

## PERANAN FASE AMORF $\text{Si}_3\text{N}_4$ PADA NANOKOMPOSIT $\text{nc-TiN/a-Si}_3\text{N}_4$ DALAM MENINGKATKAN KEKERASAN DAN STABILITAS TERMAL

Keba Moto

Jurusan Fisika FMIPA Universitas Indonesia, Depok, 16424 Jawa Barat

E-mail:kebamoto@fisika.ui.ac.id

---

### Abstrak

Peranan fase amorf  $\text{Si}_3\text{N}_4$  dalam nanokomposit  $\text{nc-TiN/a-Si}_3\text{N}_4$  akan ditunjukkan serta dibandingkan dengan polikristal  $\text{ZrN/Ni}$  yang tidak memiliki fase amorf (non-komposit). Kehadiran fase amorf  $\text{Si}_3\text{N}_4$  ini selain meningkatkan kekerasan, juga meningkatkan ketangguhan nanokomposit selama indentasi. Juga diamati lapisan tipis nanokomposit  $\text{nc-TiN/a-Si}_3\text{N}_4$  memiliki kestabilan termal yang lebih tinggi dibandingkan dengan polikristal  $\text{ZrN/Ni}$ .

### Abstract

The role of  $\text{Si}_3\text{N}_4$  amorphous phase in  $\text{nc-TiN/a-Si}_3\text{N}_4$  nanocomposites will be shown and compared with polycrystalline  $\text{ZrN/Ni}$  which has no such amorphous phase (non-composites). The presence of amorphous phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$  increases the hardness of film as well as the toughness of the bulk nanocomposites under indentation load. It has been observed that  $\text{nc-TiN/a-Si}_3\text{N}_4$  nanocomposites films has higher thermal stability than  $\text{ZrN/Ni}$  polycrystalline films.

*Keywords: Nanokomposit, ZrN/Ni, fase amorf  $\text{Si}_3\text{N}_4$*

---

### Pendahuluan

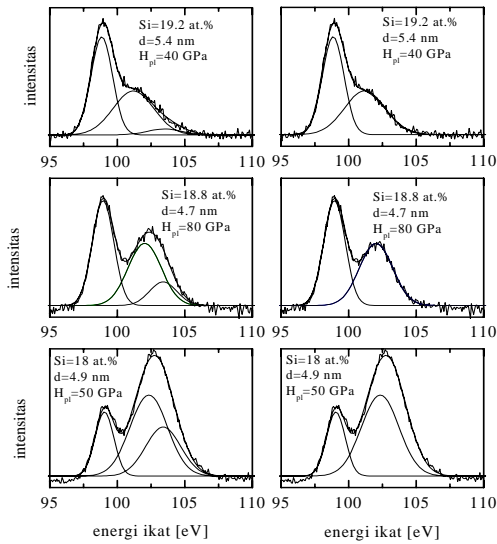
Kekerasan polikristal telah banyak diteliti terutama oleh Hall[1] dan Petch [2] yang dikenal dengan relasi Hall-Petch. Sudah lama diyakini bahwa kekerasan (juga *strength*) berbanding terbalik dengan akar ukuran butir kristal dari polikristal. Setelah Schiotz et al. [3] dan Yip [4] mempublikasikan hasil simulasi komputer mereka yang menunjukkan bahwa pada ukuran butir di bawah 100 nm terjadi relasi yang kebalikan dari relasi Hall-Petch dan dikenal dengan kebalikan relasi Hall-Petch. Hal ini disebabkan karena adanya peristiwa *grain boundary sliding* antara permukaan butir sehingga kekerasan menjadi menurun. Untuk menyiasati keadaan ini, Veprek et al [5-7] membuat disain baru nanokomposit yaitu menambahkan fase amorf di antara kristal-kristal polikristal sehingga terjadinya *grain boundary sliding* dapat dicegah dan kekerasan dapat meningkat terus dan bahkan mencapai kekerasan intan [8] meskipun ukuran butir hanya beberapa nanometer (11 nm). Dalam paper ini akan ditunjukkan peran fase

amorf dalam nanokomposit dalam meningkatkan kekerasan serta kestabilan termal yang diamati dari tidak berubahnya konstanta kisi kristal TiN meskipun dianil sampai 800°C. Hasil ini akan dibandingkan pula dengan sifat yang sesuai pada polikristal  $\text{ZrN/Ni}$  yaitu polikristal  $\text{ZrN}$  yang berbentuk paduan dengan menambahkan Ni di dalam kristalnya.

