

**Tài liệu này được dịch sang tiếng việt bởi:**



Xem thêm các tài liệu đã dịch sang tiếng Việt của chúng tôi tại:

<http://mientayvn.com/Tai_lieu_da_dich.html>

Dịch tài liệu của bạn:

<http://mientayvn.com/Tim_hieu_ve_dich_vu_bang_cach_doc.html>

Tìm kiếm bản gốc tại đây:

<https://drive.google.com/drive/folders/1Zjz7DM7W4iV1qojox5kc_UUiNpx2qSHR?usp=sharing>

|  |  |
| --- | --- |
| Gold nanocrescents for remotely measuring and controlling local temperature  We present a novel technique to remotely measure and control the local temperature within a medium. This technique is based on the observation of the rotational Brownian motion of gold nanocrescent particles, which possess a strong anisotropic light interaction due to their plasmonic properties. Rotational scattering correlation spectroscopy performed on a single nanoparticle is able to determine the local temperature with high accuracy. These nano-thermometers can simultaneously play the role of nano-heaters when absorbing the light of a focused laser beam.  The ability to control and measure the local temperature of a medium at the nanometer scale is of substantial value in numerous nanotechnology applications, including nanoelec¬tronics [1], spectroscopy [2], nanofluidics [3-6], nanoscale catalysis [7] and photothermal therapeutic medicine [8-12]. Recently, various strategies have been developed to either perform high-resolution thermal mapping (for example, scanning thermal microscopy [13], fluorescence polarization anisotropy [14] and fluorescent molecular/polymeric ther¬mometers [15-20]) or remotely control the local temperature using plasmonic [21-24] or magnetic nanoparticles [25-27]. However, none of these techniques can achieve both local temperature sensing and heating.  In this paper, we show that nanoparticles consisting of gold semi-coated dielectric nanobeads, currently called nanocrescents, can simultaneously act as thermal nano¬sensors and local nano-heaters that can be remotely activated by light focusing. Such dual functionality is made possible by taking advantage of the strong anisotropic light interaction afforded by their plasmonic resonances.  The local temperature is measured by analyzing the rotational Brownian motion of a single nanocrescent using rotational scattering correlation spectroscopy (RSCS). Because of the particle’s anisotropic optical signature, rotational diffusion makes it blink erratically, and the autocorrelation of this signal enables determination of the local temperature of the medium surrounding the particle. Measuring rotational diffusion instead of translational diffusion has many advantages. For example, it can be performed in liquid flows or applied in complex media where translational diffusion is impeded.  The plasmonic properties of gold nanoparticles with nanocrescent shapes have been studied in detail [3, 28-31]. They possess plasmonic resonances associated with their anisotropic shape that depend on their relative orientation with the incident light. At these resonant wavelengths, they have large scattering and absorption cross-sections. Their extinction spectra possess two characteristic plasmon resonances associated with an axial and a transverse red-shifted mode. Their strong scattering makes it possible to easily track a single nanoparticle and to deduce its orientation [32]. Because of its strong absorption, an individual particle can be used as an efficient nano-heater generating a local hyperthermia when illuminated.  Here, we provide evidence that nanocrescents can be used to remotely control the heating of their surroundings and that RSCS is an efficient way to measure the temperature increase. After briefly describing the theoretical model used to deduce the temperature from the experimental intensity autocorrelation functions, we present the experimental setup that we used to measure and control the local temperature at the single-nanoparticle level and discuss the results.  