

Research Paper

Producing and Characterizing Silver Nanoparticles Stabilized on GO and Investigating the Effect of Ultraviolet Radiation on their Nonlinear Behavior¹

Khadijeh Esmaeli², Masoud Torkaman³, Hamid Nadjari^{*4} and Reza Rasouli⁵

Received: 2023.11.08

Revised: 2023.12.01

Accepted: 2024.02.20

Abstract

In this research, graphene oxide was prepared by Hamers' improved method, then, with the electric arc method, silver nanoparticles enter the graphene oxide environment diluted with deionized water, and a colloid of core-shell, silver-silver oxide is prepared. After the samples were prepared, graphene oxide plates containing silver nanoparticles were fixed on them, and samples with the same concentration and volume were placed under ultraviolet radiation for 0, 30, 60, 120, and 240 minutes, respectively. Then, various spectra are prepared from the samples and their linear and non-linear behavior is studied in two experiments, Z-scan and phase spatial modulation. The results of ultraviolet-visible spectroscopy, infrared Fourier transform, and X-ray diffraction show that the resulting solution contains graphene oxide nanoplates and silver oxide nanoparticles. Investigating the nonlinear optical properties of the samples also shows that the nonlinear refractive index of the samples is of the order of $(-0.52 \pm 0.05) \times 10^{-14} (cm^2/W)$, which by ultraviolet radiation to the samples, their nonlinear refractive index changes slightly, and on the other hand, the diffraction pattern with two peaks is observed in the formed structure.

Keywords: *UV Illumination, Electric Arc, GO, Nonlinear Refractive Index, Diffraction Pattern.*

¹ <https://doi.org/10.22051/ijap.2024.45558.1364>

² M. Sc. Graduated, Department of Physics, Zanjan University, Zanjan, Iran. Email: khadijesmaeli@gmail.com

³ PhD Student, Department of Physics, Zanjan University, Zanjan, Iran. Email: masoud_t@znu.ac.ir

⁴ Assistant Professor, Department of Physics, Zanjan University, Zanjan, Iran. (Corresponding Author) Email: nadjari@znu.ac.ir

⁵ Professor, Department of Physics, Zanjan University, Zanjan, Iran. Email: r_rasuli@znu.ac.ir



ساخت و مشخصه‌یابی نانوذرات نقره تثبیت شده روی اکسید گرافین و بررسی اثر تابش فرابنفش بر رفتار غیرخطی آن‌ها^۱

خدیجه اسماعیلی^۲، مسعود ترکمن^۳، حمید نجاری^{۴*} و رضا رسولی^۵

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۰۸/۱۷

تاریخ بازنگری: ۱۴۰۲/۱۰/۱۰

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۲/۰۱

فصلنامه علمی فیزیک کاربردی ایران

دانشکده فیزیک، دانشگاه الزهرا

سال چهاردهم، پیاپی ۳۷، تابستان ۱۴۰۳

صص ۱۱۵ - ۱۲۷

چکیده:

در این پژوهش اکسید گرافین به روش بهبود یافته‌ی هامرز تهیه شد. سپس با روش قوس الکتریکی نانوذرات نقره وارد محیط اکسید گرافین رقیق شده با آب دو بار یونیده شد و در پایان، محلول کلوییدی هسته پوستره‌ی نقره/اکسید نقره بدست آمد. پس از تهیه‌ی صفحات اکسید گرافین شامل نانوذرات نقره تثبیت شده روی آن، نمونه‌هایی با غلظت و حجم یکسان تهیه و به ترتیب به مدت ۰، ۳۰، ۶۰، ۱۲۰ و ۲۴۰ دقیقه تحت تابش امواج فرابنفش قرار داده شدند. با بررسی طیف‌های بدست آمده، رفتار خطی و غیرخطی آن‌ها در دو آزمایش متفاوت روبش محوری و مدولاسیون فضایی فاز مورد مطالعه قرار گرفت. نتایج طیف‌سنجی مرئی-فرابنفش، تبدیل فوریه فروسرخ و پراش پرتو ایکس نشان داد که محلول بدست آمده شامل نانوصفحات اکسید گرافین و نانوذرات نقره است. بررسی ویژگی‌های اپتیکی غیرخطی نمونه‌ها نیز نشان داد ضریب شکست غیرخطی برای نمونه‌ها از مرتبه $(cm^2/W)^{-1} \times 10^{-4}$ است. اگرچه در اثر تابش فرابنفش به آن‌ها، ضریب شکست غیرخطی آن‌ها تغییرات ناچیزی داشت. از طرف دیگر، در ساختار تشکیل شده الگوی پراش دو قله‌ای مشاهده شد.

واژگان کلیدی: تابش فرابنفش، قوس الکتریکی، اکسید گرافین، ضرایب غیرخطی شکست، الگوی پراش.

^۱ <https://doi.org/10.22051/ijap.2024.45558.1364>

^۲ دانش‌آموخته کارشناسی ارشد، گروه فیزیک، دانشگاه زنجان، زنجان، ایران. Email: khadijesmaeli@gmail.com

^۳ دانشجوی دکترا، گروه فیزیک، دانشگاه زنجان، زنجان، ایران. Email: masoud_t@znu.ac.ir

^۴ استادیار، گروه فیزیک، دانشگاه زنجان، زنجان، ایران. (نویسنده مسئول) Email: nadjari@znu.ac.ir

^۵ استاد، گروه فیزیک، دانشگاه زنجان، زنجان، ایران. Email: r_rasuli@znu.ac.ir



۱. مقدمه

اکسید گرافن دارای ویژگی‌های غیرخطی کمابیش بزرگی است که کاربرد آن را به عنوان عدسی گرمایی و محدودکننده اپتیکی امکان‌پذیر می‌سازد [۱-۲]. در این ماده حوزه‌های کرنی با هیبریداسیون SP^2 را می‌توان به صورت دقیق کنترل کرد. پاسخ نوری غیرخطی صفحات GO با دستکاری درجه و مکان اکسیداسیون تنظیم می‌شوند [۳]. بسیاری از ویژگی‌های غیرخطی شامل جذب اشباع‌پذیر، جذب دو فوتونی، اختلاط چهار موجی و محدودسازی اپتیکی در این ماده مشاهده شده است. این ماده دارای نوار سریع جذب اشباع‌پذیر است که ناشی از تغییر نوار رسانش در اثر جذب تابش فرودی است [۴-۵].

ژاوو و دیگران، با استفاده از روش رویش محوری نشان داده‌اند که عامل اصلی غیرخطی بودن در فیلم‌های نازک و همچنین محلول‌های GO جذب اشباع‌پذیر است [۶]. وی همچنین نشان داده است که ضریب جذب این مواد بین 0.62 cm^{-1} تا 10.6 cm^{-1} تغییر می‌کند. لیو و دیگران [۷]، ویژگی‌های غیرخطی GO را در 532 nm با استفاده از لیزرهای نانو و پیکوثانیه مورد مطالعه قرار داده و نشان دادند که هنگام استفاده از تب پیکوثانیه در شدت‌های بالا در روش رویش محوری، جذب دو فوتونی عامل اصلی غیرخطی بودن است. در حالی که در شدت‌های پایین جذب اشباع‌پذیر جایگزین آن شده است.

از طرف دیگر، تغییرات ضریب شکست در اثر میدان الکتریکی موج فرودی تاثیر به سزایی در انتشار موج الکترومغناطیسی دارد. مواد زیادی وجود دارند که تغییر ضریب شکست ناشی از میدان در آن‌ها بزرگ است و اکسید گرافن یکی از این مواد می‌باشد [۸]. پدیده‌هایی چون خودکانونی و خودواکانونی، که به عنوان عدسی گرمایی دسته‌بندی می‌شوند، در حقیقت پدیده‌های خطی اپتیکی هستند. چرا که، تغییرات ضریب شکست در آن‌ها به صورت مستقیم توسط میدان الکتریکی ایجاد نمی‌گردد و وابستگی غیرمستقیم آن‌ها به شدت باریکه لیزری جداسازی این پدیده‌ها از سایر آثار غیرخطی را دشوار ساخته است [۹].

انتشار یک باریکه گاوسی در محیطی که ضریب شکست آن به شدت وابسته است، در نقاط دور می‌تواند منجر به تولید الگوی تداخلی به شکل حلقه‌های هم مرکز شود. این پدیده موسوم به مدولاسیون فضایی فاز SPM^۱ است و بسیاری از پژوهشگران آن را مورد مطالعه قرار داده‌اند [۱۰-۱۵]. بر اساس نظر آقای شن [۱۶]، الگوی میدان دور از دو دسته‌ی حلقه‌های هم مرکز تشکیل شده

^۱ Spatial Phase Modulation or Spatial Self Phase Modulation (SSPM)



است. یک دسته از آن ناشی از تداخل بین مدولاسیون فضایی فاز و انحناى جبهه موج وابسته به باریکه متمرکز است و دسته دیگر ناشی از رفتار غیرخطی محیط است. لوچتی و دیگران [۱۷]، روشی ساده برای مشخص کردن علامت ضریب شکست محیط تحت تابش نور لیزر بر مبنای الگوی تداخلی پیشنهاد داده‌اند.

در میان روش‌های آزمایشگاهی موجود برای بررسی ویژگی‌های غیرخطی مواد، روش روبش محوری یکی از معروف‌ترین و آسان‌ترین روش‌ها است، چرا که می‌توان بزرگی و علامت ضریب شکست را هم زمان اندازه‌گیری نمود. این روش، که به روبش Z نیز معروف است، روش تک باریکه‌ای مهمی برای مشخص کردن ضرایب شکست و جذب غیرخطی نمونه‌ها است که اولین بار توسط شیخ بها و دیگران مطرح شد [۱۹-۱۸]. به تازگی ویژگی‌های غیرخطی محلول اکسید گرافین با روش روبش محوری مورد مطالعه قرار گرفته است [۲۰]. افزون بر اکسید گرافین، نانوذرات فلزی نیز دارای ویژگی‌های غیرخطی قابل اندازه‌گیری هستند. به ویژه هنگامی که این نانوذرات در محیط‌هایی قرار گیرند تا محلول‌های کلوئیدی تشکیل دهند. پیش از این، در پژوهشی جداگانه بزرگی عددی ضرایب غیرخطی برای نانوذرات نقره و طلا در محیط آب گزارش شده، که در آن از روش روبش محوری برای اندازه‌گیری کمیت‌های غیرخطی استفاده شده است [۲۱]. همچنین در گزارش دیگری به بررسی اثر اندازه نانوذرات در تابع دی‌الکتریک و مشخص نمودن اندازه آن‌ها با استفاده از طیف مرئی-فرابنفش پرداخته شده است [۲۲].

