*На правах рукописи*

КАРПОВ ДМИТРИЙ АНДРЕЕВИЧ

# ДИНАМИКА ВИХРЕВОЙ ТОПОЛОГИЧЕСКОЙ СТРУКТУРЫ В ОБЪЕМЕ ОТДЕЛЬНОЙ НАНОЧАСТИЦЫ ТИТАНАТА БАРИЯ ВО ВНЕШНЕМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

Специальность 01.04.07 – Физика конденсированного состояния

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Томск – 2018

Работа выполнена на кафедре общей физики Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский Томский политехнический университет», г. Томск

**Научный руководитель:** **Крючков Юрий Юрьевич**
доктор физико-математических наук, профессор

**Официальные оппоненты:** **Шур Владимир Яковлевич**
доктор физико-математических наук, профессор, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», главный научный сотрудник, г. Екатеринбург

**Емельянов Никита Александрович**
кандидат физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение высшего образования «Курский государственный университет», доцент кафедры физики и нанотехнологий, г. Курск

**Ведущая организация:** Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники» (ТУСУР), г. Томск

Защита состоится «16» май 2018 года в 16:30 часов на заседании диссертационного совета Д 212.269.02 при ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский Томский политехнический университет», 634034, г. Томск, пр. Ленина, 30

С диссертацией можно ознакомиться в научно-технической библиотеке ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский Томский политехнический университет» по адресу 634050, г. Томск, ул. Белинского, 53 и на сайте: http://portal.tpu.ru/council/909/worklist

Автореферат разослан «14» марта 2018 г.

Ученый секретарь совета по защите докторских и кандидатских диссертаций Д 212.269.02 доктор физико-математических наук Коровкин М.В.

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность исследования**

В настоящее время активно изучается возможность использования контролируемого создания дефектов для улучшения свойств материалов. Различают две группы дефектов: классические и топологические дефекты. Топологические дефекты отличаются тем, что проявляются не как локализованная неоднородность кристаллической решетки, а как коллективное поведение элементов решетки, описываемое математической структурой и имеющее дальний порядок действия. Такая форма дефекта представляет интерес, как с точки зрения фундаментальных исследований, так и для практического применения в силу того, что ее влияние способно существенно изменять свойства известных материалов.

Сегнетоэлектрики являются одними из материалов, чьи свойства имеют широкий потенциал применения в создании энергонезависимой памяти и других элементах электроники следующего поколения, а также в технологиях, относящихся к накоплению и хранению энергии. При этом исследования сегнетоэлектриков на наноразмерности показывают существование текстур со сложной топологией, такой как поляризованные вихри. Такие вихревые топологические структуры формируются в результате взаимодействий дальнего порядка под влиянием деформаций и распределений электрических потенциалов на границе системы. Влияние формы и размера среды на поведение вихрей активно изучается теоретически с использованием моделей электронной структуры и фазового поля.

Актуальностью изучения поведения вихревых структур в сегнетоэлектриках является то, что теоретические исследования показывают, что наносегнетоэлектрические материалы способны увеличить плотность хранения в энергонезависимой памяти в 10000 раз. Но данные улучшения становятся доступны лишь при возможности наблюдения и управления структурными переходами, включая метастабильные состояния, позволяющие упростить переключение доменов.

**Степень разработанности темы исследования**

Изучение вихревых структур на поверхности образца возможно с помощью электронных микроскопов с высокой разрешающей способностью, атомно-силовых

микроскопов, а также различных оптических методов. Тем не менее, в силу фундаментальных ограничений (таких как проникающая способность и разрешение), данные подходы до сих пор не были применены для прямого неинвазивного изучения вихревых структур, в частности, в объеме наносегнетоэлектрика под воздействием внешних возмущений, таких как приложенное электрическое или магнитное поле, что ограничивает понимание данного феномена.

Решение данной задачи возможно с использованием когерентного рентгеновского излучения, отличающегося высокой проникающей и разрешающей способностью. В последние годы наблюдается прогресс в использовании когерентной дифракционной визуализации для изучения локальной структуры в объеме конденсированного состояния вещества. Данный метод использует улучшенную пространственную и временную когерентность, а также спектральную яркость источников синхротронного излучения третьего и четвертого поколения. Кроме того, развитие алгоритмов восстановления фазовой информации по дифракционной картине позволяет расшифровать и визуализировать информацию об объемном распределении электронной плотности, атомных и ионных полях смещений в отдельной наночастице с разрешением, ограниченным лишь пределом дифракции рентгеновского излучения с длинами волн в диапазоне от 0.6 до 2 Å.

**Цель данной работы** заключается в обнаружении и исследовании динамики вихревой топологической структуры в объеме отдельной наночастицы титаната бария под воздействием внешнего электрического поля с помощью метода рентгеновской когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга.

**Для достижения цели были поставлены и решены следующие задачи:**

1. Разработать и изготовить функциональную кювету для наночастиц титаната бария, позволяющую прикладывать к образцам внешнее электрическое поле. С помощью лабораторного рентгеноструктурного анализа провести оценку структуры приготовленного порошка титаната бария. Приготовить композитную смесь из наночастиц титаната бария и эпоксидного полимера и с помощью метода электронной микроскопии провести оценку распределения наночастиц. Провести оценку сегнетоэлектрических свойств образца, после помещения его в

функциональную кювету. Разработать и собрать установку, использующую лазерное излучение в видимом диапазоне длин волн, для отработки методики решения фазовой проблемы когерентной дифракции и изучить алгоритмы итеративного восстановления фазы;

2. Отработать процедуру поиска наночастиц с активными фазовыми переходами с использованием синхротронного излучения. Провести анализ изменений дифракционной картины активной наночастицы титаната бария в функциональной кювете под воздействием внешнего электрического поля;

3. Из полученных дифракционных картин восстановить объемную информацию об ионном смещении в отдельной наночастице титаната бария. Определить возможность визуализации вихревой топологической структуры в объеме наночастицы и по полученным визуализациям сделать выводы о поведении центра вихря под воздействием внешнего электрического поля и его влиянии на переключение сегнетоэлектрических доменов;

4. Провести анализ и интерпретацию результатов реконструкции объемной информации и визуализировать тороидный момента, являющийся параметром порядка, характеризующим вихревую топологическую структуру. Сделать вывод о возможности управления данной топологией.

**Объектом исследования** являлись наночастицы титаната бария, заключенные в функциональную кювету и подвергающиеся воздействию изменяющегося внешнего электрического поля в процессе измерения дифрактограмм методом когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга.