Let us consider a particle of hydrodynamical volume Vh undergoing Brownian motion in a medium of viscosity n (T) at temperature T. The particle scatters light in the direction of observation z defined in the local frame of reference of the particle by the angles ft = (&,<p) where 0 is the polar angle and (p the azimuthal angle. Because of rotational diffusion, ft(t) fluctuates with time, and we measure the resulting fluctuation intensity /(ft(t)) = /(t).  RSCS consists of analyzing the autocorrelation function G(T) = {/(t)/(t + t)) of this intensity /(t). Here, the brackets denote averaging either over time or over a large number of particles. G(t) depends on both the rotational diffusion properties and the geometry of the experimental setup. When stationary, the autocorrelation function G(t) can be expressed as:  where p(ft, t; ft', t') is the joint probability density for a nanoparticle to have the direction ft at time t and the direction ft' at time t'.  It is convenient to express p(ft, 0; ft', t) as the product p(ft)p(ft', t |ft), where p(ft) = 1/4n is the equiprobability density for a nanoparticle to be in the direction ft at any time and p(ft', t |ft) is the conditional probability density for the nanoparticle to be in the direction ft' at time t , knowing that the direction was ft at the initial time. The latter probability is, by definition, the standard Green function for the rotational diffusion equation [33, 34]. Moreover, for an axially symmetric particle /(ft) can be expanded in Yl0 spherical harmonics:  (2)  l=0  with cl the expansion coefficients of /(ft) in the orthonormal basis of the spherical harmonics. Inserting this expression and the explicit expression for p(ft', T |ft) in equation (1), we obtain after some calculations using the addition theorem [35] and the orthogonality relations of the spherical harmonics:  where kB is the Boltzmann constant.  The angular scattering function /(ft), which can be determined experimentally, is the signature of the particle  shape and determines the autocorrelation function shape. G(T) is a multi-exponential function with the relaxation time Tr as the only parameter. According to the theoretical expression of Tr, one can deduce the local temperature by fitting the experimental autocorrelation intensity function with equation (3) knowing the hydrodynamical volume Vh and the surrounding viscosity n(T). From the general expression of equation (3), two usual approximations can be performed: cosine emission with /(ft) a cos 0 (for all l = 1, cl = 0), which implies that G(T) becomes G1=1(T) = e-T/Tr, and the dipolar emission with /(ft) a cos20 (for all l = 2, cl = 0), which implies that G(T) becomes G1=2(T) = e-3T/Tr [30].  Nanocrescents are synthesized by a nanosphere lithogra¬phy technique. A thin layer of metal is deposited on dielectric nanoparticles spin-coated on a glass substrate [3, 32, 36]. Figure 1(a) shows a schematic of the principle. For magnetic purification, we use magnetic nanospheres (Estapor, Merck Chimie SAS) consisting of a polystyrene matrix of 140 ± 20 nm that encapsulates 8 nm superparamagnetic iron oxide nanocrystals. A 30-nm-thick gold layer is deposited on a 2-nm-thick adhesion layer of chromium by electron beam evaporation. The nanocrescents are then removed from the glass slide via gentle brushing and sonication in an aqueous solution [30, 31]. The obtained dilute nanocrescent colloid is washed by magnetic purification and replacing the supernatant with clean distilled water. Finally, the colloidal solution is concentrated into a small volume of 100% glycerol. We chose glycerol for its high viscosity and strong temperature dependency. Figure 1(b) shows a transmission electron microscope (TEM) image of an individual nanocrescent and its schematic representation. We can distinguish the gold semi-shell, the polymeric nanosphere and the magnetic nanocrystals embedded in the polymer. TEM images are used to confirm the size distribution of the nanocrescents given in the product specifications.  