T Nguyen, V.V. Le, 2016. *Vacuum*, 129, pp. 1-8.
- [7] J.D. Gale, 1997. *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, 93, 629.
- [8] S. Zhang, N. Chen, 2005. *Chem. Phys.*, 309.
- [9] G. Ziegenhain, A. Hartmaier, H.M. Urbassek, 2009. *J. Mech. Phys. Solids*, 57, 1514.
- [10] H. Tsuzuki, P. S. Branicio, J. P. Rino, 2007. *Comput. Phys. Comm.*, 177, 518.
- [11] J. Schiotz, T. Vegge, F. D. DiTolla, K.W. Jacobsen, 1999. *Phys. Rev. B*, 60, 11971.
- [12] Y.C. Cheng, X.L. Wu, J. Zhu, L.L. Xu, S.H. Li, P.K. Chu, 2008. *J. Appl. Phys.* 103, 073707.
- [13] V. V. Le, G.T. Nguyen, 2019. *J. Non-Crystal. Solids*, 505, pp. 225-233.
- [14] A. Pelisson, M. Parlinska-Wojtan, H.J. Hug, J. Patscheider, 2007. *Surf. Coat. Technol.*, 202, 884.

ABSTRACT

Density effects on microstructures and mechanical behavior of $(\text{AlN})_{0.9}(\text{Si}_3\text{N}_4)_{0.1}$ ceramic

Nguyen Thi Thao¹ and Le Van Vinh²

¹*Faculty of Physics, Hanoi National University of Education*

²*Faculty of Information Technology, Phenikaa University, Hanoi*

Molecular dynamics (MD) simulations have been used to study three samples of $(\text{AlN})_{0.9}(\text{Si}_3\text{N}_4)_{0.1}$ ceramic materials with density varying from 2.95 to 3.88 g.cm⁻³. The influence of density on microstructure, such as the change of structural units, bond lengths, the nearest common neighbors, and voids, was studied in detail. The analysis shows that these samples consist of regions of AlN and Si₃N₄ materials. The region of AlN material consists mostly of AlN crystals and small amount of AlN amorphous. The region of Si₃N₄ material has amorphous structure. Void analysis shows that there is the diffusion of Si atoms into the AlN amorphous region and conversely there is the diffusion of Al atoms into the Si₃N₄ amorphous region. The voids with large radius are localized in the amorphous structure region. The number of these voids decreases rapidly with the increase of density. This reduction improves significantly mechanical properties of samples.

Keywords: MD, AlSiN, crystal, amorphous, mechanical properties.