

BỘ GIÁO DỤC VÀ ĐÀO TẠO  
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM HÀ NỘI 2

=====\*\*\*\*=====

**ĐỒ CHÍ NHĨA**

**MÔ HÌNH LÝ THUYẾT VÀ MÔ PHỎNG TÍNH CHẤT  
PLASMONIC CỦA MỘT SỐ CẤU TRÚC NANO ỨNG  
DỤNG TRONG QUANG NHIỆT VÀ CẢM BIẾN SINH  
HỌC**

Chuyên ngành: Vật lý lý thuyết và Vật lý toán  
Mã số: 9 44 01 03

**TÓM TẮT LUẬN ÁN TIỀN SĨ VẬT LÝ**

**HÀ NỘI - 2020**

Công trình này được hoàn thành tại Trường Đại học Sư phạm Hà Nội 2.

**Người hướng dẫn khoa học 1: TS. Đỗ Thị Nga**

**Người hướng dẫn khoa học 2: PGS. TS. Chu Việt Hà**

Phản biện 1: .....

.....

Phản biện 2: .....

.....

Phản biện 3: .....

.....

Luận án sẽ được bảo vệ trước Hội đồng cấp Trường chấm luận án tiến sĩ họp tại :

.....

vào hồi ..... giờ ngày ..... tháng ..... năm 20...

Có thể tìm hiểu luận án tại:

- Thư viện Quốc gia Việt Nam
- Thư viện Trường Đại học Sư phạm Hà Nội 2

# Mở đầu

## 1. Lý do chọn đề tài

Plasmonics là một lĩnh vực đầy hứa hẹn của khoa học và công nghệ. Lĩnh vực này khai thác sự tương tác giữa ánh sáng và vật chất thông qua hiện tượng công hưởng plasmon bề mặt (Surface Plasmon Resonance, SPR), cho nhiều tính chất và chức năng khác nhau. SPR là sự kích thích tập thể đồng thời của tất cả các hạt mang điện (điện tử) tại mặt phân cách giữa 2 môi trường có hàm điện môi trái dấu, điển hình như kim loại và điện môi, thành một dao động đồng pha. Các dao động điện tử như vậy có thể lan truyền dọc theo mặt phân cách (Surface Plasmon Polariton, SPP) hoặc bị giam giữ trong vùng có kích thước nhỏ hơn bước sóng (công hưởng plasmon định xứ, LSPR). Sau khi được kích thích, các dạng của SPR có thể giam giữ trường điện từ của ánh sáng ở một thang nhỏ hơn bước sóng, dẫn đến sự tăng cường đáng kể của trường định xứ và cho phép điều khiển ánh sáng dưới giới hạn nhiễu xạ. Sự hấp dẫn của SPR làm cho các vật liệu plasmonic có khả năng ứng dụng cao trong nhiều lĩnh vực, bao gồm quang tử, hóa học, năng lượng, và khoa học sự sống. Cụ thể, có thể kể đến các ứng dụng như các cảm biến sinh học và quang học, thuốc và các phương pháp điều trị bệnh, siêu vật liệu (metamaterials), chip điện tử kích thước nano (chip của Intel hiện nay đã đạt tới kích thước 14 nm), và máy tính lượng tử. Kết quả là, trong hai thập kỷ qua, mối quan tâm khoa học đối với vật liệu plasmonic và SPR được tăng cường. Những tiến bộ vượt bậc của công nghệ nano trong kỹ thuật in thạch bản và các phương pháp hóa ướt cổ điển (classical wet-chemistry) cho phép chúng ta kiểm soát tổng hợp được cả về kích thước, hình dạng, số chiều và cấu trúc liên kết bề mặt của vật liệu plasmonic, thường với độ chính xác cỡ nanomet. Việc chế tạo và đo đạc các mẫu thí nghiệm có thể rất đơn giản trong điều kiện của các nước có nền khoa học công nghệ tiên tiến. Nhưng với các nước đang phát triển, đặc biệt là Việt Nam, các bước thực nghiệm tốn rất nhiều công sức và tiền bạc. Trong hoàn cảnh vô cùng hạn chế ở Việt Nam, các phương pháp tính toán lý thuyết và mô phỏng dự đoán các phép đo đạc thực nghiệm và gợi mở ra những ứng dụng mới là vô cùng quan trọng và đây chính là mục tiêu đặt ra của đề tài nghiên cứu trong bản luận án này. Mô hình nghiên cứu trong luận án này sẽ tạo ra cầu nối giữa thực nghiệm và lý thuyết. Đây cũng là vấn đề mà hiện nay Việt Nam còn thiếu.

Trong luận án này, chúng tôi tiếp tục phát triển lý thuyết Mie để áp dụng cho những hệ hạt nano phức tạp hơn có kết hợp chặt chẽ với thực nghiệm. Chúng tôi đã

viết chương trình sử dụng lý thuyết Mie toàn phần tính phổ hấp thụ, tán xạ, và dập tắt cho cấu trúc nano lõi-vỏ (core-shell) kích thước bất kì. Sau khi đã xây dựng được chương trình tính toán các phổ quang học cho phép dự đoán chính xác phổ quang học của các cấu trúc nano, chúng tôi đã bắt đầu nghiên cứu các ứng dụng của tính chất plasmonic này trong các lĩnh vực khác nhau. Tính chất plasmonic của các cấu trúc nano cũng có thể được sử dụng để làm các cảm biến và các máy dò, do sự phụ thuộc của các phổ quang học vào yếu tố bên ngoài cũng như môi trường xung quanh là rất lớn và rõ ràng. Trong luận án này, chúng tôi thử đề xuất một loại máy dò dựa trên cơ chế co-quang nhiệt. Cũng từ việc nồng lên của hạt nano dưới tác dụng của ánh sáng laser, sự chênh lệch giữa giãn nở nhiệt của hạt nano và môi trường ngoài tạo ra các trường đòn hồi của môi trường phụ thuộc vào khoảng cách tính từ tâm của hạt nano. Nếu trong hệ vật liệu có khuyết tật (defects) hay các dị vật (impurity) thì lập tức dạng hàm của trường đòn hồi bị thay đổi. Từ đó ta có thể đề xuất chế tạo máy dò dị vật và khuyết tật trong các hệ cô đặc. Công trình của chúng tôi theo hướng này đã được đăng trên tạp chí ISI *Journal of the Physical Society of Japan*.

Vật liệu hai chiều graphene đang thu hút được nhiều sự quan tâm của các nhà khoa học cũng như các công ty trên toàn thế giới. Graphene là vật liệu chỉ có đơn lớp nguyên tử cacbon mà có ứng suất đòn hồi tương đương kim cương. Không chỉ có vậy, khe năng lượng cũng như thế hóa học của graphene hoàn toàn có thể thay đổi được dưới tác dụng của trường điện từ bên ngoài đặt vào hoặc tạo ra các khuyết tật trên graphene. Chúng tôi đã sử dụng sự thay đổi này để nghiên cứu phổ quang học của hạt nano bọc lớp graphene ở ngoài bằng lý thuyết Mie mở rộng. Tuy được sử dụng rất rộng rãi trên thế giới hiện nay nhưng lý thuyết Mie chỉ cho phép người dùng tính phổ quang học với các hệ có kích thước hữu hạn theo cả ba chiều. Để tính phổ quang học hấp thụ cho các hệ có chứa graphene hữu hạn theo một chiều và vô hạn theo các chiều còn lại, chúng tôi đã sử dụng cách giải các phương trình Maxwell để tìm ra các hệ số truyền qua và hệ số phản xạ. Từ đó ta có thể tính được được độ hấp thụ của cả hệ. Thay đổi tính chất của graphene sẽ làm thay đổi hệ số hấp thụ của toàn bộ hệ. Các kết quả của chúng tôi đã được đăng trên tạp chí *Journal of Science: Advanced Materials and Devices*.

Graphene được biết đến như là vật liệu plasmonic tiềm năng, có thể giam cầm rất mạnh trường điện từ nhưng lại làm thất thoát rất ít năng lượng. Do đó, các hệ phức hợp có chứa graphene đang thu hút được sự quan tâm của nhiều nhà khoa học trên thế giới và nó cũng thể hiện được rất nhiều tính chất lý thú. Với nghiên cứu quá trình tăng nhiệt của hệ phức hợp chứa graphene dựa trên tính chất plasmonics, kết quả nghiên cứu của chúng tôi đã được công bố trên *Physica Status Solidi-Rapid Research Letters* là tạp chí ISI uy tín hạng Q1.

## 2. Mục đích nghiên cứu

Mục đích nghiên cứu của bản luận án là phát triển lý thuyết Mie hiện tại để nghiên cứu tính chất plasmonic của các cấu trúc nano từ đơn giản đến phức tạp, được nghiên cứu bởi các nhóm thực nghiệm và mô phỏng. Nghiên cứu sự biến thiên nhiệt độ của các cấu trúc nano plasmonic này dưới tác dụng của laser. Từ đó, tìm

ra tính chất và thiết kế mới cho các hệ để tối ưu hóa hiệu quả sử dụng, đồng thời nhằm khai thác và khảo sát cách sử dụng hiệu ứng quang nhiệt của hệ trong các ứng dụng khác nhau.

### **3. Phương pháp nghiên cứu**

Luận án sử dụng phương pháp xây dựng mô hình lý thuyết bán thực nghiệm để nghiên cứu tính chất plasmonic của các cấu trúc nano. Cụ thể là sử dụng lý thuyết Mie và các cải tiến để xác định các phổ quang học cho hệ nano cấu trúc lõi-vỏ, đặc biệt là cho hệ hoa nano và hạt nano bọc graphene. Đối với cấu trúc nano phức hợp gồm mạng ô vuông của các đĩa graphene đa lớp đặt trên lớp điện môi mỏng nằm trên đế silicon, luận án sử dụng mô hình lưỡng cực kết hợp với gần đúng giả tinh để tính độ phân cực của các đĩa graphene trên bề mặt lớp điện môi từ đó có thể tính được tiết diện hấp thụ và dập tắt. Cùng với đó là những tính toán giải tích phức tạp cho hiệu ứng quang nhiệt đã được đưa ra đó là lý thuyết cơ học liên tục và giải các phương trình truyền và tán xạ nhiệt, kết hợp phương pháp tính số, phương pháp mô phỏng và phân tích số liệu bằng các phần mềm Fortran và Matlab. Đối chiếu các kết quả thu được với các dữ liệu thực nghiệm và kết quả nghiên cứu của các tác giả khác.

