

# HIỆN TƯỢNG TRỄ TRONG BIẾN DẠNG ĐƠN TRỤC CỦA VẬT LIỆU HAI CHIỀU PENTA-GRAPHENE

Đặng Minh Triết<sup>1\*</sup>, Nguyễn Thị Bảo Trang<sup>2,3</sup>, Trịnh Xuân Hoàng<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Khoa Sư Phạm, Trường Đại học Cần Thơ, Đường 3/2, Quận Ninh Kiều, Cần Thơ, Việt Nam

<sup>2</sup>Đại học FPT, 600 Nguyễn Văn Cừ, Quận Ninh Kiều, Cần Thơ, Việt Nam

<sup>3</sup>Phổ thông Cao đẳng FPT Polytechnic, Nguyễn Văn Linh, Quận Ninh Kiều, Cần Thơ, Việt Nam

<sup>4</sup>Viện Vật lý – Viện Hàn Lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 10 Đào Tấn, Quận Ba Đình, Hà Nội, Việt Nam

\* Tác giả liên hệ Đặng Minh Triết <dmtriet@ctu.edu.vn>

(Ngày nhận bài: 15-03-2022; Hoàn thành phản biện: 24-07-2023; Ngày chấp nhận đăng: 17-08-2023)

**Tóm tắt.** Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng phương pháp động lực học phân tử để khảo sát hiện tượng trễ của vật liệu hai chiều penta-graphene dưới tác dụng của biến dạng đơn trục. Kết quả cho thấy rằng tấm penta-graphene với 10086 nguyên tử carbon có độ bền cơ học cao, ứng suất đáp ứng biến dạng lớn, có thể đạt đến ~170 GPa. Với tốc độ dẫn lớn (0,1 Å/ps), trong giới hạn đàn hồi, tấm penta-graphene thể hiện quá trình chuyển pha liên tục; các thông số cấu trúc và nhiệt động gần như đồng biến với độ biến dạng. Tuy nhiên, ở tốc độ dẫn nhỏ nhất ( $2 \times 10^{-6}$  Å/ps), chúng tôi quan sát được sự chuyển pha loại I trong tấm penta-graphene khi độ biến dạng đạt khoảng 7%. Đồ thị ứng suất và số phối vị theo độ biến dạng thể hiện sự gián đoạn đột ngột tại điểm chuyển pha cấu trúc. Đồng thời, khi nén ngược lại tấm penta-graphene từ trạng thái dẫn trong giới hạn đàn hồi, chu trình trễ của đồ thị ứng suất và số phối vị thể hiện rõ nét ở tốc độ biến dạng này. Kết quả nghiên cứu này cho một cách nhìn mới về lý thuyết chuyển pha và hiện tượng trễ trong nghiên cứu tính chất đàn hồi của vật liệu hai chiều penta-graphene.

**Từ khóa:** biến dạng đơn trục (nén/dãn), động lực học phân tử (MD), penta-graphene, hiện tượng trễ trong biến dạng

## Hysteresis of two-dimensional penta-graphene thin films under uniaxial deformation

Minh Triet Dang<sup>1\*</sup>, Nguyen Thi Bao Trang<sup>2,3</sup>, Hoang Xuan Trinh<sup>1</sup>

<sup>1</sup>School of Education, Can Tho University, 3/2 St., Ninh Kieu District, Can Tho, Viet Nam

<sup>2</sup>FPT University, 600 Nguyen Van Cu St., Ninh Kieu District, Can Tho, Viet Nam

<sup>3</sup>FPT Polytechnic, Nguyen Van Linh St., Ninh Kieu District, Can Tho, Viet Nam

<sup>4</sup>Institute of Physics-Vietnam Academy of Science and Technology, 10 Dao Tan St., Ba Dinh District, Ha Noi, Viet Nam

\* Correspondence to Minh Triet Dang <dmtriet@ctu.edu.vn>

(Received: 15 March 2022; Revised: 24 July 2023; Accepted: 17 August 2023)

**Abstract.** We use molecular dynamic simulations to investigate the hysteresis of two-dimensional penta-graphene under uniaxial deformation. The results show that a penta-graphene thin film with 10086 carbon atoms can withstand ultra-high strength with a maximum applied stress of ~170 GPa without failure. Under a high shear rate (0.1 Å/ps) and in the elastic regime, the penta-graphene thin film exhibits

a continuous phase transformation, in which the thermodynamic parameters proportionally change with applied strain. However, at the lowest shear rate of  $2 \times 10^{-6}$  Å/ps, a first-order-like phase transition is observed at ~7% strain. The mean coordination number versus strain curve exhibits a sharp discontinuity of stress. Also, when reversing the shear in the linear elastic regime, the hysteresis effects become prominent at this very low strain rate. These results extend our understanding of the first-order-like structural-phase transition of two-dimensional penta-graphene thin films.

**Keywords:** uniaxial deformation (compression/extension), molecular dynamic simulations, penta-graphene, hysteresis

## 1 Mở đầu

Hiện tượng trễ trong các linh kiện điện tử bán dẫn thường được khảo sát dựa qua các hiệu ứng trường (lượng tử) trong các cấu trúc pha tạp AlGaAs/GaAs [1,2] hay AlGaIn/GaN [3]. Các hiện tượng trễ này thường có nguồn gốc từ sự thay đổi trong cấu trúc truyền dẫn điện tử khi các hạt mang điện bị giam cầm tại các mặt tiếp giáp giữa các môi trường bán dẫn. Chu trình trễ xuất hiện khi các điện tử bị giam cầm trong các hố thế của các nguyên tử lân cận và thường có định hướng ngược chiều kim đồng hồ [2]. Tuy nhiên, với các vật liệu hai chiều có độ đàn hồi cao như các hợp kim siêu đàn hồi [4], ceramic [5] hoặc các vật liệu vô định hình dạng thủy tinh [6–9] thì hiện tượng trễ trong cơ học biến dạng vẫn chứa đựng nhiều thử thách thú vị thông qua việc khảo sát sự phân hồi của vật liệu dưới tác dụng của ngoại lực gây biến dạng [10–12]. Điển hình là, bằng cách thay đổi lực liên kết yếu (adhesion force) giữa đầu dò và tấm graphene đơn lớp, Zhang và cs. đã chỉ ra rằng chu trình trễ dương xuất hiện nếu lực ma sát trong lúc ngừng tải (unloading) lớn hơn lúc chịu tải (loading); ngược lại, chu trình trễ âm xuất hiện khi lực ma sát trong lúc ngừng tải nhỏ hơn lúc chịu tải [12]. Gần đây, bằng cách kết hợp giữa thiết bị rheometer và phổ tia X năng lượng cao, chúng tôi đã quan sát được chu trình trễ của vật liệu vô định hình dạng thủy tinh dưới tác dụng của biến dạng tuần hoàn (oscillatory shear) [7,13].

