



HIỆN TƯỢNG PLASMONIC PHỤ THUỘC SPIN CỦA CÁC HẠT NANO CÔ-BAN TRONG CÁC MÀNG MỎNG CO-AG VÀ CO-AL₂O₃

Giáp Văn Cường^{1*}, Nguyễn Anh Tuấn²

¹ Khoa Khoa học Cơ bản, Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật Hưng Yên

² Viện Đào tạo Quốc tế về Khoa học Vật liệu (ITISM), Đại học Bách khoa Hà Nội

* Email: cuonggiapvan@gmail.com; Phone: 0983351804

Ngày tòa soạn nhận được bài báo: 15/11/2019

Ngày phản biện đánh giá và sửa chữa: 13/12/2019

Ngày bài báo được duyệt đăng: 21/12/2019

Tóm tắt:

Hiện tượng plasmonic đã được nghiên cứu từ khá lâu trên thế giới [1-8]. Tuy nhiên, số lượng các công trình nghiên cứu về hiện tượng plasmonic phụ thuộc spin (spin-plasmonic) còn tương đối hạn chế [9, 10]. Do đó, hiện tượng plasmonic phụ thuộc spin mà bài báo nghiên cứu là khá mới mẻ. Đó là những hiện tượng vật lý rất cơ bản phản ánh các tương tác photon-spin, photon-magnon thông qua nghiên cứu các tính chất quang phụ thuộc từ trường của các hệ hạt nano từ tính được thực hiện đối với các hệ hạt sắt từ nano Co trong bài báo này. Về thực nghiệm, tác giả đã sử dụng hai phương pháp phun xạ cao tần và bốc bay nổ trong chân không để chế tạo các mẫu màng mỏng dạng hạt Co-Ag và Co-Al₂O₃. Phổ truyền qua/phản xạ ở các màng mỏng từ dạng hạt nano Co-Ag và Co-Al₂O₃ có biểu hiện bị điều biến khá rõ rệt bởi bản chất từ tính nano trong vật liệu, cụ thể ở đây là bản chất sắt từ của các hạt nano Co, phụ thuộc vào tỉ lệ thành phần sắt từ có trong màng mỏng, do đó còn chịu tác động của từ trường ngoài. Những đặc trưng quang-từ nano ghi nhận được có thể gián tiếp phản ánh phần nào tính chất của spin-plasmonic, có bản chất tương tác spin-photon.

Từ khóa: spinplasmonics, plasmonics, hạt nano.

1. Mở đầu

Hệ màng mỏng Co-Ag đã được nghiên cứu và biết đến qua hiệu ứng bơm spin [11], từ điện trở khổng lồ [12]. Vật liệu mà các hạt kim loại sắt từ nano được phân bố trong nền cách điện, như màng mỏng Co-Al₂O₃, đã gây được nhiều chú ý bởi các tính chất dẫn điện, tính chất quang và tính chất từ của chúng [13]. Tuy nhiên, các công trình nghiên cứu về tính chất quang, đặc biệt là tính chất quang liên quan đến hiện tượng plasmon bề mặt còn tương đối hạn chế. Trong bài báo này, tác giả tiến hành nghiên cứu về hiện tượng truyền qua và phản xạ trên màng mỏng từ có cấu trúc dạng hạt nano Co-Ag và Co-Al₂O₃, với các tỷ lệ thành phần sắt từ (Co) khác nhau cả khi không có và có tác dụng của từ trường ngoài, đối với các ánh sáng đơn sắc có bước sóng thay đổi trong vùng nhìn thấy, 350 nm < λ < 800 nm. Các bước

sóng này lớn hơn rất nhiều so với kích thước của các hạt Co, chỉ khoảng vài chục nanomet [14]. Điều này có thể hy vọng thực hiện được các kích thích plasmon bề mặt ở các hạt nano Co, và quan sát thấy biểu hiện của những tính chất quang có nguồn gốc liên quan đến plasmon từ [14].

2. Thực nghiệm

Để nghiên cứu hiện tượng plasmon phụ thuộc spin, chúng tôi đã thiết lập hệ đo quang-từ nhằm khảo sát sự phụ thuộc của hệ số truyền qua vào bước sóng của ánh sáng kích thích, vào độ lớn và hướng của từ trường ngoài tác dụng lên mẫu như Hình 1a.

