Photo-induced optical rotation by excitation of higher modes in AgCl-Ag nano-layers under elliptically polarized light irradiation

Bentolhoda Assakereh*, Arashmid Nahal

Atomic and Molecular physics group, Department of Physics, College of Science, University of Tehran, Tehran, Iran Received: 29.09.2020 Final revised: 05.08.2021 Accepted: 17.10.2021 doi 10.22055/JRMBS.2021.17270

Abstract

In the present work, formation of self-organized periodic nanostructures (SPN) in photosensitive thick (h ~ 280 nm) slab waveguide AgCl films doped by silver nanoparticles is studied. The SPN is formed as a result of interaction of a elliptically polarized light, incident light, with the AgCl-Ag layer. Formation of such nanostructure induces in the film an optical activity, which is due to the induced anisotropy and the chirality of the formed structure. The greater thickness of the layer results in excitation of higher mode TE_1 of the slab waveguide which leads to simultaneous formation of two SPN associated with TE_0 and TE_1 modes, accordingly. It is shown that, irradiation by elliptically polarized light results in more complicated SPN with enhanced chirality, which creates stronger induced optical activity of the samples.

Keywords: Photosensitive nano-layers, Ag nanoparticles, Self-organized periodic nanostructures, Chirality, Optical activity



بررسی چرخش اپتیکی القا شده در نانولایههای موجبری AgCl-Ag با تحریک مدهای مرتبه بالاتر در قطبش بیضوی نور فرودی

بنت الهدى عساكره*، ارشميد نهال

گروه فیزیک اتمی و مولکولی، دانشکده فیزیک، دانشگاه تهران، تهران، ایران دریافت: 1399/07/08 ویرایش نهائی: 1400/05/14 پذیرش: 1400/07/25 10.22055/JRMBS.2021.17270

چکیدہ

در این مقاله، تأثیر شکل گیری ساختارهای دورهای خودزا در لایههای نازک حساس به نور کلرید نقره -نقره در حالت برانگیختگی مدهای بالاتر (تحریک همزمان مدهای TE₀ و TE₁) بر روی میزان القای چرخش اپتیکی، تحت تابش با نور قطبیده بیضوی یک لیزر هلیوم نئون بررسی شده است. در لایههای نازک AgCl-Ag، در برهمکنش با نور قطبیده بیضوی نانو ساختارهای خودسامانده پریودیک (SPN) تشکیل می شوند که حاصل تداخل نور فرودی با مدهای تحریک شده در لایه است. بیضوی بودن قطبش نور فرودی موجب پیچیدهتر شدن ساختارها شده و به نمونهها خاصیت فعالیت اپتیکی القا میکند. در واقع شکل گیری SPN منجر به افزایش ناهمگنی و شکل گیری ساختارهای کایرال متشکل از نانوذرات نقره شده و باعث بروز فعالیت اپتیکی در نمونهها می شود. از طرفی، افزایش زمان نوردهی و برانگیختگی همزمان دو مد تحت تابش نور قطبیدهٔ بیضوی موجب تقویت فعالیت نوری القاء

کلیدواژگان: لایههای نازک حساس به نور، نانوذرات نقره، نانوساختارهای دورهای خودزا، کایرالیتی، چرخش اپتیکی

مقدمه

اخیراً مطالعهٔ تولید نانوساختارها و همچنین برهم کنش آنها با باریکهٔ نوری مورد توجه بسیاری قرار گرفته است [1]. بهدلیل اهمیت کاربرد نانوساختارها بر روی سطوح و برهم کنش آنها با امواج الکترومغناطیسی، از جمله ثبت اطلاعات نوری در مواد حساس به نور، تمام نگاری، بهبود کارایی موجبرهای نوری بهمنظور انتقال انرژی در دستگاههای اپتوالکترونیک [2] و





^{*} نویسنده مسئول: asakereh.hoda@ut.ac.ir

بنت الهدي عساكره و ارشميد نهال	بررسی چرخش اپتیکی القا شده در نانو
--------------------------------	------------------------------------

1995 گزارش شدند [4]. نخستين اثرى كه در اين فیلمها در هنگام نوردهی با تک باریکهٔ نور لیزر قطبیدهٔ خطی (E₀) القا میشود، دوفامی خطی یا اثر ویگرت¹ است. بهاین معنا که طیفهای جذب برای دو حالت و $E \perp E_0$ که در آن E بردار قطبش نور $E \parallel E_0$ آزمون است متفاوت هستند. فرآیند تنها با تابش یک پرتوی نوری انجام میشود. از طرفی، این ساختارهای ایجاد شده بهشدت به قطبش و طول موج پرتوی فرودی، ضریب شکست زیرلایه و ضخامت لایهٔ نازک وابستهاند که امکان کنترل توپوگرافی و ویژگیهای نوری این ساختارها مانند چرخش نوری و دوفامی را امکان پذیر می کند. آراگو² در سال **1811** میلادی، یدیدهٔ چرخش نوری را نخستین بار هنگام عبور نور قطبیدهٔ خطی از کوارتز مشاهده کرد. چرخش نوری مواد یعنی صفحهٔ قطبش نور آزمون قطبیده خطی در عبور از ماده، نسبت بهراستای اولیه می چرخد و ممکن است قطبیده بیضوی شود. مطالعاتی که بر روی نانولایه های موجبری AgCl-Ag صورت گرفته است [9-7]، نشان می دهد که در نمونه هایی که با نور قطبیده خطی و یا قطبش های دیگر ساخته شدهاند، می توان فعالیت اپتیکی القا کرد. مطالعهٔ چرخش اپتیکی القایی و کنترل آن بهخاطر کاربردهایش، از اهمیت زیادی در ایتیک و فوتونیک برخوردار است.