Graphene, lần đầu tiên được giới thiệu vào năm 2004, đã mở ra một hướng nghiên cứu mới cho lĩnh vực khoa học vật liệu bán dẫn 2D [14]. Graphene có các đặc tính cơ, nhiệt ưu việt, độ bền cơ học vào khoảng 130 GPa, độ dẫn nhiệt vào khoảng 5300 W/mK (gấp 10 lần so với đồng), nồng độ hạt và độ linh động vào khoảng  $2 \times 10^5$  cm<sup>2</sup>/Vs [15,16]. Do đó, graphene có cấu trúc mềm dẻo, có thể bẻ cong, gấp, thậm chí là cuộn lại. Những yếu tố này đã mang lại cho graphene tiềm năng ứng dụng trong các loại linh kiện điện tử cần độ dẻo và độ uốn

cong [17]. Tuy nhiên, do graphene có độ rộng vùng cấm bằng không, việc điều khiển sự đóng mở trạng thái điện tử gặp không ít khó khăn, dẫn đến các hạn chế trong việc chế tạo và ứng dụng loại vật liệu này. Chính vì thế, việc nghiên cứu tìm kiếm vật liệu có những đặc tính cơ – nhiệt giống graphene nhưng có thể điều khiển được độ rộng vùng cấm được đẩy mạnh trong những năm gần đây [14,18].

Những loại vật liệu tựa graphene điển hình đã được nghiên cứu rộng rãi hiện nay như vật liệu hai chiều đơn nguyên tử silicene [19], phosphorene [20], vật liệu hai chiều đa nguyên tử như boron nitride [21] và MoS<sub>2</sub> [22]. Năm 2014, Zhang và cs. đã trích xuất thành công carbon – T12 và đề xuất mô hình vật liệu penta-graphene [23]. Penta-graphene (PG) có độ rộng vùng cấm gián tiếp nội tại vào khoảng 2,2 đến 4,3 eV [23,24], giúp đóng/mở trạng thái truyền dẫn trong linh kiện điện tử một cách dễ dàng. Penta-graphene có cấu trúc ngũ giác, hình thành từ sự kết hợp của trạng thái lai hoá sp<sup>2</sup> và sp<sup>3</sup> trong liên kết của các nguyên tử carbon. Cấu trúc nguyên tử đặc biệt này đã đem lại cho PG các tính chất cơ học và tính ổn định nhiệt vượt trội [25,26]. Penta-graphene có tính chất cơ học đặc trưng của graphene, có độ bền cơ – nhiệt học lên đến 1000 K; nhiệt độ chuyển pha xấp xỉ 1300 K [27], chứng tỏ vật liệu PG phù hợp để ứng dụng trong các thiết bị hoạt động ở nhiệt độ cao. Đặc biệt, PG có khả năng đáp ứng biến dạng cực kỳ lý tưởng: chịu được biến dạng kéo đơn trục lên đến 21%; suất Young vào khoảng 264 GPa·nm và có hệ số poisson âm (–0,068); nghĩa là PG có xu hướng mở rộng theo hướng vuông góc với hướng biến dạng [23,28]. Rahaman và cs. đã chỉ ra rằng PG có thể thực hiện chuyển pha cấu trúc từ penta-graphene sang biphenylene dưới tác dụng của biến dạng đơn trục dựa trên lý thuyết phiếm hàm mật độ theo nguyên lý ban đầu [29]. Tuy nhiên, giới hạn của lý thuyết phiếm hàm mật độ là với kích thước mẫu nhỏ, quá trình chuyển pha cấu trúc chỉ đạt một độ tin cậy nhất

định và ảnh hưởng của tốc độ biến dạng lên sự thay đổi cấu trúc của vật liệu khó có thể quan sát được.

Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng phương pháp động lực học phân tử (MD) để khảo sát chi tiết hiện tượng trễ của vật liệu hai chiều penta-graphene dưới tác dụng của biến dạng đơn trục với các tốc độ biến dạng khác nhau. Chúng tôi chỉ ra rằng, khi tốc độ biến dạng là lớn ( $\lambda_1 = 0,1 \text{ \AA/ps}$ ), đồ thị ứng suất của tấm PG theo độ biến dạng gần như đồng biến với độ biến dạng và chu trình trễ không thể hiện rõ nét. Tuy nhiên, khi làm biến dạng tấm PG với tốc độ rất nhỏ ( $\lambda_4 = 2 \times 10^{-6} \text{ \AA/ps}$ ), đồ thị ứng suất thể hiện sự gián đoạn loại I tại điểm chuyển pha cấu trúc và trong giới hạn đàn hồi, bề rộng của chu trình trễ tăng lên đáng kể. Thông qua kết quả phân tích số phối vị trung bình và tỉ lệ vòng liên kết, chúng tôi đã chỉ rõ ảnh hưởng của tốc độ biến dạng lên việc khảo sát hiện tượng trễ trong cơ học vật rắn của vật liệu hai chiều penta-graphene dưới tác dụng của ngoại lực.

## 2 Mô hình tính toán

Trong nghiên cứu mô phỏng nhiệt động lực học phân tử của vật liệu hai chiều graphene và các vật liệu tựa graphene, thế Tersoff được xem là hàm thế chuẩn đạt độ tin cậy cao để khảo tính chất nhiệt động của hệ vật liệu này. Vì vậy, trong nghiên cứu này, chúng tôi cũng xây dựng mô hình mô phỏng tấm penta-graphene theo phương pháp động lực học phân tử với thế năng tương tác Tersoff [30,31]. Năng lượng liên kết giữa các liên kết (atomic bond)  $i$  và  $j$  được viết dưới dạng

$$E = \sum_{i>j} f_C(r_{ij}) \left[ V_R(r_{ij}) - \frac{b_{ij} - b_{ji}}{2} V_A(r_{ij}) \right]$$

trong đó, tương tác hút và đẩy có dạng

$$V_A(r) = \frac{SD_0}{s-1} \exp \left[ -\beta \sqrt{\frac{2}{s}} (r - r_0) \right] \text{ và}$$

$$V_R(r) = \frac{D_0}{s-1} \exp \left[ -\beta \sqrt{2S} (r - r_0) \right].$$

Giới hạn hiệu dụng  $f_C(r_{ij})$  của thế Tersoff là

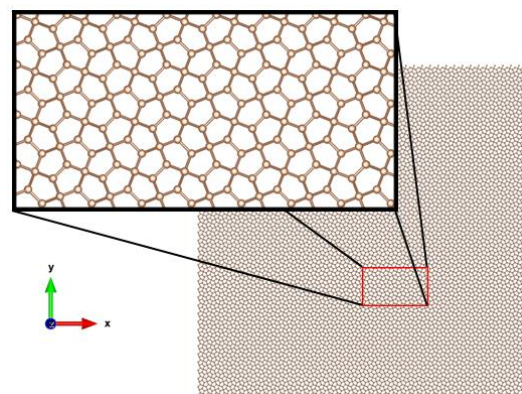
$$f_C(r) = \begin{cases} 1 & r < R - D \\ \frac{1}{2} - \frac{1}{2} \sin \left( \frac{\pi}{2} \frac{r - R}{D} \right) & |R - r| \leq D \\ 0 & R + D < r \end{cases}$$

$$\text{Trật tự liên kết } b_{ij} = (1 + \chi_{ij})^{-1/2}$$

với  $\chi_{ij} = \sum_{k(\neq i,j)} f_C(r_{ik}) \exp[2\mu(r_{ij} - r_{ik})] g(\theta_{ijk})$  và hàm phân bố góc có dạng

$g(\theta) = \gamma \left( 1 + \frac{c^2}{d^2} - \frac{c^2}{d^2 + [h + \cos \theta]^2} \right)$ . Thông qua cách định nghĩa năng lượng liên kết theo hàm thế Tersoff cùng với các giá trị tham số nhận được từ (30, 31), chúng tôi đã tích hợp thành công hàm thế Tersoff vào chương trình mô phỏng của chúng tôi để đảm bảo độ tin cậy cao của kết quả nghiên cứu.