در این مقاله روش تولید و مشخصه‌یابی نانوذرات نقره و اکسید نقره در محلول اکسید گرافین گزارش شده است. به منظور مشخصه‌یابی طیف مرئی-فرابنفش، طیف تبدیل فوریه فروسرخ و طیف پرتو ایکس نمونه‌ها تهیه و مورد مطالعه قرار گرفته است. سپس ویژگی‌های غیرخطی نمونه‌های کلوئیدی با استفاده از روش روبش محوری بررسی شده است. سرانجام نمونه‌ها جهت انجام بررسی رفتار فضایی فاز آن‌ها در چیدمان مربوطه قرار گرفته‌اند.

۲. تهیه نمونه‌ها

در این پژوهش اکسید گرافین با اکسیداسیون گرافیت به روش هامرز اصلاح شده تهیه شده است [۲۳-۲۴]. ابتدا به ۰/۱ گرم پودر گرافیت درون بشر، ۱۵ میلی‌لیتر محلول اسید سولفوریک ۹۸٪ افزوده شد و سپس به مدت ۱۵ دقیقه با استفاده از همزن مغناطیسی در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد با سرعت ۱۲۰۰ دور بر دقیقه هم زده شد. در مرحله‌ی بعد مخلوط به مدت ۷ دقیقه در حمام یخ روی همزن قرار گرفت تا در زمان هم‌خوردن دمای آن نیز کاهش یابد. پس از گذشت ۴ دقیقه، ۳۰۰



گرم پرمنگنات پتاسیم افزوده شد. سپس حمام یخ را برداشته و بشر شامل مخلوط پودر گرافیت، اسید سولفوریک و پرمنگنات پتاسیم را به مدت ۲ ساعت روی همزن/گرم کن با همان سرعت ۱۲۰۰ دور در دقیقه و دمای ثابت ۴۰ درجه سانتی گراد هم زده شد. در ادامه ۳۰۰ میلی لیتر آب دوباریونیده به صورت تدریجی به محلول افزوده شد تا محلول رقیق بدست آید. آنگاه ۱/۵ میلی لیتر هیدروژن پراکساید را قطره قطره به محلول درون حمام یخ و در حال هم خوردن، افزوده شد. با اضافه کردن هیدروژن پراکساید محلول که کاملاً تیره رنگ بود به رنگ زرد در می آید. در این مرحله بشر از حمام یخ خارج شده و با دستگاه گریزانه اسیدشویی می شود. در نهایت با رسیدن به PH مورد نظر، محلول درون یک بالن ریخته شد و به مدت ۳۰ دقیقه درون حمام فراصوت (اولتراسونیک) با توان ۴۰۰ وات قرار گرفت تا صفحات اکسیدگرافین کاملاً از هم جدا شوند. در شکل (۱) فرآیندهای مختلف در زمان انجام آزمایش تهیه نمونه‌ها و وسایل آزمایشگاهی مورد استفاده نمایش داده شده است.

۳. تهیه محلول کلوییدی نانوذرات نقره و تابش فرابنفش

روش‌های گوناگونی برای تهیه محلول کلوییدی نانوذرات نقره، شامل روش شیمیایی، کندوسوز لیزری و روش قوس الکتریکی وجود دارد. در پژوهش حاضر از روش قوس الکتریکی برای تهیه نانوذرات نقره استفاده شده است [۲۵]. با این هدف ابتدا گرافین سنتز شده را در آب دوبار یونیده رقیق شد و سپس، بین مفتول‌های نقره در محیط اکسیدگرافین تخلیه قوس الکتریکی برقرار شد. نانوذرات نقره در زمان سنتز و جدا شدن از مفتول فلزی نقره به دلیل دمای بالای ایجاد شده در قوس الکتریکی و همچنین اکسیژن موجود در آب، اکسید شده و روی تعدادی از نانوذرات را همزمان پوشش می‌دهند و یک مدل هسته پوسته از نانوذرات نقره/اکسید نقره تشکیل می‌دهند. نانوذرات تشکیل شده روی ورقه‌های اکسید نقره تثبیت می‌شوند. پس از این مرحله کلویید تهیه شده به پنج قسمت با غلظت و حجم یکسان تقسیم شد و نمونه‌ها به ترتیب به مدت ۰، ۳۰، ۶۰، ۱۲۰ و ۲۴۰ دقیقه تحت تابش فرابنفش قرار گرفتند.

۴. چیدمان روبش محوری و آزمایش‌های مربوط به آن

۱.۴ تهیه و قرار دادن چیدمان

شمای استاندارد برای اندازه‌گیری‌های روبش Z در شکل (۲) نشان داده شده است. در آزمایش چیدمان محوری نمونه مورد مطالعه در راستای انتشار باریکه گاوسی (محور Z) حرکت داده می‌شود



به گونه‌ای که اغلب نمونه از $-Z$ تا کانون یک لنز به فاصله کانونی f_1 و سپس تا $+Z$ حرکت داده می‌شود. توزیع شدت باریکه در داخل نمونه سبب تغییر ضریب شکست می‌شود. این تغییرات به شعاع باریکه و فاصله از کانون بستگی دارد به صورتی که $\Delta n(r, z) = n_2 I(r, z)$ که در آن n_2 ضریب شکست غیرخطی است.



شکل ۱ (الف) مخلوط گرافیت و اسید سولفوریک در حال مخلوط شدن، (ب) محلول گرافیت و اسید در حمام آب و یخ، (پ) رنگ سبز تیره‌ی محلول پس از افزودن پرمنگنات پتاسیم به محلول اسید و گرافیت، (ت) اکسید گرافین سنتز شده، (ث) تخلیه قوس الکتریکی الکتروود نقره در محلول اکسید گرافین و (ج) تابش فرابنفش به نمونه‌ها.

تغییر در ضریب شکست سبب واگرایی یا همگرایی باریکه لیزری می‌شود که در نقاط دور (در محل آشکارساز) موجب تغییر در شدت برحسب تابعی از فاصله نمونه می‌شود. با رسم تغییرات شدت برحسب مکان نمونه می‌توان علامت و بزرگی n_2 را مشخص نمود. در فواصل به اندازه کافی دور از نمونه، روزنه که گشودگی آن روی محور قرار دارد و یک آشکارساز که تغییرات شدت را پشت روزنه ثبت می‌کند، قرار داده می‌شود. اغلب حرکت در ناحیه کمره باریکه انجام می‌شود و هنگامی که نمونه دور از کمره قرار دارد و شدت کم است، عبوردهی روزنه به واحد بهنجار می‌گردد. آنی که نمونه به کمره نزدیک می‌شود، جذب غیرخطی و شکست غیرخطی القا شده اثر قوی روی باریکه گذاشته و منحنی‌های عبوردهی بهنجار شده، شکل مشخصه‌ای به خود می‌گیرد. ویژگی‌های غیرخطی نمونه سبب بروز خودکانونی و یا خودواکانونی و در نتیجه تغییر پهنای باریکه عبوری از محیط شده و این اثر به نوبه خود عبوردهی را کم و یا زیاد می‌کند. زمانی که ضریب شکست غیرخطی محیط منفی است یک منحنی مشخصه قلّه-دره بدست می‌آید. از طرف دیگر، زمانی که ضریب شکست غیرخطی محیط مثبت است یک منحنی مشخصه درّه - قلّه بدست می‌آید.

در این پژوهش چیدمان جاروب Z شامل یک ریل متصل به موتورپله‌ای، یک آشکارساز، لیزر، عدسی همگرا با فاصله کانونی ۹ cm با ابیراهی کم، پایه و سلول (یا کووت) از جنس کوارتز استفاده شده است. استپ موتورهای یا موتورهای پله‌ای، موتورهای الکتریکی هستند که در آن‌ها یک دور کامل یعنی ۳۶۰ درجه را به تعداد مساوی تقسیم نموده که به هر کدام پله (step) گویند. فاصله‌ی هر دو گام پی‌در پی مقدار مشخصی است که برای هر پله موتور روی آن درج می‌گردد و بسته به نیاز آزمایش باید تعداد گام‌ها تنظیم شوند. معمولاً طول ریل ۳۰ تا ۴۰ سانت است و نمونه در این بازه مکانی جابه‌جا می‌گردد. وظیفه‌ی اصلی این موتور هدایت گام‌های میلی‌متری پیموده شده است.

۲.۴ آزمایش‌های روبش Z

در شروع آزمایش داده‌های مربوط به روبش Z دریچه بسته برای اندازه‌گیری ضریب شکست غیرخطی نمونه‌ها جمع‌آوری می‌شود. به این منظور شعاع روزنه به گونه‌ای تنظیم می‌شود که نمودار قلّه-دره‌ی بهتری دریافت شود. مقداری از یکی از نمونه‌ها را داخل کووت ریخته و آن را روی ریل قرار داده تا اندازه‌گیری شروع و داده‌ها ثبت گردد. با کاهش نور محیط، دستگاه با نرم‌افزار مربوط به آن روی گام‌های ۲ میلی‌متر ۲ و سپس ۴ میلی‌متر تنظیم شده، اندازه‌گیری انجام و نمودارهای مربوط به هر حالت ذخیره می‌شود. سپس با شست‌وشوی کووت با آب دیونیزه نمونه‌ها



یکی پس از دیگری داخل سلول ریخته و روی ریل قرار می‌گیرد و نمودار مربوط به هر نمونه ذخیره می‌شود تا بررسی انجام شود. در این مرحله رفتار قلّه- درّه‌ای نمودارها به راحتی قابل مشاهده است. پس از انجام آزمایش روبش Z در یچه بسته برای تمام نمونه‌ها، دستگاه برای انجام آزمایش روبش Z در یچه باز جهت اندازه‌گیری ضریب جذب غیرخطی نمونه‌ها آماده می‌شود. به این دلیل روزنه برداشته شد. همچنین، دوباره برای اندازه‌گیری تمام نمونه‌ها گام‌های ۲ mm و سپس ۴ mm در نظر گرفته و نمودار مربوط به هر نمونه ذخیره شد.