فعالیت نوری ساختارهای دورهای که با تابش نمونهها با نور لیزر با قطبش بیضوی ایجاد می شوند، با افزایش ضخامت نانولایههای AgCl و تحریک مدهای بالاتر، فعالیت و چرخش نوری این نمونهها بهمیزان قابل

این ساختارها میشود. در واقع تداخل نور فرودی با مدهای برانگیخته شده در لایه، منجر به تشکیل این ساختارها میشود. هنگام نوردهی لایههای موجبری حساس به نور با تک باریکهٔ لیزر با قطبش های گوناگون، اثراتی پیچیده و جالب توجه در این لایهها القا می شود که از دو دیدگاه مهم است: 1: مدلی عملی برای مطالعهٔ پراکندگی نور توسط نانوذرات فلزی كوچك را ارائه مي دهند. 2: با كمك تغيير ات ايجاد شده در ساختار لایه های نازک حساس به نور، ثبت اطلاعات نورى امكان پذير مى شود [5]. متداول ترين لايه هاى حساس به نور، لایههای نازک هالید نقره-نقره مانند AgBr-Ag ، AgCl-Ag و AgCl-Ag ساختارهای دورهای مورد بررسی در این مقاله، توریهایی متشکل از نانوذرات نقره هستند که در اثر برهم كنش باريكة ليزر هليوم-نئون (توان 5mW و طول موج 632/8nm) در یک لایهٔ نازک حساس به نور AgCl تشکیل میشوند. در واقع نور فرودی موجب تحريک مدهای لايهٔ دی الکتريک AgCl، که بهصورت یک موجبر تخت نامتقارن عمل میکند، شده و سپس این مد تحریک شدهٔ در حال انتشار با نور فرودی تداخل کرده و یک نقش تداخلی که طرح آن بستگی به قطبش نور فرودی دارد [6]، در سطح نمونه ایجاد می شود. پس از این مرحله نانو ذرات نقره که روی سطح لایهٔ AgCl قرار دارند برای کمینه کردن انرژی خود به کمینه های نقش تداخلی رفته و تشکیل یک ساختار دورهای یا توری را میدهند. این ساختارها اولین بار توسط میلواسلاوسکی و آگه یف در سال

² Arago

¹Weigert Effect

توجهی نسبت به نمونههایی که با نور قطبیدهٔ خطی و بیضوی در لایههای نازک (فقط دارای مد TE₀) ساخته شدهاند، بیشتر است.

سازوکار تشکیل توریهای خودزا با نور قطبیده بیضوی

برای ساخت نمونهها، از لام میکروسکوپ که بهروش استاندارد تميز شده است بهعنوان زيرلايه AgCl استفاده کردیم. لایهٔ کلرید نقره با ضخامتی معین را بر روی زیرلایهها بهروش تبخیر در خلأ (مرتبهٔ خلأ 10⁻⁵ mmHg) لايەنشانى كردىم. سپس روى لايە موجبر AgCl، يك لاية بسيار نازك نقره لايهنشاني می شود. در این صورت سیستم AgCl-Ag به نور حساس مي شود. ضخامت لايهٔ نقر (15nm) بهاندازهای کم است که بهصورت یک لایهٔ ناپیوسته دانهای روی سطح کلرید نقره شکل می گیرند. افزایش ضخامت لاية نقره سبب افزايش عامل پرشدگي حجمي میشود و خوشههای سنگینتر نقرهها تشکیل میشوند که تحرک کمتری تحت تابش میدان نور دارند. با توجه به ابعاد بسیار کوچک نانوذرات نسبت به سطح مقطع پرتو فرودی، میتوان جبههٔ موج باریکهٔ لیزر را تخت در نظر گرفت. طبق تعریف [10] لایهٔ نازک کلرید نقره/زیرلایه شیشهای و هوا، یک موجبر دیالکتریک تخت نامتقارن را تشکیل میدهند. برای اینکه موج در لايه موجبري امكان انتشار داشته باشد، بايد زاويه پراکندگی نور فرودی از نانوذرات روی سطح به داخل لایه AgCl به گونهای باشد که شرط انتشار مد موجبر برقرار شود. شرایطی که این منظور را برآورده کند

به شرط خودسازگاری مرسوم است. شرط خودسازگاری باید در هر دو مرز موجبر به طور همزمان بر آورده شود. می توان شرط خودسازگاری یا پاشندگی را به صورت معادلهٔ 1 نوشت [10]:

$$h_m = \left[\arctan\left(\sqrt{\frac{n_s^2 - n_c^2}{n_f^2 - n_s^2}}\right) + m\pi \right]$$

در این رابطه m شماره مدهای مجاز به انتشار در اموجبرتخت، h_m ضخامت موجبر کلرید نقره،1/52، نریب شکست لام شیشهای به عنوان زیرلایه، $n_s =$ n_f =2/06 ضريب شكست فيلم كلريد نقره، الم المروج نور فرودی لیزر هلیوم $\lambda_0=632$ /8nmنئون و $n_c = 1$ ضریب شکست هوا است. از رابطهٔ 1 آشکار است که تعداد مدهای قابل انتشار در موجبر بهضخامت موجبر وابسته است. از اینرو با جایگذاری مقدار m = 1 ضخامت مورد نیاز برای انتشار دو مد همزمان TE_0 و TE_1 ، در حدود 280nm بهدست می آید. هنگام تابش باریکهٔ لیزر بر لایههای نازک AgCl-Ag، با ایجاد شرایط موجبری، بخشی از نور پراکنده شده از نانوذرات نقره باعث تحریک مدهای TE_n در موجبر AgCl شده و در این لایه موجبری منتشر می شود. مد منتشر شده در موجبر با باریکهٔ فرودی لیزر تداخل کرده و فریزهای تداخلی تشکیل می شوند. سپس نانوذرات نقره برای کمینه شدن انرژی شان به فریزهای تاریک نقش تداخلی رفته و مطابق با نقش تداخلي توري تشكيل ميدهند (شكل1).



شکل1. a: نمونه نور نخوره لایه کلرید نقره-نقره b: تشکیل ساختارهای دورهای خودسامانده بر سطح AgCI-Ag تحت تابش نور قطبیده بیضوی.

