NGHIÊN CỨU DFT VỀ TÍNH CHẤT CẤU TRÚC, ĐIỆN VÀ TỪ CỦA SILICON-CARBIDE KHI HẤP PHỤ NH_3

Ngô Thị Ngọc Dịu[(1)], Nguyễn Thanh Tùng[(1)], Mai Thị Hảo[(1)]
(1) Trường Đại học Thủ Dầu Một
Ngày nhận bài 10/3/2025; Chấp nhận đăng 30/5/2025
Liên hệ email: diuntn@tdmu.edu.vn

Tóm tắt

Nghiên cứu này tập trung khảo sát hành vi hấp phụ của các phân tử amoniac (NH_3) trên chất nền armchair silicon carbide nanoribbons (ASiCNRs) bằng phương pháp tính toán lý thuyết phiếm hàm mật độ (DFT). Các đặc tính cấu trúc, độ bền và tính chất điện tử của ASiCNRs trước và sau khi hấp phụ NH_3 đã được phân tích chi tiết. Kết quả cho thấy quá trình hấp phụ NH_3 làm thay đổi đáng kể cấu trúc vùng năng lượng và phân bố mật độ điện tích của SiCNRs, chứng tỏ có sự tương tác mạnh giữa phân tử NH_3 và bề mặt nanoribbon. Năng lượng hấp phụ tính toán chỉ ra rằng NH_3 có thể được hấp phụ ổn định tại các vị trí đặc trưng trên ASiCNRs, kéo theo những thay đổi rõ rệt về độ dẫn điện và tính chất từ của vật liệu. Đặc biệt, độ rộng vùng cấm tăng đáng kể từ 2.1eV (trạng thái nền) lên 3.35eV sau hấp phụ. Các kết quả này cho thấy tiềm năng đầy hứa hẹn của SiCNRs trong vai trò vật liệu nhạy cho cảm biến khí NH_3 ở kích thước nano, với triển vọng ứng dụng trong lĩnh vực giám sát môi trường và công nghệ cảm biến.

Từ khóa: *hàm mật độ, mật độ điện tích, năng lượng hấp phụ, phân tử, vùng năng lượng*

Abstract

A DFT STUDY ON THE STRUCTURAL AND ELECTRONIC MAGNETIC PROPERTIES OF SILICON CARBIDE UPON NH_3 ADSORPTION

This study focuses on investigating the adsorption behavior of ammonia (NH_3) molecules on silicon carbide nanoribbons (SiCNRs) using density functional theory (DFT) calculations. The structural properties, stability, and electronic characteristics of SiCNRs upon NH_3 adsorption were thoroughly examined. The results indicate that NH_3 adsorption significantly alters the electronic band structure and charge distribution of SiCNRs, demonstrating strong interactions between the NH_3 molecules and the nanoribbon surface. The calculated adsorption energies reveal that NH_3 can be stably adsorbed at specific sites on the SiCNRs, leading to notable changes in the electrical conductivity and magnetic properties of the material. Furthermore, the band gap substantially increases from 2.1eV (pristine substrate) to 3.35eV after adsorption. These findings highlight the promising potential of SiCNRs as sensitive materials for nanoscale NH_3 gas sensors, with applications in environmental monitoring and sensor technology.

1. Giới thiệu

Trong bối cảnh xu hướng nghiên cứu và phát triển các vật liệu mới nhằm chế tạo các thiết bị điện tử thế hệ tiếp theo vượt trội hơn so với các vật liệu hai chiều (2D) truyền thống như graphene, silicene, germanene và stanene, silicene carbide (SiC) đã nổi lên như một