**Предмет исследования:** поведение вихревой топологии сегнетоэлектрической поляризации в объеме отдельной наночастице титаната бария и ее влияние на динамику доменов и сингонии под воздействием изменяющегося внешнего электрического поля.

**Научная новизна**

1. Впервые визуализировано объемное распределение сегнетоэлектрической поляризации в отдельной наночастице титаната бария, содержащей вихревую топологическую структуру. Изучено влияние внешнего электрического поля на поведение вихревой топологии, что позволило установить связь между распределением поляризации и поведением центра топологического

вихря. Показано что характер структурных изменений сегнетоэлектрических доменов напрямую связан с центром вихревой топологии, находящимся на границе между доменами;

2. Обнаружено, что центр топологического вихря в объеме наночастицы титаната бария представляет собой наностержень с диаметром кругового сечения, приблизительно равным 30 нм, поворачивающийся под действием изменяющегося внешнего электрического поля и обладающий выраженным гистерезисом ориентации в объеме наночастицы;

3. Установлено что исследуемый топологический вихрь обладает хиральностью, зависящей от внешнего электрического поля, чего раньше не наблюдалось. Для определения хиральности был рассчитан тороидный момент сегнетоэлектрической поляризации и проанализированы его проекции при разных значениях величины напряженности электрического поля;

4. Впервые экспериментально показано, что при отсутствии внешнего электрического поля домены в наночастице титаната бария обладают тетрагональной и моноклинной сингониями, имеющими неоднородное распределение в объеме наночастицы. При этом граница доменов обладает моноклинной сингонией и формирует центр вихревой топологии. Под воздействием внешнего электрического поля топологический вихрь проходит через структурные изменения и объем наночастицы титаната бария становится моноклинным;

5. В процессе отработки методики решения фазовой проблемы, необходимой для восстановления фазовой информации в наночастице титаната бария, впервые продемонстрирован способ оценки распределения проекций диэлектрической проницаемости среды в образце нематического жидкого кристалла с помощью когерентной дифракционной визуализации.

**Практическая значимость** результатов исследований, полученных в диссертационной работе, формулируются следующим образом:

1. Результаты работы расширяют понимание динамики топологических вихревых структур под действием внешних возмущений. Наблюдается гистерезис ориентации и положения центра вихря под действием внешнего электрического

поля. При этом сам центр топологии можно рассматривать как электропроводящий наностержень в непроводящем объеме сегнетоэлектрической наночастицы;

2. Поведение сегнетоэлектрической поляризации в наночастице титаната бария связано с границами доменов, формирующими центр вихря, и может управляться внешним электрическим полем. При этом выраженный гистерезис положения и ориентации вихря, а также влияние наностержня на проводящие свойства объема наночастицы открывают перспективу его использования в процессе считывания и записи информации;

3. Управляемая хиральность тороидного момента топологического вихря может быть использована в устройствах с перестраиваемыми оптическими свойствами материалов;

4. Отработанная процедура поиска наночастиц с активными фазовыми переходами, разработанная функциональная кювета, а также оценка работоспособности алгоритма реконструкции демонстрируют возможность дальнейшего изучения пикосекундной динамики различных топологических структур в целом классе кристаллических образцов, чьи свойства нельзя объяснить без учета эффектов на малой размерности;

5. Результаты измерений оптической анизотропии образца нематического жидкого кристалла, полученные на установке с лазером, излучающим в области длин волн видимого диапазона, открывают возможности для использования метода лазерной когерентной дифракционной визуализации с контрастом двойного лучепреломления для исследований жидких кристаллов, а также других прозрачных образцов, где оптическая анизотропия играет важную роль. Данная система может быть представлена в упрощенной конфигурации для визуализации таких двумерных образцов как пленки и эмульсии, а также клеточные культуры и тонкие срезы биологических тканей, что делает ее полезной как в исследовательском, так и в учебном процессе. Отличительной особенностью созданной установки является относительная простота основных компонентов, которые доступны в учебной лаборатории оптики, а также модульность, позволяющая изучать различные оптические эффекты на одном лабораторном стенде.

**Методология и методы исследования**

Основным методом исследования отдельной наночастицы титаната бария под воздействием внешнего электрического поля в диссертационной работе является когерентная дифракционная визуализация в геометрии Брэгга. Данный метод нашел широкое применение при исследовании различных дефектов в наноматериалах. Основой метода является возможность итеративного инвертирования дифракционных картин и получения объемного распределения электронной плотности и картины атомных и ионных смещений в прямом пространстве. Выбор метода когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга для изучения топологических дефектов в отдельной наночастице титаната бария обусловлен надежностью и воспроизводимостью метода, продемонстрированной в большом количестве публикаций и наличием программного обеспечения с открытым исходным кодом, позволяющего проводить восстановление и анализ фазовой информации из дифракционных картин.

Реконструкция полученных дифрактограмм производилась методом проекции решения на множество ограничений. Отработка алгоритмов реконструкции проводилась на установке лазерной когерентной дифракционной визуализации в контрасте двойного лучепреломления. Полученные результаты реконструкций вихревой топологии сравнивались с фазовой моделью на основе феноменологической теории Ландау.

Подготовка порошка наночастиц титаната бария осуществлялась золь-гель методом, оценка структурных свойств подготовленного порошка проводилась методом рентгеноструктурного анализа, однородность смешивания наночастиц с полимером проверялась на сканирующем электронном микроскопе, а его сегнетоэлектрические свойства оценивались по модифицированной схеме Сойера-Тауэра.

**Положения, выносимые на защиту:**

1. Наночастицы титаната бария обладают выраженным топологическим дефектом - вихрем сегнетоэлектрической поляризации. Данная топология существенно меняет физические свойства отдельной наночастицы - положение центра вихревой топологии приходится на границу между доменами и при

воздействии внешнего электрического поля граница доменов смещается вместе с центром вихря, что влияет на механизм протекания фазовых переходов;

2. Центральная область (ядро) топологического вихря в наночастице титаната бария представляет собой наностержень с диаметром сечения порядка 30 нм, который проходит через весь объем наночастицы и является мобильным под воздействием внешнего электрического поля. Наностержень, в отличии от доменов в наночастице, обладает нулевой сегнетоэлектрической поляризацией и является проводником для носителей заряда;

3. Тороидный момент наночастицы титаната бария при разной величине внешнего электрического поля переходит из состояния, в котором его проекции имеют центральную симметрию в объеме, в состояние, в котором его проекции демонстрируют выраженную асимметрию, что указывает на управляемую хиральность топологического вихря;

4. Под действием внешнего электрического поля происходят изменения структуры наночастицы, что подтверждается полученными дифракционными картинами при разной напряженности поля. Исходная структура характеризуется присутствием двух сингоний - тетрагональной и моноклинной. При максимальном приложенном электрическом поле напряженностью 223 кВ/см кристаллической структурой в наночастице титаната бария становится моноклинная сингония.