Figure 1(c) shows the experimental setup used to measure the RSCS of the nanocrescents and to induce hyperthermia. The sample is observed using a microscope equipped with a standard transmission dark-field configuration with standard white-source illumination (metal halide). The EM-CCD camera (Andor Ixon) is used in a cropped sensor-mode configuration to reach high-frequency acquisition rates of up to 400 Hz. The observation area is defined by a mask positioned in the image plane. The temperature of the sample is controlled by a Peltier module and measured by a thermocouple. Photothermal experiments are performed using a continuous 150 mW YAG laser emitting at 532 nm and focused on the sample.  To measure the local temperature using RSCS, it is necessary to evaluate the hydrodynamic volume Vh of the nanocrescents (see equation (4)). This is performed using translational particle diffusion measurements. According to the Stokes-Einstein relation, the mean square displacement is given by {Ar2(T)) = 4DtT where T is the time elapsed andDt is the translational diffusion constant. Assuming a spherical shape for the nanocrescents, Dt(T) = kBT/3nn(T)dh, where = (6Vh/n)1/3 is the hydrodynamical diameter. {Ar2(T)) is measured at room temperature, using a free particle-tracking  algorithm developed by the MOSAIC Group [37]. Figure 2(a) shows two typical Brownian trajectories of nanocrescents tracked with this algorithm. Averaging over 24 nanocrescents, we found dh = 168 ± 40 nm, which is in good agreement with the geometric size distribution observed in TEM images.  We now focus on the rotational Brownian dynamics of the nanocrescents. Figure 2(b) shows a typical fluctuating signal I(t) recorded for an individual nanocrescent. The rotational diffusion causes this signal to blink erratically because of its anisotropic optical response. Sharp maxima alternating with longer low-intensity periods are present. Assuming that each rotational configuration is equiprobable during Brownian motion, we conclude that there are few orientations for which a nanocrescent illuminates the camera. The angular scattering intensity 1(0.) = 1(9) thus possesses one or several sharp maxima. Previous studies have shown that gold nanocrescents deposited on transparent dielectric nanobeads possess a dipolar angular scattering intensity with two symmetric maxima along their symmetry axis [36]. We therefore compare the scattering intensities of the nanocrescents when they are oriented with their gold-coated side up or down. The nanocrescents are removed from the glass slide by curing and peeling a cast poly(dimethylsiloxane) (PDMS) polymer film to preserve their orientation [38]. The emission collected from the uncoated side (9 = n) is almost completely dampened compared with that of the gold side (9 = 0), suggesting strong absorption by the magnetic nanocrystals. Thus, the expected dipolar symmetry is modified into a unidirectional emission lobe, i.e. 1(9) presents only one maximum at 9 = 0.  More details on the shape of this emission lobe can be obtained from the histogram of the intensity curve I(t) using the equiprobability of orientation of the nanocrescents [30]. Figure 2(c) shows a typical histogram for a rotating nanocrescent and (inset) the associated emission lobe profile 1(9) in polar coordinates (solid line). The high probability of recording low intensities in the histogram implies strong emission anisotropy in the angular scattering function. For comparison, the case of a cosine emission profile defined by 1(9) a cos 9 + 1 is also shown (dashed line); it would result in an equiprobable distribution. In the following discussion, we use the experimental function 1(9) deduced from this procedure to fit the autocorrelation function G(t).  