۵. مباحث نظری روبش محوری و SPM

۱.۵ روبش محوری

در حالت در یچه باز، عبور دهی به هنجار بر حسب تابعی از مکان در راستای محور Z عبارت است از [۱۹-۲۱]:

$$T(z) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-q_0(z)]^m}{(m+1)^{3/2}} \text{ for } |q| < 1 \quad (1)$$

$$L_{eff} = \frac{1 - \exp(-\alpha L)}{\alpha} \quad (2)$$

$$q_0 = \beta \left[\frac{I_0 L_{eff}}{1 + (z/z_0)^2} \right] \quad (3)$$

$$Z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (4)$$

که در آن، Z_0 طول پراش ریلی که در باریکه گاوسی از معادله (۴) بدست می‌آید، I_0 شدت باریکه در کانون، α و β ضرایب جذب خطی و غیرخطی در طول موج کاری، همچنین L و L_{eff} به ترتیب ضخامت‌های حقیقی و موثر نمونه هستند. برای محاسبه ضریب شکست غیرخطی n_2 روابط استاندارد زیر مورد استفاده قرار می‌گیرند:

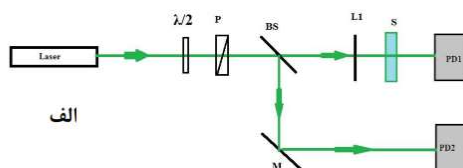
$$\Delta T_{P-V} = 0.406(1-S)^{0.25} |\Delta \Phi_0| \quad (5)$$

$$|\Delta \Phi_0| = k L_{eff} n_2 I_0 \quad (6)$$

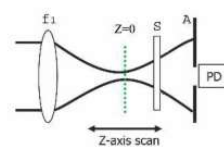


که در آن، $\Delta\Phi_0$ جابه‌جایی فاز میدان غیرخطی باریکه گاوسی در محیط نسبت به خلأ می‌باشد. معادله (۶)، تغییرات فاز را بر حسب ضریب شکست غیرخطی و طول موثر محلول در سلول و شدت اولیه باریکه مشخص می‌کند. S کسر عبوری نور از روزنه است که از رابطه‌ی زیر بدست می‌آید:

$$S = 1 - \exp\left(-\frac{2r_a^2}{\omega_a^2}\right) \quad (7)$$



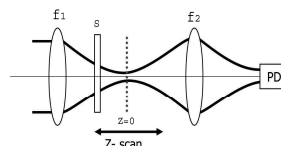
ث



ب



ج



ت

شکل ۲ شمای چیدمان آزمایشگاهی برای اندازه‌گیری‌های روبش Z [۱۶]: (الف) عناصر اپتیکی شامل تیغه نیم‌موج $\lambda/2$ ، قطبشگر P، روزنه A، باریکه شکن BS، آینه M، عدسی کانونی کننده L1، توان‌سنج‌ها PD1، PD2، PD، نمونه S، (ب) طرح دریچه بسته، (ت) طرح دریچه باز. f_1 عدسی اصلی، f_2 عدسی جمع‌آوری کننده، (ث) توان‌سنج مورد استفاده الگوی Melles-Griot 13PEM001، داری آشکارساز سیلیکونی با Max input $\pm 1 V$ ، Aperture 1cm، (ج) لیزر نئودیموم باگ به کار گرفته شده. 300mW, 532 nm, Lasers Ultra Co. Ltd.



در معادله (۷) شعاع روزنه و ωa شعاع باریکه در مکان روزنه می‌باشند. بزرگی S برای آزمایش - های روزنه باز برابر ۱ است. از روی نمودارهای بدست آمده از روبش Z نمودارهای قله - دره می‌توان ضریب شکست غیرخطی را محاسبه کرد. عبوردهی بیشینه در قله با T_P ، در دره با T_V و اختلاف این دو با ΔT_{P-V} نشان داده می‌شود و بزرگی آن از معادله (۵) بدست می‌آید. ضرایب جذب و شکست غیرخطی ماده نیز از معادلات زیر بدست می‌آیند:

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \beta I \quad (۸)$$

$$n(I) = n_0 + n_2 I \quad (۹)$$

برای برازش داده‌ها در روبش محوری درجه بسته از معادله زیر استفاده می‌شود [۱۸]:

$$T(x) = 1 - \frac{4x}{(x^2+9)(x^2+1)} \Delta \Phi_0 \quad (۱۰)$$

۲.۵ دیدگاه نظری SPM

در مبحث مدولاسیون فضایی فاز SPM که زیر مجموعه اپتیک غیرخطی است، سطح مقطع باریکه گاوسی به عنوان اعوجاج در جبهه موج ظاهر می‌گردد. برای محیط‌های غیرخطی نازک، اگرچه ممکن است تغییر در اندازه شعاعی باریکه گاوسی که ناشی از خود کانونی یا خود واکانونی است، ناچیز باشد ولی پدیده SPM که ناشی از خود کنش باریکه است چشم گیر است. برای باریکه‌ای با توزیع گاوسی بازه فازی $\Delta \varphi(r)$ دارای توزیع زنگوله‌ای است که مرکز آن در $r = 0$ قرار دارد. اگر $[\Delta \varphi(r)]_{\max}$ بسیار بزرگ‌تر از 2π باشد، زمانی که باریکه گاوسی از داخل محیط غیرخطی عبور می‌کند، یک دسته حلقه‌های هم‌مرکز در صفحه نمایش ظاهر می‌شود. برای مطالعه کیفی الگوی پراش در نقاط دور دست یک باریکه گاوسی در مد TEM_{00} در نظر می‌گیریم که از داخل محیط غیرخطی به ضخامت L و در راستای Z منتشر می‌شود. محل کمره باریکه به عنوان مبدأ مختصات در نظر گرفته می‌شود. دامنه مختلط میدان الکتریکی نور در صفحه ورودی محیط به صورت زیر نوشته می‌شود [۱۸، ۱۲]:

$$E(r, z_0) = E(0, z_0) \exp\left[-\frac{r^2}{w_p^2}\right] \exp\left[-\frac{ik_0 n_0 r^2}{2R}\right] \quad (۱۱)$$

که در آن، r مؤلفه شعاعی، z_0 مختصه مکان صفحه ورودی، k_0 عدد موج در فضای آزاد، n_0 ضریب شکست هوای اطراف محیط است، به دلیل جذب نور در محیط غیرخطی و بروز اثرات

غیرخطی مرتبه سوم تغییرات ضریب شکست به صورت $\Delta n(z, r)$ در ناحیه برهم کنش نور با محیط به وجود می‌آید. از این رو، باریکه گاوسی به طول موج λ که توسط معادله (۱۱) داده می‌شود داخل محیط منتشر می‌شود. تغییرات فاز عرضی که در صفحه خروجی ایجاد می‌شود به صورت زیر است:

$$\Delta\varphi(r) = k_0 \int_{z_0}^{z_0+L} \Delta n(z, r) dz \quad (12)$$

فرض کنیم محیط نازک و جذب غیرخطی آن ناچیز باشد، دامنه مختلط میدان الکتریکی در صفحه خروجی محیط به صورت زیر نوشته می‌شود.

$$E(r, z_0 + L) = E(0, z_0) \exp\left[-\frac{r^2}{w_p^2}\right] \exp\left[-\frac{\alpha L}{2R}\right] \exp(-i\varphi(r)) \quad (13)$$

که در آن، α جذب خطی محیط است و

$$\begin{aligned} \varphi(r) &= k_0 \frac{n_0 r^2}{2R} + \Delta\varphi(r) = k_0 \left[\frac{n_0 r^2}{2R} + \int_{z_0}^{z_0+L} \Delta n(z, r) dz \right] \\ &\approx k_0 \frac{n_0 r^2}{2R} + \Delta\varphi_0(z_0) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_p^2}\right) \end{aligned} \quad (14)$$

جابه‌جایی کلی فاز در صفحه خروجی محیط از دو جمله تشکیل شده است. جمله اول، جابه‌جایی فاز گاوسی است که به شعاع انحنای بستگی دارد و جمله دوم که جابه‌جایی فاز عرضی است و در اثر انتشار در محیط غیرخطی ایجاد می‌شود. $\Delta\varphi_0(z_0)$ بیشترین مقدار جابه‌جایی فاز غیرخطی در باریکه گاوسی است، هنگامی که صفحه ورودی محیط در z_0 قرار دارد. طرح الگوی پراش در نقاط دور از کنش دو فاز گاوسی و فاز عرضی نشأت می‌گیرد. هنگامی که میدان اپتیکی در صفحه خروجی محیط آزادانه در فضا منتشر می‌شود توزیع میدان متناظر آن در نقاط دور با کاربست تقریب فرانوفر در انتگرال پراش فرنل - کیرشهف بیان می‌شود [۱۸]:

$$I = I_0 \left| \int_0^\infty J_0(k_0 \theta r) \exp\left[-\frac{r^2}{\omega_p^2} - i\varphi(r)\right] r dr \right|^2 \quad (15)$$



در این رابطه، I_0 تابع بسمل مرتبه اول است و به عنوان تابعی زوج، در انتگرال پراش فرنل - کیر شهف عمل می‌کند. از معادله (۱۵) می‌توان برای توضیح تشکیل الگوی پراش در نقاط دور استفاده کرد. بر اساس این معادله صرف نظر از روش حاکم بر غیرخطی بودن محیط کلئیدی که منجر به تغییر در ضریب شکست آن می‌شود، الگوهای پراش در نقاط دور مشابه هستند، به شرط آنکه مقدار جابه‌جایی فاز تولید شده برابر باشد. به عبارت دیگر تاثیر جابه‌جایی فاز اضافه ناشی از تغییرات ضریب شکست روی الگوی پراش در نقاط دور تنها به بزرگی این جابه‌جایی فاز پس از عبور از محیط غیرخطی بستگی دارد. در رابطه (۱۵)، شدت اولیه از $I_0 = 4\pi^2 \left| \frac{E(0, z_0) \exp(-\alpha L/2)}{i\lambda D} \right|^2$ بدست می‌آید، که در آن D فاصله از صفحه خروجی محیط تا پرده نمایش است.

۶. بحث و نتیجه‌گیری

۱.۶ طیف‌سنجی مرئی - فرابنفش

به منظور سنتز محلول کلئیدی، طیف مرئی - فرابنفش نمونه‌ها تهیه شده است. در شکل (۳) این طیف نمایش داده شده است. قله‌های جذب اکسید گرافین در شکل به روشنی مشاهده می‌شود. قله در طول موج ۲۳۱ nm مربوط به گذار $\pi \rightarrow \pi^*$ و قله‌ی دوم در حوالی ۲۹۵-۳۰۵ nm به گذار $\pi \rightarrow \pi^*$ مربوط می‌شود. صفر نشدن جذب اکسید گرافین در طول موج‌های بیشتر از ۵۰۰ نانومتر را می‌توان به بالا بودن غلظت نمونه ارتباط داد. شکل (۳-ب) نشان می‌دهد که پس از اعمال قوس الکتریکی و هجوم نانوذرات نقره به محیط، کلئید نانوذرات نقره تشکیل شده است. قله مربوط به تشدید پلاسمون سطحی^۱ در طول موج حدود ۴۰۰ نانومتر مشاهده می‌شود که از ویژگی‌های نانو کلئید نقره می‌باشد. محل این قله بسته به شعاع نانوذرات از ۳۸۶ تا ۴۲۰ نانومتر متغیر است. وجود قله‌ی تشدید پلاسمونی مربوط به نانوذرات نقره در این محدوده طول موجی پیش از این نیز گزارش شده است [۲۱]. همچنین قله‌ی مربوط به گذار $\pi \rightarrow \pi^*$ به دلیل جذب بالای نانوذرات نقره قرار گرفته‌اند.