**Достоверность полученных в работе результатов** обеспечивается корректностью поставленных задач и их обоснованностью, использованием прецизионного оборудования и современных методов обработки данных и методов исследования, большим массивом обработанных данных и сопоставлением полученных результатов исследования с теоретическими моделями.

**Личный вклад соискателя.** Постановка целей и задач исследований была проведена совместно с научным руководителем. Автором самостоятельно адаптирована теория когерентной дифракционной визуализации и итеративных алгоритмов восстановления фазы к изучению вихревой топологии и коэффициентов двойного лучепреломления в оптически анизотропных материалах. Подготовка и оценка параметров образцов проведена автором. Проведение экспериментальных исследований осуществлено автором. Анализ, интерпретация результатов эксперимента и интерпретация моделирования экспериментальных

данных, а также формулировка выводов и защищаемых положений диссертации принадлежит лично автору.

Эксперименты с использованием лазерного излучения были проведены на базе оптической лаборатории группы Фотуна Государственного Университета Нью Мексико (Лас Крусес, США) и автор выражает благодарность Ханне Рич и профессору Эдвину Фотуну за помощь при проведении экспериментов и обсуждение полученных результатов. Эксперименты с использованием синхротронного излучения были проведены на станции 34-ID-C источника Advanced Photon Source Аргоннской Национальной Лаборатории (Лемонт, США). Автор выражает благодарность заведующему станцией Росу Хардер за помощь в проведении эксперимента.

**Апробация работы**

Материалы диссертации были представлены на международных и российских конференциях: IX международной конференции студентов и молодых ученых Перспективы Развития Фундаментальных Наук (Томск, 2012), VII международной научно-практической конференции Физико-технические Проблемы в Науке, Промышленности и Медицине (Томск, 2015), XII международной конференции студентов и молодых ученых Перспективы Развития Фундаментальных Наук (Томск, 2015), международном конгрессе Energy Fluxes and Radiation Effects (Томск, 2016), международной конференции американского физического общества APS March Meeting (Балтимор, 2016) и международной конференции американского физического общества Joint Meeting of the Four Corners and Texas Sections of the American Physical Society (Лас Крусес, 2016).

**Публикации**

По теме диссертации опубликовано 19 работ, из них: 3 статьи в журнале из перечня ВАК [1-3], 7 статей в зарубежных изданиях [4-10], входящих в базы данных Web of Science и Scopus, 1 публикация в журнале с импакт-фактором > 12 [4], 1 статья в журнале с импакт-фактором > 4 [7], 1 статья в журнале с импакт-фактором >1 [10] и 9 тезисов докладов по итогам конференций [11-19].

**Объем и структура работы:** диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, основных результатов, четырех приложений и списка цитируемой

литературы. Общий объем диссертации 152 страниц, включая 45 рисунков и список литературы из 156 наименований.

## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во введении** обоснована актуальность диссертационного исследования, сформулированы цель и задачи исследования, представлены основные положения, выносимые на защиту, обоснованы научная новизна и практическая значимость работы. В этом же разделе приведен краткий обзор состояния исследований топологических дефектов в наносегнетоэлектрических образцах, методов анализа и связанных с ними трудностями для решения задач исследования, а также показаны преимущества выбранного метода исследований.

**В первой главе** рассмотрены основы скалярной теории дифракции, принятые приближения при моделировании распространения волн, описано понятие когерентности волн, а также основные принципы работы синхротронного источника излучения и его элементов. Также проведен обзор существующих методов рентгеновской трехмерной визуализации структуры вещества и обоснован выбор в качестве метода исследований брэгговской когерентной дифракционной визуализации.

**Во второй главе** описаны основы восстановления фазовой информации по дифракционной картине образца. Для этого описана фазовая проблема, заключающаяся в невозможности детекторов регистрировать информацию о кривизне волнового фронта. Показаны необходимые условия дискретизации интенсивности дифракционной картины для восстановления фазовой информации, а также описаны ограничения, позволяющие сходимость алгоритмов к однозначному решению. В качестве примеров вариантов итеративного решения фазовой проблемы приведены два класса алгоритмов: градиентного спуска и проекций на множества ограничений. Из краткого обзора сделаны выводы о недостатках первого класса алгоритмов, связанного в первую очередь с высокой вычислительной требовательностью, которая для задач восстановления изображений является практически невыгодной.

Продемонстрированы преимущества алгоритмов проекций на множество ограничений и подробно описан процесс восстановления на примере алгоритмов Гершберга-Сакстона, алгоритма уменьшения погрешности и алгоритма ввода-

выводы. Кроме того, дано описание принципа работы одной из версий алгоритма ввода-вывода (HIO), а именно алгоритма дифференцированного присваивания (DM), в настоящее время являющегося наиболее точным методом восстановления фазовой информации.

Описаны основные ограничения в данном классе алгоритмов и их влияние на сходимость, определяющуюся как минимизация ошибки восстановления фазовой информации. Представлен метод определения ошибки между полученным решением и единственно верным решением.

Также в данной главе для оценки работоспособности метода и поведения ошибки проведены тестовые реконструкции на смоделированных данных, оценено влияние шума на сходимость и продемонстрированы изменения качества конечных восстановленных изображений в зависимости от количества усреднений из нескольких запусков алгоритма.

**В третьей главе** представлены результаты проведенных экспериментов с использованием видимого света. Измерения проводились с целью оценки работоспособности метода восстановления изображений по дифракционной картине алгоритмами DM и HIO. Принципиальная схема измерений представлена на рисунке 1. Для оценки работоспособности алгоритма DM было использовано поляризованное излучение в качестве пробы и оптически анизотропный нематический кристалл в качестве образца.

С учётом стабильности лазерного источника и благодаря применению пространственного фильтра были улучшены пространственные характеристики пучка. Собранный испытательный стенд на основе стандарта EMVA 1288 позволил определить оптимальные настройки детектора и оценить его основные параметры: темновой шум, линейность, динамический диапазон и другие.