توري مي تواند به عنوان المان ورودي مد به موجبر عمل کند [4]. از اینرو شکل گیری توری خودزا موجب ورود نور بیشتر به موجبر تخت کلرید نقره می شود. در نتيجه اختلاف شدت باريكهٔ ليزر و شدت مد منتشر شده کمتر شده و تباین نقش تداخلی افزایش مییابد. این امر مهاجرت نانوذرات نقره را تسريع كرده و تورى كاملترى ايجاد مىشود كه خود عامل ورود بهتر مد به موجبر است. این چرخه تکرار می شود. این فرایند بازخورد مثبت¹ نامیده میشود. پراکندگی مدهای تابشی در توری منجر به ظاهر شدن نقش پراکندگی در زاویهٔ کوچک² بر روی یرده، همزمان با رشد توریها می شود [11]. نشان داده شده است که ساختار بوجود آمده تابعي از طول موج، زاویه فرود و قطبش باریکهٔ لیزر و ضریب شکست زیرلایه می باشد [12]. قطبش های مختلف پرتو فرودی، ساختارهای متفاوتی در سطح لایههای حساس به نور ایجاد میکنند. با تابش نور قطبیدهٔ بیضوی بهسطح AgCl-Ag همزمان با تغییر جهت میدان الکتریکی نسبت به زمان، توری در راستاهای مختلف موازی میدان تشکیل میشود. برای ایجاد توری با نور قطبیده بیضوی، همانگونه که در

شکل2 مشاهده می شود، ابتدا پرتو قطبیدهٔ خطی لیزر هلیوم نئون با طول موج 632/8 نانومتر وارد تیغه ربع موج می شود و با چرخش محور تند (FA) تیغهٔ ربع موج نسبت به محور قائم، نور قطبیده بیضوی ایجاد می شود. برای مشاهدهٔ پراکندگی در زاویهٔ کوچک (SAS) یک صفحه سفید روزنه دار بین چشمه نور و نمونه کلرید نقره-نقره قرار داده می شود.



شکل2 شماتیک چیدمان استفاده شده برای ساخت توری با نور قطیده بیضوی شکل3 تصاویر AFM از سطح لایه ضخیم حساس به

سکل عصاویر ۱۹۲۰ از سطح تایه صحیم حساس به نور کلرید نقره -نقره (دارای دو مد همزمان TE₀ و TE₁ در موجبر) بر شیشه پس از تابش نور قطبیده راستگرد و چپگرد با زاویهٔ 22/5 درجه نسبت به قائم تحت مدت زمان نوردهیهای متفاوت را نشان میدهد. همچنین در شکل 4 اثر پراکندگی در زاویهٔ کوچک (SAS) این ساختارهای ذکر شده قابل مشاهده است. بر اساس تصاویر AFM نظم به همراه پیچیدگی در نمونههای ساخته شده در زمان نوردهی 80دقیقه، نسبت به نمونههای ساخته شده پس از 10دقیقه بیشتر است. با نور فرودی با قطبش بیضوی هستند افزایش می یابند. از اینرو پارامتر افزایش زمان نوردهی در نمونههای صخیم تحت نور قطبیده بیضوی، می تواند موجب

² Small Angle Scattering

¹

¹ Positive Feedback of Light

افزایش کایرالیتی و در نتیجه افزایش چرخش اپتیکی

شود.



شكل3. تصاویر AFM از سطح كلرید نقره -نقره پس از تابش نور قطبیده بیضوی a: 10دقیقه نوردهی نور قطبیده چپگرد. b: 60دقیقه نوردهی نور قطبیده چپگرد. c: 00دقیقه نوردهی راستگرد. b:80دقیقه نوردهی چپگرد. e: 08دقیقه نوردهی راستگرد و f: 09دقیقه نوردهی چپگرد.

افزایش بیش از حد زمان نوردهی بر نمونهها (بیشتر از 100 دقیقه) به علت افزایش میزان جفت شدگی پلاسمونی بین نانوذرات نقره و غالب شدن پروفایل گاؤسی لیزر بر مد موجبری، باعث از بین رفتن ساختار توری ها می شود [13].



شکل4. پراکندگی در زاویهٔ کوچک (SAS) توریهای ساخته شده در 60دقیقه زمان نوردهی با قطبش بیضوی a: چپگرد. d: راستگرد. c: نقش پراش همزمان با نقش پراکندگی در زاویهٔ کوچک توری ساخته شده تحت نور قطبیده بیضوی چپگرد.

شکل 4 اثر پراکندگی در زاویهٔ کوچک و همچنین نقش پراش همزمان با تشکیل توری را نشان می دهد. با توجه به آنکه نقش پراکندگی در زاویهٔ کوچک ¹(SAS) تمامی اطلاعات لازم را دربارهٔ چگونگی رشد توریها نمی دهد، مطالعهٔ نقش پراش این توریها اهمیت مییابد. برای مشاهدهٔ نقش پراش به صورت مستقیم، یا باید زاویهٔ جهت گیری نمونه تغییر کند و یا از یک نور آزمون با طول موج کوچکتر از پریود ساختارها استفاده کرد [14]. اما هر دو روش منجر به ایجاد اختلال در فرایند رشد توریها خواهند شد. در نتیجه مشاهده

مستقیم نقش پراش به این روش ممکن نیست [14]. برای مشاهدهٔ مستقیم اثر پراش از روشی که در [14] ذکر شده است، استفاده کردیم. در این روش با استفاده از یک لایهٔ دی الکتریک میانی² که مابین لایهٔ موجبری حساس به نور و زیرلایهٔ شیشه ای قرار دارد، امکان مشاهدهٔ نقش پراش مرتبه صفر به صورت مستقیم بدون

² Buffer layer

آنکه در فرایند رشد توری ها اختلالی وارد کند، امکان

پذير شد.

جدول1. محاسبهٔ پریود توریها از روی تبدیل سریع فوریه عکسهای AFM در برنامه Gwyddion.

