

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ  
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ

«Национальный исследовательский Томский политехнический университет»

*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

**Диссертация**

на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

**Научный руководитель:**

д.ф.-м.н., профессор

Крючков Ю.Ю.

Томск 2018

## ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение .....	4
ГЛАВА 1. Теоретические основы когерентной дифракционной визуализации и ее применения на синхротронных источниках .....	15
1.1. Скалярная теория дифракции .....	15
1.2. Когерентность.....	19
1.3. Основы синхротронного излучения .....	21
1.4. Обоснование выбора метода брэгговской когерентной дифракционной визуализации для исследования топологических дефектов.....	27
ГЛАВА 2. Алгоритмы восстановления фазовой информации.....	32
2.1. Фазовая проблема и условия дискретизации.....	32
2.2. Алгоритмы градиентного спуска.....	35
2.3. Алгоритмы проекций на множества ограничений .....	37
2.4. Условия, накладываемые на решения фазовой проблемы при запусках алгоритма восстановления фазовой информации.....	42
2.5. Оценка разрешения полученного изображения образца и ошибки сходимости алгоритма к единственному решению .....	44
2.6. Влияние шума детектора на сходимость алгоритмов .....	49
2.7. Выводы по главе 2 .....	51
ГЛАВА 3. ОТРАБОТКА АЛГОРИТМА РЕКОНСТРУКЦИИ НА МЕТОДЕ КОГЕРЕНТНОЙ ДИФРАКЦИОННОЙ ВИЗУАЛИЗАЦИИ С ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ .....	53
3.1. Экспериментальная установка.....	54
3.1.1. Источник излучения .....	55
3.1.2. Детектор.....	57
3.1.3. Пространственная фильтрация пучка с источника излучения.....	63
3.1.4. Система управления экспериментом.....	64

3.2.	Результаты измерений тестовых образцов без учета поляризации лазерного излучения .....	66
3.3.	Результаты измерений нематического жидкого кристалла с учетом поляризации лазерного излучения.....	72
3.4.	Выводы по главе 3 .....	84
ГЛАВА 4. ВИЗУАЛИЗАЦИЯ ВИХРЕВОЙ ТОПОЛОГИИ В НАНОЧАСТИЦЕ ТИТАНАТА БАРИЯ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ.....		86
4.1.	Подготовка и оценка образцов .....	87
4.2.	Экспериментальная установка.....	91
4.3.	Восстановление фазовой информации.....	97
4.4.	Анализ и обсуждение полученных результатов .....	104
4.5.	Выводы по главе 4 .....	109
ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ .....		111
Список использованных источников .....		114
Приложение 1. Основы поляриметрии .....		128
Полностью поляризованная монохроматическая волна.....		128
Частично-поляризованная частично-монохроматическая волна .....		130
Представление поляризации на сфере Пуанкаре .....		132
Взаимодействие поляризованного света с оптически анизотропной средой .....		134
Приложение 2. система управления экспериментом accord.....		137
Инициализация основных управляющих классов .....		137
Имплементация управления шаговым мотором через микроконтроллер .....		144
Имплементация запуска экспозиции детектора через микроконтроллер.....		147
Приложение 3. Модель фазового поля для исследуемой частицы титаната бария...		149
Приложение 4. Анализ сигнатуры структурных фаз в дифракционной картине .....		151

## ВВЕДЕНИЕ

### Актуальность темы

Активный междисциплинарный обмен идеями и наблюдениями является одним из ключевых двигателей развития современного материаловедения. Поиск феноменов, позволяющих реализацию совершенно новых подходов в создании интегральной электроники и способов хранения энергии и информации, крайне затруднителен без использования в прикладных исследованиях концепций, которые когда-то рассматривались как абстрактные математические головоломки.

Одна из таких концепций пришла из раздела математики, занимающегося исследованиями топологии. Аналогия между математическими структурами в топологии и конденсированным состоянием вещества (КСВ) позволяет расширить границы понимания фазовых состояний и динамики фазовых переходов в различных материалах. Например, в КСВ вводится понятие топологического дефекта, описывающего не локализованную неоднородность в кристаллической решетке, а 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.

Более трех десятилетий назад нобелевские лауреаты 2016 года Майкл Костерлиц, Данкан Холдейн и Дэйвид Таулесс открыли совершенно новый тип фазовых переходов в двумерных системах, в которых топологические дефекты играют важную роль [1-4]. В последние годы их теория была применена для объяснения процессов в системах со спонтанным нарушением симметрии от космологии до магнетизма, сегнетоэлектричества, сверхпроводимости и сверхтекучести, в которых наблюдались необычные топологические дефекты, такие как вихри, границы доменов, скирмионы и ежи [4-6].



Большой интерес в контексте топологии вызывают сегнетоэлектрики. Это связано с их потенциальным применением в создании энергонезависимой памяти и других элементов электроники следующего поколения [7-11], а также в технологиях, относящихся к накоплению и хранению энергии [12-14]. При этом еще более интересны исследования нано-сегнетоэлектриков, в которых формируются нанодомены сложной формы, связанные с поведением стенки доменов [15], и проявления текстуры со сложной топологией [16], такой как поляризованные вихри [17]. 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 [16-21].

Актуальность изучения поведения вихревых структур в сегнетоэлектриках заключается в том, что теоретические исследования показывают способность наносегнетоэлектрических материалов увеличить плотность хранения в энергонезависимой памяти в 10000 раз [7]. Но данные улучшения становятся доступными лишь при возможности наблюдения и контролирования структурных переходов, включая метастабильные состояния, позволяющие упростить переключение доменов.

### **Степень разработанности темы исследования**

В настоящее время многие исследования направлены на экспериментальное синтезирование и наблюдение поляризованных структур в нанопроволоках [22], наноточках [23], наностержнях [24], нанотрубках [25] титаната бария, а также в тонких пленках и гетероструктурах [26] и наночастицах цирконат-титаната свинца [27]. Изучение переключения доменов и поведения вихревых структур на поверхности возможно с помощью электронных микроскопов с высокой разрешающей способностью [28-30], атомно-силовых микроскопов [31], силовой

микроскопии пьезоэлектрического отклика [32] и различных оптических методов [33]. Тем не менее, в силу фундаментальных ограничений, данные подходы до сих пор не были применены для прямого неинвазивного изучения вихревых структур 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 способностями. В последние годы наблюдается прогресс в использовании когерентной дифракционной визуализации для изучения локальной структуры в объеме конденсированного состояния вещества [34-39]. Данный метод использует улучшенную пространственную и временную когерентность, а также спектральную яркость источников синхротронного излучения третьего и четвертого поколений. Кроме того, развитие алгоритмов восстановления фазовой информации позволяет расшифровать и визуализировать информацию об объемном распределении электронной плотности, атомных и ионных полях смещений в отдельной наночастице, зашифрованную в дифракционной картине с разрешением, ограниченным лишь пределом дифракции рентгеновских волн [40].

**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 поставленной цели в диссертационной работе были сформулированы 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 момент, 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**

Практическая значимость результатов исследований, полученных в диссертационной работе, заключается в следующем:

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 [34, 35, 40] и наличием программного обеспечения с открытым исходным кодом, позволяющего проводить восстановление и анализ фазовой информации из дифракционных картин [41].

Реконструкция полученных дифрактограмм производилась методом проекции решения на множество ограничений. Обработка 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 [42].

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 Соьера-Тауэра [43].

### **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 отличие 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 картинками 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**

Достоверность 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 автора**

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 обсуждении 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 и публикации**

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).

По теме диссертации опубликовано 19 работ [44-62], из них: 3 статьи в журнале из перечня ВАК [44-46], 7 статей в зарубежных изданиях [56-62], входящих в базы данных Web of Science и Scopus, 1 публикация в журнале с импакт-фактором  $> 12$  [61],

1 статья в журнале с импакт-фактором  $> 4$  [58], 1 статья в журнале с импакт-фактором  $> 1$  [62] и 9 тезисов докладов по итогам конференций [47-55].

# ГЛАВА 1. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ КОГЕРЕНТНОЙ ДИФРАКЦИОННОЙ ВИЗУАЛИЗАЦИИ И ЕЕ ПРИМЕНЕНИЯ НА СИНХРОТРОННЫХ ИСТОЧНИКАХ

## 1.1. Скалярная теория дифракции

Когерентная дифракционная визуализация основывается в большой степени на выводах из скалярной теории дифракции и математических основах Фурье оптики. В данном подходе принято рассматривать дифракцию плоской монохроматической волны, проходящей через полупрозрачную маску, используя при этом парааксиальное приближение. Для выводов распределения интенсивности рассеянной образцом волны сначала необходимо рассмотреть уравнения Максвелла [63]:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (1.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = - \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (1.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (1.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (1.4)$$

где  $\mathbf{H}$  и  $\mathbf{E}$  – вектор напряженности магнитного и электрического поля, соответственно,  $\mathbf{j}$  – плотность тока,  $\rho$  – плотность заряда, а  $\mathbf{B}$  и  $\mathbf{D}$  – магнитная и электрическая индукции, соответственно.

Связь между распределениями электромагнитных полей и величиной силы, индуцированной в материале, через который эти поля распространяются, задается уравнениями вида:

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mu \mathbf{H} \quad (1.5)$$

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E} \quad (1.6)$$

где  $\varepsilon$  и  $\mu$  – диэлектрическая и магнитная проницаемость среды, соответственно, а  $\varepsilon_0$  и  $\mu_0$  – электрическая и магнитная постоянные. Как диэлектрическая, так и магнитная проницаемости среды в общем случае являются тензорными величинами и зависят от направления распространения волны в материале. Тем не менее упрощенно можно говорить о линейной зависимости поляризуемости и намагниченности вещества слабым электромагнитным полем и рассматривать проницаемости среды как скалярные величины. Кроме того, для вывода уравнений дифракции волны в

скалярном приближении принято начинать рассмотрение с электрически нейтральных, непроводящих сред, для которых уравнения Максвелла являются однородными дифференциальными уравнениями.

Для решения дифференциальных уравнений в частных производных можно применить преобразование Фурье, избавившись таким образом от зависимости уравнений от времени. Данный метод широко распространен в литературе [64], поэтому можно напрямую перейти к конечному решению, которым является скалярное уравнение Гельмгольца для монохроматической волны:

$$\nabla^2 U + k^2 U = -4\pi F U, \quad (1.7)$$

где  $k=2\pi/\lambda$  – волновое число и  $F$  – потенциал рассеяния, заданный через коэффициент преломления  $n$  как:

$$F = \frac{1}{4\pi} k^2 (n^2 - 1). \quad (1.8)$$

Решение уравнения волны (1.7) может быть найдено через функцию Грина, вида:

$$G(\mathbf{r}_{01}) = \frac{e^{ik|\mathbf{r}_{01}|}}{|\mathbf{r}_{01}|}. \quad (1.9)$$

Тогда уравнение волны можно переписать как:

$$(\nabla^2 + k^2)G(\mathbf{r}_{01}) = -4\pi\delta^{(3)}(\mathbf{r}_{01}). \quad (1.10)$$

Данное уравнение отражает принцип Гюйгенса-Френеля о том, что каждый центр рассеяния падающей волны становится источником новой расходящейся сферической волны. Применяв интегральную теорему Грина, можно найти распределение волны в пространстве на некотором расстоянии от источника возмущений в форме интеграла Френеля-Кирхгоффа [65]:

$$E(x, y, z) = \frac{1}{i\lambda} \iint E_0(x_0, y_0) \frac{e^{ikr}}{r} \cos(\hat{\mathbf{n}}, \hat{\mathbf{r}}) dx dy. \quad (1.11)$$

Данное уравнение описывает распределение комплексной рассеянной волны  $E$  на плоскости  $(x, y, z)$  в зависимости от распределения  $E_0$  на начальной плоскости  $(x_0, y_0,$

$z_0=0$ ), при этом учитывается угол между единичными векторами к начальной плоскости  $\hat{n}$  и направления к плоскости дифракции  $\hat{r}$  [65].

При моделировании распространения волн, а также при рассмотрении различных эффектов в оптических инструментах, принято использовать несколько приближений, которые позволяют упростить интеграл Френеля-Кирхгоффа. Параксиальное приближение подразумевает условие, что в плоскости дифракции рассматриваются только лучи, приходящие туда под малым углом к оптической оси [66]. Данное приближение справедливо, когда расстояние до плоскости дифракции достаточно велико по сравнению с длиной волны. Предположим, что  $R$  – это расстояние от точки на начальной плоскости до точки на плоскости дифракции, тогда распределение комплексной интенсивности волны можно представить в виде интеграла Френеля [64]:

$$E(x, y, z) = \frac{e^{ikR}}{i\lambda z} \iint E_0(x_0, y_0) e^{-ik\frac{x_0x+y_0y}{R}} e^{-ik\frac{x_0^2+y_0^2}{2R}} dx_0 dy_0. \quad (1.12)$$

Если предположить, что расстояние до плоскости дифракции намного больше длины волны, то можно избавиться от множителя с квадратичной фазой, задав условия для так называемой дальней зоны [64]:

$$R \approx z \gg \frac{a^2}{\lambda}, \quad (1.13)$$

$$k \frac{x^2+y^2}{2R} \ll \pi, \quad (1.14)$$

где  $a$  – максимальный размер апертуры объекта, на который падает волна. Данное приближение позволяет записать интеграл Фраунгофера для определения комплексной амплитуды волны в плоскости дифракции дальней зоны:

$$E(x, y, z) = \frac{e^{ikz}}{i\lambda z} \iint E_0(x_0, y_0) e^{-ik\frac{x_0x+y_0y}{z}} dx_0 dy_0. \quad (1.15)$$

Как видно из интеграла Фраунгофера, различные пространственные частоты в образце рассеивают падающую волну на разный угол [64]. Кроме того, данный

интеграл прямо пропорционален двумерному преобразованию Фурье комплексного распределения интенсивности волны в области объекта.

На рисунке 1 представлены смоделированные таким образом картины рассеяния плоской волны образцом на разных расстояниях от плоскости образца. Важно отметить, что информация об образце не теряется с расстоянием, а приобретает характер спектра пространственных частот, на что указывает и пропорциональность преобразованию Фурье.

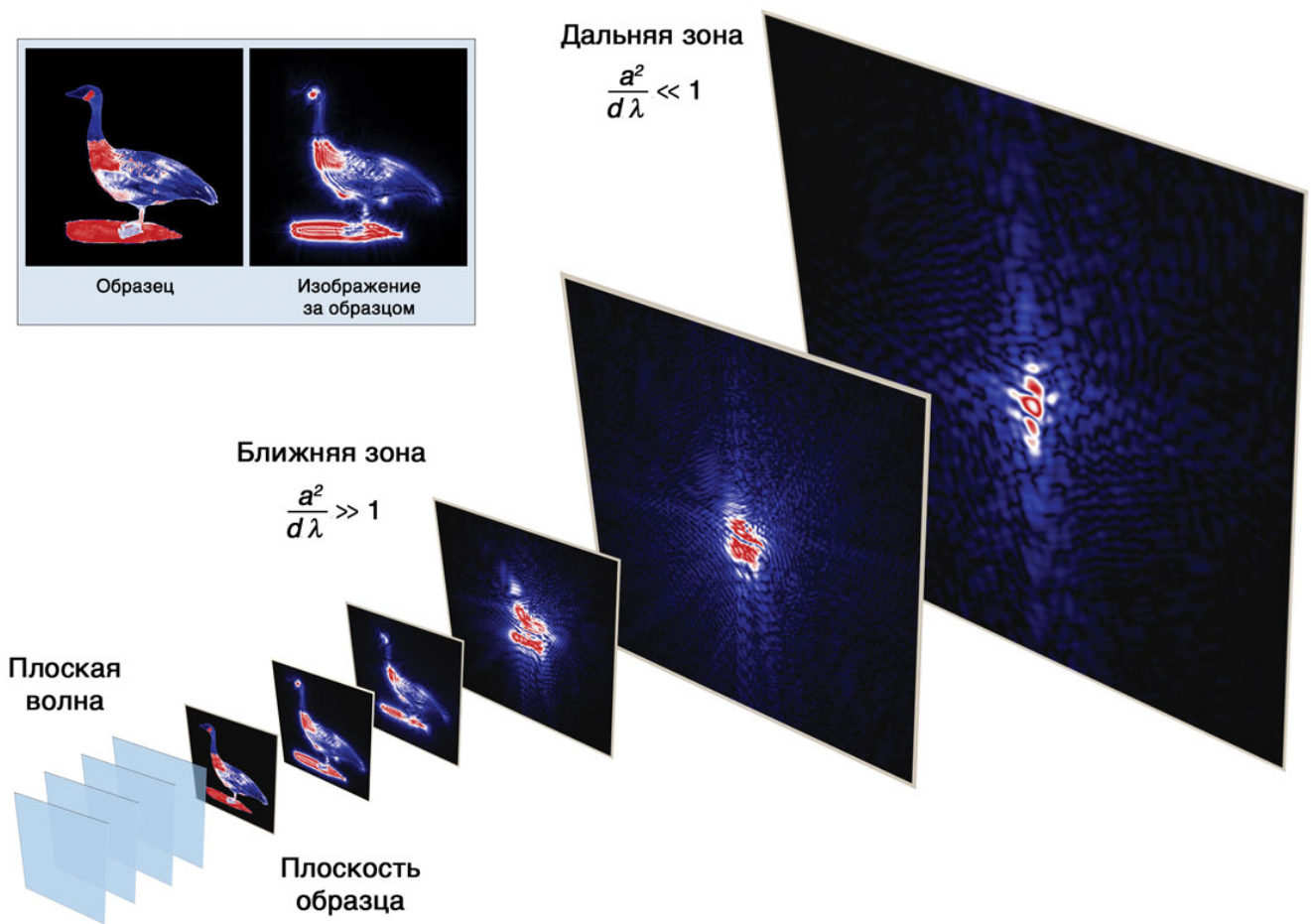


Рисунок 1 – Моделирование распространения рассеянной плоской волны из плоскости образца в ближнюю и дальнюю зоны дифракции. На изображениях видно, что пространственная информация не теряется при распространении, скорее, характер информации приобретает частотный спектр.

## 1.2. Когерентность

В реальном эксперименте зачастую приходится сталкиваться с излучением, представляющим из себя набор разных волн, коллимированных пространственно и спектрально отфильтрованных согласно задачам конкретного эксперимента. Это требует статистического подхода при рассмотрении волнового поля электромагнитного излучения, который позволил бы как определить близость поведения данных волн с точки зрения рассматриваемых свойств отдельной волны, так и установить характер взаимодействия данного распределения со средой. Для оценки согласованности колебаний волновых полей вводят понятие когерентности электромагнитного излучения, определяющую случайность характера связи между параметрами данных волн [65] и соответственно к близости их поведения к состоянию, когда концептуально их можно рассматривать как единый волновой фронт. Две волны принято называть когерентными, если их частоты совпадают, и их разница фаз остается постоянной с течением времени. Данное абсолютно когерентное излучение является математической моделью, и в реальности рассматривается пакет волн с различной степенью когерентности вплоть до совершенно некоррелированных процессов [64-65].

Для описания двух (и более) колебаний вводится функция взаимной когерентности между двумя распределениями комплексного волнового фронта  $E(\mathbf{r}_1, t_1)$  и  $E(\mathbf{r}_2, t_2)$  [67], являющаяся математическим ожиданием и описывающая пространственно-временное поведение данных полей, распространяющихся на определенном расстоянии друг от друга:

$$\Gamma(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2) = \langle E(\mathbf{r}_1, t_1)E(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle. \quad (1.16)$$

Проводя нормализацию, можно получить фактор когерентности вида:

$$\mu(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2) = \frac{\langle E(\mathbf{r}_1, t_1)E(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle}{\sqrt{\langle E^2(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle} \sqrt{\langle E^2(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle}}, \quad (1.17)$$

позволяющий записаться функцию взаимной когерентности в следующем виде:

$$\Gamma(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2) = \mu(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2)I_0(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2), \quad (1.18)$$

где  $I_0(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2) = \sqrt{\langle E^2(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle} \sqrt{\langle E^2(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle}$ . Для удобства моделирования распространения электромагнитных волн можно упростить фактор когерентности, учитывая, что всегда существует область пространства, для которой в определенный промежуток времени поле является полностью когерентным [67, 68]. Данное наблюдение позволяет записать фактор когерентности как:

$$\mu(\mathbf{r}_1, t_1, \mathbf{r}_2, t_2) \approx \begin{cases} 1, & \text{если } |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2| \leq \xi_c, |t_1 - t_2| \leq \tau_c, \\ 0, & \text{в остальных случаях.} \end{cases} \quad (1.19)$$

Параметры  $\xi_c$  и  $\tau_c$  принято называть пространственной длиной когерентности и временной длиной когерентности, соответственно [69].

Временная когерентность напрямую связана с конечной достижимой монохроматичностью волны. Если рассмотреть волновое поле, состоящее из двух волн с конечной разницей в длине волны  $\Delta\lambda$ , которые в начальный момент времени находились в одной фазе, то пройдя расстояние в  $\lambda/(2\Delta\lambda)$ , данные волны будут находиться в противоположных фазах [70]. Пройдя это расстояние, одна волна сделает  $N$  колебаний, в то время как вторая сделает  $N-1/2$  колебаний. Таким образом можно вывести связь между расстояниями, пройденными двумя волнами до достижения противофазы, как:

$$N\lambda = (N - \frac{1}{2})(\lambda + \Delta\lambda), \quad (1.20)$$

и определить временную длину когерентности  $\xi_\tau$  и время когерентности  $\tau_c$  (рис. 2а), которые показывает промежуток времени до того, как волны набрали полную разницу фаз между собой:

$$\xi_\tau = \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda} = c \frac{T^2}{2\Delta T} = c\tau_c. \quad (1.21)$$

Понятие пространственной когерентности очень близко к понятию временной когерентности, за тем исключением, что в этом случае рассматриваются не волны с небольшой разницей в длине волны, а одинаковые волны, идущие в одном направлении, но под небольшим углом  $\Delta\theta$  друг к другу [68]. Если две подобные волны были в одной фазе в начальный момент времени, то пройдя расстояние  $\xi_c$ , они



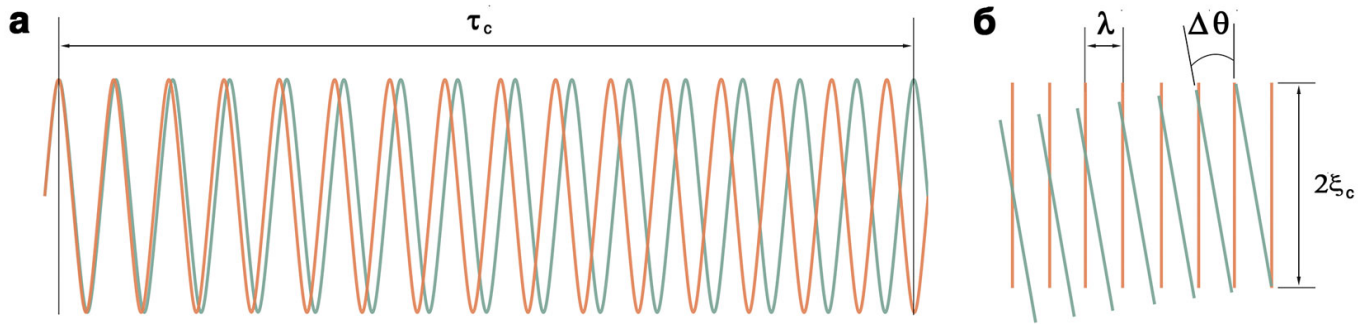


Рисунок 2 – Два типа когерентности электромагнитных волн. (а) – временная когерентность двух волн с малой конечной разницей в периоде колебаний. (б) – пространственная когерентность двух волн с малым расхождением в направлении распространения.

окажутся в противоположных фазах (рис. 2б). Данное расстояния можно определить следующим образом:

$$\xi_c = \frac{\lambda}{2\Delta\theta}. \quad (1.22)$$

Понятие когерентности является фундаментальным при анализе дифракции и интерференции волн, особенно в контексте когерентной дифракционной визуализации, так как в случае некогерентного сигнала очень сложно сделать заключения о свойствах образца по его дифракционной картине [70]. Это связано прежде всего с тем, что сигнал, создаваемый некогерентным источником, теряет свою выраженную комплексную природу, в которой распространение и взаимодействие волны имеет явную зависимость от фазы, и полученная картина за образцом несет малую контрастность интерференционных линий и больше похожа на корпускулярное поглощение. Таким образом очевидно, что чем ближе свойства оптических систем и пучка электромагнитных волн к приближениям скалярной теории дифракции, тем выше качество информации в дифракционной картине, полученной в эксперименте и, соответственно, интерпретация результатов становится однозначной.

### 1.3. Основы синхротронного излучения

Если в оптическом диапазоне получение света необходимой пространственной и временной когерентности рутинно достигается использованием лазеров, то для

получения рентгеновских волн высокой когерентности необходимо использовать более сложные и масштабные инструменты, такие как синхротронные источники.

Устройство синхротрона можно разделить на четыре сегмента: ускорительная машина, источник, оптическая камера и экспериментальная станция. Данное разделение принимает во внимание то, что современные синхротроны (накопительные кольца третьего поколения и рентгеновские лазеры на свободных электронах) являются в первую очередь источниками широкого спектра излучения для пользователей, нежели экспериментальными инструментами для изучения и развития ускорительной техники и физики частиц. Тем не менее это не ограничивает количество проводимых исследований по ускорительной технике и специальной оптике в периоды, когда работа синхротрона для пользователей ограничена, и машина запущена в одном из специальных режимов работы.

Ускорительная часть синхротрона состоит из источника электронов, линейного ускорителя, бустера и накопительного кольца, как представлено на рисунке 3. Электроны сначала разгоняются до околосветовой скорости с помощью линейного ускорителя, предварительно формируя пачки в группирователе за счет эффекта автофазировки [71]. Из линейного ускорителя через инфлектор электроны подаются в бустер, где, благодаря многократному пролету через высокочастотный резонатор, их доводят до необходимой энергии (порядка 2-8 ГэВ в зависимости от синхротрона), при этом далее улучшая их временную структуру. После этого по второму инфлектору электроны инжектируются на равновесную орбиту накопительного кольца синхротрона.

Накопительное кольцо синхротрона состоит из прямых участков и поворотных магнитов. В ранних конструкциях поворотные магниты были источниками синхротронного излучения [71]. Принцип получения синхротронного излучения поворотным магнитом (рис. 4) состоит в том, что любая заряженная частица, попадающая в магнитное поле и начинающая колебаться, излучает электромагнитную волну [71]. Известно, что тяжелые частицы колеблются с меньшей частотой, поэтому

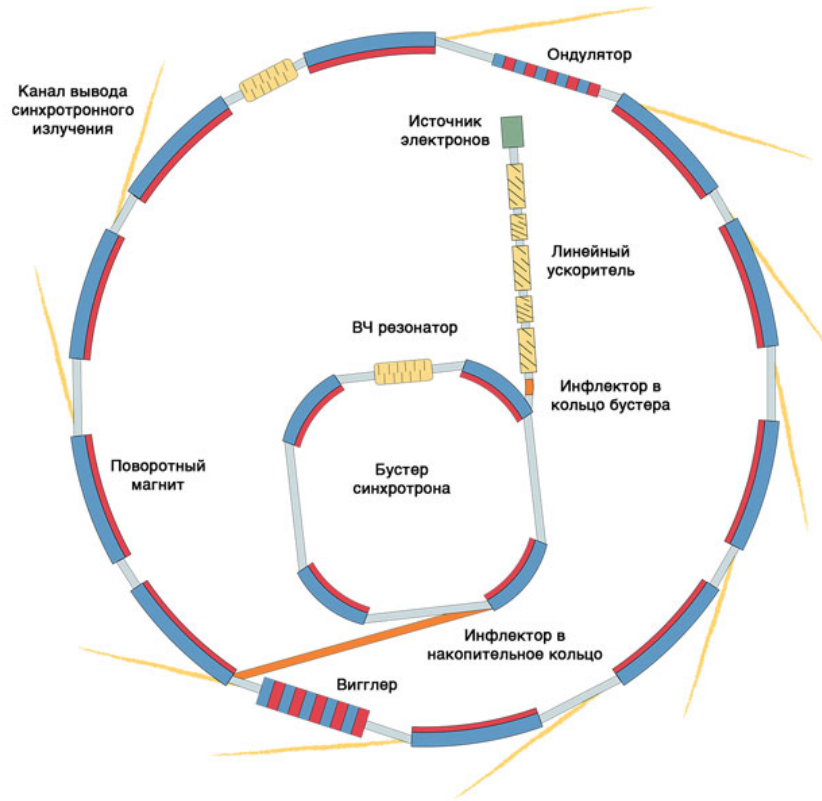


Рисунок 3 – Схематическое представление устройства источника синхротронного излучения.

испускаемые ими электромагнитные волны близки к инфракрасной области спектра. Для получения же рентгеновского излучения требуются колебания очень высокой частоты, которые можно получить, используя электроны. Характер движения электронов в накопительном кольце позволяет эффективно использовать некоторые полезные релятивистские эффекты. При движении в поле поворотного магнита, электрон ускоряется магнитным полем, получая угловую скорость равную  $\gamma eV/m_e$ , где  $\gamma$  – фактор Лоренца, а  $m_e$  и  $e$  – масса и элементарный заряд электрона, соответственно [71-72]. Кроме того, на электрон действует эффект Доплера, который сдвигает частоту излучаемого пика на величину приблизительно равную  $2\gamma$ . Таким образом конечная пиковая частота излучения, получаемого в ходе ускорения электрона, равна [72]:

$$\nu = \frac{2\gamma^2 eV}{2\pi m_e}. \quad (1.23)$$

В настоящее время поворотные магниты в основном используются для направления электронов по равновесной орбите накопительного кольца, а синхротронное излучение генерируется специальными устройствами, разработанными для получения излучения с заданными параметрами и более высокой спектральной яркостью. Такие устройства называют вставными магнитными устройствами, и в настоящее время их разделяют на два основных типа: ондуляторы и вигглеры (рис. 4). Принцип, по которому получается излучение в данных двух устройствах, схож с принципом получения синхротронного излучения в поворотных магнитах. Основная разница заключается в конструкции, позволяющей получить более высокую спектральную яркость, монохроматичность и коллимированность синхротронного излучения.

Ондулятор представляет собой набор магнитов с периодом  $\lambda_u$  порядка нескольких сантиметров. При этом магнитное поле каждого последующего магнита направлено противоположно предыдущему, что заставляет пучок электронов колебаться в вертикальной плоскости при прохождении. За счет этого синхротронное излучение генерируется импульсно, и конечная интенсивность складывается из интенсивности, генерируемой на каждой паре магнитов. Если в случае поворотного магнита спектральная яркость пучка пропорциональна току в накопительном кольце, то для ондулятора спектральная яркость увеличивается еще в  $N^2$  раз, где  $N$  – число магнитов [71-72]. Более того, в случае ондулятора спектр генерируемого излучения прямо пропорционален периоду магнитов. За счет релятивистских эффектов это приводит к спектру излучения более высокой монохроматичности, чем в случае поворотного магнита. Кроме того, важно отметить высокую коллимацию пучка с ондулятора [71-72]. Расхождение пучка для поворотных магнитов соответствует величине пропорциональной  $1/\gamma$ , тогда как для ондулятора эта величина уменьшается еще в  $\sqrt{N}$  [71]. Синхротронное излучение, полученное с помощью

ондулятора, является наиболее близким по свойствам когерентности к излучению, генерируемому оптическими лазерами [72].

За вставными магнитными устройствами находится канал вывода пучка к эксперименту. Зачастую канал начинается двумя коллимирующими окнами, которые вместе с ондулятором условно называют источником. Благодаря эффекту самоколлимации синхротронного излучения, спектральная яркость и пространственное качество пучка растут с расстоянием, которое он проходит от источника. Поэтому следующий сегмент, а именно оптику, зачастую ставят на значительном расстоянии (порядка 20 метров) от источника [73].

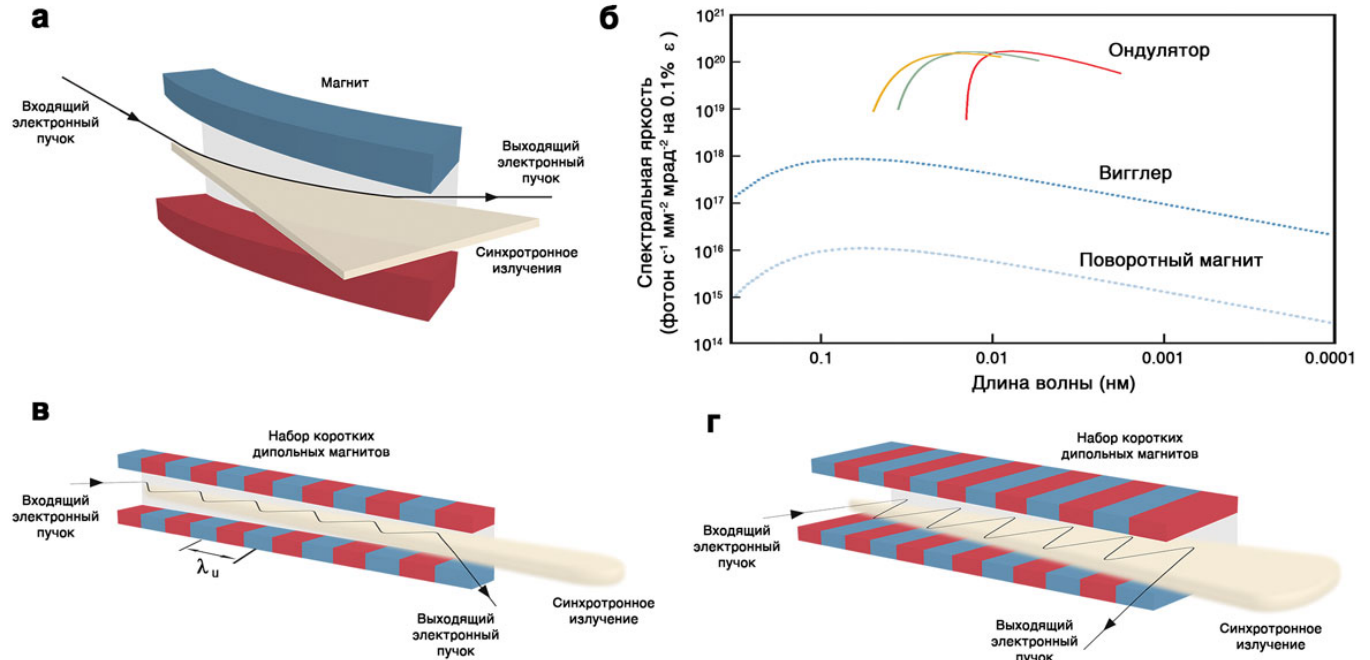


Рисунок 4 – Виды устройств для получения синхротронного излучения с различными свойствами. (а) – принципиальная схема поворотного магнита. Релятивистский пучок электронов на орбите накопительного кольца синхротрона попадает в поле поворотного магнита. При изменении направления движения по касательной к траектории полета пучка электроны генерируют синхротронное излучение широкого спектра. (б) – примеры спектральной яркости устройств для генерирования синхротронного излучения. (в) принципиальная схема ондулятора. При прохождении пучка электронов через набор коротких дипольных магнитов генерируется пучок излучения высокой яркости и с низким угловым расхождением. (г) – принципиальная схема вигглера. Близкая по конструкции к ондуляторам, что позволяет генерировать очень яркое синхротронное излучение, но благодаря ширине магнитов данное излучение имеет спектр близкий к поворотному магниту.

Оптика используется для изменения размеров пучка, а также для дополнительной выборки необходимого для эксперимента диапазона волн. Одним из главных оптических элементов является монохроматор. Наиболее распространенным монохроматором является кремниевый двухкристальный монохроматор с ориентацией (111), представленный на рисунке 5. Принцип его работы основывается на эффекте упругого рассеяния рентгеновского излучения периодической структурой, описываемом условием Вульфа-Брэгга, которое определяет положение дифракционных максимумов дифрагированной волны [72]:

$$2d\sin\theta_B = n\lambda, \quad (1.24)$$

где  $d$  – расстояние между плоскостями в кристалле,  $\theta_B$  – брэгговский угол,  $\lambda$  – длина волны рентгеновского излучения и  $n$  – порядок дифракции. Диапазон углов, которые дадут дифракцию в заданный порядок максимума, определяется шириной кривой качания, как полная ширина на уровне половинной амплитуды профиля отражения кристалла монохроматора для конкретного отражения Брэгга [74]:

$$\omega_n = 2.12 r_e \left( \frac{\lambda}{n_b + 1} \right)^2 \left( \frac{N_a F_{hkl}}{\pi \sin(2\theta_B)} \right), \quad (1.25)$$

где  $r_e$  – радиус электрона,  $N_a$  – концентрация атомов,  $n_b$  – порядок гармоники в пучке и  $F_{hkl}$  – структурный фактор для отражения с соответствующими индексами Миллера и фактором рассеяния вещества  $F$ , определяемый как [74]:

$$F_{hkl} = \frac{F \sin(\lambda/d)}{h^2 + k^2 + l^2}. \quad (1.26)$$

Таким образом, для каждой энергии падающих рентгеновских волн будет выполняться свое условие максимума, что позволяет точную выборку необходимых в эксперименте энергий. Главным преимуществом двухкристального монохроматора является то, что пучок, падающий на монохроматор, выходит практически параллельно за счет дополнительной коллимации вторым кристаллом (рис. 5). Также, небольшое расхождение в параллельности кристаллов позволяет фильтрацию

высоких гармоник в пучке, поступающем с ондулятора [73]. Спектральное разрешение монохроматора можно определить следующим выражением [74]:

$$\Delta E/E = \frac{2.12}{2\pi} r_e \frac{2d^2}{(n_b+1)^2}. \quad (1.27)$$

Важность высокой монохроматичности и пространственной когерентности волн для метода когерентной дифракционной визуализации рассмотрена в следующей главе, а параметры станции 34-ID-C источника синхротронного излучения APS, на котором были проведены эксперименты с сегнетоэлектрическими материалами, представлены в главе экспериментальных результатов с использованием рентгеновского излучения.

#### **1.4. Обоснование выбора метода брэгговской когерентной дифракционной визуализации для исследования топологических дефектов**

Существует множество методов визуализации структуры вещества с использованием рентгеновского излучения, электронных, нейтронных и ионных пучков, а также видимого спектра частот электромагнитного излучения. Визуализация топологических дефектов в объеме вещества под воздействием внешних возмущений, таких как электрическое поле, требует от метода быть одновременно чувствительным к объемной структуре, не взаимодействовать с прикладываемым возмущением, иметь высокое пространственное разрешение и чувствительность к контрастному механизму, а также иметь достаточную яркость для изучения процессов, вызываемых внешними возмущениями.

Рентгеновское излучение, получаемое на синхротронных источниках, отвечает задаваемым требованиям благодаря высокой разрешающей и проникающей способностям рентгеновских лучей, отсутствию заметного влияния электрических полей на пучок, а также высокой чувствительности к полям атомных и ионных смещений в кристаллической структуре [40]. Методы визуализации объема вещества с помощью синхротронного излучения включают в себя: рентгеновскую томографию,

рентгеновскую интерферометрию, а также несколько методов дифракционной визуализации образца в прямом и обратном пространстве.

