ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ НАУКИ
ИНСТИТУТ БИОХИМИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ им. Н.М. ЭМАНУЭЛЯ
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

На правах рукописи

Мороков Егор Степанович

ИМПУЛЬСНАЯ АКУСТИЧЕСКАЯ МИКРОСКОПИЯ ДЛЯ ВИЗУАЛИЗАЦИИ МАЛОРАЗМЕРНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ОБЪЕМЕ МАТЕРИАЛОВ И НА ГРАНИЦАХ ИХ СОЕДИНЕНИЙ

Специальность: 01.04.01 «Приборы и методы экспериментальной физики»

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Москва – 2018 г.

Работа выполнена в ФГБУН Институт биохимической физики имени Н.М. Эмануэля РАН, в лаборатории акустической микроскопии.

Научный руководитель: **Левин Вадим Моисеевич**,
кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, зав. лабораторией акустической микроскопии Института биохимической физики им. Н.М. Эмануэля РАН

Официальные оппоненты: **Коробов Александр Иванович,**
доктор физико-математических наук, профессор по кафедре акустики «Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова»

Сорокин Борис Павлович,
доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник ФГБНУ «Технологический институт сверхтвердых и новых углеродных материалов»

Ведущая организация: ФГБУН Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова Российской академии наук

Защита состоится «17» октября 2018 года в ___-__ на заседании диссертационного совета Д 002.135.01 на базе Научно-технологического центра Уникального приборостроения РАН по адресу 117342, Москва, ул. Бутлерова, 15, в конференц. зале.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Научно-технологического центра уникального приборостроения РАН и на сайте http://ntcup.ru/zashhita-dissertacij/

Автореферат разослан «__» _____ 20__ года

Ученый секретарь
диссертационного совета Д 002.135.01,
к.ф.-м.н. Д.Ю. Великовский

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность исследования

Современный уровень развития техники предъявляет все большие требования к качеству материалов и готовых изделий из них. Речь идет, в первую очередь, о контроле внутренней микроструктуры материалов, об оценке качества адгезии в области соединения материалов, о контроле локальных прочностных и упругих характеристик и их распределения по объему материала или изделия. Наиболее перспективными в данной области являются ультразвуковые методы. Ультразвук проникает на достаточную глубину в объем большинства материалов, в том числе оптически непрозрачных, эффективно взаимодействует с внутренними границами раздела даже при небольших различиях акустических импедансов контактирующих сред. Использование ультразвуковых пучков позволяет наблюдать внутреннюю архитектуру сложноорганизованных материалов и изделий, выявлять дефекты в их объеме и на границах раздела твердых тел.

Неизменный интерес представляет сканирующая импульсная акустическая микроскопия (СИАМ), основанная, как и другие разновидности акустической микроскопии, на использовании фокусированных зондирующих пучков и растровом принципе формирования изображения. Но в СИАМ применяются длиннофокусные (малоапертурные) пучки и импульсные зондирующие сигналы. Длиннофокусные пучки обеспечивают проникновение в исследуемый объем всех лучей внутри падающей угловой апертуры, что позволяет перемещать фокус пучка на значительную глубину. Импульсные сигналы позволяют использовать временную селекцию для разделения эхо-сигналов, приходящих с различной глубины в объеме образца и стоить на их основе акустические изображения. С развитием техники импульсной акустической микроскопии на частотах от 50 до 200 МГц стала доступна визуализация объемной микроструктуры с латеральным разрешением до 10-20 микрон и измерение локальных объемных упругих свойств с тем же пространственным разрешением. Использование метода оказывается актуальным для многих материалов и технологий, но, прежде всего для визуализации и оценки объемной микроструктуры в материалах со сложной пространственной организацией.

Импульсная акустическая микроскопия оказывается перспективным методом для другой актуальной проблемы современного материаловедения - исследования и неразрушающего контроля микроструктуры границы раздела в зоне соединений материалов. Проблема границ в объеме материала или конструкции имеет фундаментальный характер – возникает вопрос о переходе одной микроструктуры к другой; о силах, обеспечивающих неразрывность среды, о свойствах и организации переходной зоны. С другой стороны, эта проблема актуальна для практики - внутренние границы в значительной степени определяют прочность конструкции, ее физические свойства (теплопроводность, электрические свойства и т.д.). Прямое исследование структуры границ раздела в области соединения материалов сталкивается с естественной трудностью – граница, как правило, недоступна для большинства стандартных методов структурных исследований. Исключение составляют ультразвуковые методы высокого разрешения и рентгеновская микротомография, причем импульсная акустическая микроскопия в этом случае имеет заведомые преимущества – с ее помощью могут отображаться т.н. закрытые трещины и отслоения: дефекты сплошности с шириной раскрытия, сравнимой с атомными размерами (5-10 Å и выше).

Существенным вопросом при визуализации внутренней структуры является пространственное разрешение, реализуемое при формировании акустических изображений глубинных структур ($h >> \lambda$). Визуализация структуры в объеме образца осуществляется сходящимися пучками, преломленными после прохождения ими границы иммерсии и образца. Структура пучка при преломлении существенно искажается. Конуса лучей, падающих в иммерсии под разными углами к границе раздела, собираются на оси пучка на разном расстоянии от границы раздела. В результате рефракционных аберраций фокус размывается и трансформируется в каустику. Применение известного критерия Рэлея, используемого при анализе разрешения на поверхности и подповерхностных структур, для оценки латерального разрешения на значительной глубине ($h>> \lambda$) в объеме образца неправомерно. Вместо него должна существовать оценка разрешения, обусловленная рефракционными аберрациями пучка в объеме исследуемого объекта.

В работе развитые методики и подходы применены для

экспериментального изучения упругих свойств, внутренней микроструктуры и неразрушающей оценки качества соединения современных плотных керамик. Высокие прочностные свойства керамик связаны, прежде всего, с характером их микроструктуры. Современные керамики формируются в виде структур с микро и наноразмерными кристаллическими зернами и минимальными межзеренными промежутками (≤ 10 нм). Однако в объеме керамических материалах присутствует значительное количество пор и включений с размерами от нескольких микрон до десятков и, даже, сотен микрон. Подобные поры и включения образуют сотовую структуру керамики. Присутствие такой структуры может сказываться на физических характеристиках керамики, в т.ч. на ее прочностных и упругих свойствах; однако оно не означает автоматически существенного падения прочности или упругости. Актуальной является разработка неразрушающих методов исследования и контроля микроструктуры керамики и установление связи между упругими свойствами и внутренней структурой керамики. Результаты экспериментального исследования представлены на примере керамик на основе ZrO_2.