ứng viên đầy triển vọng. Silicene carbide là một vật liệu hai chiều (Sakineh Chabi và cs., 2021; Susi và cs., 2017) được cấu tạo từ các nguyên tử silic và cacbon, thường được sắp xếp theo cấu trúc nanoribbon hoặc nanosheet. Mạng tinh thể của vật liệu này có cấu trúc gần giống graphene (Weijie Lu và cs., 2009), tuy nhiên các nguyên tử silic và cacbon được sắp xếp luân phiên nhau (Fitzer và cs., 1978; Yi Chen và cs., 2006). Một trong những đặc tính nổi bật của SiC là độ rộng vùng cấm lớn, thường nằm trong khoảng từ 2.3eV đến 3.3eV, cùng với độ bền hóa học và độ ổn định nhiệt cao, điều này giúp nó trở thành ứng viên phù hợp cho các ứng dụng trong lĩnh vực điện tử và quang điện tử (Romain Bange và cs., 2017; Saravanan Yuvaraja và cs., 2023; La Via và cs., 2023). Về mặt cấu trúc, SiC có nhiều điểm tương đồng với các vật liệu hai chiều khác như graphene (Nura Ibrahim và cs., 2022), silicene (Mohammed-Hamza Kourra và cs., 2022) và stanene (Naim Ferdous và cs., 2019), nhưng thay vì liên kết C–C hoặc liên kết nhóm IV khác, SiC sử dụng liên kết Si–C (Houyem Abderrazak và cs., 2011). Các dải băng silicene carbide (SiCNRs) thường được phân loại dựa trên kiểu cạnh của chúng, bao gồm kiểu zigzag (ZSiCNRs) (Mulatu và cs., 2021) và kiểu armchair (ASiCNRs) (Changiz Vatankhah và cs., 2021) và các kiểu cạnh này có ảnh hưởng đáng kể đến tính chất điện tử và từ tính của vật liệu (Bystrický và cs., 2023). Các dải băng SiCNRs thể hiện độ nhạy cảm cao với các tác nhân hấp phụ trên bề mặt (Brooks và cs., 1968) và do đó được coi là ứng viên tiềm năng cho các ứng dụng cảm biến hóa học và sinh học (Michael và cs., 1999; Oliveros và cs., 2013). Bên cạnh đó, khả năng hấp thụ ánh sáng mạnh giúp vật liệu này trở thành ứng viên đầy hứa hẹn cho các thiết bị quang điện tử như pin mặt trời và diode phát quang (Lei Ye và cs., 2023; Köhler và cs., 2021). Những nghiên cứu gần đây đã tập trung khảo sát hành vi hấp phụ của nhiều nguyên tử và phân tử khác nhau lên SiCNRs nhằm điều chỉnh tính chất bề mặt và đặc tính điện tử của chúng (Sajad Tamjidi và cs., 2021; Wessels và cs., 1997). Việc hấp phụ các nguyên tử như hydro, oxy hoặc các nhóm chức hữu cơ được chứng minh là có khả năng hiệu quả trong việc điều chỉnh độ rộng vùng cấm và tính chất quang của vật liệu nền SiC (Yahaya Saadu Itas và cs., 2023). Nhờ độ bền nhiệt và độ bền hóa học vượt trội, các SiCNRs cũng đã được đề xuất ứng dụng trong thiết bị điện tử công suất cao và thiết bị chịu nhiệt, bao gồm các bộ biến đổi điện năng và bộ khuếch đại (Alex Huang và cs., 2017; Weitzel và cs.,1996). Các nghiên cứu về khả năng chống ăn mòn cũng khẳng định độ ổn định của chúng trong điều kiện môi trường làm việc khắc nghiệt (Zixin Deng và cs., 2023). Nhằm cải thiện hiệu năng, nhiều nghiên cứu đã tiến hành pha tạp SiCNRs với graphene hoặc các vật liệu hai chiều khác, tạo ra các cấu trúc composite có độ dẫn điện và độ bền cơ học được nâng cao (Mohammed-Hamza và cs., 2022; Athith và cs., 2021). Bên cạnh đó, chiến lược pha tạp nguyên tố với các nguyên tố như boron, nitrogen (Kamiyama và cs., 2006) và phosphorus đã cho thấy khả năng mở rộng vùng cấm và dịch chuyển mức Fermi, từ đó điều chỉnh tính dẫn điện của SiCNRs (Aida và cs., 1997). Ngoài ra, việc pha tạp các nguyên tố kim loại chuyển tiếp cũng được khảo sát nhằm cảm ứng đặc tính từ, hỗ trợ ứng dụng của SiCNRs trong các thiết bị spintronics (Abdul Majid và cs., 2019). Đặc biệt, việc pha tạp các nguyên tố từ tính như sắt và cobalt đã giúp tạo ra hành vi từ tính trong hệ SiCNRs (Luo và cs., 2017). Các dải SiC đã được thử nghiệm rộng rãi trong vai trò cảm biến khí và sinh học nhờ độ nhạy cao và khả năng điều chỉnh độ dẫn khi tiếp xúc với các phân tử khí như CO, NO và NH_3 (Comini và cs., 2005; Min Luo và cs., 2023). Tuy nhiên, một trong những thách thức chính là tích hợp SiCNRs vào các cấu trúc thiết bị điện tử hiện hữu, đòi hỏi sự phát triển của các kỹ thuật chế tạo tiên tiến và kiểm soát chính xác các đặc tính cấu trúc ở cấp độ nano. Các nghiên cứu hiện tại tiếp tục tìm kiếm các phương pháp tối ưu để điều chỉnh tính chất SiC nhằm mở rộng phạm vi ứng dụng thực tiễn trong lĩnh vực điện tử và spintronics (Abdul Majid và cs., 2020).

Các nghiên cứu gần đây cũng tập trung vào việc điều chỉnh đặc tính điện tử của SiC thông qua hấp phụ các tác nhân như hydro, fluorine và các kim loại chuyển tiếp, nhằm hiệu chỉnh độ rộng vùng cấm và tính dẫn điện của vật liệu (Abdul Majid và cs., 2019). Mặc dù SiC có độ bền hóa học và nhiệt độ cao, nhưng việc duy trì các tính chất đặc trưng của nó trong điều kiện môi trường làm việc thực tế đặc biệt là dưới áp lực nhiệt và trong môi trường hóa học phản ứng vẫn là một vấn đề cần tiếp tục nghiên cứu. Việc thiết kế và đánh giá các thiết bị nguyên mẫu chế tạo từ dải SiC cũng là những bước quan trọng hướng tới ứng dụng thực tiễn của vật liệu này. Đáng chú ý, các biến dạng cơ học như kéo giãn hoặc nén đã được báo cáo là có ảnh hưởng đến độ rộng vùng cấm và đặc tính điện tử của SiC, mở ra triển vọng ứng dụng trong thiết bị điện tử linh hoạt (Mario Gonzalez và cs., 2023). Hơn nữa, các thiết bị nguyên mẫu như transistor hiệu ứng trường (FET) dựa trên SiC cũng đã chứng minh được tiềm năng đáng kể của vật liệu này cho các công nghệ điện tử tương lai (Kalker và cs., 2021).