Để đảm bảo độ tin cậy thống kê khi khảo sát tính chất nhiệt động lực học của tấm PG trong quá trình biến dạng, chúng tôi khảo sát hệ mô phỏng với 10086 nguyên tử carbon. Kích thước mẫu  $L_x \times L_y \times L_z$  tương ứng  $149,9 \times 150,1 \times 1,3 \text{ \AA}^3$  ở 300 K và được hồi phục sau  $10^5$  bước MD (bước thời gian trong mô phỏng MD) để mô hình đạt trạng thái năng lượng cực tiểu. Mỗi bước chạy MD tương ứng với thời gian mô phỏng là 1 fs. Chúng tôi áp dụng điều kiện biên tuần hoàn theo trục  $x$ ,  $y$  và phản xạ đàn hồi trên trục  $z$  (Hình 1) [32]. Cụ thể, trục  $x$  và  $y$  được áp dụng điều kiện biên tuần hoàn trong khi trục  $z$  là phản xạ đàn hồi. Để thực hiện biến dạng đơn trục, chúng tôi nén/giãn trục  $x$  sẽ với bốn tốc độ lớn/nhỏ khác nhau, trong khi trục  $y$  được thay đổi tự do với điều kiện áp suất 1 atm. Đầu tiên, mô hình được kéo giãn trên trục  $x$  từ trạng thái không biến dạng đến 20% với bốn tốc độ dẫn khác nhau là  $\lambda_1 = 0,1 \text{ \AA/ps}$ ;  $\lambda_2 = 10^{-3} \text{ \AA/ps}$ ;  $\lambda_3 = 10^{-4} \text{ \AA/ps}$ ;  $\lambda_4 = 2 \times 10^{-6} \text{ \AA/ps}$ . Để khảo sát hiện tượng trễ, chúng tôi lặp lại mô phỏng trên, nhưng tại điểm có độ biến dạng dẫn 6,6%, tấm PG được nén lại ở cùng tốc độ về trạng thái ban đầu (0%). Điểm biến dạng được chọn



Hình 1. Cấu trúc tinh thể của tấm penta-graphene thuần ở 300 K

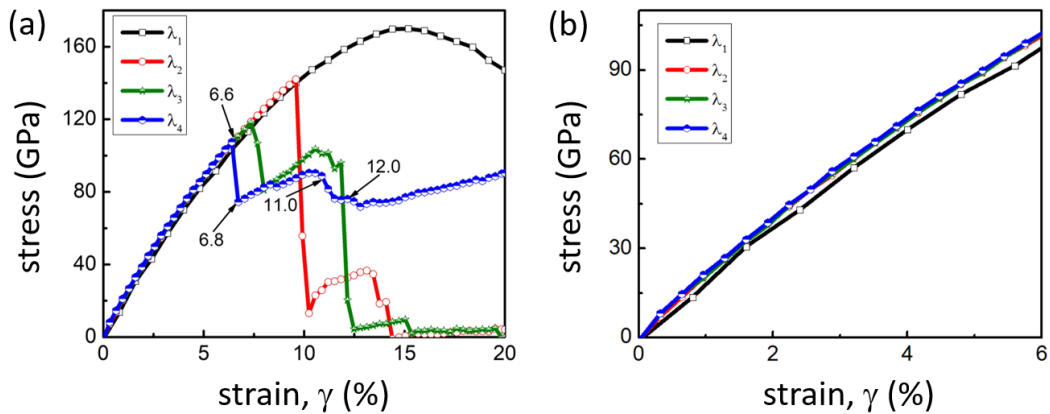
là  $\gamma = 6,6\%$  trước khi nén ngược lại đảm bảo cho tấm PG vẫn chưa có sự thay đổi lớn về hình thái học, cũng như vẫn còn trong giới hạn đàn hồi của vật liệu. Bước nhảy biến dạng nén được chọn tương đồng với bước nhảy của biến dạng dãn để đảm bảo ngoại lực tác dụng lên tấm PG là tương đồng với quá trình dãn trừ chiều áp biến dạng. Độ biến dạng được xác định dựa theo công thức  $\gamma = \left| \frac{L_a - L_x}{L_x} \right| \times 100\%$  với  $L_a$  là độ dài của tấm PG trên trục  $x$ . Quá trình dãn tương ứng với  $L_a > L_x$ . Quá trình nén được thực hiện từ trạng thái dãn nên chiều dài của tấm PG cuối quá trình nén tương ứng với  $L_a = L_x$ . Trong mỗi bước mô phỏng, quá trình mô phỏng được thiết lập ở chế độ cân bằng đẳng áp đẳng nhiệt (NPT) với phần mềm LAMMPS [33]. Quá trình tích phân theo thời gian (time integration) các thông số nhiệt động được thực hiện theo thuật toán Nose-Hoover. Phần mềm VESTA được sử dụng để mô tả trực quan cấu trúc của mô hình [34]. Phần mềm I.S.A.A.C.S được sử dụng để tính toán phân bố vòng liên kết với tiêu chí vòng Guttman [35,36].