Рентгеновская абсорбционная томография и радиография с использованием синхротронного излучения позволяют добиться высокого временного разрешения при изучении лазерной абляции [58]. К сожалению, максимальное разрешение данного метода в настоящее время достигает порядка 1 мкм [75], что является недостаточным для изучения нанопероэлектрических материалов с размером частиц порядка 200 нм. Использование рентгеновской оптики позволяет значительно увеличить пространственное разрешение, но при этом время получения одного трехмерного изображения образца не позволяет применять метод для изучения динамики [76]. Кроме того, важно отметить, что для топологических дефектов отсутствие выраженных локальных деформаций, свойственных, например, дислокациям,

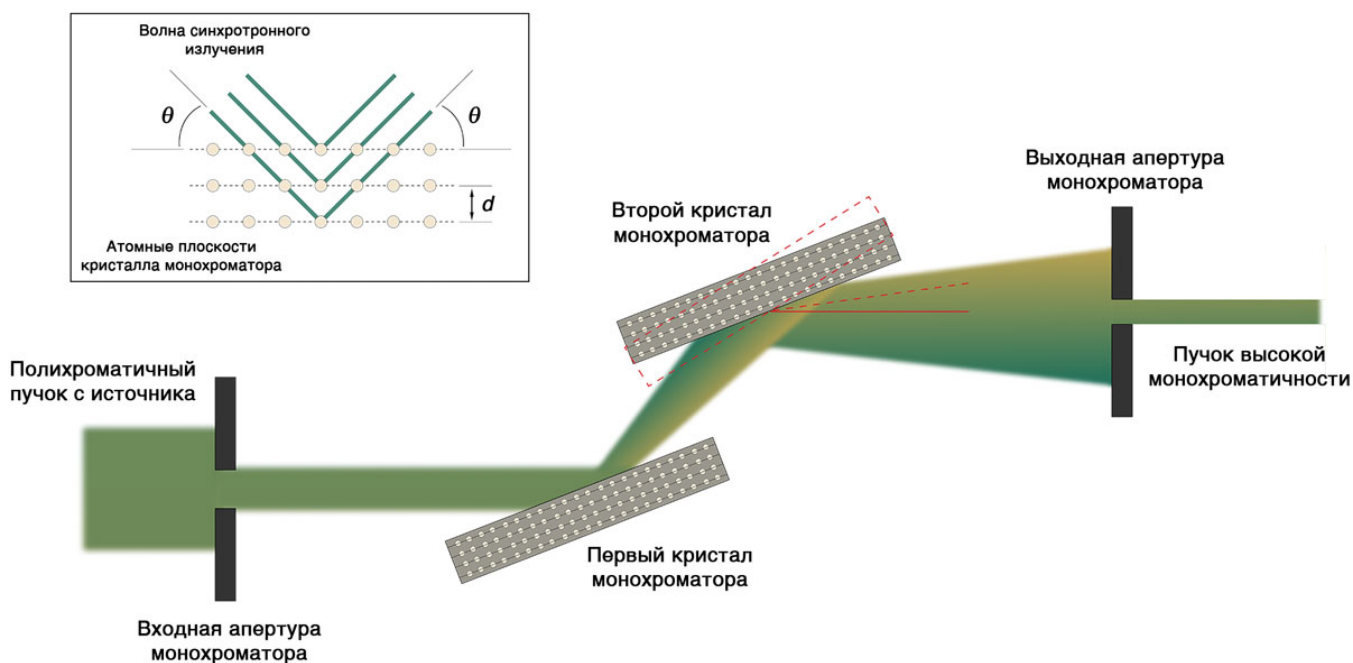


Рисунок 5 – Схематическое представление устройства двухкристального монохроматора рентгеновского излучения. Полихроматический пучок падает на входную апертуру монохроматора, за счет чего происходит первичная коллимация. Далее пучок проходит, отражаясь, через систему двух кристаллов. Благодаря упругому рассеиванию волн на атомных плоскостях кристаллов, падающий пучок разлагается по длинам волн согласно условию Вульфа-Брэгга. Дисперсия пучка и точное механическое позиционирование кристаллов позволяют вывести пучок с высокой монохроматичностью через коллимирующую апертуру.



подразумевает, что изменение проходящей через образец рентгеновской волны будет незначительным по сравнению с прохождением через образец без топологического дефекта. При этом можно предположить, что изменение электронной плотности за счет атомных и ионных смещений повлияет на увеличение рефракции проходящих рентгеновских волн по сравнению с образцом без топологической структуры. Соответственно, требуется использовать метод визуализации как амплитуды волны (для точного определения формы наночастиц), так и фазовой информации (для визуализации топологии).

Методы, чувствительные к фазовым сдвигам в проходящей через образец волне, зачастую основываются на принципах интерферометрии. Один из таких методов – рентгеновская интерферометрия на эффекте Тальбота [45, 57, 77]. Недостатком данного метода также является получаемое разрешение, которое ограничено оптическими элементами для получения фазового контраста (рентгеновскими дифракционными решетками), и в настоящее время в силу ограничений по качеству изготовления решеток ограничено значениями порядка 2 мкм [77]. Более того, данные оптические элементы также поглощают часть интенсивности пучка синхротронного излучения, что делает затруднительным измерения с высоким временным разрешением. Другие методы рентгеновской интерферометрии [78-80] также используют оптические элементы в своей конструкции, что ограничивает получаемое пространственное разрешение.

Альтернативой данным методам являются несколько техник рентгеновской дифракционной визуализации, таких как: дифракционная визуализация в дальнем поле, френелевская дифракционная визуализация, брэгговская дифракционная визуализация и птихография, а также рентгенодифракционные методы в обратном пространстве. Отличительной особенностью данных методов является отсутствие оптики для формирования изображения образца. Для визуализации образца в прямом пространстве используются алгоритмы восстановления фазовой информации по дифракционной картине [35, 40, 62, 81-82]. В то время как рентгенодифракционные

методы [83] находят применение при изучении изменений структуры в результате фазовых превращений по изменениям рефлексов в обратном пространстве [84].

Дифракционная визуализация в дальнем поле использует плоскую монохроматическую волну синхротронного излучения для получения дифракции с образца в дальнем поле. Высокое разрешение данного метода (порядка 10-20 нм [85]) и чувствительность к фазовой информации позволяют использовать его в целях визуализации объемной топологии в наночастицах. К сожалению, одним из условий применения метода является пространственная изоляция образца в пучке [85]. Так как в данной работе требуется исследовать динамику в наночастице под воздействием внешнего электрического поля, то изолировать одну наночастицу и подвести к ней контакты является крайне затруднительной задачей.

Метод френелевской визуализации предполагает использование фокусирующей рентгеновской оптики для создания сферического волнового фронта на образце [86]. К сожалению, недостатком данного метода является отсутствие в настоящий момент реализации алгоритма для визуализации объема образца без его вращения по принципу томографии. Данный метод довольно близок к птихографической дифракционной когерентной визуализации. В птихографии используется либо фокусирующая оптика, либо маскирующая апертура для формирования пучка рентгеновского излучения на образце [85]. При этом образец сканируется перпендикулярно падению пучка с шагом с перекрытием в 60% [85, 87]. При высоком получаемом разрешении в 10 нм [88], данный метод имеет ограничения для изучения динамики в образце (порядка 36 часов на одну томограмму [88]), а также требует высокой стабильности образца в пучке.

Метод брэгговской когерентной дифракционной визуализации является наиболее подходящим для достижения цели данной работы по ряду причин. Данный метод отличается высоким разрешением (порядка 10-20 нм [34, 35, 40]), возможностью изолирования наночастицы в порошке при условии, что все частицы ориентированы в пространстве случайным образом [34, 35, 89], а также возможностью визуализации

трехмерного тензора деформации и атомных и ионных полей смещения [40]. При этом время измерений в стандартной конфигурации не превышает нескольких минут и с использованием стробоскопического метода сбора данных существует возможность визуализации повторяемых процессов с пикосекундным разрешением [89].

## ГЛАВА 2. АЛГОРИТМЫ ВОССТАНОВЛЕНИЯ ФАЗОВОЙ ИНФОРМАЦИИ

### 2.1. Фазовая проблема и условия дискретизации

Возможности исследования наносегнетоэлектриков внутри объема вещества в настоящее время ограничиваются разрешающей и проникающей способностями применяемых методов [61]. Несмотря на ограничения экспериментальных методов, успехи теоретических исследований позволяют говорить о богатой топологии в структурах малой размерности, сильно зависящей от различных факторов, таких как форма и пропорции, размер, а также внутренние напряжения в нанообъектах [16-21]. Исследование процессов в объеме таких наноматериалов с высоким пространственным разрешением требует применения рентгеновского излучения в силу его короткой длины волны и высокой проникающей способности. Также в силу природы топологических дефектов, проявляющейся в изменении электронной плотности вследствие коллективного смещения атомов структуры, следует ожидать, что большая доля информации о внутренней конфигурации нанообъекта будет содержаться не только в амплитуде, но и в фазе выходящей волны когерентного рентгеновского излучения. Это предположение основывается на том, что изменения в симметрии электронной плотности кристаллических материалов передаются в виде асимметрии комплексного распределения дифракционных интенсивностей [40]. Важность фазы заключается в том, что в Фурье пространстве именно она несет большой объем информации о координатах различных пространственных частот, что видно на рисунке 6 [64].

Регистрация электромагнитного излучения в оптическом и рентгеновском спектре происходит за счет регистрации отдельных фотонов или за счет интегрирования фотонов в элементе матрицы детектора и последующего считывания накопленного заряда. При этом кривизна волнового фронта в общем случае не измеряется, и изображения несут лишь информацию об интенсивности падающего света. Интенсивность электромагнитной волны может быть представлена как усредненный

по времени вектор Умова-Пойнтинга  $\mathbf{S}$ , зависящий от амплитуд электрической  $E$  и магнитной  $H$  компонент волны:

$$I = \langle |\mathbf{S}| \rangle_{\text{время}} = \frac{EH^*}{2} = \frac{n|E|^2}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}, \quad (2.1)$$

где  $n$  – это коэффициент преломления среды, а  $\epsilon_0$  и  $\mu_0$  – диэлектрическая и магнитная проницаемость среды, соответственно. Неспособность детекторов регистрировать фазовую информацию приводит к фазовой проблеме [81].

Как было показано в первой главе, электромагнитная волна в дальнем поле с точностью до постоянной соответствует Фурье преобразованию изображения сразу за образцом (рис. 1) [64]. Таким образом, проведя обратное Фурье преобразование дифракционной картины, возможно получить изображение образца без использования какой-либо оптики [81]. Разрешение такого изображения будет определяться только дифракционным пределом для данной частоты излучения, а не

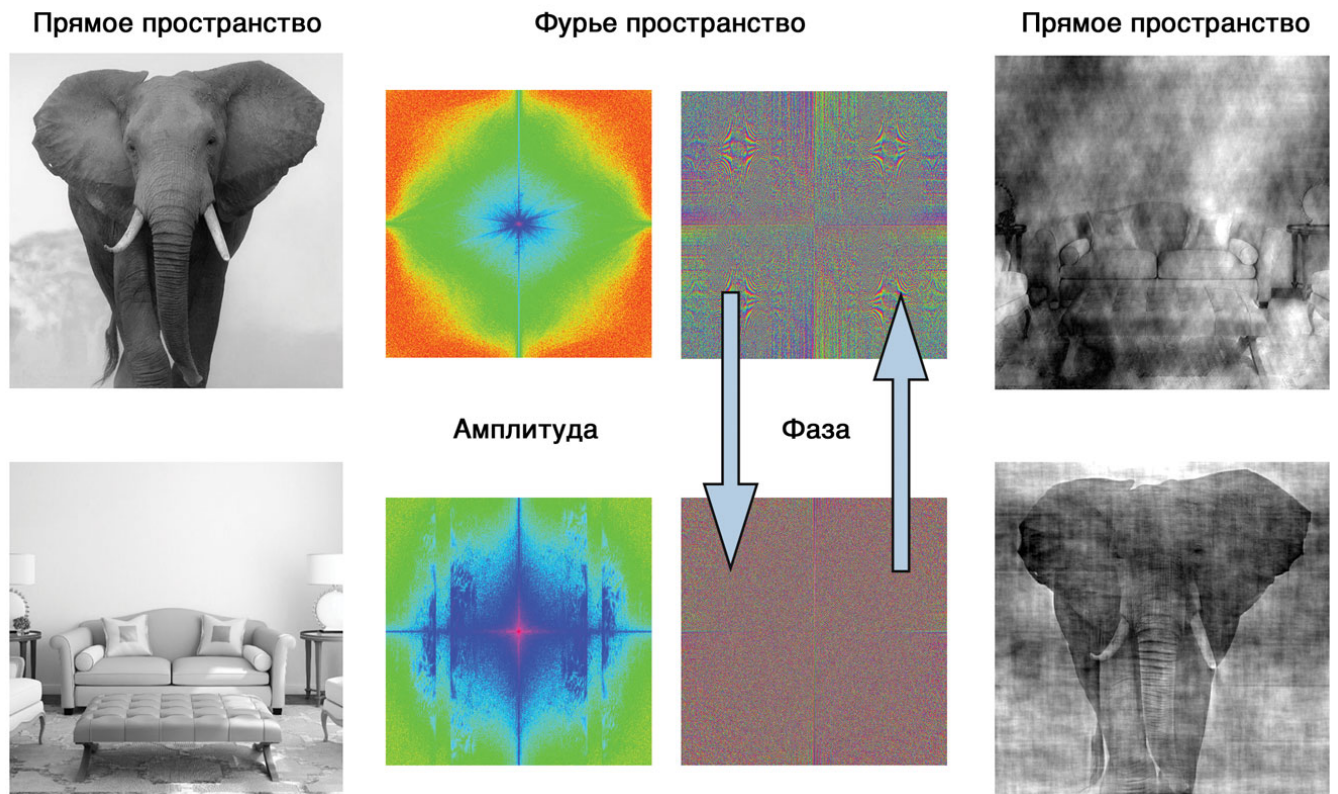


Рисунок 6 – Представление важности фазовой информации. При замене фазы в Фурье пространстве двух изображений пространственная информация в прямом пространстве искажается настолько, что изображения взаимозаменяют свое содержание.

оптической системой, подверженной абберациям. Если для частот видимого диапазона, благодаря современным методам изготовления оптических элементов, возможно создать безабберационную оптику, то для рентгеновских частот это все еще является крайне затруднительной задачей, и разрешение методов ограничивается качеством изготавливаемых оптических элементов [36, 85, 88].

Решение задачи реконструкции изображения в прямом пространстве по дифракционной картине позволяет эффективно использовать длину волны рентгеновского излучения и его проникающую способность для изучения нанообразцов. Объемная визуализация необходима для изучения поляризованных структур в таких образцах, как наночастицы, наноточки, наностержни, тонкие пленки, гетероструктуры и прочие объекты малой размерности [22-27]. К сожалению, данная задача значительно усложняется в виду невозможности регистрировать фазу дифракционной картины детектором.

В 1952 году Дэвид Сайр опубликовал статью [90], в которой показал, что, используя результаты теоремы отсчетов и избыточную дискретизацию дифракционной картины, можно алгоритмически восстановить как фазу сигнала дифракционной картины, так и комплексную информацию об образце в прямом пространстве, что фактически позволило решить фазовую проблему.

Рассмотрим функцию  $E_0(\mathbf{r})$ , описывающую комплексное распределение поля волны непосредственно за образцом, и ее Фурье преобразование  $\tilde{E}(\mathbf{q})$ . Обе функции являются непрерывными функциями от непрерывных координат. При этом объект является ограниченным в пространстве, а его преобразование Фурье таким образом становится бесконечным. В силу ограничений реализуемого эксперимента представляется возможным зарегистрировать только дискретное приближение измеряемых непрерывных функций. Тем не менее, используя теорему отсчетов, можно составить условие о необходимом и достаточном интервале дискретизации сигнала, которое позволит представить этот сигнал с требуемой точностью [91-92]. В случае  $E_0(\mathbf{r})$  можно предположить реализуемую дискретизацию на интервале  $[0, N]$ ,

определяемую как детектором, так и дифракционным пределом рентгеновского излучения. Тогда частота дискретизации в Фурье пространстве должна быть больше или равной  $1/N$ . Если учесть, что интенсивность излучения в Фурье пространстве может быть представлена как квадрат амплитуды:

$$I(\mathbf{q}) = |\tilde{E}(\mathbf{q})|^2 = \tilde{E}^*(\mathbf{q})\tilde{E}(\mathbf{q}), \quad (2.2)$$

то его обратное Фурье преобразование (даже при отсутствии фазовой информации) будет содержать функцию автокорреляции для объекта в прямом пространстве [64]. Наименьший размер области, содержащей данную автокорреляцию будет в два раза больше размера области, в которой заключен образец в прямом пространстве [64]. Это означает, что для однозначного (без искажений) инвертирования дифракции в функцию, описывающую образец, необходима избыточная дискретизация с частотой  $1/(2N)$ .

Таким образом, задача восстановления информации по дифракционной картине сводится к оптимизационной задаче по поиску единственного решения обратного Фурье преобразования, которое будет удовлетворять заданным условиям в прямом и Фурье пространстве. Существующие алгоритмы решения данной задачи можно разделить на два класса: алгоритмы градиентного спуска и алгоритмы проекций на множества ограничений. Даже несмотря на уровень развития данных алгоритмов, данная задача все еще остается достаточно сложной, учитывая то, что характер решения нелинейный, а множество решений зачастую невыпуклое [93]. Поэтому для применения данного метода к изучению топологических дефектов в наночастицах необходимо учесть преимущества и недостатки различных алгоритмов реконструкции и провести калибровочные реконструкции для настройки выбранного алгоритма.

## 2.2. Алгоритмы градиентного спуска

Основной принцип алгоритмов градиентного спуска можно описать на примере базового алгоритма этого класса, а именно алгоритма быстрой спуска [81, 93].

Зная распределение интенсивности дифракционной картины на детекторе  $I(\mathbf{q})$  и задав начальное случайное распределение волнового поля сразу за образцом  $E_0(\mathbf{r})$ , можно определить ошибку восстановления информации как [81]:

$$\xi_{error} = \sum_q \{ |\mathcal{F}[E_0(\mathbf{r})]| - \sqrt{I(\mathbf{q})} \}^2. \quad (2.3)$$

Тогда задача нахождения решения фазовой проблемы состоит в минимизации этой ошибки. Такая минимизация может быть проведена итеративно, используя выражение [93]:

$$E_n(\mathbf{r}) = E_{n-1}(\mathbf{r}) - \alpha_n \nabla_{E_{n-1}} \xi_{error}, \quad (2.4)$$

где  $\alpha_n$  определяет величину шага, а  $\nabla_{E_{n-1}} \xi_{error}$  определяет направление шага (противоположное росту градиента). Данный алгоритм может быть улучшен за счет субоптимизации по поиску величины шага на каждой итерации, или за счет одномерного поиска на каждом шаге спуска [93]. Недостатком данного метода является его медленная сходимость на невыпуклом множестве решений [81, 93]. При наличии нескольких экстремумов функции высока вероятность, что алгоритм остановится в локальном минимуме и не сможет выбраться.

Альтернативным подходом является алгоритм сопряженных градиентов [94]. Данный алгоритм позволяет ускорить сходимость по поверхностям типа функции Розенброка [93-94]. Для этого ведется поиск не только градиента пространства ошибок, но и учитывается предыдущее значение антиградиента (который определяет направление движения). Таким образом, алгоритм ‘видит’ не только локальное поведение поля решений, но и лучше ориентируется в глобальном поле. Направление движения, определяемое градиентом на прошлом шаге и на настоящем шаге, также регулируется коэффициентом между данными градиентами. Алгоритм сопряженных градиентов можно представить следующей последовательностью итеративных уравнений [93-94]:

$$D_0(\mathbf{r}) = \nabla_{\psi_0} \xi_{error}, \quad (2.5)$$



$$D_n(\mathbf{r}) = \beta_n D_{n-1}(\mathbf{r}) - \nabla_{\psi_n} \xi_{error}, \quad (2.6)$$

$$\psi_{n+1}(\mathbf{r}) = \psi_n(\mathbf{r}) - \alpha_n D_n(\mathbf{r}), \quad (2.7)$$

где  $D_n(\mathbf{r})$  определяет направление движения, а  $\beta_n$  является параметром регуляризации, определяемый зачастую либо методом Полака-Райбера, либо Флетчера-Ривса [94]. Как и в случае алгоритма быстрой спуска данный алгоритм допускает решение дополнительной одномерной задачи для ускорения сходимости.

Кроме представленных алгоритмов, являющихся алгоритмами с производными первого порядка, существует ряд более сложных алгоритмов, находящих применение в когерентной дифракционной визуализации, например, квазиньютоновский алгоритм Бroyдена-Флетчера-Гольдфарба-Шанно (БФГШ) и его вычислительно менее требовательная модификация – алгоритм БФГШ для ограниченной памяти (БФГШ-ОП) [95].

Главными недостатком алгоритмов градиентного спуска являются их требовательность к вычислительным ресурсам, даже после дополнительных оптимизаций как БФГШ-ОП. Недостатком также является затруднительная имплементация новых условий (таких как дополнительные измерения дифракционной картины в ближнем поле или микроскопии низкого разрешения образца) и зачастую медленная сходимость для задач восстановления изображений. Это делает их применение для исследований динамики в топологических структурах затруднительным, так как потенциально требуется возможность имплементации реконструкций, параллельных измерениям и позволяющих задавать обратную связь между несколькими состояниями системы.

### 2.3. Алгоритмы проекций на множества ограничений

Класс алгоритмов, основанных на операции проекций на множества ограничений, является наиболее часто применяемым для решения задач когерентной дифракционной визуализации [81-82, 93]. Одна из главных причин заключается в том, что данный класс алгоритмов предоставляет гибкие возможности по расширению

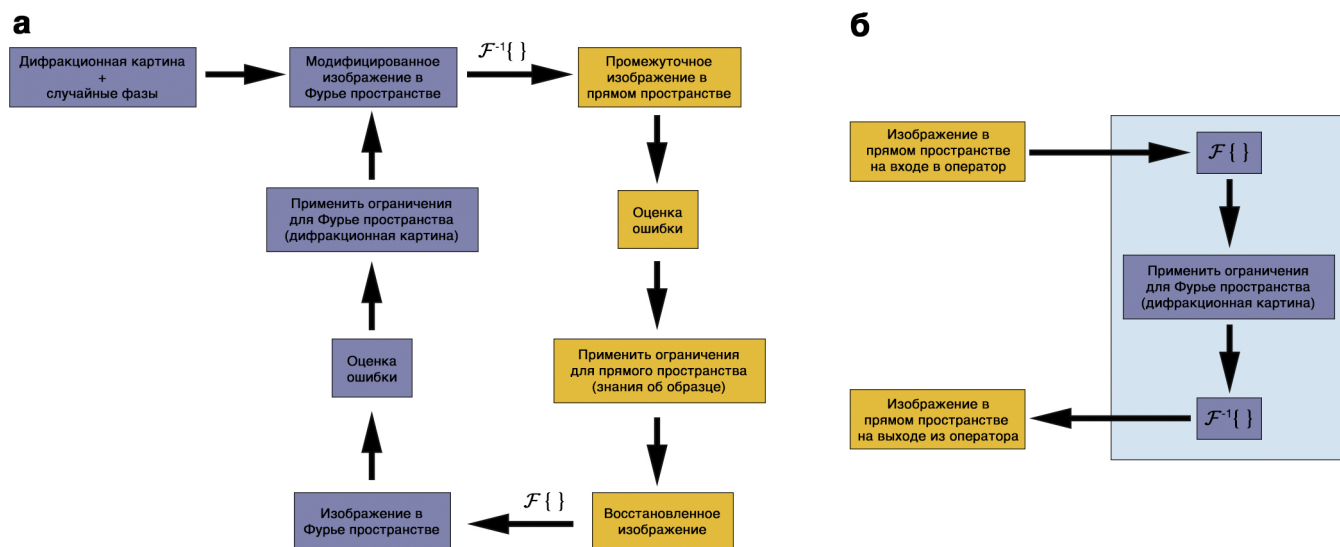


Рисунок 7 – Блок-схемы двух базовых алгоритмов восстановления фазовой информации методом проекции на множества условий. (а) – блок-схема алгоритма Гершберга-Сакстона. (б) – упрощенная блок-схема алгоритма ввода-вывода, показывающая ключевое отличие от алгоритма Гершберга-Сакстона.

условий на основе имеющихся экспериментальных данных. Кроме того, данные алгоритмы отличаются низкой требовательностью к вычислительным ресурсам по сравнению с градиентными методами оптимизации [81, 93]. Более того, большой объем работ [93, 96-97], сделанных по разработке алгоритмов, написанных на основе предложенного Файнапом гибридного алгоритма ввода-вывода (НЮ) [81], позволил добиться высокой сходимости в конечное число итераций для совершенно разных задач дифракционной визуализации. Такие алгоритмы не только обеспечивают быструю сходимость, но зачастую способны выбраться из локального экстремума.

Одним из первых алгоритмов проекций, разработанных в свое время для решения задачи восстановления фазы по двум изображениям в электронной дифракционной микроскопии, является алгоритм Гершберга-Сакстона (ГС) [98]. Запуск данного алгоритма начинается с задания случайных фаз в Фурье пространстве  $\tilde{\varphi}_0(\mathbf{q})$ . Данные случайные фазы и экспериментально полученная дифракционная картина формируют первое приближение о функции образца:

$$\tilde{E}_0(\mathbf{q}) = \sqrt{I(\mathbf{q})} \cdot \exp(i \tilde{\varphi}_0(\mathbf{q})). \quad (2.8)$$

Далее, используя знание об области расположения образца, а также любую информацию о распределении волны сразу за образцом  $\Xi(\mathbf{r})$ , и проведя операцию обратного Фурье преобразования над  $\tilde{E}_0(\mathbf{q})$ , возможно получить значение фазы в прямом пространстве  $\varphi_n(\mathbf{r})$  на шаге  $n$ , что позволяет задать решение для функции образца как [81, 98]:

$$E_n(\mathbf{r}) = \Xi(\mathbf{r}) \cdot \exp(i \varphi_{n-1}(\mathbf{r})). \quad (2.9)$$

Таким образом амплитуду сигнала в прямом пространстве заменяется известной информацией об образце, а фаза сигнала получается из обратного Фурье преобразование дифракционной картины со случайными фазами. Следующим шагом будет повторное прямое преобразование Фурье с последующим итеративным проецированием условий [81, 98]:

$$\tilde{E}_n(\mathbf{q}) = |\tilde{E}_n(\mathbf{q})| \cdot \exp(i \tilde{\varphi}_n(\mathbf{q})) = \mathcal{F}\{E_n(\mathbf{r})\}, \quad (2.10)$$

$$\tilde{E}'_n(\mathbf{q}) = \sqrt{I(\mathbf{q})} \cdot \exp(i \tilde{\varphi}_n(\mathbf{q})), \quad (2.11)$$

$$E'_n(\mathbf{r}) = |E'_n(\mathbf{r})| \exp(i \varphi'_n(\mathbf{r})) = \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{E}'_n(\mathbf{q})\}, \quad (2.12)$$

$$E_{n+1}(\mathbf{r}) = \Xi(\mathbf{r}) \exp(i \varphi_{n+1}(\mathbf{r})) = \Xi(\mathbf{r}) \exp(i \varphi'_n(\mathbf{r})), \quad (2.13)$$

Данные операции повторяются до того момента, пока не будет найдено решение с минимальной заданной ошибкой. На рисунке 7а показана блок-схема выполнения представленного алгоритма.

Этот алгоритм был обобщен Файнапом для случаев, где лишь частичные условия известны, и добавочное условие положительности сигнала может быть использовано. Данный алгоритм получил название алгоритма уменьшения погрешности (ER) и в имплементации лишь незначительно отличается от алгоритма ГС [81]. Основные шаги алгоритма заключаются в проведении преобразования Фурье приближения образца  $E_n(\mathbf{r})$ . После чего проводится изменение полученного Фурье-образа  $\tilde{E}_n(\mathbf{u})$  до того состояния, в котором он удовлетворяет условиям в обратном пространстве. Затем

полученный Фурье-образ путем обратного преобразования Фурье снова трансформируется в приближение образца. Новое приближение модифицируется до того состояния, при котором будут соблюдаться условия в прямом пространстве. Последнее условие можно в общем случае задать как:

$$E_{n+1}(\mathbf{r}) = \begin{cases} E'_n(\mathbf{r}), & \mathbf{r} \notin \Xi', \\ 0, & \mathbf{r} \in \Xi', \end{cases} \quad (2.14)$$

$\Xi'$  определяет область, где найденное приближение не соответствует условиям предметной области [81]. Например, даже имея лишь одно измерение дифракционной картины и не имея большей информации об образце, можно по функции автокорреляции определить предметную область, где образец отсутствует, и таким образом задать условие диаметра образца [93]. Алгоритм продолжает поиск решения до момента, пока оно не будет найдено с заданной ошибкой.

Важно отметить, что в случае алгоритма ER ошибка всегда понижается или остается неизменной. К сожалению, это его свойство делает алгоритм предрасположенным к попаданию в локальные минимумы. В случае выпуклого пространства решений эта проблема бы не наблюдалась, но условия на Фурье-области являются невыпуклыми и соответственно множество локальных экстремумов делает сходимость данного алгоритма маловероятной для сложных задач когерентной дифракционной визуализации с использованием синхротронного излучения [93].

Решение данной проблемы было предложено Файнапом в виде алгоритма НЮ (рис. 7б) [81]. Данный алгоритм использует линейную комбинацию между найденным решением и решением на предыдущей итерации, пропорциональность между которыми задается параметром  $\beta$  (на практике задаваемым в интервале от 0,5 до 1,0) [81, 93]. Итеративная схема построена таким образом, что при долгом застое найденного решения в определенной точке создается положительная обратная связь, уводящая решение в другую область. В данном алгоритме сохраняются шаги операций на Фурье пространстве, и основное отличие заключается именно в операции

над найденным решением в прямом пространстве, которое можно представить в виде следующего выражения:

$$E_{n+1}(\mathbf{r}) = \begin{cases} E'_n(\mathbf{r}), & \mathbf{r} \notin \Xi', \\ E_n(\mathbf{r}) - \beta E'_n(\mathbf{r}), & \mathbf{r} \in \Xi'. \end{cases} \quad (2.15)$$

Тем не менее даже НЮ алгоритм может попасть в локальный минимум при условии, когда пространство решений обладает высокой степенью не выпуклости.

Эффективным способом решения задачи восстановления фазы является алгоритм дифференцированного присваивания (DM), основанный на принципе алгоритма НЮ. Данный алгоритм был разработан для решения задач в протеиновой кристаллографии [97] для нахождения локализованных небольших изменений в активных молекулах. В основе алгоритма DM лежит предположение, что фаза в дифракционной картине изменяется однородно под воздействием небольших структурных переходов и может быть оценена по корреляции между интенсивностями в дифракционных картинах от разных состояний образца. Чувствительность данного метода к небольшим изменениям в электронной плотности и сравнение с другими методами представлено в работе [97]. Высокая чувствительность алгоритма позволяет использовать его для изучения процессов, связанных с градиентами смещения второго порядка в структуре вещества, таких как поляризация, возникающая в результате фазовых переходов под воздействием внешнего электрического поля [59, 61, 97].

Относительные изменения в интенсивности дифракционной картины вблизи узла обратной решетки под воздействием внешних возмущений (таких как изменение электрического поля с  $V_0$  до  $V$ ) при данной энергии рентгеновского излучения могут быть описаны как [61]:

$$\Delta I(V, \mathbf{q}) = [I(V, \mathbf{q}) - I(V_0, \mathbf{q})]/I(\mathbf{q}), \quad (2.16)$$

где распределение интенсивности для наночастицы при отсутствии возмущений описывается как:

$$I(\mathbf{q}) \sim \left| \int d^3 \mathbf{r} \rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{G}_{111} \cdot \mathbf{u}_{111}) \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) \right|^2. \quad (2.17)$$

Определить получившуюся разницу плотности в прямом пространстве,  $\Delta\rho(\mathbf{r})$ , можно из обратного Фурье преобразования разницы двух когерентных дифракционных картин, принимая за общую фазовую функцию  $\psi(\mathbf{q})$  одну из данных фазированных дифракционных картин:

$$\Delta\rho(\mathbf{r}) = \int d^3 \mathbf{q} [\sqrt{I(V, \mathbf{q})} - \sqrt{I(\mathbf{q})}] \exp(-i\psi(\mathbf{q}) + i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}). \quad (2.18)$$

Отклонение передачи импульса  $\mathbf{Q}$  от вектора обратной решетки  $\mathbf{G}_{111}$  определяется как  $\mathbf{q} = \mathbf{Q} - \mathbf{G}_{111}$  для пика дифракции (111) в случае рентгеновского излучения. Смещение ионов в кристалле может быть получено из восстановленной комплексной функции  $\Delta\rho(\mathbf{r})$ . Изменения в деформации кристалла, при неизменной форме и плотности, должны в основном влиять на мнимую часть данной функции [40].

#### 2.4. Условия, накладываемые на решения фазовой проблемы при запусках алгоритма восстановления фазовой информации

Для решения фазовой проблемы алгоритмами проецирования существует несколько типов условий, которые чаще всего применяются в задачах КДВ. Первое условие называется условием положительности, которое позволяет нам предположить, что заданный объект является положительным во всех точках. Данное условие существенно улучшает сходимость алгоритмов, но спорно в случае комплексного объекта. Тем не менее в случае рентгеновской дифракции было показано [99-100], что комплексный коэффициент атомного рассеяния можно рассмотреть с точки зрения двух величин  $F_{\text{атом}} = F_{\text{эл.рефр.}} + iF_{\text{погл.}}$ , где  $F_{\text{эл.рефр.}}$  представляет число электронов дифрагирующих падающую волну и  $F_{\text{погл.}}$  представляет поглощение. Первый параметр зачастую положительный, а второй параметр всегда положительный [93]. Это позволяет применять условие положительности для восстановления фазы даже для комплексных образцов. Другим условием является условие вещественности образца [93]. В этом случае можно

постулировать *a priori* информацию о том, что исследуемый объект не является комплексным.

Данные два условия являются типовыми в том смысле, что подразумевают знание о характере образца, а не о его геометрии. В некоторых случаях можно задавать условия о том, что образец в основном фазовый (слабо поглощающий), либо амплитудный (сильно поглощающий). Очевидно, что любая дополнительная информация увеличивает шанс успешного восстановления образца по его дифракционной картине.

Кроме характеристик образца увеличить сходимость алгоритма к уникальному решению можно, постулируя информацию о геометрической форме. Данное условие эффективно используется в нескольких имплементациях: жесткое ограничение области образца, свободное ограничение области образца, параметрически заданная смещенная форма области образца или низкое разрешение изображения образца [93]. В разных ситуациях та или иная форма условия может оказаться более эффективной. Кроме того, эффективным показал себя алгоритм, основанный на итеративном уточнении формы области образца. Данный алгоритм получил название `shrinkwrap` [98]. Реализация алгоритма заключается в определении свободного ограничения формы образца по автокорреляции его дифракционной картины. Данное приближение формы является первой догадкой. Далее реконструкция производится по схеме алгоритма НЮ с введением дополнительной операции уточнения формы и обновлением условий каждые 20 итераций. Уточнение производится операцией свертки восстановленного изображения на данном шаге и фильтром Гаусса (обычно параметр  $\sigma$  задается равным 3 пикселям для первого уточнения и постепенно уменьшается в последующих итерациях). Получившееся изображение переводится в двоичную маску на 20% от максимального значения интенсивности и используется как условие формы образца в следующих итерациях [101].

Еще одним важным условием, используемым в восстановлении фазы в методах КДВ, является освещение образца неплоским волновым фронтом. Этот прием

позволяет исключить симметрии в Фурье пространстве и значительно улучшает сходимость алгоритмов к единственному решению [86].

Тем не менее главными недостатками современных алгоритмов реконструкции являются: долгая сходимость к решению, чувствительность к шуму, требования, накладываемые на дискретизацию дифракционной картины, затруднения при попадании в локальный экстремум пространства решений, необходимость первичной отработки алгоритма на схожих тестовых задачах. Несмотря на существование этих недостатков, правильное тестирование и отработка алгоритмов решения фазовой проблемы на синтезированных данных, а также мощность современных вычислительных систем, позволяют успешно имплементировать данный метод даже для сложных задач рентгеновской когерентной дифракции [93].

### **2.5. Оценка разрешения полученного изображения образца и ошибки сходимости алгоритма к единственному решению**

Как алгоритмы градиентного спуска, так и алгоритмы проекций на множество ограничений полагаются на оценку ошибки для определения насколько близко найденное решение к единственно верному. Существуют различные подходы в определении ошибки, но наиболее общими можно назвать оценку ошибки на основе сравнения найденных решений в прямом и Фурье пространствах. Среднеквадратичное отклонение в Фурье пространстве может быть найдено по следующей формуле [61, 81, 93]:

$$E_F^2 = \frac{\sum(\tilde{E}_n(\mathbf{q}) - |I(\mathbf{q})|)^2}{\sum |I(\mathbf{q})|^2}, \quad (2.19)$$

где  $I(\mathbf{q})$  является экспериментально полученной дифракционной картиной, а  $|\tilde{E}_n(\mathbf{q})|$  является Фурье преобразованием восстановленного образца. Суммирование производится по всем индексам матрицы детектора.

В случае алгоритма НЮ рассматривать ошибку в Фурье пространстве не имеет смысла, так как объект на входе в итеративную схему является лишь частично



решением, а частично объектом накопления обратной связи [81]. Поэтому принято оценивать ошибку в прямом пространстве. В прямом пространстве ошибку можно оценить, принимая во внимание то, что вне предметной области образца сигнал должен быть равен нулю, что справедливо в большинстве экспериментов в силу накладываемого ограничения об изолированном образце [81]. В таком случае ошибка определяется уравнением вида:

$$E_O^2 = \frac{\sum_{\mathbf{r} \in \Xi'} |E'_n(\mathbf{r})|^2}{\sum_{\mathbf{r}} |E'_n(\mathbf{r})|^2}, \quad (2.20)$$

где  $E'_n(\mathbf{r})$  является выходом  $n$ -ой итерации алгоритма реконструкции в прямом пространстве, в котором перед операцией инверсии Фурье амплитуда была заменена экспериментально измеренной дифракционной картиной.

Таким образом можно увидеть два основных принципа оценки ошибки реконструкций. В первом случае используется сравнение амплитуды реконструированной дифракционной картины с экспериментальной, тогда как во втором случае используется известное пространственное ограничение сигнала, которое сравнивается с реконструкцией [81]. Очевидно, что условие успешного нахождения реконструкции образца подразумевает уменьшение ошибки до нуля. В силу влияния шумов и других факторов, ограничивающих возможности эксперимента по получению идеальной дифракционной картины, достижение нулевой ошибки

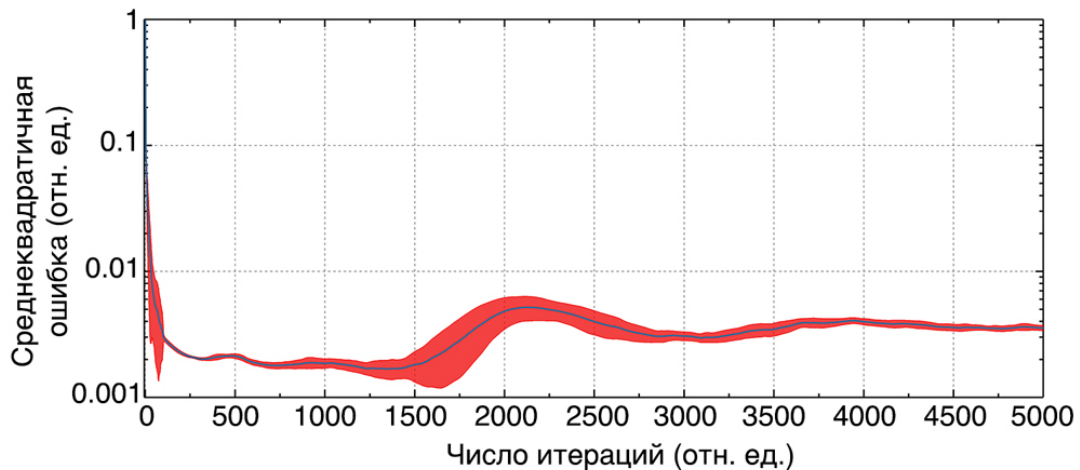


Рисунок 8 – График поведения среднеквадратичной ошибки в зависимости от числа итераций для алгоритма ввода-вывода.

практически невозможно [81, 93]. Поэтому принимается минимизация ошибки ниже заданного порогового значения и проводится многократный запуск алгоритма с усреднением полученных результатов. Кроме того, хорошей практикой является подход, когда оценивают общую ошибку после многократного усреднения, так как она является метрикой для конечной реконструкции, а не отдельно взятого запуска алгоритма.

На рисунке 8 представлено поведение среднеквадратичной ошибки алгоритма НЮ в зависимости от количества итераций. Данный график получен усреднением 200 запусков алгоритма. Из графика можно заключить, что после 1000 итераций параметр обратной связи выталкивает алгоритм из найденного решения и приводит его в новый локальный экстремум. В зависимости от типа дифракционной картины поведение данного графика будет различным и может быть использовано для нахождения оптимального числа итераций, приводящих как к минимальной ошибке алгоритма, так и к минимальной вариации данной ошибки. Для нашего случая достаточно низкая ошибка наблюдается уже при 300 итерациях.

Количество запусков с последующим усреднением представлено на рисунках 9 и 10. Из рисунка 9 видно, что после 100 итераций величина ошибки для разного количества запусков становится одинаковой, при этом вариация этой ошибки тоже резко уменьшается. Из реконструкций (рис. 10) видно, что один запуск уже дает близкую к оригиналу информацию, но при большем количестве запусков эта информация становится ближе к оригиналу. Этот эффект будет еще более заметен для экспериментальных данных, где в силу ограничения условий эксперимента качество дифракционной картины ниже, чем у смоделированной дифракции. Важно отметить, что при маленьком числе усреднений качество реконструкции хуже, чем у отдельно взятой реконструкции. Это как раз показывает эффект ненулевой ошибки реконструкции, которая, в свою очередь, вызвана небольшими флуктуациями в близости к оптимальному решению.