Figure 2(d) shows the autocorrelation function G(t) of the measured intensity I(t). It is a decreasing function that becomes zero after a characteristic time of the order of Tr. This experimental function is fitted both with the theoretical expression given by equation (3) using the experimental profile of 1(9) (solid line) and with the simple mono-exponential function associated with the cosine approximation (dashed line). The mono-exponential fit does not accurately reproduce the experimental shape of G(T); in particular, the decaying slope is too steep. Conversely, the fit using the experimental emission profile accurately reproduces the autocorrelation curve. Moreover, the fitting values obtained for Tr using the complete theoretical expression given in equation (3) are approximately 35-40% larger than the ones obtained from the mono-exponential approximation. In the following experiments, all the autocorrelation functions will therefore be analyzed using the full theoretical expression.  We now focus on temperature measurements using RSCS. We control the temperature of the sample using a Peltier module and measure the autocorrelation functions, from which we deduce the temperature of the nanocrescent. We perform a series of temperature measurements on the same single nanocrescent for various temperatures up to 41 °C.  Figure 3(a) presents the obtained autocorrelation func¬tions and the corresponding fitting curves for this individual particle at various temperatures. Figure 3(b) shows the deduced relaxation time Tr (squares) obtained from the fit of the autocorrelation curves as a function of the reference temperature given by a thermocouple. As expected, the correlation time decreases when the temperature increases. For high temperatures, it is difficult to maintain the same particle in the field of the camera because of its increased translational motion. Hence, we have performed the same type of measurements but have averaged them over several nanocrescents (typically ten particles) for temperatures up to 61 °C (triangles). The deduced relaxation times Tr as a function of the temperature match those obtained using a single particle but have higher uncertainties because of the nanoparticle size dispersion. These experimental data are compared in figure 3(b) (solid line) with the theoretical curve for Tr(T), which was deduced according to equation (4) by replacing Vh with its mean value, as given by the translational diffusion measurements. The strong temperature dependence of the glycerol viscosity is taken into account using the data given in [39]. The theoretical predictions are in good quantitative agreement with the experimental results. This demonstrates the relevance of the RSCS technique performed with nanocrescents to measure accurately the local  temperature (with a potential precision of approximately 1 ° C uncertainty).  We now focus on the local heating properties of a nanocrescent. To induce an efficient photothermic effect with a nanocrescent, it is necessary to illuminate the nanocrescent at the plasmon resonance wavelength. A spectrometer is adapted for the experimental setup described in figure 1(c) to measure the scattering spectra of individual nanocrescents embedded in a PDMS slab. A typical spectrum is presented in figure 4(a). Because of their anisotropic shape, nanocrescents possess two strong resonances that can be attributed to a longitudinal electric excitation for the peak centered on 550 nm and to a transverse excitation for the red-shifted peak (as schematically indicated in the figure) [36]. The two peak positions are defined with a precision of approximately 20 nm, depending on the nanoparticle size and shape in the colloidal solution.  To heat the nanocrescent, we focused a laser at 532 nm, corresponding to the wavelength of the green plasmon resonance (as indicated in figure 4(a)). The strong nanocrescent absorption at the plasmon resonance induces an inhomogeneous temperature distribution because glycerol does not absorb light at this wavelength. Using RSCS, we evaluated the local temperature increase of an individual nanocrescent as a function of the laser power. Figure 4(b) shows the measured local temperature reached by the nanoparticle as a function of the incident laser power, as deduced from the fit of the autocorrelation functions presented in the inset image. The temperature increases linearly with the laser power as expected. The measured slope is approximately 3.3 ± 0.2 °C/105 W cm-2. The local temperature increases up to approximately 10 °C in the experiment.  