Одной из областей активного практического использования ZrO_2 является медицинское протезирование. Как правило, стоматологическое протезирование подразумевает использование систем из двух соединенных материалов: керамика-керамика либо керамика-металл. Прочность изделия в целом будет зависеть как от прочностных и упругих свойств самих материалов, так и от качества адгезионного слоя между ними. Оценка структуры границы раздела для плотного контакта керамических материалов и выявления на границе соединения областей потери адгезии, безусловно, является актуальной проблемой не только с фундаментальной, но также и с практической точки зрения.

Цели и задачи диссертационной работы

Целью работы является разработка методов оценки и визуализации малоразмерных элементов объемной структуры твердых материалов и границ их соединения.

Основные задачи работы

1. Экспериментальное изучение и теоретическое описание взаимодействия коротких фокусированных импульсов высокочастотного ультразвука с

рассеивателями ($a<<\lambda$) в объеме твердого материала.

2. Экспериментальное изучение принципов отображения эхо-импульсов, создаваемых рассеивателями, на акустических изображениях – B- и C-сканах.
3. Теоретическое изучение механизмов формирования отраженных эхо-сигналов и анализ пространственного разрешения при визуализации внутренних границ соединения материалов.
4. Экспериментальное изучение принципов формирования акустических изображений внутренних границ соединения с разной степенью совершенства.

Положения, выносимые на защиту

1. Значительную роль в формировании акустических изображений объемной микроструктуры материалов играет излучение, рассеянное на малых элементах внутренней структуры, размер a которых может быть заметно меньше длины волны зондирующего ультразвука в материале ($a<<\lambda$).
2. Сходящийся зондирующий пучок в объеме материала является источником вторичного излучения, образуемого за счет дифракции на уединенных рассеивателях, вершинах трещин или отслоений. Прием дифрагированных волн приводит к искажению на акустических изображениях контуров элементов внутренней структуры, расположенных выше или ниже положения фокальной плоскости в объеме образца.
3. Выходные сигналы, образуемые за счет конверсии зондирующего пучка на границах пластинки, позволяют одновременно измерять локальные значения скоростей продольных L и поперечных T волн и рассчитывать на их основе упругие модули. Упругие характеристики керамик зависят от пористости, среднего размера и типа кристаллической модификации.
4. Латеральное разрешение при отображении элементов внутренних границ раздела определяется эффективной угловой апертурой пучка, глубиной положения границы и длиной волны зондирующего ультразвука в материале на рабочей частоте.
5. На границе соединения материалов фокусированный ультразвуковой пучок различает состояния идеального контакта, полного отсутствия адгезии и частичного контакта.

Личный вклад автора

Все результаты, представленные в работе, получены диссертантом лично, либо в соавторстве при его непосредственном участии.

Научная новизна результатов и выводов

1. Разработан подход для теоретической оценки чувствительности акустического микроскопа при визуализации малоразмерных элементов ($a<<\lambda$) в объеме твердого материала.
2. Показано, что искажение на акустических изображениях контуров элементов внутренней структуры, расположенных вне фокальной плоскости линзы, обусловлено приемом дифргированного излучения.
3. Впервые были получены акустомикроскопические данные об объемной микроструктуре керамик. Экспериментальные результаты показали высокую корреляцию с предложенными теоретическими оценками малоразмерных элементов в объеме материала, отображаемых на акустических изображениях.
4. Впервые методами акустической микроскопии получены экспериментальные результаты зависимости упругих характеристик современных плотных керамических материалов от уровня пористости, среднего размера зерна и кристаллической модификации.
5. Получен критерий оценки латерального разрешения, учитывающий рефракционные аберрации сходящихся ультразвуковых пучков в объеме твердого материала, при визуализации внутренних границ раздела.
6. Разработаны принципы интерпретации акустических изображений для границ соединения твердых материалов с разной степенью совершенства на примере соединений плотных керамик.

Практическая значимость работы

1. Результаты теоретической работы позволяют проводить оценку размеров возможных малоразмерных ($a<<\lambda$) элементов внутренней структуры, визуализированных на акустических изображениях. Подход актуален при исследованиях материалов с микромасштабными структурными элементами (композитные материалы в т.ч. керамики, углеродные нанокомпозиты и т.д).

2. Развитый подход для анализа пространственного разрешения зондирующих пучков может быть применен для широкого спектра ультразвуковых приборов высокого разрешения при визуализации микроструктуры в объеме (на глубине $h >> \lambda$) большинства твердых материалов.
3. Разработаные критерии оценки участков адгезионного соединения (идеальный контакт, протяженное отслоение и частичный контакт), позволяют проводить неразрушающий контроль высокого разрешения границ соединений материалов в частности современных плотных керамик.

Апробация работы

Основные результаты исследований докладывались на следующих международных и всероссийских конференциях:

1. XII межд. мол. конф. ИБХФ РАН-Вузы, Москва, Россия, 28-30 окт. 2012;
2. 32nd Int. Acoustical Imaging Symposium, Singapore, 29 April-1 May 2013;
3. International Conference MiMe-Materials in Medicine, Faenza,Italy, Oct 8-11 2013
4. The scientific conference of young scientists on Prosthetic Dentistry, dedicated to the memory of Professor Kurlyandskiy V.U., Moscow, Russia, Nov. 23, 2013;
5. 1-ая Всероссийская акустическая конф., Москва, Россия, 6-10 окт. 2014;
6. International Forum on Ultrasound Applications – Industrial. Biomedical and Clinical. (IFUA 2014), Kaohsiung, Taiwan, 26-27 Mart 2014;
7. XIV меж. мол. конф. ИБХФ РАН-Вузы, Москва, Россия, 28-30 окт. 2014;
8. 2015 Int. Congress on Ultrasonics (ICU 2015), Metz, France, may 10-14, 2015;
9. II Всероссийская молодежная научно-техническая конф. с международным участием "Инновации в материаловедении, Москва, Россия, 1-4 июня 2015.
10. "Успехи акустики - 2016", Москва, 1 ноября 2016.
11. Целиком диссертационная работа представлена на научном семинаре Научно-технологического центра уникального приборостроения РАН 27 июня 2017.

Публикации

Материалы диссертационной работы опубликованы в 12 печатных работах, в том числе в 8 статьях в рецензируемых журналах, включенных в перечень ВАК, а также в 10 докладах в сборниках трудов конференций.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из Введения, 5 Глав и Заключения, изложена на 128 страницах и содержит 40 рисунков, 6 таблиц и 143 библиографических ссылок.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **Введении** обосновывается актуальность темы диссертации, формулируется цель работы. Дается постановка отдельных задач в рамках поставленной цели. Излагается краткое содержание диссертации по главам.