محاسبه پریود توری (نانومتر)	زمان و جهت
	نوردهي نمونه
	(دقيقه)
$L_1 = \frac{1}{1} \times 1000 = 256$	10 دقيقه
1 3.90	چپگرد
$L_2 = \frac{1}{1} \times 1000 = 155$	
6.42	
$L_{1} = \frac{1}{1} \times 1000 = 249$	60 دقيقه
4.01	چپگرد
$L = \frac{1}{1} \times 1000 = 155$	
$L_2 = 6.42 \times 1000 = 100$	
$1 - \frac{1}{2} \times 1000 - 240$	90 دقيقه
$L_1 = \frac{1}{4.01} \times 1000 = 249$	چیگرد
1 v 1000 152	
$L_2 = \frac{1}{6.53} \times 1000 = 153$	

مطالعهٔ پریود توریها با افزایش زمان نوردهی، معیاری جهت مطالعهٔ تحول زمانی توریهای خودزا است. برای تعیین پریود توریها، در نرم افزار Gwyddion با کمک تبدیل سریع فوریه (FFT) تصاویر AFM در شکل 3، توریهای پراش را از دامنهٔ فضایی بهدامنهٔ بسامد انتقال دادیم و دورهٔ تناوب را تعیین کردیم. شکل 5 تصاویر تبدیل فوریهٔ تصاویر AFM در حوزهٔ بسامد را نشان میدهد که نتایج اندازه گیری پریود توریها در جدول 1 میان داده شده است. برانگیختگی همزمان دو مد *TE*0 و *TET* و تشکیل دو توری با دو پریود متفاوت، در

شکل5 دیده میشود (دو پراش بهصورت دو قوس با دو شعاع متفاوت) [10].



شکل5. تصاویر AFM از توری ایجاد شده تحت نور قطبیده بیضوی چپگرد و تبدیل فوریه سریع (FFT) متناظر با هر تصویر بهترتیب a: در 10 دقیقه نوردهی. b. bdدقیقه نوردهی و c: 90 دقیقه نوردهی.

 TE_0 مطابق جدول 1 پریود توری های متناظر با دو مد و TE_1 تقریباً مستقل از جهت و زمان نوردهی است. برای نمونه های ساخته شده تحت نوردهی های چپگرد و همچنین در زمان های نوردهی 10 تا 90 دقیقه، پریود توری تقریباً ثابت می باشد. این امر نشان می دهد که در زمان های نخست نوردهی، دو توری تشکیل می شوند و

با گذشت زمان نوردهی،نانوذرات نقره تنها برای تشکیل کامل و بهتر توریها جابهجا می شوند تصاویر AFM شکل3 و تشکیل ساختار بیضوی مربوط به هر دو مد در 10 دقیقهٔ اول، این امر را تأیید میکند.

علاوه بر پریود توریها، بررسی توزیع اندازهٔ ذرات با افزایش زمان نوردهی، در درک بهتر تشکیل توریها نیز میتواند مؤثر باشد. بههمین دلیل در شکل6 با پردازش تصاویر AFM از نمونهها، توزیع اندازهٔ نانوذرات نقره را بررسی کردیم. مطابق شکل6 با افزایش زمان نوردهی، اندازهٔ نانوذرات نقره افزایش مییابد.

توزیع اندازهٔ قطر نانوذرات یک توزیع نرمال است که تابع گاؤسی برازش شده بر آن بهشکل زیر است:

$$f(D) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{\frac{(D-D_0)^2}{2\sigma^2}}$$
 2

که D قطر هر یک از نانوذرات نقره، D قطر میانگین نانوذرات نقره و σ انحراف استاندارد است. با تابش نور و افزایش زمان نوردهی، خوشههای نقرهٔ بزرگتری بر اثر نیروی جاذبه بین دوقطبیهای القا شده در نانوذرات تشکیل میشوند و توزیع قطر خوشهها نیز بزرگتر است.اندازهٔ نانوذرات نقره در 10دقیقه نوردهی در تشکیل میشوند و توزیع قطر خوشهها نیز بزرگتر تشکیل میشوند و توزیع قطر خوشهها نیز بزرگتر تشکیل میشوند و توزیع قطر خوشهها نیز بزرگتر تشکیل خوشههای بزرگتر، اندازهٔ شعاع نانوذرات به تقره بر ثابت دیالکتریکی و ضریب شکست محیط تأثیر میگذارد. برای چنین محیطی یک ثابت دیالکتریک براساس تابع توزیع اندازه قطر ذره به صورت زیر تعریف میشود [15] :



شکل b. توزیع اندازهٔ شعاع نانوذرات در توریهای ساخته شده تحت نور قطبیدهٔ بیضوی چپگرد در a: 10دقیقه نوردهی d: 00دقیقه نوردهی 80:c دقیقه نوردهی و 0:d و 4:00 دقیقه نوردهی.



شکل7. نمودار پوشش سطحی 4 نمونه کلرید نقره-نقره تحت نور قطبیده بیضوی چپگرد در زمان نوردهی متفاوت

$$\varepsilon_{eff} = \int_0^\infty \varepsilon_{av}(D) f(D) \, dD \qquad 3$$

که در آن (D) تابع توزیع اندازهٔ قطر ذره است. همزمان است. (f(D) تابع توزیع اندازهٔ قطر ذره است. همزمان با انباشتگی نانوذرات نقره در یک مکان و تشکیل خوشههای بزرگتر، محیط اطراف خوشه عاری از نانوذرات نقره می شود. بنابراین می توان با پارامتری بنام

پوشش سطح¹، نسبت سطح اشغال شده توسط نانوذرات نقره بهکل سطح را سنجید.



شکل8. طیف جذب نور غیر قطبیده توریهای ساخته شده تحت نور قطبیده بیضوی راستگرد و چپگرد در a: بدون تشکیل توری b: 5دقیقه نوردهی. c: 54قیقه نوردهی. b: 80قیقه.

در شکل7، پوشش سطح برای چهار نمونه با زمان نوردهی متفاوت را نشان میدهد. مطابق شکل7، با افزایش زمان نوردهی نمونه، پوشش سطحی نانوذرات کاهش مییابد.

اندازه گیری طیف جذب نمونه ها نیز عامل مؤثری در شناخت بهتر توری هاست. همان گونه که از طیف جذب نمونه ها در شکل8 مشاهده می شود، در زمان های نوردهی نخست نمونه، به علت جابه جا نشدن تعداد زیادی از نانوذرات نقره، تفاوتی بین دو نمونه راستگرد و چپگرد مشاهده نمی شود، اما با افزایش زمان نوردهی

و جابه جا شدن نانوذرات، در طیف جذب نمونه ها تغییر ایجاد شده و مقدار جذب در توری ها کاهش می یابد. دلیل آن را این گونه می توان ذکر کرد که با افزایش زمان نوردهی و کاهش پوشش سطحی نمونه ها در شکل 7، فضای خالی نمونه افزایش یافته و در نتیجه طیف عبوری افزایش و طیف جذب نمونه کاهش می یابد.