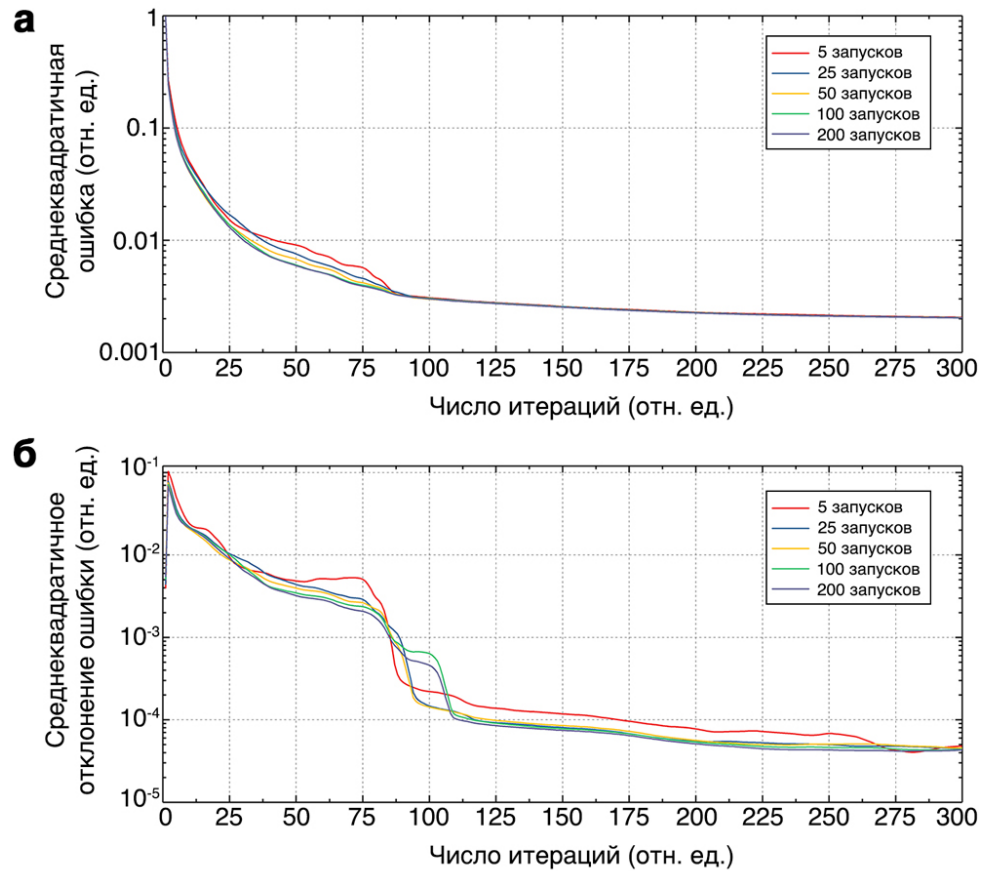


Рисунок 9 – Поведение среднеквадратичной ошибки восстановления фазовой информации в зависимости от количества усреднений. (а) – график среднеквадратичной ошибки в зависимости от числа итераций для разного количества усреднений. (б) – график среднеквадратичного отклонения ошибки восстановления фазы в зависимости от числа итераций для разного количества усреднений.

Помимо простого усреднения множества реконструкций существуют различные подходы по устранению из конечного усреднения отдельных реконструкций с использованием заданного критерия. Например, можно использовать метод взвешенного голосования, основанный на отсеке результатов с ошибкой порогового значения [102-103].

Когда удовлетворительная реконструкция получена, необходимо оценить такой важный параметр, как разрешение. Для оценки разрешения методами традиционной микроскопии зачастую достаточно поставить масштабную линейку в силу того, что изображение само по себе является мерой разрешения. В случае когерентной дифракционной визуализации изображения получают с помощью алгоритма оптимизации с конечной ошибкой и могут быть найдены с теоретически бесконечным

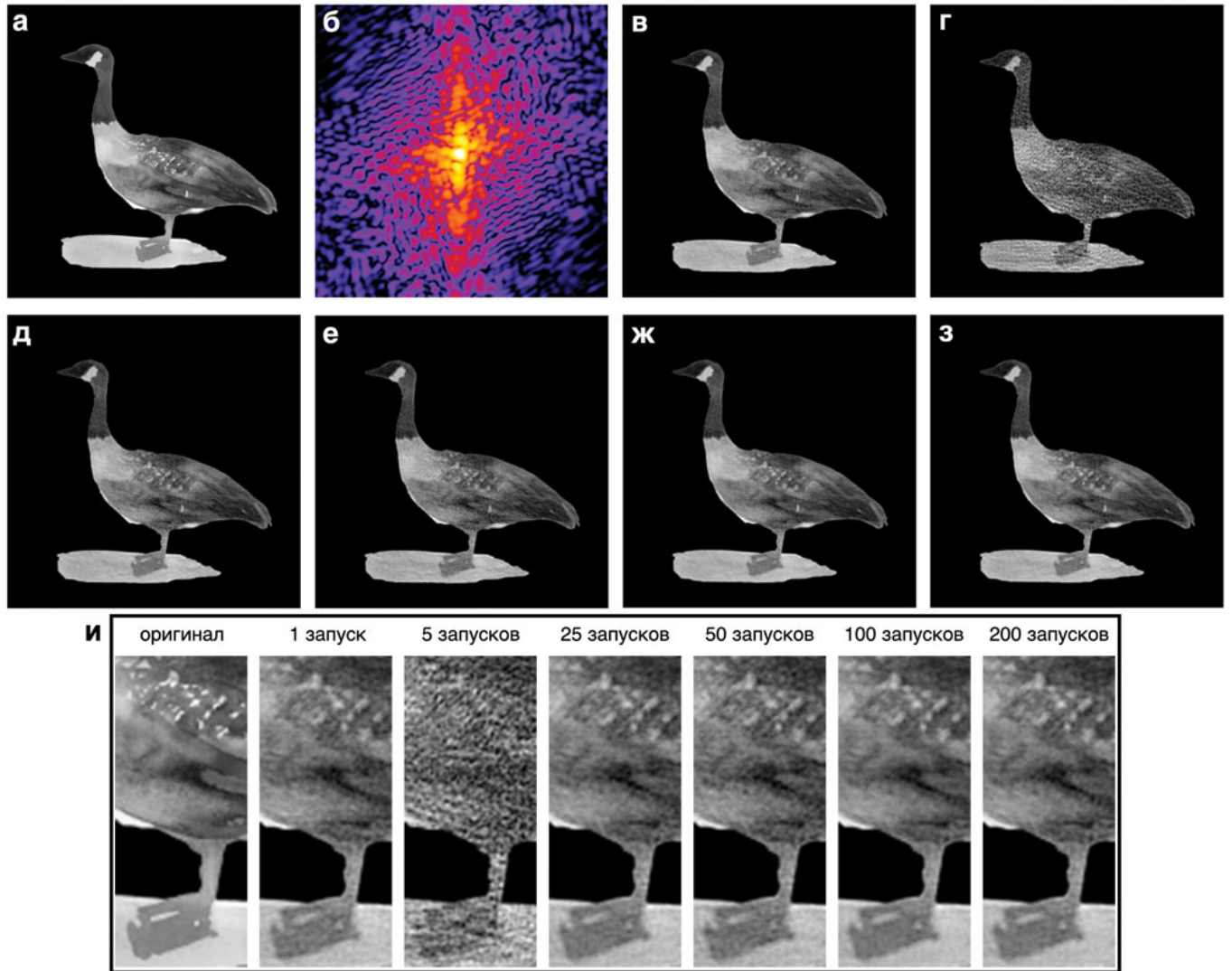


Рисунок 10 – Результаты восстановления фазовой информации с использованием тестового изображения, дифракционная картина которого может была смоделирована. (а) – модельное изображения. (б) – дифракционная картина модельного изображения. (в) – результат восстановления изображения после 1 запуска алгоритма ввода-вывода. (г) – результат восстановления изображения после 5 запусков алгоритма ввода-вывода. (д) – результат восстановления изображения после 25 запусков алгоритма ввода-вывода. (е) – результат восстановления изображения после 50 запусков алгоритма ввода-вывода. (ж) – результат восстановления изображения после 100 запусков алгоритма ввода-вывода. (з) – результат восстановления изображения после 200 запусков алгоритма ввода-вывода. (и) – увеличенное изображение предметной области.

разрешением (за счет экстраполяции усеченного периодического сигнала до бесконечности), что создает необходимость определить ту область разрешения, которой можно полностью доверять. Интересно то, что для решения данной задачи можно напрямую воспользоваться свойствами Фурье пространства, в котором

амплитуда Фурье преобразования для полученного изображение, а соответственно полученная дифракционная картина, представляют собой спектр пространственных частот [103-104]. Таким образом, следующим выражением можно оценить какие частоты в восстановленном спектре согласуются с частотами в измеренной дифракционной картине, и насколько хорошо они согласуются [101, 102]:

$$\mathcal{P}(\mathbf{u}) = \frac{|(\tilde{E}_n(\mathbf{q}) \cdot \exp(i\tilde{\varphi}_n(\mathbf{q})))|}{\sqrt{I(\mathbf{q})}}, \quad (2.21)$$

где  $\mathcal{P}(\mathbf{u})$  - передаточная функция фазовой реконструкции. Одним из возможных критериев оценки разрешения является значение пространственной частоты, при которой передаточная функция фазовой реконструкции становится равной нулю. Такую частоту определяют, как граничную частоту реконструкции и из нее получают значение пространственного разрешения в прямом пространстве, которое для рентгеновского излучения может достигать 7 нм [102]. Более широко принятой мерой разрешения является граничная частота на половине передаточной функции фазовой реконструкции. При учете данной частоты, разрешающая способность для рентгеновского излучения в настоящее время доходит до 18 нм при чувствительности к полям ионных смещений порядка 0,1 Å [34, 40, 61], что является важными параметрами для визуализации топологических дефектов в объеме наночастицы титаната бария.

## 2.6. Влияние шума детектора на сходимость алгоритмов

Важным фактором, влияющим на сходимость алгоритмов восстановления фазы, является шум в экспериментально полученных дифракционных картинах [81, 93]. Для детекторов характерны несколько видов шума, такие как дробовой шум, тепловой шум и шум с выраженным постоянным пространственным спектром [47-50, 105-106]. Последний шум можно разделить на две составляющие: неоднородность сигнала сенсора при отсутствии освещений и неоднородную фоточувствительность сенсора [106].

Тепловой шум зачастую подчиняется распределению Гаусса, но его величина значительно меньше дробового шума при высоком уровне освещения [101]. Дробовой шум является доминирующим шумом в фотодетекторах и подчиняется распределению Пуассона [106]. Данный шум в основном связан с квантовыми флуктуациями при регистрации падающих на детектор фотонов. Влияние шумов на сходимость алгоритмов реконструкции на примере алгоритма НЮ представлено на рисунке 11а. На верхней части рисунка представлены ошибки реконструкций для разных уровней не периодичного пуассоновского шума, который задан функцией вероятности вида:

$$\mathbb{P}(k) = \exp(-\lambda) \frac{\lambda^k}{k!}, \quad (2.22)$$

где  $k$  является целым числом, определяющим число событий на заданном интервале, а  $\lambda$  является средним числом событий на заданном интервале. Можно заключить, что изображение без шума, хоть и приводит к меньшей ошибке реконструкций, но в целом данный алгоритм толерантен к данному типу шума при значениях  $\lambda$  порядка 5000.

Данное поведение алгоритма повторяется также и для изображений, представленных на рис. 11б, в которых 10% вертикальных линий получили дополнительный уровень шума, отображая тем самым простой случай шума с выраженным пространственным спектром. Данное наблюдение и доступность алгоритмов реконструкций, специально разработанных для зашумленных изображений, позволяют заключить, что экспериментально полученные дифракционные картины с уровнем шума ниже  $\lambda = 5000$  должны быть потенциально реконструируемыми [101].

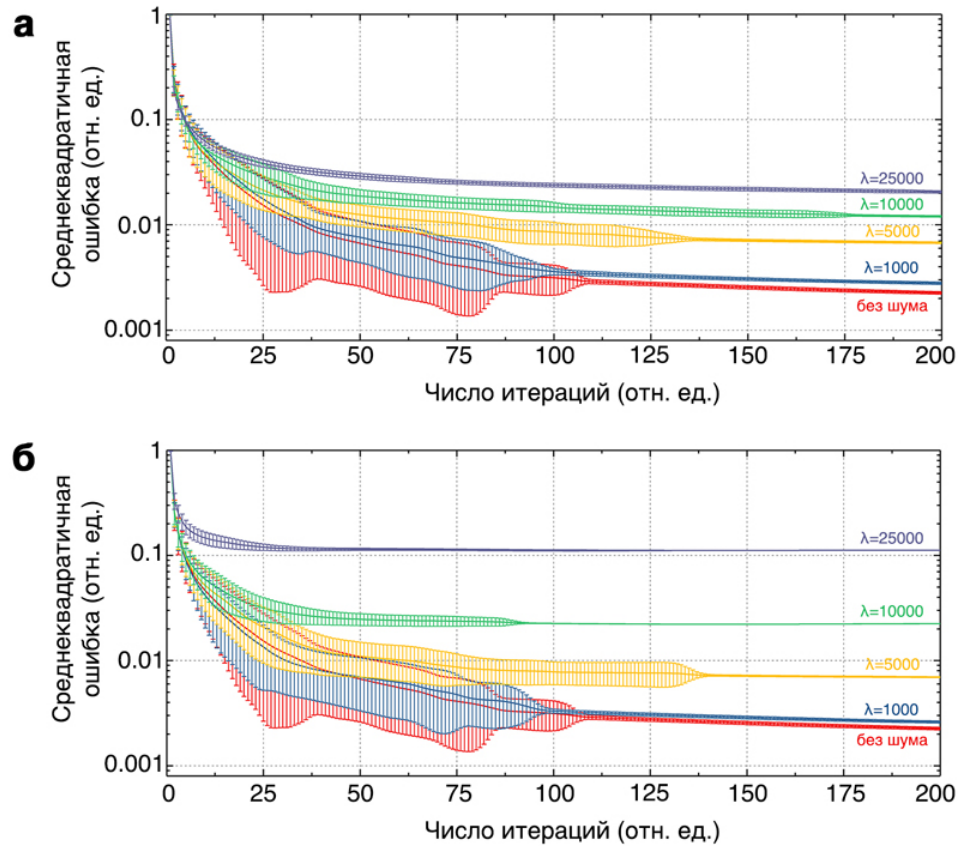


Рисунок 11 – Поведение среднеквадратичной ошибки восстановления фазовой информации в зависимости от добавленного в дифракционную картину шума. (а) – график среднеквадратичной ошибки в зависимости от параметра пространственно однородного шума по распределению Пуассона. (б) – график среднеквадратичной ошибки в зависимости от параметра пространственно неоднородного шума по распределению Пуассона.

## 2.7. Выводы по главе 2

1. Алгоритмы проекции на множества ограничений являются предпочтительными в случае когерентной дифракционной визуализации в силу меньшей требовательности к вычислительной мощности, высокой вероятности сходимости к единственному решению, возможности внесения дополнительной информации об образце и увеличению таким образом скорости сходимости;
2. В общем случае пространство решений задачи восстановления фазы является невыпуклым множеством, что приводит к сложному характеру поведения графика ошибки восстановления от количества усреднений. Отслеживание

поведения данного графика позволяет найти оптимальное количество итераций для данного запуска алгоритма;

3. Шум детектора при получении дифракционных картин приводит к повышению ошибки реконструкции. При этом можно утверждать, что наличие пуассоновских шумов с параметром  $\lambda$  порядка 5000 позволяет получать удовлетворительные результаты реконструкции;
4. Для улучшения качества конечной реконструкции и ее приближению к единственному решению достаточно делать несколько независимых запусков, а результаты затем усредняются. При этом в случае смоделированных данных увеличение запусков выше 25 не дает существенных улучшений конечной реконструкции.



### **ГЛАВА 3. ОТРАБОТКА АЛГОРИТМА РЕКОНСТРУКЦИИ НА МЕТОДЕ КОГЕРЕНТНОЙ ДИФРАКЦИОННОЙ ВИЗУАЛИЗАЦИИ С ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ**

Решение фазовой проблемы заключается в восстановлении информации о волновом фронте за образцом, утерянной в силу того, что детекторы видимого света или рентгеновского излучения могут регистрировать только интенсивность падающей волны. Одним из вариантов решения данной проблемы является замена линзы, формирующей изображение в прямом пространстве, на ‘вычислительную линзу’, которая является алгоритмом восстановления утерянной информации о фазе и амплитуде волнового поля из дифракционной картины за образцом [81].

Данное решение возможно лишь при соблюдении нескольких условий, накладываемых на экспериментальную установку. При этом наиболее критичные условия накладываются на качество и тип источника излучения, позволяющего зондировать неизвестный образец пучком с известными свойствами [93]. Менее жесткие условия задаются для детектора и определяют скорее максимальную разрешающую способность системы, нежели возможность решения фазовой проблемы как таковой [81].

В данной главе описана разработанная лабораторная система когерентной дифракционной визуализации на оптических частотах с использованием лазера как источника излучения. Разработка данной системы позволила более глубоко понять проблемы и ограничения метода. Кроме того, наличие испытательного стенда оказалось полезным в оптимизации алгоритмов реконструкции и методики измерений до их прямого использования на синхротроне. Также была проведена оценка сложности системы дифракционной визуализации и выработаны рекомендации по внедрению системы в учебной лаборатории.

Разработанная система в первую очередь создавалась для имплементации и отладки алгоритма DM, который в настоящее время является наиболее надежной вариацией предложенного Файнапом алгоритма НЮ в силу своей быстрой

сходимости, низкой чувствительности к шуму, а также возможности применения к динамическим процессам. Данный алгоритм использует несколько дифракционных картин, отличающихся друг от друга либо в силу внутренних изменений в образце, либо в силу изменения зондирующего излучения. В разработанной системе было использовано зондирование образца излучением с различной поляризацией, что позволило получать дифракцию со структур образца, с различной анизотропией коэффициента преломления. Такая конфигурация позволила оценить работоспособность алгоритма реконструкции. Более подробно о поляризации электромагнитных волн можно найти в Приложении 1.

Наличие различных видов дифракционно-ограниченной оптики также являлось мотивацией к созданию данной системы, так как позволило оценить возможности осуществления точного контроля поляризации для будущего изучения оптически прозрачных мультиферроиков.

### **3.1. Экспериментальная установка**

Учитывая опыт в области развития алгоритмов восстановления фазы за последние годы, можно сформулировать несколько ключевых требований к экспериментальной установке и обозначить их влияние на ее работоспособность в контексте решения фазовой проблемы. Наиболее важными критериями являются: временная и пространственная когерентности источника [35, 107-109], качество волнового фронта зондирующего пучка [107], тип зонда [35], а также динамический диапазон и линейность детектора [105-106, 109]. Кроме того, можно сформулировать дополнительные критерии, связанные с введением поляризационной оптики в геометрию лазерной дифракционной микроскопии. Данными критериями являются стабильность генерируемого состояния поляризации источника и качество поляризатора и анализатора, определяемое коэффициентом затухания поляризации.

### 3.1.1. Источник излучения

В качестве источника излучения в описываемой системе был выбран гелий-неоновый лазер JDSU HeNe Laser Model 1107P с мощностью 0,8 мВт, центральной длиной волны 632 нм и линейно поляризованной поперечной электромагнитной модой TEM<sub>00</sub>. Лазерные источники обладают высокой степенью когерентности излучения при высокой интенсивности, что является ключевым фактором в когерентной дифракционной визуализации, где высокая монохроматизация зондирующего излучения является желательным условием для успешной реконструкции.

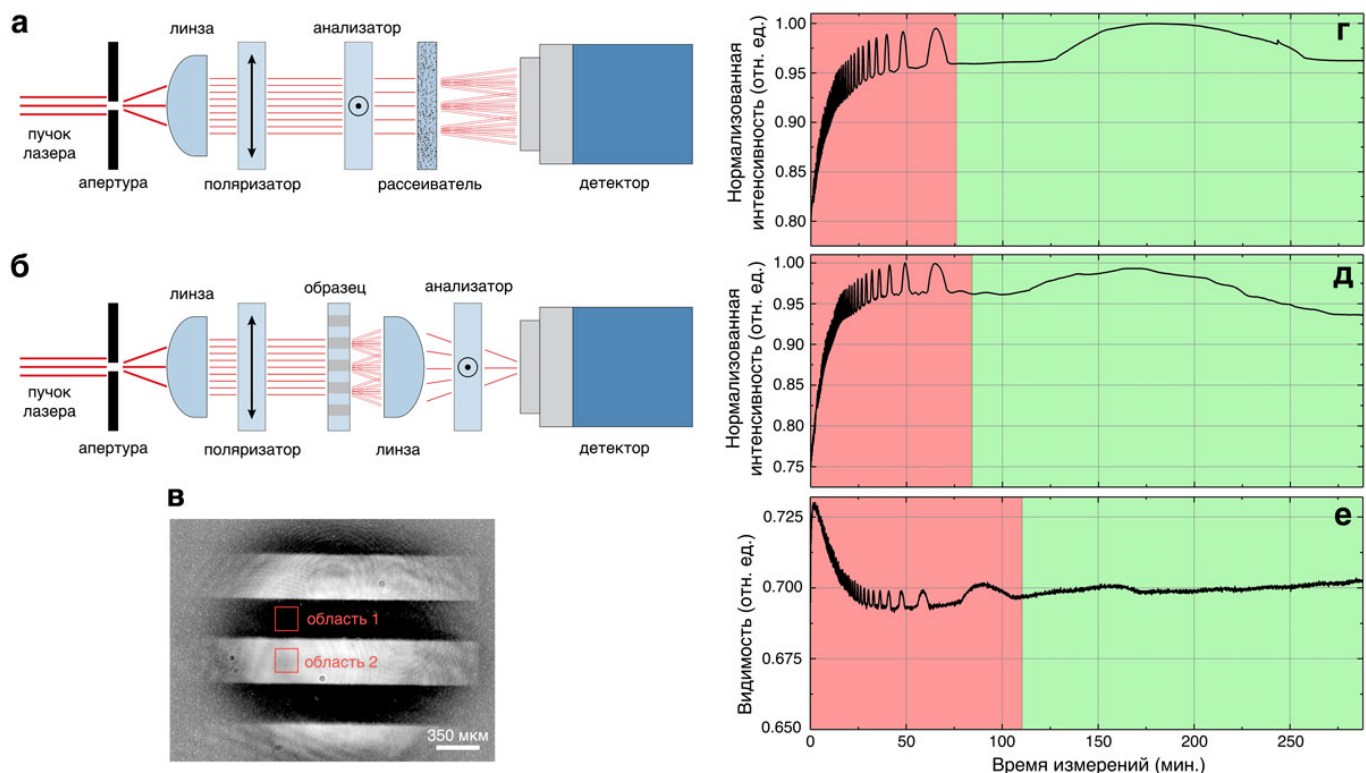


Рисунок 12 – Оценка стабильности источника лазерного излучения. (а) – схема экспериментальной установки для оценки стабильности яркости источника в зависимости от времени и поляризации. (б) – схема экспериментальной установки для точной оценки стабильности поляризационных компонент системы. (в) – изображения образца с маркировкой предметных областей, использовавшихся для оценки видимости. (г) – график нормализованной интенсивности источника в зависимости от времени работы источника с перекрещенными поляризатором и анализатором. (д) – график нормализованной интенсивности источника в зависимости от времени работы источника без поляризатора и анализатора. (е) – график видимости полос в образце в зависимости от времени работы источника с перекрещенными поляризатором и анализатором.

В работах [107, 109, 111-112] было изучено влияние частичной когерентности пучка на качество восстановленных изображений, а также сформулированы требования по оптимальной длине когерентности, при которой алгоритмы реконструкции сходятся к единственному решению при требуемом разрешении.

Стабильность выбранного источника излучения была оценена тремя способами. Сначала была собрана схема, представленная на рисунке 12а. Луч лазера был предварительно отфильтрован с помощью узкой диафрагмы с диаметром в 25 мкм для того, чтобы устранить обратные отражения на стороне лазера и уменьшить пространственную неоднородность пучка. Далее параллельный пучок был сформирован с помощью плосковыпуклой линзы с фокусным расстоянием в 50 мм и пропущен через поляризатор Глана-Томпсона, отличающийся высоким коэффициентом затухания 100000:1. Полностью горизонтально поляризованный параллельный пучок лазера был пропущен через второй поляризатор, ортогональный первому. За последним поляризатором был установлен рассеиватель, представляющий собой диск из матового стекла с плотностью зерна 1500 мм<sup>-1</sup>. Наличие рассеивателя позволило устранить эффекты интерференции лазерного излучения и пространственную неоднородность сигнала. За рассеивателем был установлен детектор rso.pixelfly с размером пикселя 6,45 x 6,45 мкм<sup>2</sup>.

Наличие двух перекрещенных поляризаторов позволило повысить чувствительность к изменениям направления линейной поляризации лазера. Для данной калибровки время экспозиции детектора было 1200 мс и одна точка измерений была как усреднением по 4 кадрам. Детектор был запущен для измерения в течение 10 минут до включения лазера, чтобы установить нижнюю границу интенсивности. На рис. 12г представлен получившийся график измерений.

После данной процедуры поляризаторы были убраны, чтобы оценить насколько меняется интенсивность самого источника, независимо от изменения поляризации. На рис. 12д представлены результаты данной оценки, из которых видно, что стабильность лазера в первую очередь определяется изменением его интенсивности,

а не поляризации. На нем также видно, что лазеру требуется 80 минут на стабилизацию, после чего изменение интенсивности становится незначительным в пределах 20 минут, что достаточно для проведения экспериментов, учитывая, что длина одного измерения дифракции не будет превышать нескольких секунд.

Для более точной оценки стабильности поляризации лазера была собрана третья схема, представленная на рисунке 12б. Основным изменением в этой схеме является появление тестовой мишени с полосками с ортогональной линейной поляризацией и объектива с фокусным расстоянием в 50 мм. Благодаря поляризатору и анализатору яркость полосок сильно зависит от стабильности поляризации источника, так что если яркость источника меняется, то контраст полосок останется неизменным, но если изменится поляризация пучка, то яркость полосок изменится не на одинаковую величину. Оценка стабильности была проведена по измерению видимости полосок на тестовом образце, согласно выражению:

$$I_{\text{видимость}} = \frac{I_{\text{max}} - I_{\text{min}}}{I_{\text{max}} + I_{\text{min}}}, \quad (3.1)$$

где  $I_{\text{min}}$  – интенсивность в первой области (рис. 12в), а  $I_{\text{max}}$  – интенсивность во второй области (рис. 12в).

Результаты оценки представлены на рисунке 12е. Из данного рисунка видно, что стабилизация поляризации лазера занимает около 110 минут, после чего лазер можно считать достаточно стабильным в рамках отдельных измерений.

### 3.1.2. Детектор

Следующим важным элементом, после источника излучения, является детектор. В силу особенностей экспериментов когерентной дифракционной визуализации на детектор накладываются особые требования. Качество полученных результатов будет напрямую связано с шумом на детекторе, чувствительностью детектора на заданной длине волны, линейностью сенсора и его динамическим диапазоном. Две последние характеристики особенно важны в силу того, что дифракционная картина, получаемая в результате измерений, падает в интенсивности экспоненциально при

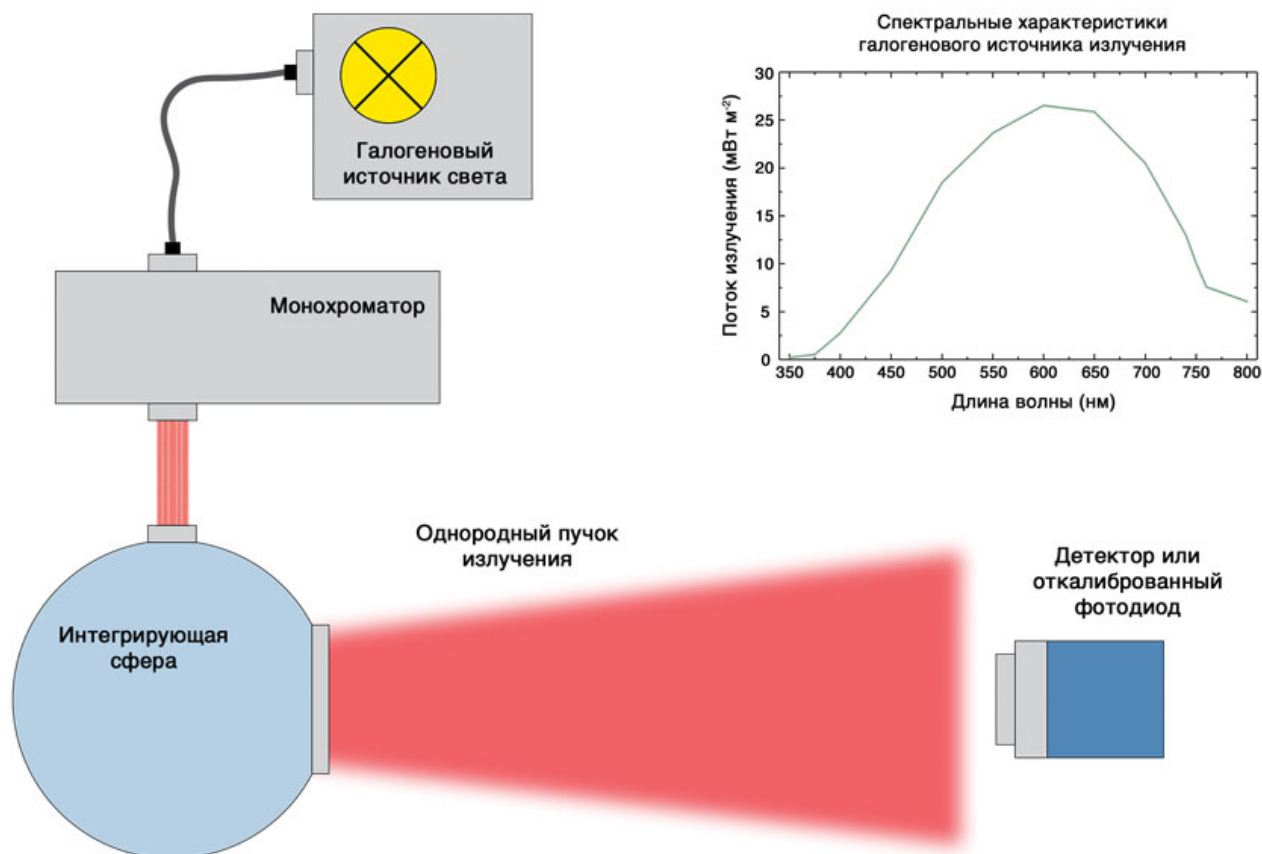


Рисунок 13 – Схема установки для оценки параметров фотодетекторов на основе стандарта европейской ассоциации машинного зрения EMVA1288 [106]. Свет от галогенового источника с широким спектром подается в монохроматор. Выбранный монохроматором диапазон волн направляется в интегрирующую сферу, где устраняются пространственные неоднородности и пучок излучения передается на фотодетектор и фотодиод.

отдалении от центральной частоты. Соответственно, чтобы получить максимальное разрешение, необходим детектор с максимально линейным откликом при всех уровнях освещения и с широким динамическим диапазоном. Кроме того, точное знание параметров детектора, полученное в лаборатории, а не из документации прибора, позволяет повысить надежность испытательной системы для когерентной дифракционной визуализации.

В качестве детектора была выбрана камера rso.pixelfly с 14 битной ПЗС матрицей SONY ICX285AL. Данная камера имеет 1392 x 1040 фоточувствительных элемента, каждый размером 6,45 мкм на 6,45 мкм. В документации фотодетектора заявлена высокая квантовая эффективность в 62% на длине волны около 500 нм. Кроме того,

нелинейность отклика заявлена ниже 1%. Другим важным параметром камеры является низкий шум в 6 электронов и высокий динамический диапазон в 2667:1.

Для оценки камеры была собрана установка на основе стандарта европейской ассоциации машинного зрения EMVA 1288 [47-50, 106]. Схема данной установки представлена на рисунке 13. Установка состоит из галогенового источника света Dolan-Jenner Industries DC950H мощностью 150 Вт, монохроматора Newport Cornerstone 130 Model 74000, интегрирующей сферы Labsphere 3P-GPS-060-SF и откалиброванного фотодиода. Данная система работает на основе метода передачи фотонов для оценки параметров цифровых фотодетекторов. Галогеновый источник используется для создания света широкого спектра с высокой интенсивностью, который проходит через монохроматор. Монохроматор пропускает узкую полосу спектра излучения, которая дальше проходит через входной порт в интегрирующую сферу. Конструкция сферы и покрытие внутренней поверхности максимизируют эффект многократного рассеивания света, после чего из сферы выходит пространственно однородное излучение. Откалиброванный фотодиод нужен для точной оценки мощности излучения на единицу площади. Основная идея метода состоит в том, что, зная мощность данного излучения на разном расстоянии от интегрирующей сферы и его однородность, можно провести точную калибровку камеры и определить ее ключевые параметры.

Для этого сама установка была предварительно откалибрована. Калибровка заключалась в определении спектральных характеристик источника света и линейности фотодиода (спектр источника представлен на рис. 13, а результаты оценки линейности фотодиода на рис. 14а).

Для проведения оценки параметров камеры следует рассмотреть математическую модель сенсора, а именно, отдельного светочувствительного элемента. Во время экспозиции  $t_{\text{эксп}}$  на площадь сенсора  $A$  падает определенное количество фотонов  $N_{\text{фот}}$ , которые генерируют в материале сенсора число электронов  $N_{\text{элек}}$ , определяемое

квантовой эффективности  $\eta(\lambda) = N_{\text{элек}}/N_{\text{фот}}$  [105-106]. Квантовая эффективность является фундаментальной характеристикой фотодетектора, и определяется в основном свойствами материала и зачастую неоднородна в зависимости от длины волны падающего излучения. Количество фотонов, падающих на отдельный пиксель можно посчитать следующим образом [105]:

$$N_{\text{фот}} = \frac{AWt_{\text{эксп}}\lambda}{hc} = 5.034 \cdot 10^{24} \cdot At_{\text{эксп}}\lambda W, \quad (3.2)$$

где  $W$  – облученность поверхности сенсора, а  $h$  и  $c$  – постоянная Планка и скорость света в вакууме, соответственно. Таким образом, используя откалиброванный фотодиод, можно получить величину облученности в единицу площади и рассчитать по ней количество фотонов на элементе фотодетектора.

После того как в материале фотодетектора произошла генерация электронов фотонами, начинается второй процесс получения информации матричным детектором, а именно, преобразование сгенерированных электронов в цифровой сигнал. Для этого применяются аналогово-цифровые преобразователи, для которых характерна такая величина как коэффициент усиления  $K$ , представляемый в цифровых единицах сигнала, получаемых на один электрон. Средний цифровой сигнал  $N_{\text{ц.с.}}$  можно вычислить по следующему выражению [105-106]:

$$N_{\text{ц.с.}} = K(N_{\text{элек}} + N_{\text{т.э.}}) = N_{\text{т.с.}} + KN_{\text{элек}}, \quad (3.3)$$

где  $N_{\text{т.с.}}$  – это количество электронов, генерируемых в материале сенсора при отсутствии освещения, которое является основным источником темнового сигнала  $N_{\text{т.с.}}$ . Таким образом, можно составить следующее выражение, показывающее связь между цифровым сигналом и облученностью сенсора [105-106]:

$$N_{\text{ц.с.}} = N_{\text{т.с.}} + K\eta N_{\text{фот}} = N_{\text{т.с.}} + K\eta W t_{\text{эксп}} \frac{\lambda A}{hc}. \quad (3.4)$$

Данное выражение показывает линейную зависимость между уровнем цифрового сигнала и количеством падающих фотонов и может быть использовано для оценки нелинейности в поведении фоточувствительного детектора. Для этого



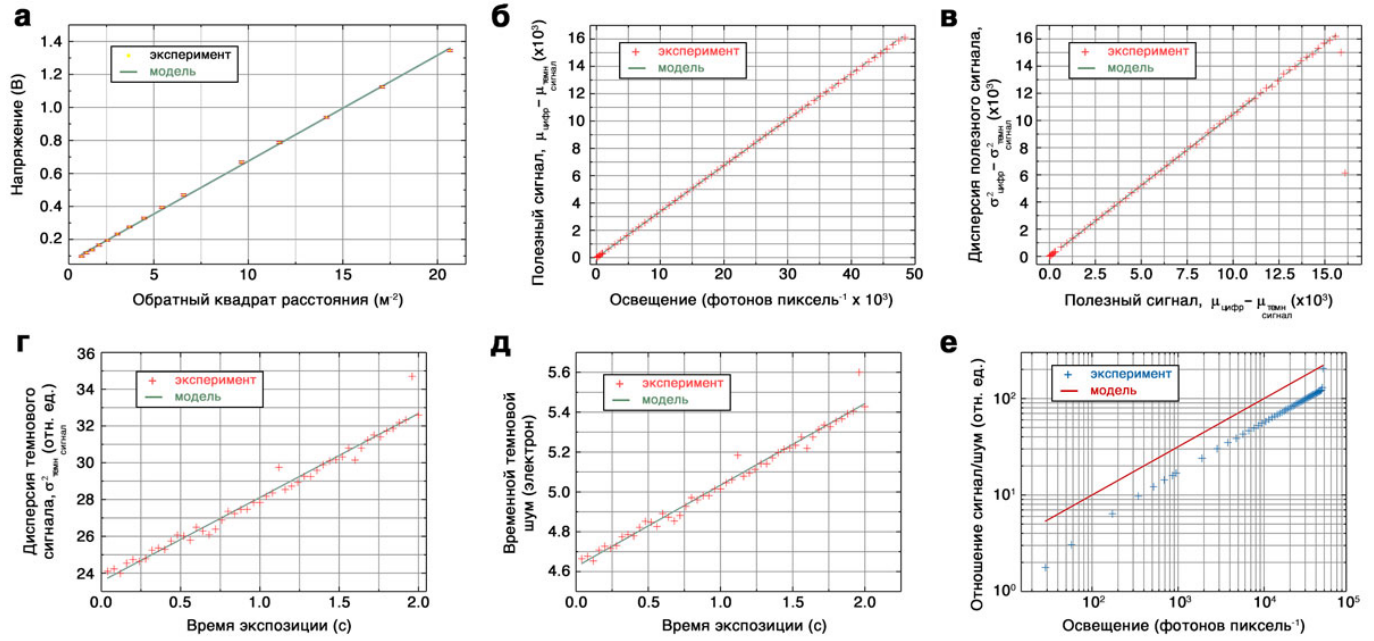


Рисунок 14 – Графики, позволяющие определить ключевые параметры детектора pco.pixelfly, используя метод передачи фотонов. (а) – график зависимости сигнала на откалиброванном фотодиоде в зависимости от обратного квадрата расстояния, демонстрирующий ожидаемую высокую линейность прибора. (б) – график полезного сигнала фотодетектора в зависимости от освещения. (в) – график величины дисперсии полезного сигнала в зависимости от величины полезного сигнала. (г) – график поведения дисперсии темнового сигнала в зависимости от времени экспозиции. (д) – график поведения темнового шума в зависимости от времени экспозиции. (е) – график отношения сигнала-к-шуму в зависимости от количества освещения поверхности фотодетектора.

используется установка, представленная на рис. 13, на которой измеряются значения цифрового сигнала и соответствующие им значения количества падающих на сенсор фотонов. Также на основе полученного графика можно посчитать отклик системы фотодетектора  $R = K\eta$ , который представляет собой наклон кривой. Далее, используя модель для цифрового шума, можно получить значение для коэффициента усиления и таким образом вычислить квантовую эффективность.

При регистрации сгенерированных электронов в полученном сигнале также присутствуют два типа шума: темновой шум и шум оцифровки [105]. Вероятность распределения электронного шума подчиняется пуассоновской статистике, и его дисперсия оценивается следующим выражением:

$$\sigma_{\text{элек}}^2 = N_{\text{элек}}. \quad (3.5)$$

Выражение для дисперсии измеряемого сигнала может быть представлено как:

$$\sigma_{\text{ц.с.}}^2 = K^2(\sigma_{\text{т.с.}}^2 + \sigma_{\text{элек}}^2) + \sigma_q^2, \quad (3.6)$$

где  $\sigma_{\text{т.с.}}^2$  определяет дисперсию шумов с нормальным распределением, относящихся к считывающей электронике сенсора и к контуру усиления, а  $\sigma_q^2$  определяет однородно распределенный шум оцифровки, равный 1/12 цифровых единиц в квадрате [106].

Так как в экспериментальных условиях измеряется средний уровень сигнала, то выражение для дисперсии удобно записать в следующем виде:

$$\sigma_{\text{ц.с.}}^2 = K^2\sigma_{\text{т.с.}}^2 + \sigma_q^2 + K(\mu_{\text{ц.с.}} - \mu_{\text{т.с.}}). \quad (3.7)$$

Данное выражение является центральным в методе переноса фотонов [105-106], так как позволяет измерить параметры камеры за счет измерения цифрового сигнала на разных уровнях освещения.