В **Главе 1** даётся обзор литературы, в котором описаны основы акустической микроскопии (п.1.1), этапы её развития и основные принципы. Особое внимание уделяется фокусированным ультразвуковым системам (п.1.2). В п.1.2.1 описываются особенности формирования фокусированного пучка, его характеристики, в п.1.2.2 приводятся методы и режимы работы фокусированных ультразвуковых систем. В п.1.2.3 приводится обзор ультразвуковых методов для возбуждения и приема поверхностных и объемных упругих волн в изучаемом объекте и расчета на основе регистрируемых сигналов скоростей распространения волновых мод. В параграфе 1.2.4 рассматривается взаимодействие ультразвуковых пучков с границей соединения материалов. Основное внимание в литературе уделяется ультразвуковой характеризации зон частичного контакта с использованием квазистатической модели Баика и Томпсона [1]. В рамках модели описывается частотная зависимость коэффициентов отражения и прохождения, однако такая зависимость, как и в случае нелинейных эффектов, характерна только для низкочастотного ультразвука. При использовании высокочастотного фокусированного излучения значение коэффициента отражения и прохождения на границе контакта определяются долей площади нормальной адгезии внутри фокального пятна. В п.1.3 приводится описание режимов визуализации акустической микроскопии. Современная техника реализует 3D **(**квази-томографический) режим визуализации. При пошаговом механическом сканировании объекта в каждой точке сохраняется набора эхосигналов, отраженных от поверхностей образца и элементов его внутренней структуры. Собранная 4-х мерная база данных (три координаты и амплитуда/фаза эхосигнала) позволяет формировать растровые

изображения вертикальных сечений (B-сканы) и горизонтальных сечений (C-сканы) объекта. Непрерывное отображение горизонтальных секущих плоскостей от поверхности до дна образца позволяет неразрывно наблюдать объемную микроструктуру объекта.

Глава 2 посвящена современным плотным керамическим материалам, их микроструктуре и упругим свойствам. В параграфе 2.1 обсуждается влияние микроструктуры керамики, уровня пористости, среднего размера зерна и его кристаллической модификации на упругие свойства керамического материала. Описывается формирование микро- и мезоструктуры за счет образования межзерновых пор и агломератов в объеме керамики. Особое внимание уделяется керамике на основе ZrO_2, как объекту экспериментального микроакустического исследования в работе.

В п. 2.2 обсуждается проблема адгезии на границе соединения с керамической поверхностью. Описываются механизмы адгезии, возникающие на границе соединения – механическая, адсорбционная, химическая, диффузионная, электрическая теории. Потеря адгезии может происходить в виде полной потери контакта на ограниченном участке границы (отслоения, газовые и воздушные пузыри), либо в форме частичного контакта. В п. 2.3 приводится обзор методов исследования керамических материалов и их соединений. Разрушающим методикам исследования внутренней микроструктуры материала – оптической, электронной, атомносиловой микроскопии, методам рентгеновской визуализации противопоставляется акустическая микроскопия. Неразрушающий характер метода, получение данных о локальных упругих характеристиках материала делают методы акустической микроскопии актуальными и востребованными для исследования современных плотных керамик.

В **Главе 3** даётся теоретическое описание взаимодействия фокусированного ультразвукового пучка с частицами в объеме твердого материала размерами, много меньшими длины волны. Приводится подход для теоретической оценки возможных размеров включений, отображаемых импульсным акустическим микроскопом при объемной визуализации материалов. Оценка минимально возможного элемента сводится к задаче по нахождению значения выходного сигнала V_{sc} ультразвуковой системы после рассеяния на частице размером a (ka<<1) падающего излучения и сравнение V_{sc} с

уровнем шумовых сигналов акустического микроскопа. Поле внутри фокальной перетяжки малоапертурного фокусированного пучка рассматривается как падающий фронт ограниченных плоских волн, а включения с характерным размером a существенно меньшим длины волны – как сферические частицы. Оценки приводятся с использованием разложения по сферическим гармоникам и двух предельных случаев – рассеянием на очень жесткой и мягкой мишени. В результате амплитуды A монопольной (n = 0) и дипольной (n = 1) компоненты рассеяния на жесткой сфере имеют один и тот же порядок малости:

$$A_{0,1}^{\text{жест}} \approx \left(k_L a\right)^3 . \tag{1}$$

Для мягких малых рассеивателей амплитуды рассеянных сферических волн с разной симметрией оказываются разных порядков – амплитуда изотропной сферической гармоники с n = 0 существенно больше амплитуды дипольной составляющей рассеянного излучения:

$$\left| A_0^{\text{мягк}} \Big/ A_1^{\text{мягк}} \right| \approx 1/\left(ka\right)^2 \approx 1 . \tag{2}$$

Используя полученные значения амплитуд сферических гармоник, записаны выражения для рассеянного ультразвукового поля в среде для жесткой и мягкой частицы и сигналы V_{sc}, регистрируемые от обратно рассеянного на включениях излучения. Полученные выражения для эхосигналов были соотнесены с экспериментально найденной чувствительностью акустического микроскопа β~10^{-2}. Таким образом, получено выражение для оценки размера a минимального рассеивателя, наблюдаемого на акустическом изображении приповерхностного слоя (4÷5λ) исследуемого образца

$$\frac{V_{sc}}{V_B} > \beta \approx 10^{-2} = \frac{T_1 \cdot T_2}{R} \cdot \frac{a}{z_0} \cdot \begin{cases} \frac{5}{6} \cdot \left(ka\right)^2, & \text{жесткий рассеиватель} \\ 1, & \text{мягкий рассеиватель} \end{cases} \tag{3}$$

V_B – эхосигнал, отраженный от границы иммерсии и образца, T_1 и T_2 коэффициенты прохождения по давлению границы иммерсия – образец в прямом и обратном направлении; R– коэффициент отражения на той же границе; z_0– глубина рассеивателя. Рассчитаны минимальные размеры жесткого и мягкого рассеивателей в ZrO_2, которые могут быть визуализированы на изображениях:

$$a_0^{\text{жест}} \approx 0.12 \cdot \lambda , \tag{4}$$

$$a_0^{\text{мягк}} \approx 0.07 \cdot \lambda . \tag{5}$$

где λ - длина волны зондирующего излучения в керамике. Акустические линзы с рабочей частотой 100 МГц ($\lambda \approx 70$ мкм), позволяют визуализировать в объеме керамики отдельные мягкие включения (например, поры) размером до $a_0^{мягк} \sim 5$ мкм и жесткие включения $a_0^{жест} \sim 9$ мкм.

Глава 4 посвящена применению высокочастотных фокусированных ультразвуковых пучков для изучения объемной микроструктуры и упругих характеристик материалов на примере плотных керамик. В п. 4.1 дано описание экспериментальной установки, приведены методики измерения локальных упругих характеристик и исследования объемной микроструктуры твердых материалов.