بررسی اثر فعالیت نوری در لایهٔ ضخیم حساس به نور کلرید نقره-نقره در نور قطبیده

بيضوى

تصاویر AFM و طرح پراش ساختارها نشان میدهد که تابش پرتو لیزر سبب نظمگیری نانوذرات نقره در سطح کلرید نقره در راستای قطبش پرتو می گردد. چگونگی پاسخدهی این ساختارها به نور قطبیدهٔ بیضوی راستگرد و چپگرد، میزان فعالیت نوری این ساختارها را مشخص میکند. نتایج اندازه گیری دوفامی دایرهای و طیف عبور برای ساختارهای دورهای خودسامانده ایجاد شده با نور قطبیدهٔ بیضوی راستگرد و چیگرد 22/5 درجه تحت زمانهای متفاوت نوردهی در جدول2و 3 خلاصه شده است. در جدول2 مشاهده می شود که با افزایش زمان نوردهی نمونه ها، طیف عبوری از نمونهها افزایش می یابد که با نتایج شکل7 نمودار پوشش سطحی در تطابق است. با افزایش زمان نوردهی و حرکت نانوذرات نقره برای کامل کردن تورىها، فضاي خالي نمونه افزايش مييابد كه منجر به افزایش طیف عبوری از نمونه ها می گردد.

¹ Surface Coverage

نکتهٔ جالب توجه دیگر در جدول2 آن است که در نمونههای ساخته شده تحت نور قطبیده بیضوی راستگرد، ضریب عبور راستگرد ((T_R))، از ضریب عبور چپگرد ((T_L) بیشتر است و در توریهای ساخته شده تحت نور قطبیده چپگرد، عکس این امر اتفاق می افتد.

جدول2. مقادیر طیف عبوری اندازهگیری شده برای سه زمان نوردهی متفاوت و دو طول موج قرمز و سبزرنگ.

	نور سبز	نور قرمز	زمان
	λ	$\lambda =$	نوردهي
	= 520 nm	620 nm	(دقيقه)
	T_R	$T_R = 0.86$	5
راست	= 0.88	$T_L = 0.82$	
<u> </u>	$T_L = 0.85$		
	T_R	$T_R = 0.90$	45
	= 0.88	$T_L = 0.85$	
	$T_L = 0.85$		
	T_R	$T_R = 0.92$	80
	= 0.90	$T_L = 0.82$	
	$T_L = 0.85$		
	T_R	$T_R = 0.83$	5
	= 0.86	$T_L = 0.86$	
چپ	$T_L = 0.89$		
	T_R	$T_R = 0.83$	45
	= 0.85	$T_L = 0.89$	
	$T_L = 0.88$		
	T_R	$T_R = 0.81$	80
	= 0.86	$T_L = 0.94$	
	$T_L = 0.91$		

این تفاوت علامت در ضریب عبور راستگرد و چپگرد، منجر به اثر جالبی در علامت دوفامی دایرهای در نمونههای ساخته شده با نور قطبیده راستگرد و چپگرد میشود. بهطوریکه در جدول3 مشاهده میشود، دوفامی دایرهای نمونههای چپگرد و راستگرد عکس علامت همدیگر هستند در واقع یک ساختار SPN اطلاعات مربوط به قطبش نور فرودی را در خود ثبت میکند.

دوفامی دایره ای و ضریب عبور نمونه ها به طول موج تابشی بستگی دارد (جدول3). دوفامی دایره ای نمونه ها برای طول موج قرمز از رنگ سبز بیشتر است. دوفامی دایره ای در طول موج تشدید پلاسمونی نانوذرات نقره (در حدود نانومتر)، برای نمونه های ساخته شده تحت نور قطبیدهٔ بیضوی کمینه است و در حوالی این طول موج تغییر علامت می دهد [7]. نتایج جدول3 با این نکته کاملاً سازگار است.

جدول3.مقادیر دوفامی دایره ای و ضریب ناهمگنی برای سه زمان نوردهی متفاوت و دو طول موج قرمز و سبزرنگ

	g		С	D	زمان
	$=\frac{0}{1}$:D	$= T_R$	$-T_L$	نوردهي
	$\frac{1}{2}(T_R + T_L)$				(دقيقه)
	سبز	قرمز	نور سبز	نورقرمز	
	0.035	0.04	0.030	0.037	5
راستگرد	0.041	0.057	0.036	0.05	45
	0.055	0.108	0.048	0.095	80
_	034	-0.03	- 0.030	-0.026	5
چپکرد	035	-0.07	- 0.030	-0.06	45
	054	-0.14	- 0.048	-0.13	80

¹ self-organized periodic nanostructures



شکل**9.** چیدمان آزمایشگاه برای اندازه گیری چرخش اپتیکی نمونه E_0 ، $(\phi=0^\circ)$: در زاویه های مختلف نمونه نسبت به a : یعنی $(\phi \neq 0^\circ)$.

پس از تهیه ساختارهای دورهای خودسامانده با قطبش بیضوی 22/5درجه، با ایجاد چیدمان شکل 9، میزان چرخش نوری در این ساختارها را اندازه گیری کردیم. چشمهٔ نوری که در چیدمان شکل 9 استفاده می شود، LED کم توان است که شدت آن نسبت به چشمههای لیزری بسیار کمتر است و در واقع در هنگام اندازه گیری، به علت شدت پایین، ویژگی های نوری ساختارهای دورهای را تغییر نمی دهد. در چیدمان شکل 9، از منشورهای نیکول به عنوان قطبشگر و تحلیلگر استفاده شده که می توان به ناچیز بودن جذب این منشور و دقت بالای اندازه گیری آنکه 0/03 درجه شفاف هستند و نور آزمون به راحتی می تواند از نمونه شفاف هستند و نور آزمون به راحتی می تواند از نمونه عبور کرده و به تحلیل گر برسد. تحلیل گر در مرکز یک گونیومتر با دقت 20 ثانیه قرار گرفته است.