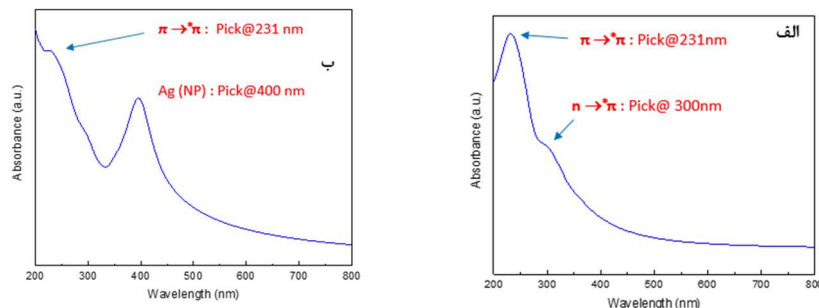
پس از این که نمونه‌ها در برابر تابش UV قرار می‌گیرند، در طیف‌های مربوط به آن‌ها تغییراتی در مکان و شدت قله‌ها ایجاد می‌شود. با توجه به شکل (۴) مشاهده می‌شود که قله‌ی مربوط به نانوذرات هسته - پوسته‌ی نقره / اکسید نقره اندکی افزایش شدت داشته و قله‌ی مربوط به صفحات

¹ Surface Plasmon Resonance (SPR)

اکسید گرافین نیز نسبت به نمونه‌ی بدون تابش فرابنفش اندکی جابه‌جایی به سمت طول موج‌های بلندتر را نشان می‌دهد. دلیل آن را می‌توان به جدا شدن بخشی از گروه‌های عاملی صفحات اکسید گرافین نسبت داد. همچنین در شکل (۴) ملاحظه می‌شود که شدت قله‌ی مربوط به نانو ذرات نقره/ اکسید نقره افزایش شدت محسوسی دارد که این افزایش شدت ناشی از به هم پیوستن آن‌ها و تشکیل خوشه‌هایی از نانو ذرات نقره/ اکسید نقره است. از طرفی ممکن است لایه بسیار نازک اکسیدی که دور هسته‌ها را فراگرفته‌اند احیا شده و به ذرات نقره خالص تبدیل شوند ولی این اتفاق نمی‌تواند مکان را تغییر دهد. حتی اگر الگوی هسته- پوسته تشکیل شده از پایداری بالایی برخوردار باشد، ضخامت پوسته‌ها کم است و جابه‌جایی قرمز طیف‌های مربوط از چند نانو متر تجاوز نمی‌کند. در شکل (۴)، طیف نمونه پس از قرار گرفتن به مدت ۱۲۰ دقیقه تحت تابش فرابنفش آمده است. در این نمودار افزون بر افزایش شدت قله‌ی نانو ذرات نقره/ اکسید نقره، پهن تر شدن قله‌ی مربوط به صفحات اکسید گرافین دیده می‌شود. این دیده‌ها را نیز می‌توان به تشکیل خوشه‌های نانو ذرات هسته- پوسته‌ی نقره/ اکسید نقره، کاهش گروه‌های عاملی اکسید گرافین و همچنین رفتن فرآیند به سمت تبدیل اکسید گرافین به اکسید گرافین کاهش یافته نسبت داد.

سر انجام در شکل (۴)، نمودار مربوط به طیف نمونه پس از این که به مدت ۲۴۰ دقیقه تحت تابش فرابنفش قرار گرفته، آمده است. مشاهده می‌شود که قله‌ی نانو ذرات نقره/ اکسید نقره نسبت به تمام نمونه‌ها از شدت بیشتری برخوردار است. همچنین قله‌ی مربوط به صفحات اکسید گرافین افزون بر پهن تر شدن، جابه‌جایی محسوسی نسبت به سایر نمونه‌ها به سمت طول موج‌های بلندتر را نشان می‌دهد. در مجموع با در نظر گرفتن نمودار جذب تمام نمونه‌ها می‌توان بیان کرد که تابش فرابنفش به محلول کلوئیدی شامل اکسید گرافین- نقره/ اکسید نقره، می‌تواند کاهش اکسید گرافین و تبدیل آن به اکسید گرافین کاهش یافته را در پی داشته باشد. همچنین سبب می‌شود که برخی از نانو ذرات نقره‌ی تثبیت شده بر روی صفحات اکسید گرافین از محل خود جدا شده و با پیوستن به یکدیگر تشکیل خوشه‌هایی را دهند که با گذشت زمان ابعاد و تعداد آن‌ها افزایش می‌یابد.





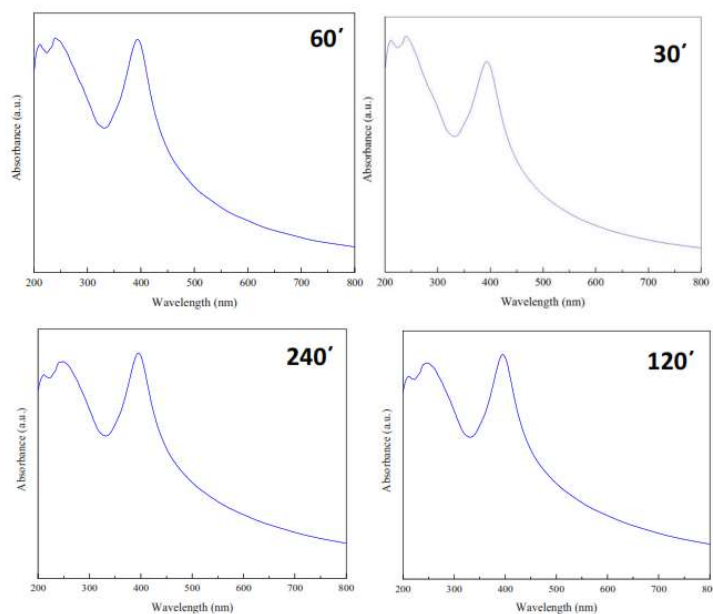
شکل ۳ طیف مرئی-فرابنفش مربوط به: اکسید گرافین بی درنگ پس از تولید؛ قله در طول موج ۲۳۱ nm به گذار $\pi \rightarrow \pi^*$ و قله‌ی دوم در اطراف ۳۰۵-۲۹۵ nm به گذار $n \rightarrow \pi^*$ مربوط است (ب) اکسید گرافین همراه با نانوذرات اکسید نقره پس از تخلیه قوس الکتریکی. قله مربوط به نانوذرات نقره در ۴۰۰ nm پدیدار شده است.

۲.۶ طیف‌سنجی تبدیل فوریه فروسرخ

به منظور بررسی بیشتر شکل‌گیری نانوصفحات اکسید گرافین در نمونه‌های مورد مطالعه و همچنین چگونگی تثبیت نانوذرات نقره بر روی صفحات اکسید گرافین، از نمونه‌ها طیف تبدیل فوریه فروسرخ تهیه می‌شود. با مقایسه طیف به‌دست‌آمده از اکسید گرافین و محلول کلوییدی اکسید گرافین - نقره / اکسید نقره در شکل (۵) مشاهده می‌شود که گروه‌های عاملی C-O-C و C-O و C-H از صفحات اکسید گرافین جدا شده‌اند و نانوذرات نقره / اکسید نقره بر روی صفحات اکسید گرافین تثبیت شده‌اند. از طرفی شکل (۵) نشان می‌دهد که در عدد موج حدود 3400 cm^{-1} دره‌ی آشکاری وجود دارد که مربوط به گروه‌های عاملی O-H در صفحات اکسید گرافین است. دره‌ی موجود در عدد موج 1600 cm^{-1} مربوط به پیوندهای C=O بوده و دره‌های موجود در عدد موج-های کمتر از 1000 cm^{-1} مربوط به ناحیه اثرانگشتی و نانوذرات اکسید نقره است.

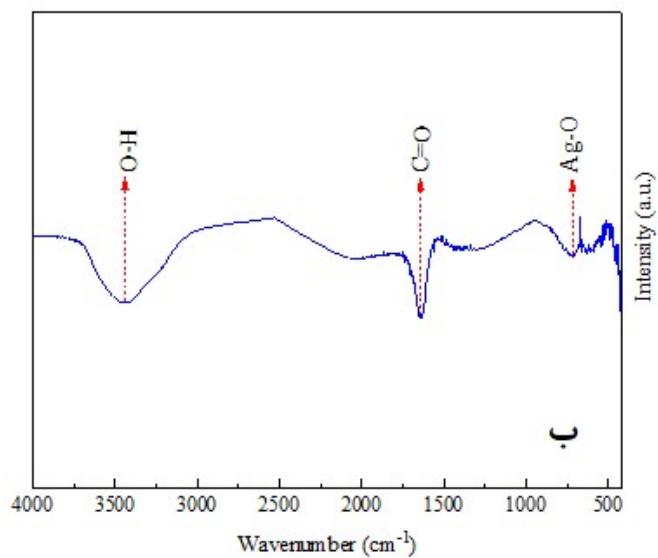
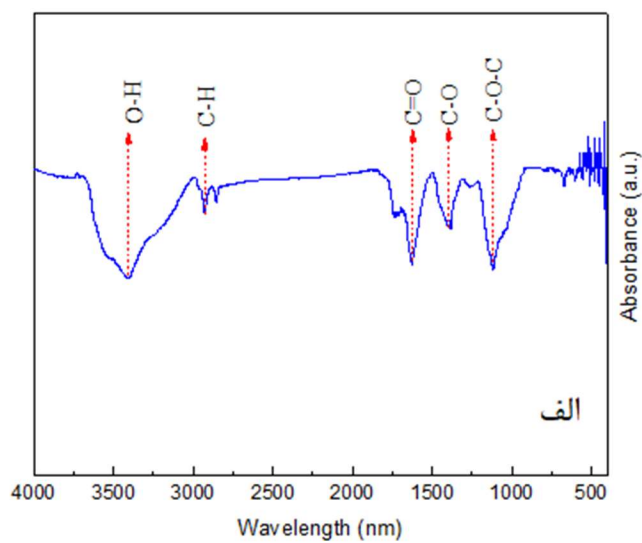
در شکل (۶) نمودار ۳۰' مشاهده می‌شود که شدت دره مربوط به عدد موج 1600 که نشان‌دهنده پیوند C=O می‌باشد، کاهش پیدا کرده است که این امر را می‌توان به کاهش اکسید گرافین به دلیل قرار گرفتن در معرض تابش فرابنفش و جدا شدن بخشی از گروه‌های عاملی اکسید گرافین نسبت داد. از طرفی شکل (۶) نمودار ۶۰' نیز روند مشاهده شده در شکل پیش را تایید می‌کند، به صورتی که با افزایش زمان قرارگیری نمونه در معرض تابش فرابنفش، گروه‌های عاملی بیشتری از صفحات

اکسیدگرافین جدا شده و به همین دلیل دره‌های مربوط به پیوندهای O-H و C=O کاهش شدت را نشان می‌دهند. همچنین دره مربوط به ذرات اکسیدنقره در دو نمودار ۳۰' و ۶۰' کمابیش ارتفاع یکسانی دارد، در حالی که در نمودارهای ۱۲۰' و ۲۴۰' دره‌ها از بین رفته‌اند. نمودار ۱۲۰' در شکل (۶) نشان می‌دهد که گروه‌های عاملی متصل به صفحات اکسیدگرافین باز هم کمتر شده و شدت دره‌های مربوط به این پیوندها از نمونه‌های پیشین کمتر است.