В п. 4.2 приводятся результаты экспериментального измерения упругих характеристик керамических образцов. Для измерений использовалось: 1) пластинки циркониевой керамики и стеклокерамики – материалов, на основе которых изготовлены двухслойные образцы для изучения области соединения; 2) образцы ZrO_2 керамики с различной степенью пористости от 0.2 до 2.5%; 3) образцы корундовой керамики с различным средним размером зерна от 0.1 мкм до 20 мкм; 4) образцы циркониевой керамики различной кристаллической модификации. Для каждого образца была получена осциллограмма со стандартным набором эхосигналов от поверхности (В сигнал) и дна изотропного образца (*L, LT, T* сигналы). По временам задержки между эхосигналами и измеренной толщине образцов рассчитывались значения скоростей продольных c_L и поперечных c_T звуковых волн в образце. Рассчитанные величины скоростей и измеренная методом гидростатического взвешивания величина плотности ρ использовались для расчета локальных значений объемного K и сдвигового G модулей упругости материала, модуля Юнга E и коэффициента Пуассона μ.

Исследовано влияние структурных факторов, таких как пористость, размер зерен и кристаллическая модификация керамик на упругие свойства керамик. Показано, что изменение степени пористости от 0.2 до 2.5% приводит к снижению величины скорости продольных звуковых волн в керамике (таблица 1). Вариации упругих модулей в большей степени связаны с изменением плотности образца и в меньшей степени - с изменением скоростей звука. В таблице 2 приведены результаты экспериментальных измерений скоростей звука. Показано что рост зерен при спекании приводит к уплотнению керамики за счет спада

внутренней пористости, а также значительному увеличению скоростей продольных и поперечных волн. В таблице 3 представлены результаты измерений упругих характеристик ZrO_2, стабилизированной в моноклинной (ZrO_2-М) тетрагональной (ZrO_2-Т) и кубической (ZrO_2-С) модификации. Полученные данные хорошо коррелируют со значениями упругих модулей, ранее полученными в работах [2-4]. Погрешности при расчете скоростей распространения звуковых волн составили не более 5%, относительная ошибка измерения скоростей менее 1%; погрешность при расчете упругих характеристик составила ~5%.

Таблица 1. Значения упругих характеристик – скорости звука и модули упругости, керамики ZrO_2 в зависимости от степени пористости образца.

№	Порист., %	ρ, г/см^3	c_L, км/с	c_T, км/с	G, ГПа	K, ГПа	E, ГПа	μ
1	0.2	6.1428	6.989	3.520	76.1	198.8	202.5	0.33
2	0.6	6.1379	6.942	3.510	75.6	195.2	200.9	0.33
3	1.1	6.1124	6.949	3.526	75.9	194.1	201.7	0.33
4	1.5	6.0766	6.918	3.493	74.1	192.2	197.18	0.33
5	2.5	5.9399	6.778	3.471	71.6	177.7	189.3	0.32

Таблица 2. Скорости распространения продольных и поперечных ультразвуковых волн в керамиках Al_2O_3 с разным размером зерна.

№	Размер зерна, нм	ρ, г/см^3	c_L, км/с	c_T, км/с
1	100	3.62	10.330	5.939
2	200	3.74	10.420	6.208
3	300	3.86	10.968	6.570
4	500	3.87	11.089	6.475
5	1 000	3.88	11.259	6.608
6	7 000	3.92	11.015	6.369
7	12 000	3.95	11.279	6.644
8	20 000	3.97	11.453	6.567

Таблица 3. Значения упругих характеристик керамики, ZrO_2 стабилизированной в моноклинной (М), тетрагональной (Т) и кубической (С) модификации.

модификация	c_L,км/с	c_T,км/с	ρ, г/см^3	G, ГПа	K, ГПа	E, ГПа	μ
ZrO_2-М	7.547	4.123	5.52	93.8	189.6	241.6	0.29
ZrO_2-Т	7.091	3.658	5.82	77.9	189.1	205.4	0.32
ZrO_2-С	7.269	3.848	5.78	85.6	191.6	223.5	0.31

В параграфе 4.3 представлены результаты изучения взаимодействия фокусированных пучков с элементами внутренней микроструктуры плотных керамик. Структурные особенности объемной структуры были визуализированы с помощью B- и C- сканов, полученных акустической линзой с рабочей частотой 100 МГц. Показано что метод акустической микроскопии позволяет выявлять в объеме керамики включения, размеры которых варьируются от нескольких десятков микрон до сотен микрон (рис. 1а). Яркие точки на изображении внутренней структуры соответствуют включениям в объеме керамики. Высокие амплитуды сигналов, отраженных на частицах, позволяют говорить, что такие включения являются мягкими рассеивателями – порами. Присутствие малоразмерных (0.5-10 мкм) пор в образцах подтверждается атомносиловой микроскопией (AFM) (рис. 1б). Полученные экспериментальные результаты показывают справедливость теоретических оценок чувствительности акустической микроскопии для отображения мягких малоразмерных рассеивателей в объеме твердого материала (глава 3).