با قرار دادن نمونه بین قطبش گر و تحلیل گر در حالتی که محورهای نوری قطبش گر و تحلیل گر متعامد باشند، شدت نور خروجی دیگر صفر نیست زیرا نمونه سبب چرخش راستای قطبش نور می شود. در این حالت تحلیل گر را می چرخانیم تا شدت نور مجدداً صفر یا

کمینه شود. میزان چرخیده شدن تحلیلگر، زاویه چرخش نوری را مشخص میکند.



شکل10. چرخش نوری برحسب زاویهٔ جهتگیری توری ایجاد شده در نور قطبیدهٔ بیضوی در زمانهای نوردهی متفاوت.

شکل 10 میزان چرخش نور آزمون با طول موج 643نانومتر در ساختارهای دورهای خودسامانده که با نور قطبیدهٔ بیضوی چپگرد با زاویهٔ 22/5درجه نسبت به قائم ساخته شدهاند، را نشان میدهد. مشاهده میشود که با افزایش زمان نوردهی ساخت نمونهها، چرخش نوری آنها افزایش مییابد و در 80دقیقه زمان نوردهی، چرخش اپتیکی نمونهها بهبیشترین مقدار خود میرسد. چرخش نوری میتواند ناشی از ناهمسانگردی ساختارهای دورهای خودزا و یا فعالیت نوری آنها باشد، که برای تشخیص اینکه چه اندازه از سهم چرخش نوری ناشی از ناهمسانگردی ساختارهای دورهای خودزا و چه مقدار ناشی از فعالیت نوری محیط است، مطابق چیدمان شکل 9، نمونه را در زاویههای مختلف

میچرخانیم و در نهایت یک تابع سینوسی را بر دادههای تجربی برازش میکنیم.

 TE_1 در لایه های ضخیم (که در آنها هر دو مد TE_0 و TE_1 هم زمان برانگیخته می شوند) ساخته شده با نور قطبیده هم زمان برانگیخته می شوند) ساخته شده با نور قطبیده نقره و تشکیل توری مربوطه، باعث می شود که در زمان های ابتدایی نوردهی، ناهمسانگردی و در نتیجه چرخش نوری نمونه ها کم باشد. این رقابت از آنجا ناشی می شود که مقدار نانوذرات در دسترس محدود تاشی می شود که مقدار نانوذرات در دسترس محدود مناهی می شود که مقدار نانوذرات در دسترس محدود مقاوت از مد TE_1 است، اما با افزایش زمان نوردهی و تشکیل کامل هر دو توری مربوط به دو مد TE_1 و تشکیل کامل هر دو توری مربوط به دو مد TE_1 و تشکیل کامل هر دو توری مربوط به دو مد TE_1 معلوه با افزایش زمان نوردهی و تشکیل کامل هر دو توری مربوط به دو مد مقدار بایتی و تشکیل کامل هر دو توری مربوط به دو مد مقدار بایتی نمونه ما نیز افزایش ناهمسانگردی نمونه، کایرالیتی نمونه ها نیز افزایش یافته و در نتیجه منجر به افزایش ناهره می شود، نمونه ها می شود، نمونه ها می شود، نمونه ها می شود، نمونه ها می نوری نمونه ها می شود، نوری را شاهد هستیم.

شکل 11 تصاویر AFM از نمونه های ساخته شده تحت نور قطبیده بیضوی را نشان می دهد. همان گونه از شکل 11 مشاهده می شود در زمانهای نخست نوردهی برای ساخت نمونه، نانوذرات نقره بهاندازه کافی برای تشکیل توری جابه جا نشدهاند و تعداد ساختارهای کایرال توری اندک است. اما با گذشت زمان کافی و تشکیل دو توری مربوط به دو مد همزمان زمان کافی و تشکیل دو توری مربوط به دو مد همزمان یافته است. نکته قابل توجهی که از شکل (c, 11-مشاهده می شود، وابستگی جهت ساختارهای کایرال

ایجاد شده در توریها بهجهت راستگرد یا چپگرد بودن نور قطبیده بیضوی تابشی می باشد. طبق قرارداد، اگر رو به سمت چشمه نور بایستیم و بردار میدان الکتریکی به سمت راست چرخید، نور قطبیدهٔ راستگرد و اگر به سمت چپ چرخید، قطبیدهٔ چپگرد است. بدین ترتیب که وقتی نور قطبیده بیضوی راستگرد باشد ساختارهای کایرال تشکیل شده در توری در جهت راست است و اگر نور قطبیده تابشی چپگرد باشد، ساختارهای کایرال چپگرد می باشند.



شکل11. تصاویر AFM و ساختارهای کایرال آنها در نمونههای ضخیم کلرید نقره تحت a: 10دقیقه نوردهی راستگرد. b: 00دقیقه نوردهی راستگرد. c: 08دقیقه نوردهی چپگرد. c: 08دقیقه نوردهی راستگرد.

شکل12، شماتیک و تصویر AFM تشکیل دو توری مربوط به دو مد همزمان *TE*₀ و *TE*₁ تحت تابش نور لیزر هلیوم نئون با قطبش بیضوی را نشان میدهد. در هنگام نوردهی ابتدایی بر نمونهها، دو بیضی متناظر با

مدها بهطور کامل شکل نگرفتهاند و از اینرو، هر چند که ساختارهای کایرال را میتوان حتی در زمانهای ابتدایی نوردهی در ساختارها مشاهده کرد، اما با افزایش زمان نوردهی و ظاهر شدن کامل دو توری مربوط به هر مد، تعداد ساختارهای کایرال یکپارچه و مشابه افزایش مییابد.



شکل1. تصاویر واضح از ساختارهای کایرال در توریهای ساخته شده تحت نور قطبیده بیضوی 22/5 درجه. ۵: توری چپگرد در بالا و شماتیک آن در پایین b: توری راستگرد در بالا و شماتیک آن در پایین.



شکل13. چرخش اپتیکی توری ساخته شده در 80دقیقه نوردهی نور قطبیده بیضوی راستگرد و چپگرد.