### **4. Ý nghĩa khoa học của luận án**

Luận án đã đưa ra một cách tiếp cận lý thuyết bán thực nghiệm để có thể kết hợp với các nhóm thực nghiệm ở Việt Nam nhằm giải thích kết quả và cùng nhau đề xuất ra những ứng dụng mới. Không chỉ dừng lại ở việc tính toán lý thuyết Mie cho hệ lõi-vỏ bình thường với các bề mặt tròn và nhẵn tuyệt đối, phương pháp của chúng tôi cho phép tính toán các hệ lõi-vỏ có bề mặt nhám và có thể áp dụng cho các hệ hoa nano, sao nano. Từ đó đưa ra một phương pháp nghiên cứu hiệu ứng quang nhiệt tổng quát cho các cấu trúc khác nhau. Phương pháp này khá đơn giản, đã được đăng trên các tạp chí khoa học chuyên ngành uy tín và hoàn toàn có thể giúp các nhóm thực nghiệm kiểm chứng số liệu và dự đoán kết quả của các hệ chưa từng được nghiên cứu. Những kết quả mà luận án thu được có ý nghĩa khoa học và thực tiễn, đã đóng góp nhất định vào hiểu biết chung về các tính chất plasmonic và ứng dụng quang nhiệt của các cấu trúc nano.

### **5. Cấu trúc của luận án**

Ngoài phần mở đầu, kết luận và danh mục tài liệu tham khảo, luận án được chia thành 4 chương:

*Chương 1:* Hệ thống các lý thuyết cơ bản liên quan đến vấn đề nghiên cứu

*Chương 2:* Lý thuyết Mie và mô hình quang nhiệt cho hệ nano cấu trúc lõi-vỏ

*Chương 3:* Tính chất plasmonic của cấu trúc nano dựa trên graphene trong dải tần số terahertz

*Chương 4:* Quá trình tăng nhiệt của hệ phức hợp graphene dựa trên tính chất plasmonics

# Chương 1

## Hệ thống các lý thuyết cơ bản liên quan đến ván đề nghiên cứu

Chương này trình bày hệ thống các lý thuyết cơ bản để xây dựng mô hình nghiên cứu hiệu ứng plasmon bề mặt và hiệu ứng quang nhiệt của các cấu trúc nano plasmonic. Tất cả tính toán và những phát triển xuyên suốt toàn luận án được dựa trên kiến thức nền tảng của chương này. Các đại lượng Vật lý và tham số quan trọng quyết định tính chất và các biểu hiện của plasmon bề mặt cũng sẽ được đưa ra thảo luận.

### 1.1 Mô hình lý thuyết cho hàm điện môi

Công thức tổng quát của hàm điện môi cho tất cả các loại vật liệu có thể thu được dựa trên mô hình đơn giản của cơ học cổ điển là dao động điều hòa

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \sum_j \frac{\omega_P^2}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j\omega} \quad (1.1)$$

trong đó,  $\omega_P$  là tần số plasma. Mô hình này còn được biết đến là mô hình Drude-Lorentz như một sự ghi nhận cho đóng góp của hai nhà khoa học nổi tiếng Drude và Lorentz cho mô hình hàm điện môi từ những năm đầu thế kỷ 20.

### 1.2 Lý thuyết Mie cho tính chất quang của hạt nano đơn vật liệu

Nhà vật lý Mie đã đưa ra được lời giải giải tích cho trường hợp đơn giản nhất: hạt cầu đơn kim loại. Về sau lý thuyết của Mie còn được Gans phát triển để tính

cho các hạt không phải hình cầu. Những tính toán này chỉ chính xác với điều kiện kích thước của hạt phải rất nhỏ so với vùng bước sóng chiếu tới. Không dừng lại ở đó, ngày nay lý thuyết Mie còn được phát triển để tính phổ quang học cho hệ đa lớp (multilayer). Gần đây người ta đã sử dụng phép so sánh phổ quang học tính bởi lý thuyết Mie với quang phổ năng lượng mặt trời để tối ưu hóa cấu trúc và tìm vật liệu mới thích hợp cho việc chế tạo pin mặt trời. Ngoài ra, các tính toán dựa trên lý thuyết Mie cho phép dự đoán lượng sự tăng nhiệt độ trong các dung dịch chứa hạt nano dưới tác dụng của laser.

### 1.2.1 Lý thuyết Mie cho hạt nano cầu đơn vật liệu

Nghiệm giải tích của lý thuyết Mie cho hạt cầu trong môi trường điện môi liên tục cho ra tiết diện tán xạ (scattering), hấp thụ (absorption), và dập tắt (extinction) quang học như sau

$$\begin{aligned} Q_{ext} &= \frac{2\pi}{k_m^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re}(a_n + b_n), \\ Q_{scat} &= \frac{2\pi}{k_m^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left( |a_n|^2 + |b_n|^2 \right), \\ Q_{abs} &= Q_{ext} - Q_{scat}, \end{aligned} \quad (1.2)$$

ở đây  $k_m = 2\pi\sqrt{\varepsilon_m}/\lambda$ ,  $\varepsilon_m$  là hằng số điện môi của môi trường, và  $\lambda$  là bước sóng của trường điện từ chiếu tới, các hệ số tán xạ gồm có

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{\psi_n(x)\psi'_n(mx) - m\psi_n(mx)\psi'_n(x)}{\xi_n(x)\psi'_n(mx) - m\psi_n(mx)\xi'_n(x)}, \\ b_n &= \frac{m\psi_n(x)\psi'_n(mx) - \psi_n(mx)\psi'_n(x)}{m\xi_n(x)\psi'_n(mx) - \psi_n(mx)\xi'_n(x)} \end{aligned} \quad (1.3)$$

trong đó  $\psi_n(x) = xj_n(x)$  và  $\xi_n(x) = xh_n^{(1)}(x)$  là các hàm Riccati-Bessel,  $x = k_m R$  với  $R$  là bán kính của hạt cầu,  $m = \sqrt{\varepsilon(\omega)/\varepsilon_m}$  là tỉ số giữa chiết suất của hạt cầu và môi trường ở tần số  $\omega$ , dấu phẩy trên đầu các hàm nghĩa là phép lấy đạo hàm của hàm số theo các đối số trong dấu ngoặc đơn.  $n = 1$  và  $n = 2$  tương ứng ảnh hưởng với các tương tác lưỡng cực và tứ cực cho quá trình tán xạ trường điện từ.

Trong trường hợp hạt rất nhỏ so với bước sóng của trường điện từ chiếu tới ( $2R/\lambda \ll 1$ ), tương tác lưỡng cực ( $n = 1$ ) đóng vai trò chủ chốt trong quá trình tán xạ. Các tương tác khác hoàn toàn có thể bỏ qua.

Đối với các hạt có kích thước lớn hơn, cách tính tiết diện hấp thụ và phát xạ như trên không còn chính xác vì vai trò các tương tác tứ cực hay các tương tác phức tạp hơn tương tác lưỡng cực đối với quá trình hấp thụ và phát xạ quang học trở nên quan trọng hơn rất nhiều. Các hạt có kích thước càng lớn thì các bậc (modes) tương tác điện từ cao lại càng quan trọng. Khi đó, sử dụng công thức giải tích gốc của Mie là điều cần thiết để thu được kết quả chính xác nhất. Hàm điện môi sử dụng trong

tính toán của lý thuyết Mie thường được lấy từ số liệu thực nghiệm khi đo đặc vật liệu ở kích thước lớn hoặc các công thức giải tích hoặc các hàm fitting số liệu thực nghiệm với mô hình Drude và Drude-Lorentz. Tuy nhiên ở kích thước nano, tất cả các tính chất điện, nhiệt, quang học đều có khác biệt rất lớn so với những gì có trong cùng vật liệu đó nhưng kích thước lớn. Để tính đến ảnh hưởng của kích thước lên hàm điện môi, hệ số dập tắt trong mô hình Drude được biến đổi thành

$$\gamma \equiv \gamma + \frac{Bv_F}{R} \quad (1.4)$$

ở đây,  $v_F$  là vận tốc của electron ở mức Fermi của vật liệu và  $B$  là một tham số biểu diễn độ nhám của vật liệu sử dụng trong việc cân đối giữa tính toán lý thuyết và thực nghiệm để có độ trùng khớp tính toán cao nhất có thể. Thông thường, tham số  $B$  thay đổi trong khoảng từ 0 đến 1.

### 1.2.2 Lý thuyết Mie cho hạt nano đơn vật liệu không có dạng cầu

Trong trường hợp vật không còn là dạng cầu nhưng vẫn có thể miêu tả được bằng công thức toán học như hình thon dài elip hay hình oblate elip, Gans đã đưa ra được công thức tính tiết diện hấp thụ

$$Q_{abs} = \frac{2\pi\varepsilon_m^{1/2}}{3\lambda} \text{Im}[\alpha_a + \alpha_b + \alpha_c] \quad (1.5)$$

ở đây  $\alpha_j$  là độ phân cực của vật liệu chiếu theo trục  $j$ ,  $j = a, b, c$  là các bán trục trong hình elip 3 chiều. Độ phân cực của vật liệu được tính bằng công thức

$$\alpha_j = \frac{4\pi abc}{3} \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{\varepsilon_m + L_j[\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m]} \quad (1.6)$$

trong đó,  $L_j$  là thừa số khử cực theo trục  $j$ . Giả sử rằng  $a$  và  $c$  là tương ứng với các bán trục lớn và nhỏ của hình elip.

## 1.3 Lý thuyết cơ bản cho việc làm nóng hệ theo cơ chế plasmon

### 1.3.1 Sự nóng lên của đơn hạt nano dưới tác dụng của trường điện từ

Khi trường điện từ chiếu tới hạt nano kim loại, các electron trên bề mặt của hạt được kích thích tập thể và vật bắt đầu hấp thụ năng lượng. Vì vậy vật bắt đầu được nóng lên theo cơ chế plasmon hay cơ chế kích thích đồng thời các dao động tập thể

của electron. Trường nhiệt độ trong vùng lân cận hạt nano là giả tịnh. Vì vậy, chúng ta thu được

$$\kappa \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{3Q_{abs}I_0}{4\pi R^3} = 0 \text{ tại } r < R, \quad (1.7)$$

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right) = 0 \text{ tại } r > R, \quad (1.8)$$