### 3 Kết quả và thảo luận

#### Sự phụ thuộc của ứng suất vào độ biến dạng

Hình 2 cho thấy sự biến đổi của ứng suất theo độ dãn của tấm PG ở các tốc độ biến dạng khác nhau. Ở tốc độ

dãn lớn nhất  $\lambda_1 = 0,1 \text{ \AA/ps}$ , đồ thị ứng suất gần như tăng đồng biến đến  $\sim 170 \text{ GPa}$ , trước khi bắt đầu giảm khi độ biến dạng đạt khoảng  $\gamma \approx 15\%$ . Kết quả quan sát này tương đồng với đồ thị ứng suất theo độ biến dạng của vật liệu Silicon vô định hình dưới tác dụng của biến dạng đơn trục [37]. Với tốc độ dãn nhỏ hơn, như tốc độ  $\lambda_2, \lambda_3$  và  $\lambda_4$ , đường cong ứng suất giảm đột ngột tương ứng tại  $\gamma = 9,6\%$ ;  $\gamma = 7,4\%$  và  $\gamma = 6,6\%$  sau đó xuất hiện nhiều điểm gãy khác trong vùng biến dạng đến dưới  $15\%$ . Với các tốc độ biến dạng nhỏ này, trong mỗi bước biến dạng, do các phân tử có đủ thời gian dịch chuyển trong các vùng lân cận địa phương (local cage dynamics), có thể thấy rõ sự chònh chập của đồ thị ứng suất theo độ biến dạng (Hình 2b); điều này không được quan sát ở tốc độ dãn lớn nhất  $\lambda_1$ . Đặc biệt, với tốc độ dãn nhỏ nhất ( $\lambda_4 = 2 \times 10^{-6} \text{ \AA/ps}$ ), đường cong ứng suất có sự chuyển pha cấu trúc của tấm PG và có thể chia thành các giai đoạn tương ứng như sau: từ trạng thái PG thuần ( $\gamma = 0\%$ ) cho đến trước  $\gamma = 6,6\%$ , đường cong ứng suất tăng tuyến tính theo độ dãn. Từ  $\gamma = 6,6$  đến  $\gamma = 6,8\%$ , ứng suất giảm đột ngột từ  $\sim 110 \text{ GPa}$  đến  $\sim 75 \text{ GPa}$ , đánh dấu quá trình chuyển pha loại I. Trong giai đoạn tiếp theo, đồ thị ứng suất gần như tăng đồng biến đến  $\sim 90 \text{ GPa}$ , cho thấy hình thái học của mô hình PG gần như ổn định. Từ  $\gamma = 11\%$  đến  $\gamma = 12\%$ , đồ thị ứng suất giảm nhẹ đến gần  $\sim 75 \text{ GPa}$  và tiếp tục giữ ổn định đến cuối quá trình biến dạng.

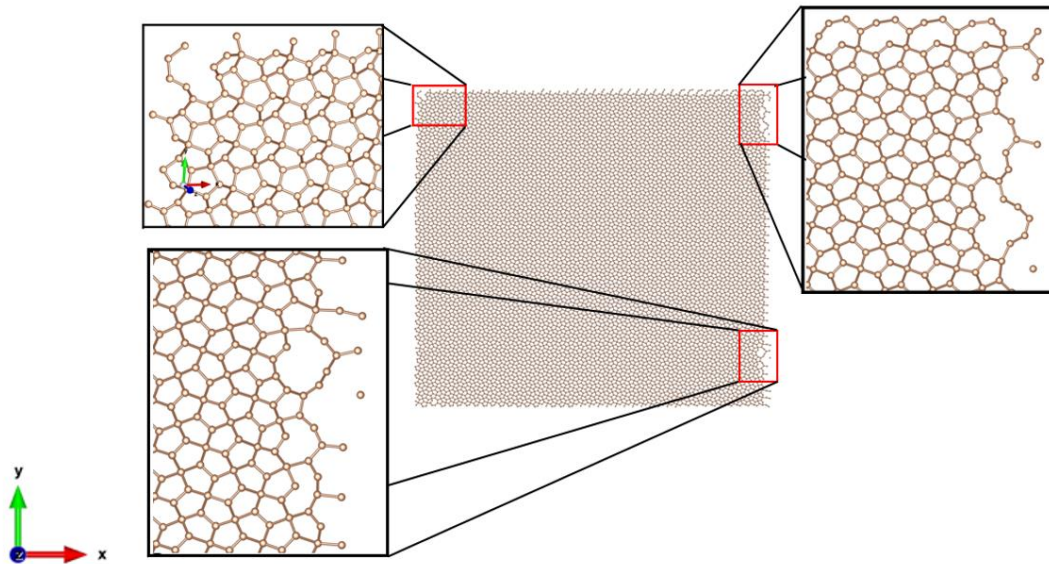


**Hình 2.** Đồ thị ứng suất theo độ dãn của PG ở các tốc độ biến dạng khác nhau. Hình (b) là hình ảnh phóng to của hình (a) đến độ biến dạng  $\gamma = 6\%$

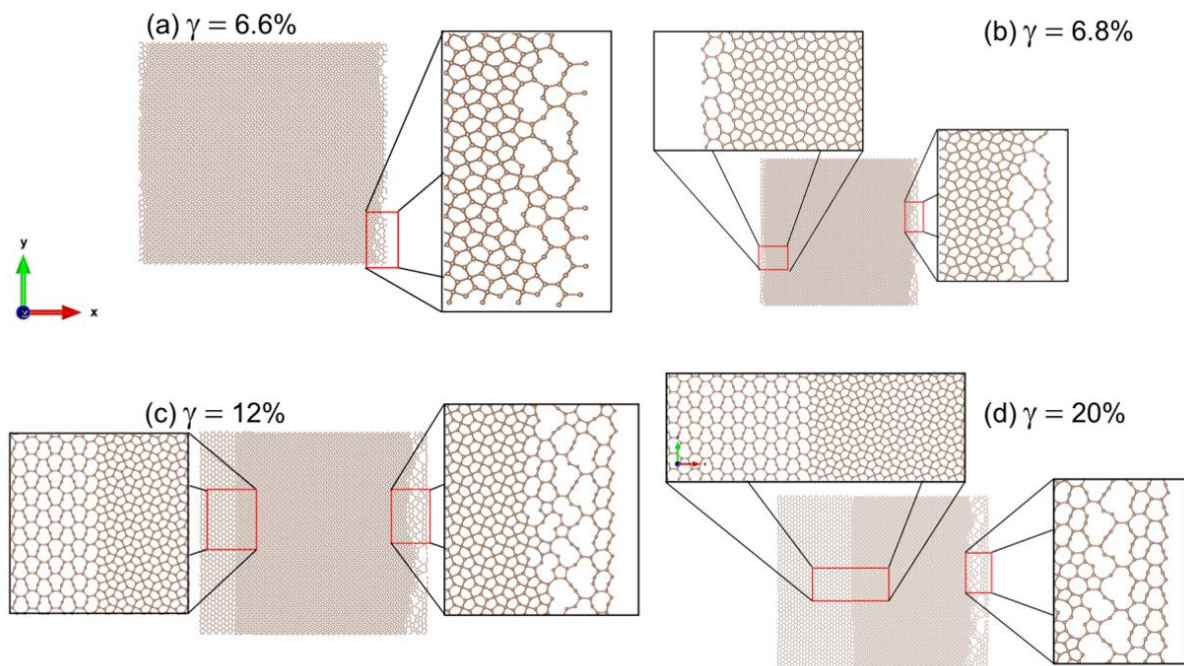


Sự phụ thuộc của ứng suất theo độ dẫn cho thấy, với tốc độ dẫn lớn nhất  $\lambda_1$  và trong giới hạn đàn hồi, hình thái học của tấm PG gần như không thay đổi (Hình 3). Khi tấm PG chuyển pha từ trạng thái đàn hồi sang trạng thái biến dạng dẻo tại  $\gamma \approx 15\%$  (Hình 2), trên tấm PG bắt đầu xuất hiện các trạng thái đứt gãy liên kết

cũng như thiết lập các liên kết mới ở biên (Hình 3). Ở tốc độ dẫn nhỏ nhất  $\lambda_4$ , cấu trúc vật liệu theo độ biến dạng bắt đầu thay đổi từ biên tại điểm chuyển pha  $\gamma = 6,6\%$  và phát triển thành hai cấu trúc có hình thái học khác nhau với một mặt tiếp giáp gần như thẳng đứng (Hình 4).