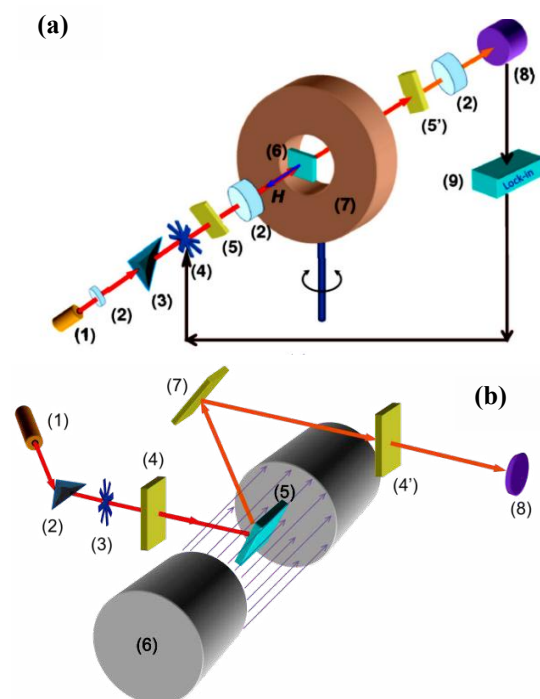
+ (1) nguồn sáng trắng (ở đây tác giả sử dụng đèn dây tóc 12 V-20 W); (2) thấu kính hội tụ; (3) hệ tán sắc; (4) chopper có tác dụng biến chùm sáng thành tín hiệu dạng xung; (5) kính phân cực; (5') kính phân cực đặt phía sau mẫu có tác dụng hiệu

chỉnh lại sự quay của vector phân cực do hiệu ứng từ-quang thông thường (như hiện tượng Kerr và Faraday); (6) mẫu màng mỏng được đặt trong từ trường gây bởi nam châm (7); Nam châm có thể là nam châm vĩnh cửu hoặc nam châm điện, độ lớn của cường độ từ trường có thể thay đổi bằng việc thay đổi độ lớn của cường độ dòng điện chạy qua cuộn dây của nam châm điện hoặc điều chỉnh khoảng cách giữa hai cực của nam châm vĩnh cửu; (8) đầu thu tín hiệu (detector) và (9) thiết bị Lock-in.

+ Đối với hệ khảo sát sự truyền qua của ánh sáng Laser He-Ne, các bộ phận từ (1) đến (4) được thay bằng nguồn Laser.

+ Nam châm có thể quay từ 0 đến 45° nhằm mục đích khảo sát sự phụ thuộc vào hướng của từ trường ngoài.

Trong thực tế, khi khảo sát hệ số truyền qua màng mỏng Co-Ag tương đối khó khăn do tính chất phản xạ của Ag trong màng. Chúng tôi đã cải tiến hệ đo nhằm khảo sát sự phụ thuộc của hệ số phản xạ, sơ đồ khối như Hình 1b.



Hình 1: (a) Sơ đồ khối khảo sát hệ số truyền qua
(b) Sơ đồ khối khảo sát hệ số phản xạ.

Trong sơ đồ khối của hệ đo từ-quang nhằm khảo sát sự phụ thuộc của hệ số phản xạ vào bước

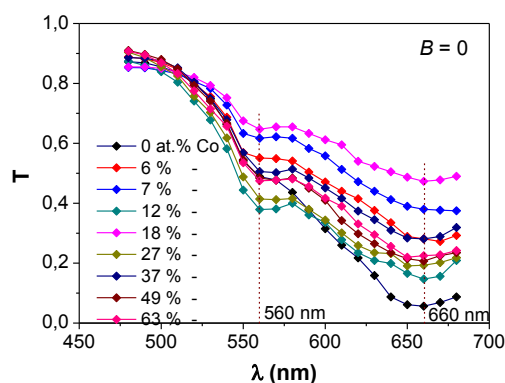
sóng ánh sáng và từ trường ngoài.

+ (1) nguồn sáng trắng (ở đây tác giả sử dụng đèn dây tóc 12 V-20 W); (2) hệ tán sắc; (3) chopper có tác dụng biến chùm sáng thành tín hiệu dạng xung; (4) kính phân cực; (4') kính phân cực đặt phía sau mẫu có tác dụng hiệu chỉnh lại sự quay của vector phân cực do hiệu ứng từ-quang thông thường (như hiện tượng Kerr và Faraday); (5) mẫu màng mỏng được đặt trong từ trường gây bởi nam châm (6); Nam châm có thể là nam châm vĩnh cửu hoặc nam châm điện, độ lớn của cường độ từ trường có thể thay đổi bằng việc thay đổi cường độ dòng điện chạy qua cuộn dây của nam châm hoặc điều chỉnh khoảng cách giữa hai cực của nam châm vĩnh cửu; (7) gương phẳng; (8) đầu thu tín hiệu (detector).