ở đây  $\kappa$  là độ dẫn nhiệt của môi trường. Sự gia tăng nhiệt độ bề mặt của hạt nano  $\Delta T$  có thể được xác định dễ dàng từ điều kiện cân bằng năng lượng, cụ thể là,  $Q_{abs}I_0 = -4\pi R^2 \kappa \partial T / \partial r$  tại  $r = R$ , kết quả thu được trong biểu thức sau

$$\Delta T = \frac{I_0 Q_{abs}}{4\pi R \kappa} \quad (1.9)$$

### 1.3.2 Sự nóng lên của dung dịch do tập thể hạt nano plasmonic dưới tác dụng của trường điện từ

Ánh sáng laser với bước sóng trong vùng cận hồng ngoại (NIR) có thể xuyên qua nước và mô sinh học để kích thích cộng hưởng bề mặt định xứ của các cấu trúc nano kim loại. Các cấu trúc nano hấp thụ quang năng và tiêu tán thành nhiệt. Giả định rằng hiệu suất chuyển đổi quang thành nhiệt là 100% và các hạt nano được phân bố ngẫu nhiên trong một hình cầu hiệu dụng có bán kính  $R$ . Bán kính  $R$  được ước tính bằng bán kính của một quả cầu có thể tích đo được của hệ. Sự gia tăng nhiệt độ trong các mẫu thực nghiệm dưới sự chiếu sáng của laser được mô tả bởi hai quá trình khác biệt nhưng tương quan mạnh mẽ: sự tiêu tán nhiệt từ các hạt và sự truyền nhiệt đối lưu trong môi trường. Sự gia tăng nhiệt độ phụ thuộc vào thời gian  $\Delta T(r, t)$  được mô phỏng lý thuyết bằng phương trình truyền nhiệt sinh học Pennes trong hệ tọa độ cầu

$$\frac{1}{\kappa} \frac{\partial \Delta T}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial \Delta T}{\partial r} \right) - \frac{\Delta T}{\kappa \tau} + \frac{A}{k}, \quad (1.10)$$

trong đó  $k$  và  $\kappa = k/(\rho c)$  tương ứng là độ dẫn nhiệt và độ khuếch tán nhiệt của môi trường,  $\rho$  là mật độ khối lượng,  $c$  là nhiệt dung riêng,  $\tau$  là hằng số thời gian truyền dịch (perfusion),  $A = NQ_{abs}I_0$  là mật độ nguồn nhiệt do năng lượng được hấp thụ trên các hạt nano kim loại,  $N$  là số hạt trên một đơn vị thể tích trong các mẫu, và  $I_0$  là cường độ bức xạ. Sự biến thiên nhiệt độ và đạo hàm theo không gian của nó phải liên tục tại  $r = R$ . Nhiệt độ tại tâm của miền hình cầu định của các hạt nano giả định được đo bằng đầu dò nhiệt. Nhiệt độ tại  $r = 0$  là

$$\begin{aligned} \Delta T(r = 0, t) = & \frac{A}{k} \left[ -\kappa \int_0^t e^{-t'/\tau} \operatorname{erfc} \left( \frac{R}{2\sqrt{\kappa t'}} \right) dt' \right. \\ & - R \int_0^t e^{-t'/\tau} \sqrt{\frac{\kappa}{\pi t'}} \exp \left( \frac{-R^2}{4\kappa t'} \right) dt' \\ & \left. + \kappa \tau (1 - e^{-t/\tau}) \right]. \end{aligned} \quad (1.11)$$

## Chương 2

# Lý thuyết Mie và mô hình quang nhiệt cho hệ nano cấu trúc lõi-vỏ

Trong chương này, chúng tôi sẽ trình bày lý thuyết Mie và mô hình quang nhiệt cho các hệ nano cấu trúc lõi-vỏ và hạn chế của nó khi so sánh với thực nghiệm. Mọi lý thuyết cũng như cách làm tròn, lấy xấp xỉ cho hệ cầu lõi-vỏ sẽ giúp đơn giản hóa các tính toán, từ đó có thể áp dụng lý thuyết Mie cho các hệ phức tạp hơn. Phương pháp tính này cũng được chúng tôi áp dụng để nghiên cứu tính chất quang học trong hệ hoa nano (nanoflowers) gồm các cánh hoa làm bằng chất sắt từ  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  được cấy trên lõi kim loại hình cầu. Trong phần 2.1, chúng tôi sẽ trình bày lý thuyết Mie toàn phần cho hệ nano lõi-vỏ tròn tuyệt đối và hiệu ứng quang nhiệt của nó. Nội dung 2.2 của chương này sẽ trình bày nghiên cứu tính chất plasmonic của hệ hoa nano và ứng suất quang nhiệt của nó, đây là các kết quả của chúng tôi đã được công bố trong bài báo thứ [1] nằm trong danh mục các bài báo liên quan đến luận án.

### 2.1 Hệ nano cầu hai lớp

#### 2.1.1 Lý thuyết Mie cho phô quang học

Lý thuyết Mie được cải tiến cho hệ cầu hai lớp cho ta biểu thức của tiết diện tán xạ, hấp thụ và dập tắt là

$$\begin{aligned} Q_{ext} &= \frac{2\pi}{k_m^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re} (a_n + b_n), \\ Q_{scat} &= \frac{2\pi}{k_m^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left( |a_n|^2 + |b_n|^2 \right), \\ Q_{abs} &= Q_{ext} - Q_{scat}, \end{aligned} \tag{2.1}$$

trong đó,

$$a_n = -\frac{U_n^{TM}}{U_n^{TM} + iV_n^{TM}}, \quad b_n = -\frac{U_n^{TE}}{U_n^{TE} + iV_n^{TE}},$$

$$U_n^{TM} = \begin{vmatrix} j_n(k_c R_c) & j_n(k_s R_c) & y_n(k_s R_c) & 0 \\ \Psi'_n(k_c R_c) & \Psi'_n(k_s R_c) & \Phi'_n(k_s R_c) & 0 \\ \varepsilon_c & \varepsilon_s & \varepsilon_s & j_n(k_m R_s) \\ 0 & j_n(k_s R_s) & y_n(k_s R_s) & \Psi'_n(k_m R_s) \\ 0 & \Psi'_n(k_s R_s) & \Phi'_n(k_s R_s) & \Psi'_n(k_m R_s) \\ & \varepsilon_c & \varepsilon_s & \varepsilon_m \end{vmatrix},$$

$$V_n^{TM} = \begin{vmatrix} j_n(k_c R_c) & j_n(k_s R_c) & y_n(k_s R_c) & 0 \\ \Psi'_n(k_c R_c) & \Psi'_n(k_s R_c) & \Phi'_n(k_s R_c) & 0 \\ \varepsilon_c & \varepsilon_s & \varepsilon_s & y_n(k_m R_s) \\ 0 & j_n(k_s R_s) & y_n(k_s R_s) & \Psi'_n(k_m R_s) \\ 0 & \Psi'_n(k_s R_s) & \Phi'_n(k_s R_s) & \Phi'_n(k_m R_s) \\ & \varepsilon_c & \varepsilon_s & \varepsilon_m \end{vmatrix}, \quad (2.2)$$

trong đó,  $R_c$  và  $R_s$  lần lượt tương ứng là bán kính trong và bán kính ngoài của các cấu trúc nano lõi-vỏ,  $V_n$  và  $U_n$  là các định thức,  $j_n(x)$  là các hàm Bessel cầu loại 1,  $y_n(x)$  là các hàm Neumann cầu,  $\Psi(x) = xj_n(x)$  và  $\xi_n(x) = xy_n(x)$  là các hàm Riccati-Bessel.  $U_n^{TE}$  và  $V_n^{TE}$  thu được bằng cách thay thế các hàm điện môi trong phương trình (2.2) thành độ từ thẩm. Các hàm điện môi của lõi, vỏ và môi trường xung quanh của hạt nano lõi vỏ tương ứng là  $\varepsilon_c$ ,  $\varepsilon_s$  và  $\varepsilon_m$ .

### 2.1.2 Hiệu ứng quang nhiệt trong hệ nano lõi-vỏ dưới tác dụng của laser hồng ngoại

Biến thiên nhiệt độ của các mẫu thí nghiệm  $\Delta T(r, t)$  gây ra bởi hiệu ứng quang nhiệt của vật liệu vàng được mô tả lý thuyết bởi phương trình truyền nhiệt sinh học Pennes trong hệ tọa độ cầu (1.9).

Sự tăng nhiệt độ trạng thái ổn định có thể được ước tính bằng cách sử dụng

$$\Delta T = 2\Delta T_{max} R_s N A_{beam} \ln \left[ \frac{l_{opt}}{R_{beam}} \right],$$

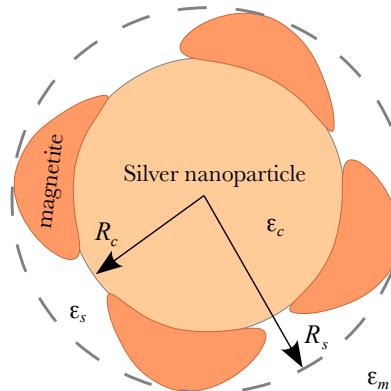
$$\Delta T_{max} = \frac{Q_{abs} I_0}{4\pi k R_s}, \quad (2.3)$$

trong đó  $\Delta T_{max}$  là nhiệt độ cực đại ở bề mặt của hạt nano,  $l_{opt}$  là độ dài quang trình.

## 2.2 Tính chất plasmonic và ứng suất quang nhiệt của hệ hoa nano

Trong những năm gần đây, tính chất đặc biệt của các cấu trúc nano tích hợp đã trở thành mối quan tâm lớn vì chúng có nhiều ứng dụng công nghệ và y sinh khác

nhau. Sự phát triển của khoa học nano cho phép tổng hợp một loạt các hệ ghép với kích thước và cấu trúc mong muốn, có thể thiết kế và tạo ra các hệ đa chức năng và các hệ phức hợp. Các hạt nano từ có những đặc điểm mới lạ như độ nhạy mạnh với từ trường, tính tương thích sinh học cao và độc tính tương đối thấp đối với cơ thể người, cùng với khả năng loại bỏ các ion kim loại nặng. Trong khi các cộng hưởng plasmon bù mặt định xứ của các hạt nano bạc tăng cường đáng kể điện trường xung quanh các cấu trúc nano và tạo ra các tính năng hấp dẫn khác trong dải nhìn thấy được. Hạt nano bạc còn được biết đến là tác nhân kháng khuẩn hiệu quả nhưng là kim loại độc hại. Sự gia tăng nhiệt cục bộ của hoa nano Ag@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> sử dụng cả hiệu ứng quang nhiệt và hiệu ứng tăng nhiệt từ đã được chứng minh là làm tăng đáng kể sự tăng nhanh nhiệt độ so với việc chỉ sử dụng một phương pháp, và có thể được sử dụng để điều trị ung thư. Hơn nữa, nhiệt cục bộ tạo ra sự phân bố nhiệt độ không đồng nhất theo không thời gian và có thể cải thiện hình ảnh siêu âm. Do đó, kết hợp Ag và Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> đã mở rộng đáng kể các hiệu ứng cộng hưởng và hỗ trợ các tác dụng mong muốn. Trong phần này, chúng tôi trình bày kết quả nghiên cứu lý thuyết tính chất plasmonic và ứng suất quang nhiệt của hệ hoa nano lõi-vỏ Ag@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (hình 2.1) đã được chế tạo trong một thí nghiệm gần đây, trong vùng ánh sáng nhìn thấy.

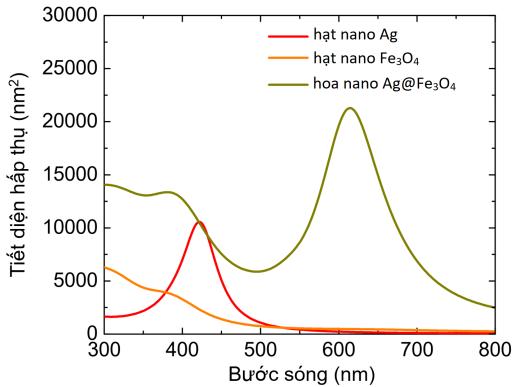


Hình 2.1: Sơ đồ minh họa hoa nano Ag@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.