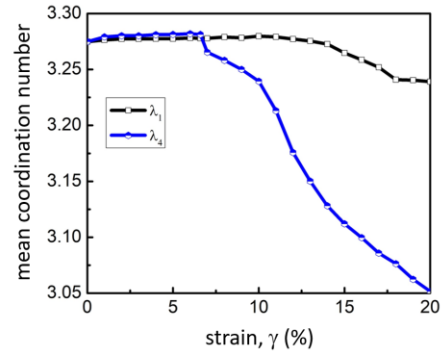
Hình 3. Cấu trúc tấm PG ở điểm biến dạng dẫn  $\gamma \approx 15\%$  với tốc độ dẫn lớn nhất  $\lambda_1$



Hình 4. Cấu trúc tấm PG ở các vị trí dẫn đặc biệt với tốc độ dẫn nhỏ nhất  $\lambda_4$

**Sự thay đổi số phối vị trong quá trình dẫn**

Để khảo sát sự ảnh hưởng của tốc độ biến dạng lên cấu trúc của tấm PG, chúng tôi tiến hành phân tích đồ thị số phối vị theo độ biến dạng ở hai tốc độ dẫn lớn nhất ( $\lambda_1$ ) và nhỏ nhất ( $\lambda_4$ ). Số phối vị cho biết sự phân bố của các nguyên tử xung quanh một nguyên tử được chọn làm mốc trong bán kính mặt cầu phối vị thứ nhất. Ở Hình 5, số phối vị trung bình của tấm PG thuần ( $\gamma = 0\%$ ) xấp xỉ  $\sim 3,3$  tương ứng với carbon lai hoá  $sp^2$  và  $sp^3$  [23,38]. Ở tốc độ dẫn lớn nhất, trong giới hạn đàn hồi ( $\gamma < 15\%$ ), số phối vị trung bình của tấm PG hầu như không thay đổi theo độ biến dạng. Tuy nhiên, ở tốc độ dẫn nhỏ nhất, số phối vị trung bình biến thiên phi tuyến theo độ biến dạng. Cụ thể, số phối vị trung bình thể hiện sự gián đoạn tại điểm chuyển pha loại I ( $\gamma = 6,6\%$ ). Khi độ dẫn tăng dần thì số phối vị trung bình giảm dần, đạt giá trị  $\sim 3$  ở độ biến dạng  $\gamma = 20\%$ . Điều này cho thấy tấm PG có sự chuyển đổi cấu trúc từ cấu trúc vòng 5 điển hình sang các cấu trúc khung rỗng hơn. Hình 4c và 4d cho thấy sự tồn tại đồng thời cấu trúc khung rỗng mới hình thành và cấu trúc ngũ giác điển hình của tấm PG ở độ biến dạng  $\gamma = 12\%$  và  $\gamma = 20\%$ . Đồng thời, các hình này còn cho thấy mặt tiếp giáp thẳng giữa hai cấu trúc mới được hình thành, chứng tỏ độ ổn định của tấm PG tại điểm chuyển pha cấu trúc, tương tự như những quan sát của chúng tôi trước đây tại mặt phân tách giữa hai môi trường rắn – lỏng của vật liệu dạng keo [39].

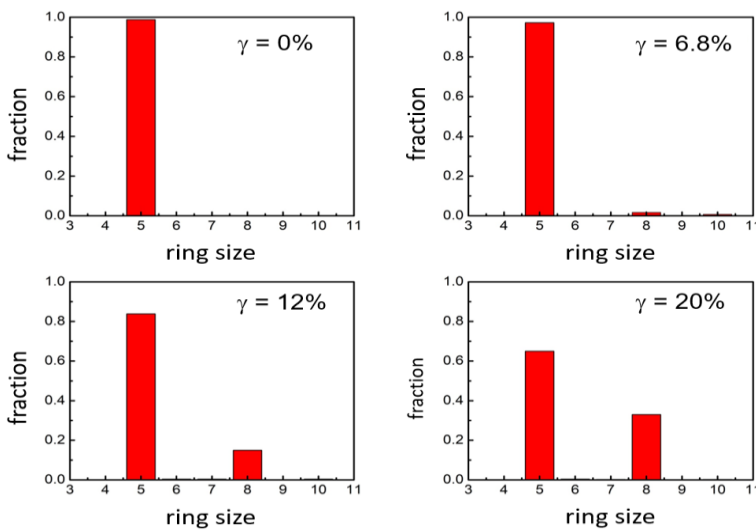


**Hình 5.** Đồ thị số phối vị trung bình của PG trong quá trình dẫn đến  $\gamma = 20\%$  với tốc độ dẫn nhỏ nhất  $\lambda_4$  và tốc độ dẫn lớn nhất  $\lambda_1$  được sử dụng như dữ liệu tham chiếu

**Sự thay đổi vòng liên kết trong quá trình dẫn với tốc độ dẫn nhỏ nhất**

Nếu số phối vị cho biết số liên kết khả dĩ của một nguyên tử carbon và các nguyên tử carbon lân cận thì thông số vòng liên kết sẽ phác họa rõ nét về hình thái học của tấm PG theo độ biến dạng. Giả sử, xét một nút mạng cụ thể, để khảo sát nút này có khả năng liên kết với các nút xung quanh, theo tiêu chí của Guttman [36], một vòng liên kết được định nghĩa là con đường ngắn nhất để quay trở lại một nút (hoặc nguyên tử) nhất định từ một trong những lân cận gần nhất của nó.