2. Phương pháp tính toán

Các tính toán từ nguyên lý đầu tiên dựa trên lý thuyết hàm mật độ (Density Functional Theory - DFT) được thực hiện bằng phần mềm Vienna Ab initio Simulation Package (VASP). Tương tác trao đổi – tương quan điện tử được xử lý trong khung xấp xỉ gradient tổng quát (Generalized Gradient Approximation - GGA), sử dụng hàm PBE của Perdew–Burke–Ernzerhof. Phương pháp sóng phẳng tăng cường chiếu (Projector Augmented - Wave - PAW) được áp dụng để mô tả chính xác tương tác giữa electron và ion. Bộ cơ sở sóng phẳng với năng lượng cắt 400eV được sử dụng cho tất cả các phép tính nhằm đảm bảo độ hội tụ tin cậy.

Vùng Brillouin được lấy mẫu bằng lưới điểm k theo sơ đồ Monkhorst–Pack với kích thước 12×1×1 cho các tính toán cấu trúc điện tử và 100×1×1 cho tối ưu hóa cấu trúc hình học. Toàn bộ hình học của hệ vật liệu được thư giãn hoàn toàn cho đến khi lực dư trên mỗi nguyên tử nhỏ hơn 0,01eV/Å và ngưỡng hội tụ năng lượng toàn phần giữa các bước ion kế tiếp được thiết lập ở mức 5×10^{-5}eV.

Năng lượng hấp phụ của nguyên tử hoặc phân tử trên bề mặt nanoribbon silicene carbide loại armchair (ASiCNRs) được tính toán theo công thức (1) sau:

$$\Delta E = E_S - E_M - E_P \qquad (1)$$

Trong đó, E_S là năng lượng hình thành của toàn hệ thống sau khi hấp phụ, E_M là năng lượng của phân tử được hấp phụ trên bề mặt, và E_P là năng lượng của đế nền ban đầu.

3. Kết quả và thảo luận

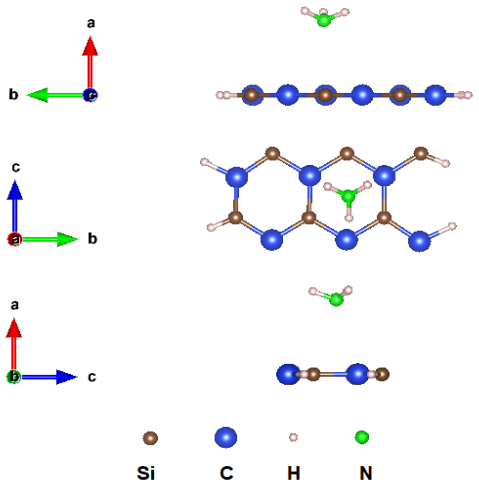
3.1 Tính chất cấu trúc

Trong nghiên cứu này, cấu trúc nguyên tử tối ưu của nanoribbon silicene carbide (ASiCNR) với các cạnh được bão hòa bằng nguyên tử hydro và phân tử ammonia (NH_3) hấp phụ đã được xác định thông qua tối ưu hình học sử dụng lý thuyết phiếm hàm mật độ (DFT) với phần mềm Vienna Ab initio Simulation Package (VASP). Cấu hình cuối cùng sau tối ưu được trình bày trong hình 1. Cấu trúc ASiCNR gồm các nguyên tử silic (Si) và carbon (C) xen kẽ nhau, sắp xếp theo mạng lục giác hai chiều với dạng cạnh armchair. Các liên kết treo (dangling bonds) tại rìa của nanoribbon được bão hòa bằng các nguyên tử hydro (H) nhằm ổn định cấu trúc và loại bỏ các trạng thái bề mặt gần mức Fermi.

Phân tử NH_3, bao gồm một nguyên tử nitơ (N) và ba nguyên tử hydro (H), được đặt ban đầu phía trên bề mặt nanoribbon ở khoảng cách phù hợp với tương tác hấp phụ vật lý (physisorption), sau đó được thư giãn về vị trí cân bằng thông qua quá trình tối thiểu hóa năng lượng toàn phần. Vị trí hấp phụ được lựa chọn gần vùng trung tâm của bề mặt nanoribbon nhằm khảo sát xu hướng hấp phụ ưu tiên của phân tử này.

Các hình chiếu cạnh và hình chiếu từ trên xuống của cấu trúc sau khi tối ưu cho thấy phân tử NH_3 có xu hướng định hướng với nguyên tử nitơ hướng về phía bề mặt nanoribbon, thuận lợi cho việc hình thành tương tác yếu với các nguyên tử Si hoặc C lân cận. Cấu trúc tối ưu giữ được hình học gần như phẳng của lớp ASiCNR, chỉ ghi nhận sự biến dạng nhẹ tại khu vực lân cận vị trí hấp phụ.