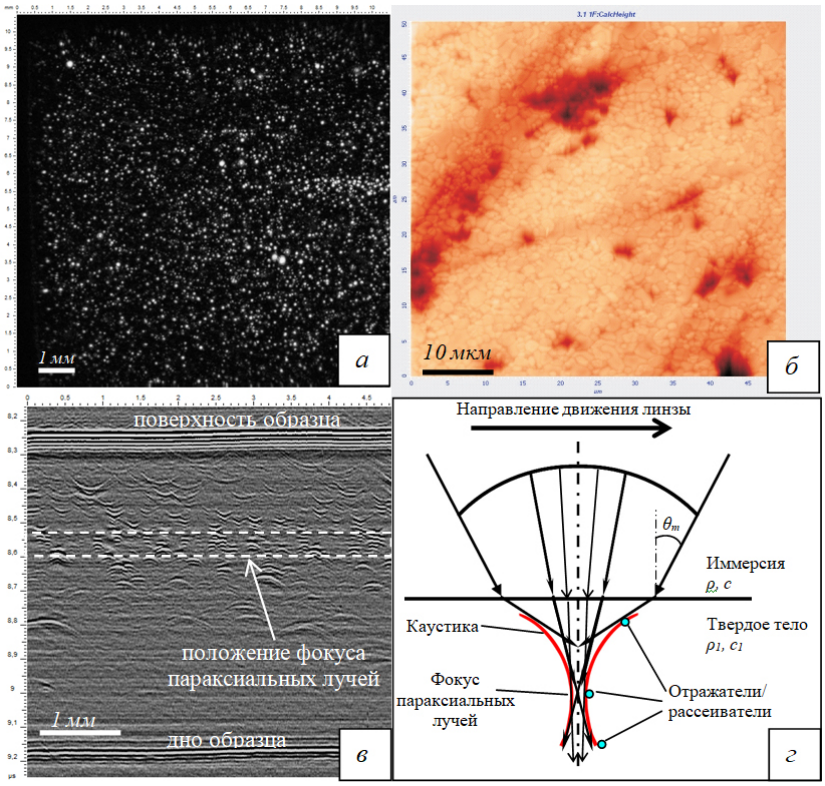

Рис. 1 *Изображения внутренней микроструктуры керамики. а) C-скан внутренней микроструктуры на глубине 780 мкм, толщина отображаемого слоя ~110 мкм; б) AFM изображение пористой структуры керамики; в) B-скан поперечного сечения образца. Прием дифрагированного излучения на элементах вне фокальной зоны формирует параболические линии; г) формирование каустики в объеме образца за счет сильного преломления лучей на границе с иммерсией. Элементы внутренней структуры, расположенные на разной глубине, начинают взаимодействовать со сходящимся пучком на разном удалении от оси пучка. Рабочая частота 100 МГц. Поле сканирования 10.5x10.5 мм.*

Из эксперимента следует, что существенную роль в формировании изображений объемной микроструктуры играет дифрагированное излучение, возникающее при взаимодействии вошедшего в объем образца фокусированного пучка с

элементами структуры - малоразмерными включениями, вершинами трещин, границами отслоений, расположенными вне фокальной плоскости пучка на разной глубине относительно фокуса параксиальных лучей (рис. 1г). Показано, что в результате приема дифрагированного излучения контуры таких элементов, расположенных выше и ниже фокальной плоскости зондирующего пучка, отображаются на В-скане в виде параболических линий с загнутыми вверх или вниз ветвями параболы. На С-сканах участие дифрагированных эхосигналов в формировании акустических изображений приводит к размыванию контуров на акустических изображениях и потере четкости изображения.

В Главе 5 изучаются акустические явления, определяющие формирование акустических изображений внутренних границ соединения. Приводится теоретическая модель для оценки разрешающей способности фокусированных пучков в объеме твердого тела после их преломления на границе иммерсия-образец. Оценки сопоставляются с результатами экспериментальных исследований границ соединения керамических материалов. Анализируются особенности формирования выходного сигнала в результате взаимодействия фокусированного пучка с основными элементами границы соединения, такими как отслоения и пузырьки воздуха, участки полного и частичного контакта, промежуточные и клеевые слои и принципы интерпретации акустических изображений в области границ раздела. Рассматривается возможность использования для визуализации внутренних границ пучков не только продольных, но и поперечных волн, образующихся за счет конверсии мод при прохождении зондирующего пучка границы раздела иммерсии и образца.

В п. 5.1 описывается методика эксперимента. В п. 5.2 представлен теоретический анализ латерального разрешения при формировании изображений границ раздела в объеме образца. Рассматривается визуализация структуры внутренней границы соединения 2-х материалов, расположенной на глубине $h>>\lambda$ и параллельной поверхности образца (рис. 2). Эхо от границы раздела обеспечивается лучами, входящими в состав прошедшего в объем материала пучка. Максимальный эхосигнал от внутренней границы приходит на приемную систему, когда отображаемая плоскость совпадает с плоскостью параксиального фокуса в объеме образца. Основной вклад в формирование эхосигнала вносится

лучами, прилегающими к оси пучка и приходящими на приемник со сдвигом фазы $\Phi(\theta)$, не превышающим величину π:

$$\Phi - \Phi_0 \le \pi . \qquad (6)$$

где $\Phi_0 = \Phi(\theta = 0)$– фаза осевого луча, приходящего по нормали к границе раздела. Такие лучи в падающем пучке образуют конус с эффективной апертурой $\theta_{эфф}$: $\theta \le \theta_{эфф}$, а их точки отражения формируют на отображаемой плоскости круг радиуса r_a с центром в параксиальном фокусе F_0. Пятно радиуса r_a вблизи параксиального фокуса представляет собой 1-ую зону Френеля для излучения, отраженного от внутренней плоскости. Элементы объемной микроструктуры и внутренней границы соединения оказываются различимы, только если находятся друг от друга на расстоянии большем r_a. Соответственно, размер 1-ой зоны Френеля дает оценку пространственного, латерального разрешения акустической фокусирующей системы, связанного с рефракционными аберрациями.

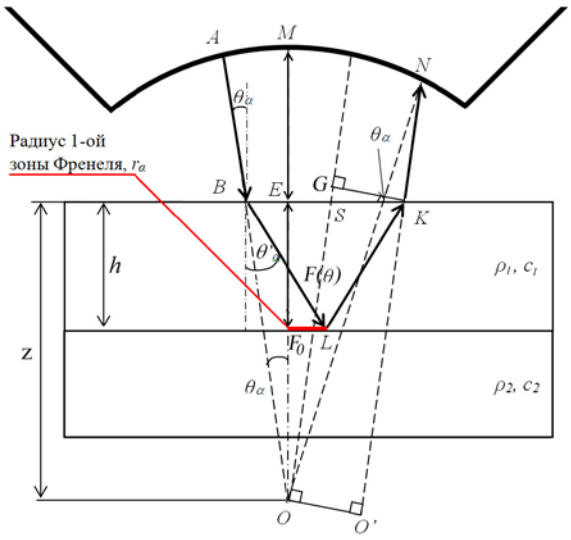

Рис.2 *Схема отражения от внутренней границы соединения в объеме объекта лучей, падающих по нормали и под углом θ_α к поверхности образца. Лучи, отраженные от границы и приходящие на приемник со сдвигом фазы Φ относительно фазы осевого пучка Φ_0, не превышающем величину π, формируют пятно радиуса r_a, задающее пространственное разрешение при визуализации микроструктуры внутренних границ.*

Расчет времени задержки между лучами, падающими и отраженными по нормали (отрезок MEF_0 и обратно) и под произвольным углом θ (по ломаной $ABLKN$) (рис.2) позволил определить из условия (6) эффективную апертуру $\theta_{эфф}$ и радиус первой зоны Френеля r_a.

$$\theta_{эфф} \approx \arcsin\left(\sqrt[4]{\frac{2\cdot\lambda_\alpha}{h}}\cdot\frac{c}{c_\alpha}\right) \qquad (7)$$

$$r_\alpha \approx \frac{1}{2}h\cdot\left(\frac{c_\alpha}{c}\right)^3 \sin^3\theta_{эфф} = \sqrt[4]{\frac{1}{2}h\cdot\lambda_\alpha^3}\,. \qquad (8)$$

где λ_α - длина продольной звуковой волны в образце на рабочей частоте зондирующего пучка. Показано, что эффективная апертура медленно сужается, а разрешение падает с ростом глубины отображаемой в объеме плоскости.