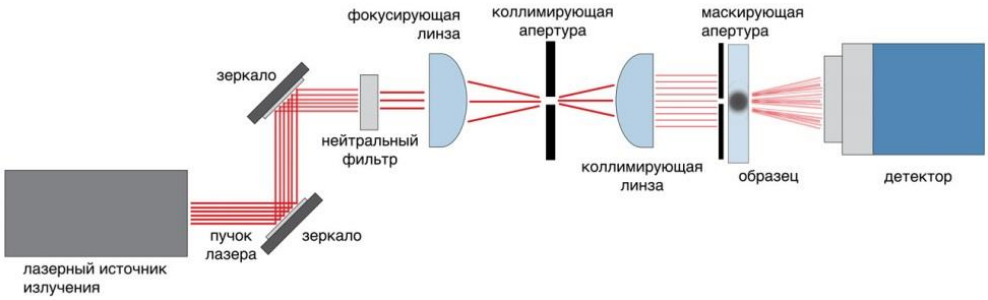


Рисунок 1 – Принципиальная схема установки для проведения измерений по методу когерентной дифракционной визуализации с использованием лазерного излучения.

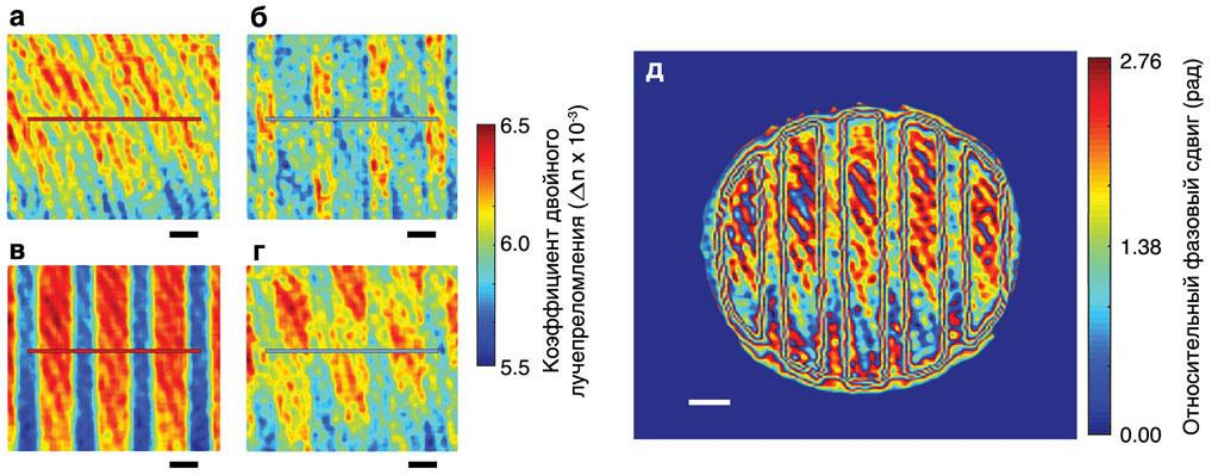


Рисунок 2 – Результаты восстановления фазовой информации. Распределение коэффициента двойного лучепреломления в образце, облученном лазерным светом с (а) правой круговой поляризацией, (б) эллиптической поляризацией с эксцентриситетом близким к круговому случаю, (в) горизонтальной поляризацией и (г) эллиптической поляризацией с эксцентриситетом близким к линейному случаю. (д) – пример восстановленной фазовой информации со среднеквадратичной ошибкой восстановления информации равной 0.065. Масштабные линии на изображениях

Для проведения эксперимента методом когерентной дифракционной микроскопии была написана система управления экспериментом ACCORD, позволяющая автоматизацию элементов установки и оптимизацию получения данных. В результате эксперимента была восстановлена фазовая информация об образце нематического жидкого кристалла (рисунок 2), по которой далее было получено распределение диэлектрической проницаемости образца с разрешением в 285 нм.

**В четвертой главе** представлены результаты проведенных экспериментов с использованием синхротронного излучения с целью исследования динамики вихревой топологической структуры в объеме отдельной наночастицы титаната бария. В начале главы описан процесс подготовки и оценки образцов, включающий в себя синтез наночастиц, оценку наночастиц методами лабораторного рентгеновструктурного анализа, сканирующей электронной и оптической микроскопии, подготовку функциональной кюветы и проверку сегнетоэлектрических свойств образца.

Далее образец изучался методом когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга на станции 34-ID-C синхротронного источника APS (Лемонт, США). Принципиальная схема эксперимента представлена на рисунке 3. В данном

эксперименте использовался отобранный монохроматором пучок синхротронного излучения с центральной энергией 9 кэВ, полосой пропускания 1 эВ и пространственной когерентностью 0.7 мкм. Сфокусированный пучок с пятном порядка 700 нм на 700 нм подавался на образец, находящийся на трех координатном гониометре с дополнительными приводами для высокоточного вращения образца вокруг центральной оси. Детектор, установленный на моторизированной руке каппа-дифрактометра, использовался для поиска дифракционного пика, соответствующего отражению от [111] плоскости изолированной наночастицы титаната бария. В результате эксперимента была обнаружена наночастица размером в 200 нм с выраженной вихревой топологической структурой. Для визуализации данной топологии записывалась кривая качания вблизи пика Брэгга равного $2\theta$ = 34.55º. Было собрано 140 дифракционных картин в диапазоне $\Delta\theta$ = ±0.6º.

Для получения объемной информации об индуцированных структурных и поляризационных изменениях в наночастице под воздействием электрического поля проведена итеративная инверсия дифракционных картин с использованием алгоритма восстановления фазовой информации. При реконструкции состояний наночастицы алгоритм запускался с различными случайными наборами фаз и конечные результаты усреднялись в конце запусков. Передаточная функция фазовой реконструкцию показала, что полученное разрешение равно 18 нм.

Результаты реконструкций для трех состояний системы под воздействием электрического поля и соответствующие им результаты моделирования представлены на рисунке 4. Имея реконструкции трехмерного поля смещения $\mathbf{u}_{111}(\mathbf{r})$ в образце, можно оценить величину и распределение упругой деформации $\epsilon_{ij}$ из уравнения связи вида:

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial \mathbf{u}_{111}^{i}}{\partial x_j} + \frac{\partial \mathbf{u}_{111}^{j}}{\partial x_i}\right), \quad (1)$$

что, благодаря симметрии деформации в объемной структуре, позволяет связать деформацию с поляризацией в наночастице как $\epsilon_{ij}^{o} = Q_{ijkl}P_kP_l$, где $\epsilon_{ij}^{o}$ – спонтанная

деформация, $Q_{ijkl}$ – электрострикционный коэффициент, а проекции сегнетоэлектрической поляризации даны тензорами первого ранга $P_k$ и $P_l$.