Trong mô hình minh họa, các nguyên tử được ký hiệu bằng các hình cầu với màu sắc khác nhau: nguyên tử silic có màu nâu, nguyên tử carbon màu xanh dương, nguyên tử hydro màu trắng và nguyên tử nitơ màu xanh lá. Các hướng mạng tinh thể và điều kiện biên tuần hoàn được ký hiệu bởi các trục *a*, *b*, và *c* nhằm giúp làm rõ định hướng cấu trúc. Cấu hình này sau đó được sử dụng cho các phép tính năng lượng toàn phần, mật độ trạng thái điện tử (DOS) và giải phổ dải điện tử nhằm đánh giá ảnh hưởng của việc hấp phụ NH_3 lên tính chất điện tử và từ tính của ASiCNR.



Hình 1. *Mô hình cấu trúc ASiCNRs sau khi hấp phụ NH_3.*

3.2 Tính chất điện từ

Theo các kết quả tính toán được trình bày trong bảng 1, silicene carbide nanoribbon (SiCNR) ở trạng thái tinh khiết sở hữu một vùng cấm trực tiếp có giá trị 2,1eV, thể hiện tính chất bán dẫn rõ rệt. Bên cạnh đó, hệ vật liệu này xuất hiện mômen từ yếu khoảng 1,78μ_B, chủ yếu bắt nguồn từ sự bất đối xứng nhẹ trong phân bố mật độ spin tại các cạnh của nanoribbon. Các tham số cấu trúc tối ưu hóa cho thấy độ dài liên kết Si–C là 1,84Å, góc liên kết Si–C–Si đạt 121,51° và độ vênh bằng 0Å, xác nhận tính ổn định của cấu trúc phẳng trước khi xảy ra quá trình hấp phụ.

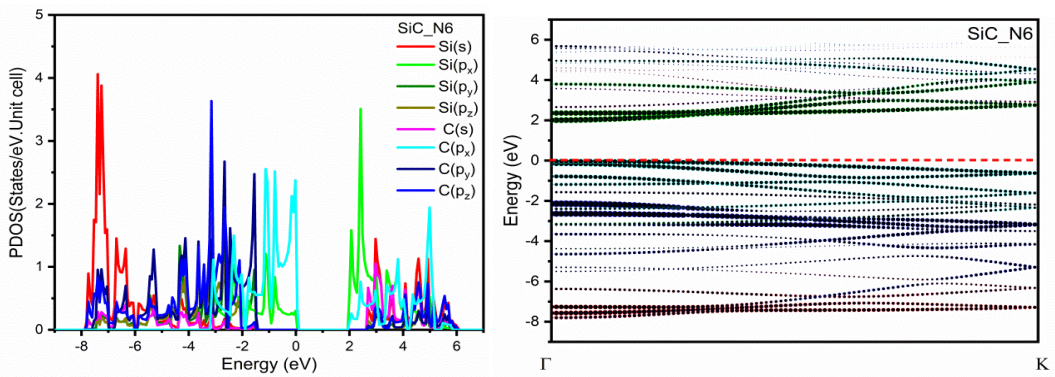
Khi phân tử NH_3 được hấp phụ lên bề mặt SiCNR, các tính chất điện tử của hệ có sự thay đổi đáng kể. Đặc biệt, vùng cấm tăng mạnh từ 2,1eV lên 3,35eV, phản ánh sự phân bố lại mật độ điện tử do tương tác giữa phân tử hấp phụ và nền vật liệu. Sự thay đổi này chủ yếu được giải thích bởi cơ chế chuyển giao điện tích xảy ra trong quá trình hấp phụ, dẫn đến sự tái phân bố mật độ điện tử cục bộ và làm giảm nồng độ hạt tải tự do gần mức Fermi. Hệ quả là, sự gia tăng của vùng cấm cho thấy năng lượng kích thích cần thiết để electron chuyển từ vùng hóa trị lên vùng dẫn tăng lên sau hấp phụ.

Hiện tượng này nhấn mạnh mối liên hệ chặt chẽ giữa cấu trúc điện tử và quá trình hấp phụ phân tử, đồng thời chỉ ra tiềm năng ứng dụng của SiCNR trong các thiết bị cảm biến khí nhạy cao. Việc mật độ điện tử giảm đáng kể, kết hợp với sự dịch chuyển rõ rệt của mức Fermi về phía vùng hóa trị, giúp hiệu chỉnh hiệu quả các tính chất điện tử của hệ vật liệu. Tính chất có thể điều chỉnh khi hấp phụ khí như vậy cũng phù hợp với các nghiên cứu trước đây về vật liệu nano hai chiều và củng cố thêm tính khả thi của việc ứng dụng SiCNR trong các thiết bị cảm biến thế hệ mới.