حضور ساختارهای کایرال مشابه، فعالیت نوری نمونه را در حد قابل توجهی افزایش می دهد [16]. در حضور ساختارهای بیضوی مربوط به دو مد همزمان، علاوهبر اینکه نور قطبیدهٔ بیضوی با ایجاد ساختارهای کایرال حلقوی باعث القای چرخش اپتیکی در نمونه می شود، بلکه در محل اتصال دو بیضی مربوط به هر مد متناظر، ساختارهای کایرال یکپارچه و مشابه نیز به وجود می آید که در میزان افزایش القای چرخش اپتیکی مؤثر است (شکل12). نکتهٔ قابل توجه دیگر در توریهایی که در این مطالعه به آنها پرداختیم، این است که با افزایش مدت زمان نوردهی با قطبش بیضوی در تشکیل توری، با جابه جایی نانوذرات در مسیرهای مشخص بیضوی که ناشی از قطبش نور تابشی است، ناهمسانگردی این توریها نیز به میزان قابل ملاحظه ای افزایش می یابد.

شکل 13 چرخش اپتیکی دو توری ساخته شده تحت دو نور قطبیدهٔ بیضوی راستگرد و چپگرد را نشان میدهد. کاملاً نمایان است که چرخش اپتیکی این دو نوع توری در یک زمان نوردهی مشخص، دارای علامتهای مخالف است. که ساختارهای کایرال ایجاد شده در این دو نوع توری در شکل 11، کاملاً این مطلب را تأیید میکند.

یکی دیگر از پارامترهای شناسایی توریها، درجهٔ بیضی بودن نور آزمون عبوری از نمونههاست. درجهٔ بیضی بودن نور آزمون معیاری از ناهمگنی القا شده در نمونههاست. برای اندازهگیری درجهٔ بیضی بودن نور آزمون عبوری به صورت زیر عمل میکنیم:

با استفاده از چیدمان ذکر شده در شکل9، برخلاف روش ذکر شده برای اندازهگیری چرخش اپتیکی، که

نمونه را در زوایای مختلف نسبت به محور قائم آزمایشگاه ($^{\circ}0 \neq \varphi$) قرار می دادیم و آنالیزور در زاویه ثابتی نسبت به محور قائم آزمایشگاه ($^{\circ}0 = \psi$) قرار می گرفت، در این روش نمونه در زاویهٔ ثابت نسبت به محور قائم آزمایشگاه ($0 = \varphi$) قرار می گیرد و به ازای زوایای مختلف آنالیزور نسبت به محور قائم آزمایشگاه ($0 \neq \psi$)، شدت نور آزمون ثبت شده توسط آشکارساز را یادداشت می کنیم [8].

میدانیم که درجهٔ بیضی بودن نور قطبیده با استفاده از پارامترهای استوکس رابطهٔ4 نوشته میشوند [17]:

$$S = S_0 \begin{pmatrix} 1 \\ \cos(2\chi)\cos(2\theta) \\ \cos(2\chi)\sin(2\theta) \\ \sin(2\chi) \end{pmatrix}$$
4

که tan χ بیضویت و θ زاویه چرخش اپتیکی است.

جدول4. نتایج بهدست آمده برای چرخش اپتیکی و درجهٔ بیضی بودن نور آزمون برای نمونههای ساخته شده تحت زمان نوردهی متفاوت.

Time (min)	Optical	Ellipticity
	rotation(θ)	$(\tan \chi)$
10 - Left	1 .243	1.2625
60- Left	-2.48	1 .2924
80- Left	-6.31	1 .2948
10-Right	1 .253	1 .2695
60- Right	3.25	1.2884
80- Right	5 .34	1 .2910

$$I(\psi) = S_0 \left[\frac{1}{2} + \left[\frac{\cos(2\chi)\cos(2\theta)}{2} \right] \cos(2\chi) + \left[\frac{\cos(2\chi)\sin(2\theta)}{2} \right] \sin(2\chi) \right] 5$$

برای سادگی رابطهٔ5 را بهصورت زیر مینویسیم:

 $I(\psi) = a + b\cos(2*\psi) + c\sin(2*\psi) \qquad 6$

با تغییر زاویهٔ آنالیزور نسبت به محور قائم آزمایشگاه (ψ)، شدت نور آزمون ثبت شده توسط آشکارساز ($((\psi))$) تغییر می کند. داده های تجربی حاصل از ψ و ($((\psi))$) را بر رابطه 6 برازش می کنیم و بدین ترتیب ضرایب a,b,c را به دست می آوریم. با برابر قرار دادن این ضرایب در رابطه های 7 و 8، بیضویت و چرخش اپتیکی را به دست می آوریم:

$$\cos(2 * \chi)\cos(2 * \theta) = \frac{b}{c}$$
7

$$\cos(2 * \chi) \sin(2 * \theta) = \frac{c}{a}$$

زاویهٔθ نشان دهندهٔ چرخش اپتیکی و tan χ برابر با درجهٔ بیضی بودن نور آزمون فرودی است. مقادیر بهدست آمده بهشرح جدول4 است.

همانگونه که از جدول4 مشاهده می شود، نمونه های ساخته شده در مدت زمان نوردهی بیشتر، دو پارامتر چرخش اپتیکی و درجهٔ بیضی بودن نور آزمون یا به عبارت دیگر ناهمگنی آنها بیشتر است. این نتیجه با نتایج تجربی در شکل7 که نشان دهندهٔ ناهمگنی نمونه ها و شکل10 که نشاندهندهٔ چرخش اپتیکی نمونه هاست، کاملاً در توافق است. به این ترتیب توانستیم داده های به دست آمده در شکل های7 و 10 را تأیید کنیم. [2] E.D. Epstein, L. Singh, S. Sternklar, Y. Gorodetski, The role of plasmonic excitations in the optical activity of periodic structures with configurational chirality, *Applied Physics Letters* (2020) 131106. https://doi.org/10.1063/5.0003478

[3] D. Solis Jr, B. Willingham, S.L. Nauert, L.S. Slaughter, J. Olson, P. Swanglap, A. Paul, W.-S. Chang, S. Link, Electromagnetic energy transport in nanoparticle chains via dark plasmon modes, *Nano letters* **12** (2012) 1349-1353.