В результате оценки параметров фотодетектора были получены графики, представленные на рисунке 14б-е. Чувствительность сенсора определяется из рис. 14б, как наклон кривой сигнала и в случае  $\text{rso.pixelfly}$  равняется 0,6. Наклон линейной модели данных в рис. 14в позволяет оценить коэффициент усиления камеры, равный 1,05 единицам. Также из данного рисунка можно определить максимально допустимую интенсивность регистрируемого сигнала как среднюю величину полезного сигнала с максимальной дисперсией. Для используемого детектора данная величина равняется 15250 единиц уровня сигнала. Временной темновой шум сенсора можно получить из данных графика на рисунке 14г. Его величина была оценена в 23,6 единиц уровня сигнала, что соответствует темновому шуму в 4,6 электрон (рис. 14д). Оценка поведения отношения сигнала-к-шуму (рис. 14е) близка к модельной. Кроме того, используя стандарт EYMA1288 [106] и результаты измерений, можно оценить порог чувствительности данного фотодетектора, равный 8,5 фотонам.

Результаты оценки камеры подтверждают высокое качество инструмента. Например, в заявленных в спецификации данных темновой шум был оценен в 6 электрон [113], тогда как точная оценка конкретного сенсора показывает более высокую производительность устройства. Кроме того, данные оценочные измерения

позволяют утверждать, что используемый детектор способен максимизировать разрешение, достижимое в измерениях методом когерентной дифракционной визуализации, до близкого к теоретическому пределу, если учитывать именно его шумовые характеристики.

### 3.1.3. Пространственная фильтрация пучка с источника излучения

Для улучшения пространственной когерентности источника одним из вариантов является использование микроапертуры [114]. При падении волны лазера на апертуру происходит дифракция, дающая картину с формой диска Эйри, для которой напряженность поля может быть выражена через функцию Бесселя первого рода как:

$$E = 2 \frac{J_1(\alpha)}{\alpha}, \quad (3.8)$$

с параметром  $\alpha = 2\pi R\theta/\lambda$ , где  $R$  – радиус апертуры,  $\theta$  – угол дифракции. При этом полученное излучение обладает более высокой пространственной когерентностью в центральном максимуме, чем изначальное излучение от лазера. Недостатком данного подхода является большая потеря интенсивности исходного потока, так как часть пучка не попадает на апертуру.

Альтернативным подходом является использование свойства тонкой линзы производить оптическое Фурье преобразование падающей волны [64]. На рис. 15 представлена схема пространственного фильтра, в котором падающая параллельная волна раскладывается на спектр пространственных частот в точке фокусировки, таким образом, что пространственные неоднородности пучка находятся на более высоких порядках дифракции, тогда как центральное пятно является чистым гауссовым пучком. В описываемом эксперименте использовался ахроматический объектив Melles Griot 20x с NA0.4, смонтированный на трех-координатный манипулятор с микрометром Newport 900, который фокусировал изображение на апертуру с диаметром 15 мкм. Апертура используется для фильтрации всех пространственных частот, находящихся вне центрального пятна. За апертурой была установлена плоско-выпуклая линза с фокусным расстоянием 50 мм, с помощью которой сферическая

волна с апертуры трансформировалась в плоскую параллельную волну, используемую в измерениях.

Благодаря данной конфигурации большая часть потока излучения с лазерного источника используется в эксперименте, а не теряется в процессе коллимации. Для обычных измерений в когерентной дифракционной визуализации мощности лазера в 0,8 мВт хватает даже при использовании апертуры в качестве фильтра. Тем не менее, учитывая потенциальное использование поляризационной оптики и динамических измерений, применение оптики для фильтрации излучения является наиболее оптимальным решением.

### 3.1.4. Система управления экспериментом

Для позиционирования образца в эксперименте, а также для последующей потенциальной автоматизации измерений, была разработана система управления ACCORD, представленная в Приложении 2. Данная система была написана на языке python в силу наличия большого количества интерфейсов для различных

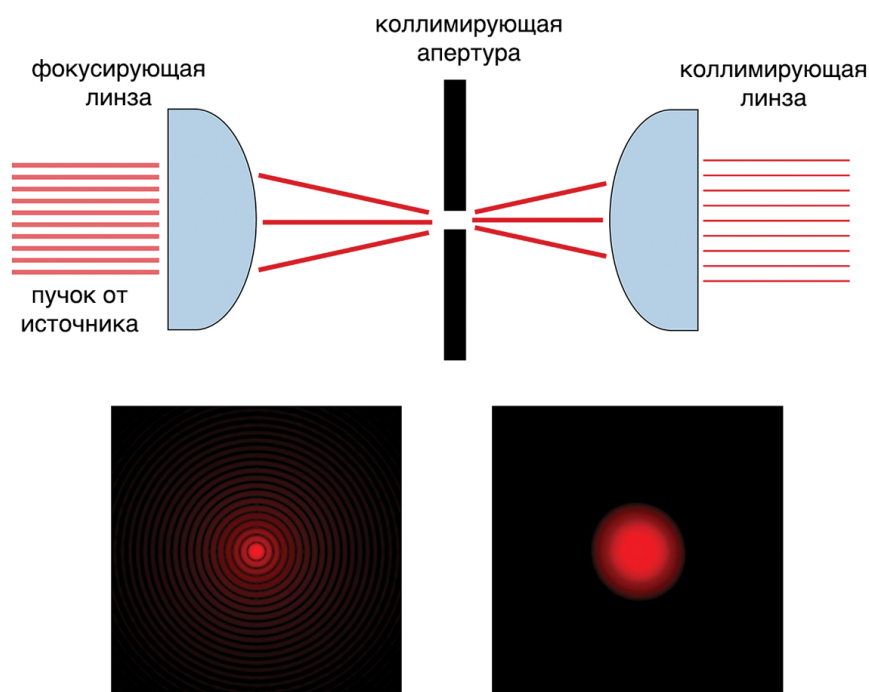


Рисунок 15 – Принципиальная схема устройства пространственного фильтра для устранения высоких пространственных частот в пучке лазерного излучения с источника.

инструментов, которые потенциально можно имплементировать в оптическую систему (рис. 16).

В качестве приводов были использованы два типа моторов. Для позиционирования образца или камеры (в зависимости от геометрии эксперимента) вдоль пучка лазера был использован линейный привод Konmison 300mm с шаговым двигателем Nema23. Диапазон перемещения платформы с полезным грузом составляет 300 мм при повторяемости порядка 50 мкм. Для управления платформой использовался модуль BED Stepper Motor Driver с максимальным током 2 А. Привод управлялся с помощью микроконтроллера Arduino Uno, в котором была прописана система числового программного управления. Команды на микроконтроллер передавались с персонального компьютера с системой ACCORD, в которой был имплементирован управляющий класс для устройства, а также набор наиболее часто используемых команд.

Для позиционирования образца в плоскости перпендикулярной пучку использовались два пьезо привода (Newport Agilis AG-LS25) с высокой

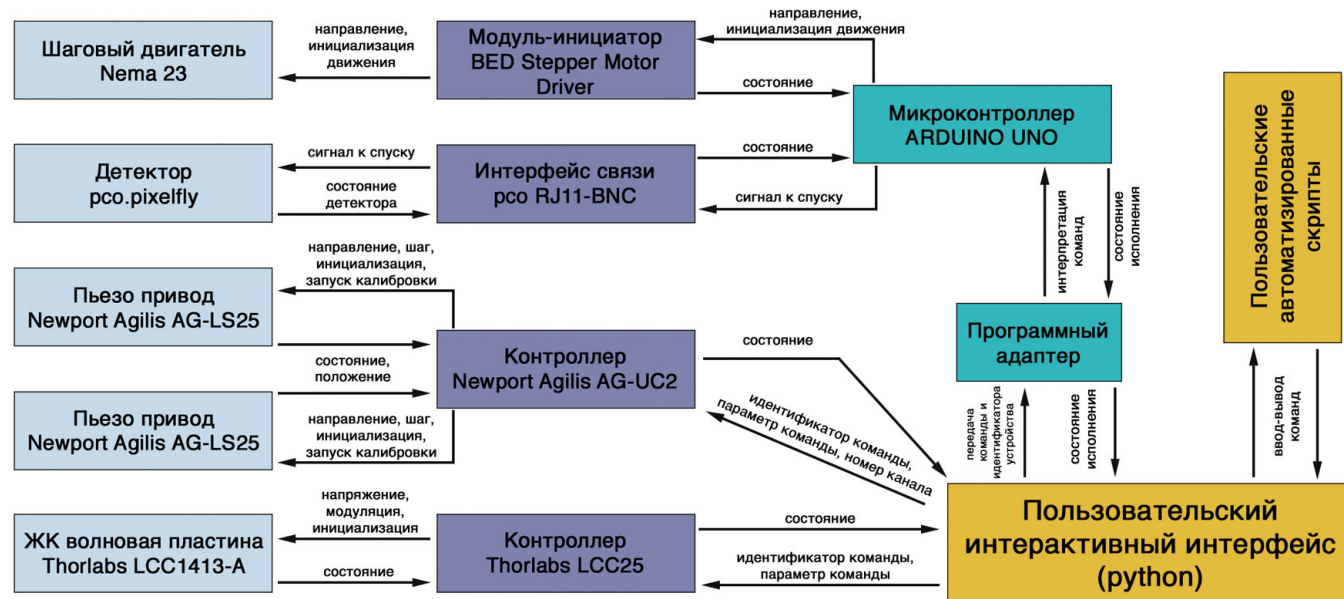


Рисунок 16 – Блок-схема системы управления экспериментом ACCORD. Данная схема состоит из четырех принципиальных групп: конечные инструменты, промежуточные контроллеры и интерфейсы взаимодействия с инструментами, микроконтроллера Arduino и прописанного для него адаптера, а также пользовательского интерактивного интерфейса с библиотекой автоматизированных скриптов.

повторяемостью и разрешением, а также диапазоном движения 12 мм по двум координатам. Данные моторы имеют минимальный шаг в 50 нм при высокой скорости перемещения в 0,5 мм/с. Управление моторами на уровне аппаратного оборудования осуществлялось двух-координатным контроллером Newport Agilis AG-UC2. Для интеграции приводов в систему управления ACCORD был прописан класс, позволяющий передавать команды контроллеру через порт последовательного ввода-вывода.

В системе управления ACCORD был также включен класс для камеры `rs0.pixelfly`. Камера была подключена к контроллеру Arduino Uno, позволяющему отправлять сигнал спуска на камеру для начала экспозиции, а также обратный сигнал об окончании экспозиции в систему управления ACCORD.

Для контроля состояния поляризации использовалась жидкокристаллическая волновая пластинка со сдвигом на полную волну Thorlabs LCC1413-A. Величина сдвига фазы волны, проходящей через данный оптический элемент, появляется за счет разного приложенного напряжения. Напряжение генерируется и направляется контроллером Thorlabs LCC25. Данный контроллер был также интегрирован в систему ACCORD и управлялся через порт последовательного ввода-вывода. Таким образом, было возможно изменять поляризацию излучения в эксперименте без механических изменений. Общая блок-схема системы управления ACCORD представлена на рисунке 16. Использование микроконтроллеров Arduino и языка программирования python позволяет в дальнейшем интегрировать дополнительные элементы управления новыми компонентами установки.

### **3.2. Результаты измерений тестовых образцов без учета поляризации лазерного излучения**

Для отработки метода когерентной дифракционной визуализации была использована геометрия эксперимента с дифракцией параллельной волны лазерного излучения на полупрозрачном образце. Данная схема является относительно простой

в плане юстировки и настройки оптических элементов, но требует программной имплементации множества ограничений в процессе реконструкции.

Схема установки представлена на рисунке 17. Пучок лазерного излучения отражается от системы из двух зеркал, имеющих механизм позиционирования, изменяющим наклон зеркал в двух координатах. Первое зеркало, находящееся сразу после источника излучения, позволяет изменять горизонтальное и вертикальное положения пучка, тогда как второе зеркало позволяет регулировать угол луча. Процесс настройки положения зеркал подразумевает манипуляцию пучка до состояния, когда он распространяется параллельно плоскости стола вдоль заданной оптической оси системы.

От системы зеркал пучок подается в пространственный фильтр, описанный ранее. Выходящий из фильтра пучок имеет распределение интенсивности по форме Гаусса, которое движется, практически не изменяя размер пятна. Созданная плоская волна лазерного излучения падает на образец, перед которым ставится маскирующая апертура. Размер апертуры выбирается в зависимости от размера исследуемой области образца. Данная апертура позволяет создать условие изолируемой области в исследуемом образце. Расстояние между пространственным фильтром и образцом выбиралось таким образом, чтобы непараллельные компоненты волны успевали покинуть пучок. В нашем случае расстояние в 10 см было достаточным, для того

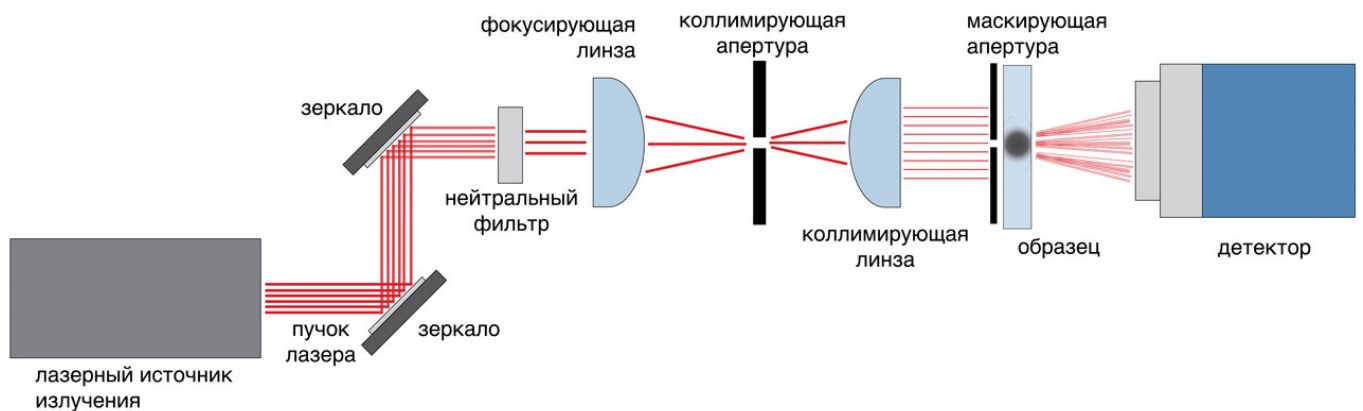


Рисунок 17 – Принципиальная схема установки для проведения измерений по методу когерентной дифракционной визуализации с использованием лазерного излучения.

чтобы получить волновой фронт хорошего качества. Расстояние между маскирующей апертурой и образцом выбиралось минимальным. В случае первых двух тестовых образцов они закреплялись непосредственно на апертуре.

Для определения оптимальных параметров эксперимента были проведены тестовые измерения с образцом человеческого волоса, имеющим диаметр порядка 108 мкм. Первым этапом являлось получение дифракционных картины при разной скорости экспозиции. При этом на каждой скорости экспозиции усреднялось 400 кадров, чтобы минимизировать шум сенсора. Кроме того, из полученных изображений вычитались изображения, снятые с закрытым от света сенсором. Для того чтобы количество сигнала оставалось одинаковым, скорость экспозиции балансировалась с помощью нейтральных фильтров с разной оптической плотностью. Результаты измерений представлены на рисунке 18а, в и г. Из графиков видно, что качество и видимость дифракционных полос не зависят от скорости экспозиции. Тем не менее из самих дифракционных картин видно, что при быстрой экспозиции (меньше чем 15 мс) в считывании информации с пикселей проявляется эффект похожий на блюминг [105-106]. Это достаточно ожидаемое поведение сенсора, так как в научных целях применяются камеры без анти-блюминговых цепей, в силу того, что те негативно влияют на линейность отклика сенсора [105]. В случае данной камеры очевидно, что измерения следует проводить с экспозицией от 15 мс и выше.

После того как оптимальная скорость экспозиции была установлена, проводилась оценка влияния усреднения кадров на качество дифракционных полос. Результаты представлены на рисунке 18б и д. Из данных измерений видно, что большее количество усреднений ведет к улучшению качества данных. При этом интерференционная картина хорошо различима уже при 100 усредненных кадрах, которые можно снять за 2 секунды при 20 мс скорости экспозиции. Кроме того, рис. 18д показывает, что дифракционный узор от сильно рассеивающих компонент образца видно уже при 20 усреднениях.



Последняя серия измерений была сделана при сенсоре, экранированном от освещения. Данная серия измерений представлена на рисунке 19. В ней проводились измерения темнового сигнала сенсора между длительными измерениями

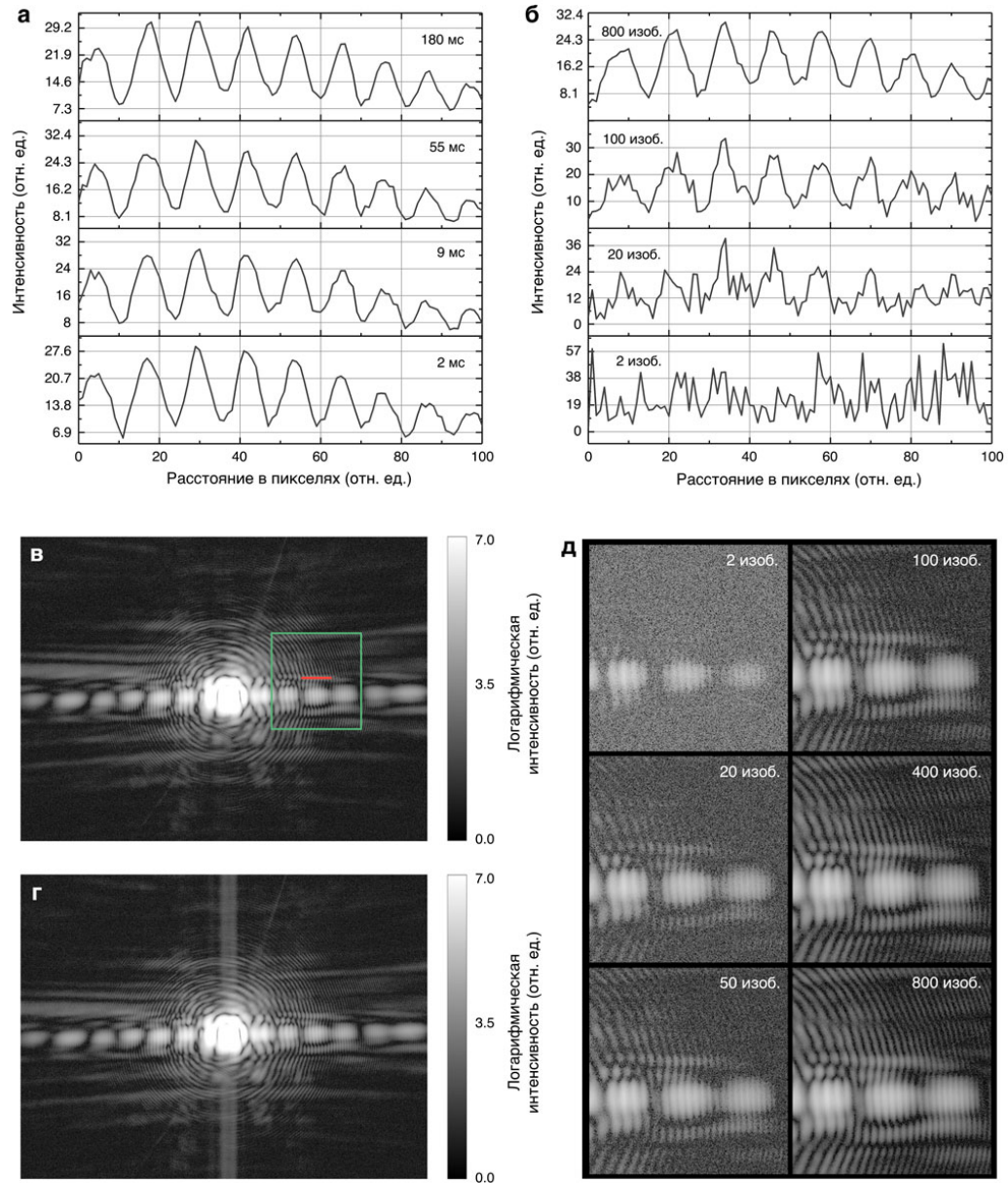


Рисунок 18 – Результаты тестового измерения дифракционной картины. (а) – графики распределения интенсивности вдоль полос дифракции для разной скорости экспозиции. (б) – графики интенсивности для разного количества усреднений. (в) – дифракционные картины с экспозицией в 9 мс и (г) – с экспозицией в 55 мс. (д) – увеличение предметной области для разного количества усредненных изображений дифракционной картины.

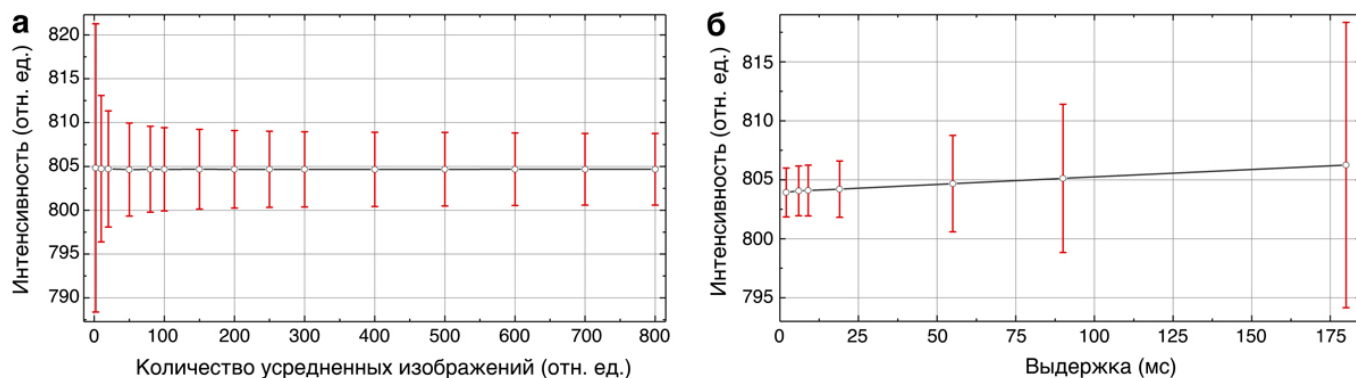


Рисунок 19 – Поведение интенсивности темнового сигнала и среднеквадратичного отклонения темнового сигнала в зависимости от (а) – количества усредненных изображений и (б) – времени экспозиции.

дифракционной картины, чтобы учесть эффекты изменения температурного режима, связанного с активной работой электроники фотодетектора. Результаты измерений показывают, что камера ведет себя достаточно предсказуемо [106], несмотря на то, что не обладает активным охлаждением, и тепло уходит лишь через алюминиевый корпус устройства. Согласно данной оценке, оптимальным количеством усреднений также является 100 кадров, а оптимальная скорость экспозиции лежит в диапазоне от 20 мс до 100 мс.

После проведенной оценки были измерены два образца с использованием оптимальных параметров экспозиции и усреднения данных. Первым образцом был уже обозначенный волос с диаметром около 108 мкм, а вторым образцом было крыло крылатой водомерки (*Gerridae*). Полученные дифракционные картины представлены на рисунке 20. Данные были инвертированы с использованием алгоритма НЮ, который обсуждался ранее.

Результаты восстановления изображений в прямом пространстве представлены на рисунке 21. На рис. 21а видны кератиновые чешуйки, являющиеся основным структурным элементом волос [115]. На восстановленной фазе (рис. 21б) видно, что реконструкция оказалась затруднительной. Это можно объяснить тем, что данный образец является амплитудным объектом, так как непрозрачен для видимого света. Но так как никакие ограничения на фазу не были наложены и яркость лазера достаточно велика, чтобы пройти сквозь объем волоса, наблюдается фазовая картина близкая к

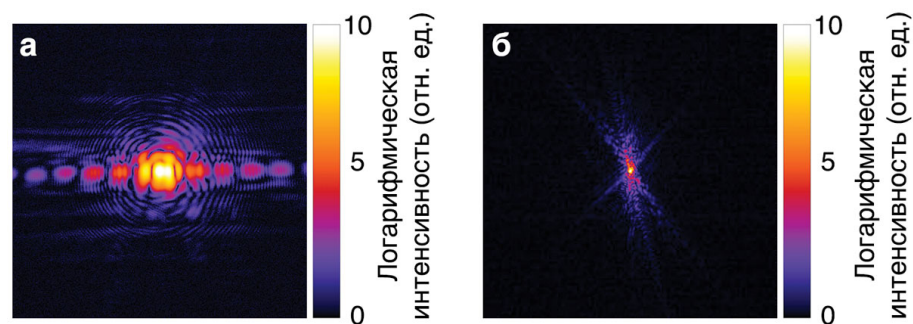


Рисунок 20 – Примеры двух дифракционных картин, полученных в тестовых измерениях. (а) – дифракционная картина, полученная при рассеянии волны на образце человеческого волоса. (б) – дифракционная картина, полученная при рассеянии волны образцом крыла водомерки.

тому, что можно ожидать от сильно рассеивающего объекта с большим коэффициентом поглощения [93, 110]. На данной картине наблюдается градиент фазы цилиндрической формы со стержнем в центре.

Реконструкции второго образца представлены на рисунке 21в и 21г. На них отчетливо видны крыловые жилки, а также области с пластинкой. В силу того, что крыловые жилки состоят преимущественно из хитина, являющегося сильно поглощающим свет материалом, значения фазы на них равны нулю. При этом пластинка оптически прозрачна, но обладает неровностью поверхности, что передается в градиентах восстановленной фазы.

Ошибка восстановления изображений в случае обоих образцов была равной  $10^{-2}$ . И несмотря на то что результаты реконструкций можно назвать удовлетворительными, данный тип реконструкции и геометрия установки недостаточны для достижения более высокого пространственного разрешения. Одной из главных причин является сложность восстановления фазы из дифракции, полученной от плоской волны. Это связано с возможными симметриями в Фурье пространстве и ухудшает качество после усреднения множества полученных изображений [93]. Тем не менее, данный метод позволяет лучше понять, как процесс измерений, так и процесс алгоритмического восстановления изображений, что очень важно при разработке и внедрении более сложных методик, таких как птихография и френелевская когерентная дифракционная визуализация.

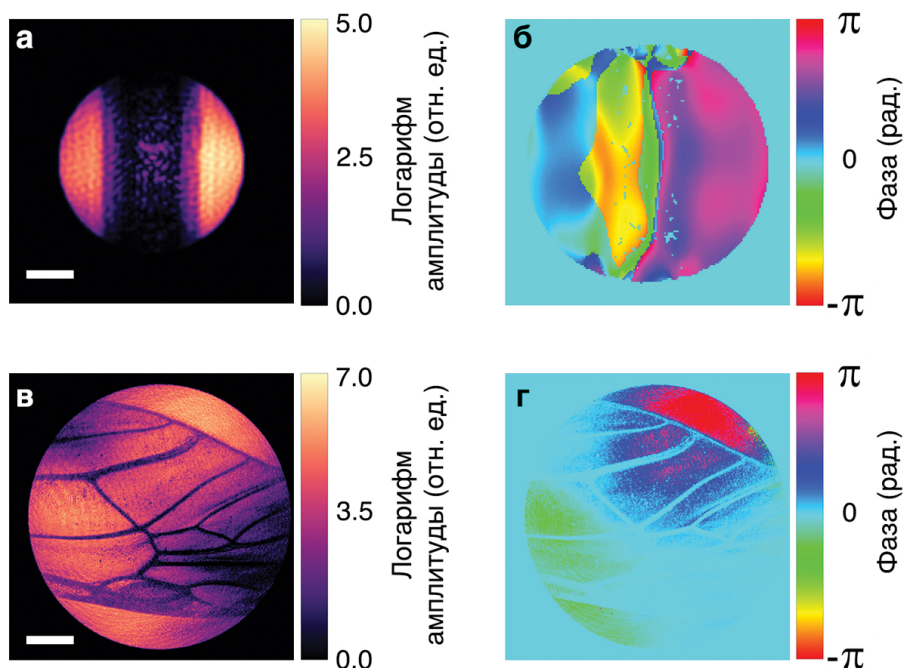


Рисунок 21 – Результаты восстановления изображений для двух тестовых образцов. (а) – восстановленная амплитуда в логарифмической шкале для образца человеческого волоса. (б) – восстановленная фаза для образца человеческого волоса. (в) – восстановленная амплитуда в логарифмической шкале для образца крыла водомерки. (г) – восстановленная фаза для образца крыла водомерки. Масштабная полоска в (а) и (б) соответствует 50 мкм. Масштабная полоска в (в) и (г) соответствует 250 мкм.

Более того, при разработке данной системы были использованы оптические элементы, доступные в достаточно хорошо оборудованной оптической лаборатории. Простота экспериментальной схемы и доступность компонентов позволяют внедрить данный экспериментальный стенд в учебном процессе. Основные плюсы использования данной системы в учебном процессе заключаются в возможности наглядной демонстрации принципов интерференции и дифракции, концепций Фурье оптики, принципов формирования изображений и юстировки пучков, а также в развитии навыков работы с простыми системами детектирования электромагнитного излучения.

### 3.3. Результаты измерений нематического жидкого кристалла с учетом поляризации лазерного излучения

В методах визуализации материалов одним из важнейших параметров является разрешающая способность системы, а именно, достижение максимально возможного

пространственного разрешения, определяющегося дифракционным пределом [116-117], и контраста, определяющегося рассеивающими и поглощающими свойствами материала. Материалы с симметрией ниже кубической отличаются тем, что оптическая анизотропия проявляется в зависимости коэффициента поглощения от поляризации и направления распространения волны. Данный эффект называется двойным лучепреломлением и заключается в разнице коэффициента преломления от направлений в образце. Получение информации о коэффициенте двойного лучепреломления (разницы между коэффициентами преломления для двух направлений) является важным каналом получения информации из образцов со слабым поглощающим и фазовым контрастами.

Метод поляризационной микроскопии, основанный на контрасте двойного лучепреломления, открывает доступ к таким параметрам, как разделение, упорядоченность и сосуществование фазовых состояний в веществе. Данный подход нашел применение в биологии [118-119], материаловедении [120-122] и минералогии [123-124]. При этом эффективность метода зависит напрямую от качества оптической системы, которая должна быть изготовлена с использованием высокоточных оптических компонентов. Альтернативой является применение подхода когерентной дифракционной визуализации, используя поляризационные элементы для формирования необходимых состояний в зондирующем пучке излучения. Данный метод ранее не был внедрен и открывает широкие возможности в визуализации материалов с высоким разрешением. Разработка системы с использованием лазерного излучения позволяет произвести оценку работоспособности метода и преимуществ его использования. Практическая целесообразность реализации данной системы с использованием видимого света обусловлена наличием оптических элементов высокого качества, делающих возможным эксперименты максимально приближенные к предельно достижимому контрасту и разрешению. Кроме того, система когерентной дифракционной визуализации с использованием поляризованного видимого света является самостоятельно интересной для



применения в биологии и материаловедении, где разрешение в пределах одного микрометра достаточно для изучения многих процессов [93, 110, 114]. Отработанная методика и результаты могут быть потенциально перенесены на синхротронные источники, что позволит существенно расширить применение метода за счет проникающей и разрешающей способностей рентгеновского излучения.

Для реализации данной идеи была собрана установка, представленная на рисунке 22. Основное отличие от схемы, использованной для тестовых образцов, заключается в настраиваемом поляризационном элементе, позволяющем получать различные состояния поляризации лазерной волны. В качестве поляризационного элемента использовался компенсатор Берека Newport Model 5540, являющийся альтернативой более массивному по конструкции компенсатору Бабине-Солейля. Выбор компенсатора Берека был обусловлен необходимостью минимизирования оптического пути в системе для потенциального увеличения количества оптических компонентов. Данный элемент использовался совместно с программируемой волновой пластинкой Thorlabs LCC1413-A, что позволило точную настройку поляризации падающей волны с минимальными механическими изменениями в системе.

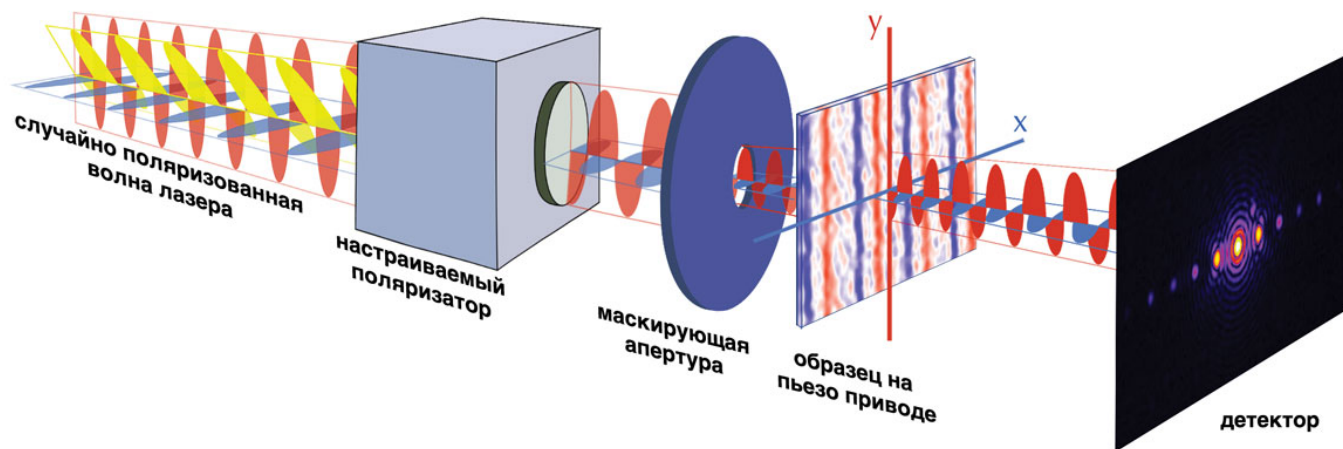


Рисунок 22 – Принципиальная схема для проведения измерений методом когерентной дифракционной визуализации с использованием контраста двойного лучепреломления.

Другим отличием системы является использование птихографической геометрии для получения дифракции с образца. В отличие от фраунгоферовской когерентной дифракционной визуализации, где для восстановления информации по дифракционной картине требуется соблюдение ряда условий [108, 125-126], данная техника основывается на получении множества дифракционных картин с образца. Дифракционные картины собираются за счет сдвига маскирующей апертуры вдоль поверхности образца по двум координатам с перекрытием облучаемых зон в 60% [85, 87, 125]. Очень важным преимуществом данного метода является отсутствие необходимости в заранее известной информации об образце.

В качестве образца использовался слой нематического жидкокристаллического полимера, заключенный между двумя пластинами покровного стекла. Жидкие кристаллы [127-128], полимеры [129-130] и другие частично упорядоченные вещества [118, 131-132] демонстрируют эффект двойного лучепреломления из-за анизотропных связей [133-134]. Жидкие кристаллы являются фазовым состоянием вещества, одновременно обладающим как жидкими, так и твердотельными свойствами. В жидких кристаллах молекулы не обладают четкой пространственной организацией, но имеют степень упорядоченности направления. Баланс между деформацией кручения, анизотропией и дипольной энергией приводит к формированию полосовой доменной структуры [135-137]. Одним из важных исследований жидких кристаллов является исследование стабильных состояний в жидко кристаллических устройствах, которые могут быть использованы для уменьшения энергозатрат, что особенно важно в разработке дисплеев с высоким информационным содержанием [128]. Кроме того, известно, что молекулы в жидком кристалле способны формировать топологические дефекты [138]. Таким образом, нематические жидкие кристаллы являются подходящими образцами для отработки алгоритма восстановления фазовой информации, необходимой для исследования топологических дефектов в наночастицах титаната бария.

Теоретические основы поляриметрии описаны в Приложении 1. Для того чтобы понять механизм взаимодействия поляризованной волны с оптически анизотропным образцом, стоит рассмотреть классическую модель Лоренца для осциллятора [66]. В данной модели электрон рассматривается как гармонически колеблющийся маятник на пружинах разной жесткости  $k_{0x}$ ,  $k_{0y}$  и  $k_{0z}$  по осям  $x$ ,  $y$  и  $z$  соответственно (рис. 23а). Если такой электрон выведен из равновесия смещением по одной из осей, то его характеристическая частота колебаний будет отличаться от характеристической частоты для смещения вдоль другой оси. Движение световой волны в материале происходит за счет воздействия ее электрического поля на электроны атома, которые поглощают и испускают новые волны. Скорость такой волны будет соответственно зависеть от частоты колебаний электронов. Это приводит к тому, что анизотропия коэффициента преломления напрямую связана со структурой и симметрией материала, определяющими силу связи электрона по разным осям кристалла. Так как поляризация волны определяется как раз направлением колебания электромагнитного поля, то эффект двойного лучепреломления объясняется наличием двух

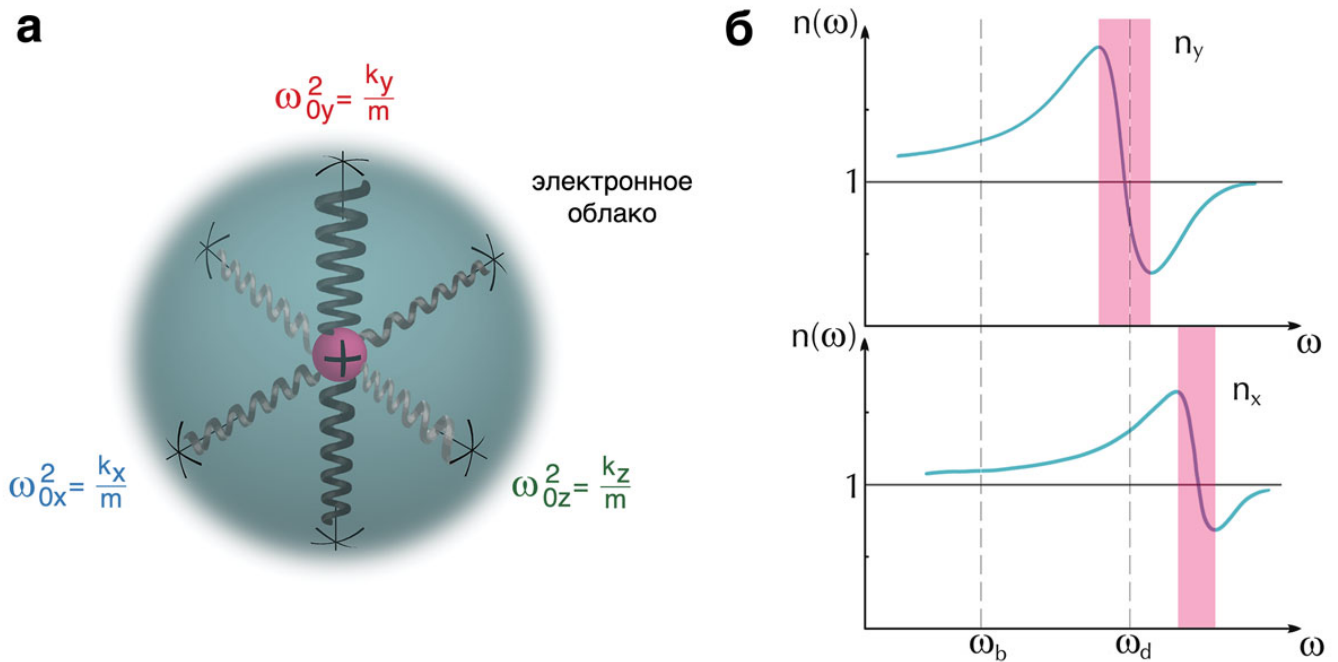


Рисунок 23 – Принцип возникновения контраста двойного лучепреломления. (а) – модель Лоренца для атома в оптически анизотропной среде. (б) – частотная зависимости коэффициента преломления вдоль двух осей в материале с выраженной оптической анизотропией [59].



коэффициентов преломления по двум различным осям. Две оси кристалла и соответствующие им коэффициенты преломления принято называть обыкновенным и необыкновенным. При падении пучка света перпендикулярно на поверхность кристалла кальцита, который известен своим выраженным эффектом двойного лучепреломления, обыкновенный луч будет распространяться в направлении изначального пучка, а необыкновенный луч изменит свое направление. Кроме того, некоторые образцы также имеют разную дисперсию коэффициента преломления в зависимости от частоты падающего света (рис. 23б). Если такой материал освещен поляризованным светом с частотой, которая находится в полосе поглощения, такой образец имеет также свойство дихроизма.