The temperature increase is, to a first approximation, proportional to the heat dissipation of the nanocrescent. The measured temperature using RSCS is directly related to the nanoparticle temperature. However, the exact relation is not straightforward because of the anisotropy of the nanocrescent and the highly inhomogeneous temperature profile. In equation (5), we use this temperature measurement to estimate the absorption cross-section of the nanocrescent aabs. The rotational dynamics are expected to depend on the local temperature of the surrounding medium within a characteristic distance of the hydrodynamic radius. The heat dissipation rate is given by the product of the absorption cross-section aabs and the incident laser power P. If we consider the nanocrescents as spherical and homogeneous nanoparticles, the temperature increase AT(r) at r > R outside the particle of radius R is given by [21]:  P CTabs  AT(r) = —— with r > R (5)  4n kr  where k is the thermal conductivity of the environment.  In the case of glycerol, kgiy = 0.28 W m-1 K-1. Considering the experimentally measured temperature at the hydrodynamical radius, we obtain an absorption cross-section of aabs = 9.6 x 10-12 cm2 at the laser wavelength, which corresponds to about 5% of the actual geometric cross-section. It is interesting to compare this result with Mie calculations for nano-shells that give an absorption cross-section similar to the geometric one when excited at resonance. In our case, the smaller result probably originates from the detuning between the laser wavelength and the plasmon resonance maximum. Note that RSCS is particularly well suited to induce the photothermic effect on a single nanoparticle. Because of the very small volume of the surrounding medium involved in performing the measurement, the relative temperature increase is high and therefore very sensitive to the temperature increase of the nanoparticle.  In conclusion, we have shown that nanocrescents can be used as nano-thermometers and nano-heaters. Temperature measurements using RSCS can be performed on a single nanoparticle with a precision of approximately one degree. Photothermal effects and local temperature increases can be measured accurately and remotely. This technique should also find applications in nano-rheology. Independent observations of both translational and rotational Brownian diffusions could be of great interest for the study of complex and multiscale systems such as heterogeneous fluids. In such systems, the  rotational diffusion, affected by the only particle vicinity, is not necessarily correlated with the translational motion, which probes a larger volume of the environment. In addition, the ability of nanocrescents to act as nano-sources makes them promising tools with which to perform active nano-rheology, with local temperature control, in complex materials and, in particular, in living systems. | Ứng dụng các hạt nanno vàng hình bán nguyệt để đo và điều khiển từ xa nhiệt độ cục bộ  Chúng tôi trình bày một kỹ thuật mới để đo và điều khiển từ xa nhiệt độ cục bộ trong môi trường. Kỹ thuật này dựa vào việc quan sát chuyển động quay dạng Brown của các hạt nano vàng hình bán nguyệt, những hạt nano này có tương tác dị hướng mạnh với ánh sáng do các tính chất plasmonic của chúng. Chúng tôi tiến hành phương pháp quang phổ tán xạ quay trên từng hạt nano để xác định nhiệt cục bộ với độ chính xác cao. Những nhiệt kế nano này cũng đóng vai trò là các bộ cấp nhiệt nano khi hấp thụ chùm sáng laser hội tụ (điều tiêu).  Khả năng kiểm soát và đo nhiệt cục bộ của môi trường ở thang nano đóng vai trò cực kỳ quan trọng trong nhiều ứng dụng của lĩnh vực công nghệ nano, chẳng hạn như điện tử học nano [1], quang phổ học [2], chất lỏng nano [3-6], xúc tác nano [7], liệu pháp điều trị quang nhiệt [8-12]. Gần đây, các nhà nghiên cứu đã xây dựng nhiều phương pháp khác nhau ghi ảnh nhiệt với độ phân giải cao (chẳng hạn như kính hiển vi nhiệt quét [13],nhiệt kế bất đẳng hướng phân cực huỳnh quang [14] và nhiệt kế phân tử/polyme huỳnh quang [15-20]) hoặc điều khiển từ xa nhiệt cục bộ bằng các hạt nano plasmonic [21-24] hoặc các hạt nano từ [25-27]. Tuy nhiên, chưa có kỹ thuật nào có thể vừa cảm biến nhiệt cục bộ (ghi nhận nhiệt) và đồng thời cấp nhiệt.  