Bảng 1. *Kết quả tính toán DFT quá trình hấp phụ NH_3 trên ASiCNRs.*

ΔE (eV)	Eg (eV)	Mag (μ_B)	Si-C (Å)	δ (Å)	Deg (º)	States
x	2.1	1.78	1.84	0	121.51	H
-4.5	3.35	20	1.82	0	121.32	H

Hình 2 minh họa mật độ trạng thái riêng phần (PDOS) và cấu trúc vùng năng lượng của các nguyên tử Si và C trong hệ SiC_N_6**,** được phân tách theo các obitan **s**, p_x, p_y và p_z. Kết quả cho thấy, các obitan **s** của cả Si và C chủ yếu đóng góp vào vùng hóa trị sâu, trong khoảng từ –8eV đến –6eV, với các đỉnh rõ rệt trong khoảng năng lượng này, phản ánh vai trò của các trạng thái liên kết σ bền vững. Đáng chú ý, các obitan **C(s)** thể hiện một đỉnh nổi bật trong khoảng từ –8eV đến –7eV, trong khi các obitan Si(s) có biên độ thấp hơn và phân bố phân tán hơn. Đối với các obitan p, kết quả cho thấy sự đóng góp khác biệt giữa các thành phần. Các obitan C(p_z) chiếm ưu thế trong vùng hóa trị, thể hiện các đỉnh rõ rệt và phân bố rộng từ –4eV đến mức Fermi (0eV). Điều này phản ánh bản chất đặc trưng của các trạng thái π và π*, vốn phổ biến trong các vật liệu hai chiều và các dải nanoribbon. Ngoài ra, các obitan C(p_x) cũng xuất hiện các đỉnh mạnh trong khoảng từ –4eV đến –2eV, đóng góp vào các trạng thái liên kết σ và π gần mức Fermi. Ngược lại, các obitan C(p_y) có mật độ trạng thái thấp hơn, chủ yếu phân bố trong khoảng từ –6eV đến –2eV. Các obitan p của Si, đặc biệt là Si(p_x) và Si(p_z), thể hiện sự phân bố đáng kể trong khoảng năng lượng từ –4eV đến 0eV và một phần trong vùng dẫn, với các đỉnh tập trung từ –2eV đến 0eV. Sự phân bố này cho thấy khả năng lai hóa giữa các trạng thái Si(p) và các trạng thái C(p), đóng vai trò quan trọng trong việc hình thành các trạng thái gần mức Fermi. Đáng chú ý, các obitan Si(p_x) còn xuất hiện các đỉnh nhỏ trong vùng dẫn (từ 2eV đến 4eV), cho thấy sự tham gia của chúng vào các trạng thái dẫn điện của hệ. Tóm lại, phân tích PDOS cho thấy các obitan C(p_z) chiếm ưu thế trong vùng hóa trị, trong khi các obitan Si(p) chủ yếu đóng góp vào các trạng thái gần mức Fermi và một phần trong vùng dẫn. Các obitan **s** của cả Si và C hầu như chỉ xuất hiện trong vùng hóa trị sâu và ảnh hưởng không đáng kể đến tính chất điện tử gần mức Fermi. Những kết quả này phản ánh đặc điểm liên kết và sự phân bố trạng thái điện tử đặc trưng của hệ SiC_N_6 sau quá trình hấp phụ.

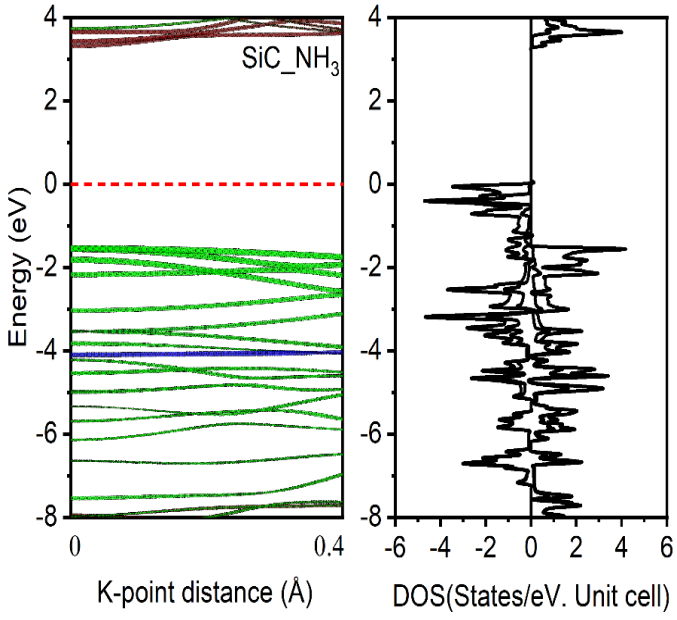


Hình 2. *Mật độ trạng thái riêng phần (PDOS) và cấu trúc vùng năng lượng của ASiCNRs*