Компоненты поляризации, находящиеся в плоскости [111], организованы в замкнутые линии, что характерно для вихревого поля, что также видно на реконструкциях смещения (рисунок 4). Модель фазового поля объясняет формирование данной вихревой структуры в силу балансировки между такими параметрами как потенциальная энергия упруго деформированного объекта, энергия электростатического поля, энергия неоднородностей, а также в силу граничных условий, таких как форма наночастицы и характер ее фасеток. Приложенное электрическое поле приводит к нарушению балансировки параметров и к изменению картины поверхностной энергии.

На полученных дифракционных картинах видно появление сосуществующих структурных фаз под действием электрического поля. Изоповерхности и карты поляризации демонстрируют неоднородное распределение доменов в наночастице. На границе доменов наблюдается формирование вихря, который трансформируется под действием электрического поля и сопровождается фазовым переходом наночастицы из сосуществующих тетрагональной (T) и моноклинной (M) структур в начальном состоянии $V_1$ в M сингонию при напряжении $V_2$. Фазовая модель показывает, что в случае данного образца доменная граница является по сути переходной зоной размера около 10-20 нм и представляет из себя M сингонию.

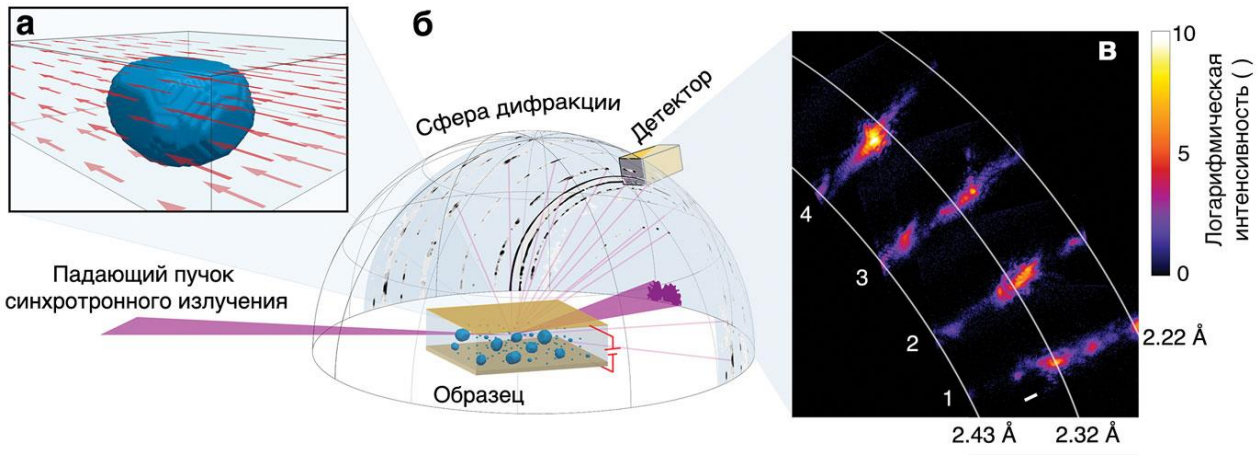


Рисунок 3 – Принципиальная схема когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга. (а) – наночастица титаната бария в однородном электрическом поле. (б) – схема эксперимента. (в) – дифракционные картины, полученные при наведении электрического поля на образец.

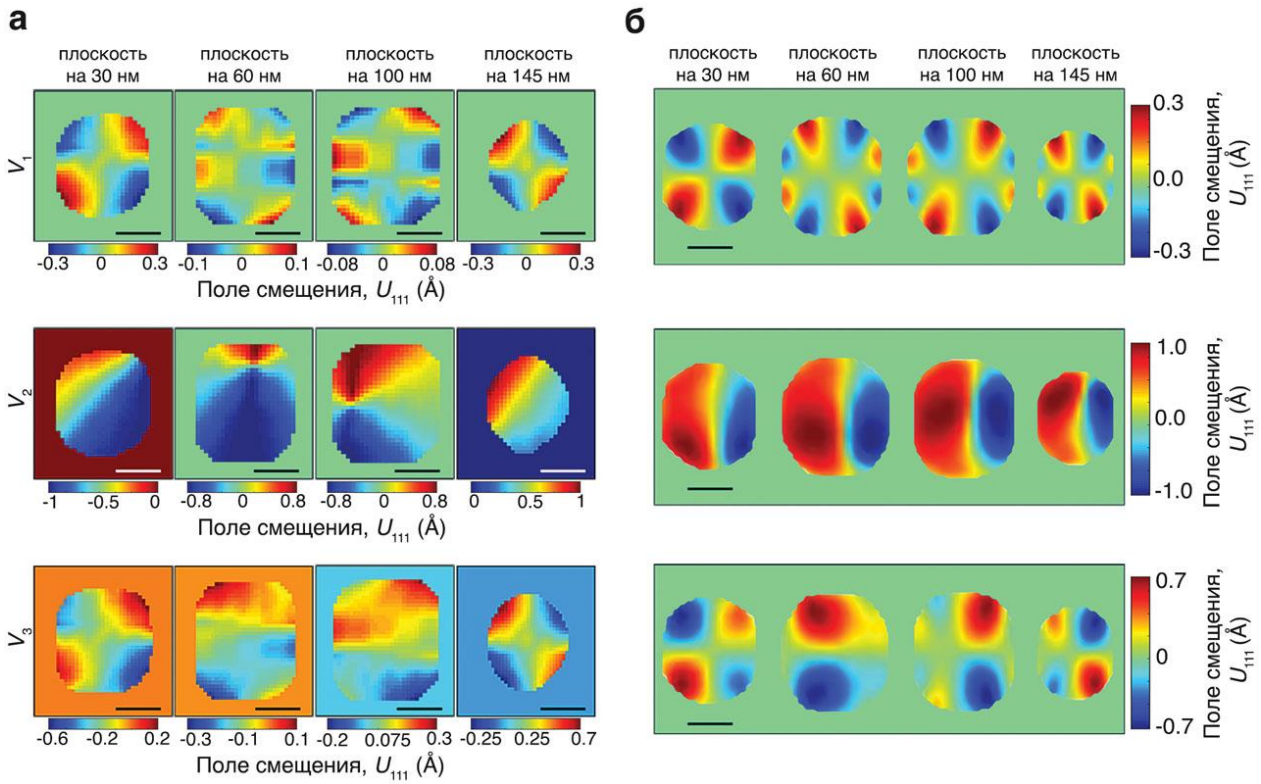


Рисунок 4 – Сравнение результатов реконструкции с модельным поведением наночастицы. (а) – экспериментальные результаты для трех состояний наночастицы. (б) – модельные результаты для трех состояний наночастицы. Масштабные линии на изображениях соответствуют 60 нм.