### 2.2.1 Lý thuyết Mie cho phổ quang học

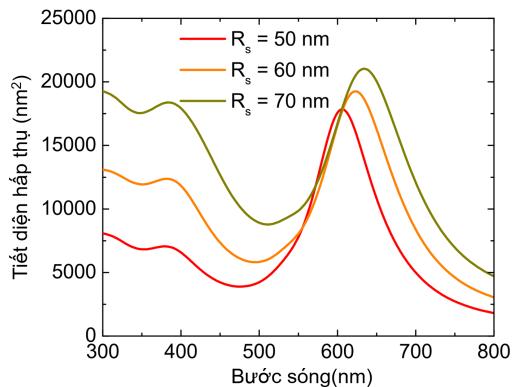
Các biểu thức của tiết diện tán xạ, hấp thụ và dập tắt tán xạ của hệ hoa nano được xác định bởi hệ thức (2.1) và (2.2). Nhưng vì phần vỏ của cấu trúc hoa nano có chứa cả Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> và nước nên để đơn giản hóa tính toán, chúng tôi sử dụng phương pháp hiệu dụng hóa hàm điện môi của môi trường. Hàm điện môi hiệu dụng của lớp vỏ có thể được mô hình hóa bởi mô hình Lichtenecker  $\varepsilon_s(\omega) = f\varepsilon_{Fe_3O_4} + (1 - f)\varepsilon_m$ , trong đó  $f$  là tỉ lệ ôxít sắt từ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> có trong vỏ. Trong khi  $\varepsilon_c(\omega) = \varepsilon_{Ag}(\omega)$ .  $R_c = 24$  nm là bán kính của lõi bạc và  $R_s = 60$  nm là bán kính ngoài của hệ hoa nano.

Hình 2.2 cho thấy các tính toán lý thuyết sử dụng lý thuyết Mie cho phổ hấp thụ của các hoa nano Ag@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, các hạt nano cầu nguyên chất Ag và Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> phân tán



Hình 2.2: Tiết diện hấp thụ của các hạt nano Ag,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  và hoa nano  $\text{Ag}@\text{Fe}_3\text{O}_4$  trong nước ( $\epsilon_m = 1.77$ ) được tính bởi lý thuyết Mie tổng quát.

trong nước. Bước sóng đỉnh công hưởng của các hạt nano bạc với bán kính 24 nm là vào khoảng 415 nm. Công hưởng plasmon bề mặt của bạc và sự chuyển tiếp điện tử của magnetite ở 400 nm chủ yếu chịu trách nhiệm cho dải đầu tiên của các hạt nano  $\text{Ag}@\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Trong khi khe năng lượng 2.2 eV (~ 565 nm) của cấu trúc nano magnetite giảm đáng kể ảnh hưởng của các kích thích năng lượng thấp hơn trên phổ hấp thụ, nó dẫn đến việc không tồn tại của một cực đại quang học của các hạt nano  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  được quan sát thực nghiệm và được tính toán lý thuyết trong dải ánh sáng nhìn thấy. Khi magnetite được phủ trên bề mặt của các hạt nano bạc, các khuyết tật bề mặt có thể thu hẹp khe năng lượng của cánh hoa magnetite và dẫn đến sự xuất hiện của đỉnh thứ hai trong phổ hấp thụ của hạt hoa nano  $\text{Ag}@\text{Fe}_3\text{O}_4$ .



Hình 2.3: Tiết diện hấp thụ của các hạt hoa nano  $\text{Ag}@\text{Fe}_3\text{O}_4$  được tính toán bởi lý thuyết Mie tổng quát trong  $\text{SiO}_2$  ( $\epsilon_m = 2.25$ ) với các kích thước vỏ khác nhau.

Hình 2.3 biểu diễn cách mà phổ hấp thụ của các hạt hoa nano trong silica bị thay đổi khi kích thước  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  thay đổi ( $R_c = 24 \text{ nm}$ ). Khi thay thế môi trường nước bằng silica, sự sai khác hằng số điện môi nhỏ dẫn đến sự dịch chuyển đỏ của đỉnh công hưởng plasmon thứ hai về phía vùng cận hồng ngoại và một dịch chuyển xanh tương đối nhỏ ở đỉnh hấp thụ đầu tiên. Sự gia tăng độ dày của lớp  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  làm tăng đáng kể cường độ hấp thụ gần bước sóng 400 nm do sự liên kết giữa các chuyển tiếp

điện tử của magnetite và dải plasmon của bạc.

## 2.2.2 Sức căng nhiệt của các hạt hoa nano Ag@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

Khi đơn hạt hoa nano Ag@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> được chiếu bởi ánh sáng laser bước sóng 400 nm, các hạt nano hấp thụ quang năng ở bước sóng cộng hưởng plasmon và tạo ra nhiệt hiệu quả. Đối với trạng thái ổn định, sự phân bố nhiệt độ đối xứng xuyên tâm tăng lên bên ngoài hoa nano ( $r \geq R_s$ ) được cho bởi

$$T(r) = \frac{Q_{abs}I_0}{4\pi\kappa_m} \frac{1}{r} = T_s \frac{R_s}{r}, \quad (2.4)$$

ở đó,  $\kappa_m = 0.6 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  là độ dẫn nhiệt của nước,  $T_s$  là sự gia tăng nhiệt độ trên bề mặt của hệ hoa nano, và  $I_0$  là cường độ của ánh sáng laser. Nhiệt độ bên trong hệ hoa nano có thể thu được bằng cách sử dụng các điều kiện khuếch tán nhiệt ở mặt phân cách

$$T(r) = \begin{cases} -T_s \left[ \frac{\kappa_m r^2}{2\kappa_c R_s^2} - \frac{2\kappa_s + \kappa_m}{2\kappa_s} + \frac{R_c^2 \kappa_m (\kappa_c - \kappa_s)}{2R_s^2 \kappa_s \kappa_c} \right] & \text{trong lõi} \\ T_s \left[ -\frac{\kappa_m r^2}{2\kappa_s R_s^2} + \frac{2\kappa_s + \kappa_m}{2\kappa_s} \right] & \text{trong vỏ} \end{cases} \quad (2.5)$$

trong đó,  $\kappa_s = f\kappa_{Fe_3O_4} + (1-f)\kappa_m \approx 2.76 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ,  $\kappa_c = 430 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  tương ứng là độ dẫn nhiệt của vỏ và lõi, và  $\kappa_{Fe_3O_4} \approx 6 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  là độ dẫn nhiệt của magnetite nguyên chất. Vì  $\kappa_c \gg \kappa_m$ , số hạng đầu tiên của nhiệt độ lõi trong phương trình (2.5) có thể được bỏ qua, vì vậy  $T(r)$  trong lõi và vỏ là tương đối khác nhau nhưng gần như không đổi.

Vì hệ hoa nano được mô hình hóa là dạng hình cầu ghồ ghề và phụ thuộc vào gradient nhiệt, chúng tôi giả định biến dạng gây ra bởi các hiệu ứng nhiệt đàm hồi là đối xứng cầu và hoàn toàn xuyên tâm. Một giả định khác là cấu trúc lõi-vỏ có thể được coi là một hình cầu nano đồng nhất với bán kính  $R_s$ . Phương trình cân bằng cho vật liệu đanding hướng và đồng nhất khi không có các lực khói tác dụng

$$G_j \nabla^2 \mathbf{u}_j + \left( K_j + \frac{G_j}{3} \right) \nabla (\nabla \mathbf{u}_j) - \alpha_j K_j \nabla T = 0, \quad (2.6)$$

trong đó,  $\alpha$  là hệ số giãn nở nhiệt,  $\mathbf{u} \equiv \mathbf{u}(r)$  là trường biến dạng,  $K_j = E_j/3(1-2\nu_j)$  và  $G_j = E_j/2(1+\nu_j)$  tương ứng là các mô đun khối và mô đun cắt (shear modulus) của môi trường  $j$  ( $j = c, s, m$ ),  $\nu_j = (3K_j - 2G_j)/2(3K_j + G_j)$  là tỷ số Poisson và  $E_j$  là mô đun Young.

Fương trình cân bằng kết hợp với  $\nabla \times \mathbf{u}_j = 0$  (không quay) có thể rút gọn thành

$$\nabla^2 \mathbf{u}_j = \alpha_j \frac{1 + \nu_j}{3(1 - \nu_j)} \nabla T(r). \quad (2.7)$$

Trường biến dạng trong lõi  $u_c(r)$ , trong vỏ  $u_s(r)$ , và bên ngoài hoa nano  $[u_m(r)]$  có thể thu được bằng cách giải phương trình (2.7), sử dụng tính hữu hạn của các trường biến dạng tại  $r = 0$  và  $r = \infty$

$$\begin{aligned} u_c(r) &= A_c r, \\ u_s(r) &= -\alpha_s \frac{1 + \nu_s}{3(1 - \nu_s)} \frac{\kappa_m T_s}{2\kappa_s R_s^2} \frac{r^3}{5} + A_s r + \frac{B_s}{r^2}, \\ u_m(r) &= \frac{T_s R_s}{2} \frac{\alpha_m (1 + \nu_m)}{3(1 - \nu_m)} + \frac{B_m}{r^2}, \end{aligned} \quad (2.8)$$

trong đó, các hệ số  $A_c$ ,  $A_s$ ,  $B_s$  và  $B_m$  có thể được tìm thấy bằng cách áp dụng tính liên tục của sức kéo và các trường qua mặt phân cách. Các kết quả chỉ ra rằng độ dịch chuyển biến dạng bên ngoài hoa nano suy giảm ở vô cực và nhiệt độ cục bộ đạt lại được nhiệt độ phòng. Tuy nhiên, trường biến dạng trong lõi bắc tăng tuyến tính theo khoảng cách từ tâm của lõi. Các phân tích của chúng tôi phù hợp với các nghiên cứu thực nghiệm trước đó.