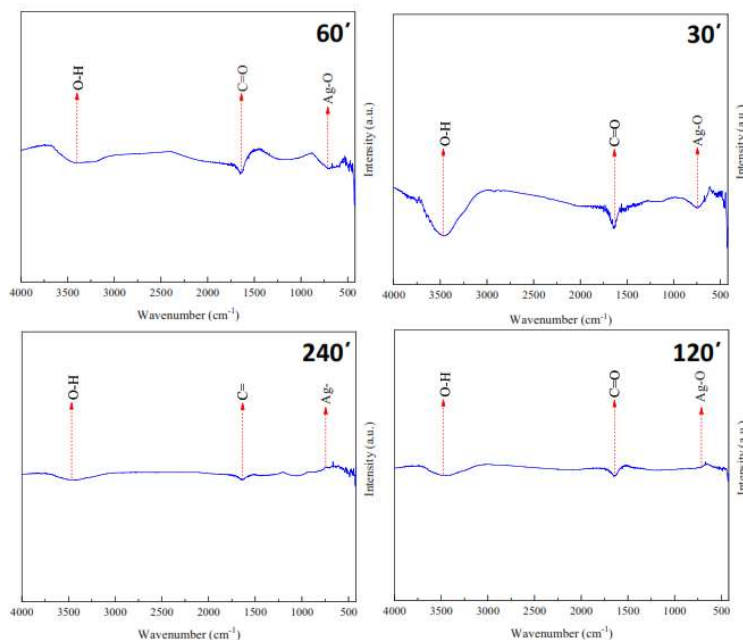
شکل ۴ طیف مرئی-فرابنفش مربوط به اکسیدگرافین همراه با نانوذرات هسته-پوسته نقره/اکسید نقره پس از تابش فرابنفش به مدت ۳۰ دقیقه، ۶۰ دقیقه، ۱۲۰ دقیقه و ۲۴۰ دقیقه.





شکل ۵ طیف تبدیل فوریه فروسرخ مربوط به (الف) اکسید گرافین بی‌درنگ پس از تولید، (ب) اکسید گرافین همراه با نانوذرات هسته- پوسته نقره/ اکسید نقره پس از تخلیه قوس الکتریکی.

در نهایت، طیف در نمودار ۲۴۰' شکل (۶) نشان‌دهنده کاهش گروه‌های عاملی اکسیدگرافین تحت تابش فرابنفش تا حد قابل قبولی به منظور رسیدن به اکسیدگرافین کاهش یافته است، که در گذشته نیز گزارش شده است [۲۷]. از طرفی کاهش ارتفاع دره مربوط به اکسید نقره و از بین رفتن آن پس از نوردهی مطابق با نمودارهای یک و دو ساعته بیانگر از بین رفتن لایه اکسیدی نقره و خالص شدن آن است که نمودار پرتو ایکس نیز آن را تایید می‌کند.



شکل ۶ طیف تبدیل فوریه فروسرخ مربوط به اکسیدگرافین همراه با نانوذرات هسته- پوسته نقره/ اکسید نقره پس از تابش فرابنفش به مدت ۳۰، ۶۰، ۱۲۰ و ۲۴۰ دقیقه.

۳.۶ پراش اشعه ایکس

به منظور مشخص نمودن ساختار بلوری و بررسی تغییرات ساختار بر اثر تابش فرابنفش به نمونه‌ها، طیف‌سنجی پراش پرتو ایکس انجام شد. نتایج آن به صورت کامل با بهره‌گیری از تحلیل نتایج به کمک نرم افزار X'Pert HighScore Plus در ادامه ارائه شده است. طیف پراش پرتو ایکس بدست آمده از نمونه‌ی بدون تابش فرابنفش که در شکل (۷) نمایش داده شده است، وجود نقره و کربن را در نمونه تأیید می‌کند. در شکل (۷)، قله‌ی مربوط به نقره به دلیل وجود نانوذرات اکسید



نقره و قلّه‌ی مربوط به کربن به دلیل وجود اکسید گرافین در نمونه است. مکان دقیق قلّه‌های مربوط به هر ساختار و درصد فازی بلورهای موجود در نمونه در شکل (۷) آمده است. در جدول‌های (۱) تا (۳) جزئیات مشخصات ساختار بلوری نمونه بلافاصله پس از تهیه و پس از تابش فرابنفش به مدت ۳۰ و ۲۴۰ دقیقه آمده است.

جدول ۱ جزئیات مشخصات ساختار بلوری نمونه بدون تابش فرابنفش.

Visible	Ref. Code	Score	Compound Name	Displacement [°2Th.]	Scale Factor	Chemical Formula
*	96-901-2962	32	Silver	-0.153	0.499	Ag4.00
*	96-210-1008	14	2101007	0.175	0.626	O16.00 C104.00

جدول ۲ جزئیات مشخصات ساختار بلوری نمونه تحت تابش فرابنفش به مدت ۳۰ دقیقه.

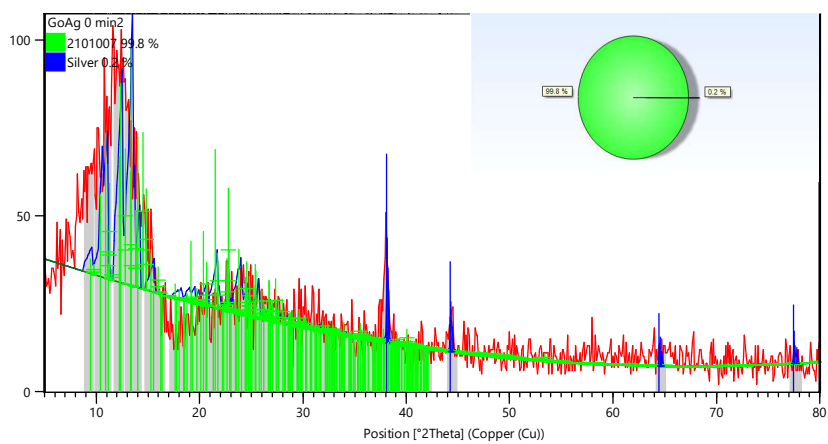
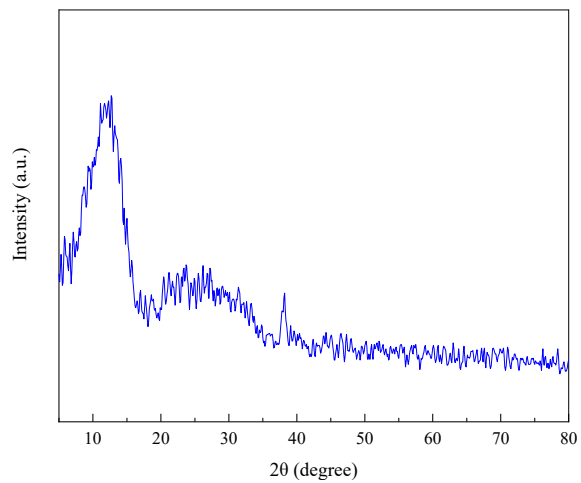
Visible	Ref. Code	Score	Compound Name	Displacement [°2Th.]	Scale Factor	Chemical Formula
*	96-900-8460	14	Silver	0.000	0.264	Ag4.00
*	96-901-2235	11	Graphite	0.000	0.727	C16.00

جدول ۳ جزئیات مشخصات ساختار بلوری نمونه تحت تابش فرابنفش به مدت ۲۴۰ دقیقه.

Visible	Ref. Code	Score	Compound Name	Displacement [°2Th.]	Scale Factor	Chemical Formula
*	96-901-3046	35	Silver	0.000	1.000	Ag4.00
*	96-901-2234	11	Graphite	0.000	0.316	C16.00

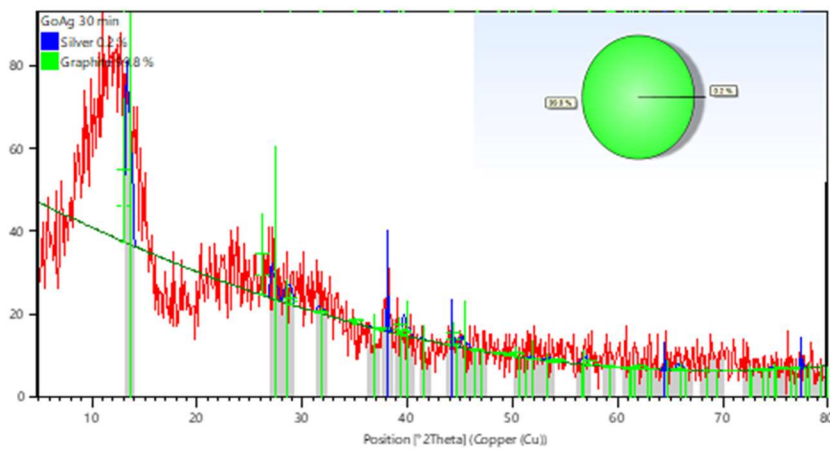
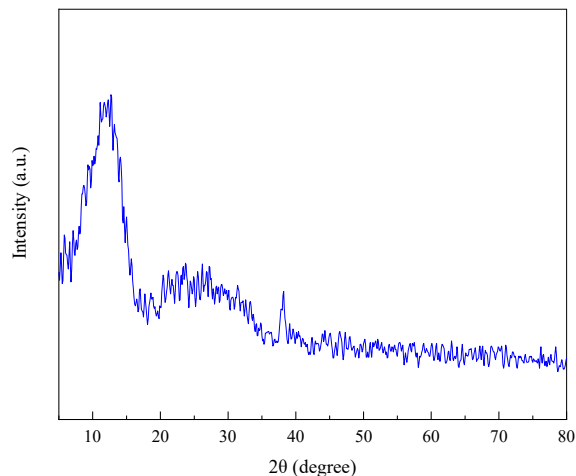
همان‌طور که شکل (۷) نشان می‌دهد، حدود ۰/۲ درصد از نمونه از نانوذرات نقره تشکیل شده و مابقی مربوط به اکسید گرافین است. مقایسه طیف نمونه تحت تابش فرابنفش به مدت ۳۰ دقیقه در شکل (۸)، تغییرات چندانی در ساختار بلوری نشان نمی‌دهد. از طرفی نتایج تحلیل نمودار با استفاده از نرم‌افزار مانند نمونه‌ی قبلی است. از این رو، به دلیل مقایسه آشکار تأثیر تابش فرابنفش بر ساختار بلوری، طیف‌سنجی پراش پرتو ایکس از نمونه تحت تابش به مدت ۲۴۰ دقیقه انجام شد.