https://doi.org/10.1021/nl2039327

[4] W. Rechberger, A. Hohenau, A. Leitner, J. Krenn, B. Lamprecht, F. Aussenegg, Optical properties of two interacting gold nanoparticles, *Optics communications* **220** (2003) 137-141. <u>https://doi.org/10.1016/S00304018(03)0135</u> <u>7-9</u>

[5] L.A. Ageev, V.K. Miloslavsky, Photoinduced effects in light-sensitive films, *Optical Engineering* **34** (1995) 960-973. https://doi.org/10,1117/12,197211

[6] L.A. Ageev, V.K. Miloslavsky, A. Nahal, Study of spontaneous grating formation in photosensitive films by means of small-angle scattering, *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* **7** (1998) 1-5. DOI:10.1088/0963-9659/7/1/001

[7] A. Nahal, R. Talebi, Ellipticitydependent laser-induced optical gyrotropy in AgCl thin films doped by silver nanoparticles, *Journal of nanoparticle research* **16** (2014) 2442. <u>https://link.springer.com/article/10.1007/s1</u> <u>1051-014-2442-y</u>

[8] A. Nahal, S. Kashani, Optical chirality in AgCl-Ag thin films through formation of laser-induced planar crossed-chain

بحث و نتیجه گیری

بهطور خلاصه، اگر نور قطبيده بيضوي را بهلايهٔ فخیم AgCl-Ag (که در آن دو مد همزمان TE_0 و TE1 بر انگیخته می شوند) بتابانیم، SPN پیچیدهٔ دائمی با ويژگي فعاليت ايتيكي شكل مي گيرند با افزايش زمان نوردهي چهار عامل مهم باعث تقويت قابل توجه چرخش ایتیکی در نمونهها میشود. 1: حضور ساختارهای کایرال حلقوی که متأثر از نور قطىدە يىضوى تاپشى ھىيتند. 2: تشکیل ساختارهای کایرال یکیارچه و منظم ناشی از قرار گرفتن نانوذرات نقره در بیضی های مجاور مربوط ىەھر ىك از مدھا. 3: افزایش ناهمگنی نمونهها در اثر تجمع نانو ذرات نقره در مسیرهای مشخص بیضوی مطابق با نقش تداخلی اىجاد شدە. 4: اغلب ساختارهاي کار ال سه بعدي هستند [17]، که بعد سوم یا ضخامت نمونه در ایجاد فعالیت نوری مؤثر است [18]. از اینرو، در لایه های ضخیم AgCl-Ag که در مجموع ضخامتی در حدود 300 نانومتر دارند، افزایش ضخامت کلرید نقره را می توان چهارمین عامل افزایش چرخش ایتیکی عنوان کرد. در نتیجه در نمونه های ساخته شده در این یژوهش، با افزایش زمان نوردهی و ضخامت لایه AgCl، شاهد افزایش قابل ملاحظهای از چرخش اپتیکی هستیم، که از اهمیت کاربر دی زیادی بر خو ردار است.

مرجعها

[1] L. Jiang, W. Wang, H. Fuchs, L. Chi, One-Dimensional Arrangement of Gold Nanoparticles with Tunable Interparticle Distance, *Small* **5** (2009) 28192822. <u>https://doi.org/10.1002/smll.200</u> 900770 *optics* **29** (1998) 253. DOI: 10.1088/0150-536X/29/4/001

[15] S. Wang, R. Wang, X. Liu, X. Wang, D. Zhang, Y. Guo, X. Qiu, Optical spectroscopy investigation of the structural and electrical evolution of controllably oxidized graphene by a solution method, *The Journal of Physical Chemistry C* 116 (2012) 10702-10707.

https://doi.org/10.1021/jp212184n.

[16] M. Kuwata-Gonokami, N. Saito, Y. Ino,M. Kauranen, K. Jefimovs, T. Vallius, J.Turunen, Y. Svirko, Giant optical activity inquasi-two-dimensionalplanarnanostructures, *Physical review letters* 95(2005)227401.https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.227401

[17] E. Collett, *Polarized light fundamentals* and applications, CRC (1992). <u>https://ui.adsabs.harvard.edu/abs/1992plfa.b</u> <u>ook..C/abstract</u>

[18]L.D.Barron,MolecularLightScattering and optical Activity,cambridgeUniversity,(2004).https://cds.cern.ch/record/803735/files/0521813417_TOC.pdf

 nanostructures, Journal of Applied Physics

 122
 (2017)
 103103.

 https://doi.org/10.1063/1.4994138

[9] A. Nahal, B. Asaakareh, M. Miri, Temporal evolution of photoinduced optical chirality in nanostructured light-sensitive waveguide thin films: Simultaneous excitation of TE0 and TE1 modes, *Journal of Applied Physics* **125** (2019) 123101. <u>https://doi.org/10.1063/1.5079506</u>

[10] T. Tamir, *Integrated optics*, Topics in Applied Physics, Springer, Berlin, (1979). https://link.springer.com/book/9783540347 170

[11] L.A. Ageev, V.K. Miloslavskii, K.S. Beloshenko, Peculiarities of spontaneous grating generation in light-sensitive waveguide layers during holographic grating formation, *Optics and Spectroscopy* **6** (2010) 971-977. https://link.springer.com/article/10.1134/S0 030400X10120222

[12] A. Mokhberi, A study on generation of spontaneous periodic structures in AgCl-Ag thin films and its application to the measurement of index of refraction of substrates and preforms, *Master thesis in Atomic and Molecular physics* (2009). https://library.ut.ac.ir/thesis

[13] S. Kashani, A. Nahal, The role of coupled nanoplasmon excitation in growth mechanism of laser-induced self-organized nanostructures in AgCl-Ag waveguide thin films, *Plasmonics* **12** (2017) 1305-1316. https://doi.org/10.1007/s11468-016-0388-x

[14] M. Varminsky, L. Ageev, V. Miloslavsky, Observing diffraction from photo-induced TE gratings in the process of their formation in thin films, *Journal of*