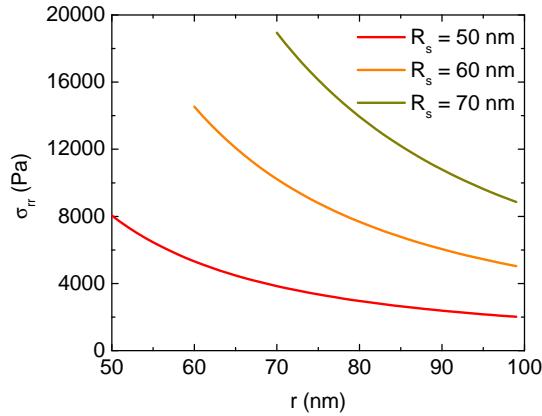
Thay thế độ dịch chuyển biến dạng trong các hệ thức ứng suất-biến dạng cho các ứng suất xuyên tâm trong các vùng

$$\begin{aligned} \sigma_{c,rr}(r) &= 3K_c A_c, \\ \sigma_{s,rr}(r) &= -K_s \alpha_s \frac{3 - \nu_s}{1 - \nu_s} \frac{\kappa_m T_s}{2\kappa_s R_s^2} \frac{r^2}{5} + 3K_s A_s - \frac{4G_s B_s}{r^3}, \\ \sigma_{m,rr}(r) &= \alpha_m \frac{\nu_m K_m}{1 - \nu_m} \frac{T_s R_s}{r} - \frac{4G_m B_m}{r^3}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Phương trình (2.9) biểu thị phân bố không gian và sự phụ thuộc mạnh vào kích thước của các ứng suất đòn hồi. Trong khi áp lực xuyên tâm (radial pressure) bên trong lõi vẫn không thay đổi, các ứng suất trong vỏ hoa nano và trong môi trường phụ thuộc mạnh vào  $r$ .

Đối với môi trường nước, mô đun Young  $E_m$  được cho là bằng không, chúng ta có thể đo độ dịch chuyển không gian cả hai ứng suất đòn hồi bên ngoài hoa nano. Vì  $G_m = 0$ ,  $\nu_m = 1/2$ , và  $T_s$  thay đổi nhỏ hơn  $100^\circ\text{C}$ ,  $\sigma_{m,rr}(r) = \alpha_m K_m T_s R_s / r$  là tương đối nhỏ so với  $K_m$ . Ứng suất xuyên tâm là tầm xa và chỉ đơn giản là tỷ lệ nghịch với khoảng cách  $r$ .

Khi môi trường xung quanh là thủy tinh silica, ứng suất trong silica sử dụng chiểu xạ laser 400 nm ở mật độ công suất  $10^4 \text{ W/cm}^2$  cho các kích thước khác nhau của hoa nano được biểu diễn trong hình 2.4. Các thành phần ứng suất trong silica gần như suy giảm theo nghịch đảo lũy thừa ba của khoảng cách gần bề mặt bên ngoài nhưng tỷ lệ thuận với  $1/r$  ở khoảng cách xa. Sự thay đổi này giống với kết quả tìm thấy trong các công bố trước đây. Nếu ứng suất không tuân theo định luật nghịch đảo lũy thừa ba, hệ có thể có tạp chất, trớ lực hoặc các yếu tố gián đoạn không đổi xứng. Kết quả là, các hiệu ứng nhiệt đòn hồi do laser tạo ra có thể được khai thác để phát hiện khuyết tật trong các chất và thiết bị.



Hình 2.4: Ứng suất xuyên tâm bên ngoài theo khoảng cách từ tâm của hoa nano  $\text{Ag}@\text{Fe}_3\text{O}_4$  với các đường kính khác nhau.

## 2.3 Kết luận

Các kết quả nghiên cứu của chúng tôi về tính chất quang học và ứng suất cảm ứng nhiệt trong môi trường xung quanh của các hoa nano  $\text{Ag}@\text{Fe}_3\text{O}_4$  trong các môi trường khác nhau, sử dụng Mie lý thuyết và lý thuyết cơ học liên tục đã được đưa ra. Tính toán của chúng tôi chỉ ra rằng bước sóng cộng hưởng vào khoảng 400 nm trong phổ hấp thụ được quy cho sự cộng hưởng plasmon bề mặt của bạc và sự chuyển dịch điện tử của oxit sắt. Dỉnh quang học thứ hai ở 620 nm là do hiệu ứng hình học. Sự tác động qua lại tinh vi giữa lõi và vỏ được cho là có ảnh hưởng không đáng kể đến phổ hấp thụ. Sự dịch đỉnh quang học phụ thuộc mạnh vào kích thước hữu hạn của cấu trúc nano và cách cagy  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  trên bề mặt bạc. Sử dụng chiếu xạ laser hoặc từ trường AC dẫn đến sự tăng nhiệt độ, nó tạo ra trường biến dạng bên trong các hoa nano và môi trường xung quanh chúng. Các biến đổi ứng suất nhiệt đã được tìm thấy bằng tính toán giải tích. Ứng suất tầm xa suy giảm theo nghịch đảo của khoảng cách và phát hiện này là phù hợp tốt với nghiên cứu trước đó.

# Chương 3

## Tính chất plasmonic của cấu trúc nano dựa trên graphene trong dải tần số terahertz

Trong chương này, chúng tôi sẽ trình bày các nghiên cứu lý thuyết về tính chất plasmonic của graphene trên đế khối và hạt nano được bọc graphene. Plasmon bề mặt của các hệ như vậy phụ thuộc mạnh vào khe năng lượng và mức Fermi của graphene. Mức Fermi có thể điều chỉnh được bằng cách đặt các trường ngoài vào hoặc pha tạp. Sự tăng lên của vùng cấm ngăn cản cộng hưởng pasmon bề mặt cho miền tần số từ GHz tới THz. Trong khi đó, sự tăng mức Fermi lại làm tăng cường hấp thụ của các cấu trúc nano dựa trên graphene trong dải tần số này của sóng wifi. Một vài cơ chế cho các linh kiện chuyển năng lượng tín hiệu điện wifi đã được đề xuất. Nội dung của chương nằm trong bài báo thứ [2] trong danh mục bài báo liên quan đến luận án.

### 3.1 Cơ sở lý thuyết

#### 3.1.1 Cách tiếp cận liên kết chặt cho graphene

Graphene là một vật liệu 2 chiều mà ở đó các nguyên tử cacbon được sắp xếp trong một mạng tổ ong. Đặt  $a = 0.142$  nm là độ dài của các liên kết lân cận gần nhất. Hai vectơ mạng có thể được biểu diễn bởi  $\mathbf{a}_1 = a(3/2, \sqrt{3}/2)$  và  $\mathbf{a}_2 = a(3/2, -\sqrt{3}/2)$ .

Hamiltonian cho các vùng năng lượng của graphene

$$E_{\pm}(\mathbf{k}) = \pm t \sqrt{3 + f(\mathbf{k})}, \quad (3.1)$$

trong đó,

$$f(\mathbf{k}) = 2 \cos \sqrt{3}k_y a + 4 \cos \left( \frac{\sqrt{3}}{2}k_y a \right) \cos \left( \frac{3k_x a}{2} \right). \quad (3.2)$$

Tại các điểm  $\mathbf{K} = (2\pi\sqrt{3}, 2\pi)/3\sqrt{3}a$  và  $\mathbf{K}' = (2\pi\sqrt{3}, -2\pi)/3\sqrt{3}a$ ,  $E_{\pm} = 0$ . Gần điểm  $K$ ,  $\mathbf{k} = \mathbf{K} + \mathbf{q}$  với  $\mathbf{q}$  tương đối nhỏ, năng lượng của electron có thể được tính bởi

$$E_{\pm} = \pm \frac{3t}{2}qa. \quad (3.3)$$

### 3.1.2 Độ dẫn quang của graphene

Độ dẫn liên vùng và nội cùng vùng của graphene có vùng cấm (gapped graphene) có thể được xác định bởi

$$\begin{aligned} \sigma_{intra} &= \frac{ie^2/\pi\hbar^2}{\omega + i\tau^{-1}} \int_{\Delta}^{\infty} dE \left(1 + \frac{\Delta^2}{E^2}\right) [f(E) + 1 - f(-E)] \\ \sigma_{inter} &= \frac{ie^2\omega}{\pi} \int_{\Delta}^{\infty} dE \left(1 + \frac{\Delta^2}{E^2}\right) \frac{f(E) - f(-E)}{4E^2 - \hbar^2(\omega + i\Gamma)^2}. \end{aligned} \quad (3.4)$$

trong đó,  $f(E)$  là hàm phân bố Fermi và  $2\Delta$  là độ rộng khe năng lượng.

Thế hóa học của graphene có thể điều khiển được bằng cách đặt vào một điện trường  $E_d$

$$\frac{\pi\varepsilon_0\hbar^2v_F^2}{e}E_d = \int_0^{\infty} E[f(E) - f(E + 2E_c)]dE, \quad (3.5)$$

trong đó,  $\varepsilon_0$  là hằng số điện môi chân không.

## 3.2 Hấp thụ quang học của graphene

Dể đánh giá sự hấp thụ của graphene, chúng ta phải biết hệ số phản xạ và truyền qua của graphene trên bề mặt nền bán vô hạn. Các hệ số này được cho

$$\begin{aligned} r_{TE} &= \frac{k_1 - k_2 - \mu_0\sigma(\omega)\omega}{k_1 + k_2 + \mu_0\sigma(\omega)\omega}, \\ t_{TE} &= \frac{2k_1}{k_1 + k_2 + \mu_0\sigma(\omega)\omega}, \\ r_{TM} &= \frac{\varepsilon_2k_1 - \varepsilon_1k_2 + \sigma(\omega)k_1k_2/\varepsilon_0\omega}{\varepsilon_2k_1 + \varepsilon_1k_2 + \sigma(\omega)k_1k_2/\varepsilon_0\omega}, \\ t_{TM} &= \frac{2\varepsilon_1k_2}{\varepsilon_2k_1 + \varepsilon_1k_2 + \sigma(\omega)k_1k_2/\varepsilon_0\omega}, \end{aligned} \quad (3.6)$$

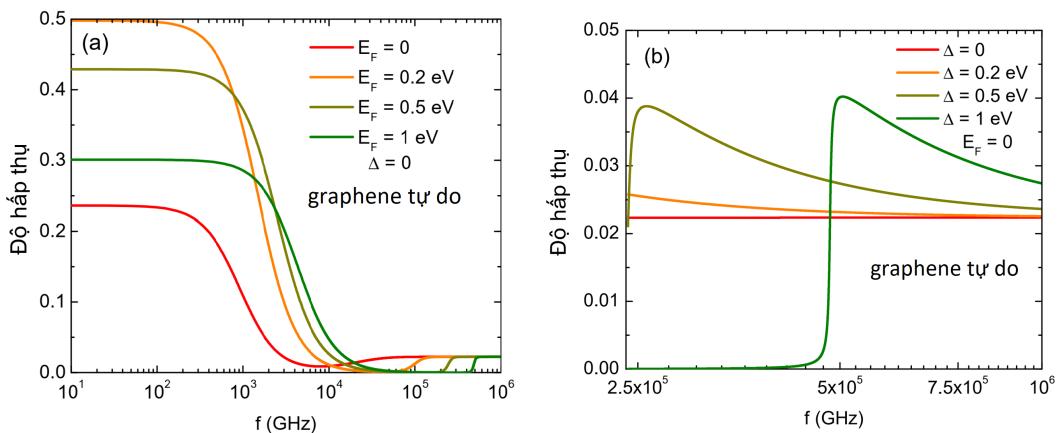
trong đó,  $TM$  và  $TE$  kí hiệu tương ứng cho các mode từ và điện ngang,  $\mu_0$  là độ từ thẩm chân không.  $k_m = \sqrt{\varepsilon_m\omega^2/c^2 - k_{\parallel}^2}$ ,  $k_{\parallel}$  là thành phần của vecto sóng song song với bề mặt,  $\varepsilon_m$  là hằng điện môi của môi trường  $m$ . Ánh sáng đến từ môi trường 1, một phần truyền qua môi trường 2 và một phần phản xạ quay trở lại môi trường 1.