В п. 5.3 рассматриваются возможные механизмы отображения различных дефектов в области соединения материалов: точечные и протяженные участки потери адгезии участки частичного контакта, дефекты клеевых слоев. Экспериментально описывается аксиальное разрешение пучков на примере визуализации близко расположенных границ клеевого соединения. Показано, что прием двух разделенных эхосигналов возможен только когда толщина слоя h больше длины волны λ в материале на рабочей частоте зондирующего излучения ($h > (2 \div 3)\lambda$) (рис.3в). В других случаях будет регистрироваться либо единичный сигнал (рис.3а), либо широкий сигнал сложной формы, образованный в результате интерференции двух эхосигналов (рис.3б).

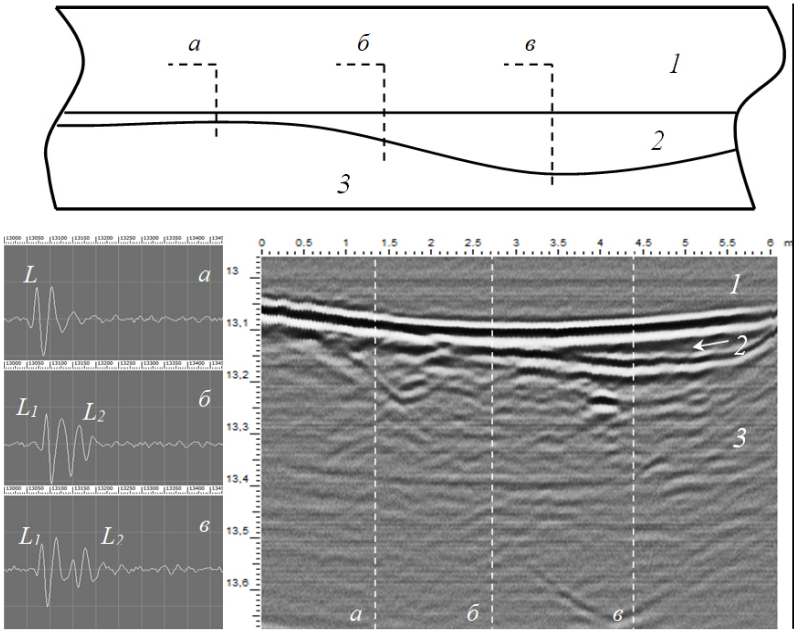

Рис. 3. *Схематический рисунок и соответсвующий ему B-скан неоднородного распределения клеевого слоя в области соединения двух керамических материалов. 1- керамика ZrO_2, 2- связующий слой, 3- стеклокерамика. а) осциллограмма, соответствующая тонкому слою связующего ($h<\lambda$); б) участок соединения с толщиной буферного слоя $h \sim \lambda$; в) толщина буферного слоя h больше длины волны, $h > (2 \div 3)\lambda$. L_1 и L_2- сигналы, соответствующие верхней нижней границы клеевого слоя. Рабочая частота линзы 50 МГц.*

Рассматривается влияние дефектов на амплитуду и форму эхо-сигналов, принимаемых из области соединения, и особенности отображения структурных элементов границы на B- и C-сканах. Описывается возможность использования теневых эффектов для выявления и характеризации дефектов границы соединения. Подробно обсуждается взаимодействие фокусированного пучка с участками частичного контакта, на которых выходной сигнал определяется не столько упругими характеристиками соприкасающихся сред, сколько структурой и характеристиками зоны соприкосновения, в первую очередь, долей суммарной площади микро- и наноучастков с потерянной адгезией внутри площади фокального пятна.

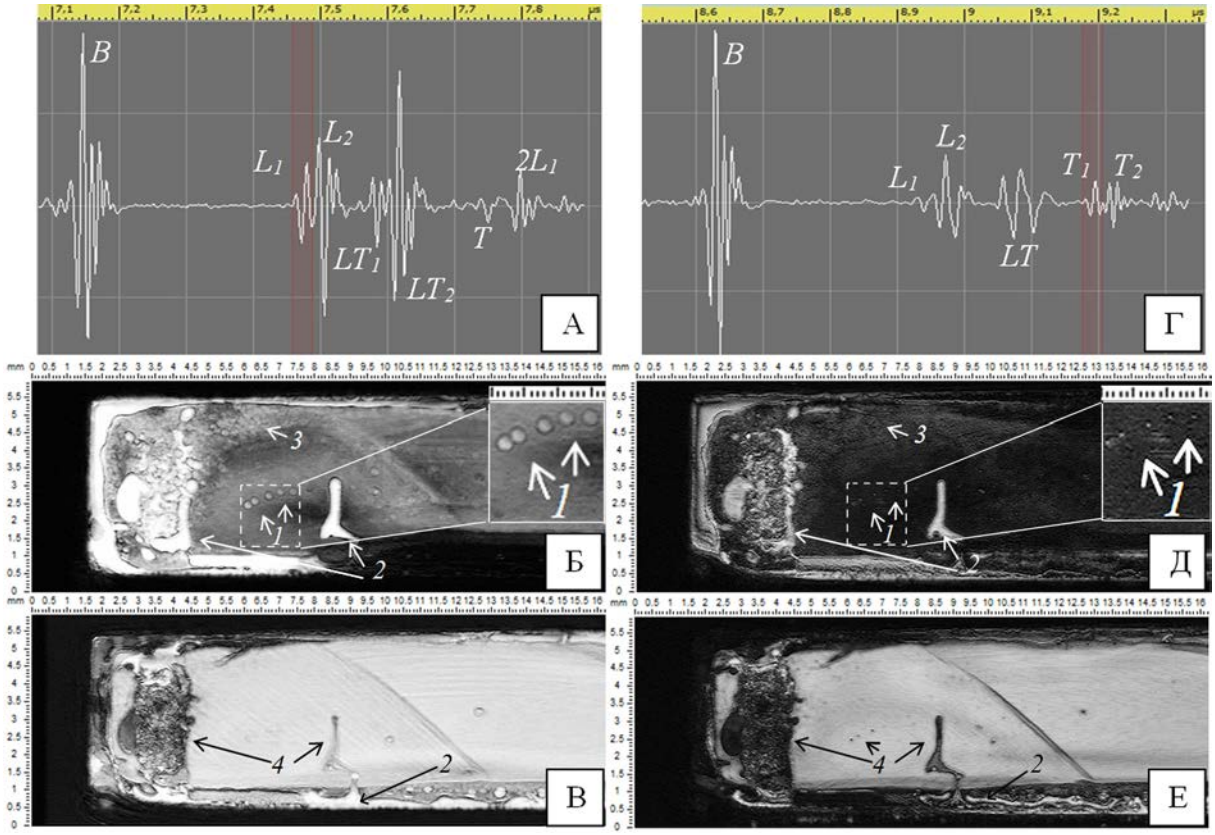

Рис. 4. *Акустические изображения, полученные при фокусировке продольных (а-в) и поперечных (г-е) волн в области соединения керамика-клеевой слой-стеклокерамика. а) Эхограмма, полученная при фокусировке продольных волн; б), в) С-сканы верхней и нижней границы клеевого слоя, которым соответствуют сигналы L_1 и L_2. г) Эхограмма, полученная при фокусировке поперечных волн; д), е) изображения верхней и нижней границы клеевого слоя, которым соответствуют сигналы T_1 и T_2. Дефекты клеевого слоя к верхней керамической пластинке: 1- точечные дефекты, 2-отслоения; 3- участки частичного контакта; 4- тени дефектов. Рабочая частота линзы 100 МГц. Поле сканирования 16х6 мм.*