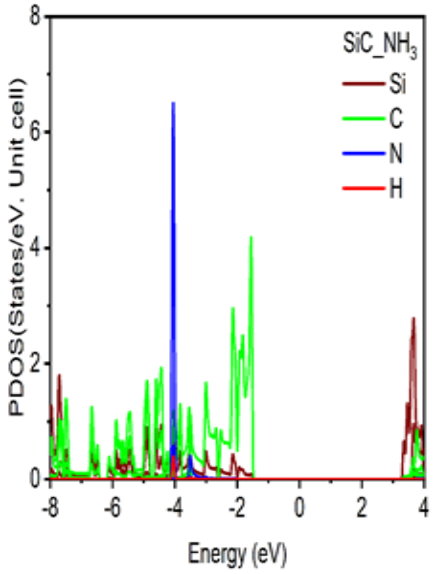
Phân tích mật độ trạng thái toàn phần và riêng phần (PDOS) của hệ SiC_NH_3 cho thấy sự phân bố các trạng thái điện tử chủ yếu nằm trong khoảng năng lượng từ –8eV đến 4eV. Kết quả phân tích PDOS chỉ ra rằng các nguyên tử carbon đóng vai trò chủ đạo trong việc hình thành vùng hóa trị, với mật độ trạng thái cao từ –7eV đến mức Fermi. Đặc biệt, các trạng thái của nguyên tử C tập trung mạnh trong khoảng từ –5eV đến –2eV, phản ánh sự đóng góp đáng kể của các obitan C(2p) vào quá trình hình thành vùng hóa trị. Ngược lại, các nguyên tử silicon chủ yếu đóng góp vào vùng dẫn, với mật độ trạng thái tăng dần về phía mức Fermi từ phía năng lượng dương. Đặc điểm này thể hiện sự phân tách năng lượng rõ rệt giữa các obitan Si(3p) và C(2p) trong khung cấu trúc của ASiCNR. Sau khi hấp phụ phân tử NH_3, các đỉnh nhỏ của PDOS nguyên tử Si xuất hiện trong vùng hóa trị, từ –5eV đến –2eV, cho thấy sự tương tác yếu giữa các nguyên tử Si và phân tử NH_3 hấp phụ, có thể thông qua tương tác tĩnh điện hoặc liên kết yếu.

Đáng chú ý, nguyên tử nitơ trong phân tử NH_3 xuất hiện một đỉnh nhọn và khu trú rõ tại khoảng –4eV trên biểu đồ PDOS, tương ứng với các obitan N(2p). Đỉnh này có sự chồng lắp nhẹ với các obitan C(2p) trong vùng hóa trị, gợi ý sự lai hóa yếu giữa phân tử NH_3 hấp phụ và bề mặt ASiCNR, đồng thời hình thành các trạng thái khu trú trong vùng hóa trị mà không ảnh hưởng đáng kể đến vùng dẫn.

Ngoài ra, các nguyên tử hydro trong phân tử NH_3 hầu như không đóng góp vào mật độ trạng thái toàn phần, ngoại trừ một số đỉnh nhỏ nằm dưới –6eV, phù hợp với vai trò của hydro trong việc bù trừ điện tích và tham gia vào các liên kết σ. Trong cấu trúc vùng năng lượng, các dải điện tử nằm xung quanh –4eV tương ứng với các đỉnh sắc nét từ PDOS của N và C, đại diện cho sự hình thành các trạng thái khu trú gây ra bởi quá trình hấp phụ NH_3. Các dải này tương đối phẳng, biểu thị tính phân tán yếu đặc trưng của các trạng thái khu trú hoặc lai hóa yếu. Độ rộng vùng cấm của hệ vẫn được duy trì sau khi hấp phụ, không xuất hiện hiện tượng cắt ngang mức Fermi, khẳng định rằng hấp phụ NH_3 không gây ra hiện tượng kim loại hóa hệ vật liệu mà chủ yếu tạo ra các trạng thái khu trú trong vùng hóa trị.



***Hình 3**. Cấu trúc BAND, DOS hấp phụ NH3 trên ASiCNRs*



***Hình 4.** Mật độ trạng thái riêng phần (PDOS) của hệ SiC_NH_3*

Như vậy, các obitan điện tử của nguyên tử nitơ trong phân tử NH_3 hấp phụ chủ yếu tập trung quanh mức –4eV, tương tác với các obitan C(2p) ở rìa dải và gần như không ảnh hưởng đến các obitan Si(3p). Phân tích này góp phần làm sáng tỏ cơ chế hấp phụ của NH_3 trên ASiCNRs, thông qua tương tác giữa các obitan N(2p) và C(2p) tại các vị trí rìa, nhấn mạnh vai trò quan trọng của các nguyên tử carbon rìa trong việc thúc đẩy quá trình hấp phụ NH_3 cũng như tiềm năng ứng dụng của ASiCNRs trong các công nghệ cảm biến dựa trên vật liệu nano hai chiều.

Hình 4 trình bày mật độ trạng thái riêng phần (PDOS) của hệ SiC_NH_3 sau khi tối ưu hóa hình học toàn bộ, thể hiện sự phân bố các trạng thái điện tử đóng góp bởi các nguyên tử Si, C, N và H theo hàm năng lượng. Kết quả cho thấy các trạng thái điện tử chủ yếu tập trung trong khoảng năng lượng từ khoảng –8 V đến 4eV so với mức Fermi (EF = 0eV). Đáng chú ý, các nguyên tử carbon (đường cong màu xanh lá) chiếm ưu thế với mật độ trạng thái cao trong vùng từ –6eV đến –2eV, đồng thời xuất hiện các dao động mạnh gần mức Fermi, cho thấy vai trò đặc biệt quan trọng của nguyên tử C trong việc chi phối tính chất điện tử của hệ.