Cường độ của ánh sáng tới và truyền qua tương ứng là  $I_0 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |E_0|^2 \text{Re}(\varepsilon_1)$  và  $I_t = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |E_t|^2 \text{Re}(\varepsilon_2)$ .  $E_0$  và  $E_t$  là biên độ của trường điện tới và truyền qua. Khi đó, độ hấp thụ của graphene có thể được tính bởi

$$A = 1 - |r|^2 - \text{Re} \left( \frac{\sqrt{\varepsilon_2}}{\sqrt{\varepsilon_1}} \right) |t|^2. \quad (3.7)$$

### 3.3 Kết quả tính số và thảo luận

#### 3.3.1 Phổ hấp thụ của graphene tự do

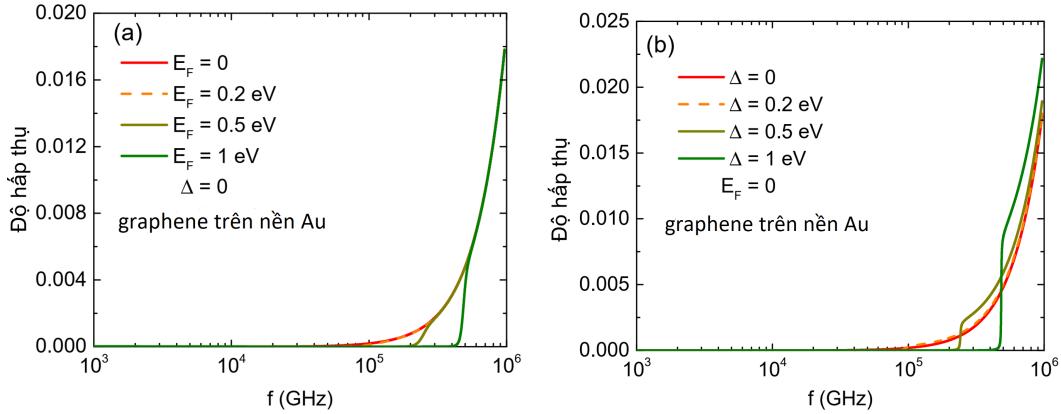


Hình 3.1: Phổ hấp thụ vuông góc của graphene tự do với (a) các năng lượng Fermi khác nhau khi  $\Delta = 0$ , và (b) các giá trị năng lượng vùng cấm khác nhau ở  $E_F = 0$ .

Hình 3.1 biểu diễn phổ hấp thụ của graphene tự do lơ lửng (graphene không bị chịu ảnh hưởng của chất nền) với các giá trị của thế hóa học và năng lượng vùng cấm khác nhau. Trong vùng ánh sáng nhìn thấy, các kết quả của chúng tôi phù hợp tốt với các kết quả thu được trước đây với  $\sigma(\omega) = \sigma_0$ ,  $A \approx \pi\alpha \approx 2.3\%$  và  $T \approx 97.7\%$ . Graphene là trong suốt gần như tuyệt đối trong không khí. Điều này cho thấy rằng  $\sigma(\omega)$  và sự hấp thụ vẫn không đổi và có thể được tăng cường đáng kể bằng cách tăng  $E_F$ . Điều thú vị là, khoảng 50% quang năng của ánh sáng tới có thể được hấp thụ bởi graphene khi  $E_F = 1$  eV.

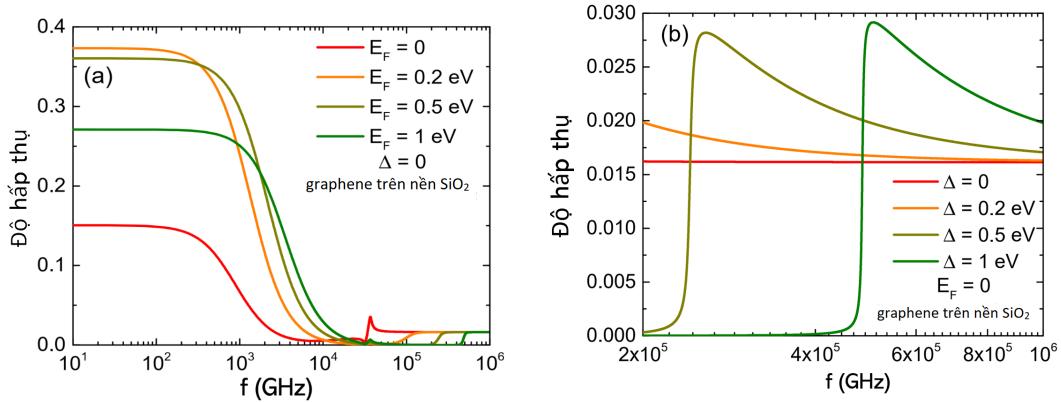
#### 3.3.2 Phổ hấp thụ của graphene trên đế khối

Có thể thấy, trong hình 3.2, sự hấp thụ graphene trên nền vàng bán vô hạn trong không khí, các electron tự do trên bề mặt vàng hấp thụ và tái phát ra các photon tới. Kết quả này cho thấy graphene thuần có độ hấp thụ cao hơn graphene trên đế vàng.  $|r| \approx 1$  ở tần số thấp vì  $\varepsilon_2(\omega) \rightarrow \infty$ , trong khi  $\varepsilon_1(\omega) = 1$  và  $g(\omega)$  là các giá trị hữu hạn.



Hình 3.2: Phổ hấp thụ vuông góc của graphene đơn lớp trên nền vàng với (a) các nồng lượng Fermi khác nhau khi  $\Delta = 0$ , và (b) các giá trị nồng lượng vùng cấm khác nhau ở  $E_F = 0$ .

Hình 3.3 trình bày tiết diện hấp thụ của một tấm graphene trên nền silica. Chất nền silica đã được sử dụng rộng rãi để hỗ trợ các tấm graphene trong nhiều thí nghiệm và thiết bị. Graphene trên nền  $\text{SiO}_2$  hấp thụ nồng lượng điện từ ít hơn nhưng khoảng hấp thụ dao động từ 15 % đến 37 % khi  $E_F$  và  $\Delta$  tiệm cận 0. Một lưu ý rằng nồng lượng vùng cấm khác không gây ra sự giảm hấp thụ đáng kể ở nồng lượng thấp. Giảm  $\Delta$  nhiều nhất có thể để tối đa hóa đặc tính của plasmon trong graphene.



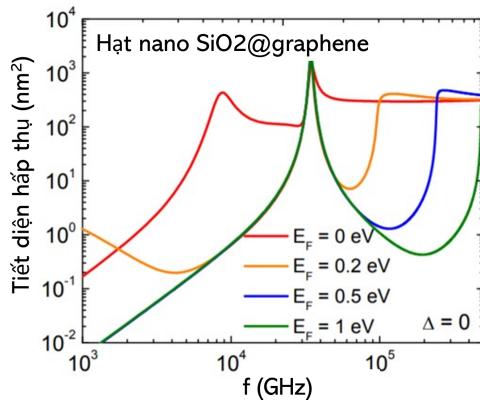
Hình 3.3: Phổ hấp thụ vuông góc của graphene đơn lớp trên nền  $\text{SiO}_2$  với (a) các nồng lượng Fermi khác nhau khi  $\Delta = 0$ , và (b) các giá trị nồng lượng vùng cấm khác nhau ở  $E_F = 0$ .

### 3.3.3 Phổ hấp thụ của hạt nano SiO<sub>2</sub> được bọc graphene

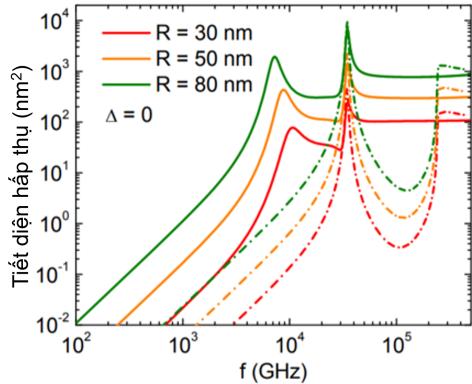
Tiết diện hấp thụ  $A_{abs}$  của hạt nano SiO<sub>2</sub> bán kính  $R$  bọc graphene, được cho bởi lý thuyết Mie

$$\begin{aligned}
 a_l &= \frac{\Psi_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - \frac{n_p}{n_m}\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - i\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0\varepsilon_m}}\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right)}{\xi_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - \frac{n_p}{n_m}\xi'_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - i\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0\varepsilon_m}}\xi_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right)}, \\
 b_l &= \frac{n_p}{n_m} \frac{\Psi_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - \Psi'_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - i\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0\varepsilon_m}}\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right)}{\frac{n_p}{n_m}\xi_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi'_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - \xi'_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right) - i\sigma\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0\varepsilon_m}}\xi_l\left(\frac{2\pi n_m R}{\lambda}\right)\Psi_l\left(\frac{2\pi n_p R}{\lambda}\right)}, \\
 A_{abs} &= \frac{\lambda^2}{2\pi\varepsilon_m} \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1) \left( Re(a_l + b_l) - |a_l|^2 - |b_l|^2 \right), \tag{3.8}
 \end{aligned}$$

trong đó,  $n_p = \sqrt{\varepsilon_{SiO_2}}$  là hệ số khúc xạ phức của hạt nano,  $n_m = \sqrt{\varepsilon_m} = 1$  là chiết suất của chân không,  $\Psi_l(x) = x j_l(x)$  và  $\xi_l(x) = x h_l^{(1)}(x)$  tương ứng là các hàm Riccati-Bessel và Riccati-Hankel,  $j_l(x)$  là hàm Bessel cầu loại 1 và  $h_l^{(1)}(x)$  là hàm cầu Hankel loại 1. Hình 3.4 biểu diễn tiết diện hấp thụ của một hạt nano SiO<sub>2</sub> bán kính 50nm được phủ graphene. Dễ dàng nhận thấy rằng hai cộng hưởng plasmon của hạt nano SiO<sub>2</sub> bọc graphene nằm trong miền tin cậy của lý thuyết nhưng độ dẫn quang học khác không của lớp graphene trên bề mặt hạt nano dẫn đến sự thất bại của gần đúng. Hai đỉnh trong phổ được quy cho sự chuyển dịch của các electron trong graphene và tần số của các phonon quang dọc và ngang của SiO<sub>2</sub>. Vị trí của cộng hưởng đầu tiên rất nhạy với  $E_F$  và kích thước của hạt nano. Sự tăng thế hóa học làm suy yếu sự đóng góp của graphene đối với phổ hấp thụ. Những tiến bộ công nghệ đã cho phép đo chính xác kích thước của hạt nano. Điều thú vị là sự chênh lệch độ hấp thụ giữa hai cực đại quang học là vào khoảng 1-2 bậc của độ lớn. Hiện tượng này bị đảo ngược trong các cấu trúc khồi.