3. Kết quả đo

Đặc điểm dễ nhận thấy nhất ở đồ thị trên Hình 2 là ứng với $470 \text{ nm} < \lambda < 660 \text{ nm}$, sự truyền qua giảm nhanh khi bước sóng càng dài.

Đặc điểm thứ hai là ở các màng mỏng này là đều tồn tại hai vùng bước sóng mà cường độ truyền qua đạt cực tiểu địa phương ứng với bước sóng khoảng 560 nm và 660 nm.

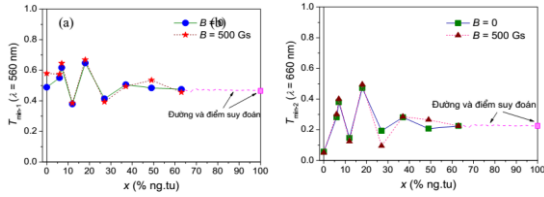


Hình 2: Sự phụ thuộc của hệ số truyền qua mẫu màng mỏng Co-Ag phụ thuộc vào tỉ lệ Co.

Đề thấy rõ quy luật sự phụ thuộc của hệ số truyền qua vào tỉ lệ % Co (x) và từ trường ngoài, các đồ thị truyền qua ở trên được trình bày lại với hệ số truyền qua T lấy tại 2 bước sóng 560 nm và 660 nm. Đồ thị ở Hình 3 cho thấy:

+ Thứ nhất, hệ số truyền qua tại hai bước sóng 560 nm và 660 nm có xu hướng của một dao động với biên độ giảm dần khi tỉ lệ % Co trong mẫu tăng.

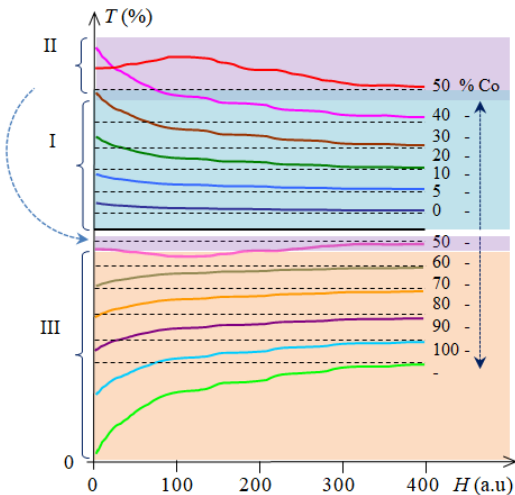
+ Thứ hai, biên độ dao động diễn ra mạnh ở những màng mỏng có tính chất siêu thuận từ ($<27\%Co$). Mức độ truyền qua thay đổi khoảng 30% tại bước sóng 560 nm và lên tới hơn 40% tại bước sóng 660 nm.



Hình 3: Sự biến thiên có dạng dao động tắt dần theo tỉ lệ Co.

+ Có thể giải thích kết quả này như sau: Các mẫu siêu thuận từ ứng với kích thước hạt đủ nhỏ (khoảng vài chục nm) so với bước sóng của ánh sáng đã làm kích thích trạng thái phân cực plasmon. Đây chính là hiện tượng plasmonic từ tính.

+ Đặc điểm cuối cùng ta nhận thấy ở đây là biên độ dao động tăng lên đôi chút khi có sự tác dụng của từ trường.



Hình 4: Hệ số truyền qua màng mỏng Co-Al₂O₃ phụ thuộc vào tỉ lệ Co.