Trong bài báo này, chúng tôi chứng tỏ rằng các hạt nano điện môi được phủ vàng phân nửa diện tích (hiện nay chúng ta gọi là các hạt nano bán nguyệt) có thể vừa đóng vai trò là các cảm biến nhiệt và đóng vai trò là các bộ cấp nhiệt nano cục bộ, những hạt này có thể kích hoạt từ xa bằng chùm sáng hội tụ mạnh (laser). Chúng tôi tạo ra hai chức năng này trên cơ sở tận dụng tính chất tương tác ánh sáng bất đẳng hướng mạnh do cộng hưởng plasmonic của chúng.  Nhiệt độ cục bộ được đo bằng cách phân tích chuyển động quay Brown của từng hạt nano hình bán nguyệt thông qua phương pháp quang phổ tán xạ quay (RSCS). Do tính bất đẳng hướng quang học của hạt, sự rotational diffusion (khuếch tán quay, xáo trộn quay) có thể làm tín hiệu nhấp nháy, và hệ số tự tương quan của tín hiệu này có thể xác định nhiệt cục bộ của môi trường xung quanh hạt. Đo rotational diffusion (khuếch tán quay) có nhiều ưu điểm hơn so với đo translational diffusion (khuếch tán tịnh tiến). Chẳng hạn phương pháp này có thể tiến hành trong các dòng chất lỏng hoặc áp dụng trong môi trường phức tạp gây cản trở translational diffusion (khuếch tán tịnh tiến).  Có một số công trình đã nghiên cứu rất chi tiết tính chất plasmonic của các hạt nano vàng hình bán nguyệt chẳng hạn như [3, 28-31]. Chúng có cộng hưởng plasmonic do sự bất đẳng hưởng về hình dạng, và hiện tượng cộng hưởng này phụ thuộc vào định hướng tương đối của chúng so với ánh sáng tới. Tại những bước sóng cộng hưởng này, chúng có tiết diện hấp thụ và tán xạ lớn. Phổ tắt dần của chúng có hai cộng hưởng plasmon đặc trưng ứng với mode dịch chuyển đỏ ngang và dọc theo trục. Hiện tượng tán xạ mạnh giúp chúng ta có thể dễ dàng theo vết của một hạt nano đơn và suy ra định hướng của nó [32]. Do tính hấp thụ mạnh, từng hạt đóng vai trò như một bộ cấp nhiệt hiệu quả tạo ra một vùng nhiệt độ cục bộ trong cơ thể khi được chiếu sáng.  Ở đây, chúng tôi chứng minh rằng có thể sử dụng các hạt nano bán nguyệt để điều khiển từ xa quá trình cấp nhiệt cho môi trường xung quanh và RSCS là một phương pháp hiệu quả để đo độ tăng nhiệt. Sau khi mô tả ngắn gọn mô hình lý thuyết được dùng để suy ra nhiệt độ từ các hàm tự tương quan cường độ thực nghiệm, chúng tôi trình bày bố trí thí nghiệm để đo và điều khiển nhiệt độ cục bộ ở mức từng hạt nano đơn lẻ và phân tích kết quả.  Chúng ta hãy xét một hạt có thể tích thủy động học Vh chuyển động Brown trong môi trường có độ nhớt n(T) ở nhiệt độ T. Hạt tán xạ ánh sáng theo hướng tạo với hướng quan sát z một góc ft = (&,<p) (hướng quan sát này được định nghĩa trong hệ quy chiếu cục bộ của hạt), trong đó …là góc cực và…là góc phương vị. Do rotational diffusion, ft(t) biến đổi theo thời gian, nên chúng ta có thể đo cường độ dao động cuối cùng /(ft(t)) = /(t).  RSCS bao gồm việc phân tích hàm tự tương quan G(T) = {/(t)/(t + t)) của cường độ /(t). Ở đây dấu ngoặc nhọn chỉ trung bình theo thời gian hoặc trung bình trên số lượng hạt lớn G(t) phụ thuộc vào cả tính chất khuếch tán quay và dạng hình học của bố trí thí nghiệm. Trong trường hợp tĩnh, hàm tự tương quan G(t) có thể biểu diễn dưới dạng:  Trong đó p(ft, t; ft', t') là hàm xác suất hợp của hạt nano có hướng ft tại thời điểm t và hướng ft' tại thời điểm t'.  Để thuận tiện, chúng ta biểu diễn p(ft, 0; ft', t) thành tích p(ft)p(ft', t |ft), trong đó p(ft) = 1/4n là mật độ đẳng xác suất của hạt nano theo hướng ft tại bất kỳ thời điểm nào và p(ft', t |ft) là mật độ xác suất có điều kiện của hạt nano theo hướng ft' tại thời điểm t, giả sử hướng tại thời điểm ban đầu là ft. Theo định nghĩa, xác suất sau là hàm Green tiêu chuẩn của phương trình khuếch tán quay [33, 34]. Hơn nữa, đối với một hạt đối xứng trục, chúng ta có thể khai triển /(ft) thành các hàm điều hòa cầu Yl0:  (2)  l=0  trong đó cl là hệ số khai triển của /(ft) trong cơ sở trực chuẩn của các hàm điều hòa cầu. Thế biểu thức này và biểu thức tường minh của p(ft', T |ft) vào phương trình (1), sau một số tính toán bằng định lý cộng [35] và các hệ thức trực giao của hàm điều hòa cầu, chúng ta thu được:  Trong đó kB là hằng số Boltzmann.  