Hình 3.4: Phổ hấp thụ của hạt nano SiO<sub>2</sub> được bọc graphene có bán kính hạt  $R = 50$  nm tương ứng với các mức Fermi khác nhau.



Hình 3.5: Phổ hấp thụ của hạt nano  $\text{SiO}_2$  được bọc graphene có bán kính hạt lần lượt là  $R = 30$  (đỏ),  $50$  (cam) và  $80\text{ nm}$  (xanh lá cây) với các thế hóa học khác nhau. Các đường liền nét và đường đứt nét lần lượt tương ứng với  $E_F = 0$  và  $0.5\text{ eV}$ .

Sự phụ thuộc mạnh của phổ quang học vào kích thước hạt nano được thể hiện trong hình 3.5. Vị trí của đỉnh cộng hưởng đầu tiên bị chuyển dịch xanh khi kích thước hạt tăng lên. Độ lớn của các đỉnh cộng hưởng plasmon giảm một cách đáng kể khi bán kính giảm. Vị trí của đỉnh cộng hưởng thứ 2 giữ không đổi khi thay đổi bán kính của hạt nano và  $E_F$  của graphene vì nó chỉ phụ thuộc vào tính chất phonon của silica.

### 3.4 Kết luận

Trong chương này, chúng tôi đã nghiên cứu phổ hấp thụ của các hệ có chứa graphene. Graphene là khá trong suốt khi nó được đặt trên nền vàng vì chất nền kim loại phản xạ hầu hết năng lượng sóng điện từ. Chất nền silica cho phép khoảng 15 % đến 37 % năng lượng sóng tối bị hấp thụ trên graphene. Sự thay đổi của năng lượng bị hấp thụ phụ thuộc vào năng lượng Fermi và năng lượng vùng cấm của graphene. Sự hấp thụ mạnh của graphene trong dải tần số GHz-THz có thể bị triệt tiêu bằng cách tăng độ rộng khe năng lượng. Các tính chất plasmon trong cấu trúc nano được chứng minh là lớn hơn nhiều so với các cấu trúc khối cùng loại. Hai đỉnh trong phổ hấp thụ của hạt nano  $\text{SiO}_2$  bọc graphene có thể được sử dụng để tạo ra các bộ chuyển đổi năng lượng sử dụng hiệu ứng plasmon-điện.

## Chương 4

# Quá trình tăng nhiệt của hệ phức hợp graphene dựa trên tính chất plasmonics

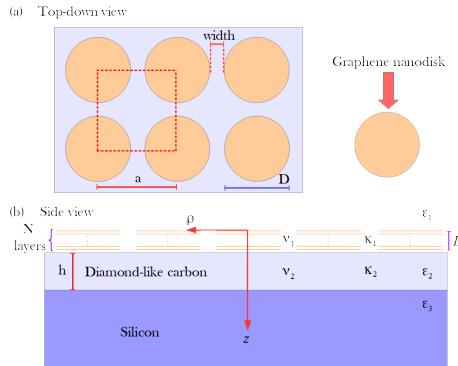
Trong chương này, chúng tôi đề xuất mô hình tính toán lý thuyết cho phân bố nhiệt độ trong hệ gồm có dãy các đĩa graphene xếp theo mạng ô vuông đặt trên lớp màng điện môi mỏng dưới tác dụng của laser hồng ngoại. Phổ quang học và các đỉnh cộng hưởng phụ thuộc rất mạnh vào cấu trúc của hệ cũng như số lớp graphene trên một ô mạng. Mô hình này tính được phân bố nhiệt của hệ ở trạng thái ổn định. Ngoài ra, các công thức giải tích mà chúng tôi đưa ra cho thấy mối tương quan chặt chẽ giữa cường độ chiếu sáng, độ rộng vùng chiếu, và độ dẫn nhiệt của lớp điện môi. Nội dung của chương này nằm trong bài báo thứ [3] trong danh mục bài báo liên quan đến luận án, đã được đăng trên *Physica Status Solidi-Rapid Research Letters* là tạp chí ISI có uy tín hạng Q1.

### 4.1 Lý do nghiên cứu

Graphene được biết đến như là vật liệu plasmonic tiềm năng, có thể giam cầm rất mạnh trường điện từ nhưng lại làm thất thoát rất ít năng lượng. Do đó, các hệ phức hợp có chứa graphene đang thu hút được sự quan tâm của nhiều nhà khoa học trên thế giới và nó cũng thể hiện được rất nhiều tính chất rất lý thú.

### 4.2 Tính chất plasmonic và phân bố nhiệt trong cấu trúc nano chứa graphene

Hệ phức hợp graphene mà chúng tôi nghiên cứu ở đây được miêu tả trên hình 4.1.



Hình 4.1: (a) Hệ graphene nhìn từ trên xuống và (b) nhìn theo mặt cắt ngang với các thông số cấu trúc.

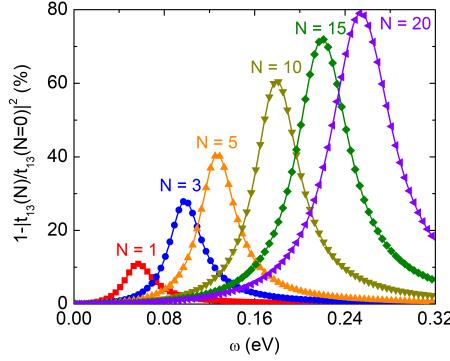
Hệ số phản xạ và truyền qua của cấu trúc nano dựa trên graphene là

$$\begin{aligned} t_{13} &= \frac{t_{12}t_{23}e^{i\left(\frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_2}h\right)}}{1+r_{12}r_{23}e^{2i\left(\frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_2}h\right)}}, \\ r_{13} &= \frac{r_{12}+r_{23}e^{2i\left(\frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_2}h\right)}}{1+r_{12}r_{23}e^{2i\left(\frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_2}h\right)}} \end{aligned} \quad (4.1)$$

ở đây,  $\alpha$  là độ phân cực được tính trong gần đúng giả định kết hợp với mô hình mômen lưỡng cực,  $c$  là tốc độ của ánh sáng,  $g \approx 4.52$  là tương tác lưỡng cực tổng cộng trên toàn mạng ô vuông,  $r_{pq}$  và  $t_{pq}$  là các hệ số phản xạ và truyền qua của các vật liệu 3D tại bề mặt phân cách khi trường điện từ đi từ môi trường  $p$  sang  $q$ . Từ đó, ta có thể tính được độ truyền qua  $|t_{13}|^2 \equiv |t_{13}(N)|^2$  cho  $N > 0$  và  $N = 0$  tương ứng với hệ có và không có các đĩa graphene trên bề mặt. Đối với thực nghiệm, người ta đo phổ quang học dập tắt của hệ graphene này bằng độ lệch tương đối của độ truyền qua  $1 - |t_{13}(N)|^2 / |t_{13}(N = 0)|^2$ . Cách tính này cho phép mọi người đánh giá được khả năng giảm trường điện từ của graphene plasmons.

Hình 4.2 biểu diễn phổ quang học dập tắt của hệ phức hợp graphene với một số giá trị khác nhau của lớp graphene. Kết quả tính số của chúng tôi đã cho thấy rằng đỉnh quang học của mạng ô vuông các đĩa graphene 3 lớp ở khoảng 0.1 eV. Kết quả này hoàn toàn trùng khớp với kết quả thực nghiệm. Sự tồn tại của graphene plasmons trên bề mặt lớp điện môi làm giảm độ truyền qua của trường điện từ xuyên qua các hệ này. Tăng số lớp graphene  $N$  sẽ làm đỉnh cộng hưởng plasmonic của hệ dịch chuyển xanh và làm tăng biên độ của các tín hiệu quang học đo được trong thực nghiệm. Trong khi đó, độ phản xạ ở bước sóng  $\omega \approx 0.1$  eV thì lại gần như không thay đổi.

Dưới tác dụng của laser hồng ngoại, cả lớp điện môi và các đĩa graphene đều hấp thụ ánh sáng và nóng lên. Phần nhiệt độ tăng lên biểu diễn trong hệ tọa độ trục  $\Delta T \equiv \Delta T(\rho, z)$ , tuân theo phương trình truyền nhiệt và tán xạ nhiệt. Vì các đĩa graphene là vật liệu 2 chiều, độ dẫn nhiệt sẽ có tính dị hướng. Vì vậy, phương trình



Hình 4.2: Kết quả tính lý thuyết của phô dập tắt cho các hệ phức hợp dựa trên graphene có dãy mạng đĩa graphene với  $E_F = 0.45$  eV và  $\hbar\tau^{-1} = 0.03$  eV, với số lớp graphene khác nhau trên một đĩa.

truyền và tán xạ nhiệt trong lớp chứa các đĩa graphene đặt lên nhau là

$$\kappa_{1\parallel} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left( \rho \frac{d\Delta T}{d\rho} \right) + \kappa_{1\perp} \frac{d^2 \Delta T}{dz^2} = p_0 e^{-\frac{2\rho^2}{w^2}} e^{-\nu_1 z}, \quad (4.2)$$

trong đó,  $p_0$  là cường độ laser trên một đơn vị thể tích,  $w$  là độ rộng vùng chiếu sáng,  $\nu_1$  là độ hấp thụ quang học,  $\kappa_{1\parallel}$  và  $\kappa_{1\perp}$  là độ dẫn nhiệt theo phương ngang và thẳng đứng của lớp đang nghiên cứu. Độ dẫn nhiệt này phụ thuộc rất lớn vào độ bao phủ (chiếm dụng) của graphene plasmons trong lớp đó. Độ bao phủ được tính bằng  $f_p = \pi D^2 / 4a^2$ .

Bên trong lớp điện môi, phương trình khuếch tán nhiệt là

$$\kappa_2 \left[ \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} \left( \rho \frac{d\Delta T}{d\rho} \right) + \frac{d^2 \Delta T}{dz^2} \right] = p_0 e^{-\frac{2\rho^2}{w^2}} e^{-\nu_1 L - \nu_2(z-L)}, \quad (4.3)$$

trong đó,  $\kappa_2 \approx 0.6$  W/K/m là độ dẫn nhiệt của lớp điện môi và độ hấp thụ  $\nu_2 \approx 1.5 \mu m^{-1}$  của lớp điện môi.