В данном эксперименте мы использовали гелий-неоновый лазер с длиной волны 633 нм. На выходе лазера располагался деполяризатор для создания случайно поляризованного излучения, что позволило исключить эффект медленного изменения поляризации источника между вырожденными состояниями. Свет с данного лазера был пропущен через пространственный фильтр, состоящий из фокусирующей асферической линзы с фокусным расстоянием 18,5 мм, коллимирующей апертуры с диаметром 30 мкм и коллимирующей плоско-выпуклой линзы с фокусным расстоянием в 50 мм. За источником был установлен генератор поляризационных состояний, который позволяет модулировать сигнал с образца за счет изменения поляризации падающей волны, проходящей через анизотропный образец. Маскирующая апертура диаметром 80 мкм была установлена для формирования зондирующего пучка на образце. Образец был установлен непосредственно за апертурой на двух-координатном пьезо приводе. Дифракционная картина с образца записывалась с помощью детектора `rsr.pixelfly`, установленного на расстоянии 10 мм за образцом. Во время эксперимента образец смещался с шагом с перекрытием в 60%, которое является оптимальным для проведения птихографических измерений [59, 85, 87, 125]. По окончании каждого полного скана поляризация падающей волны менялась и сканирование повторялось. В итоге эксперимента были собраны данные

по дифракции для 36 различных состояний поляризации. Данное количество было избыточным и сделано с целью не пропустить возможные состояния с выраженным контрастом двойного лучепреломления. На рисунке 24 представлены дифракционные картины с 4 состояниями поляризации, которые были использованы во время реконструкции и последующего анализа. Так как данные измерения не были нацелены на исследование динамики, на каждом шаге сканирующей апертуры собирались 400 изображений дифракции при скорости экспозиции в 65 микросекунд. Данные изображения усреднялись для увеличения отношения сигнала к шуму. Кроме того, в конце каждого сканирования собирались 400 изображений без освещения сенсора для коррекции темнового шума.

Для реконструкции полученных дифракционных картин использовался алгоритм птихографической реконструкции, описанный в работах [85, 87, 93, 125]. Запуск алгоритма заключался в 50 итерациях восстановления комплексной функции освещения, падающего на образец, с последующими 200 итераций с использованием алгоритма Difference Map [97], описанного ранее, для более точной реконструкции функции освещения и образца.

Поведение ошибки реконструкции образца в 200 итерациях алгоритма представлено на рисунке 25б. Для оценки полученного разрешения была использована ранее описанная передаточная функция фазовой реконструкции [103-104]. Поведение данной функции представлено на рисунке 25а. В данном эксперименте было достигнуто разрешение порядка 285 нм.

На рис. 26д представлен результат реконструкции фазы из дифракционной картины, полученной с горизонтально поляризованным лучом лазера. Данное изображение было получено при минимизации среднеквадратичной ошибки реконструкции до 0,065 в 200 итерации. Используя реконструкции фазовой информации для разных состояний поляризации, было также возможно вычислить значения коэффициента двойного лучепреломления, определяющегося как разность в коэффициенте преломления для обычной и необычной оптических осей в образце.

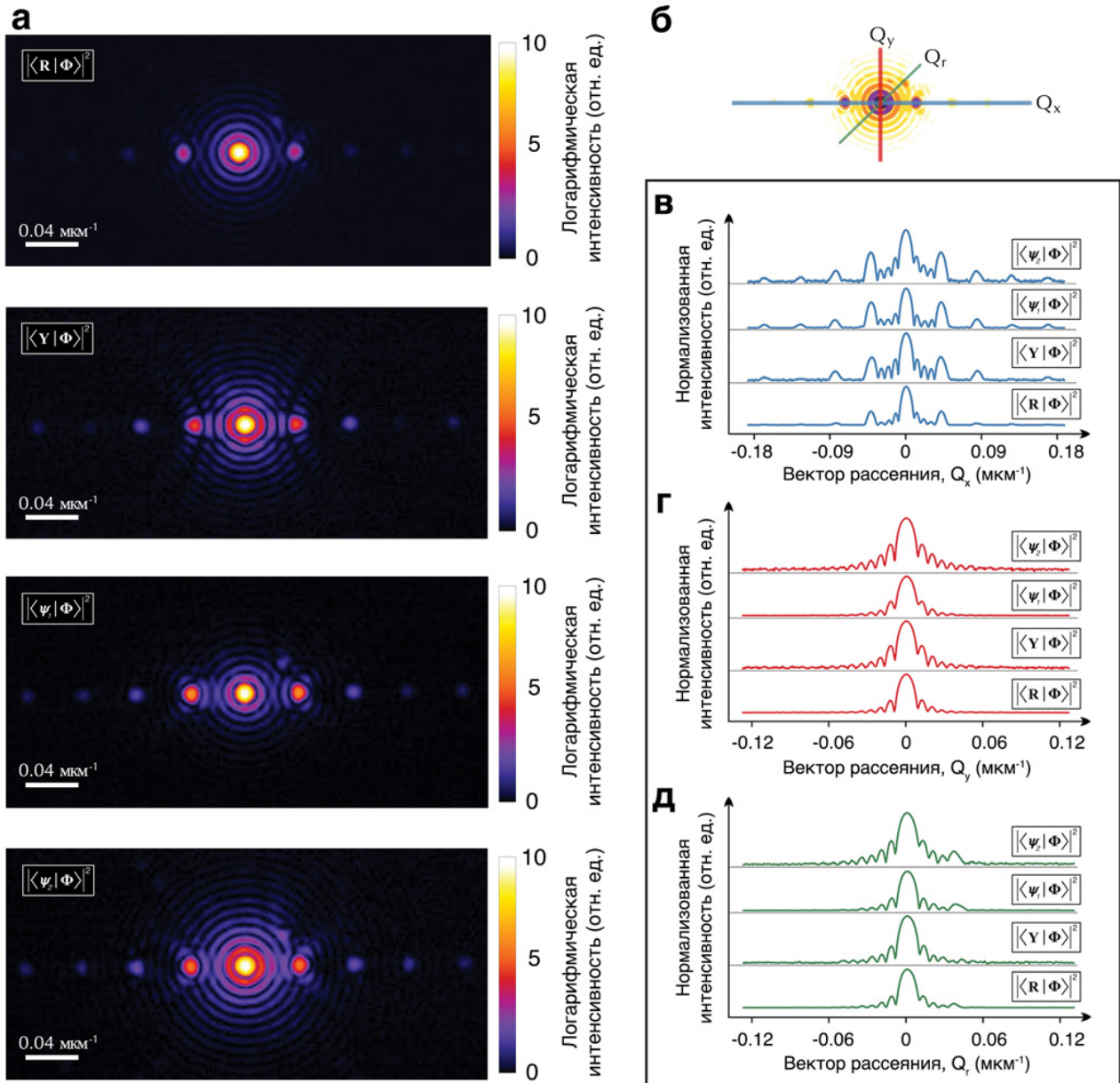


Рисунок 24 – Результаты измерений дифракционных картин. (а) – дифракционные картины для волн с разной поляризацией, прошедших через образец жидкого кристалла. (б) – схематическая разметка линий, вдоль которых строились графики поведения векторов рассеяния. (в) – графики поведения векторов рассеяния вдоль оси  $x$  для разных состояний поляризации. (г) – графики поведения векторов рассеяния вдоль оси  $y$  для разных состояний поляризации. (д) – графики поведения векторов рассеяния вдоль диагонального направления  $r$  для разных состояний поляризации.

В борновском и паракиальном приближениях, дифракция в дальнем поле описывается следующим выражением [36]:

$$I_j(\mathbf{q}) = \left| \int B(\mathbf{r}) O(\mathbf{r} + \mathbf{r}_j) e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} \right|^2, \quad (3.9)$$

где  $O(\mathbf{r}) = s(\mathbf{r})e^{-i\Delta\varphi(\mathbf{r})}$  представляет собой комплексную функцию образца, состоящую из функции формы  $s(\mathbf{r})$  и относительного фазового сдвига  $\Delta\varphi(\mathbf{r})$ , а  $\mathbf{r}$  и  $\mathbf{q}$  являются координатами в прямом и обратном пространстве соответственно. Кроме того, в выражение входит функция освещения  $B(\mathbf{r})$ , которая также находится в процессе птихографической реконструкции. Коэффициент двойного лучепреломления можно найти из выражения для относительного фазового сдвига между двумя поляризованными состояниями волны после прохождения через образец как [66]:

$$\Delta\varphi(\mathbf{r}) = 2\pi d \frac{\Delta n(\mathbf{r})}{\lambda}, \quad (3.10)$$

где  $d$  – толщина слоя жидко кристаллического образца, которая в нашем случае была равной 40 мкм. На рис. 26 а-г представлены результаты реконструкций коэффициента двойного лучепреломления для разных состояний поляризации. Поведение данного коэффициента в зависимости от расстояния представлено на рисунке 27. Из представленных графиков видно, что коэффициент двойного лучепреломления выраженно анизотропный.

Одноосевая симметрия вокруг оптической оси жидкого кристалла определяется характерной ориентацией дипольных молекул. Данная ориентация определяется единичным вектором, называемым директором. Такая ориентация молекул

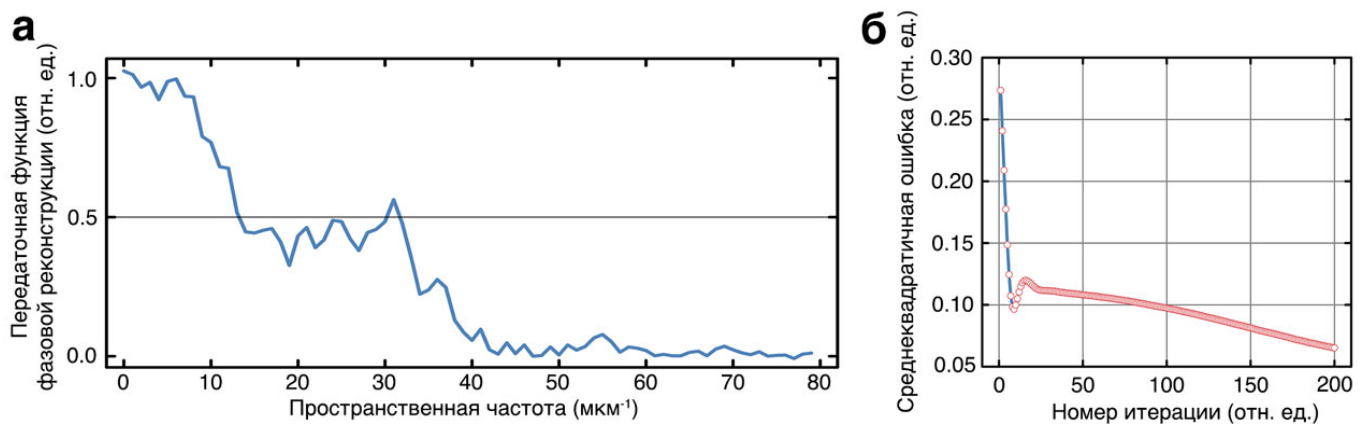


Рисунок 25 – Качественные параметры реконструкции. (а) – передаточная функция фазовой реконструкции с линией, указывающей на положение частоты среза. (б) – поведение среднеквадратичной ошибки восстановления информации в зависимости от числа итераций.

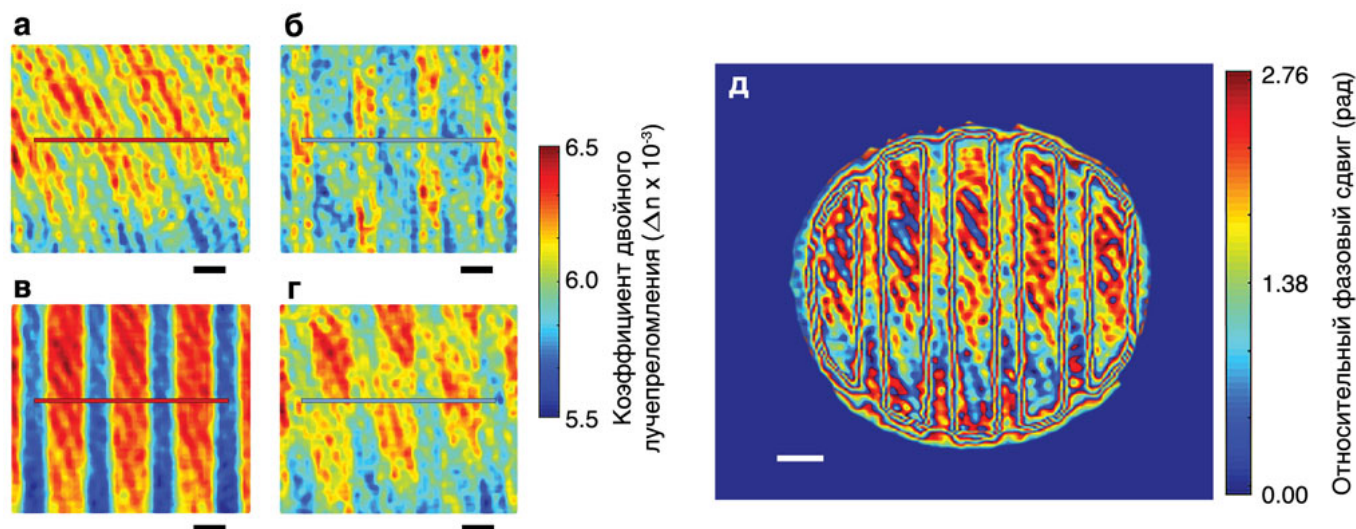


Рисунок 26 – Результаты восстановления фазовой информации. (а) – распределение коэффициента двойного лучепреломления в образце, облученном лазерным светом с правой круговой поляризацией. (б) – распределение коэффициента двойного лучепреломления в образце, облученном лазерным светом с эллиптической поляризацией с эксцентриситетом близким к круговому случаю. (в) – распределение коэффициента двойного лучепреломления в образце, облученном лазерным светом с горизонтальной поляризацией. (г) – распределение коэффициента двойного лучепреломления в образце, облученном лазерным светом с 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 соответствуют 100 мкм.

является источником наблюдаемой на рис. 26а-г оптической анизотропии, но также проявляется в анизотропии и других физических свойств материалов, таких как диэлектрическая проницаемость, магнитная восприимчивость, вязкостные свойства, проводимость и многие другие. Данные свойства заметно отличаются в зависимости от того рассматриваются ли они параллельно или перпендикулярно директору.

Для определения параметра порядка в образце нематического жидкого кристалла можно воспользоваться связью диэлектрической проницаемости среды  $\varepsilon$  с коэффициентом преломления  $n = \sqrt{\mu\varepsilon}$ . Параметр  $\mu$  является магнитной проницаемостью данного вещества и в случае оптических частот может быть взят за постоянную величину. Таким образом, рассматривать можно комплексный вид диэлектрической проницаемости  $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$ , связанный соответственно с комплексным коэффициентом преломления, состоящим из мнимой части,

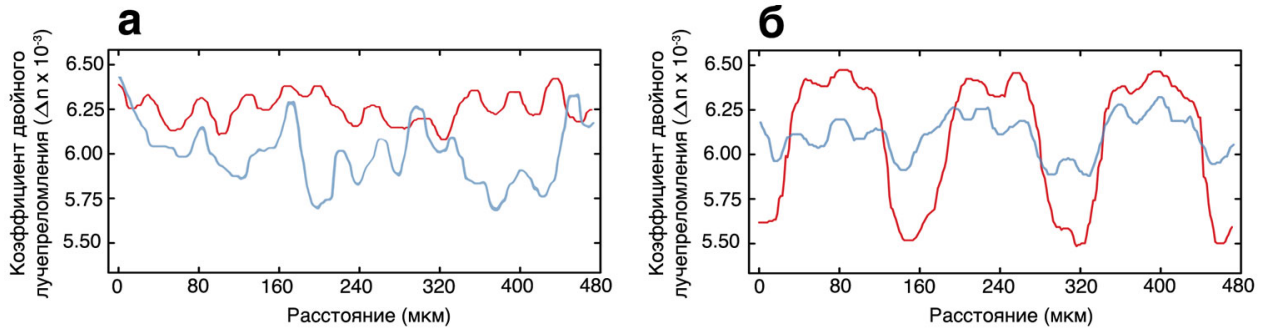


Рисунок 27 – Графики поведения коэффициента двойного лучепреломления в зависимости от расстояния. (а) – графики вдоль маркировочных линий на Рисунке 26 а и б. (б) – графики вдоль маркировочных линий на Рисунке 26 в и г.

отвечающей за поглощение волны, а также вещественной части, отвечающей за преломление и фазу, как:

$$n_{\text{вещ}} = \sqrt{\frac{\varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2}}{2}}, \quad (3.11)$$

$$n_{\text{мним}} = \frac{\varepsilon_2}{2n_{\text{вещ}}}. \quad (3.12)$$

В случае описываемого эксперимента была известна толщина образца и были восстановлены фазовые сдвиги при разных поляризациях, что дает доступ к распределению коэффициента преломления. Также было установлено, что образец практически прозрачен для оптических частот (рис. 28), что позволяет сделать вывод о том, что мнимая часть диэлектрической проницаемости среды стремится к нулю.

Таким образом мы можем восстановить поведение диэлектрической проницаемости и разложить ее по двум ортогональным компонентам, соответствующим поляризации волн с горизонтальным и вертикальным направлениями. На рис. 29 представлена нормализованная диэлектрическая проницаемость среды. Характерной особенностью молекул в жидком кристалле, в отличие от молекул жидкой фазы, является их со-ориентация вдоль общей оси – директора.

На рисунке 29б видно, что диэлектрическая проницаемость среды  $\varepsilon_{xx}$  неоднородна вдоль направлений ориентации молекулярных цепочек в данном образце. Для оценки



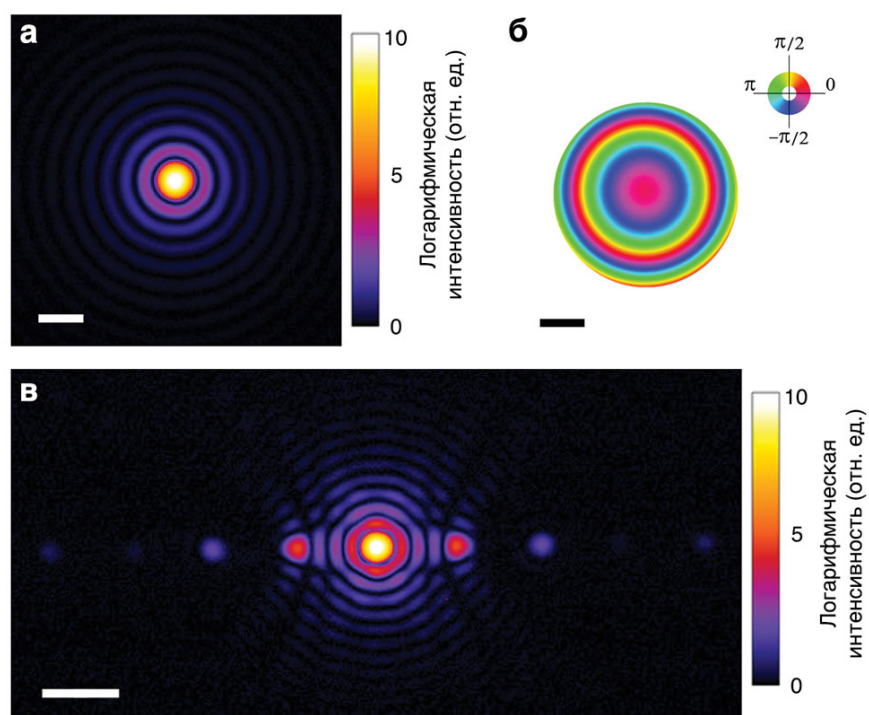


Рисунок 28 – Результаты измерения дифракционной картины образца. (а) – дифракционная картина с образца, освещенного случайно поляризованным светом. Масштабная линия равна  $0.016 \text{ мкм}^{-1}$ . (б) – результат реконструкции пробы излучения. Масштабная линия равна  $25 \text{ мкм}$ . (в) – дифракционная картина с образца освещенного линейно поляризованным лучом лазера. Масштабная линия равна  $0.08 \text{ мкм}^{-1}$ .

упорядоченности жидкого кристалла принято использовать параметр порядка  $P = 1/2 \langle 3\cos^2\theta - 1 \rangle$ , где  $\theta$  – угол между директором и длинной осью молекул жидкого кристалла. В изотропном образце для большого количества молекул параметр порядка равен нулю, в то время как для идеального кристалла он будет равен единице. Для образца в данном эксперименте средний угол был равен  $26,62^\circ$ , что дает параметр порядка равный  $0,678$ , лежащий в диапазоне типичных значений для жидкокристаллических полимеров [136].

В результате проделанных работ была разработана установка когерентной дифракционной визуализации с использованием лазера в качестве источника излучения. Данная система позволила провести тестовые измерения трех образцов, а также тестовые реконструкции полученных дифракционных картин. Была показана работоспособность реконструкции, основанной на алгоритме Difference Map,

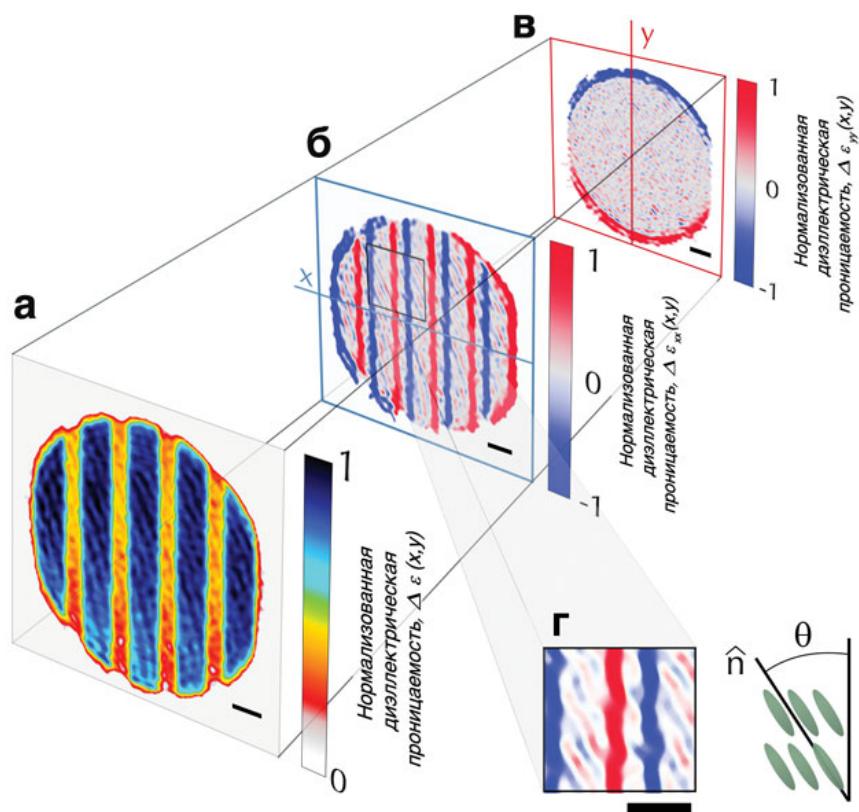


Рисунок 29 – Результаты оценки распределения анизотропии диэлектрической проницаемости образца. (а) – нормализованная диэлектрическая проницаемость образца. (б) – распределение  $xx$  компоненты тензора диэлектрической проницаемости образца. (в) – распределение  $yy$  компоненты тензора диэлектрической проницаемости образца. (д) – увеличение предметной области со схемой, представляющей вектор директора в жидко кристаллическом образце. Масштабные линии в изображениях равны 100 мкм.

необходимая для дальнейшего применения метода на образцах сегнетоэлектрических наночастиц с использованием рентгеновского излучения в геометрии Брэгга.

Полученные результаты подтверждают высокую чувствительность метода к изменениям в электронной плотности, которые в данном случае проявляли себя в анизотропии коэффициента преломления образца жидкого кристалла. Разработанная система может быть использована в дальнейшем для изучения топологических дефектов в мультиферроиках, а также в образцах жидких кристаллов.

### 3.4. Выводы по главе 3

1. Шум детектора влияет на сходимость алгоритмов реконструкции, что видно из реконструкции смоделированных данных с разными уровнями шума. Показано,



что заводские спецификации фотодетекторов отличаются от фактических и могут быть оценены с помощью метода передачи фотонов. Темновой шум сенсора был оценен в 4,6 электронов, что отличается от заявленных в спецификации 6 электрон. Также определен порог чувствительности сенсора, равный 8,5 фотонам. Оценка фотодетектора показывает отличную производительность устройства. В силу особенностей метода когерентной дифракционной визуализации эти параметры являются определяющими для разрешающей способности метода, а также сходимости алгоритмов реконструкции к единственному решению;

2. Собранная лазерная система применима к измерениям биологических образцов и нематических жидких кристаллов методом когерентной дифракционной визуализации, о чем можно судить по реконструированным изображениям тестовых образцов, которые демонстрируют ожидаемую фазовую картину. Относительная простота основных компонентов данной системы и модульный характер сборки делают ее потенциально интересной для использования в учебном процессе при изучении различных оптических эффектов и принципов формирования изображений;
3. Отработанный алгоритм восстановления фазовой информации с использованием лазерной установки с контролем поляризации и птихографической геометрии получения дифракционных картин позволяет восстановить анизотропию коэффициента преломления в нематическом жидком кристалле с разрешением в 285 нм. Параметр порядка в образце нематического жидкого кристалла был рассчитан равным 0,678. Данная величина лежит в пределах известных значений для нематических жидких кристаллах и позволяет сделать вывод о работоспособности алгоритма реконструкции, отрабатываемого для экспериментов на источнике синхротронного излучения. Также можно сделать вывод что разработанная система может быть использована при изучении пленок, эмульсий, клеточных культур, а также тонких срезов биологических тканей;

#### **ГЛАВА 4. ВИЗУАЛИЗАЦИЯ ВИХРЕВОЙ ТОПОЛОГИИ В НАНОЧАСТИЦЕ ТИТАНАТА БАРИЯ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

Основным преимуществом рентгеновского излучения перед электромагнитным излучением других частот является его глубокая проникающая способность, открывающая доступ к информации в объеме образца, а также его высокая разрешающая способность, позволяющая визуализацию атомных и ионных полей смещений [40, 62, 93, 110]. Методы анализа электронными пучками также позволяют добиться высокого разрешения, но, в отличие от рентгена, производят разрушающее действие на поверхности образца и не способны заглянуть в его объем в силу низкой проникающей способности [139]. Наличие синхротронных источников третьего и четвертого поколений, генерирующих рентгеновское излучение с высокой спектральной яркостью и пространственной когерентностью, позволяет использовать метод когерентной дифракционной визуализации для изучения образцов с нанометровым разрешением. Особенно важно отметить, что если для оптических частот изготовление оптики близкой к идеальной является возможным с современным уровнем нанотехнологий, то изготовление подобных оптических систем для рентгена все еще является крайне сложной задачей, что делает применение алгоритмов восстановления фазы хорошей альтернативой классической рентгеновской микроскопии в прямом пространстве.

Для решения основной задачи данной работы использовалась рентгеновская когерентная дифракционная визуализация в геометрии Брэгга. Данная техника визуализации позволяет получать информацию о трехмерном распределении комплексной электронной плотности в нанокристаллических образцах [40] за счет реконструкции информации о поведении дифракции вблизи пиков Брэгга. В идеальном кристалле такая трехмерная дифракционная картина обладает полной симметрией, что при инверсии дает вещественную функцию [40]. Нарушение местной симметрии кристалла приводит к искажению симметрии и в обратном пространстве.

Таким образом, при реконструкции можно получить комплексную функцию с амплитудой, представляющей физическую электронную плотность, и фазой, представляющей проекцию местных неоднородностей в кристаллической решетке на кристаллографическую плоскость данного измерения [34, 40].

В данной работе для инвертирования дифракционной картины в прямое пространство использовались отработанные в предыдущей главе алгоритмы фазовой реконструкции. Предварительное апробирование данных алгоритмов позволило проверить их работоспособность для решения фазовой проблемы, изучить их поведение при стагнации возле локальных экстремумов и добавить условия исключения решений при выявлении подобных стагнаций, которые в противном случае увеличивали бы среднюю ошибку восстановления фазы и приводили к некорректным реконструкциям [102-103].

#### **4.1. Подготовка и оценка образцов**

Подготовка образцов  $\text{BaTiO}_3$  (титаната бария, ВТО) проходила в несколько этапов. Сначала были приготовлены наночастицы методом золь-гель-гидротермальной реакции хлорида бария и хлорида титана в кислородной атмосфере. Для этого готовили желтоватый раствор из 1,1 мл хлорида титана в 2,3 мл соляной кислоты. Далее в полученный раствор добавлялись 2 г  $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  и смешивались с 15 мл деионизованной воды. Добавление 13 мл  $\text{NaOH}$  сопровождалось постоянным размешиванием раствора и привело к образованию однородной коллоидной суспензии титаната бария. Полученная суспензия была перемещена в автоклав объемом 500 мл и нагревалась в диапазоне температур от  $70^\circ\text{C}$  до  $220^\circ\text{C}$  в течении 3 часов. Выращивание нанокристаллов происходило в запечатанном автоклаве в воздушной атмосфере, которая позднее была откачена и заменена на кислородную. Давление в процессе поддерживалось равным 59,2 атмосферам. В завершении процедуры автоклав охлаждался без постороннего воздействия до комнатной температуры, в результате чего формировался порошок титаната бария, который

впоследствии центрифугировался и промывался дистиллированной водой и этиловым спиртом для вымывания оставшихся ионов. Получившееся вещество просушивалось в вакууме при температуре в  $60^{\circ}\text{C}$  в течение 6 часов. Далее были оценены структурные свойства изготовленного порошка. Для этого образец изучался методом лабораторного рентгеноструктурного анализа на аппарате PANalytical Empyrean X-Ray Diffractometer. Полученный спектр порошка титаната бария представлен на рисунке 30а. Спектр дополнительно обрабатывался программным пакетом PowderX [140]. Приготовленный порошок имеет ожидаемую кристаллическую структуру tP5 (тетрагональная) с параметром решетки  $4,03 \text{ \AA}$ .

Для изготовления сегнетоэлектрического конденсатора (функциональной кюветы для проведения эксперимента на станции синхротронного излучения) полученные наночастицы титаната бария были перемешаны с проводящей полимерной матрицей. Объемная доля наночастиц составляла 15%. Полимерная матрица была изготовлена смешиванием жидкого эпоксидного материала на основе бисфенола А с проводящими

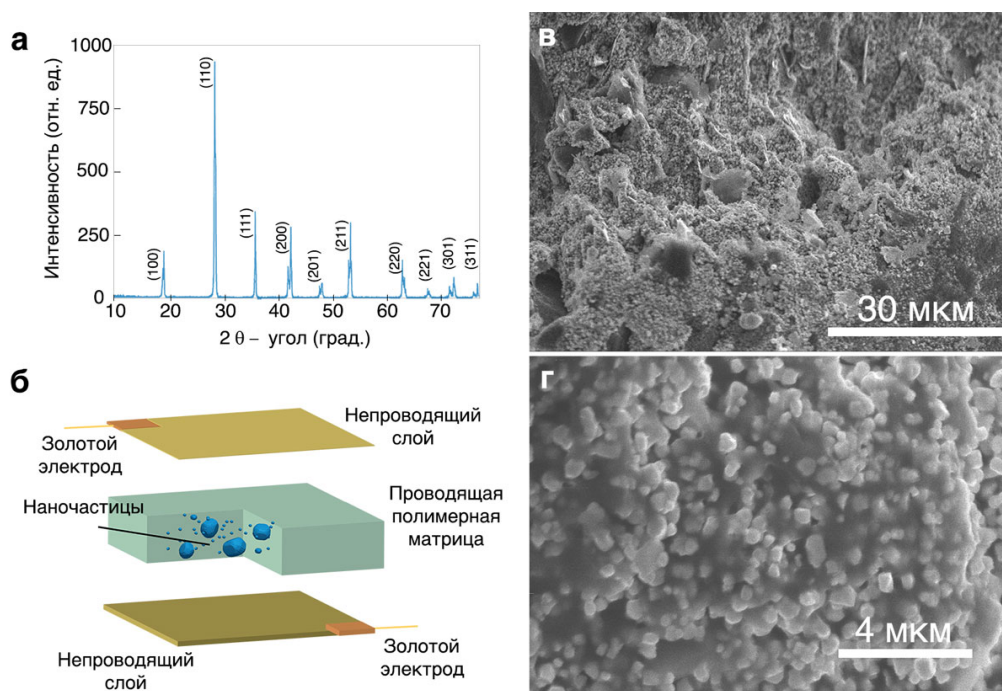


Рисунок 30 – Оценка образца титаната бария. (а) – рентгеноструктурный спектр образца. (б) – принципиальная схема приготовленного конденсаторного устройства. (в) и (г) сканирующая электронная микроскопия образца.

углеродными наночастицами объемной долей 40%. Приготовленный композитный материал затем был перенесен в форму размерами 2x2x1 мм<sup>3</sup>.

Для отверждения материала использовался поставляемый с полимером химический агент. Процесс происходил в печи при температуре 90°C в течение одного часа, с последующим понижением температуры до 60°C и запеканием в течение дополнительных 4 часов. Золотые электроды были нанесены методом магнетронного напыления на два противоположных края образца. Поверх электродов была нанесена тонкая проводящая каптоновая пленка с изолирующей стороной, направленной от поверхности конденсатора. Схематическое представление конденсатора с наночастицами титаната бария представлено на рисунке 30б.

В разработке концепции экспериментального конденсатора с включенными наночастицами использовалось свойство дисперсных частиц формировать проводящие цепи в объеме полимерной матрицы [141-142]. Данное свойство было использовано для подводки тока напрямую к наночастицам титаната бария и формирования наноконденсаторных элементов в объеме полимерного композита. На рисунке 30в и 30е представлены изображения, полученные методом сканирующей электронной микроскопии [60] на аппарате Hitachi S-3400N-II, со скола изготовленной полимерной матрицы с наночастицами. Из изображений видно распределение наночастиц в полимерной матрице. Ориентация частиц в матрице достаточно случайна, и имеются области полимера, обеспечивающие разделение наночастиц друг от друга. Это позволяет ожидать, что во время эксперимента можно будет найти области в образце, где соседние частицы будут рассеивать пучок падающего рентгеновского излучения в неодинаковых направлениях, что во время эксперимента с синхротронным излучением необходимо для регистрации одиночного пика от плоскости Брэгга изолированной наночастицы [34, 35, 89].

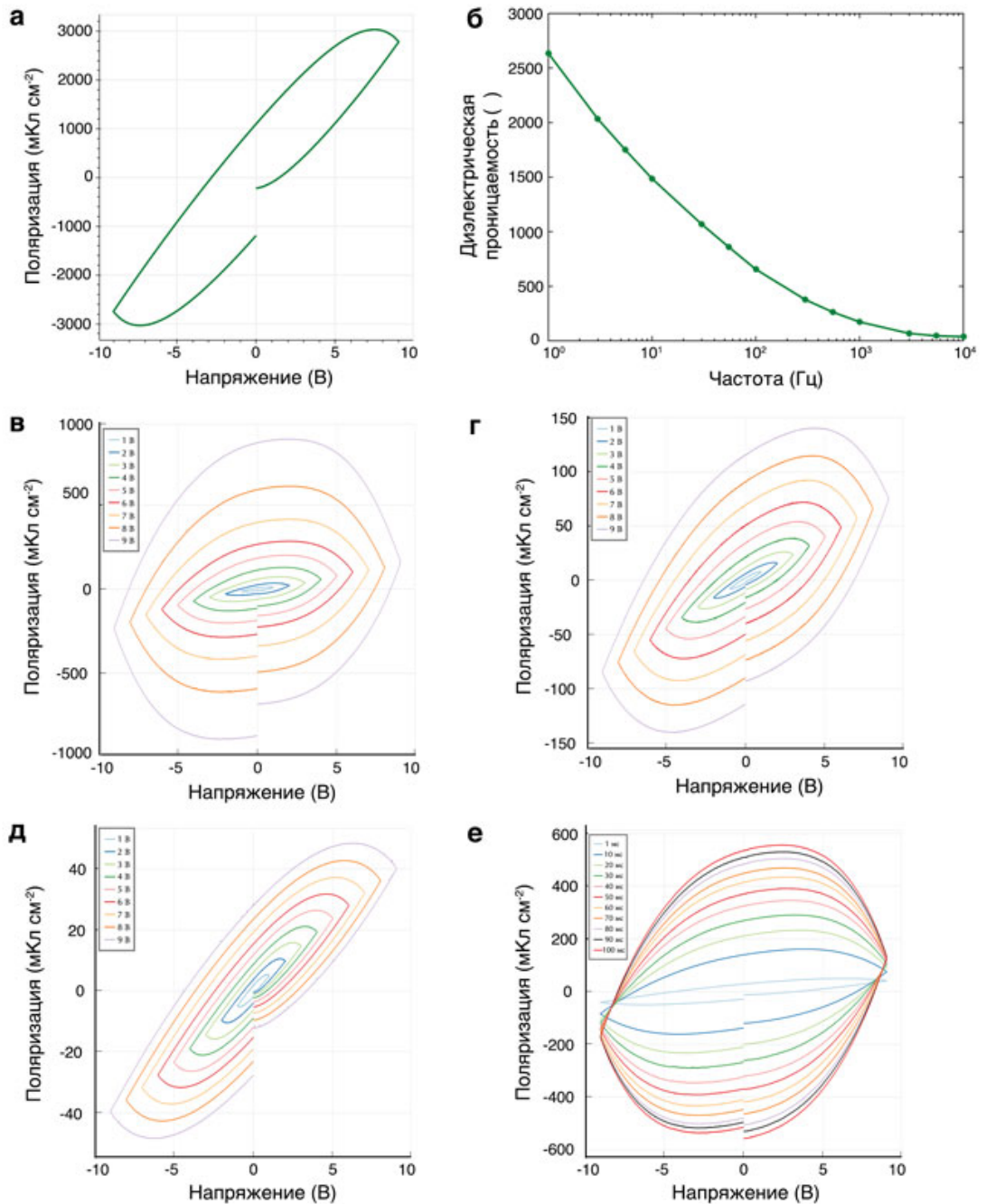


Рисунок 31 – Результаты оценки сегнетоэлектрических свойств изготовленного конденсатора. (а) – график гистерезиса конденсаторного элемента. (б) – поведение диэлектрической проницаемости образца в зависимости от частоты приложенного электрического поля. (в) – гистерезис поляризации образца в зависимости от разного уровня приложенного напряжения с периодом в 100 мс. (г) - гистерезис поляризации образца в зависимости от разного уровня приложенного напряжения с периодом в 10 мс. (д) – гистерезис поляризации образца в зависимости от разного уровня приложенного напряжения с периодом в 1 мс. (е) – поведение гистерезиса поляризации при разных периодах приложенного поля.

Последним этапом в подготовке образца для эксперимента на станции синхротронного излучения была оценка его сегнетоэлектрических свойств. Для

проведения данной оценки использовалась тестовая система Radiant Technologies Precision Premier II Ferroelectric Tester. Данная система имеет диапазон прикладываемого напряжения от минус 10 В до 10 В при разрешении аналого-цифрового преобразователя в 18 бит. Минимальное разрешение заряда – 0,80 фКл и определение тока утечки до 1 пА. Максимальная частота при измерении кривой гистерезиса равняется 250 кГц. Результаты оценки образца представлены на рисунке 31. Из данных результатов видно, что образец имеет выраженный гистерезис поляризации, характерный для сегнетоэлектриков. При этом характер кривых предполагает наличие токов утечки, что связано с наличием проводящих цепей из углеродных наночастиц, которые замкнуты между собой напрямую, а не через наночастицы титаната бария. Данные измерения показывают общее поведение ансамбля частиц в изготовленном образце. В эксперименте с использованием синхротронного излучения изучались именно те области образца, в которых были сформированы активные наноконденсаторные элементы. Процесс идентификации активных элементов описан далее в подразделе с описанием эксперимента.

#### 4.2. Экспериментальная установка

Эксперименты с использованием рентгеновского излучения были проведены на станции 34-ID-C источника синхротронного излучения Advanced Photon Source (APS) Аргоннской Национальной Лаборатории. Схема станции представлена на рисунке 32. Электроны с равновесной орбиты накопительного кольца синхротрона проходят через

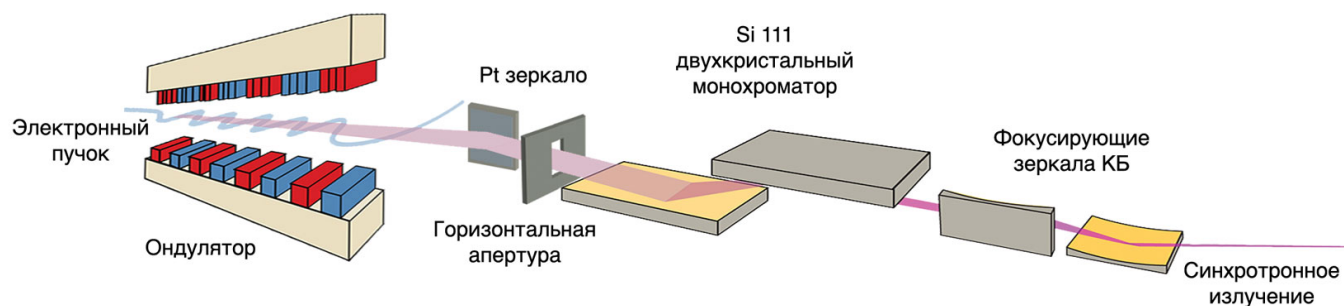


Рисунок 32 – Схема получения синхротронного излучения на станции 34-ID-C источника Advanced Photon Source Аргоннской Национальной Лаборатории.