Hình 6 cho thấy sự thay đổi tỷ lệ vòng liên kết trong quá trình dẫn. Khi  $\gamma = 0\%$ , tấm PG có cấu trúc ngũ giác (vòng 5) điển hình. Tại điểm chuyển pha ( $\gamma \sim 6,8\%$ ), bên cạnh cấu trúc vòng 5 hiện hữu, trên tấm



**Hình 6.** Tỷ lệ vòng liên kết (ring size) theo các độ dẫn với tốc độ dẫn nhỏ nhất  $\lambda_4$

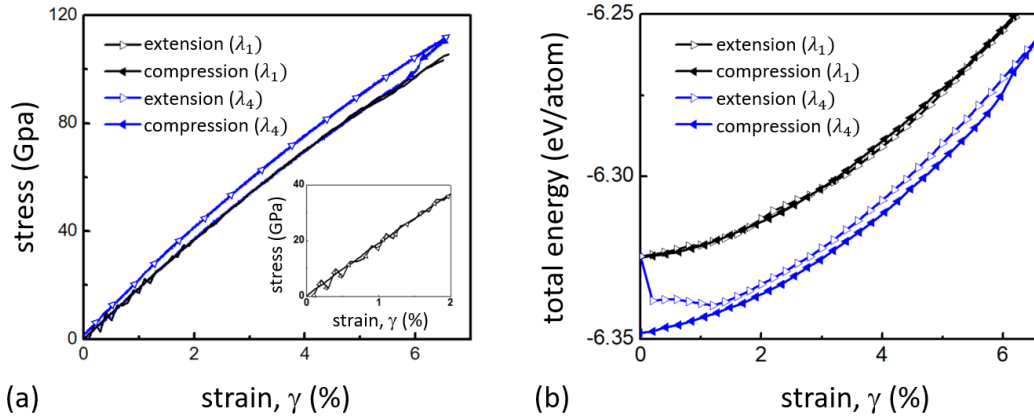
PG bắt đầu có sự xuất hiện cấu trúc vòng 8 và vòng 10. Điều này cho thấy quá trình biến dạng làm đứt gãy các liên kết hoá trị điển hình để hình thành các cấu trúc kém bền vững hơn, tương tự như quan sát của He & Thorpe cho vật rắn vô định hình [40]. Tại vị trí biến dạng  $\gamma = 12\%$ , cấu trúc vòng 5 giảm rõ nét và được thay thế bằng cấu trúc vòng 8. Điều này tương đồng với ảnh chụp cấu trúc ở Hình 4c. Ở điểm biến dạng  $\gamma = 20\%$ , cấu trúc của tấm PG đạt trạng thái ổn định với sự tồn tại đồng thời của cấu trúc vòng 5 và sự tăng vượt trội của cấu trúc vòng 8.

### Hiện tượng trễ trong biến dạng đàn hồi của tấm penta-graphene

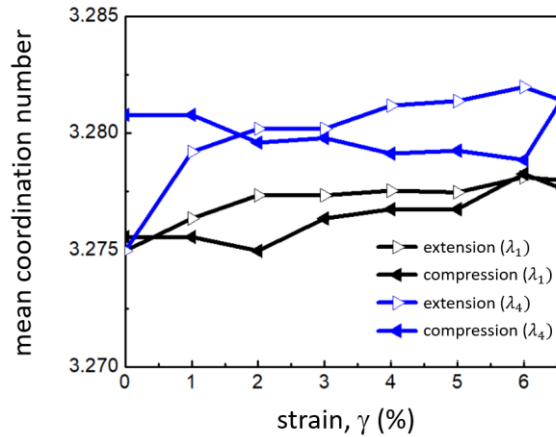
Để khảo sát hiện tượng trễ trong biến dạng đàn hồi của tấm PG, chúng tôi tiến hành nén ngược tấm PG từ độ biến dạng  $\gamma = 6,6\%$  về  $0\%$  với cùng tốc độ với tốc độ đã áp biến dạng dần. Hình 7a cho thấy đồ thị ứng suất theo độ biến dạng của cả chu trình dần và nén. Ở tốc độ biến dạng lớn nhất  $\lambda_1$ , đồ thị ứng suất theo độ biến dạng của cả hai quá trình nén và dần gần như chồng khớp lên nhau chứng tỏ quá trình biến dạng là hoàn toàn thuận nghịch. Đồng thời, khi quan sát chi tiết hơn đồ thị ứng suất ở tốc độ này từ  $\gamma = 0\%$  đến  $2\%$  (Hình 7a, phóng to), có thể dễ dàng nhận thấy cấu trúc răng cưa (saw-tooth) điển hình của đồ thị ứng suất theo độ biến dạng của các vật liệu có cấu trúc tinh thể [41,42]. Hiệu ứng răng cưa này là hệ quả của quá trình lệch mạng tinh thể địa phương (dislocation) của các đa tinh thể khi chịu tác dụng của ngoại lực biến dạng, thường được mô hình hoá qua mô hình “bi-stable element” (BSE) [43]. Điểm thú vị là mặc dù tấm PG được cấu tạo hoàn toàn từ carbon, hiệu ứng răng cưa xuất hiện cho thấy carbon lai hoá  $sp^2$  và  $sp^3$  biến dạng hoàn toàn khác nhau trong tấm PG. Theo hiểu biết của chúng tôi, kết quả này chưa được quan sát trên tấm PG dưới tác dụng của ngoại lực biến dạng. Trong quá trình nén ngược lại, chúng tôi không quan sát được hiệu ứng răng cưa của đồ thị ứng suất theo biến dạng. Điều này chứng tỏ hiệu ứng lệch mạng tinh thể địa phương không phải là cơ chế biến dạng chủ lực trong quá trình nén.

Đối với tốc độ biến dạng nhỏ nhất  $\lambda_4$ , hiện tượng trễ trong chu trình thuận nghịch thể hiện rõ nét: độ lệch của đường cong ứng suất theo độ biến dạng giữa hai quá trình nén và dần lớn hơn rất nhiều so với chu trình tương