Trong khi đó, các nguyên tử silicon (đường cong màu nâu) chủ yếu đóng góp vào các trạng thái điện tử dưới –2eV và xung quanh mức Fermi, tuy nhiên cường độ thấp hơn so với các nguyên tử carbon. Đặc biệt, phân tử NH_3 hấp phụ tạo ra một đỉnh PDOS nhọn tại khoảng –4eV, chủ yếu do nguyên tử nitơ (đường cong màu xanh lam) đóng góp, phản ánh sự tương tác điện tử mạnh giữa nguyên tử N và bề mặt nanoribbon SiC tại mức năng lượng này. Các nguyên tử hydro (đường cong màu đỏ) hầu như không ảnh hưởng đáng kể đến mật độ trạng thái điện tử toàn phần, với một vài đỉnh nhỏ xuất hiện ở vùng năng lượng thấp dưới –4eV và quanh mức Fermi.

Sự xuất hiện của các trạng thái khu trú liên quan đến nguyên tử nitơ tại –4eV cùng với sự dịch chuyển nhẹ của mức Fermi sau khi hấp phụ NH_3 cho thấy phân tử này đã tác động đến tính chất điện tử của hệ, đặc biệt trong vùng hóa trị. Những kết quả này hoàn toàn phù hợp với tính toán năng lượng hấp phụ và cấu trúc hình học tối ưu, khẳng định rằng quá trình hấp phụ NH_3 không làm phá vỡ bản chất bán dẫn của vật liệu mà chủ yếu tạo ra các trạng thái khu trú trong vùng hóa trị. Hành vi này làm nổi bật tiềm năng của hệ nanoribbon SiC trong các ứng dụng cảm biến khí và điều chỉnh tính chất điện tử thông qua kỹ thuật hấp phụ bề mặt.

4. Kết luận

Trong nghiên cứu này, hành vi hấp phụ của phân tử NH_3 trên nanoribbon silicene carbide (SiCNRs) đã được khảo sát một cách hệ thống bằng phương pháp tính toán nguyên lý thứ nhất. Kết quả cho thấy sự hấp phụ NH_3 ảnh hưởng rõ rệt đến tính chất điện tử của hệ SiCNRs nguyên sơ. Đặc biệt, độ rộng vùng cấm của hệ tăng từ 2,1eV lên 3,35eV sau quá trình hấp phụ, phản ánh sự tương tác mạnh giữa phân tử NH_3 và bề mặt SiCNRs. Sự gia tăng này chủ yếu bắt nguồn từ sự tái phân bố mật độ điện tử và giảm đáng kể mật độ hạt tải tự do gần mức Fermi.

Ngoài ra, quá trình hấp phụ cũng gây ảnh hưởng nhẹ đến tính chất từ và cấu trúc hình học của hệ, cho thấy tương tác giữa NH_3 và bề mặt vật liệu không đơn thuần là hấp phụ vật lý mà còn tồn tại sự tương tác điện tử đáng kể. Các kết quả này chứng minh rằng SiCNRs có độ nhạy cao đối với phân tử NH_3 và là ứng viên triển vọng cho các ứng dụng cảm biến khí quy mô nano. Khả năng điều chỉnh linh hoạt tính chất điện tử thông qua cơ chế hấp phụ phân tử làm nổi bật tiềm năng của SiCNRs trong phát triển các thiết bị cảm biến thế hệ mới.

Lời cảm ơn

Nhóm tác giả xin trân trọng cảm ơn sự hỗ trợ của hệ thống tính toán hiệu năng cao (HPCC) thuộc Trường Đại học Thủ Dầu Một trong quá trình thực hiện nghiên cứu này.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] A.T. Mulatu, et al. (2021). Structural and electronic properties of zigzag single wall (8,0), (9,0), and (10,0) silicon carbide nanotubes. *Materialia*, 20, 101257.

[2] Abdul Majid et al. (2019). A review on transition metal doped silicon carbide. *Ceramics International*, *45*(7A), 8069-8080.

[3] Abdul Majid et al. (2020). First principles study of structural, electronic and magnetic properties of transition metals doped SiC monolayers for applications in spintronics. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 503, 166648

[4] Abdul Majid et al. (2019). A review on transition metal doped silicon carbide. *Ceramics International*, *45*(7A),8069-8080.

[5] Alex Q. Huang et al. (2017). Review of Silicon Carbide Power Devices and Their Applications. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 99, 1-1.

[6] B.W. Wessels et al. (1997). Electronic properties of epitaxial 6H silicon carbide. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, *38*(4), 345-350.

[7] C. E. Weitzel et al. (1996). Silicon carbide high-power devices. *IEEE Transactions on Electron Devices*, *43*(10), 1732-1741.

[8] C.S Brooks et al. (1968). The wetting of silicon carbide surfaces. *Journal of Colloid and Interface Science*, *27*(4), 772-788.

[9] Changiz Vatankhah et al. (2021). Electronic and optical properties of armchair silicon carbide nanotubes from first principles. *Optik*, 237, 166740.