Дифракционные картины несут в себе информацию о данном фазовом переходе в виде раздвоения пика Брэгга (рисунок 3в), в котором можно наблюдать выраженную центральную симметрию при максимальном поле, когда структура частица преимущественно моноклинная.

Изменение поляризации имеет нелинейный характер. Под влиянием внешнего электрического поля вихрь смещается из центра к границе частицы. После того как напряжение снято, центр вихря смещается в начальное положение, но морфология доменов не возвращается к начальному состоянию. Нелинейное поведение поляризации для наночастицы модулируется посредством локальной вихревой топологии и ее поведения.

Ядро вихря в объеме имеет продолговатую форму и представляет из себя наностержень с нулевой поляризацией (рисунок 5). По оценке среднеквадратичного отклонения поля смещения, в области наностержня, можно предположить, что диаметр ядра приблизительно равен 30 нм.

Мобильность доменных границ под внешним электрическим полем также связано с динамикой ядра вихря. Количества доменных границ, сходящихся к центру вихря,

оценено на основе количества нулей в графике угловой зависимости поля смещения вокруг вихревой структуры (рисунок 5д). При отсутствии напряжения наностержень располагается в центре наночастицы и поворачивается под приложенным электрическим полем.

Это согласуется с моделью фазового поля, которая также предсказывает, что при повышении электрического поля ядро вихря исчезнет и наностержень будет физически стерт. График смещения и градиента смещения вокруг центра вихря (рисунок 5д) показывает переход через границу доменов, а положения нуля смещения дает оценку данной границы, имеющей угол наклона поля поляризации 173 ± 10º и параллельной к направлению спонтанной поляризации близлежащих доменов, что соответствует теоретически предсказанной для данного материала границе Блоха с углом 180º.

Поведение вихревой структуры, наблюдаемое в эксперименте, а также модель фазового поля, показывающая что при более высоких напряжениях электрического поля тороидный момент вихря будет полностью аксиально поляризован, предполагает контролируемый переход от вихревой к аксиальной структуре, что является крайне важным для применения в энергонезависимых запоминающих устройствах с произвольной выборкой.

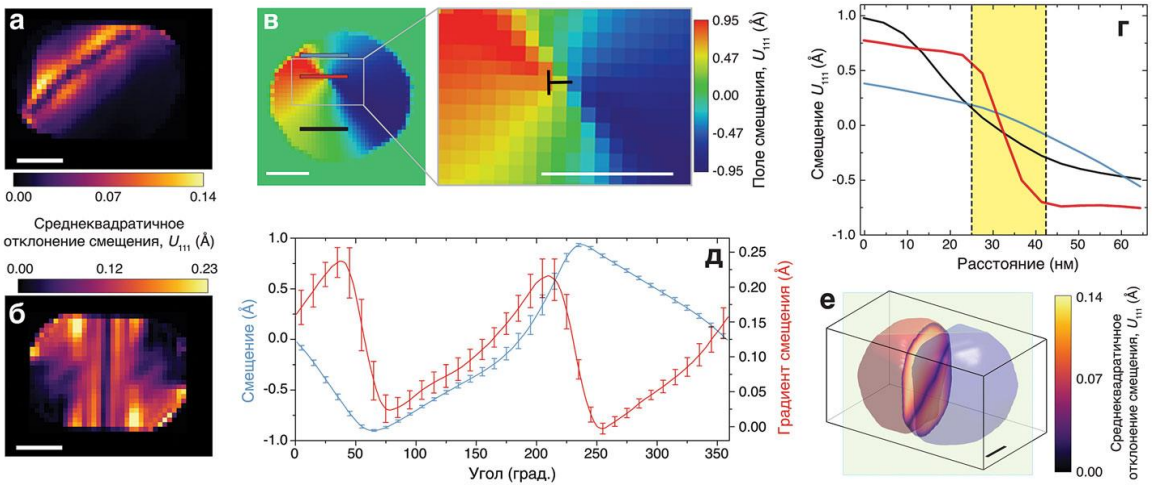


Рисунок 5 – Границы доменных структур в наночастице титаната бария и поведение наностержня. Среднеквадратичное отклонения поля смещения в области наностержня в состояниях (а) $V_2$ с полем 223 кВ/см и (б) $V_3$ с полем 0 кВ/см. (в) – распределения поля смещения и увеличение выделенной области для среза обозначенного зеленой плоскостью в (е). (г) – поведение смещения в зависимости от расстояния для линий в (в). (д) угловая зависимость смещения и градиента смещения вдоль линии дефекта в (е). (е) – визуализация расположения стержня в наночастице титаната бария под электрическим полем $V_2$. Масштабные линии на изображениях соответствуют 60 нм.