شکل ۷ نمودار پراش پرتو ایکس مربوط به نمونه بدون تابش فرابنفش (بالا) و بررسی داده‌های آن (پایین).

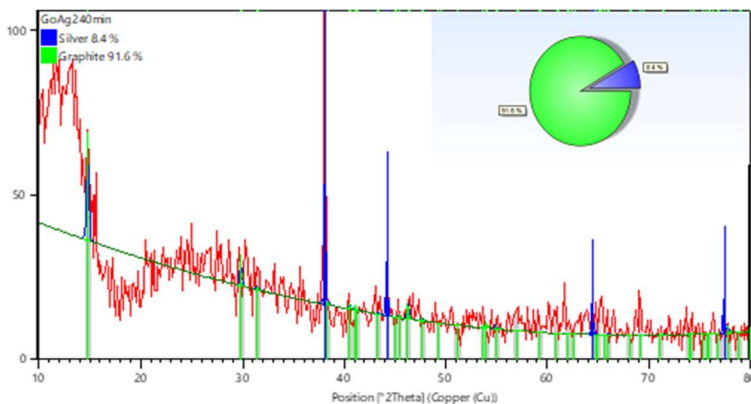
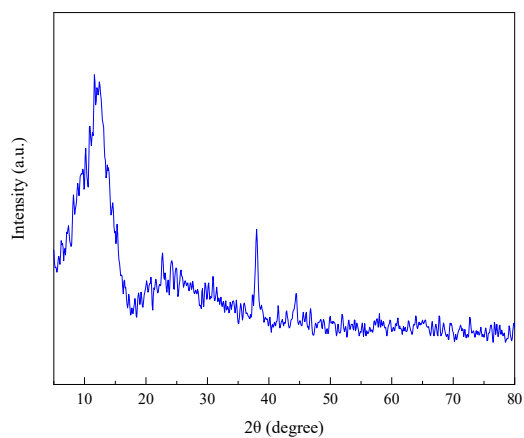




شکل ۸ نمودار پراش پرتو ایکس مربوط به نمونه تحت تابش فرابنفش به مدت ۳۰ دقیقه (بالا) و بررسی داده‌های آن (پایین).

در شکل (۹) طیف پراش پرتو ایکس نمونه تحت تابش به مدت ۲۴۰ دقیقه نشان داده شده است. افزایش شدت قله‌های مربوط به ساختارهای موجود در نمونه افزایش یافته است. همچنین بررسی طیف نشان می‌دهد که درصد فازی نقره موجود در نمونه نیز افزایش داشته است. دو دلیل محکم عبارتند از ۱- لایه اکسیدی، که در مرحله تولید نانوذرات نقره را احاطه کرده و تشکیل مدل هسته

پوسته نقره/ اکسید نقره داده بود، در اثر تابش فرابنفش از بین رفته و نانوذرات نقره با خلوص بالاتر تشکیل شده است. این امر همراه با جابه‌جایی قرمز نبوده، اگرچه ارتفاع قله و پهنای آن را افزایش می‌دهد. ۲- نانوذرات موجود در نمونه از صفحات اکسید گرافین جدا شده و افزون بر از دست دادن لایه اکسیدی، به همدیگر می‌پیوندند. در این صورت افزون بر افزایش ارتفاع و پهنای قله، فرآیند جابه‌جایی قرمز نیز وجود دارد. چرا که لایه اکسیدی بسیار نازک بوده و جابه‌جایی در حد چند نانومتر رخ داده که در عمل در طیف‌های جذبی شکل‌های (۳) و (۴) قابل مشاهده نمی‌باشد.



شکل ۹ نمودار پراش پرتو ایکس مربوط به نمونه تحت تابش فرابنفش به مدت ۲۴۰ دقیقه (بالا) و تحلیل داده‌های آن (پایین).



۴.۶ روبش محوری

در طیف نمونه‌ها، قله‌ی مربوط به اکسید گرافین در 238 nm و قله‌ی مربوط به کلئید نقره در 396 nm مشاهده می‌شود. جذب نسبی در طول موج 238 nm در نمونه‌های گوناگون متفاوت است. باید توجه داشت که برای بدست آوردن ضریب جذب خطی نمونه‌ها نیاز به توان بالا نیست. از این رو، برای محاسبه ضریب جذب خطی نمونه‌ها از یک صافی ND در چیدمان روبش Z استفاده شده است. آشکارساز شدت باریکه لیزری را پیش از عبور از نمونه در توان‌های مشخص ثبت نموده و سپس توان‌های خروجی از نمونه مشخص شده‌اند. قانون بیر و لامبرت به راحتی ضریب جذب خطی نمونه‌ها را مشخص می‌کند. در جدول (۴) کمیت‌ها و شرایط اولیه برای انجام آزمایش روبش Z آمده است. پیش از این نشان داده شده است، [۲۶]، که جذب خطی در اکسید گرافین بسته به غلظت آن بین $1/340$ تا $1/840$ تغییر می‌کند. در شکل (۳)، قله‌ای در 396 nm مشاهده می‌شود که پس از نوردهی مکان این قله بر اساس شکل (۴) جابه‌جایی قرمز نشان می‌دهد.

در شکل (۱۰)، نمودار بدست آمده از روبش در پیچه باز نمایش داده شده است. نمودارهای این شکل همگی دارای دره می‌باشند و نشان دهنده آن است که ضریب شکست غیرخطی نمونه‌ها منفی هستند. از معادلات (۱) تا (۳) برای برازش داده‌های تجربی جمع‌آوری شده و مشخص کردن جذب غیرخطی استفاده می‌شود. بزرگی عددی جذب غیرخطی برای نمونه‌ها از مرتبه $(-0.52 \pm 0.05) \times 10^{-14} (\text{cm}^2 / W)$ به دست آمده است.

در شکل (۱۱)، منحنی تغییرات $T(z)$ بر حسب Z نمایش داده شده است. نمودارهای شکل (۱۱) همگی مشخصه قله-دره را دارا می‌باشند که نشان از منفی بودن ضریب شکست غیرخطی نمونه‌ها دارند. واکانونی گرمایی بیشترین تاثیر را در رفتار غیرخطی نمونه‌ها دارند. در جدول (۵) نتایج بدست آمده از روبش محوری برای پنج نمونه تولید شده آمده است. همان‌گونه که در شکل‌ها دیده می‌شود ضریب شکست غیرخطی با تغییر زمان تحت تابش قرار گرفتن، تغییر کرده است. اگرچه این تغییرات بسیار ناچیز است.

در اثر جذب نور توسط محیط و نانوذرات شامل آن به صورت کلی ضریب شکست محیط تغییر می‌کند. جذب منجر به تغییر دمای δT می‌شود که به نوبه خود منجر به تغییر در چگالی موضعی $\delta \rho$ می‌گردد. تغییر در چگالی منجر به تولید امواج صوتی می‌شود که به صورت موثر تنش‌های ناشی از تغییرات چگالی را کاهش می‌دهد. هر دو عامل δT و $\delta \rho$ منجر به تغییر در ضریب شکست می‌گردند.



در تقریب اول، تغییر دما سهم غالب در غیر خطیتی حرارتی است. نکته مهم در اینجا محاسبه دمای حالت پایدار و در نتیجه بررسی تغییرات شعاعی ضریب شکست محیط است. در مورد تپ‌های لیزری کوتاه، فمتوثانیه، پیکوثانیه و یا نانوثانیه، توزیع اولیه ضریب شکست حرارتی القا شده از ریشه انعکاس همان توزیع باریکه فرودی است. ولی در مورد لیزرهای قفل شده‌ی مد و یا لیزرهای CW، اثرات تجمعی در مقیاس‌های زمانی میکروثانیه قابل مشاهده هستند. در این مرحله، اندازه، شکل و شرایط مرزی حرارتی نمونه در ایجاد رفتار حالت پایدار ضریب شکست مهم می‌شوند. در نتیجه از نمونه‌ای به نمونه دیگر، برحسب هندسه و ساختار نانوذرات و محیط اطراف آن تغییر می‌کند. ضریب شکست غیرخطی که در اثر تغییرات گرمایی ایجاد شده است، با آنالیز گرمایش غیریکنواخت در شرایط پایدار قابل محاسبه است. همچنین تغییرات دما در نقطه کانونی برابر $\Delta T = 10 \pm 0.5 \text{ } ^\circ\text{C}$ بدست آمده که برای هر پنج نمونه مقدار کمایش ثابتی را نشان می‌دهد. با توجه به مقدار عددی تغییر دمای نمونه‌ها ضریب ترمواپتیکی آن‌ها محاسبه شده است.

$$\left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_P = (-1.34 \pm 0.3) \times 10^{-9} \text{ (K}^{-1}\text{)}$$

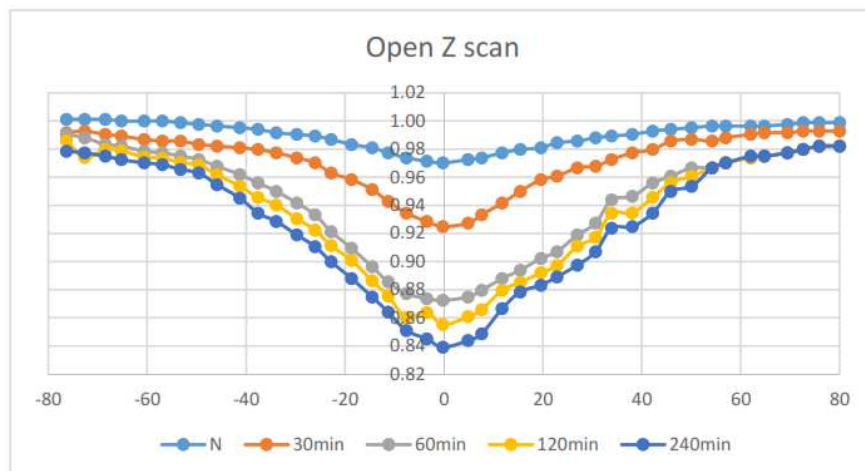
جدول ۴ بزرگی کمیت‌های مربوط به آزمایش روبش Z.