Hàm tán xạ góc /(ft) có thể xác định bằng thực nghiệm, đặc trưng cho từng hình dạng hạt và xác định hình dạng của hàm tự tương quan.  G(T) là hàm đa mũ có tham số duy nhất là thời gian phục hồi Tr. Theo biểu thức lý thuyết của Tr, chúng ta có thể suy ra nhiệt độ cục bộ bằng cách khớp hàm cường độ tự tương quan thực nghiệm với phương trình (3) khi đã biết thể tích thủy động học Vh và độ nhớt xung quanh n(T). Từ biểu thức tổng quát của phương trình (3), chúng ta có thể thực hiện hai giả thuyết gần đúng: phát xạ cosin với /(ft) a cos 0 (đối với tất cả l = 1, cl = 0), tức là G(T) chuyển thành G1=1(T) = e-T/Tr, và phát xạ lưỡng cực với /(ft) a cos20 (đối với tất cả l = 2, cl = 0), tức là G(T) chuyển thành G1=2(T) = e-3T/Tr [30].  Các hạt nano hình bán nguyệt được tổng hợp bằng kỹ thuật quang khắc hình cầu nano. Đầu tiên ta cho phủ quay các hạt nano lên đế thủy tinh, sau đó lắng tụ một lớp kim loại mỏng lên hệ này [3, 32, 36]. Hình 1(a) biểu diễn sơ đồ nguyên lý. Để tinh lọc từ trường, chúng tôi sử dụng các hạt nano từ tính (Estapor, Merck Chimie SAS) bao gồm nền polystyrene 140 ± 20 nm đóng nắp các tinh thể nano oxit sắt siêu thuận từ 8 nm. Một lớp vàng dày 30 nm được lắp tụ trên lớp crom kết dính dày 2 nm bằng phương pháp bốc hơi chùm tia điện tử. Sau đó, các hạt nano bán nguyệt được loại bỏ khỏi tấm thủy tinh bằng cách chảy nhẹ nhàng và đánh siêu âm trong dung dịch lỏng [30, 31]. Hạt keo nano bán nguyệt loãng được rửa bằng phương pháp tinh chế từ tính và thay thế lớp phủ ở trên bằng nước cất sạch. Cuối cùng, dung dịch keo được cô đặc thành một thể tích nhỏ 100% glycerol. Chúng tôi chọn glycerol vì chất này có độ nhớt cao và phụ thuộc nhiệt độ mạnh. Hình 1(b) biểu diễn ảnh kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) của từng hạt nano bán nguyệt và cấu trúc của nó.Chúng ta có thể thấy rõ vỏ bán nguyệt bằng vàng, hình cầu nano polyme và các tinh thể từ nhúng trong polyme. Ảnh TEM được dùng để xác nhận phân bố kích thước của các hạt nano bán nguyệt phục vụ cho việc mô tả chúng.  Hình 1(c) biểu diễn bố trí thí nghiệm để đo RSCS của các hạt nano bán nguyệt và làm tăng thân nhiệt. Mẫu được quan sát bằng kính hiển vi cấu hình trường tối tuyền qua tiêu chuẩn với nguồn ánh sáng trắng tiêu chuẩn (kim loại halogen). Chúng tôi dùng camera EM-CCD (Andor Ixon) cấu hình chế độ cảm biến để đạt tốc độ thu nhận tần số cao đến 400 Hz. Khu vực quan sát được xác định bằng một mặt nạ nằm ở mặt phẳng ảnh. Nhiệt độ của mẫu được điều khiển bằng mô đun Peltier và được đo bằng cặp nhiệt kế. Các thí nghiệm quang nhiệt được tiến hành bằng laser YAG 150 mW bước sóng 532 nm và tập trung vào mẫu.  Để đo nhiệt độ cục bộ bằng RSCS, chúng ta cần phải đánh giá thể tích thủy động học Vh của các hạt nano bán nguyệt (xem phương trình (4)). Để thực hiện nđiều này chúng ta sử dụng các phép đo khuếch tán hạt tịnh tiến. Theo hệ thực Stokes-Einstein, độ dịch chuyển bình phương trung bình được tính bằng công thức {Ar2(T)) = 4DtT trong đó T là khoảng thời gian trôi qua và Dt là hằng số khuếch tán tịnh tiến. Giả sử các hạt nano bán nguyệt có dạng hình cầu, Dt(T) = kBT/3nn(T)dh, trong đó = (6Vh/n)1/3 là đường kính thủy động học. {Ar2(T)) được đo ở nhiệt độ phòng, dùng thuật toán ghi vết hạt tự do của nhóm MOSAIC [37]. Hình 2(a) biểu diễn các quỹ đạo chuyển động Brown của các hạt nano bán nguyệt được ghi vết bằng thuật toán này, chúng ta tìm được dh = 168 ± 40 nm, kết quả này phù hợp rất tốt với phân bố kích thước hình học được ghi nhận bằng các ảnh TEM.  Bây giờ chúng ta tập trung vào tính chất động lực học của chuyển động quay Brown của các hạt nano bán nguyệt. Hình 2(b) biểu diễn tín hiệu dao động điển hình I(t) của một hạt nano bán nguyệt. Rotational diffusion làm cho tín hiệu này nhấp nháy (dao động, biến đổi nhanh) do đáp ứng quang học bất đẳng hướng của nó. Cực đại thay đổi theo các chu kỳ cường độ thấp dài hơn xuất hiện. |