### Eksperimental

Lapisan tipis  $\text{nc-TiN/a-Si}_3\text{N}_4$  dibuat dengan teknik plasma CVD dengan parameter deposisi, laju aliran gas dan jalannya percobaan dapat diacu pada publikasi terdahulu [9-10].

Penentuan jenis serta komposisi fase dilakukan dengan bantuan XRD (fase kristalin) dan XPS (fase total). Komposisi fase yang berbentuk amorf dapat diekstraksi dari kedua metode di atas.

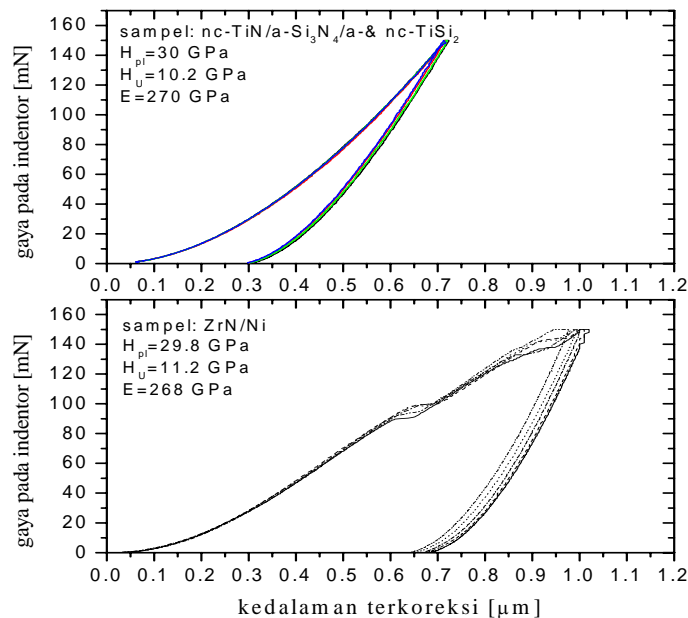


**Gbr. 1: Spektrum XPS 3 sampel dengan kandungan  $\text{Si}_3\text{N}_4$  yang berbeda, tetapi memiliki kandungan Si dan ukuran butir kristal TiN yang sama. Jika jumlah fase amorf terlalu sedikit, kekerasan rendah yaitu 40 GPa (atas), segera setelah jumlah fase amorf ini mencukupi untuk menutupi semua butiran kristal maka kekerasan mencapai 80 GPa (tengah) dan jika jumlah fase amorf kebanyakan, kekerasan menjadi turun kembali sekitar 50 GPa (bawah). Gambar bawah menggambarkan fase  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ,  $\text{TiS}_2$  dan kemungkinan adanya fase  $\text{SiO}_2$  sebagai hasil dekonvolusi, sedangkan gambar kanan  $\text{SiO}_2$  dihilangkan.**

## Hasil dan Diskusi

Gambar 1 menyatakan adanya fase amorf  $\text{Si}_3\text{N}_4$  dalam nanokomposit sangat menentukan kekerasan suatu material yang dicapai. Selain itu, terdapat suatu tebal optimal fase amorf (1 mono-atom) yang memberikan kekerasan tinggi. Dengan demikian dalam pembuatan nanokomposit ini, upaya untuk mengontrol tebal fase amorf jauh lebih penting dari pada sekedar mengontrol komposisi unsur dalam nanokomposit tersebut. Kesulitan mengontrol tebal fase amorf inilah yang menyebabkan tingkat reproduksibilitas menjadi sangat rendah [10]. Peran fase amorf ini adalah untuk mencegah terjadinya *grain boundary sliding* sehingga tidak terjadi penurunan kekerasan pada ukuran butir kristal di bawah 10 nm. [10] di samping keuntungan-keuntungan lainnya.

Jika fase amorf terlalu sedikit (Gbr. 1 atas) maka ruangan-ruangan di antara butir kristal TiN belum tertutup semuanya sehingga *grain boundary sliding* tidak dapat dicegah seluruhnya. Walaupun demikian, kekerasan material ini sudah melampaui kekerasan TiN polikristal yang hanya sekitar 20-22 GPa. Setelah fase amorf ini cukup untuk membungkus seluruh permukaan butir kristal TiN maka kekerasan menjadi sangat tinggi karena *grain boundary sliding* dapat dicegah dengan sempurna (Gbr. 1 tengah). Apabila fase amorf ini terlalu banyak maka terjadi ketidakompakan dalam fase amorf sendiri sehingga kekerasan menjadi berkurang kembali (Gbr. 1 bawah).