ứng ở tốc độ biến dạng lớn nhất (Hình 7a). Kết quả khảo sát này tương đồng với quan sát thực nghiệm của chúng tôi cho vật liệu vô định hình dạng thủy tinh [13]. Chu trình trễ được quan sát rõ nét ở tốc độ biến dạng nhỏ nhất, cho thấy khi các nguyên tử carbon có đủ thời gian để tìm được trạng thái cân bằng khả dĩ, các trạng thái này có cấu trúc năng lượng bền hơn. Điều này thể hiện rõ nét thông qua giá trị âm hơn của đồ thị năng lượng toàn phần ở tốc độ biến dạng  $\lambda_4$  so với giá trị tương ứng ở tốc độ  $\lambda_1$  (Hình 7b). Sự chênh lệch rõ nét của đồ thị năng lượng toàn phần theo tốc độ biến dạng và sự xuất hiện chu trình trễ ở tốc độ biến dạng nhỏ nhất cho thấy vai trò quan trọng của quá trình biến dạng non-affine (một hình thức của biến dạng dẻo) [13,37]. Cụ thể, khi tấm PG bị nén ngược lại, năng lượng tiêu tán do biến dạng non-affine (non-affine dissipation) tăng lên đáng kể, dẫn đến sự xuất hiện của những khu vực chuyển pha địa phương (local transformation zone) làm tăng mật độ vật chất của tấm PG khi trở về trạng thái không biến dạng [37]. Nghĩa là, mặc dù chiều dài  $L_x$  của tấm PG trở về chiều dài  $L_x$  ở trạng thái không biến dạng, kích thước của tấm PG trên trục  $y$  sẽ co lại, làm tăng mật độ phân tử trên tấm PG. Để kiểm chứng kết luận này, chúng tôi tiến hành khảo sát sự thay đổi của số phối vị trung bình theo độ biến dạng của tấm PG trong quá trình nén/dần ở tốc độ biến dạng lớn nhất và nhỏ nhất (Hình 8). Từ điểm xuất phát ban đầu ở  $0\%$  biến dạng, số phối vị trung bình ở hai tốc độ dần lớn nhất và nhỏ nhất là như nhau. Khi tấm PG bị kéo dần, số phối vị trung bình tăng nhẹ từ trạng thái ban đầu đến độ biến dạng  $\gamma \sim 2\%$  trước khi đạt trạng thái ổn định khi hệ có độ biến dạng  $\gamma \sim 6,6\%$ . Trong quá trình nén ngược lại, ở tốc độ nén lớn  $\lambda_1$ , số phối vị giảm nhẹ từ điểm biến dạng  $\gamma \sim 6,6\%$  và dần trở về trạng thái ban đầu của tấm PG khi chưa chịu tác dụng của biến dạng. Điều này cho thấy, với tốc độ biến dạng lớn nhất  $\lambda_1$ , quá trình biến dạng là hoàn toàn thuận nghịch và trùng khớp với đồ thị ứng suất và năng lượng toàn phần theo độ biến dạng ở Hình 7. Tuy nhiên, ở tốc độ biến dạng nhỏ nhất  $\lambda_4$ , khi nén ngược lại, số phối vị trung bình giảm nhẹ ở đầu quá trình nén nhưng lại tăng dần khi tấm PG trở về trạng thái không biến dạng. Điều này cho thấy, ở tốc độ nén nhỏ nhất, quá trình nén đã kích thích quá trình chuyển pha địa phương (shear transformation) trong tấm PG, làm tăng số phối vị trung bình của hệ. Quan sát này tương đồng với quan sát thực nghiệm trên vật liệu silicon đơn lớp [37,44,45].



**Hình 7.** Đồ thị ứng suất (a) và năng lượng toàn phần (b) của tấm PG theo độ biến dạng trong quá trình dãn/nén với tốc độ biến dạng lớn nhất  $\lambda_1$  và nhỏ nhất  $\lambda_4$



**Hình 8.** Đồ thị số phối vị trung bình của PG trong quá trình dãn/nén với các tốc độ biến dạng khác nhau

## 4 Kết luận

Dưới tác dụng của biến dạng đơn trục, thông qua mô phỏng động lực học phân tử, chúng tôi đã khảo sát thành công quá trình chuyển pha cấu trúc của tấm penta-graphene ở nhiều tốc độ biến dạng khác nhau. Khi giảm tốc độ biến dạng từ  $\lambda_1 = 0,1$  Å/ps xuống đến  $\lambda_4 = 2 \times 10^{-6}$  Å/ps, tấm penta-graphene thể hiện rõ quá trình chuyển pha cấu trúc loại I tại điểm gián đoạn  $\gamma \sim 7\%$  ở tốc độ biến dạng nhỏ nhất. Quá trình chuyển pha này tương ứng với quá trình chuyển pha từ trạng thái đàn hồi (elastic) sang trạng thái biến dạng phi đàn hồi (plastic) với sự sụt giảm đột ngột của số phối vị trung bình cũng như ứng suất chịu lực của tấm penta-graphene tại điểm chuyển pha. Khi đạt trạng thái ổn định, tấm penta-graphene thể

hiện sự tồn tại đồng thời của cấu trúc vòng 5 điển hình của vật liệu penta-graphene và cấu trúc vòng 8 mới hình thành. Hai cấu trúc này tồn tại bền vững trong tấm penta-graphene ở tốc độ biến dạng nhỏ nhất, khi các nguyên tử carbon có đủ thời gian để tái cấu trúc liên tục trong quá trình biến dạng. Khi tiến hành áp biến dạng thuận nghịch lên tấm penta-graphene, ở tốc độ biến dạng lớn nhất, đồ thị ứng suất theo độ biến dạng gần như trùng khớp nhau, chu trình trễ không hình thành. Tuy nhiên, ở tốc độ biến dạng nhỏ nhất, do sự kích thích của quá trình chuyển pha địa phương (shear transformation zone), mật độ vật chất của tấm PG tăng lên, thể hiện thông qua độ tăng của số phối vị trung bình ở cuối quá trình nén ngược lại. Kết quả quan sát này có thể dẫn đến sự thay đổi lớn về tính chất điện tử và vận chuyển điện tử của tấm PG dưới tác dụng của ngoại lực.



## Thông tin tài trợ

Nội dung nghiên cứu được thực hiện trên hệ thống máy tính hiệu năng cao thuộc sự quản lý của Trung tâm Thông tin và Quản trị mạng tại Trường Đại học Cần Thơ.

## Tài liệu tham khảo

- Schliemann A, Worschech L, Reitzenstein S, Kaiser S, Forchel A. Large threshold hysteresis in a narrow AlGaAs/GaAs channel with embedded quantum dots. *Applied Physics Letters*. 2002;81(11):2115-7.
- Burke AM, Waddington DEJ, Carrad DJ, Lyttleton RW, Tan HH, Reece PJ, et al. Origin of gate hysteresis in  $\delta$ -type Si-doped AlGaAs/GaAs heterostructures. *Phys Rev B*. 2012 Oct;86(16):165309.
- Byrum LE, Ariyawansa G, Jayasinghe RC, Dietz N, Perera AGU, Matsik SG, et al. Capacitance hysteresis in GaN/AlGaN heterostructures. *Journal of Applied Physics*. 2009;105(2):23709.
- Gómez-Cortés JF, Nó ML, López-Ferreño I, Hernández-Saz J, Molina SI, Chuvilin A, et al. Size effect and scaling power-law for superelasticity in shape-memory alloys at the nanoscale. *Nature Nanotechnology*. 2017;12(8):790-6.
- Lai A, Du Z, Gan CL, Schuh CA. Shape Memory and Superelastic Ceramics at Small Scales. *Science*. 2013;341(6153):1505-8.
- Denisov D, Dang MT, Struth B, Wegdam G, Schall P. Resolving structural modifications of colloidal glasses by combining x-ray scattering and rheology. *Scientific Reports*. 2013;3(1):1631.
- Denisov D V, Dang MT, Struth B, Zacccone A, Wegdam GH, Schall P. Sharp symmetry-change marks the mechanical failure transition of glasses. *Scientific Reports*. 2015;5(1):14359.
- Dang MT, Zargar R, Bonn D, Zacccone A, Schall P. Nonequilibrium free energy of colloidal glasses under shear. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2018 Jul;51(32):324002.
- Dang MT, Gartner L, Schall P, Lerner E. Measuring the free energy of hard-sphere colloidal glasses. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2022.
- Aliev AE, Oh J, Kozlov ME, Kuznetsov AA, Fang S, Fonseca AF, et al. Giant-Stroke, Superelastic Carbon Nanotube Aerogel Muscles. *Science*. 2009;323(5921):1575-8.
- Qiu L, Huang B, He Z, Wang Y, Tian Z, Liu JZ, et al. Extremely Low Density and Super-Compressible Graphene Cellular Materials. *Advanced Materials*. 2017;29(36):1701553.
- Zhang D, Zhang Y, Li Q, Dong M. Origin of friction hysteresis on monolayer graphene. *Friction*. 2021.
- Dang MT, Denisov D, Struth B, Zacccone A, Schall P, Dang M.T., et al. Reversibility and hysteresis of the sharp yielding transition of a colloidal glass under oscillatory shear. *The European Physical Journal E*. 2016;39(4):44.
- Novoselov KS, Geim AK, Morozov S V., Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V., et al. Electric field in atomically thin carbon films. *Science*. 2004;306(5696):666-9.
- Lee C, Wei X, Kysar JW, Hone J. Measurement of the elastic properties and intrinsic strength of monolayer graphene. *Science*. 2008;321(5887):385-388.
- Morozov S V., Novoselov KS, Katsnelson MI, Schedin F, Elias DC, Jaszczak JA, et al. Giant intrinsic carrier mobilities in graphene and its bilayer. *Physical Review Letters*. 2008;100(1):11-14.
- Randviir EP, Brownson DAC, Banks CE. A decade of graphene research: Production, applications and outlook. *Materials Today*. 2014;17(9):426-432.
- Allen MJ, Tung VC, Kaner RB. Honeycomb carbon: A review of graphene. *Chemical Reviews*. 2010;110(1):132-145.
- Huy HA, Ho QD, Tuan TQ, Le OK, Le Hoai Phuong N. Dumbbell configuration of silicon adatom defects on silicene nanoribbons. *Scientific Reports*. 2021;11(1):14374.
- Zhang JL, Zhao S, Han C, Wang Z, Zhong S, Sun S, et al. Epitaxial Growth of Single Layer Blue Phosphorus: A New Phase of Two-Dimensional Phosphorus. *Nano Letters*. 2016;16(8):4903-8.