ондулятор с 70 последовательно чередующимися магнитами с длиной каждого элемента равной 30 мм. Энергия электронного пучка в кольце составляет 7 ГэВ при среднем токе в кольце 100 мА. Проходя через ондулятор, электроны генерируют синхротронное излучение мощностью 15 Вт в диапазоне от 7 кэВ до 14 кэВ для первой гармоники и до 25 кэВ в третьей гармонике [73].

Для вывода пучка в канал синхротронного излучения используется платиновое зеркало. Горизонтальная апертура, установленная за дефлектором, имеет водяное охлаждение и служит для блокировки не используемого излучения. Кремниевый (111) двухкристальный монохроматор позволяет дальнейшую спектральную фильтрацию пучка синхротронного излучения и имеет выходную вертикальную апертуру. Расстояние от выхода ондулятора до вертикальной апертуры равняется 27,3 метрам.

Пара зеркал Киркпатрика-Баэса установлены в камере эксперимента для фокусировки и коллимации пучка на изучаемом образце. Конечное расстояние между выходом ондулятора и входным окном в камеру эксперимента – 50,6 метров. Когерентная область пучка с коэффициентом когерентности выше 0,5 имеет размеры 260 мкм на 57 мкм [73]. Спектральные характеристики ондулятора типа А, используемого на станции 34-ID-C, представлены на рисунке 33. В эксперименте, представленном в данной работе использовалась первая гармоника вставного

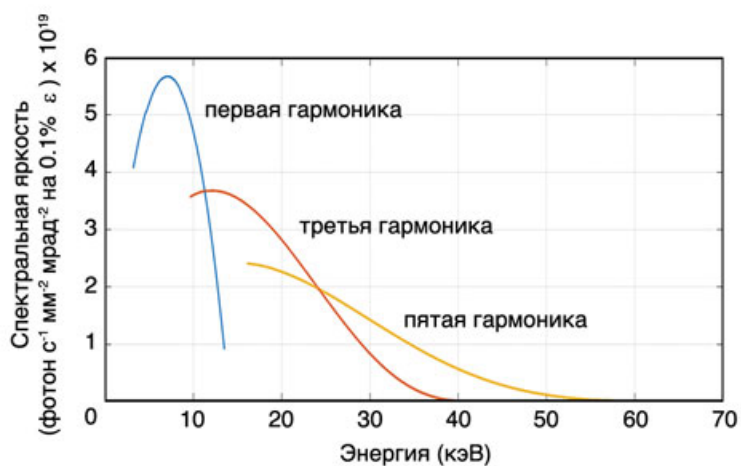


Рисунок 33 – Спектр ондулятора типа А, установленный на станции 34-ID-C. Спектр смоделирован с использованием программы SPECTRA [143].



устройства, дающая поток когерентных фотонов на энергии 10,3 кэВ равный  $8,5 \cdot 10^9$  фотон  $\text{с}^{-1}$ .

Принципиальная схема эксперимента когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга представлена на рисунке 34. В описываемом эксперименте использовался отобранный монохроматором пучок синхротронного излучения с центральной энергией 9 кэВ и полосой пропускания в 1 эВ. Пространственная когерентность пучка была равной 0,7 мкм. Для начала расфокусированный пучок с пятном порядка 10 мкм на 10 мкм 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 структуры титаната бария. На данном этапе метод схож с лабораторным методом рентгеноструктурного анализа, за исключением более высокого контраста, получаемого в силу высокой когерентности и интенсивности пучка. Далее

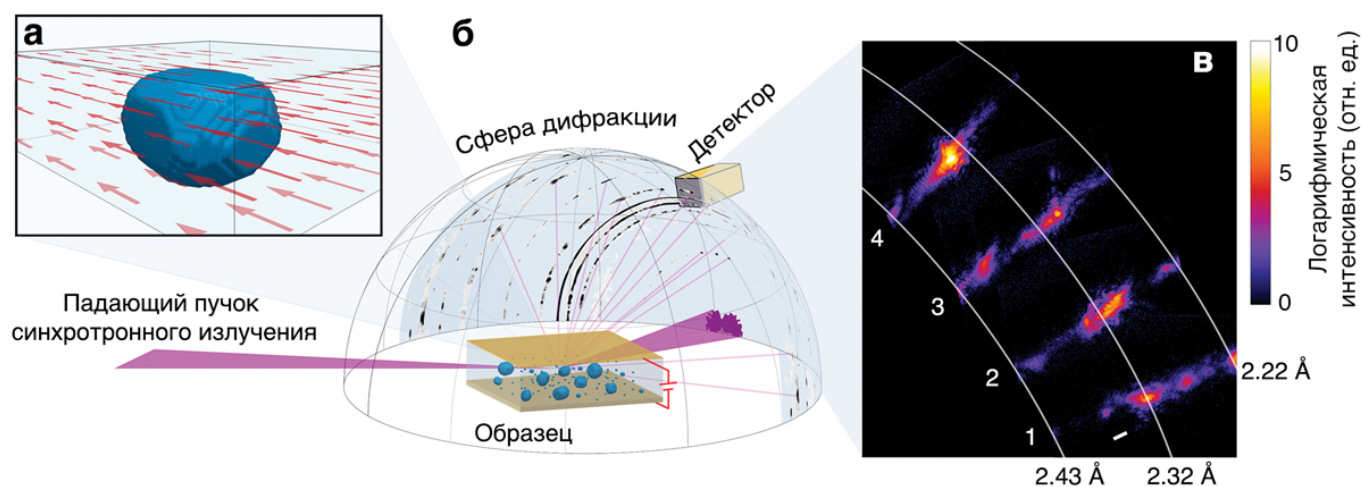


Рисунок 34 – Принципиальная схема когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга. (а) – наночастица титаната бария в однородном электрическом поле. (б) – схема эксперимента. Пучок синхротронного излучения падает на образец, находящийся на трехкоординатном поворотном столе. Дифракция с атомных плоскостей образца регистрируется на детекторе,двигающемся вокруг образца. На образец подается электрическое поле для создания возмущений в кристаллической решетке. (в) дифракционные картины, полученные при наведении электрического поля на образец. Нумерация дифракций соответствует четырем состояниям напряжения: 1 – 0 В, 2 – 10 В, 3 – 0 В и 4 – минус 10 В.

проводилась серия фокусировки пучка до размера в 700 нм на 700 нм, при сопутствующей манипуляции положения образца до того момента, как дифракционный пик от одной наночастицы был изолирован. Наличие большего количества когерентных фотонов, в сравнении с методами лабораторного рентгеновструктурного анализа, позволяет измерение наночастицы в объеме аморфного полимера, присутствие которого создает незначительное диффузное рассеяние пучка синхротронного излучения, которое в процессе обработки данных вычитается из изображений.

Когда одиночный дифракционный пик с образца изолирован, проводится конечная подготовка к измерениям структурных изменений в наночастице под действием электрического поля. В качестве детектора в данном эксперименте использовался Medipix2 CMOS детектор с размером отдельного фоточувствительного элемента в 55 мкм на 55 мкм и сенсором с размером 256 на 256 пикселей. Каждый пиксель работает в режиме счета фотонов, позволяющем отличать сигнал рентгеновских фотонов от сигнала шума в детекторе. Детектор был отведен на расстояние в 0,8 м для увеличения разрешения интерференционной картины с образца. Хотя сама станция синхротронного излучения обладает высоким количеством когерентных фотонов, количество фотонов, приходящих на детектор, сильно зависит от силы рассеяния рентгеновских волн образцом и размера образца. В данном эксперименте изучались наночастицы размером менее 200 нм при пучке в 700 нм, поэтому крайне важным было использовать любые методы оптимизации процесса измерений. Для снижения потери фотонов в воздухе между образцом и детектором устанавливалась вакуумированная пролетная трубка. Использование данной трубки, высокого коэффициента усиления детектора, а также режима дискриминации фотонов позволяет увеличить эффективность эксперимента, необходимую в наноразмерной когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга [61, 71, 73].

При записи кривой качания вблизи пика Брэгга равного  $2\theta = 34,55^\circ$  было собрано 140 дифракционных картин в диапазоне  $\Delta\theta = \pm 0,6^\circ$ . На рис. 34в представлены 4 дифракционных картины для частицы под воздействием электрического поля. Для программного контроля прикладываемого электрического поля использовалась описанная ранее система Radiant Technologies Precision Premier II Ferroelectric Tester, которая контролировалась с помощью TTL сигнала, передаваемого по коаксиальному кабелю в качестве аналогового контроля начала цикла подачи напряжения в процессе эксперимента, интегрированного в систему управления станцией синхротрона. Основные параметры задавались предварительно через интерфейс программного продукта Vision, поставляемого с Precision Premier II Ferroelectric Tester. Для идентификации наночастиц титаната бария, находящихся в контакте с проводящими наночастицами углерода и формирующими таким образом наноконденсаторные элементы, использовалась следующая процедура. После настройки эксперимента

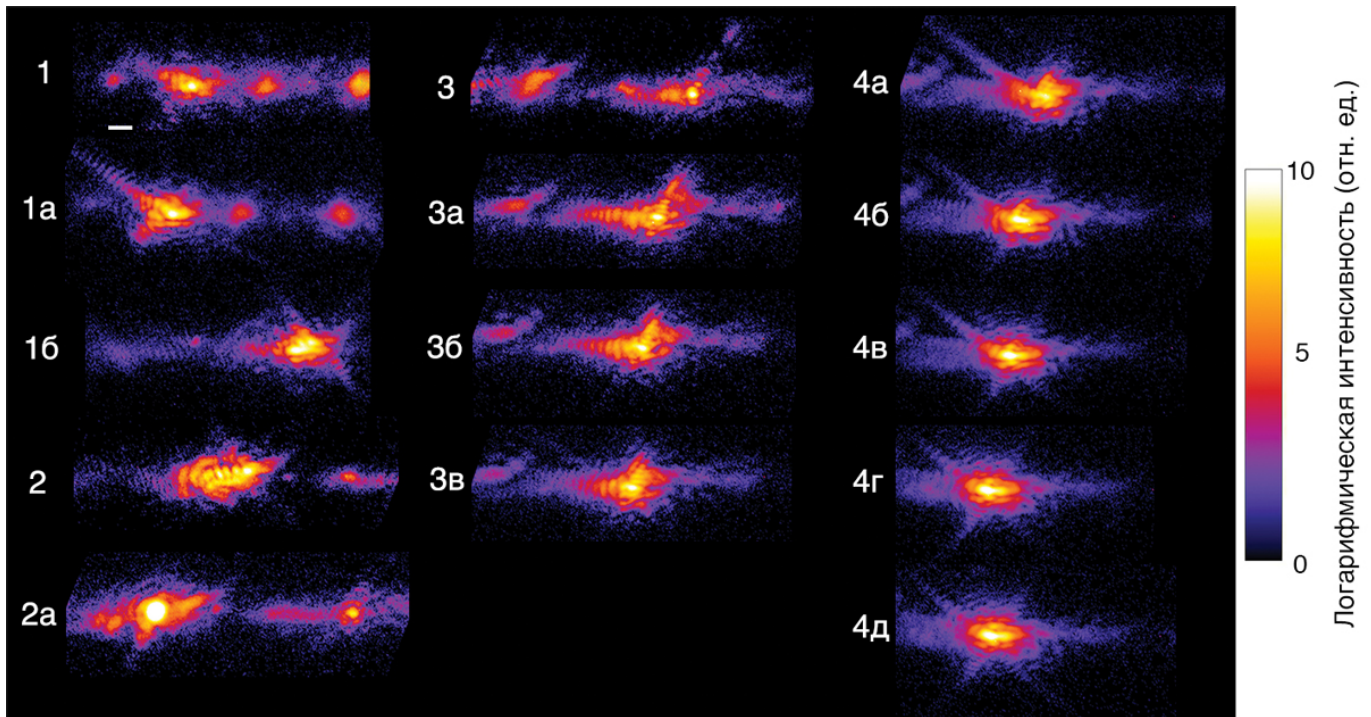


Рисунок 35 – Поведение дифракционных картин для активной наночастицы титаната бария под воздействием электрического поля. 1 – дифракция при 0 В, 1а – дифракция при 2 В, 1б – дифракция при 8 В, 2 – дифракция при 9 В, 2а – дифракция при 5 В, 3 – дифракция при 0 В, 3а – дифракция при минус 1 В, 3б – дифракция при минус 7 В, 3в – дифракция при минус 10 В, 4а – дифракция при минус 8 В, 4б – дифракция при минус 6 В, 4в – дифракция при минус 4 В, 4г – дифракция при минус 2 В, 4д – дифракция при 0 В.

проводились импульсные подачи напряжения на образец в течении 30 циклов, при этом отслеживалось поведение дифракционной картины с образца. В случае активных наночастиц наблюдалось изменение дифракционной картины, сопутствующее фазовым переходам в наночастице, как видно на рис. 34в и на рисунке 35. В то время как для наночастиц изолированных непроводящей матрицей не наблюдалось изменения дифракционной картины, как видно на рисунке 36. Такие наночастицы, тем не менее, могут быть потенциально использованы в эксперименте при проведении *ex situ* измерений, а также юстировки образца.

В измерениях дифракционной картины с наночастицы под воздействием электрического поля, используемых в данной работе и представленных на рис. 34в, была применена следующая процедура измерений. После обнаружения изолированного дифракционного пика была записана полная кривая качания, соответствующая первоначальному состоянию конденсатора при поле  $U_1$ . Затем были

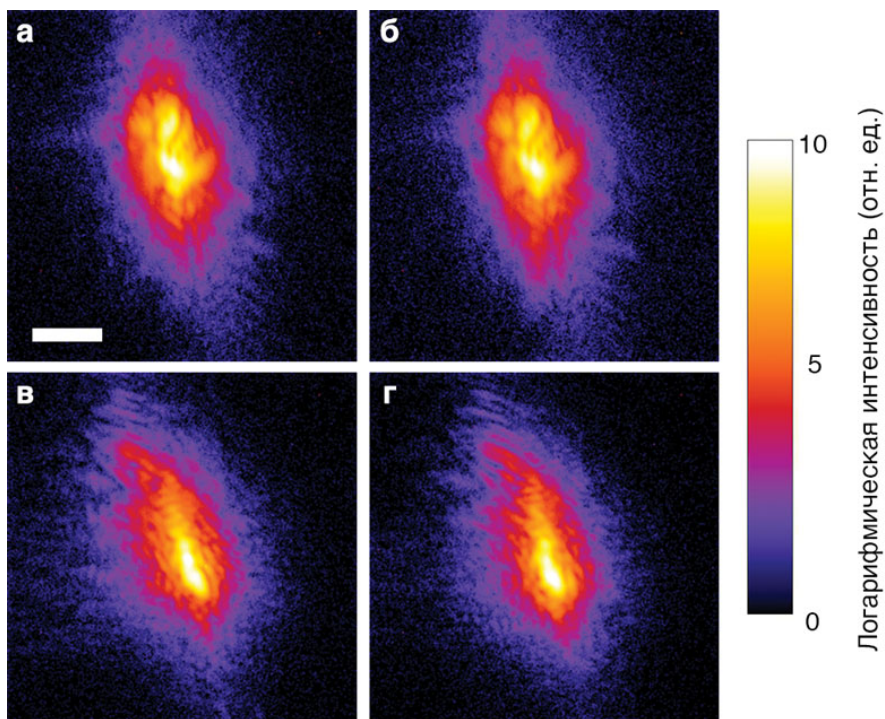


Рисунок 36 – Пример поведения дифракционных картин для двух неактивных частиц титаната бария. (а) – дифракционная картина для первой частицы перед приложением электрического поля. (б) – дифракционная картина для первой частицы после 30 циклов прикладывания электрического поля. (в) – дифракционная картина для второй частицы перед приложением электрического поля. (г) – дифракционная картина для второй частицы после 30 циклов прикладывания электрического поля.



проведены 30 циклов приложения электрического поля напряжением в диапазоне от минус 10 В до 10 В, во время которых отслеживалось поведение пика. В состоянии с максимальным напряжением  $V_2$  была также проведена запись кривой качания, после которого напряжение было снижено до 0 В и последняя кривая качания для состояния  $V_3$  была также записана детектором.

### 4.3. Восстановление фазовой информации

Для получения объемной информации об индуцированных структурных и поляризационных изменениях в наночастице титаната бария под воздействием электрического поля была проведена итеративная инверсия дифракционных картин. Для этого использовался модифицированный алгоритм DM, основанный на итеративной схеме алгоритма НЮ [97]. В первых шагах алгоритма задавалась область пространства, содержащая всю плотность образца. Данная область может быть определена различными методами по функции автокорреляции дифракционной картины, как было описано в предыдущих главах.

Во время восстановления информации накладывались как условия области образца, так и диапазон максимального изменения фазы [144]. При реконструкции состояния образца под действием поля  $V_1$  и  $V_3$  алгоритм запускался в течение 3800 итераций. Для состояния образца  $V_2$  потребовалось 4100 итераций для достижения квадрата минимальной ошибки порядка  $10^{-12}$ . Использование алгоритма DM требовало центрирования данных согласно работе [145]. При реконструкции состояний наночастицы алгоритм запускался с различными случайными наборами фаз, и конечные результаты усреднялись в конце запусков. Разница между эквивалентными выходами алгоритма, а также экспериментальными дифракционными картинками позволяет использовать передаточную функцию фазовой реконструкцию [103-104] для определения разрешения, которое в данном эксперименте было равным 18 нм, как видно на рисунке 37а.

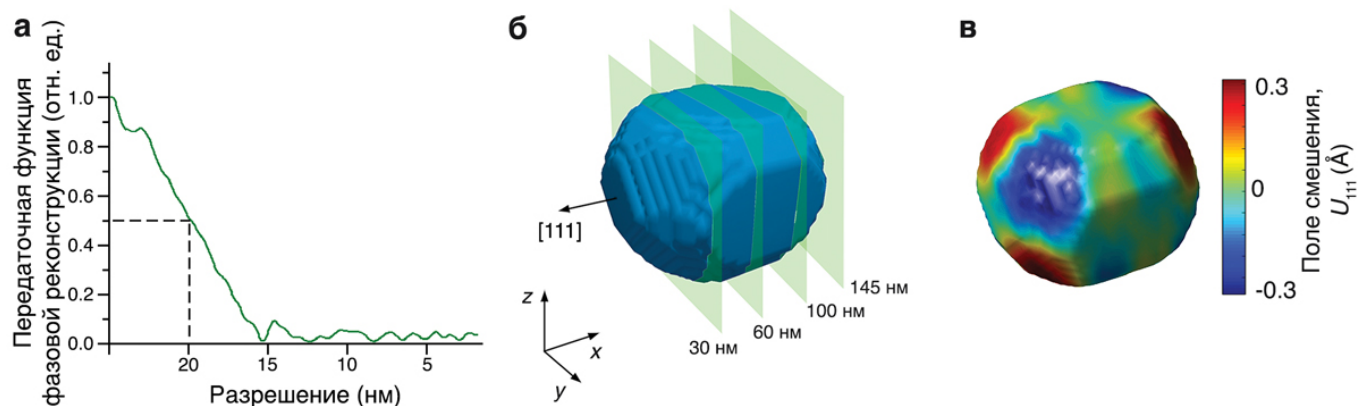


Рисунок 37 – Результаты реконструкций. (а) – передаточная функция фазовой реконструкции с частотой среза. (б) – восстановленная форма наночастицы с плоскостями, отмечающими положения срезов на Рисунке 38. (в) – проекция трехмерного поля смещения  $u_{111}(r)$  на поверхность наночастицы для состояния, представляющего частицу под электрическим полем  $V_1=0$  кВ/см.

На рис. 37б представлена восстановленная форма наночастицы титаната бария вместе с [111] проекцией (рис. 37в) трехмерного поля смещения  $u_{111}(r)$  на поверхность наночастицы под электрическим полем  $V_1 = 0$  кВ/см. Результаты реконструкций для трех состояний системы под воздействием электрического поля представлены на рисунке 38а.

В недавних теоретических исследованиях, благодаря применению модели фазового поля, было предсказано существование топологических вихрей в титанате бария, а также в других сегнетоэлектриках [17, 146, 147]. Данные вихри были обнаружены в сегнетоэлектрических наноматериалах методами электронной микроскопии [28, 148]. На основе теоретических моделей и экспериментального наблюдения двумерных вихревых топологических дефектов было постулировано, что формирование вихревых топологий в первую очередь связано с формой и характером градиентной энергии в наночастице, которая преобладает над электростатической энергией и энергией упругой деформации, связанной с формированием доменов [148].

Наблюдение вихревых топологий в сегнетоэлектриках при комнатной температуре и нормальном давлении также подтверждает основное влияние формы наноматериала (размеры и количество граней в случае наночастиц и толщина и тип легирования в случае тонких пленок) на формирование топологических вихрей [28].

При этом теоретические исследования предсказывают возможность управления топологических вихрей за счет воздействия как однородного, так и неоднородного электрических полей [11, 12].

К сожалению, традиционные методы исследований такие как сканирующая электронная микроскопия не позволяют наблюдение вихревых топологических дефектов под воздействием внешнего электрического поля в силу характера зондирующего излучения, кроме того данный метод не позволяет визуализацию объема наноматериалов в силу слабой проникающей способности пучка электронов [61]. Другие методы исследований, такие как лабораторный рентгеноструктурный анализ, не обладают достаточной когерентностью и интенсивностью пучка рентгеновского излучения для обнаружения признаков топологических вихрей в объеме кристаллического образца. Создание монокристаллов сегнетоэлектрика с

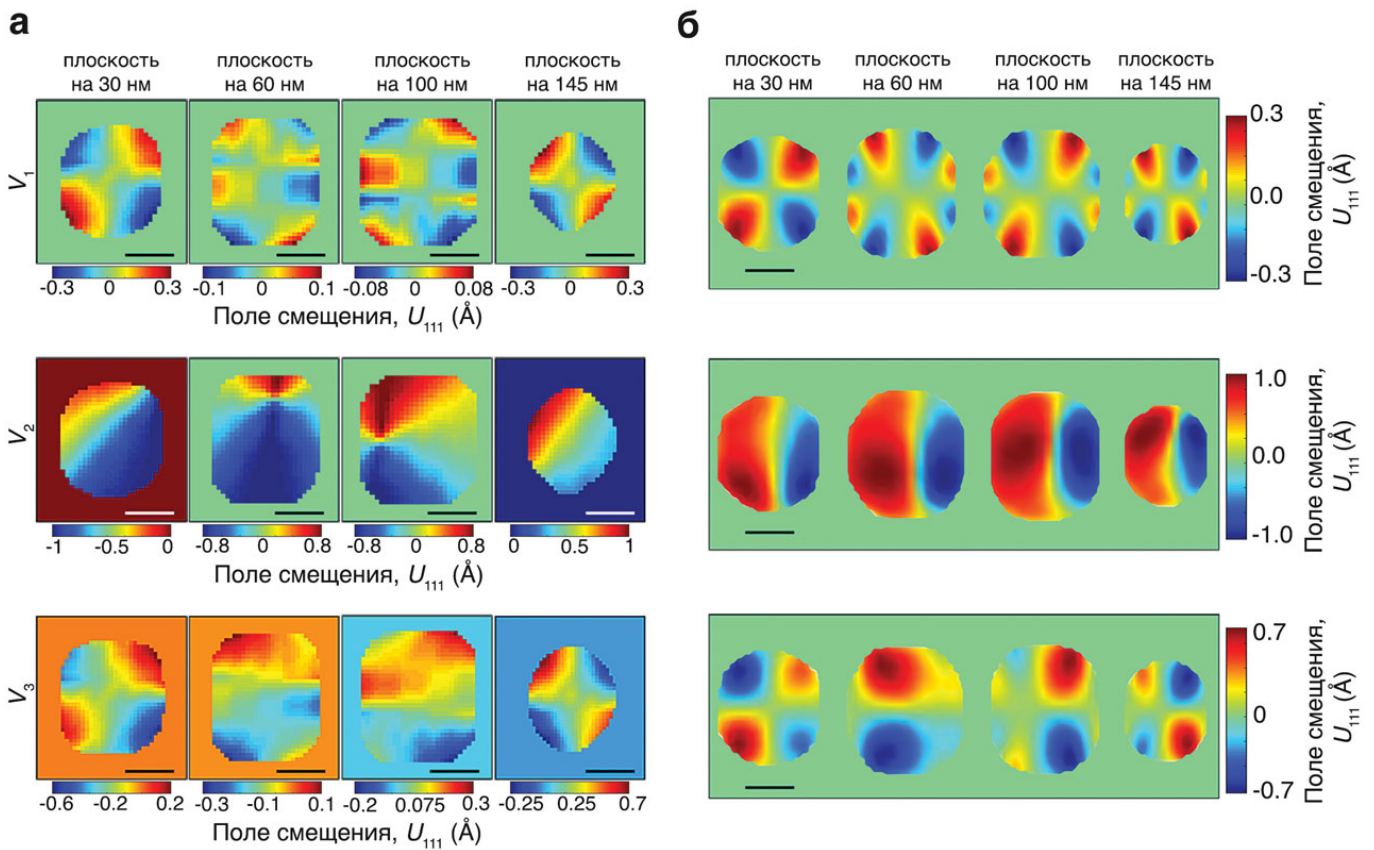


Рисунок 38 – Сравнение результатов реконструкции с модельным поведением наночастицы. (а) – экспериментальные результаты для трех состояний наночастицы. (б) – модельные результаты для трех состояний наночастицы. Масштабные линии на изображениях соответствуют 60 нм.

большим содержанием топологических дефектов само по себе является очень сложной задачей, для решения которой в настоящий момент не хватает достаточных знаний о природе и поведении топологических дефектов.

Применение синхротронных источников излучения позволяет обойти ограничения других инструментов. В настоящей диссертационной работе экспериментальные результаты, полученные методом когерентной дифракционной визуализации в геометрии Брэгга, сравнивались с моделью фазового поля (Приложение 3). Экспериментальные и модельные данные указывают на существование градиента поля смещения, характерного для вихревых топологий [31, 61 149]. Максимальная напряженность электрического поля в эксперименте была равной 223 кВ/см при максимальном напряжении в 10 В. Результаты моделирования представлены на рисунке 38б. Более подробно о модели фазового поля написано в Приложении 3 к данной работе.

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:

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_{111}^i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_{111}^j}{\partial x_i} \right), \quad (4.1)$$

что, благодаря симметрии деформации в объемной структуре, позволяет связать деформацию с поляризацией в наночастице как:

$$\epsilon_{ij}^0 = Q_{ijkl} P_k P_l, \quad (4.2)$$

где  $\epsilon_{ij}^0$  – спонтанная деформация,  $Q_{ijkl}$  – электрострикционный коэффициент, а проекции сегнетоэлектрической поляризации даны тензорами первого ранга  $P_k$  и  $P_l$ . Используя последнее уравнение, можно получить коэффициенты тензора электрострикции, которые представлены в описании фазовой модели в Приложении 3. Для оценки поляризации можно дополнительно использовать следующий подход. Учитывая то, что смещение в наночастице имеет относительную величину меньше размера самой частицы, можно предположить, что смещение в



образце масштабируется в зависимости от местной поляризации, которая может быть оценена через суммирование борновских эффективных зарядов [150-151].

На проекциях поляризации в наночастице, представленных на рис. 39, видно, что компоненты поляризации, находящиеся в плоскости [111], всегда организованы в замкнутые линии, что характерно для вихревого поля, что также видно на реконструкциях смещения (см. рисунок 38а). Модель фазового поля объясняет формирование данной вихревой структуры в силу балансировки между такими параметрами, как градиентная энергия, потенциальная энергия упруго деформированного объекта, энергия электростатического поля, энергия неоднородностей, а также в силу граничных условий, таких как форма наночастицы и характер ее граней.

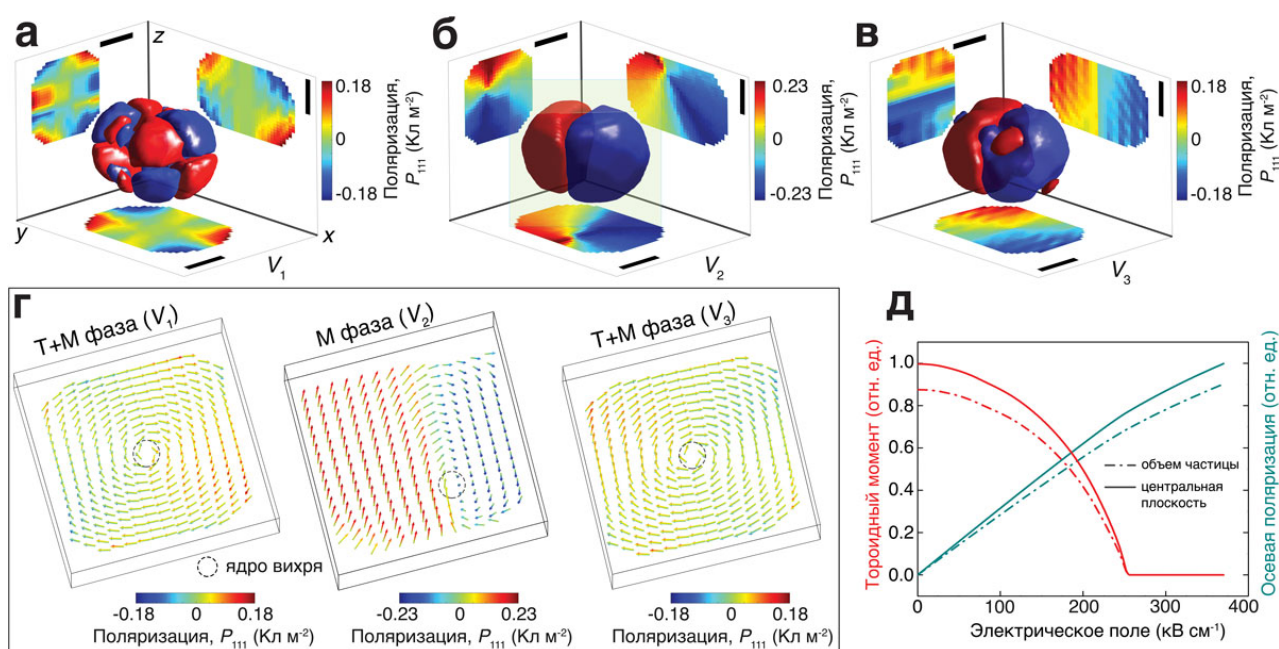


Рисунок 39 – Анализ поведения нанодоменов и динамики топологического вихря. Изоповерхности нанодоменов, сформированных в наночастице титаната бария, и распределения поляризации под воздействием (а) – поля  $V_1$  в 0 кВ/см, (б) – поля  $V_2$  в 223 кВ/см и (в) – поля  $V_3$  в 0 кВ/см. (г) – модельное поведения вихря и структуры наночастицы титаната бария. (д) – модельное поведение тороидного момента импульса и осевой поляризации наночастицы титаната бария под действием электрического поля. Масштабные линии на изображениях соответствуют 60 нм.

Приложенное электрическое поле приводит к нарушению балансировки параметров и к изменению картины поверхностной энергии (см. рисунок 40). На полученных дифракционных картинах (см. рисунок 35) видно появление сосуществующих структурных фаз под действием электрического поля. Изоповерхности и карты поляризации на рис. 39 а-в демонстрируют неоднородное распределение доменов в наночастице. На границе доменов можно наблюдать формирование вихря, который трансформируется под действием электрического поля и сопровождается фазовым переходом наночастицы из сосуществующих тетрагональной (Т) и моноклинной (М) структур в начальном состоянии  $V_1$  в доминирующую М фазу при напряжении  $V_2$ . Для объемных кристаллов титаната бария при комнатной температуре без прочих возмущений стабильной структурой является Т фаза. Учитывая размер таких кристаллов, структура доменных границ не берется в расчет в силу ее толщины порядка 5-20 нм. Размер наночастицы в данной работе 160 нм и пренебрежение размером границы доменов было бы некорректным. Фазовая модель показывает, что в случае данного образца доменная граница является переходной зоной с размером около 10-20 нм и представляет из себя М фазу. Дифракционные картины несут в себе информацию о данном фазовом переходе в виде раздвоения пика Брэгга, в котором можно наблюдать выраженную центральную симметрию при максимальном поле, когда структура частица моноклинная

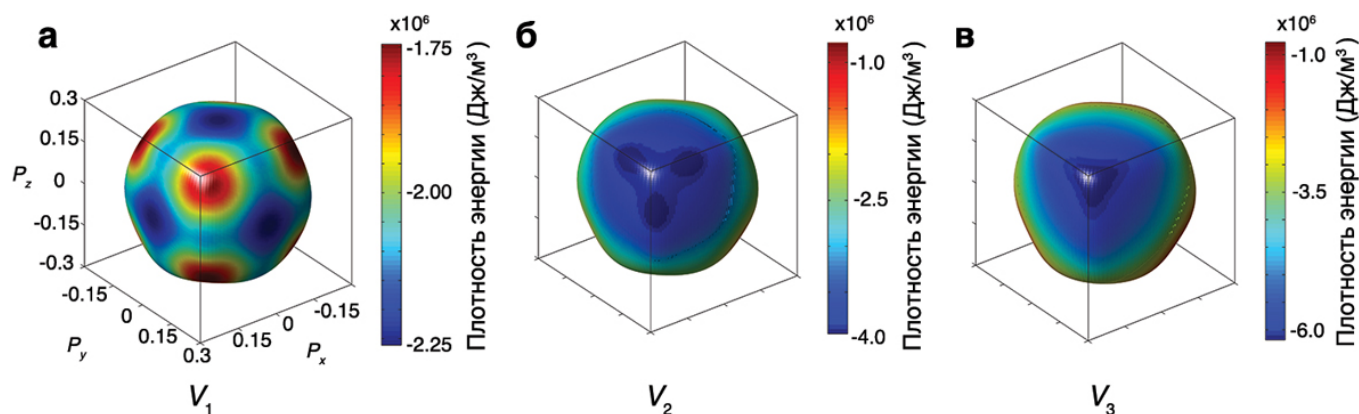


Рисунок 40 – Изменения в значениях минимума свободной энергии сегнетоэлектрической поляризации вдоль кристаллографического направления (111) при (а) 0 кВ/см, (б) 223 кВ/см, (в) 0 кВ/см.

(рисунок 35). Подробнее об анализе фаз в обратном пространстве представлено в Приложении 4. Объемная визуализация доменов представлена на рисунке 41.

Интересно отметить, что поведение доменов имеет нелинейный характер, как видно на рисунке 39г и рисунке 41. Приложенное напряжение смещает ядро вихря из центра к границе частицы. После того как напряжение убрано, ядро возвращается в центр, но морфология доменов не возвращается к начальному состоянию. Незначительное смещение центра вихря ранее наблюдалось при исследовании двумерных топологий, не находящихся под влиянием внешних возмущений [148], и было постулировано как возможный признак управляемой хиральности в топологическом вихре, наши результаты позволяют дать более однозначную оценку данного параметра и сделать заключение о его управляемости. Также стоит отметить, что известные значения [152] спонтанной поляризации для объемного титаната бария равные  $0,23 \text{ Кл/м}^2$  отличаются от наблюдаемых в эксперименте значений при отсутствии поля, равных  $0,18 \text{ Кл/м}^2$ . Таким образом, можно постулировать, что

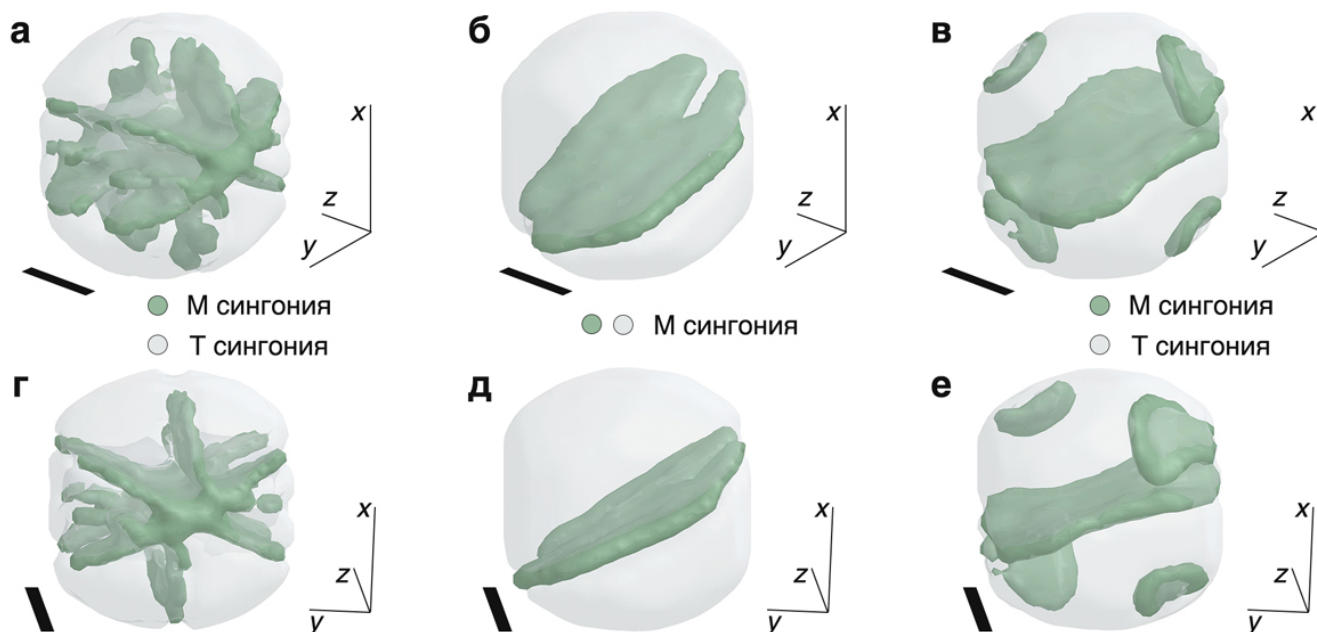


Рисунок 41 – Трехмерная визуализация распределения кристаллографических структур в наночастице титаната бария. Первый вид на наночастицу с распределением при (а) 0 кВ/см, (б) при 223 кВ/см, (в) 0 кВ/см. Второй вид на наночастицу с распределением при (г) 0 кВ/см, (д) при 223 кВ/см, (е) 0 кВ/см. Масштабные линии на изображениях соответствуют 60 нм.

нелинейное поведение поляризации для наночастицы модулируется посредством локальной вихревой топологии и ее поведения.

#### 4.4. Анализ и обсуждение полученных результатов

Визуализация вихревой топологической структуры в наночастице титаната бария, представленная в данной работе, открывает доступ к изучению и отслеживанию эволюции поляризованных состояний под воздействием электрического поля, а также идентификацию разделяющих данные домены границ и их влияние на вихревую структуру. Ядро вихря имеет продолговатую форму (см. рисунок 42) и представляет собой наностержень с нулевой поляризацией. Диаметр данного стержня находится на пределе разрешения в 18 нм, поэтому для увеличения контрастности и последующей его оценки использовался анализ среднеквадратичного отклонения поля смещения в объеме наночастицы в области наностержня (см. рисунок 43а, б и е). Следует заметить, что оценка разрешения метода когерентной дифракционной визуализации отличается от оценки разрешения методов традиционной микроскопии. В методе когерентной дифракционной визуализации разрешение определяется частотой среза, определяемой на половине максимального значения передаточной функцией фазовой реконструкции. Данная мера позволяет дать доверительный интервал частот в обратном пространстве, восстановление которых прошло наиболее успешно [101, 102]. При этом меньшие пространственные частоты восстанавливаются с меньшей точностью. По оценке поведения полей смещения, между несколькими срезами в

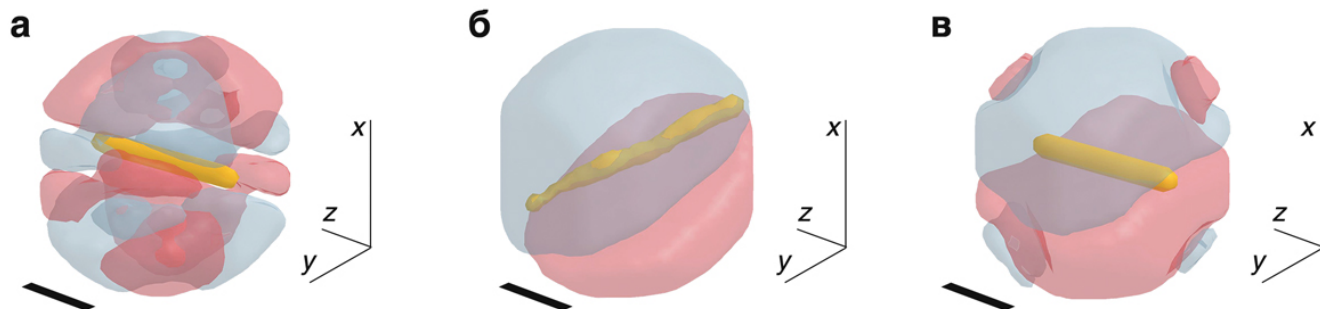


Рисунок 42 – Трехмерная визуализация изменения положения наностержня в наночастице титаната бария под воздействием внешнего электрического поля с напряженностью (а) 0 кВ/см, (б) 223 кВ/см, (в) 0 кВ/см. Масштабные линии на изображениях соответствуют 60 нм.