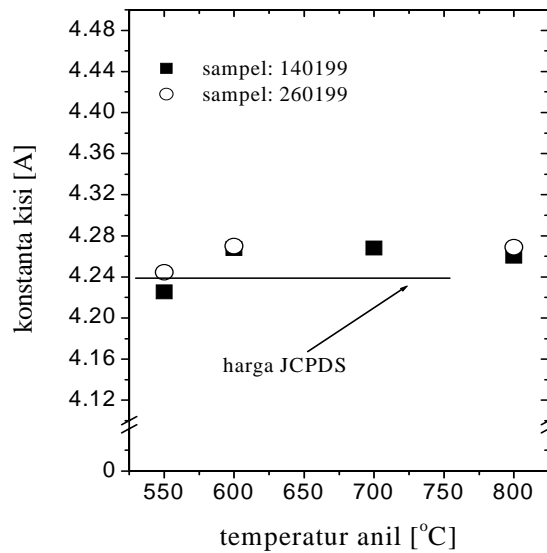


**Gbr. 2: Kurva indentasi antara nanokomposit nc-TiN/a-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> dengan polikristal ZrN/Ni pada gaya yang sama.**

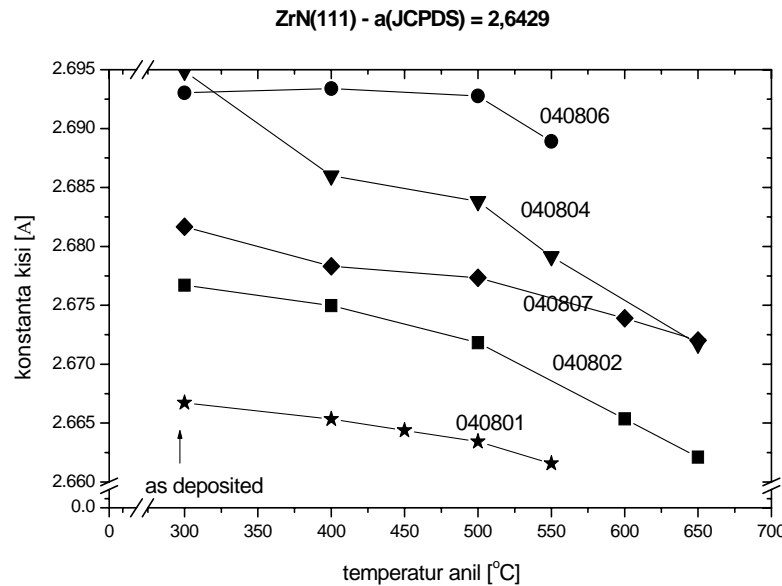


Gambar 2 menunjukkan dua kurva indentasi dari indentometer Fisherscop 100 [10] pada nanokomposit nc-TiN/a-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> dan polikristal ZrN/Ni [11] dengan gaya pada indenter yang sama. Tampak bahwa kurva indentasi untuk nanokomposit (Gbr. 2 atas) tidak mengalami patahan yang berarti gradien gaya di setiap titik sepanjang kedalaman sama yang berarti material nanokomposit ini sangat uniform dalam kekerasannya dan juga memiliki ketangguhan (*toughness*) yang tinggi. Sebaliknya pada kurva indentasi polikristal ZrN/Ni (Gbr. 2 bawah) terdapat daerah-daerah patahan yang berarti terjadi retakan pada titik-titik tertentu di sepanjang kedalaman lapisan tipis tersebut. Hal ini memperlihatkan bagaimana peran fase amorf dalam nanokomposit yang mencegah terjadinya retakan. Ini berarti bahwa fase amorf bertindak sebagai deflektor retakan di sepanjang batas butir sehingga retakan yang (jika) timbul di perbatasan butir akan berpecah dipermukaan butiran yang lama-kelamaan energinya terdidissipasi di batas butir. Akibatnya nanokomposit ini menjadi sangat tangguh. Pada polikristal ZrN/Ni retakan dapat dengan mudah menjalar ke mana-mana bahkan dapat saja melewati butiran kristal. Hal ini menyebabkan polikristal ini menjadi sangat *britel*.