21. Levendorf MP, Kim CJ, Brown L, Huang PY, Havener RW, Muller DA, et al. Graphene and boron nitride lateral heterostructures for atomically thin circuitry. *Nature*. 2012;488(7413):627-32.
22. Fraser S. Structure of single-molecular-layer MoS<sub>2</sub>. *Physical Review B*. 1991;43(14):53-56.
23. Zhang S, Zhou J, Wang Q, Chen X, Kawazoe Y, Jena P. Penta-graphene: A new carbon allotrope. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*. 2015;112(8):2372-2377.
24. Santos RM dos, Sousa LE de, Galvão DS, Ribeiro LA. Tuning Penta-Graphene Electronic Properties Through Engineered Line Defects. *Scientific Reports*. 2020;10(1):1-8.
25. Quijano-Briones JJ, Fernández-Escamilla HN, Tlahuice-Flores A. Chiral penta-graphene nanotubes: Structure, bonding and electronic properties. *Computational and Theoretical Chemistry*. 2017;1108:70-5.
26. Liu H, Qin G, Lin Y, Hu M. Disparate strain dependent thermal conductivity of two-dimensional penta-structures. *Nano Letters*. 2016;16(6):3831-42.
27. Nguyễn NTBT, Lê HN, Trương QT, Nguyễn TA, Đặng MT. Quá Trình Chuyển Pha Phi Cân Bằng Của Vật Liệu Hai Chiều Penta-Graphene. *Hue University Journal of Science: Natural Science*. 2021;130(1C):139-47.
28. Li X, Zhang S, Wang FQ, Guo Y, Liu J, Wang Q. Tuning the electronic and mechanical properties of penta-graphene: Via hydrogenation and fluorination. *Physical Chemistry Chemical Physics*. 2016;18(21):14191-7.
29. Rahaman O, Mortazavi B, Dianat A, Cuniberti G, Rabczuk T. Metamorphosis in carbon network: From penta-graphene to biphenylene under uniaxial tension. *FlatChem*. 2017;1:65-73.
30. Erhart P, Albe K. Analytical potential for atomistic simulations of silicon, carbon, and silicon carbide. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*. 2005;71(3):1-14.
31. Winczewski S, Shaheen MY, Rybicki J. Interatomic potential suitable for the modeling of penta-graphene: Molecular statics/molecular dynamics studies. *Carbon*. 2018;126:165-75.
32. Liu N, Becton M, Zhang L, Tang K, Wang X. Mechanical anisotropy of two-dimensional metamaterials: A computational study. *Nanoscale Advances*. 2019;1(8):2891-900.
33. Plimpton S. Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics. *Journal of Computational Physics*. 1995;117(1):1-19.
34. Momma K, Izumi F. VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data. *Journal of Applied Crystallography*. 2011;44(6):1272-6.
35. Le Roux S, Petkov V. ISAACS-interactive structure analysis of amorphous and crystalline systems. *Journal of Applied Crystallography*. 2010;43(1):181-5.
36. Guttman L. Ring structure of the crystalline and amorphous forms of silicon dioxide. *Journal of Non-Crystalline Solids*. 1990;116(2-3):145-7.
37. Wang Y, Ding J, Fan Z, Tian L, Li M, Lu H, et al. Tension-compression asymmetry in amorphous silicon. *Nature Materials*. 2021;20(10):1371-7.
38. Mi TY, Dang MT, Tien NT. Adsorption of gas molecules on penta-graphene nanoribbon and its implication for nanoscale gas sensor. *Physics Open*. 2020;2:100014.
39. Nguyen VD, Dang MT, Weber B, Hu Z, Schall P. Visualizing the Structural Solid-Liquid Transition at Colloidal Crystal/Fluid Interfaces. *Adv Mater*. 2011 Jun;23(24):2716-20.
40. He H, Thorpe MF. Elastic Properties of Glasses. *Phys Rev Lett*. 1985 May;54(19):2107-10.
41. Benichou I, Faran E, Shilo D, Givli S. Application of a bi-stable chain model for the analysis of jerky twin boundary motion in NiMnGa. *Applied Physics Letters*. 2013;102(1):11912.
42. Wang J, Lu C, Wang Q, Xiao P, Ke F, Bai Y, et al. Influence of microstructures on mechanical behaviours of {SiC} nanowires: a molecular dynamics study. *Nanotechnology*. 2011;23(2):25703.
43. Benichou I, Givli S. Structures undergoing discrete phase transformation. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*. 2013;61(1):94-113.

44. Gerbig YB, Michaels CA, Bradby JE, Haberl B, Cook RF. In situ spectroscopic study of the plastic deformation of amorphous silicon under nonhydrostatic conditions induced by indentation. *Phys Rev B*. 2015;92(21):214110.
45. Demkowicz MJ, Argon AS. High-Density Liquidlike Component Facilitates Plastic Flow in a Model Amorphous Silicon System. *Phys Rev Lett*. 2004;93(2):25505.