объеме, включающем стержень, мы видим, что значение среднеквадратичного отклонения в области стержня практически равны нулю (рис. 43а и 43б). Визуализация объема стержня (рис. 42) показывает, что он имеет цилиндрическую форму, а рассмотрев область с минимальным среднеквадратичным отклонением полей смещения, можно предположить, что проекция стержня имеет ширину порядка 30 нм, которая и является его диаметром.

Мобильность доменных границ под внешним электрическим полем также связана с динамикой вихревого ядра. Для оценки количества доменных границ, сходящихся к центру вихря, можно посчитать количество нулей в графике угловой зависимости поля смещения вокруг вихревой структуры (см. рисунок 43д). На рис. 43б видно, что при отсутствии напряжения наностержень располагается в центре наночастицы и поворачивается под приложенным электрическим полем. Рисунок 42 приведен для большей наглядности описываемого процесса и показывает положение наностержня

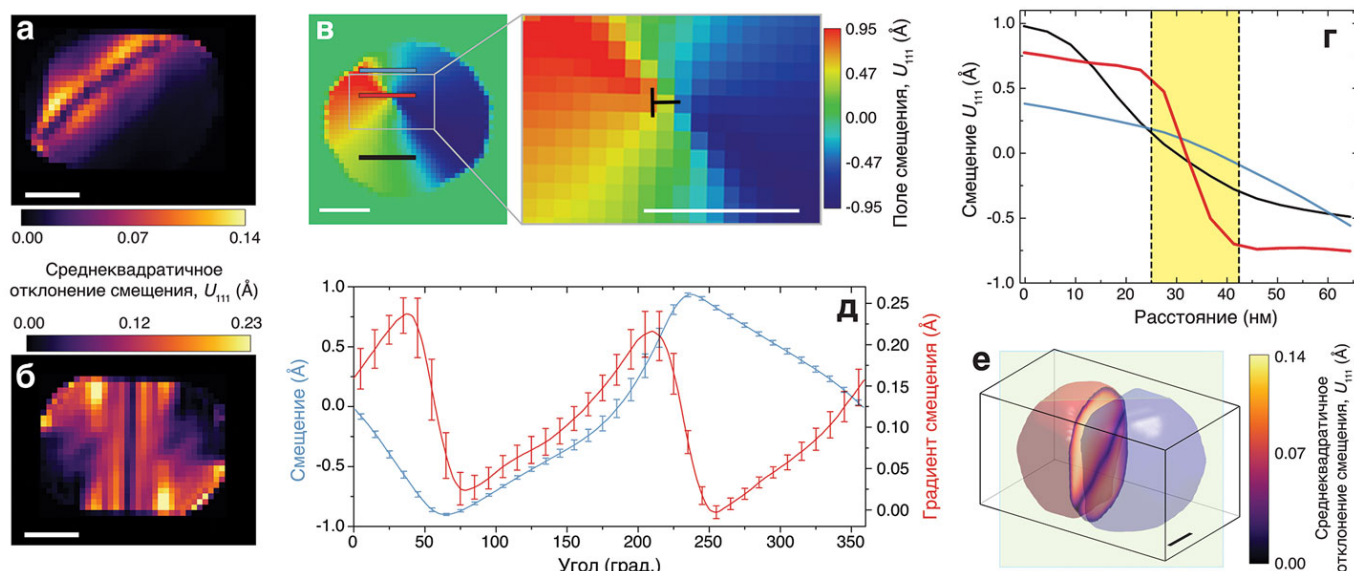


Рисунок 43 – Границы доменных структур в наночастице титаната бария и поведение наностержня. (а) – среднеквадратичное отклонение поля смещения в области наностержня в состоянии  $V_2$  с полем 223 кВ/см. (б) – среднеквадратичное отклонения поля смещения в области наностержня в состоянии  $V_3$  с полем 0 кВ/см. (в) – распределения поля смещения и увеличение выделенной области для среза, обозначенного зеленой плоскостью в (е) и на Рисунке 39 б. (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.

в объеме наночастицы титаната бария. Кроме того, значения поляризации в области стержня указывают на его параэлектрическую природу и предполагают, что он может быть использован как проводящий канал в объеме сегнетоэлектрика.

Интересно отметить что согласно теоретической модели (см. рисунок 39д), при повышении электрического поля выше 270 кВ/см ядро вихря исчезнет, и наностержень будет физически стерт. Данное поведение вихря позволяет предположить возможность его создания и стирания при приложении электрического поля в условиях где доменная структура будет предрасполагать формирование вихря. Из представленных результатов можно сделать заключение что вихревая топология в наночастице титаната бария связано с моноклинной сингонией. Как видно из фазовой диаграммы (см. рисунок 44) [153], для титаната бария не характерно присутствие моноклинной сингонии при условиях, когда меняется температура и давление. При этом недавние исследования показывают, что влияние электрического поля способно существенно изменять кристаллографию титаната бария и приводить к формированию метастабильной моноклинной сингонии при условиях при которых формируется орторомбическая сингония [154]. Это позволяет предположить, что

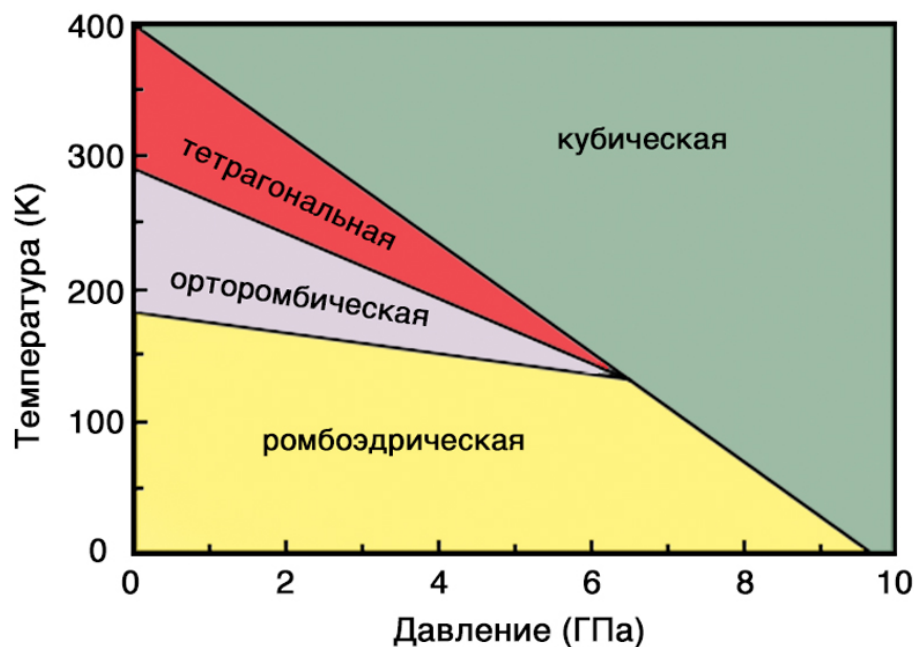


Рисунок 44 – Фазовая диаграмма для титаната бария.

условия к формированию вихревых топологических дефектов в наночастицах титаната бария являются более благоприятными при фазовых переходах ниже комнатной температуры, что открывает возможность новых исследований стабильности, воспроизводимости и управляемости вихревых топологических дефектов.

График смещения и градиента смещения вокруг центра вихря (рис. 43д) показывает переход через границу доменов (область где градиент меняет знак), а положение нуля смещения дает оценку данной границы, имеющей угол наклона поля поляризации  $173 \pm 10^\circ$  и параллельной к направлению спонтанной поляризации близлежащих доменов. Это соответствует теоретически предсказанной для данного материала границе Блоха с углом  $180^\circ$ .

Поведение вихревой структуры, наблюдаемое в эксперименте, а также модель фазового поля, говорящая что при более высоких напряжениях электрического поля тороидный момент вихря будет полностью аксиально поляризован, предполагает контролируемый переход от вихревой к аксиальной структуре [17, 155], что является крайне важным для применения в энергонезависимых запоминающих устройствах с произвольной выборкой [7-11]. Другим важным параметром, качественная и количественная оценка которого под внешними возмущениями необходима для развития новых технологий, использующих топологические вихри, является хиральность тороидного момента. Применяя дифференциальный оператор ротора к полю смещения как:

$$\mathbf{T}(\mathbf{r}) = \nabla \times \mathbf{u}_{111}(\mathbf{r}), \quad (4.3)$$

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 45 представлены визуализации проекций тороидного момента для разных состояний наночастицы. Ранее было предположено [148], что топологические вихри могут обладать

выраженной хиральностью, которая заключается в том, что положение центра вихря смещено относительно центра наночастицы. Возможность электрически контролируемой хиральности тороидного момента вихревой топологии предполагает, что проекции  $T_x(\mathbf{r})$ ,  $T_y(\mathbf{r})$  и  $T_z(\mathbf{r})$  вдоль соответствующих осей не являются взаимно-накладываемыми друг на друга. Для состояния с максимальным полем (рис.45г-е) проекции  $T_x(\mathbf{r})$  и  $T_z(\mathbf{r})$  являются взаимно-накладываемыми, тогда как проекция  $T_y(\mathbf{r})$  показывает, что центр вихря смещается относительно центра наночастицы. При этом для состояний с нулевым электрическим полем наблюдается центральная симметрия всего трехмерного момента, которая исчезает для состояния с максимальным приложенным полем. Можно заключить, что приложение электрического поля

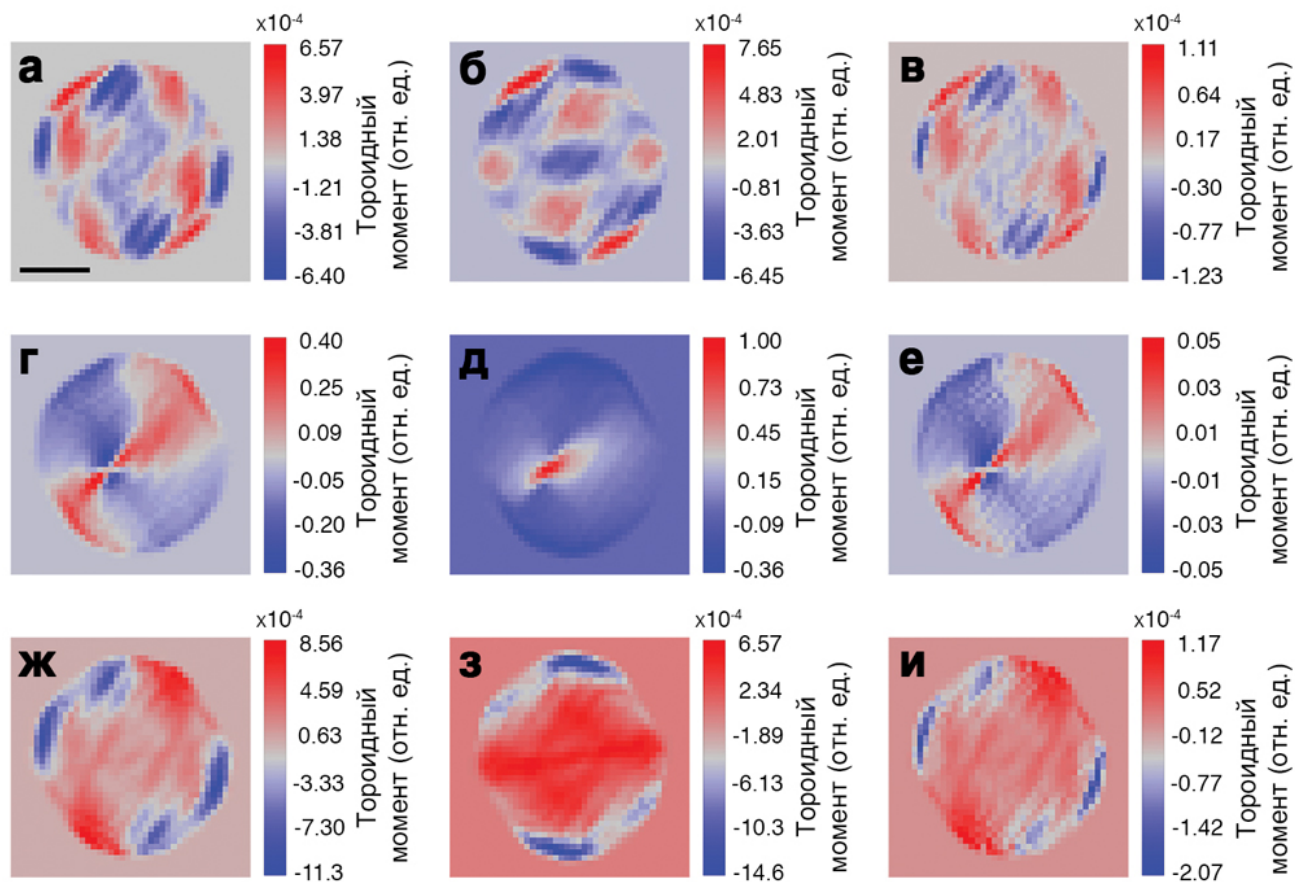


Рисунок 45 – Поведение тороидного момента в наночастице титаната бария под воздействием электрического поля. (а) – проекция  $T_x(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_1$ , (б) – проекция  $T_y(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_1$ . (в) – проекция  $T_z(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_1$ . (г) – проекция  $T_x(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_2$ , (д) – проекция  $T_y(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_2$ . (е) – проекция  $T_z(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_2$ . (ж) – проекция  $T_x(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_3$ , (з) – проекция  $T_y(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_3$ . (и) – проекция  $T_z(\mathbf{r})$  для состояния поля  $V_3$ . Масштабная линия соответствуют 60 нм.



позволяет контролировать хиральность вихря в наночастице. Это потенциально позволяет осуществить применение данного эффекта в запоминающих устройствах, наномоторах, нанодатчиках, нанопереключателях и тд.

#### 4.5. Выводы по главе 4

1. Восстановленная фазовая информация об объеме наночастицы титаната бария демонстрирует присутствие вихревой топологической структуры сегнетоэлектрической поляризации;
2. Изготовленная функциональная кювета позволяет подавать внешнее электрическое поле на композит наночастиц титаната 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. Центр вихревой топологии приходится на границу между доменами наночастицы титаната бария и влияет на протекание фазовых переходов под действием внешнего электрического поля. Граница доменов и центр вихря смещаются внешним электрическим полем, а при снятии поля частично восстанавливают свое первоначальное положение;
4. Центральная область вихревой топологии в объеме представляет собой стержень близкий по форме к цилиндру с диаметром сечения приблизительно равным 30 нм. Данный стержень является мобильным под действием внешнего электрического поля и поворачивается вокруг условного центра наночастицы. При этом, в отличие 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 визуализировать тороидный момент топологического вихря,

демонстрирующий управляемую хиральность под действием внешнего электрического поля;

6. Экспериментальные результаты показывают увеличение осевой поляризации доменов в наночастице титаната бария при увеличении внешнего электрического поля, что согласуется с моделированием по фазовому полю феноменологической теории Ландау;
7. Экспериментально удалось достигнуть значений электрического поля напряженностью 223 кВ/см, при котором вихревая топология сохраняется в объеме наночастицы. Моделирование влияния внешнего электрического поля на вихревую топологию предсказывает стирание вихревой топологии при значениях напряженности электрического поля выше 270 кВ/см, что важно также для понимания механизма создания вихревых топологий в наноматериалах и требует дальнейшего экспериментального изучения;
8. Наночастица титаната бария обладает двумя сингониями: тетрагональной и моноклинной. Приложенное внешнее электрическое поле индуцирует фазовый переход, при котором кристаллической структурой наночастицы титаната бария становится моноклинная сингония;
9. 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.

## 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 титаната 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 отличие 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 визуализировать 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 ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ**

1. Kosterlitz, J.M. Long range order and metastability in two dimensional solids and superfluids. (Application of dislocation theory) / J.M. Kosterlitz, D.J. Thouless // J. Phys. C: Solid State Phys. 5, 124-126 (1972).
2. Kosterlitz J.M. Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems / J.M. Kosterlitz, D.J. Thouless // J. Phys. C: Solid State Phys. 6, 1181-1203 (1973).
3. Bunkov Y.M. Topological defects and the non-equilibrium dynamics of symmetry breaking phase transitions / Y.M. Bunkov, H. Godfrin // Springer (2012).
4. Vilenkin A. Cosmic strings and other topological defects / A. Vilenkin, E.P.S. Shellard // Cambridge University Press (2000).
5. Kibble T., Phase-transition dynamics in the lab and the universe / T. Kibble // Phys. Today 60, 47-52 (2007).
6. Artyukhin S. Landau theory of topological defects in multiferroic hexagonal manganites / S. Artyukhin, K.T. Delaney, N.A. Spaldin, M. Mostovoy // Nature materials 13, 42-49 (2014).
7. Mermin N.D. The topological theory of defects in ordered media / N.D. Mermin // Rev. Mod. Phys. 51, 591-648 (1979).
8. Auciello O. The physics of ferroelectric memories/ O. Auciello, J. F. Scott, R. Ramesh // Physics Today 51, 22-27 (1998).
9. Garcia V. Ferroelectric tunnel junctions for information storage and processing / V. Garcia, M. Bibes // Nature Communications 5, 4289 (2014).
10. Chanthbouala A. A ferroelectric memristor / A. Chanthbouala et al. // Nature Materials 11, 860–864 (2012).
11. Lee D. Multilevel data storage memory using deterministic polarization control / D. Lee et al. // Advanced Materials 24, 402-406 (2012).
12. Huang L. High K Capacitors and OFET gate dielectrics from self-assembled BaTiO<sub>3</sub> and (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub> nanocrystals in the superparaelectric limit / L. Huang, Z. Jia, I. Kymissis, S. O'Brien // Advanced Materials 20, 554–560 (2010).

13. Paniagua S.A. Surface-initiated polymerization from barium titanate nanoparticles for hybrid dielectric capacitors / S.A. Paniagua et al. // *Appl. Mater. Interfaces* 6, 3477–3482 (2014).
14. Lichtensteiger C. Oxide Ultrathin Films: Science and Technology, Ferroelectricity in Ultrathin-Film Capacitors. *Oxide Ultrathin Films: Science and Technology* / C. Lichtensteiger et al. // Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA (2012).
15. Shur V. Ya. Domain shape instabilities and dendrite domain growth in uniaxial ferroelectrics / V. Ya. Shur, A. R. Akhmatkhanov // *Phil. Trans. R. Soc. A* 376, 20170204 (2017).
16. Mangeri J. Topological phase transformations and intrinsic size effects in ferroelectric nanoparticles / J. Mangeri et al. // *Nanoscale* 9, 1616-1624 (2017).
17. Naumov I.I. Unusual phase transitions in ferroelectric nanodisks and nanorods / I.I. Naumov, L. Bellaiche, H. Fu // *Nature* 432, 737-740 (2004).
18. Pilania G. Ab initio study of ferroelectricity in BaTiO<sub>3</sub> nanowires / G. Pilania, S.P. Alpay, R. Ramprasad // *Phys. Rev. B* 80, 014113 (2009).
19. Tinte S. Surface effects and ferroelectric phase transitions in BaTiO<sub>3</sub> ultrathin films / S. Tinte, M.G. Stachiotti // *Phys. Rev. B* 64, 235403 (2001).
20. Chen W.J. Phase field simulations of stress controlling the vortex domain structures in ferroelectric nanosheets / W.J. Chen, Y. Zheng, B. Wang // *Appl. Phys. Lett.* 100, 062901 (2012).
21. Sichuga D. Domain evolution in epitaxial (001) Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> ultrathin films under an electric field applied along the [111] direction / D. Sichuga, L. Bellaiche // *Phys. Rev. B* 85, 214111 (2012).
22. Yun W.S. Ferroelectric properties of individual barium titanate nanowires investigated by scanned probe microscopy / W.S. Yun, J.J. Urban, Q. Gu, H. Park // *Nano Letters* 2, 447-450 (2002).

23. O'Brien S. Synthesis of monodisperse nanoparticles of barium titanate: toward a generalized strategy of oxide nanoparticle synthesis / S. O'Brien, L. Brus, C.B. Murray // *J. Am. Chem. Soc.* 123, 12085-12086 (2001).
24. Urban J.J. Synthesis of single-crystalline perovskite nanorods composed of barium titanate and strontium titanate / J.J. Urban, W.S. Yun, Q. Gu, H. Park // *J. Am. Chem. Soc.* 124, 1186-1187 (2002).
25. Luo Y. Nanoshell tubes of ferroelectric lead zirconate titanate and barium titanate / Y. Luo et al. // *Appl. Phys. Lett.* 83, 440-442 (2003).
26. Ahn C.H. Local, nonvolatile electronic writing of epitaxial  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3/\text{SrRuO}_3$  heterostructures / C.H. Ahn et al. // *Science* 276, 1100-1103 (1997).
27. Liu C. Sol-gel synthesis of free-standing ferroelectric lead zirconate titanate nanoparticles / C. Liu, B. Zou, A.J. Rondinone, Z.J. Zhang // *J. Am. Chem. Soc.* 123, 4344-4345 (2001).
28. Polking M.J. Ferroelectric order in individual nanometre-scale crystals / M.J. Polking et al. // *Nature Materials* 11, 700-709 (2012).
29. Han M.-G. Ferroelectric switching dynamics of topological vortex domains in a hexagonal manganite / M.-G. Han et al. // *Advanced Materials* 25, 2415-2421 (2013).
30. Cottet M.J.G. Quantitative imaging of flux vortices in the type-II superconductor  $\text{MgB}_2$  using cryo-Lorentz transmission electron microscopy / M.J.G. Cottet et al. // *Phys. Rev. B* 88, 014505 (2013).
31. Balke N. Enhanced electric conductivity at ferroelectric vortex cores in  $\text{BiFeO}_3$  / N. Balke et al. // *Nature Physics* 8, 81-88 (2012).
32. Ievlev A. V. Ionic field effect and memristive phenomena in single-point ferroelectric domain switching / A. V. Ievlev, A. N. Morozovska, E. A. Eliseev, V. Ya. Shur, S. V. Kalinin // *Nature Communications* 5, 5545 (2014).
33. Chen J. Probing strain in bent semiconductor nanowires with Raman spectroscopy / J. Chen et al. // *Nano Lett.* 10, 1280-1286 (2010).



34. Ulvestad A. Topological defect dynamics in operando battery nanoparticles / A. Ulvestad et al. // *Science* 348, 1344-1347 (2015).
35. Abbey B. From grain boundaries to single defects: a review of coherent methods for materials imaging in the X-ray sciences / B. Abbey // *JOM* 65, 1183-1201 (2013).
36. Pietsch U. High-resolution X-ray scattering: from thin films to lateral nanostructures / U. Pietsch, V. Holy, T. Baumbach // Springer (2013).
37. Le Bolloc'h D. Charge density wave dislocation as revealed by coherent X-ray diffraction / D. Le Bolloc'h et al. // *Phys. Rev. Lett.* 95, 116401 (2005).
38. Cloetens P. Quantitative phase contrast tomography using coherent synchrotron radiation / P. Cloetens et al. // *Proc. SPIE* 4503, 82-91 (2002).
39. Gomez L.F. Shapes and vorticities of superfluid helium nanodroplets / L.F. Gomez et al. // *Science* 345, 906-909 (2014).
40. Robinson I. Coherent X-ray diffraction imaging of strain at the nanoscale / I. Robinson, R. Harder // *Nature Materials* 8, 291-298 (2009).
41. Newton M.C. Bonsu: the interactive phase retrieval suite / M.C. Newton, Y. Nishino, I.K. Robinson // *J. Appl. Cryst.* 45, 840-843 (2012).
42. Provatas N. Phase-Field Methods in Materials Science and Engineering / N. Provatas, K. Elder // Wiley-VCH (2010).
43. Yoshimura T. Polarization Hysteresis Loops of Ferroelectric Gate Capacitors Measured by Sawyer-Tower Circuit / T. Yoshimura, N. Fujimura // *Jpn. J. Appl. Phys.* 42, 6011 (2003).
44. 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)
45. 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).

46. Карпов Д.А. Воздействия низкотемпературной плазмы и  $\gamma$ -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).

47. 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).

48. 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).

49. 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).

50. 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).

51. 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).

52.Karpov D. Magnetoelectric Coupling Characteristics of the  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{PbZr}_{0.2}\text{Ti}_{0.8}\text{O}_3$  (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).

53.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).

54.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).

55.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).

56.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).

57.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).

58.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, 16313 (2015).

59.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).

60. Karpov D.A. Influence of Low-Temperature Plasma and  $\gamma$ -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).

61. 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).

62. 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).

63. Jackson J.D. *Classical electrodynamics* / J.D. Jackson // New York, Wiley (1962).

64. Goodman J.W. *Introduction to Fourier Optics* / J.W. Goodman // Roberts & Company Publishers, (2005).

65. Lauterborn W. *Coherent optics: fundamentals and applications* / W. Lauterborn, T. Kurz, M. Wiesenfeldt // Berlin, Springer (1995).

66. Hecht E. *Optics* / E. Hecht // Addison-Wesley Longman, Inc. (2002).

67. Mandel L. Coherence properties of optical fields / L. Mandel, E. Wolf // *Reviews of Modern Physics* 37, 231-287 (1965).

68. Goodman J.W. *Statistical Optics* / J.W. Goodman // John Wiley & Sons (1985).

69. Pfeiffer F. Shearing interferometer for quantifying the coherence of hard x-ray beams / F. Pfeiffer et al. // *Phys Rev Lett.* 94, 164801 (2005).

70. Van der Veen F. Coherent x-ray scattering / F. Van der Veen, F. Pfeiffer // *J. Phys. Cond. Matt.*, 16, 5003–5030 (2004).

71. Фетисов Г.В. Синхротронное излучение. Методы исследования структуры веществ / Г.В. Фетисов // Москва, Физматлит (2007).

72. Als-Nielsen J. *Elements of modern X-ray physics* / J. Als-Nielsen, D. McMorrow // John Wiley & Sons, Ltd. (2001).

73. Attwood D. X-Rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications / D. Attwood, A. Sakdinawat // Cambridge University Press (2017).

74. Koningsberger D.C. X-ray Absorption: Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES / D.C. Koningsberger, R. Prins // John Wiley (1988).

75. Rack A. The high resolution synchrotron-based imaging stations at the BAMline (BESSY) and TopoTomo (ANKA) / A. Rack et al. // Proc. of SPIE Vol. 7078, 70780X (2008).

76. Parkinson D.Y. Quantitative 3-D imaging of eukaryotic cells using soft x-ray tomography / D.Y. Parkinson et al. // J Struct Biol. 162, 380-386 (2008).

77. Momose A. Phase-sensitive imaging and phase tomography using X-ray interferometers / A. Momose // Optics Express 19, 2303-2314 (2003).

78. Kohmura Y. Shearing X-ray interferometer with an X-ray prism / Y. Kohmura, T. Ishikawa, H. Takano, Y. Suzuki // J. Appl. Phys. 93, 2283-2285 (2003).

79. Kaulich B. Differential interferometric contrast X-ray microscopy with twin zone plates / B. Kaulich et al. // J. Opt. Soc. Am. A 19, 797-806 (2002).

80. Tamasaku K. X-ray interferometry with multocrystal components using intensity correlation / K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa // Phys. Rev. Lett. 88, 044801 (2002).

81. Fienup J.R. Phase retrieval algorithms - a comparison / J.R. Fienup // Appl. Opt. 21, 2758-2769 (1982).

82. Miao J. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometresized non-crystalline specimens / J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, D. Sayre // Nature 400, 342-344 (1999).

83. Шмаков А. Н. Модернизированная экспериментальная рентгенодифракционная станция на канале №2 вывода синхротронного излучения накопителя электронов ВЭПП-3 / А. Н. Шмаков, Б. П. Толочко, Е. Н. Дементьев, М. А. Шеромов // Журнал Структурной Химии 7, 1395-1400 (2016).

84. Шмаков А. Н. Комплексная диагностика структуры сложно-оксидных материалов и металлических катализаторов рентгенодифракционными методами на

синхротронном излучении / А. Н. Шмаков, О. Ю. Подъячева // Журнал Структурной Химии 4, 826-834 (2014).

85. Chapman H.N. Coherent lensless X-ray imaging / H.N. Chapman, K.A. Nugent // Nature Photonics 4, 833–839 (2010).

86. Williams G.J. Fresnel coherent diffractive imaging / G.J. Williams et al. // Phys. Rev. Lett. 97, 025506 (2006).

87. Giewekemeyer K. Quantitative biological imaging by ptychographic X-ray diffraction microscopy / K. Giewekemeyer et al. // PNAS 107, 529-534 (2010).

88. Schropp A. Hard x-ray scanning microscopy with coherent radiation: Beyond the resolution of conventional x-ray microscopes / A. Schropp et al. // Appl. Phys. Lett. 100, 253112 (2012).

89. Clark J.N. Ultrafast three-dimensional imaging of lattice dynamics in individual gold nanocrystals / J.N. Clark et al. // Science 341, 56-59 (2013).

90. Sayre D. Some implications of a theorem due to Shannon / D. Sayre // Acta Cryst. 5, 843 (1952).

91. Shannon C.E. Communication in the presence of noise / C.E. Shannon // Proc. Inst. Radio Eng. 37, 10-21 (1949).

92. Котельников В.А. О пропускной способности эфира и проволоки в электросвязи / В.А. Котельников // Материалы к I Всесоюзному съезду по вопросам технической реконструкции дела связи и развития слаботочной промышленности, 1-19 (1933).

93. Tripathi A. Dichroic coherent diffractive imaging / A. Tripathi // PhD thesis, UC San Diego (2012).

94. Nocedal J. Numerical optimization / J. Nocedal, S.J. Wright // New York, Springer Verlag (1999).

95. Nocedal J. Updating Quasi-Newton Matrices with Limited Storage / J. Nocedal // Math. of Comp. 35, 773-782 (1980).

96. Elser V. Phase retrieval by iterated projections / V. Elser // J. Opt. Soc. Am. A 20, 40-55 (2003).

97. Elser V. Searching with iterated maps / V. Elser, I. Rankenburg, P. Thibault // PNAS 104, 418-423 (2007).
98. Gerchberg R.W. A practical algorithm for the determination of the phase from image and diffraction plane pictures / R.W. Gerchberg, W.O. Saxton // Optik 35, 237-246 (1972).
99. Henke B.L. X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at  $E = 50-30,000$  eV,  $Z = 1-92$  / B.L. Henke, E.M. Gullikson, J.C. Davis // Atomic Data and Nuclear Data Tables 54, 181-342 (1993).
100. Kirz J. Soft X-ray microscopes and their biological applications / J. Kirz, C. Jacobsen, M. Howells // Quarterly Reviews of Biophysics 28, 33-130 (1995).
101. Marchesini S. X-ray image reconstruction from a diffraction pattern alone / S. Marchesini et al. // Physical Review B 68, 140101 (2003).
102. Chen J.P.J. Reconstruction of an object from diffraction intensities averaged over multiple object clusters / J.P.J. Chen, R.D. Arnal, A.J. Morgan // J. Opt. 18, 114003 (2016).
103. Marchesini S. Phase aberrations in diffraction microscopy / S. Marchesini et al. // PAP Conf. Series 7, 380-382 (2006).
104. Chapman H.N. High-resolution ab initio three-dimensional x-ray diffraction microscopy / H.N. Chapman H.N. // J. Opt. Soc. Am. A 23, 1179-1200 (2006).
105. Janesick J.R. Scientific Charge-coupled Devices / J.R. Janesick // SPIE Press (2001).
106. Jähne B. EMVA 1288 standard for machine vision: objective specification of vital camera data / B. Jähne // Optik & Photonik 5, 53-54 (2010).
107. Williams G.J. Coherent diffractive imaging and partial coherence / G.J. Williams, H.M. Quiney, A.G. Peele, K.A. Nugent // Physical Review B 75, 104102 (2007).
108. Abbey B. Keyhole coherent diffractive imaging / B. Abbey et al. // Nature Physics 4, 394-398 (2008).
109. Chen B. Diffraction imaging: The limits of partial coherence / B. Chen et al. // Phys. Rev. B 86, 235401 (2012).

110. Dierolf M. Development of a lensless microscopy technique for imaging cellular structures / M. Dierolf // PhD thesis, Ulm University (2007).
111. Spence J.C.H. Coherence and sampling requirements for diffractive imaging / J.C.H. Spence, U. Weierstall, M. Howells // *Ultramicroscopy* 101, 149-152 (2004).
112. Chen B. Partial Coherence: a Route to Performing Faster Coherent Diffraction Imaging / B. Chen, B. Abbey, R. Dilanian // *Journal of Physics: Conference Series* 463, 012033 (2013).
113. Спецификация фотодетектора pco.pixelfly usb [электронный ресурс], URL: <https://www.pco.de/sensitive-cameras/pcopixelfly-usb/>.
114. Thibault P. Optical diffraction microscopy in a teaching laboratory / P. Thibault, I.C. Rankenburg // *Am. J. Phys.* 75, 827-832 (2007).
115. Wang B. Keratin: Structure, mechanical properties, occurrence in biological organisms, and efforts at bioinspiration / B. Wang, W. Yang, J. McKittrick, M.A. Meyers // *Progress in Materials Science* 76, 229-318 (2016).
116. Abbe E. Beitrge zur theorie des mikroskops und der mikroskopischen wahrnehmung / E. Abbe // *Archiv fuer mikroskopische Anatomie* 9, 413–468 (1873).
117. Rayleigh L. On the theory of optical images, with special reference to the microscope / L. Rayleigh // *Philosophical Magazine* 42, 167-195 (1896).
118. Zhang S. A self-assembly pathway to aligned monodomain gels / S. Zhang et al. // *Nature materials* 9, 594–601 (2010).
119. Warriner H.E. Lamellar biogels: fluid-membrane-based hydrogels containing polymer lipids / H.E. Warriner et al. // *Science* 271, 969–973 (1996).
120. Schmidt-Mende L. Self-organized discotic liquid crystals for high-efficiency organic photovoltaics / L. Schmidt-Mende et al. // *Science* 293, 1119-1122 (2001).
121. Vlasin O. Optical imaging of nonuniform ferroelectricity and strain at the diffraction limit / O. Vlasin et al. // *Scientific reports* 5, 15800 (2015).
122. Yang H. Morphogenesis of shapes and surface patterns in mesoporous silica / H. Yang, N. Coombs, G.A. Ozin // *Nature* 386, 692–695 (1997).



123. El Goresy A. An ultradense polymorph of rutile with seven-coordinated titanium from the ries crater / A. El Goresy et al. // *Science* 293, 1467–1470 (2001).
124. Higgins M.D. Imaging birefringent minerals without extinction using circularly polarized light / M.D. Higgins // *The Canadian Mineralogist* 48, 231–235 (2010).
125. Maiden A.M. An improved ptychographical phase retrieval algorithm for diffractive imaging / A.M. Maiden, J.M. Rodenburg // *Ultramicroscopy* 109, 1256–1262 (2009).
126. Gureyev T. Linear algorithms for phase retrieval in the fresnel region / T. Gureyev, A. Pogany, D. Paganin, S. Wilkins // *Optics communications* 231, 53–70 (2004).
127. Kim J.-H. Tristable nematic liquid-crystal device using micropatterned surface alignment / J.-H. Kim, M. Yoneya, H. Yokoyama // *Nature* 420, 159–162 (2002).
128. Lyou D.J. Effects of domain size on physical properties of a thermotropic liquid crystalline polyester / D.J. Lyou, S.C. Kim // *Polymer journal* 29, 279–285 (1997).
129. Ghosh S. Conducting polymer nanostructures for photocatalysis under visible light / S. Ghosh et al. // *Nature materials* 14, 505–511 (2015).
130. Inoue T. Dynamic birefringence of amorphous polyolefins ii. measurements on polymers containing five-membered ring in main chain / T. Inoue et al. // *Polymer Journal* 27, 943–950 (1995).
131. Kaplan M.W. Birefringence in biological materials / M.W. Kaplan // 21st Annual Technical Symposium, International Society for Optics and Photonics, 112–119 (1977).
132. Woltman S.J. Liquid-crystal materials find a new order in biomedical applications / S.J. Woltman, G.D. Jay, G.P. Crawford // *Nature materials* 6, 929–938 (2007).
133. Gao F. *Advances in polymer nanocomposites* // Woodhead Publishing (2012)
134. Castles F. Stretchable liquid-crystal blue-phase gels / F. Castles et al. // *Nature materials* 13, 817–821 (2014).
135. Kumar S. *Liquid crystals in the nineties and beyond* / S. Kumar // World Scientific (1995).

136. Sornette D. Stripe magnetic domains and lyotropic liquid crystals / D. Sornette // *Journal de Physique* 48, 1413–1417 (1987).
137. Sparavigna A. Periodic stripe domains and hybrid-alignment regime in nematic liquid crystals: Threshold analysis / A. Sparavigna, O. Lavrentovich, A. Strigazzi // *Physical Review E* 49, 1344-1352 (1994).
- 138 Kurioz P. Nematic topological defects positionally controlled by geometry and external fields / P. Kurioz et al. // *Beilstein J. Nanotechnol.* 9, 109-118 (2018).
139. Miao J. Atomic electron tomography: 3D structures without crystals / J. Miao, P. Ercius, S.J.L. Billinge // *Science* 353, aaf2157 (2016).
140. Dong C. PowderX: Windows-95-based program for powder X-ray diffraction data processing / Dong C. // *J. Appl. Cryst.* 32, 838 (1999).
141. Sancaktar E. Electrically Conductive Epoxy Adhesives / E. Sancaktar, L. Bai // *Polymers* 3, 427-466 (2011).
142. Li Y. Electrical conductive adhesives with nanotechnologies / Y. Li, D. Lu, C.P. Wong // Springer (2010).
143. Tanaka T. SPECTRA - a synchrotron radiation calculation code / T. Tanaka, H. Kitamura // *J. Synchrotron Radiation* 8, 1221-1228 (2001).
144. Minkevich A.A. Selective coherent x-ray diffractive imaging of displacement fields in (Ga,Mn)As/GaAs periodic wires / A.A. Minkevich et al. // *Phys. Rev. B* 84, 054113 (2011).
145. Watari M. Differential stress induced by thiol adsorption on faceted nanocrystals / M. Watari, R.A. McKendry, M. Vöggtli // *Nature Materials* 10, 862-866 (2011).
146. Wu C.M. Controllability of vortex domain structure in ferroelectric nanodot: fruitful domain patterns and transformation paths / C.M. Wu et al. // *Scientific Reports* 4, 3946 (2014).
147. Pilania G. Complex polarization ordering in PbTiO<sub>3</sub> nanowires: a first-principles computational study / G. Pilania, R. Ramprasad // *Phys. Rev. B* 82, 155442 (2010).

148. Yadav A.K. Observation of polar vortices in oxide superlattices // A.K. Yadav et al. // *Nature* 530, 198–201 (2016).
149. Hong L. Vortex structure transformation of BaTiO<sub>3</sub> nanoparticles through the gradient function / L. Hong, A.K. Soh, S.Y. Liu, L. Lu // *Journal of Applied Physics* 106, 024111 (2009).
150. Fong D.D. Direct structural determination in ultrathin ferroelectric films by analysis of synchrotron x-ray scattering measurements / D.D. Fong et al. // *Phys. Rev. B* 71, 144112 (2005).
152. Sághi-Szabó G. First-principles study of piezoelectricity in PbTiO<sub>3</sub> / G. Sághi-Szabó, R.E. Cohen, H. Krakauer // *Phys. Rev. Lett.* 80, 4321 (1998).
153. Hayward S.A. The pressure–temperature phase diagram of BaTiO<sub>3</sub>: a macroscopic description of the low-temperature behaviour / S.A. Hayward, E.K.H. Salje // *J. Phys.: Condens. Matter* 14, L599 (2002).
154. Kalyani A.K. Metastable monoclinic and orthorhombic phases and electric field induced irreversible phase transformation at room temperature in the lead-free classical ferroelectric BaTiO<sub>3</sub> / A.K. Kalyani et al. // *Phys. Rev. B* 91, 104104 (2015).
155. Shieh J. Hysteresis behaviors of barium titanate single crystals based on the operation of multiple 90° switching systems / J. Shieh, J.H. Yeh, Y.C. Shu, J.H. Yen // *Materials Science and Engineering: B* 161, 50-54 (2009).
156. Naumov I. Vortex-to-polarization phase transformation path in ferroelectric Pb(ZrTi)O<sub>3</sub> nanoparticles / I. Naumov, H. Fu // *Phys. Rev. Lett.* 98, 077603 (2007).

## ПРИЛОЖЕНИЕ 1. ОСНОВЫ ПОЛЯРИМЕТРИИ

Целью представляемого далее введения в поляризационные свойства электромагнитного излучения является короткое описание основных концепций и условных обозначений, используемых в данной работе. В данном приложении будет описан формализм Джонса и Стокса для описания поляризованной и частично поляризованной волны, а также основные характеристики волны, такие как степень поляризации, степень деполяризации, дихроизм, двойное лучепреломление и т.д.

### Полностью поляризованная монохроматическая волна

Поляризация – это явление распределения физической величины или процесса в пространстве или во времени строго определенным образом, свойственное в первую очередь поперечным волнам.