Gambar 3 menunjukkan bahwa pada proses anil tidak terdapat perubahan konstanta kisi kristal TiN pada nanokomposit dengan fase amorf sebagai pembungkus butir kristal TiN. Hal ini berarti bahwa difusi atom dari permukaan butir ke dalam butir kristal dapat dicegah sehingga konstanta kisinya tetap. Telah diamati pula bahwa kehadiran fase amorf pada nanokomposit ini mencegah pertumbuhan kristal TiN (rekristalisasi) sehingga kekerasannya menjadi tetap [9-10]. Di samping itu ketahanan nanokomposit ini terhadap oksidasi baik di temperatur ruang maupun di temperatur tinggi (800°C) sangat tinggi [10,12]. Tidak berubahnya konstanta kisi ini juga mengandung implikasi bahwa residual stress dalam material ini sangat kecil. Hal ini telah dipublikasikan dalam paper-paper kami terdahulu antara lain [9-10]. Tidak adanya residual stress ini menggambarkan bahwa nanokomposit ini sangat stabil terhadap temperatur tinggi. Artinya bahwa sifat fisisnya, antara lain kekerasannya, tidak berubah dengan naiknya temperatur bahan. Hal ini sangat menguntungkan dalam aplikasi material ini sebagai bahan pelapis alat potong yang selalu bersinggungan dengan temperatur kerja yang tinggi.



Gbr. 3: Grafik konstantan kisi nanokomposit nc-TiN/a-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> terhadap temperatur anil.



**Gbr. 4: Grafik konstanta kisi terhadap temperatur anil polikristal ZrN/Ni untuk berbagai sampel. Nomor-nomor pada setiap kurva menyatakan nama sampel.**

Gambar 4 menunjukkan bahwa tidak adanya fase amorf dalam polikristal ZrN/Ni menyebabkan konstanta kisi mengecil jika sampel dianil pada temperatur di atas 300°C. Hal ini menunjukkan bahwa pada polikristal sangat mudah terjadi stress kompresi pada saat sampel dibuat (dideposisi). Setelah sampel tersebut dianil maka stress di dalam kristal ini mengalami proses relaksasi dan konstanta kisi mengecil. Juga diamati bahwa kekerasan polikristal ini menurun seiring naiknya temperatur anil [13].

### Kesimpulan

Dapat disimpulkan bahwa disain nanokomposit dengan penambahan fase amorf di antara butir-butir kristal TiN sangat menentukan sifat keseluruhan dari nanokomposit tersebut. Ketebalan fase amorf ini menentukan kekerasan material nanokomposit yang dihasilkan. Di samping itu ketahanan terhadap temperatur tinggi dan oksidasi dapat dicegah oleh adanya fase amorf di antara butir kristal TiN ini. Gambaran yang sangat berbeda ditunjukkan pada polikristal ZrN/Ni yang kekerasannya rendah dan tidak stabil terhadap temperatur. Juga diamati adanya stress kompresif dalam kristal yang tinggi pada polikristal tersebut sebagai efek ketiadaan fase amorf. Disain nanokomposit ini menjelaskan juga mengapa kekerasan nanokristal dapat menyamai intan.

### Daftar Acuan

- [1] E.O. Hall, Proceedings of Physic Society B 64 (1951) 747.
- [2] N.J. Petch, Journal of Iron and Steel Institute 25 (1953) 174
- [3] J. Schiotz, F.D. Di Tolla, K.W. Jacobsen, Nature 391 (1998) 561.
- [4] S. Yip, Nature 391 (1998) 352.
- [5] S. Veprek, S. Reiprich, Thin Solids Films 268 (1995) 64.
- [6] S. Veprek, M. Haussmann, S. Reiprich, J. Vac. Sci. Technol. A 14 (1996) 46.
- [7] S. Veprek, M. Haussmann, S. Li, Electrochem. Soc. Proc. 96 (1996) 619.
- [8] A. Niederhofer, T. Bolom, P. Nesladek, K. Moto, C. Eggs, D.S. Patil, S. Veprek, Surf. Coat. Technol. 146/147 (2001) 183.
- [9] S. Veprek, A. Niederhofer, K. Moto, T. Bolom, H.-D. Männling, P. Nesladek, G. Dollinger, A. Bergmaeir, Surf. Coat. Technol. 133/134 (2000) 152.
- [10] K. Moto, Ph.D. Thesis, Technical University Munich, Germany, 2001.
- [11] P. Kavankova, Technical University Munich, 2001, personal communication.
- [12] K. Moto, T. Bolom, S. Veprek, Proceeding of ICAMP, Singapore, 2002.
- [13] P. Karvancova, H.D. Männling, Ch. Eggs, S. Veprek, Programme Book ICMTF, San Diego, 2001 (Abstract No.800).