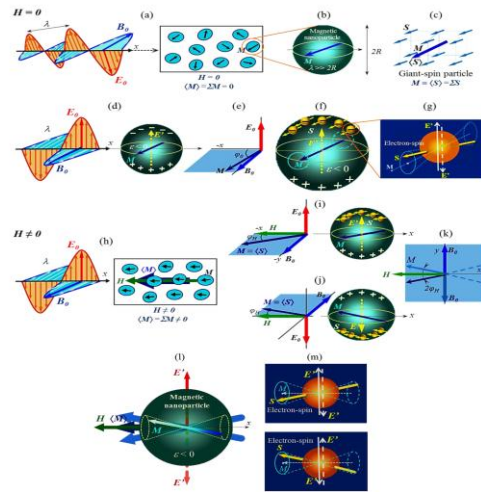
Hình 4 là đồ thị tổng kết lại toàn bộ các kết quả khảo sát sự phụ thuộc của hệ số truyền qua T vào tỉ lệ % Co và từ trường ngoài thể hiện rõ 03 xu hướng thay đổi của hệ số truyền qua T vào từ trường ngoài và tỉ lệ % Co trong mẫu ứng với 3 miền I, II và III.

Đối với các mẫu có tỉ lệ Co thấp ($x < 49\%$) ứng với miền I, hệ số truyền qua T giảm dần tới một mức sàn truyền qua (T_f); đối với các mẫu có tỉ

lệ Co cao ($x > 49\%$) ứng với miền III, hệ số truyền qua T tăng dần tới một mức trần (T_c); đối với mẫu $x = 49\%$ tổ hợp cả hai xu hướng trên ứng với miền II. Cụ thể: Với từ trường yếu ($H < 100$ Oe) hệ số truyền qua tăng lên đến một mức trần T_c ; rồi sau đó lại giảm đến một mức nền T_f khi từ trường mạnh ($H > 100$ Oe).

+ Thứ hai, mức trần T_c và mức sàn T_f cũng thay đổi theo tỉ lệ Co. Cụ thể, mức sàn T_f tăng và mức trần T_c giảm khi tỉ lệ % Co tăng lên.

+ Các kết quả trên đây có thể giải thích bằng lí thuyết tương tác magnon-photon được mô tả ở Hình 5 [15].



Hình 5: Mô hình giải thích tương tác magnon-plasmon [15].

+ Khi không có từ trường ($H = 0$), mômen từ của các hạt trong mẫu màng mỏng sắp xếp lộn xộn nên mômen từ tổng hợp bằng 0. Dưới tác động của thành phần điện trường E_0 trong sóng điện từ, hạt nano Co bị phân cực tạo nên sự tích điện địa phương trong hạt làm xuất hiện điện trường E' của hạt. Do kích thước hạt nhỏ nên hằng số điện môi $\epsilon < 0$ dẫn tới E' cùng chiều với E_0 làm cho ánh sáng được tăng cường.

+ Khi có từ trường ($H \neq 0$), mômen từ của các hạt trong mẫu định hướng theo từ trường ngoài. Hạt Co vẫn bị phân cực do thành phần điện trường E_0 của sóng ánh sáng làm cho ánh sáng được tăng cường. Tuy nhiên, thành phần từ trường B_0 của sóng ánh sáng liên tục đổi chiều nên vector cảm ứng từ tổng hợp giữa từ trường ngoài (B) và B_0 là một vector chuyển động theo kiểu “tuế sai”.

4. Kết luận

Hiện tượng phụ thuộc tỉ lệ thành phần Co của hệ số truyền qua màng mỏng dạng hạt Co-Ag có dạng dao động đã được phát hiện. Hơn nữa, biên độ dao động lớn nhất ứng với các mẫu có tỉ lệ Co nằm trong vùng siêu thuận từ. Đồng thời, tính chất truyền qua màng mỏng từ dạng hạt nano trên nền điện môi Co-Al₂O₃ của chùm tia laser đỏ, có bước sóng 632,8 nm, dưới tác dụng của từ trường

ngoài cho thấy hành vi phụ thuộc từ trường được quy định bởi tỉ lệ % nguyên tử Co trong màng (x):

- + Với $x < 49\%$, sự truyền qua giảm theo H .
- + Với $x > 49\%$, sự truyền qua tăng theo H .
- + Với $x \sim 49\%$, tổ hợp cả hai xu hướng trên.

Các kết quả trên đây là biểu hiện của hiện tượng plasmon từ tính của các hạt nano Co trong màng mỏng dạng hạt Co-Ag và Co-Al₂O₃.