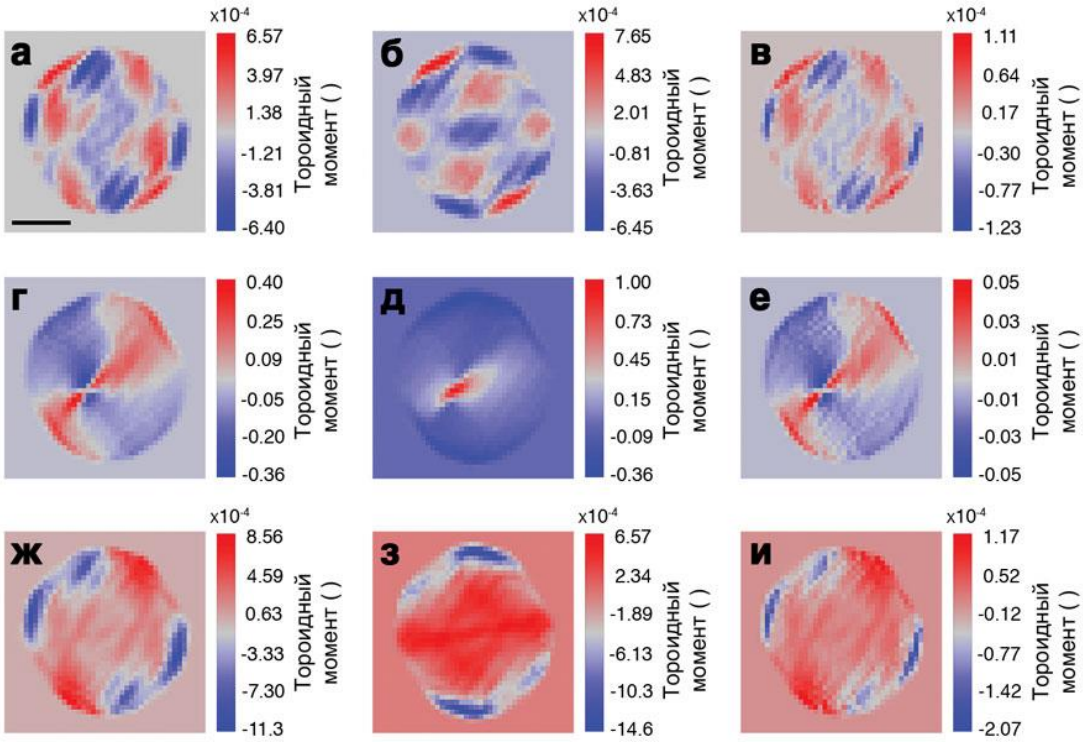


Рисунок 6 – Поведение тороидного момента в наночастице титаната бария под воздействием электрического поля. Проекция (а) $T_x(\mathbf{r})$, (б) $T_y(\mathbf{r})$ и (в) $T_z(\mathbf{r})$ для состояния поля $V_1$. Проекция (г) $T_x(\mathbf{r})$, (д) $T_y(\mathbf{r})$ и (е) $T_z(\mathbf{r})$ для состояния поля $V_2$. Проекция (ж) $T_x(\mathbf{r})$, (з) $T_y(\mathbf{r})$ и (и) $T_z(\mathbf{r})$ для состояния поля $V_3$. Масштабная линия соответствуют 60

Другим важным параметром порядка топологического вихря является хиральность тороидного момента. Применяя дифференциальный оператор ротора к полю смещения как $\mathbf{T}(\mathbf{r}) = \nabla \times \mathbf{u}_{111}(\mathbf{r})$ и раскладывая тороидный момент на проекции $T_x(\mathbf{r})$, $T_y(\mathbf{r})$ и $T_z(\mathbf{r})$, можно визуализировать как величину вращения в каждой точке образца, так и понять поведение хиральности тороидного момента. На рисунке 6 представлены визуализации проекций тороидного момента для разных состояний наночастицы. Они показывают возможность контроля хиральности тороидного момента посредством электрического поля. Это потенциально позволяет применение данного эффекта в запоминающих устройства, наномоторах, нанодатчиках, нанопереключателях и тд.

**В заключении** излагаются основные выводы диссертационной работы и перспективы дальнейшей разработки темы.

## ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Отработанный алгоритм восстановления фазовой информации из дифракционных картин, полученных с использованием поляризованного лазерного

излучения, позволяет визуализацию оптической анизотропии в образцах нематического кристалла с разрешением 285 нм. Измерения тестовых образцов также показывают, что разработанная система может быть использована при изучении пленок, эмульсий, клеточных культур, а также тонких срезов биологических тканей. Кроме того, отработанный алгоритм применим для восстановления изображений, полученных с использованием синхротронного излучения;

2. Изготовленная функциональная кювета позволяет подавать внешнее электрическое поле на композит наночастиц тиатаната бария, заключенных в полимерной матрице. Под внешним электрическим полем, прикладываемым на обкладки функциональной кюветы, наблюдается изменение дифракционной картины от наночастицы титаната бария, что свидетельствует об индуцированных фазовых переходах;

3. Восстановленная фазовая информация об объеме наночастицы титаната бария демонстрирует присутствие вихревой топологической структуры сегнетоэлектрической поляризации, изменяющейся под действием внешнего электрического поля;

4. Домены в наночастице титаната бария при отсутствии внешнего электрического поля распределены неоднородно и обладают двумя фазами (тетрагональной и моноклинной), которые при воздействии электрического поля формируют моноклинную структуру. На границе доменов образуется центр топологического вихря, являющийся 30 нм наностержнем мобильным под действием поля. Граница доменов и центр вихря смещаются внешним электрическим полем, а при снятии поля частично восстанавливают свое первоначальное положение. В отличии от электрически непроводящего объема наночастицы, наностержень обладает нулевой сегнетоэлектрической поляризацией и является проводником носителей заряда;

5. Полученное объемное распределение полей смещения в наночастице титаната бария позволяет визуадизировать тороидный момент топологического

вихря, демонстрирующий управляемую хиральность под действием внешнего электрического поля;

6. Процедура поиска наночастицы титаната бария с активными фазовыми переходами может быть применена для изучения других кристаллических наночастиц на различных источниках синхротронного излучения. Особенный интерес вызывает исследования пикосекундной динамики топологических дефектов под действием внешних возмущений с использованием синхротронного излучения получаемого лазерами на свободных электронах в силу их высокой яркости, когерентности и временной структуры импульсов излучения.

Одним из перспективных направлений разработки данной темы является изучения воздействия перекрестных высокочастотных электрических полей на поведение вихревой топологии. Вихрь сегнетоэлектрической поляризации является топологически защищенной структурой, и может быть стерт только в особых условиях (таких как высокие электрические поля или высокая температура), при этом искусственное индуцирование вихревых топологий является еще более сложным и малоизученным процессом. Учитывая наблюдаемое поведение хиральности вихря в наночастице титаната бария под действием внешнего электрического поля, можно предположить, что скрещенные высокочастотные электрические поля способны изменять свойства вихря, его морфологию, а также позволят создавать и стирать вихри в наночастицах титаната бария.

Изучение поведения центра вихря под внешними составными возмущениями, такими как температура и электрическое поле или давление и электрическое поле, является еще одним перспективным направлением, так как благодаря подобным исследованиям может быть разработан механизм записи информации за счет управляемого смещения и фиксации топологического вихря без последующего использования питающего напряжения для хранения записанной информации. Данное исследование имеет большой интерес в контексте применимости топологических дефектов в современной интегральной электронике.