Электромагнитное излучение может быть описано колебаниями двух полей: электрического поля  $\mathbf{E}$  и магнитного поля  $\mathbf{B}$ . Колебания поля в одной из плоскостей и называется поляризацией волны. Описание поляризации проводится через разложение вектора колебания электрического или магнитного поля по двум ортогональным компонентам. Следует заметить, что необходимым и достаточным условием описания колебания электромагнитной волны является описание либо вектора электрического поля, либо вектора магнитного поля, так как оба вектора являются связанными и в пределе классических процессов изменение одного вектора можно получить за счет знаний об изменении второго через уравнения Максвелла.

Рассмотрим плоскую монохроматическую электромагнитную волну. Электрическое поле такой волны можно описать с помощью следующего уравнения:

$$\mathbf{E}(z, t) = \Re\{\mathbf{A} \cdot e^{i 2\pi \nu (t - z/c)}\}, \quad (1)$$

где  $z$  – направление распространения волны,  $t$  – время,  $\nu$  – частота волны и  $c$  – скорость распространения волны, принимаемая равной скорости света в вакууме, а также  $\mathbf{A}$  – комплексная огибающая, описываемая следующим выражением:

$$\mathbf{A} = A_x \hat{\mathbf{x}} + A_y \hat{\mathbf{y}}, \quad (2)$$

где  $A_x$  и  $A_y$  комплексные компоненты вида  $A_x = E_{0x}e^{i\varphi_x}$  и  $A_y = E_{0y}e^{i\varphi_y}$ . В данном представлении  $E_{0x}$  и  $E_{0y}$  – амплитуды колебания,  $\varphi_x$  и  $\varphi_y$  – фазы колебания рассматриваемой электромагнитной волны. Теперь колебание электрического поля может быть представлено в виде:

$$\mathbf{E}(z, t) = \Re \left\{ E_{0x} \cdot e^{i 2\pi \nu \left( t - \frac{z}{c} \right) + \varphi_x} \right\} \cdot \hat{\mathbf{x}} + \Re \left\{ E_{0y} \cdot e^{i 2\pi \nu \left( t - \frac{z}{c} \right) + \varphi_y} \right\} \cdot \hat{\mathbf{y}}. \quad (3)$$

Уже на данном этапе становится заметна эллиптическая траектория, в общем случае описываемая данным уравнением. Для удобства анализа и описания поляризации можно переписать данный вектор по двум ортогональным компонентам в матричном виде:

$$\mathbf{E}(z, t) = \left\{ \begin{bmatrix} E_{0x} e^{i\varphi_x} \\ E_{0y} e^{i\varphi_y} \end{bmatrix} \cdot e^{i 2\pi \nu \left( t - \frac{z}{c} \right)} \right\}. \quad (4)$$

На данном этапе можно ввести понятие вектора Джонса, определяющего состояние поляризации полностью когерентной электромагнитной волны:

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{0x} e^{i\varphi_x} \\ E_{0y} e^{i\varphi_y} \end{bmatrix}. \quad (5)$$

Используя формулу Эйлера, перейдем к представлению ортогональных векторов электрического поля в тригонометрических функциях:

$$E_x = E_{0x} \cos(2\pi \nu (t - z/c) + \varphi_x), \quad (6)$$

$$E_y = E_{0y} \cos(2\pi \nu (t - z/c) + \varphi_y). \quad (7)$$

Данное представление является параметрическим уравнение эллипса вида:

$$\frac{E_x^2}{E_{0x}^2} + \frac{E_y^2}{E_{0y}^2} - 2 \cos \varphi \frac{E_x E_y}{E_{0x} E_{0y}} = \sin^2 \varphi, \quad (8)$$

где  $\varphi$  – разница в фазе между двумя ортогональными колебаниями.

Данный эллипс представлен на рис. 1а со следующими параметрами:

$\alpha$  – угол между диагональю прямоугольника, описанного вокруг эллипса, принимающий значения от 0 до 90°, и заданный таким образом, что  $\tan \alpha = E_{0y}/E_{0x}$ .

$\theta$  – угол между главной осью эллипса и нашей ортогональной системой координат. Данный угол может принимать значения от 0 до 90°.

$\varepsilon$  – эксцентриситет (или эллиптичность). Данный параметр может принимать значения от 0 до 45°. Если эксцентриситет равен нулю, эллипс становится линией, а при 45 – кругом.

Данные параметры связаны между собой следующими соотношениями:

$$\sin 2\varepsilon = \sin 2\alpha \sin \varphi \quad (9)$$

$$\tan 2\theta = \tan 2\alpha \cos \varphi \quad (10)$$

$$\tan 2\varepsilon = \sin 2\theta \tan \varphi \quad (11)$$

Одно из главных преимуществ использования метода векторов Джонса – это сравнительно простое описание системы, где полностью поляризованный свет взаимодействует с оптическими материалами со строго линейными характеристиками. В таком взаимодействии материал будет описываться передаточной матрицей Джонса. Например, взаимодействие волны с линейным горизонтальным поляризатором может быть описано методом матриц Джонса следующим образом:

$$\begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix}^{\text{конечное состояние}} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix}^{\text{начальное состояние}} \quad (12)$$

Под строго линейными характеристиками понимается то, что материал может обладать анизотропией в коэффициенте преломления, но не менять некоторые свойства падающей волны. Например, материал не может деполаризовывать волну. Для описания материала, обладающего деполаризующим воздействием, требуется использовать вектора Стокса и метод матриц Мюллера.

### **Частично-поляризованная частично-монохроматическая волна**

Монохроматическая волна с полной зависимостью между ортогональными компонентами электрического поля является идеальной моделью. Более общим и практически интересным случаем является волна с небольшим уширением спектра

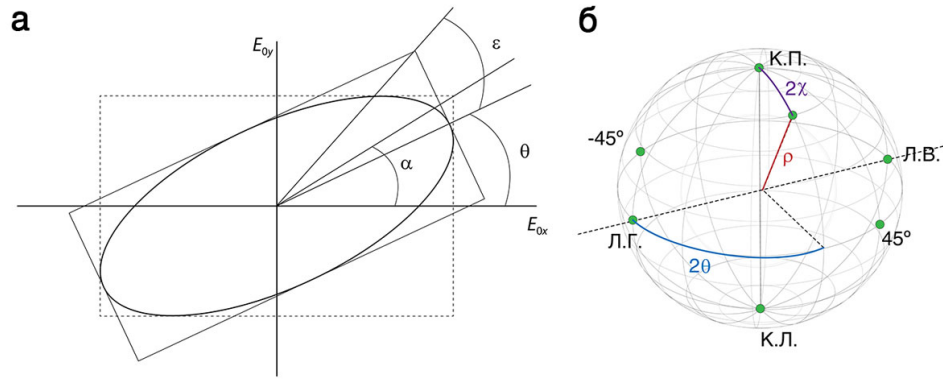


Рисунок 1 – (а) Эллипс поляризации с соответствующими поляриметрическими углами. (б) Сфера Пуанкаре для представления частично поляризованной волны.

( $\Delta\lambda$  и  $\Delta\omega$ ) и зависящими от времени фазой и амплитудой ортогональных компонент волны.

Для описания данного класса волн требуется учесть, что электрическое поле является случайной двумерной величиной с нулевым средним значением и требует статистического подхода. В теории вероятностей описание статистических процессов, представленных векторами, дается через ковариационную матрицу, которая определяет пространственную дисперсию данных векторов. Диагональные элементы ковариационной матрицы представляют дисперсию компонент рассматриваемых векторов, в то время как недиагональные элементы описывают меру линейной зависимости между компонентами данных векторов (ковариацию). В случае оптических процессов данную матрицу принято называть матрицей когерентности вида:

$$\Gamma = \langle \mathbf{E} \mathbf{E}^* \rangle = \begin{bmatrix} \langle |\mathbf{E}_x(z, t)|^2 \rangle & \langle \mathbf{E}_x(z, t) \mathbf{E}_y^*(z, t) \rangle \\ \langle \mathbf{E}_x^*(z, t) \mathbf{E}_y(z, t) \rangle & \langle |\mathbf{E}_y(z, t)|^2 \rangle \end{bmatrix} =$$

$$\begin{bmatrix} \langle |\mathbf{E}_{0x}(z, t)|^2 \rangle & \langle \mathbf{E}_x(z, t) \mathbf{E}_y(z, t) e^{i(\varphi_x - \varphi_y)} \rangle \\ \langle \mathbf{E}_x(z, t) \mathbf{E}_y(z, t) e^{-i(\varphi_x - \varphi_y)} \rangle & \langle |\mathbf{E}_{0y}(z, t)|^2 \rangle \end{bmatrix} \quad (13)$$

Используя матрицу когерентности, можно описать частично поляризованную волну с помощью вектора Стокса вида:

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & i & -i & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Gamma_{xx} \\ \Gamma_{xy} \\ \Gamma_{yx} \\ \Gamma_{yy} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \langle |\mathbf{E}_{0x}(z, t)|^2 + |\mathbf{E}_{0y}(z, t)|^2 \rangle \\ \langle |\mathbf{E}_{0x}(z, t)|^2 - |\mathbf{E}_{0y}(z, t)|^2 \rangle \\ \langle \mathbf{E}_x(z, t)\mathbf{E}_y(z, t)e^{i(\varphi_x - \varphi_y)} + \mathbf{E}_x(z, t)\mathbf{E}_y(z, t)e^{-i(\varphi_x - \varphi_y)} \rangle \\ \langle i(\mathbf{E}_x(z, t)\mathbf{E}_y(z, t)e^{i(\varphi_x - \varphi_y)} - \mathbf{E}_x(z, t)\mathbf{E}_y(z, t)e^{-i(\varphi_x - \varphi_y)}) \rangle \end{bmatrix} \quad (14)$$

Из уравнения (13) видно, что метод Стокса позволяет представить частично-поляризованную волну в разложении на интенсивности волн с различным состоянием поляризации. Таким образом, упрощенный вид уравнения (13) следующий:

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_{Л.Г.} + I_{Л.В.} \\ I_{Л.Г.} - I_{Л.В.} \\ I_{45} - I_{-45} \\ I_{К.Л.} - I_{К.П.} \end{bmatrix} \quad (15)$$

где  $I_{Л.Г.}$  и  $I_{Л.В.}$  – соответственно интенсивности линейной горизонтальной и линейной вертикальной компонент разлагаемого ансамбля волн,  $I_{45}$  и  $I_{-45}$  – соответственно интенсивности линейной поляризации с наклоном в  $45^\circ$  и  $-45^\circ$  от горизонтальной оси для компонент разлагаемого ансамбля,  $I_{К.Л.}$  и  $I_{К.П.}$  – соответственно интенсивности круговой правой и круговой левой компонент разлагаемого ансамбля волн.

### Представление поляризации на сфере Пуанкаре

Одним из способов визуализации состояний частичной поляризации волны, а точнее вектора Стокса, является представление на сфере Пуанкаре (рисунок 1б). Любое состояние поляризации является точкой на поверхности сферы. Координатами точки в данном случае являются три нормализованных параметра Стокса (так как четвертый параметр показывает суммарную интенсивностью сигнала), которые полностью описывают состояние поляризации. Полюса сферы Пуанкаре



представляют собой состояния с круговой поляризацией, в то время как экваториальная линия представляет состояния с линейной поляризацией под разным углом. Все остальные точки между ними соответствуют различным состояниям эллиптической поляризации. Связь между координатами на сфере и параметрами эллипса поляризации представляется следующим образом:

$$S_0 = I \quad (16)$$

$$S_1 = Ip \cos 2\theta \cos 2\chi \quad (17)$$

$$S_2 = Ip \sin 2\theta \cos 2\chi \quad (18)$$

$$S_3 = Ip \sin^2 2\chi \quad (19)$$

где  $Ip$ ,  $2\theta$  и  $2\chi$  являются сферическими координатами состояния поляризации, причем фактор  $p$  определяет степень поляризацию волны и может принимать значения от 0 до 1, где в случае 1 волна будет полностью поляризованная и точка, определяющая поляризацию, будет находиться на поверхности сферы, в остальных же случаях точка будет находиться внутри сферы. На меридианах сферы Пуанкаре значение азимута эллипса поляризации постоянно, на параллелях сферы Пуанкаре значение эксцентриситета эллипса поляризации постоянно. Важно отметить, что точки, находящиеся рядом на сфере Пуанкаре, обладают близкой поляризацией и видимость интерференционной картины волн, определяемых точками на сфере Пуанкаре, напрямую зависит от расстояния между этими точками в сферических координатах (т.е. на изоповерхности). Таким образом, ортогональные состояния поляризации, находящиеся на противоположных сторонах сферы, интерференционно не взаимодействуют между собой.

Элегантность визуализации состояния поляризации на сфере Пуанкаре будет видна далее, при рассмотрении взаимодействия поляризованной световой волны с оптически анизотропной средой.

## Взаимодействие поляризованного света с оптически анизотропной средой

Все материалы можно условно разделить на две категории: оптически изотропные и оптически анизотропные. К первой категории относятся в основном некристаллические вещества, либо кристаллические вещества с полной симметрией по осям. Рассмотрение взаимодействия поляризованной волны с такими материалами не является интересным в рамках данной работы, так как в общем такие материалы не изменяют поляризацию падающей волны. В свою очередь оптически анизотропными средами чаще всего являются одноосные и двуосные кристаллы, а также кристаллы с большим числом степеней свободы, либо псевдокристаллы, такие как нематические жидкие кристаллы, рассматриваемые в данной работе. Данный класс веществ довольно обширен и отличается от изотропных материалов тем, что оптически анизотропные вещества обладают различными коэффициентами преломления по различным осям. Это свойство анизотропных сред является причиной их сильных поляризующих свойств и ставит вопрос об описании взаимодействия поляризованной волны с анизотропными средами.

Одним из наиболее удобных методов описания линейного изменения поляризации волны при прохождении через тонкий оптический элемент или образец является матричный метод. В этом методе используется уже введенный формализм Джонса и Стокса для описания вектора падающей и выходящей поляризованных волн, а также матрица описания поляризационных свойств образца.

Следуя логике данного приложения, падающее излучение можно разделить на два случая: полностью поляризованное состояние когерентной волны и частично поляризованное состояние. В первом случае образец может быть представлен матрицей Джонса  $\mathbf{T}$  размера  $2 \times 2$ , и тогда взаимодействие волны с образцом будет описываться как:

$$\mathbf{J}_{\text{состояние}}^{\text{конечное}} = \mathbf{T} \times \mathbf{J}_{\text{состояние}}^{\text{начальное}} \quad (20)$$

$$\mathbf{T} = \begin{bmatrix} T_{XX} & T_{XY} \\ T_{YX} & T_{YY} \end{bmatrix} \quad (21)$$

Матричный формализм легко переносится на составные образцы и оптические элементы. В случае если электромагнитная волна проходит через  $N$  элементов, описываемых матрицами Джонса  $\mathbf{T}_N$ , то систему данных элементов можно представить, как произведение отдельных матриц.

Анализ матрицы Джонса позволят определить основные измеряемые свойства, которыми обладает оптически анизотропный образец (но без учета деполяризации волны). Данный анализ можно произвести через разложение матрицы на собственные вектора и собственные значения. Если предположить, что  $v_i$  являются собственными векторами матрицы  $\mathbf{T}$ , а  $\lambda_i$  являются собственными значениями, то можно записать следующее выражение  $\mathbf{T} v_i = \lambda_i v_i$ . Такие собственные вектора  $v_i$  будут представлять собственные состояния поляризации в данном образце, то есть такие состояния поляризации, которые проходят через образец без изменений. В то же время абсолютная величина комплексных собственных значений, полученных при данном разложении, будет определять поглощение соответствующих собственных состояний поляризации, а их комплексный аргумент будет определять сдвиг по фазе в соответствующих состояниях поляризации. Тогда можно определить скалярные величины, такие как анизотропия поглощения  $D$  и запаздывание по фазе  $R$ :

$$D = \frac{|\lambda_1| - |\lambda_2|}{|\lambda_1| + |\lambda_2|} \quad \text{и} \quad R = |\phi_1| - |\phi_2| \quad (22)$$

В случае если образец наводит частичную деполяризацию на волну, либо если необходимо рассмотреть частично поляризованную и частично когерентную падающую волну, формализм Джонса становится недостаточным. В таком случае необходимо воспользоваться введенным ранее формализмом Стокса, добавив к нему матрицу Мюллера  $\mathbf{M}$  размером 4x4, позволяющую описать поляризационные и деполяризационные свойства образца. Процесс взаимодействия таким образом будет представлен матричным уравнением вида:

$$\mathbf{S}_{\text{состояние}}^{\text{конечное}} = \mathbf{M} \times \mathbf{S}_{\text{состояние}}^{\text{начальное}} \quad (23)$$

При этом матрица Мюллера связана с матрицей Джонса через унитарную матрицу  $\Lambda$  как  $\mathbf{M} = \Lambda^T (\mathbf{J} \otimes \overline{\mathbf{J}^*}) \Lambda$ . Унитарная матрица задается как:

$$\Lambda = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & -i & 0 \\ 0 & 1 & i & 0 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (24)$$

Используя формализм Стокса и матрицу Мюллера, можно экспериментально получить поляризационные свойства образца. В этом случае обычно осуществляются замеры интенсивности без образца при разных комбинациях поляризатора и анализатора, которые затем повторяются для измерений с образцом. По данным комбинациям составляется матрица Мюллера, анализ которой позволяет найти такие характеристики, как деполяризация образца, коэффициент двойного лучепреломления, а также анизотропия поглощения. В качестве анализа используются методы линейной алгебры, такие как прямое, обратное и дифференциальное разложение матрицы Мюллера на матрицы описывающие различные характеристики анизотропии.

## ПРИЛОЖЕНИЕ 2. СИСТЕМА УПРАВЛЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТОМ ACCORD

## Инициализация основных управляющих классов

```
1. import serial
2. import time
3.
4.
5. class Controller(object):
6.     # Controller class for LCC25
7.
8.     def __init__(self, port='COM3', boud_rate=115200):
9.         # starting, assuming that connection is not established yet.
10.        self.port = port
11.        self.boud_rate = boud_rate
12.        self.ser = serial.Serial(port, boud_rate)
13.
14.    def check_connection(self):
15.        # checks if the communication is established
16.        if(self.ser.isOpen() == False):
17.            self.ser.open()
18.            self.connected = True
19.            print 'connection re-established'
20.
21.    def delay_command(self):
22.        time.sleep(0.3)
23.
24.    def close_connection(self):
25.        # close the connection to serial port
26.        self.ser.close()
27.        print 'connection closed'
28.
29.    def set_voltage1(self, voltage=0):
30.        if voltage < 0:
31.            raise ValueError('the voltage is too low: can not be less than 0V')
32.        elif voltage > 25:
33.            raise ValueError('the voltage is too high: can not be more than 25V')
34.        self.check_connection()
35.        self.ser.write('volt1='+str(voltage)+'\r')
36.        self.delay_command()
37.        print 'voltage on channel 1 was set to {} Volts'.format(voltage)
38.
```

```
39. def set_voltage2(self, voltage=0):
40.     if voltage < 0:
41.         raise ValueError('the voltage is too low: can not be less than 0V')
42.     elif voltage > 25:
43.         raise ValueError('the voltage is too high: can not be more than 25V')
44.     self.check_connection()
45.     self.ser.write('volt2='+str(voltage)+'\r')
46.     self.delay_command()
47.     print 'voltage on channel 2 was set to {} Volts'.format(voltage)
48.
49. def set_modulation(self, modulation=150):
50.     if modulation < 5:
51.         raise ValueError('the modulation frequency is too low: can not be less than 5
52. Hz')
52.     elif modulation > 150:
53.         raise ValueError('the modulation frequency is too high: can not be more than
54. 150Hz')
54.     self.ser.write('freq='+str(modulation)+'\r')
55.     print 'modulation frequency was set to {} Hz'.format(modulation)
56.
57. def set_output_mode(self, mode):
58.     if mode == 'modulation':
59.         self.ser.write('mode=0\r')
60.     elif mode == 'voltage1':
61.         self.ser.write('mode=1\r')
62.     elif mode == 'voltage2':
63.         self.ser.write('mode=2\r')
64.     else: raise ValueError('wrong output mode. try modulation, voltage1 or voltage
65. 2')
65.     print 'output mode is', mode
66.
67. def enable_output(self):
68.     self.ser.write('enable=1\r')
69.
70. def disable_output(self):
71.     self.ser.write('enable=0\r')
72.
73. def setup_test(self, dwell_time=500, voltage_increment=1, voltage_min=0, voltage_max=20):
74.     self.check_connection()
75.     self.ser.write('dwell='+str(dwell_time)+'\r')
```

```
76.     self.delay_command()
77.     self.ser.write('increment='+str(voltage_increment)+'\r')
78.     self.delay_command()
79.     self.ser.write('min='+str(voltage_min)+'\r')
80.     self.delay_command()
81.     self.ser.write('max='+str(voltage_max)+'\r')
82.     self.delay_command()
83.     print 'test has been set up'
84.
85.     def run_test(self):
86.         self.check_connection()
87.         self.ser.write('test\r')
88.         print 'running test... watch the controller now'
89.
90.     def incident_polar(self):
91.         self.set_voltage1(1.058)
92.
93.     def orthogonal_polar(self):
94.         self.set_voltage1(1.862)
95.
96.     def righthand_polar(self):
97.         self.set_voltage1(1.392)
98.
99.     def lefthand_polar(self):
100.         self.set_voltage1(2.982)
101.
102.     class Motor(object):
103.
104.         def __init__(self, port='COM6', boud_rate=115200):
105.             self.port = port
106.             self.boud_rate = boud_rate
107.             self.ser = serial.Serial(port, boud_rate)
108.             if(self.ser.isOpen() == False):
109.                 self.ser.open()
110.
111.         def check_connection(self):
112.             # checks if the communication is established
113.             if(self.ser.isOpen() == False):
114.                 self.ser.open()
115.                 self.connected = True
116.                 print 'connection re-established'
```

```
117.
118.     def close_connection(self):
119.         # close the connection to serial port
120.         self.ser.close()
121.         print 'connection closed'
122.
123.     def mv_small(self, steps):
124.         steps = int(steps) # to make sure the value is integer
125.         self.check_connection()
126.         if (steps < -2000) or (steps > 2000):
127.             raise ValueError('step is too large. collision is possible.')
128.         if (steps >= 0):
129.             for i in range(steps):
130.                 self.ser.write('3')
131.         if (steps < 0):
132.             for i in range(abs(steps)):
133.                 self.ser.write('4')
134.
135.     def mv_large(self, steps):
136.         steps = int(steps) # to make sure the value is integer
137.         self.check_connection()
138.         if (steps < -50) or (steps > 50):
139.             raise ValueError('step is too large. collision is possible.')
140.         if (steps >= 0):
141.             for i in range(steps):
142.                 self.ser.write('1')
143.         if (steps < 0):
144.             for i in range(abs(steps)):
145.                 self.ser.write('2')
146.
147.     class Trigger(object):
148.         # Trigger sends the 'start' signal to the Arduino
149.         # which in turn triggers the camera acquisition.
150.         # Trigger then waits until the 'busy' signal is
151.         # lowered and the acquisition is finished.
152.
153.     def __init__(self, port='COM5', boud_rate=9600):
154.         self.port = port
155.         self.boud_rate = boud_rate
156.         self.ser = serial.Serial(port, boud_rate)
157.
```



```
158.     def check_connection(self):
159.         if(self.ser.isOpen() == False):
160.             self.ser.open()
161.             self.connected = True
162.             print 'connection re-established'
163.
164.     def serial_write(self):
165.         # sends 'start' trigger
166.         print 'sending trigger...'
167.         self.ser.write('1')
168.
169.     def wait_trigger(self, busy='1'):
170.         # waits until 'busy' signal is lowered
171.         self.busy = self.ser.read()
172.         print '... waiting trigger'
173.         while self.busy == '1':
174.             self.busy = self.ser.read()
175.         print 'trigger done'
176.
177.     def close_connection(self):
178.         # close the connection to serial port
179.         self.ser.close()
180.         print 'connection closed'
181.
182.     def send_trigger(self):
183.         self.check_connection()
184.         self.serial_write()
185.         self.wait_trigger()
186.         return
187.
188.     class Piezos(object):
189.
190.         def __init__(self, port='COM4', boud_rate=921600):
191.             self.port = port
192.             self.boud_rate = boud_rate
193.             self.ser = serial.Serial(port, boud_rate)
194.             if(self.ser.isOpen() == False):
195.                 self.ser.open()
196.                 self.ser.write('MR\r')
197.                 print 'piezos connected and set to remote'
198.                 #self.measure('x')
```

```
199.         #self.measure('y')
200.
201.     def check_connection(self):
202.         # checks if the communication is established
203.         if(self.ser.isOpen() == False):
204.             self.ser.open()
205.             self.connected = True
206.             print 'connection re-established'
207.
208.     def close_connection(self):
209.         # close the connection to serial port
210.         self.ser.close()
211.         print 'connection closed'
212.
213.     def delay_command(self):
214.         time.sleep(0.3)
215.
216.     def get_status(self, axis):
217.         self.check_connection()
218.         if (axis == 'x') or (axis == 'X'):
219.             self.ser.write('1TS\r')
220.         elif (axis == 'y') or (axis == 'Y'):
221.             self.ser.write('2TS\r')
222.         status = int(self.ser.readline()[3:-2])
223.         if status == 0:
224.             message = 'ready'
225.         elif status == 1:
226.             message = 'moving'
227.         elif status == 2:
228.             message == 'jog'
229.         elif status == 3:
230.             message == 'long motion'
231.         return message
232.
233.
234.     def measure(self, axis):
235.         self.check_connection()
236.         t1 = time.time()
237.         if (axis == 'x') or (axis == 'X'):
238.             self.ser.write('1MA\r')
239.         elif (axis == 'y') or (axis == 'Y'):
```

```
240.         self.ser.write('2MA\r')
241.         print 'measuring position on {0} axis...'.format(axis)
242.         pos = int(self.ser.readline()[3:-2])
243.         print 'measurement done in {:.2f} seconds'.format(time.time()-t1)
244.         print 'position of {0} axis is {1}'.format(axis, pos)
245.         return pos
246.
247.     def mv_absolute(self, axis, pos):
248.         self.check_connection()
249.         t1 = time.time()
250.         if (axis == 'x') or (axis == 'X'):
251.             self.ser.write('1PA {0}\r'.format(str(pos)))
252.         elif (axis == 'y') or (axis == 'Y'):
253.             self.ser.write('2PA {0}\r'.format(str(pos)))
254.         print 'Started absolute motion on {0} axis to position {1}...'.format(axis,
pos)
255.         newPos = int(self.ser.readline()[3:-2])
256.         print 'Absolute motion is done in {:.2f} seconds'.format(time.time()-t1)
257.         print 'Initiated pos={0}, current pos={1}'.format(pos, newPos)
258.
259.     def mvrX(self, pos):
260.         self.check_connection()
261.         self.ser.write('1PR {0}\r'.format(str(pos)))
262.         print 'Move X axis by {0} units...'.format(pos)
263.         stat = 'busy'
264.         while (stat != 'ready'):
265.             stat = self.get_status('X')
266.         print stat
267.
268.     def mvrY(self, pos):
269.         self.check_connection()
270.         self.ser.write('2PR {0}\r'.format(str(pos)))
271.         print 'Move Y axis by {0} units...'.format(pos)
272.         stat = 'busy'
273.         while (stat != 'ready'):
274.             stat = self.get_status('Y')
275.         print stat
276.
277.     def move_depolarizer(self):
278.         self.mvrY(-8000)
279.         self.mvrY(16000)
```

```

280.         self.mvrY(-16000)
281.         self.mvrY(8000)
282.
283.     motorino = Motor()
284.     piccoli = Piezos()
285.     triggerino = Trigger()
286.     lcc = Controller()

```

### Имплементация управления шаговым мотором через микроконтроллер

```

1. //Declare pin functions on Arduino
2. #define stp 2
3. #define dir 3
4. #define MS1 4
5. #define MS2 5
6. #define MS3 6
7. #define EN 7
8.
9. //Declare variables for functions
10. char user_input;
11. int x;
12. int y;
13. int state;
14.
15. void setup() {
16.   pinMode(stp, OUTPUT);
17.   pinMode(dir, OUTPUT);
18.   pinMode(MS1, OUTPUT);
19.   pinMode(MS2, OUTPUT);
20.   pinMode(MS3, OUTPUT);
21.   pinMode(EN, OUTPUT);
22.   resetBEDPins(); //Set step, direction, microstep and enable pins to default states
23.   Serial.begin(115200); //Open Serial connection
24. }
25.
26. //Main loop
27. void loop() {
28.   while(Serial.available() > 0){
29.     user_input = Serial.read(); //Read user input and trigger appropriate function
30.     digitalWrite(EN, LOW); //Pull enable pin low to set FETs active and allow moto
        r control
31.     if (user_input == '1')

```

```
32.  {
33.    StepForwardDefault();
34.  }
35.  else if(user_input =='2')
36.  {
37.    StepReverseDefault();
38.  }
39.  else if(user_input =='3')
40.  {
41.    StepForwardSmall();
42.  }
43.  else if(user_input =='4')
44.  {
45.    StepReverseSmall();
46.  }
47.  else
48.  {
49.    Serial.println("Invalid option entered.");
50.  }
51.  resetBEDPins();
52. }
53.}
54.
55.//Reset Big Easy Driver pins to default states
56.void resetBEDPins()
57. {
58.  digitalWrite(stp, LOW);
59.  digitalWrite(dir, LOW);
60.  digitalWrite(MS1, LOW);
61.  digitalWrite(MS2, LOW);
62.  digitalWrite(MS3, LOW);
63.  digitalWrite(EN, HIGH);
64. }
65.
66.//Default microstep mode function
67.void StepForwardDefault()
68. {
69.  digitalWrite(dir, LOW); //Pull direction pin low to move "forward"
70.  for(x= 1; x<25; x++) //Loop the forward stepping
71.  {
72.    digitalWrite(stp,HIGH); //Trigger one step forward
```

```

73. delay(1);
74. digitalWrite(stp,LOW); //Pull step pin low so it can be triggered again
75. delay(1);
76. }
77.}
78.
79.//Reverse default microstep mode function
80.void StepReverseDefault()
81. {
82. digitalWrite(dir, HIGH); //Pull direction pin high to move in "reverse"
83. for(x= 1; x<25; x++) //Loop the reverse stepping
84. {
85. digitalWrite(stp,HIGH); //Trigger one step
86. delay(1);
87. digitalWrite(stp,LOW); //Pull step pin low so it can be triggered again
88. delay(1);
89. }
90.}
91.
92.// 1/16th microstep foward mode function
93.void StepForwardSmall()
94. {
95. digitalWrite(dir, LOW); //Pull direction pin low to move "forward"
96. digitalWrite(MS1, HIGH); //Pull MS1,MS2, and MS3 high to set logic to 1/16th mi
    crostep resolution
97. digitalWrite(MS2, HIGH);
98. digitalWrite(MS3, HIGH);
99. for(x= 1; x<25; x++) //Loop the forward stepping
100.     {
101.         digitalWrite(stp,HIGH); //Trigger one step forward
102.         delay(1);
103.         digitalWrite(stp,LOW); //Pull step pin low so it can be triggered again
104.         delay(1);
105.     }
106. }
107.
108. void StepReverseSmall()
109.     {
110.         digitalWrite(dir, HIGH); //Pull direction pin low to move in "reverse"
111.         digitalWrite(MS1, HIGH); //Pull MS1,MS2, and MS3 high to set logic to 1/1
        6th microstep resolution

```

```

112.     digitalWrite(MS2, HIGH);
113.     digitalWrite(MS3, HIGH);
114.     for(x= 1; x<25; x++) //Loop the forward stepping
115.     {
116.         digitalWrite(stp,HIGH); //Trigger one step reverse
117.         delay(1);
118.         digitalWrite(stp,LOW); //Pull step pin low so it can be triggered again
119.         delay(1);
120.     }
121. }

```

### Имплементация запуска экспозиции детектора через микроконтроллер

```

1. // PCO trigger which is started with python over serial
2.
3. int outPin = 11; // pin channel to trigger
4. int inPin = 7; // pin channel from busy state
5. int busy = 0; // variable to store the busy value
6. int incomingByte = 0; // variable for listening to serial port
7.
8. void setup(){
9. // Open serial connection.
10. Serial.begin(9600);
11. pinMode(outPin, OUTPUT);
12. pinMode(inPin, INPUT);
13. Serial.write('1');
14.}
15.
16.
17.void loop() {
18.
19. // send data only when you receive data:
20. if (Serial.available() > 0) {
21.     Serial.write('1');
22.     // read the incoming byte:
23.     incomingByte = Serial.read();
24.     if (incomingByte == '1') {
25.         digitalWrite(outPin, HIGH);
26.         digitalWrite(outPin, LOW);
27.         incomingByte = 0;
28.     }
29.

```

```
30.     busy = digitalRead(inPin);
31.     while (busy == 1) {
32.         Serial.write('1');
33.         busy = digitalRead(inPin);
34.     }
35.     Serial.write('0');
36. }
37. }
```



### ПРИЛОЖЕНИЕ 3. МОДЕЛЬ ФАЗОВОГО ПОЛЯ ДЛЯ ИССЛЕДУЕМОЙ ЧАСТИЦЫ ТИТАНАТА БАРИЯ

Недавние теоретические исследования с использованием моделей фазового поля предсказывают присутствие вихревых топологий в титанате бария и других сегнетоэлектрических наноструктурах, а также возможность управления данными топологиями, используя как однородное, так и неоднородное электрические поля. В модели фазового поля доменная структура наночастицы может быть описана пространственным распределением поляризации  $\mathbf{P}(P_1, P_2, P_3)$ , а полная свободная энергия системы может быть записана как:

$$F = \int dV (f_L + f_{ela} + f_g + f_e), \quad (25)$$

где  $f_L$  – плотность свободной энергии Ландау-Девошира,  $f_{ela}$  – плотность энергии упругой деформации,  $f_g$  – плотность градиентной энергии и  $f_e$  – плотность электростатической энергии. Для сегнетоэлектриков со структурой типа перовскита, плотность свободной энергии Ландау-Девоншира может быть записана как:

$$\begin{aligned} f_L = & \alpha_1 \sum_i P_i^2 + \alpha_{11} \sum_i P_i^4 + \alpha_{12} \sum_{i>j} P_i^2 P_j^2 + \alpha_{111} \sum_i P_i^6 + \alpha_{112} \sum_{i>j} (P_i^4 P_j^2 + P_i^2 P_j^4) + \\ & \alpha_{123} \prod_i P_i^2 + \alpha_{111} \sum_i P_i^8 + \alpha_{112} \sum_{i>j} (P_i^6 P_j^2 + P_i^2 P_j^6) + \alpha_{1122} \sum_{i>j} P_i^4 P_j^4 + \\ & \alpha_{1123} \sum_{i \neq j \neq k, j > k} P_i^4 P_j^2 P_k^2, \end{aligned} \quad (26)$$

где  $\alpha_i, \alpha_{ij}, \alpha_{ijk}, \alpha_{ijkl}$  – экспериментально определяемые параметры Ландау. Кроме того, плотность электростатической энергии можно расписать как:

$$f_{ela} = \frac{1}{2} C_{ijkl} (\varepsilon_{ij} - \varepsilon_{ij}^0) (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^0), \quad (27)$$

где  $C_{ijkl}$  – тензор упругости,  $\varepsilon_{ij}$  – суммарная деформация, а  $\varepsilon_{ij}^0 = Q_{ijkl} P_k P_l$  описывает спонтанную деформацию, где  $Q_{ijkl}$  – коэффициент электрострикции. Предполагается, что тензор упругости одинаковый в наночастице и окружающей полимерной матрице. Плотность электростатической энергии может быть найдена через выражение:

$$f_e = (\mathbf{E} \cdot \mathbf{P})/2, \quad (28)$$

где  $\mathbf{E}$  – электростатическое поле в наночастице и может быть оценено из электростатического потенциала  $\varphi$  как  $\mathbf{E} = -\nabla\varphi$ . При этом в модели пространство предполагается свободным от заряда, и используя выражение  $\nabla \cdot (-\varepsilon_0\varepsilon_b\nabla\varphi + \mathbf{P}) = 0$ , где  $\varepsilon_0$  и  $\varepsilon_b$  проницаемость вакуума и фона, соответственно, можно получить значения электрического поля.

Для нахождения плотности градиентной энергии используется выражение:

$$f_g = \frac{1}{2}G_{ijkl}P_{ij}P_{kl} \quad (29)$$

где  $G_{ijkl}$  – коэффициент градиентной энергии.

В модели фазового поля временное изменение поляризации может быть получено из решения, зависящего от времени уравнения Гинзбурга-Ландау:

$$\frac{\delta P_i(\mathbf{r},t)}{\delta t} = -L \frac{\delta F}{\delta P_i(\mathbf{r},t)}, \quad (i = 1,2,3), \quad (30)$$

где  $L$  – кинетический коэффициент.

В данной работе, при моделировании условий эксперимента, были рассчитаны изменения в поляризации в наночастице, при этом величина поляризации в полимерной матрице поддерживалась постоянной и равной  $\mathbf{P} = \varepsilon_0\varepsilon_m\mathbf{E}$ , где  $\varepsilon_m$  является диэлектрической проницаемостью материала матрицы.

#### ПРИЛОЖЕНИЕ 4. АНАЛИЗ СИГНАТУРЫ СТРУКТУРНЫХ ФАЗ В ДИФРАКЦИОННОЙ КАРТИНЕ

Моноклинная фаза в наночастице титаната бария имеет заметное влияние на анализ когерентной дифракции в данной работе. Сигнатурой обнаруженной доменной стенки с моноклинной структурой в обратном пространстве является асимметрия и разделение пика Брэгга (рисунок 35). Для интерпретации сигнатур в обратном пространстве возле пика Брэгга от плоскости (111) рассмотрим упругое и сегнетоэлектрическое поле смещение в наночастице, данное как  $\mathbf{u}=\mathbf{u}_{111}$ . В кинематическом пределе и борновском приближении, амплитуда рассеянной наночастицей рентгеновской волны дана как:

$$I(\mathbf{q}) \sim \left| \int_V \rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot \mathbf{u}_{111}} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} d^3\mathbf{r} \right|^2 = \left| \int_V \tilde{\rho}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} d^3\mathbf{r} \right|^2, \quad (31)$$

где  $\rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r})$  – идеальное вещественное распределение брэгговской электронной плотности в объеме наночастицы и  $\tilde{\rho}(\mathbf{r}) = \rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot \mathbf{u}_{111}}$  представляет комплексное деформированное состояние сегнетоэлектрической наночастицы титаната бария. Для краткости, уравнение распределения интенсивности может быть интерпретировано как квадратная величина Фурье преобразования комплексной функции плотности:

$$I(\mathbf{q}) = |\mathcal{F}\{\tilde{\rho}(\mathbf{r})\}|^2. \quad (32)$$

При воздействии электрического поля в  $V_2=223$  кВ/см наночастица принимает моноклинную фазу с полем смещения  $\mathbf{u}_{111}=\mathbf{u}_M$ . Это подразумевает, что разделение пика при воздействии поля на наночастицу модулируется квадратом величины Фурье преобразования комплексной функции плотности:

$$\tilde{\rho}_M(\mathbf{r}) = \rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot \mathbf{u}_M}. \quad (33)$$

Дифракционная картина выражено центро-симметричная возле дифракции нулевого порядка с дополнительными менее интенсивными пиками 1го и -1го порядка, чье разделение также связано с моноклинной фазой. Под внешним полем  $V_1$  и  $V_3$  в наночастице происходят структурные изменения, выраженные в

сосуществовании тетрагональной и моноклинной фаз. Под этими двумя электрическими полями поле смещения может быть описано как  $\mathbf{u}_{111} = \mathbf{u}_M + \mathbf{u}_T$ . Это подразумевает, что комплексная электронная плотность имеет вид:

$$\tilde{\rho}_{M+T}(\mathbf{r}) = \rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot (\mathbf{u}_M + \mathbf{u}_T)}. \quad (34)$$

Данное переходное сосуществование между двумя фазами создает другую модуляцию с асимметрией пика Брэгга, отличную от чисто моноклинной фазы. Анализируя данное сосуществование, можно рассмотреть его как возмущение идеальной дифракционной картины от моноклинной фазы:

$$\tilde{\rho}_{M+T}(\mathbf{r}) = \rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot (\mathbf{u}_M + \mathbf{u}_T)} = \rho_{\mathbf{G}_{111}}(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot \mathbf{u}_M}e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot \mathbf{u}_T} = \tilde{\rho}_M(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{G}_{111} \cdot \mathbf{u}_T}. \quad (35)$$

Это можно интерпретировать как то, что центросимметрия дифракции Брэгга от частицы, имеющей только моноклинную структуру, модулируется доменами с тетрагональной структурой. Отличия между результатами моделирования и экспериментальными данными можно объяснить влиянием шума эксперимента, остаточной деформацией и другими физическими особенностями наночастицами, неучтенными моделью фазового поля.