[10] D. Athith et al. (2021). Mechanical characterization of silicon carbide filled hybrid composites. *Materialstoday Proceeding*, *46*(18), 9107-9110.

[11] E. Comini et al. (2023). Tin oxide nanobelts electrical and sensing properties. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 111-112, 2-6.

[12] E. Fitzer et al. (1978). From silicon to carbon. *Carbon*, *16*(1), 3-16.

[13] Houyem Abderrazak et al. (2011). Silicon Carbide: Synthesis and Properties. *Properties and Applications of Silicon Carbide*, 361-387.

[14] Köhler M et al. (2021). A silicon carbide-based highly transparent passivating contact for crystalline silicon solar cells approaching efficiencies of 24%. *Nat Energy*, 6, 529-537.

[15] La Via et al. (2023). Emerging SiC Applications beyond Power Electronic Devices. *Micromachines*, 14, 1200.

[16] Lei Ye et al. (2023). Opto-electrical properties of amorphous silicon carbide thin films adjustably prepared by magnetron sputtering at room temperature. *Applied Surface Science*, 631, 157526.

[17] M. Luo et al. (2017). Tunable magnetism in 2D silicon carbide doped with Co and Fe dopants: Ab initio study. *Optik*, 130, 589-593.

[18] M.S. Aida et al. (1997). Electrical and optical properties of phosphorus-doped a-SiC:H thin films. *Materials Chemistry and Physics*, *47*(1), 97-100.

[19] Mario Gonzalez et al. (2023). Exploring the electronic and mechanical properties of lithium-decorated silicon carbide nanowires for energy storage. *Journal of Energy Storage*, 62, 106840.

[20] Michael A. George et al. (1999). Elevated Temperature Silicon Carbide Chemical Sensors. *Materials Research Society*, 572, 123, 1999

[21] Min Luo et al. (2023). Adsorption of NH3 on Monolayer SiC Doped with Noble Metals: A First-Principles Study. *Integrated Ferroelectrics An International Journal*, 231, 89-97.

[22] Mohammed-Hamza Kourra et al. (2022). Graphene-silicene (SiC) hybrid, a future material for electronic and mechanical devices. *Materialstoday proceeding*, *53*(3), 392-394.

[23] Naim Ferdous et al. (2019). Tunable electronic properties in stanene and two dimensional silicon-carbide heterobilayer: A first principles investigation. *AIP Advances*, 9, 025120.

[24] Nura Ibrahim et al. (2022). Graphene-like silicon carbide layer for potential safe anode lithium ion battery: A first principle study. *Science Talks*, 4, 100075.

[25] Oliveros A et al. (2013). Silicon carbide: a versatile material for biosensor applications . *Biomed Microdevices*, 15, 353-368.

[26] R. Bystrický, et al. (2023). Electrical and magnetic properties of silicon carbide composites with titanium and niobium carbide as sintering aids. *Ceramics International*, *49*(3), 5319-5326.

[27] Romain Bange et al. (2017). Chemical Stability of Si-SiC Nanostructures under Physiological Conditions. *Materials Science Forum*, 897, 638-641.

[28] S. Kalker, et al. (2021). Next Generation Monitoring of SiC mosfets Via Spectral Electroluminescence Sensing, in *IEEE Transactions on Industry Applications*, *57*(3), 2746-2757.

[29] S. Kamiyama et al. (2006). Extremely high quantum efficiency of donor-acceptor-pair emission in N-and-B-doped 6H-SiC. *Journal of Applied Physics*, *99*(9), 093108-0931084.

[30] Sajad Tamjidi , et al. (2021). Improving the surface properties of adsorbents by surfactants and their role in the removal of toxic metals from wastewater: A review study. *Process Safety and Environmental Protection*, 148, 775-795,

[31] Sakineh Chabi et al. (2021). The Creation of True Two-Dimensional Silicon Carbide. *Nanomaterials (Basel)*, 11, 1799.

[32] Saravanan Yuvaraja et al. (2023). Wide bandgap semiconductor-based integrated circuits. *Chip*, *2*(4), 100072.

[33] Susi, T.; Skákalová, et al. (2017). Computational insights and the observation of SiC nanograin assembly: Towards 2D silicon carbide. *Sci. Rep*, 7, 1-9,

[34] Weijie Lu, et al. (2009). Growth of Graphene-Like Structures on an Oxidized SiC Surface. *Journal of Electronic Materials*, *38*(6), 731-736.

[35] Yahaya Saadu Itas et al. (2023). Effects of oxygen absorption on the electronic and optical properties of armchair and zigzag Silicon Carbide Nanotubes (SiCNTs). *Physica Scripta*, *98*(1).

[36] Yi Chen, et al. (2006). Thermodynamic Studies of Carbon in Liquid Silicon Using the Central Atoms Model. *American Ceramic Society*, 89, 9, 2006, 2922-2925.

[37] Zixin Deng, et al. (2023). Study on the corrosion resistance of SiC particle-reinforced hydroxyapatite-silver gradient bioactive ceramic coatings prepared by laser cladding. *Surface and Coatings Technology*, 467, 129734.