**Список работ, опубликованных автором по теме диссертации**

*В рецензируемых научных журналах, входящих в список ВАК*

1. Карпов Д.А. Оценка возможностей метода двухэнергетической рентгеновской абсорбциометрии многоэлементных образцов переменного состава / Н.А. Антропов, Д.А. Карпов, Ю.Ю. Крючков // Приборы и техника эксперимента 5, 103-106 (2012).

2. Карпов Д.А. Диагностика 3D-скэффолдов методом рентгеновской фазово-контрастной визуализации / В.Р. Альтапова, И.А. Хлусов, Д.А. Карпов, Ф. Чен, Т. Баумбах, В.Ф. Пичугин // Известия вузов: Физика 10, 10-16 (2013).

3. Карпов Д.А. Воздействия низкотемпературной плазмы и γ-облучения на поверхностные свойства трековых мембран из полиэтилентерефталата / Е.О. Филиппова, Д.А. Карпов, А.В. Градобоев, В.В. Сохорева, В.Ф. Пичугин // Перспективные материалы 5, 5-17 (2016).

*В зарубежных изданиях, индексируемых в базе данных Scopus и Web of Science*

4. Karpov D. Three-dimensional imaging of vortex structure in a ferroelectric nanoparticle driven by an electric field / D. Karpov, Z. Liu, T. dos Santos Rolo, R. Harder, P.V. Balachandran, D. Xue, T. Lookman, E. Fohtung // Nature Communications 8, 1-8 (2017).

5. Karpov D. Assessment of the possibilities of the dual-energy X-ray absorptiometry of multicomponent samples with variable content / N. Antropov, D. Karpov, Yu. Kryuchkov // Instruments and Experimental Techniques 5, 608-610 (2012).

6. Karpov D. Diagnostics of 3D scaffolds by phase-contrast X-rays imaging / V.R. Altapova, I. Khlusov, D.A. Karpov, F. Chen, T. Baumbach, V.F. Pichugin // Russian Physics Journal 10, 1116-1123 (2014).

7. Karpov D. A hierarchical view on material formation during pulsed-laser synthesis of nanoparticles in liquid / S. Ibrahimkutty, P. Wagener, T. dos Santos Rolo, D. Karpov, A. Menzel, T. Baumbach, S. Barcikowski, A. Plech // Scientific Reports 5, 1-11 (2015).

8. Karpov D. Birefringent coherent diffraction imaging [invited paper] / D. Karpov, T. dos Santos Rolo, H. Rich, Yu. Kryuchkov, B. Kiefer, E. Fohtung // Proc. of SPIE Vol. 9931, 1-16 (2016).

9. Karpov D.A. Influence of Low-Temperature Plasma and γ-Radiation on the Surface Properties of PET Track Membranes / E. O. Filippova, D.A. Karpov, A.V. Gradoboev, V.V. Sokhoreva, V.F. Pichugin // Inorganic Materials: Applied Research 5, 484-492 (2016).

10. Karpov D. Pair distribution function analysis applied to decahedral gold nanoparticles / H. Nakotte, C. Silkwood, K. Page, H.W. Wang, D. Olds, B. Kiefer, S. Manna, D. Karpov, E. Fohtung, E.E. Fullerton// Phys. Scr. 92, 1-16 (2017).

*Публикации в трудах российских и зарубежных конференций*

11. Karpov D.A. Design of a visible light setup for the characterization of indirect conversion x-ray detector components / D.A. Karpov, T. dos Santos Rolo, Yu.Yu. Kryuchkov // Перспективы развития фундаментальных наук: IX Международная конференция студентов и молодых ученых. 24-27 апреля 2012 г., Томск, Россия; Сборник научных трудов, с.126-127 (2012).

12. Карпов Д.А. Автоматизация установки для измерения параметров цифровых быстродействующих камер / А.Х Оздиев, Д.А. Карпов // Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине: VII Международная научно-практическая конференция. 3-6 июня 2015 г., Томск, Россия; Сборник тезисов докладов, с.328 (2015).

13. Karpov D. Automation of visible light setup for characterization of fast scientific cameras / A. Ozdiev, D. Karpov // Перспективы развития фундаментальных наук: XII Международная конференция студентов и молодых ученых. 21-24 апреля 2015 г., Томск, Россия; Сборник научных трудов, с.1521-1523 (2015).

14. Карпов Д.А. Система оценки параметров непрямых детекторов рентгеновского излучения / А.Х Оздиев, Д.А. Карпов, Ю.Ю. Крючков // Перспективы развития фундаментальных наук: XII Международная конференция студентов и молодых ученых. 21-24 апреля 2015 г., Томск, Россия; Сборник научных трудов, с.193-195 (2015).

15. Karpov D.A. Surface modification of pet-track membranes by low-temperature plasma and gamma radiation / E.O. Filippova, A.V. Gradoboev, D.A.

Karpov, V.F. Pichugin // Energy Fluxes and Radiation Effects (EFRE-2016): International Congress, October 2-7, 2016, Tomsk, Russia; Abstracts, p. 440 (2016).

16. Karpov D. Magnetoelectric Coupling Characteristics of the La0.67Sr0.33MnO3/PbZr0.2Ti0.8O3 (001) Interface / M. Hammouri, D. Karpov, E. Fohtung, I. Vasiliev // APS March Meeting 2016, March 14–18, 2016, Baltimore, USA; Abstracts, Volume 61, Number 2 (2016).

17. Karpov D. Imaging of biological tissues by visible light CDI / D. Karpov, T. dos Santos Rolo, H. Rich, E. Fohtung // APS March Meeting 2016, March 14–18, 2016, Baltimore, USA; Abstracts, Volume 61, Number 2 (2016).

18. Karpov D. Imaging of twinning defects in Au nanoparticles with Bragg Coherent Diffraction Imaging / D. Karpov, D. Brown, E. Fohtung // Joint Meeting of the Four Corners and Texas Sections of the American Physical Society, October 21–22, 2016, Las Cruces, USA; Abstracts, Volume 61, Number 15 (2016).

19. Karpov D. Insitu experimental setup to study magneto-electric effects in a single nanoparticle using Bragg coherent diffraction imaging / H. Rich, D. Karpov, R. Harder, E. Fohtung // Joint Meeting of the Four Corners and Texas Sections of the American Physical Society, October 21–22, 2016, Las Cruces, USA; Abstracts, Volume 61, Number 15 (2016).