Tài liệu tham khảo

- [1] Xiaohua Huang & Prashant K. Jain & Ivan H. El-Sayed & Mostafa A. El-Sayed (1990) *Plasmonic photothermal therapy (PPTT) using gold nanoparticles*. Lasers Med Sci (2008) 23, pp. 217-228.
- [2] Xiaohua Huang & Prashant K. Jain & Ivan H. El-Sayed & Mostafa A. El-Sayed (1999) *Near-field optical microscopy of two-dimensional photonic and plasmonic crystals*. Phys. Rev. B **59**, 2454.
- [3] M. A. Cazalilla, J. S. Dolado, A. Rubio, and P. M. Echenique (2000) *Plasmonic excitations in noble metals: The case of Ag*. Phys. Rev. B **61**, 8033.
- [4] Stefan A. Maier, Mark L. Brongersma, and Harry A. Atwater (2001) *Electromagnetic energy transport along arrays of closely spaced metal rods as an analogue to plasmonic devices*. Appl. Phys. Lett. **78**, 16.
- [5] Clarence Charnay, Allen Lee, Shi-Qing Man, Cristin E. Moran, Corey Radloff, R. Kelley Bradley and Naomi J. Halas (2003) *Reduced Symmetry Metallodielectric Nanoparticles: Chemical Synthesis and Plasmonic Properties*. J. Phys. Chem. B 2003, 107, 30, 7327-7333.
- [6] Werayut Srituravanich, Nicholas Fang, Cheng Sun, Qi Luo, and Xiang Zhang* (2004) *Plasmonic Nanolithography*. Nano Lett., Vol. 4, No. 6, pp.1085-1088.
- [7] Andrea Alù and Nader Engheta (2005) *Achieving transparency with plasmonic and metamaterial coatings*. Phys. Rev. E **72**, 016623.
- [8] Hui Wang, Daniel W. Brandl, Fei Le, Peter Nordlander and Naomi J. Halas (2006) *Nanorice: A Hybrid Plasmonic Nanostructure*. Nano Lett. 2006, 6, 4, 827-832.
- [9] Alexander O. Govorov (2010) *Semiconductor-metal nanoparticle molecules in a magnetic field: Spin-plasmon and exciton-plasmon interactions*. Phys. Rev. B **82**, 155322.
- [10] Ian Appelbaum, H. D. Drew, and M. S. Fuhrer (2011) *Proposal for a topological plasmon spin rectifier*. Appl. Phys. Lett. **98**, 023103.
- [11] S.Demirtas, M.Parlak (2012) *Spin pumping effects for Co/Ag films*. J. Appl. Phys. 112, 5, pp.10-18.
- [12] J.Q.Xiao, C.L.Chien (1992) *Giant magnetoresistance in the granular Co-Ag system*. Phys. Rev. B. 46, 14, pp.9266-9269.
- [13] C.L.Chien, J.Q.Xiao, J.S.Jiang (1998) *Giant negative magnetoresistance in granular ferromagnetic systems*. J. Appl. Phys. 73, 10, pp.57-62.
- [14] V.Singh, P.Aghamkar (2014) *Surface plasmon enhanced third-order optical nonlinearity of Ag nanocomposite film*. Appl. Phys. Lett. 104, 11, pp.111-116.
- [15] Giap Van Cuong, Tran Trung, Nguyen Anh Tuan, Nguyen Anh Tue (2017) *Cobalt content- and magnetic field-dependent transmission behaviors of red laser light for Co-Al₂O₃ granular thin films*. Optical Materials, Volume 69, pp.303-311.

**PLASMON-SPIN PHENOMENA OF NANOPARTICLES COBALT
IN CO-AG AND CO-AL₂O₃ THIN FILMS**

Abstract: Plasmonic phenomena have been studied for a long time in the world [1-8]. However, the number of papers on spin-plasmonic phenomena is relatively limited [9, 10]. Therefore, the research problem of this paper is new. These are very basic physical phenomena of the photon-spin interactions, photon-magnon interactions. We have used two methods of high-frequency sputtering and evaporation in a vacuum to fabricate nanoparticles Cobalt on Co-Ag và Co-Al₂O₃ thin films. Transmission spectra and reflection spectra of Co-Ag and Co-Al₂O₃ thin films there are manifestations quite clearly modulated by the nanomagnetic nature in the material, specifically the ferromagnetic nature of the nanoparticles Co, depends on the proportion of ferromagnetic components in the thin film, also affected by external magnetic fields. The nano-optical properties can indirectly partly reflect the properties of spin-plasmonic phenomena and spin-photon interaction.

Keywords: spinplasmonics, plasmonics, nanoparticles.