ردیف	نوع پارامتر	بزرگی پارامتر	ردیف	نوع پارامتر	بزرگی پارامتر
۱	بیشینه توان لیزر	۳۰۰ (mW)	۶	گشودگی روزنه	۰/۳۳
۲	طول موج (نانومتر)	۵۳۲ (nm)	۷	قطر لکه پس از لیزر	۱۲۰۰ (μm)
۳	بیشینه شدت تولیدی در کانون	(W/cm ²) ۳۰۵	۸	قطر لکه در کانون	۲۵۰ (μm)
۴	محدوده رایلی	۳۷ (cm)			
۵	فاصله کانونی عدسی محدب	۹ (cm)			

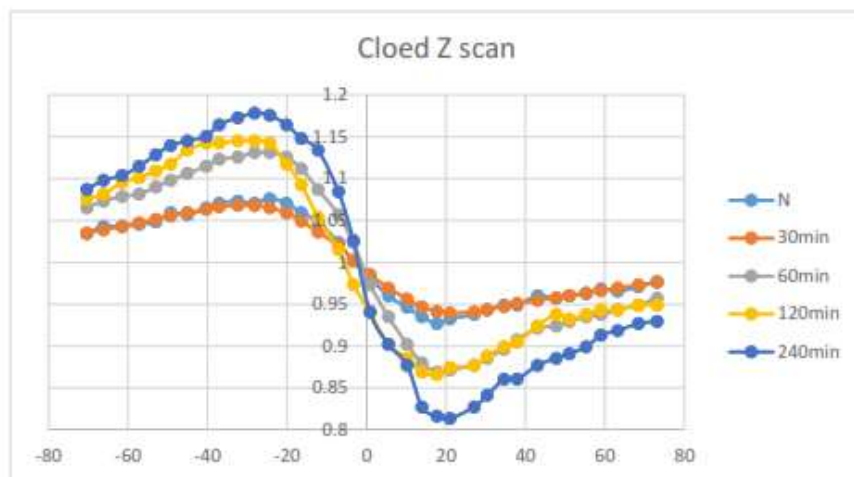


جدول ۵ نتایج بدست آمده از اندازه‌گیری‌های روبش محوری برای پنج نمونه نانوذرات اکسید نقره در محلول اکسید گرافین.

نمونه‌ها	ΔT_{P-V}	$\Delta \Phi_0$	$n_2 (cm^2 / W) \times 10^{-7}$
۱	۰/۰۶۲	۰/۱۷۰	$- ۰/۴۷۰ \times 10^{-14}$
۲	۰/۰۶۸	۰/۱۷۵	$- ۰/۴۶ \times 10^{-14}$
۳	۰/۰۷۲	۰/۱۸۲	$- ۰/۴۹ \times 10^{-14}$
۴	۰/۰۷۰	۰/۱۸۰	$- ۰/۴۸ \times 10^{-14}$
۵	۰/۰۷۴	۰/۱۷۸	$- ۰/۵۰ \times 10^{-14}$



شکل ۱۰ نمودار روبش درجه باز برای نانوذرات نقره در محلول اکسید گرافین. (اعداد ۳۰، ۶۰، ۱۲۰ و ۲۴۰ در نمودار به ترتیب زمان‌های نوردهی نمونه‌ها را مشخص می‌کند).



شکل ۱۱ نمودار روبش دریچه بسته برای نانوذرات نقره در محلول اکسید گرافن. (اعداد ۳۰، ۶۰، ۱۲۰ و ۲۴۰ در نمودار به ترتیب زمان‌های نوردهی نمونه‌ها را مشخص می‌کند.)

۵.۶ نتایج SPM

در شکل (۱۲) الگوی فریزهای اکسید گرافن همراه با نانوذرات اکسید نقره پس از تخلیه قوس الکتریکی و در شکل (۱۳) الگوی فریزهای تشکیل شده مربوط به اکسید گرافین همراه با نانوذرات اکسید نقره پس از تابش فرابنفش نمایش داده شده است. با توجه به $\Delta n < 0$ ، «محیط خود واکانونی کننده» است.

بر اساس نظریه SPM اغلب تغییرات ضریب شکست $\Delta n = n - n_0$ زمانی ایجاد می‌شود که باریکه گاوسی از داخل محیط غیرخطی عبور کند. اگر $\Delta n > 0$ باشد، مدولاسیون فاز فضایی (SPM) که توسط Δn شروع می‌شود تولید «عدسی مثبت» می‌کند و اثر پراکندگی خطی باریکه گاوسی را تا حدودی خنثی کرده و باریکه متمرکز می‌شود. اگر $\Delta n < 0$ باشد، مدولاسیون فاز فضایی (SPM) تولید «عدسی منفی» می‌کند و واگرایی باریکه گاوسی بیشتر می‌شود. از این رو، محیط‌هایی که برای آن‌ها $\Delta n > 0$ است، «محیط خود واکانونی کننده» و محیط‌هایی که برای آن‌ها $\Delta n < 0$ است، «محیط خود واکانونی کننده» نامیده می‌شوند. در اینجا محیط اکسید گرافن و اکسید نقره هر دو تولید «عدسی منفی» می‌کنند. از معادله (۱۲) مشاهده می‌شود، هنگامی که باریکه از داخل محیط خود واکانونی کننده عبور می‌کند $\Delta\phi(r) < 0$ است و هنگامی که از داخل محیط



خود کانونی کننده عبور می‌کند، $\Delta\varphi(r) > 0$ است. افزون بر این، باریکه گاوسی پیش از صفحه کانونی همگرا است و شعاع جبهه موج منفی است ($R < 0$)؛ در حالی که بعد از کانون، باریکه واگرا است و شعاع جبهه موج مثبت است ($R > 0$).

برای محیط نمونه‌های تولید شده در این پژوهش، که خود واکانونی کننده بوده $\Delta n < 0$ بوده و مانند عدسی واگرا عمل می‌کنند، دو حالت وجود دارد:

$$R > 0, \Delta\varphi < 0 \quad \text{الف)}$$

به صورت همه جانبه، الگوی پراش مربوطه دارای یک ناحیه مرکزی تاریک بوده و فریزها ضخیم هستند. اندازه لگه تاریک با تغییر مقدار جابه‌جایی فاز $\Delta\varphi_0(z_0)$ تغییرات کمی را شامل می‌شود. با افزایش جابه‌جایی فاز $\Delta\varphi_0(z_0)$ تعداد حلقه‌های روشن اطراف لگه مرکزی نیز افزایش می‌یابد. تعداد حلقه‌های تشکیل شده از $N = |\Delta\varphi_0(z_0)| / 2\pi$ بدست می‌آید.

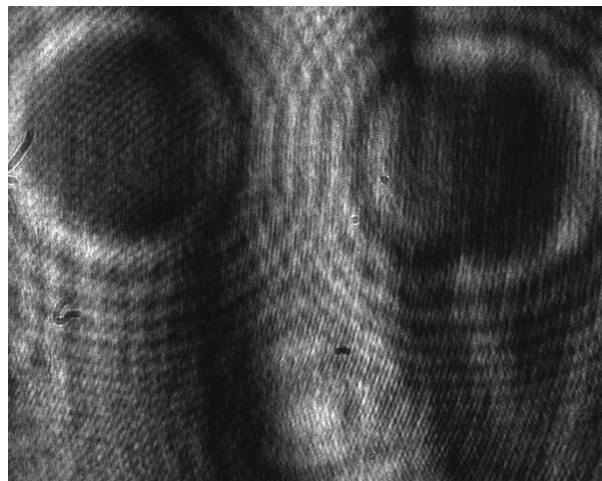
$$R < 0, \Delta\varphi < 0 \quad \text{ب)}$$

به صورت همه جانبه، الگوی پراش مربوطه در این حالت دارای یک ناحیه مرکزی روشن است و فریزهای نازک در آن تشکیل می‌شود. هر چه فاصله از مرکز بیشتر باشد، شدت قلّه کاهش بیشتری را نشان می‌دهد. تشابه با بخش پیش در این است که تعداد حلقه‌های پراش با افزایش قدر مطلق جابه‌جایی فاز افزایش می‌یابد و فاصله میان حلقه‌ها نیز از داخل به خارج افزایش می‌یابد.

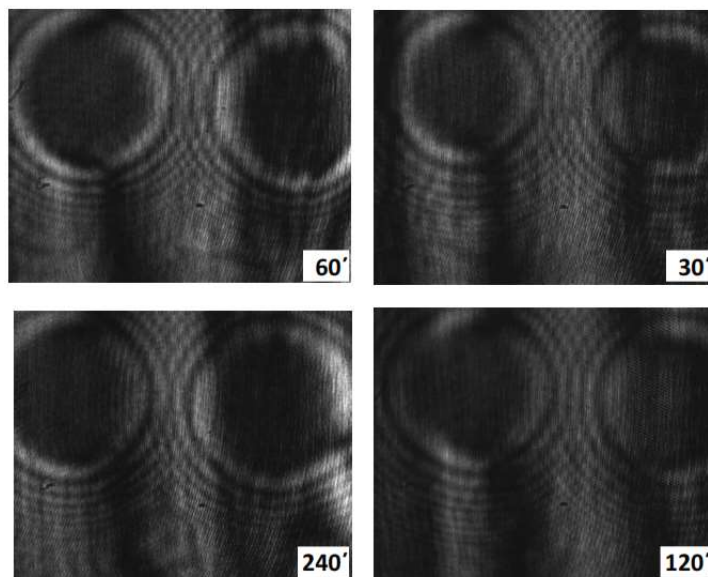
این دو حالت شدت یکسانی را در معادله (۱۵) تولید می‌کنند. به صورت خلاصه، هنگامی که علامت $\Delta\varphi(r)$ و علامت R مخالف هم باشند یعنی باریکه گاوسی واگرا که از محیط خود واکانونی کننده عبور می‌کند، "الگوی پراش ضخیم" که در آن لگه مرکزی تاریک است و توزیع شدت در فاصله بیشتری وجود دارد، شکل می‌گیرد. اگرچه زمانی که این دو کمیت ($\Delta\varphi(r), R$) هم علامت باشند، "الگوی پراش نازک" که در آن لگه مرکزی روشن است و توزیع شدت در فاصله کمتری وجود دارد، شکل می‌گیرد [۱۶-۱۷].

مشخصه اصلی شکل‌های (۱۲) و (۱۳)، وجود دو مرکز برای تشکیل الگوهای پراش دور است. اگر چه تعداد فریزها قابل شمارش است و از روی آن می‌توان تغییرات فاز را محاسبه نمود. اگرچه شکل (۱۳) نشان می‌دهد که در اثر نوردهی تغییرات چندانی در فاز آن‌ها و تعداد فریزهای تشکیل شده ایجاد نمی‌شود. وجود دو مرکز پراش در تمام الگوها حکایت از تثبیت موقعیت‌های نقره و اکسید گرافن دارد.