Để giải các phương trình vi phân này, chúng tôi sử dụng biến đổi Hankel transform cho các phương trình trên theo  $\rho$  và nó cho ra kết quả

$$\begin{aligned} \Theta(u, z) &= A_1(u) e^{-\sqrt{\frac{\kappa_{1\parallel}}{\kappa_{1\perp}}} uz} + B_1(u) e^{\sqrt{\frac{\kappa_{1\parallel}}{\kappa_{1\perp}}} uz} \\ &\quad + \frac{\nu_1 P_0(1-R)}{2\pi(k_{1\parallel} u^2 - \kappa_{1\perp} \nu_1^2)} e^{-\frac{u^2 w^2}{8}} e^{-\nu_1 z}, \quad 0 \leq z \leq L \end{aligned} \quad (4.4)$$

$$\begin{aligned} \Theta(u, z) &= A_2(u) e^{-uz} + B_2(u) e^{uz} \\ &\quad + \frac{\nu_2 P_0(1-R)}{2\pi\kappa_2(u^2 - \nu_2^2)} e^{-\frac{u^2 w^2}{8}} e^{-\nu_1 L} e^{-\nu_2(z-L)}, \quad L \leq z \leq L+h \end{aligned} \quad (4.5)$$

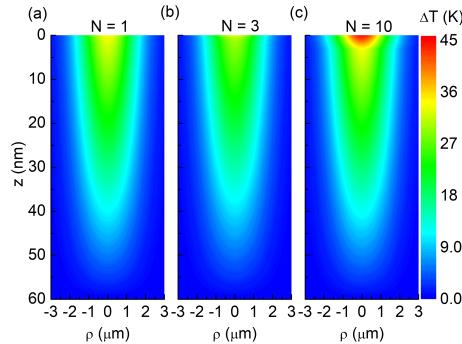
ở đây,  $\Delta T(\rho, z) = \int_0^\infty \Theta(u, z) J_0(\rho u) u du$  với  $J_0$  là hàm Bessel loại 1.  $P_0$  là công suất của chùm chiếu tối. Hệ số  $(1-R)$  trong phương trình diễn tả việc chỉ có phần ánh

sáng hấp thụ và truyền qua lớp đĩa graphene gây ra quá trình tăng nhiệt. Ở đây độ phản xạ được tính bằng  $R = |r_{13}|^2$ .  $A_1(u)$ ,  $B_1(u)$ ,  $A_2(u)$ , và  $B_2(u)$  là các tham số được tính toán dựa trên các điều kiện biên.

$$\begin{aligned} -\kappa_{1\perp} \frac{\partial \Theta(u, z)}{\partial z} \Big|_{z=0} &= 0, \\ \Theta(u, L^-) &= \Theta(u, L^+), \\ -\kappa_{1\perp} \frac{\partial \Theta(u, z)}{\partial z} \Big|_{z=L^-} &= -\kappa_2 \frac{\partial \Theta(u, z)}{\partial z} \Big|_{z=L^+}, \\ \Theta(u, z = L + h) &= 0. \end{aligned} \quad (4.6)$$

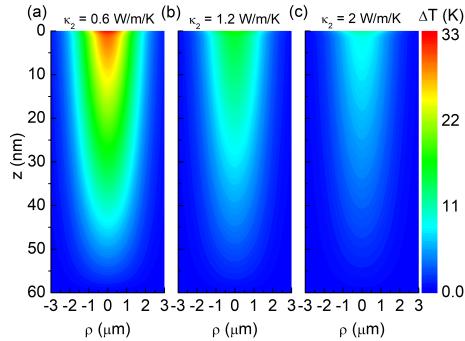
### 4.3 Kết quả tính số cho phân bố nhiệt trong cấu trúc nano chứa graphene

Các kết quả tính số cho các giá trị khác nhau của số lớp graphene  $N$  được biểu diễn trên hình 4.3. Các photon tới sẽ bị giam cầm phần lớn nội tại ở trên bề mặt và sẽ tiêu tan dần khi tiến sâu xuống đáy của lớp điện môi. Nhiệt độ tăng lớn nhất trên bề mặt tại vị trí  $z = 0$  và  $\rho = 0$  trong trường hợp  $N = 10$  là  $45 K$ . Trong khi đó nhiệt độ tăng lớn nhất này với  $N = 3$  và  $N = 1$  chỉ ở khoảng  $33 K$  và  $34.5 K$ . Những giá trị tăng nhiệt này lớn hơn rất nhiều so với  $\Delta T(\rho = 0, z = 0) \approx 1.67 K$  là khi hệ không có lớp đĩa graphene nào trên bề mặt lớp điện môi. Kết quả này rõ ràng cho thấy mất nhiệt do điện môi nhỏ hơn rất nhiều so với mất nhiệt do tính kim loại của vật liệu (cơ chế Joule hay còn gọi là Ohmic) trên đĩa graphene dưới tác dụng của chiếu sáng hồng ngoại. Độ dẫn nhiệt của lớp điện môi mỏng ( $\kappa_2$ ) bên dưới các đĩa



Hình 4.3: Sự phân bố nhiệt độ tăng lên trong hệ khi ở trạng thái ổn định, theo đơn vị Kelvin, với hệ phức hợp graphene có (a)  $N = 1$ , (b)  $N = 3$ , và (c)  $N = 10$  dưới tác dụng của ánh sáng laser hồng ngoại.

graphene có ảnh hưởng lớn đến độ tăng nhiệt của hệ phức hợp graphene. Hình 4.4 thể hiện phân bố nhiệt độ của hệ phức hợp graphene ở trạng thái ổn định với nhiều giá trị của  $\kappa_2$  khi hệ được chiếu sáng bởi laser hồng ngoại. Ở đây, chúng tôi đưa ra các kết quả tính toán với cùng các tham số của laser trong hình số 4.3. Khi lớp điện



Hình 4.4: Sự phân bố nhiệt độ tăng lên trong hệ khi ở trạng thái ổn định, theo đơn vị Kelvin, với hệ phức hợp graphene có  $N = 3$  và (a)  $\kappa_2 = 0.6 \text{ W/m/K}$ , (b)  $\kappa_2 = 1.2 \text{ W/m/K}$ , và (c)  $\kappa_2 = 2.0 \text{ W/m/K}$  dưới tác dụng của ánh sáng laser hồng ngoại.

môi có  $\kappa_2$  lớn sẽ cần nhiều nhiệt năng để làm nóng. Do đó, nhiệt độ tăng lên trong hệ bị giảm đi.

## 4.4 Kết luận

Khi chiếu sáng các hệ bằng laser hồng ngoại, các đĩa graphene làm hệ phức hợp hấp thụ nhiều quang năng hơn nhiều so với các hệ không có graphene. Những năng lượng quang học bị hấp thụ sau đó chuyển hóa thành nhiệt và làm nóng hệ đó. Kết quả tính số chỉ ra mất nhiệt theo cơ chế Ohmic trên các đĩa graphene lớn hơn nhiều so với mất nhiệt do điện môi trong vùng ánh sáng hồng ngoại. Tăng số lớp graphene trên một đĩa sẽ làm tăng nhiệt độ trong hệ rất nhiều. Khi ta cố định số lớp graphene, độ tăng nhiệt độ của hệ tăng tuyến tính với công suất của chùm sáng chiếu tới và giảm theo nghịch đảo của bình phương độ rộng của chùm laser chiếu tới. Ngoài ra, nhiệt độ tăng lên trong hệ có thể bị giảm đi rất nhiều khi tăng độ dẫn nhiệt của lớp điện môi dưới lớp đĩa graphene.

# Kết luận

Luận án nghiên cứu tính chất plasmonic và hiệu ứng quang nhiệt trong các cấu trúc nano lõi-vỏ có hình dạng khác nhau và trong cấu trúc nano phức hợp dựa trên graphene. Từ phô hấp thụ thu được bằng lý thuyết Mie toàn phần, chúng tôi đã xây dựng các phương pháp cho phép tính độ tăng nhiệt độ của các cấu trúc nano khi đặt trong vùng chiếu sáng của laser. Những đóng góp mới của bản luận án cụ thể như sau:

- Phát triển thành công lý thuyết Mie toàn phần nghiên cứu tính chất plasmonic (phô hấp thụ, tán xạ và dập tắt) cho hệ hạt nano lõi-vỏ kích thước bất kì. Lý thuyết Mie hoàn chỉnh này có thể tính chính xác được tới hệ số kích thước 160 nm khi so sánh với các số liệu thực nghiệm.
- Xây dựng mô hình và tính toán theo lý thuyết Mie toàn phần cho phô hấp thụ của các hoa nano Ag@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, đồng thời tính nhiệt độ tăng lên và trường đòn hồi tạo ra bởi sự sai khác trong giãn nở nhiệt giữa hạt nano và môi trường. Kết quả cho thấy trường đòn hồi có dạng nghịch đảo của lập phương khoảng cách tính từ tâm hạt nano. Kết quả này phù hợp với kết quả thực nghiệm và có thể sử dụng để đề xuất ứng dụng chế tạo máy dò tìm khuyết tật và vùng pha tạp dựa trên cơ chế cơ-quang nhiệt do sự nóng lên của hạt hoa nano dưới tác dụng của laser.
- Nghiên cứu tính chất plasmonic của graphene trên đế khói và của hạt nano được bọc graphene. Nghiên cứu khả năng ứng dụng của linh kiện plasmonic dựa trên cấu trúc của hạt nano SiO<sub>2</sub> bọc graphene bằng việc khai thác các tần số cộng hưởng plasmon trong vùng ánh sáng nhìn thấy và vùng terahertz, có thể được sử dụng để tạo ra các bộ chuyển đổi năng lượng sử dụng hiệu ứng plasmon-diện.
- Dưa ra phương pháp tính lý thuyết cho quá trình tăng nhiệt plasmonic của hệ phức hợp graphene bao gồm một mạng ô vuông của các đĩa graphene đa lớp đặt trên lớp điện môi mỏng nằm trên đế silicon dưới tác dụng của laser hồng ngoại. Kết quả thu được cho thấy sự có mặt của các lớp graphene làm tăng mạnh sự hấp thụ quang học. Nhiệt độ của hệ do chuyển hóa quang năng bị hấp thụ thành nhiệt năng tăng lên khi số lớp graphene tăng, đồng thời cũng tăng tuyến tính với công suất của chùm sáng chiếu tới và giảm theo nghịch đảo của bình phương độ rộng chùm laser nếu cố định số lớp graphene. Các kết quả này trùng với kết quả thực nghiệm.

# Danh mục các công trình của tác giả

1. Anh D. Phan, Nghia C. Do, and Do T. Nga, "Thermal-induced stress of plasmonic magnetic nanocomposites", *Journal of the Physical Society of Japan* **86**, 084401 (2017).
2. Do T. Nga, Do C. Nghia, Chu V. Ha, "Plasmonic properties of graphene-based nanostructures in terahertz waves", *Journal of Science: Advanced Materials and Devices* **2**, 371-377 (2017).
3. Anh D. Phan, Do T. Nga, Do C. Nghia, Vu D. Lam, and Katsunori Wakabayashi, "Effects of Mid-infrared Graphene Plasmons on Photothermal Heating", *Physica Status Solidi - Rapid Research Letters* **14**, 1900656 (2020).