В п. 5.4 представлены результаты визуализации границы соединения керамических материалов с поочередной фокусировкой на этой границе сходящихся пучков преломленных продольных (L) и поперечных (T) волн. В каждом положении эхограммы сигнала, отраженного от системы «керамика-клеевой слой-стеклокерамика» включают парные L_1, L_2 (рис. 4а) или T_1, T_2 (рис. 4г) импульсы, отраженные от верхней и нижней границы клеевого слоя. На осциллограммах также присутствуют LT сигналы, обусловленные отражением от границы соединения с конверсией мод, и $2L$ – сигнал двойного переотражения продольных волн в объеме верхней пластинки. На акустических изображениях видно, что точечные 1 и протяженные 2 участки потери адгезии, как и участки частичного контакта 3 наблюдаются только на верхней границе клеевого слоя с циркониевой керамикой (рис. 4б и 4д). Показано, что использование пучка Т волн для формирования акустических изображений (рис. 4д и 4е) позволяет за счет

меньшей длины волны получать лучшее качество изображений при отображении точечных и протяженных дефектов адгезии (элементы 1 и 2). Данная особенность позволила экспериментально оценить пространственное разрешение, обусловленное рефракционными аберрациями при объемной визуализации *L* пучками. Экспериментально показано, что диаметр фокального пятна и латеральное разрешение сходящихся *L* пучков (на рабочей частоте 100 МГц) при визуализации границы соединения расположенной на глубине 1 мм в объеме керамики ZrO_2 ($c_L \approx$ 7 км/с) не превышает 250 мкм. Эта величина находится в хорошем согласии с теоретической оценкой (8), согласно которой пространственное разрешение $2 \cdot r_\alpha$ составляет ≈230 мкм.

Основные результаты

1. Важную роль в формировании акустических изображений объемной микроструктуры материалов играет излучение, рассеянное на малоразмерных ($a << \lambda$) структурных элементах и включениях. Экспериментально продемонстрирована эффективность акустической микроскопии для выявления малоразмерных мягких рассеивателей (пор и газовых пузырьков с размерами до нескольких микрон) в объеме плотных керамик.

2. Экспериментально показана эффективность использования импульсного фокусированного ультразвука для измерения локальных величин скоростей продольных и поперечных упругих волн, упругих модулей и их распределения по объему образца. На основе локальных упругих измерений в образцах циркониевой и корундовой керамики показана зависимость скоростей продольного и поперечного звука от степени пористости, размера зерен и типа их кристаллической модификации.

3. Сходящийся зондирующий пучок в объеме материала является источником вторичного излучения, образуемого за счет дифракции на уединенных элементах структуры, расположенных выше или ниже фокальной плоскости зондирующего пучка. Прием дифрагированного излучения приводит к искажению отображаемых на B- и C-сканах контуров элементов внутренней структуры в объеме образца.

4. Теоретически показано и экспериментально подтверждено, что латеральное разрешение при визуализации глубинных структур ($h >> \lambda$)

определяется рефракционными аберрациями, возникающими при прохождении зондирующего пучка из иммерсии в образец. Лишь при малых глубинах залегания h сравнимых с длиной волны зондирующего ультразвука ($h \leq 5 \cdot \lambda$), рефракционные аберрации оказываются малыми, и разрешение определяется дифракционными эффектами и описывается известным критерием Релея для зондирующего пучка в иммерсии.

5. Изображение структуры на глубине h в объеме объекта при совмещении параксиального фокуса с отображаемой плоскостью формируется эффективной апертурой зондирующего пучка, зависящей от отношения скоростей звуковых волн в иммерсии и объекте, длиной волны λ_α зондирующего ультразвука в образце и глубиной h. С увеличением глубины эффективная апертура уменьшается пропорционально $\sqrt[4]{h}$.

Латеральное разрешение при формировании изображений глубинных структур ($h >> \lambda$) определяется размером 1-ой зоны Френеля $2 \cdot r_\alpha$ для излучения отраженного с этой глубины. Разрешение пропорционально дробной степени длины волны в материале и глубины визуализируемой границы в объеме образца $r_\alpha \sim \lambda_\alpha^{3/4} \cdot h^{1/4}$.

6. Визуализация элементов внутренней структуры может обеспечиваться фокусированными пучками продольных и поперечных волн. Пространственное разрешение пучков заведомо лучше для поперечных волн, обладающих меньшей длиной волны. Зондирующий импульс продольных волн, обеспечиваемый параксиальной составляющей пучка, обладает большей интенсивностью и чувствительностью при обнаружении и оконтуривании отслоений и участков частичного контакта на внутренней границе соединения материалов.

Материалы, опубликованные в журналах из перечня ВАК:

1. В.М. Левин, Е.С. Мороков, Ю.С. Петронюк. Ультразвуковая микроскопия контактных соединений. Известия РАН. Серия физическая, 2017, 81,с. 1053-1058.

2. Ю.С. Петронюк, Е.С. Мороков, В.М. Левин. Методы импульсной акустической микроскопии в промышленной диагностике. Известия РАН серия физическая, 2015, 79, с. 1425-1431.

3. Л.И. Подзорова, С.А. Титов, А.А. Ильичева, Н.А. Михайлина, О.И. Пенькова, В.М. Левин, Е.С. Мороков. Эффект гидротермального воздействия на свойства и

микроструктуру биоинертной керамики Yb-TZP. Материаловедение. 2015. 7. с. 52-56.

4. Е.С. Мороков, В.М Левин, Л.И. Подзорова, А.А. Ильичева, С.И. Березина. Применение импульсной акустической микроскопии для исследования плотных керамик на основе ZrO_2. Уч. записки физ. факультета МГУ. 2014. № 5. 145336.