شکل ۱۲ الگوی فریزهای اکسیدگرافن همراه با نانوذرات اکسید نقره پس از تخلیه قوس الکتریکی.



شکل ۱۳ نمای فریزهای تشکیل شده مربوط به اکسیدگرافین همراه با نانوذرات اکسید نقره پس از تابش فرابنفش به مدت ۳۰، ۶۰، ۱۲۰ و ۲۴۰ دقیقه.



۷. نتیجه‌گیری

در این پژوهش نانوذرات هسته- پوسته نقره/ اکسید نقره در محلول اکسید گرافین به روش قوس الکتریکی با موفقیت تهیه شده است. نتایج طیف‌سنجی مرئی- فرابنفش نشان‌دهنده تشکیل درست قله‌های تشدید پلاسمونی در بازه طول موجی 396 nm تا 400 nm مربوط به نانوذرات نقره و 238 nm تا 242 nm در نمونه‌های اکسید گرافین است. در نهایت با جمع‌بندی نتایج بدست آمده از طیف‌سنجی‌های مرئی- فرابنفش، تبدیل فوری مادوفروسرخ و پراش پرتو ایکس، مشاهده شد که نانوذرات هسته- پوسته نقره/ اکسید نقره تشکیل شده و همزمان روی صفحات اکسید گرافین تثبیت شده‌اند. همچنین جذب خطی نمونه‌های تولید شده که در توان‌های کم با استفاده از لیزر 532 nm اندازه‌گیری شده، مقادیر قابل قبولی را نشان می‌دهد. نتایج روبش محوری نشان می‌دهد که علامت ضرایب جذب غیرخطی و ضریب شکست غیرخطی نمونه‌ها منفی است. از این رو، با توجه به شدت بالای باریکه‌های لیزری مهمترین روش حاکم بر این رفتار غیرخطی خودواکانونی گرمایی است. با افزایش مدت زمان نوردهی ضرایب جذب خطی و غیرخطی تغییرات زیادی نداشتند. بررسی نتایج مدولاسیون فضایی فاز نشان می‌دهد که مکان نانوذرات هسته- پوسته نقره/ اکسید نقره و اکسید گرافین تثبیت شده است و مکان آن‌ها با نوردهی تغییر نمی‌کند. هر یک از آن‌ها به عنوان مرکز پراش جداگانه عمل می‌کند و الگوی پراش دوگانه‌ای تولید شده است که تاکنون گزارش نشده است.

۸. تقدیر و تشکر

نویسندگان از آقای دکتر سیف الله رسولی عضو هیات علمی مرکز تحصیلات در علوم پایه زنجان که تصاویر اس پی ام را تهیه نمودند، نهایت تقدیر و تشکر را به عمل می‌آورند.

منابع

- [1] Liu Z., Zhang X., Yan X., Chen Y., and Tian J., "Nonlinear optical properties of graphene-based materials", *Chinese Sci. Bull.* 57(23), 2971-2982, 2012. <https://doi.org/10.1007/s11434-012-5270-4>
- [2] Dissanayake D.M.A.S., Cifuentes M., Humphrey M.G., "Optical limiting properties of (reduced) graphene oxide covalently functionalized by coordination complexes", *Coordin. Chem. Rev.* 375, 489-513, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.ccr.2018.05.003>.
- [3] Bonaccorso, F., Sun, Z., Hasan T., Ferrari, A. C., "Graphene Photonics and Optoelectronics", *Nature Phot.* 4, 611, 2010. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2010.186>



- [4] Elisabeth Gruber , Richard A. Wilhelm , Re'mi Pe'tuya , Valerie Smejkal¹ , Roland Kozubek, "Ultrafast electronic response of graphene to a strong and localized electric field", *Nature Comm.* 7, 13948, 2016. <https://doi.org/10.1038/ncomms13948>
- [5] Sun, Y.; Xia, H., "Bi₂Te₃/Graphene Heterostructure as the Saturable Absorber for ~1.0 μm Passively Q-switched Solid State Pulsed Laser", *Crystals*, 12(2), 222, 2022. <https://doi.org/10.3390/cryst12020222>
- [6] Zhao, X., Liu, Z.-B., Yan, W.-B., Wu Y., Zhang X.-L., Chen Y., Tian J.-G., "Ultrafast carrier dynamics and saturable absorption of solution-processable few-layered graphene oxide", *Appl. Phys. Lett.* 98(12), 121905, 2011. <https://doi.org/10.1063/1.3570640>
- [7] Zhibo Liu, Yan Wang, Xiaoliang Zhang, Yanfei Xu, Yongsheng Chen, and Jianguo Tian; "Nonlinear optical properties of graphene oxide in nanosecond and picosecond regimes"; *Appl. Phys. Lett.* 94, 021902, 2009. <https://doi.org/10.1063/1.3068498>
- [8] Wang, Y. et al., "Distinguishing Thermal Lens Effect from Electronic Third-order Nonlinear Self-phase Modulation in Liquid Suspensions of 2D Nanomaterials", *Nanoscale* 9(10), 2017. <https://doi.org/10.1039/C6NR08487G>
- [9] Neupane, T., Tabibi, B.; Kim, W. J., Seo, F. J., "Spatial Self-Phase Modulation in Graphene-Oxide Monolayer"; *Crystals* 13(2), 271, 2023. <https://doi.org/10.3390/cryst13020271>
- [10] Martinez Irvias, B. A., Arroyo Carrasco M. L., "Far-field diffraction patterns by a thin nonlinear absorptive nonlocal media"; *Optics Express* 23(11), 14036-14043, 2015. <https://doi.org/10.1364/OE.23.014036>
- [11] Durbin, S. D., Arakelian S. M., Shen, Y. R., "Laser-induced diffraction rings from nematic-liquid-crystal film", *Opt. Lett.*, 6(9), 411-413, 1981. <https://doi.org/10.1364/OL.6.000411>
- [12] Xiangpeng Yang, Decai Li, Qian Li, Xiangshen Meng, "Spatial self-phase modulation of a Gaussian beam transmitted through a ferro fluid", *Appl. Opt.* 59(32), 10, 10069, 2020. <https://doi.org/10.1364/AO.406296>
- [13] Wang, G., Zhang, S., Umrans, F. A., Cheng, X., Dong, N., Coghlan, D., "Tunable effective nonlinear refractive index of graphene dispersions during the distortion of spatial self-phase modulation", *Appl. Phys. Lett.* 104, 141909, 2014.
- [14] Zhang, X. Yu, W. Han, B. Lv, and J. He, "Broadband spatial selfphase modulation of black phosphorous", *Opt. Lett.* 41, 1704-1707, 2016. <https://doi.org/10.1364/OL.41.001704>
- [15] Garcia Ramirez, E. V., Arroyo Carrasco, M. L., Chavez Cerda, S., Mendez Otero, M. M., Iturbe Castillo, M. D.; "Far field intensity distributions due to spatial self phase modulation of a Gaussian beam by a thin nonlocal nonlinear media"; *Opt. Exp.* 18(21), 22067, 2010. <https://doi.org/10.1364/OE.18.022067>
- [16] Lucchetti, L., Suchand, S., Simoni, F., "Fine structure in spatial self-phase modulation patterns: at a glance determination of the sign of optical nonlinearity in highly nonlinear films", *J. Opt. A* 11, 034002, 2009. <https://doi.org/10.1088/1464-4258/11/3/034002>
- [17] Deng, L., He, K., Zhou, T., Li, C.; "Formation and evolution of far-field diffraction patterns of divergent and convergent Gaussian beams passing through self-focusing and self-defocusing media", *J. Opt., A: Pure Appl. Opt.* 7, 409-415, 2005. <https://doi.org/10.1088/1464-4258/7/8/011>
- [18] Sheik-Bahae M., Said A.A., Van Stryland E.W., "High-sensitivity, Single-Beam n₂ Measurements", *Opt. Lett.*, 14, 955-957, 1989. <https://doi.org/10.1364/OL.14.000955>
- [19] Sheik-Bahae M., Said A.A., Wei A.A., Hagan D.J., Stryland E.W.V., "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam", *IEEE J. Quantum Electron.* 26, 760-769, 1990. <https://doi.org/10.1109/3.53394>



- [20] Parra I., Valbuena S., Racedo F J, "Measurement of nonlinear optical parameters in graphene oxide using the Z-scan Technique", *Spectrochimica Acta A*, 244(5), 118833, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.saa.2020.118833>
- [21] Nadjari H., Hajiesmaeilbaigi F., Motamedi A., "Thermo Optical Response and Optical Limiting in Ag and Au Nanocolloid Prepared by Laser Ablation", *Laser Physics* 20(4), 859, 2010. <https://doi.org/10.1134/S1054660X1007025X>
- [22] Nadjari H., Movahedinejad H., "Investigating the size effect in the dielectric function of spherical nano particles and determining their allowed radial interval for experimentally produced samples", *Iranian Journal of Physics Research* 20(1), 23-30, 2020. (In Persian) <https://doi.org/10.47176/ijpr.20.1.38131>
- [23] Zaaba N.I., Foo K.L., Hashim U., Tan S.J., Liu W.W., Voon C.H., "Synthesis of Graphene Oxide using Modified Hummers Method: Solvent Influence Procedia Engineering", *Procedia Engineering* 184, 469-477, 2017. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2017.04.118>
- [24] Kovtyukhova, N. I. et al., "Layer-by-layer assembly of ultrathin composite films from micron-sized graphite oxide sheets and polycations", *Chem. Mater* 11, 771-778, 1999. <https://doi.org/10.1021/cm981085u>
- [25] Yun G.S., Bac L.H., Kim J.S., Kwon Y.S., Choi H.S., Kim J.C., "Preparation and dispersive properties of Ag colloid by electrical explosion of wire", *J. All. & Comp.*, 509, Supple. 1, S348-S352, 2011. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2011.01.142>
- [26] Meimanat S., Nadjari H., Rasuli R.; "Investigation of linear and non-linear behaviors of silver oxide nanoparticles in graphene oxide solution", *Iranian Journal of Applied Physics* 13(4), 2023. (In Persian). <http://doi.org/10.22051/ijap.2023.43454.1319>
- [27] Kim H., Parvez S. R., Chhowalla M. K., "UV-reduction of graphene oxide and its application as an interfacial layer to reduce the back-transport reactions in dye-sensitized solar cells", *Chemical Physics Letters* 483, 124-127, 2009. <http://doi.org/10.22051/ijap.2023.43454.1319>



This article is an open-access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution-Noncommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0 license) (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>).