5. С.В. Анисимова, И.Ю. Лебеденко, В.М. Левин, Ю.Б. Макарычев, Л.И. Подзорова, В.И. Хван, Е.С. Мороков. Изучение зоны контакта и прочности сцепления наноструктурированной керамики на основе диоксида циркония с облицовочным материалом в цельнокерамических зубных протезах. Российский стоматологический журнал №2, 2014. с. 4-9.

6. В.А. Парунов, П.А. Колесов, М.В. Быкова, Е.С. Мороков. Исследование упругих свойств сплавов "Плагодент" и "Плагодент-плюс" методом сканирующей импульсной акустической микроскопии (СИАМ). Cathedra стоматологическое образование, 2014, 49, с. 45-48.

7. И.Ю. Лебеденко, В.М. Левин С.В. Анисимова, Е.С. Мороков, В.И. Хван, Л.И. Подзорова, Н.А. Михайлина. Упругие свойства и микроструктура наноструктурированных материалов на основе диоксида циркония для цельнокерамических зубных протезов. Dental Forum, 2013,47, с. 19-23.

8. И.Ю. Лебеденко, В.М. Левин, С.В. Анисимова, Е.С. Мороков, В.И. Хван, Л.И. Подзорова, Н.А. Михайлина. Микроструктура отечественной наноструктурированной керамики на основе диоксида циркония. Dental Forum, 2012, 46, с. 81-85.

Материалы, опубликованные в WoS и Scopus:

1. E.S. Morokov, V.M. Levin, Yu.S. Petronyuk, L.I. Podzorova, A.A. Il'Icheva, I.Yu. Lebedenko, S.V. Anisimova. Acoustic microscopy for visualization and evaluation of ceramic-ceramic contact zone. Physics Procedia. 2015, 70, pp. 652-655.

2. V.M. Levin, Y.S. Petronyuk, E.S. Morokov, S. Bellucci and P.P. Kuzhir. What does see the impulse acoustic microscopy inside nanocomposites? Physics Procedia, 2015, 70, PP. 703–706.

3. V.M. Prokhorov, D. Ovsyannikov, V.M. Levin, E. Morokov. Acoustic microscopy characterisation of nanostructured carbon-ceramic composites. Testing and Measurement: Techniques and Applications. p. 65-68.

4. He Guochao, Ding Jinwen, V.M. Levin, Dong Lanfang, A.N. Bogachenkov, Li Kang, Yao Chuanming, K.V. Zakutailov, Yu.S. Petronyuk, Li Feng, E.S. Morokov. Three Dimensional Acoustical Imaging Based on Isosurface Technique for Bulk Material. Sensors & Transducers, 2013, 156, pp. 168-175.

Сборники конференций:

1. Е.С. Мороков, В.М. Левин, С.В. Анисимова. Исследование влияния микроструктуры керамики диоксида циркония на их упругие и прочностные свойства. XII межд. мол. конф. ИБХФ РАН-Вузы. Москва. 28-30 октября 2012.
2. E.S. Morokov, V.M. Levin, S.V. Anisimova, I. Yu Lebedenko, L.I. Podzorova, A.A. Ilsheva, S.I. Berezina. Application of impulse acoustic microscopy technique to NDE of dense dental ceramics, Proceedings of 32nd International Acoustical Imaging Symposium (AI 32). P.40 Singapore. 29 April-1 May 2013
3. Vadim Levin, Egor Morokov, Yulia Petronuyk, Konstantin Zakutailov and Jinwen Ding. Theoretical and Experimental Studies of Convergent Beam Propagation in Anisotropic Media with Topological Peculiarities on the Slowness Surface. 2013 International Congress on Ultrasonics (ICU 2013). Singapore. 2-5 May 2013. P. 78.
4. S. Berezina, A.A. Il'icheva, V.M. Levin, N.A. Mikhailina, E.S. Morokov, L.I. Podzorova, L.I. Shvorneva. New single-phase Yb –TZP ceramics for medical application. Int. conf. MiMe-Materials in Medicine. Faenza, Italy. October 8 -11. 2013.
5. E.S. Morokov, V.I. Khvan. Application of impulse acoustic microscopy technique to NTE of zirconia ceramic. Abstracts, The scientific conference of young scientists on Prosthetic Dentisity, in memory of Prof. Kurlyandskiy V.U. Moscow. Nov. 23, 2013.
6. Е.С. Мороков, В.М. Левин, Л.И. Подзорова, А.А. Ильичева. Акустическая микроскопия для визуализации и оценки качества соединения керамических материалов. Сборник материалов второй всероссийской молодежной научно-технической конференции с международным участием "инновации в материаловедении. (ИНМАТ 2015) С. 319-321.
7. V.M. Prokhorov, G.I. Pivovarov, V.M. Levin, E.S. Morokov. Acoustic microscopy studies of exfoliations and pores distributions in nanostructured Bi2Te3-based alloys sintered by HPS and SPS methods. Proc. of Int. Forum on Ultrasound Applications – Industrial. Biomedical and Clinical. 26-27 Mart 2014. Kaohsiung, Taiwan.

8. Е.С. Мороков, В.М Левин, И.Ю. Лебеденко, С.В. Анисимова, Л.И. Подзорова, А.А Ильшева, С.И. Березина Применение импульсной акустической микроскопии для Исследования плотных зубных керамик. Сборник трудов 1-ой Всероссийской акустической конференции, 2014, секция Ультразвуковые технологии, стр. 22-29.

9. E.S. Morokov, V.M. Levin, L.I. Podzorova, A.A. Il'Icheva. Acoustic microscopy for visualization and evaluation of ceramic-ceramic contact zone. Proc. of 2015 International Congress on Ultrasonics, Metz, France. 10-14 may 2015. P. 257.

10. Левин В.М., Мороков Е.С., Петронюк Ю.С. Неразрушающая диагностика соединений методами ультразвуковой микороскопии. "Успехи акустики - 2016", Москва 1 ноября 2016.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Baik J.M., Thompson R.B. Ultrasonic Scattering from Imperfect Interfaces: A Quasi-Static Model //J. NDE. 1984. V.4. Nos. ¾. P. 177 196.

2. S.-K. Chan, Y. Fang, M. Grimsditch, Z. Li, M. Nevitt, M. W. Robertson, E. S. Zouboulis. Temperature Dependence of the Elastic Moduli of Monoclinic Zirconia. J. Am. Ceram. Soc.1991. 74. P. 1742–44.

3. H.M. Kandil, J. D. Greiner, J.F. Smith. Single-Crystal Elastic Constants of Yttria-Stabilized Zirconia in the Range 20°C to 700°C, J. Am. Ceram. Soc. 1984. 67. p. 341-346.

4. Kisi, E. H.; Howard, C. J. Elastic Constants of Tetragonal Zirconia Measured by a New Powder Diffraction Technique J. Am. Ceram. Soc. 1998. 81. P.1682-1684.