

УДК 534.6.08

## ОСОБЕННОСТИ УЛЬТРАЗВУКОВОЙ ВИЗУАЛИЗАЦИИ СЛОИСТЫХ ОБЪЕКТОВ

© 2023 г. Ю. С. Петронюк<sup>1, 2, \*</sup>, С. А. Титов<sup>2</sup>, А. Н. Богаченков<sup>1</sup>, В. М. Левин<sup>1</sup>, И. Г. Григорьева<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки “Институт биохимической физики имени Н.М. Эмануэля Российской академии наук”, Москва, Россия

<sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки “Научно-исследовательский центр уникального приборостроения Российской академии наук”, Москва, Россия

<sup>3</sup>Общество с ограниченной ответственностью “Оптиграф”, Берлин, Германия

\*E-mail: jps7@mail.ru

Поступила в редакцию 29.08.2022 г.

После доработки 16.09.2022 г.

Принята к публикации 26.09.2022 г.

Методами импульсной акустической микроскопии (100–200 МГц) исследованы слои пиролитического графита на стеклянной подложке толщиной (40 мкм), сравнимой с длиной волны зондирующего звука. Проанализирован механизм естественного усиления акустического контраста при визуализации структур такого типа. Интерпретация изображений неоднородной структуры контакта слоя с подложкой подкреплена количественной оценкой акустических импедансов.

DOI: 10.31857/S0367676522700156, EDN: JSHCMF

### ВВЕДЕНИЕ

В современных технологиях широко применяются функциональные покрытия, многослойные системы и композитные структуры. В частности, в аэрокосмической отрасли для повышения эксплуатационных характеристик используются армированные ламинаты, в микроэлектронике миниатюризация изделий осуществляется за счет многослойных технологий. Функционирование этих устройств зависит не только от свойств материала слоев, но также от качества адгезии между ними. В этой связи существует очевидная потребность в неразрушающих методах контроля качества контакта, определения его межслоевой прочности [1, 2]. Одним из таких методов является акустическая визуализация высокого разрешения [3–7], которая уже достаточно давно применяется и развивается в качестве безопасного и информативного инструмента для изучения структуры и упругих свойств новых материалов [8], для неразрушающего контроля качества контакта на межслоевых границах [9]. Длина волны зондирующего ультразвука в современных системах визуализации варьируется в диапазоне от нескольких микрон (1 ГГц) до нескольких сотен микрон (25 МГц), что позволяет наблюдать и исследовать структуру толстых пленок и объемных покрытий (>10 мкм) [10]. В открытом доступе есть работы по изучению алмазоподобных [11] и полимерных покрытий микронной толщины [12]. Высокочастотный

фокусированный звук как гигагерцового, так мегагерцового диапазона по необходимости применяется в микроэлектронике для контроля качества многослойных изделий, контактов и сварных соединений [13, 14]. Акустическая микроскопия медленно расширяет свой инструментарий [15–17], в том числе одним из самых интересных направлений является наблюдение биологических тканей *in situ* [18] и культур клеток на подложке [19]. Нужно отметить, что волновые процессы, возникающие в слое, неразрывно связаны со структурными особенностями материала, его упругими свойствами, геометрическими параметрами, а также с условиями на его границах. В этой связи формирование контраста в процессе акустической визуализации требует комплексного рассмотрения механизмов контраста и корректной интерпретации изображений.

В данной работе рассмотрен один из эффективных механизмов формирования акустического контраста, обусловленного многократным переотражением ультразвукового импульса в слое в условиях, близких к резонансным, при существенном различии акустических импедансов смежных сред на границах слоя. Показано, что при наличии таких условий обеспечивается возможность оценивать качество контакта в различных областях области соединения, обнаруживать и визуализировать отслоения в слоистых структу-

рах, толщина слоев в которых даже меньше длины волны зондирующего звука.

### ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ РАССМОТРЕНИЕ

В акустических системах визуализации высокого разрешения применяются высокочастотные импульсы фокусированного ультразвука (от 25 МГц и выше). Для послойной объемной визуализации применяются короткие импульсы – один-два периода колебаний на основной частоте, чтобы максимально эффективно разделять эхосигналы по времени задержки и, таким образом, отображать отдельные слои в объеме [7]. Фокусировка ультразвукового зондирующего пучка (половина апертурного угла) в таких системах, как правило, не превышает  $15^\circ$ . Такой подход обеспечивает существенную длину фокальной перетяжки и волновой фронт зондирующего излучения, близкий к плоскому внутри фокальной области [16, 20]. Узкая угловая апертура позволяет также свести к минимуму возможность возбуждения поверхностных упругих волн [21]. Таким образом, в условиях малой угловой апертуры в изотропном образце (слое) возбуждаются продольные упругие волны, которые распространяются вдоль нормали к поверхности.

Модель принимаемого акустической линзой сигнала может быть представлена в виде последовательности эквидистантно задержанных и ослабленных импульсных откликов измерительной системы  $p_n(t)$ :

$$s(t) = A \left[ h_0 p_0(t) + \sum_{n=1}^{\infty} h_n p_n \left( t - n \frac{2d}{C_L} \right) \exp(-\alpha n 2d) \right], \quad (1)$$

где  $A$  – приемопередаточная характеристика измерительной системы,  $2d/C_L$  – время двойного прохождения волны через слой толщиной  $d$  со скоростью продольного звука  $C_L$ ,  $h_n$  – амплитудный коэффициент, обусловленный последовательным переотражением зондирующего сигнала из слоя при его  $n$ -ом переотражении и равный:

$$h_0 = R_{12}; \quad h_n = T_{12} T_{21} R_{23} (R_{21} R_{23})^n, \quad (2)$$

где  $T_{12}$ ,  $T_{21}$  – коэффициенты прохождения волны через верхнюю границу слоя,  $R_{12}$  – амплитудный коэффициент отражения волны, падающей из иммерсии на переднюю границу слоя,  $R_{21}$  и  $R_{23}$  – коэффициенты отражения волн, падающих из слоя на верхнюю и нижнюю границы, соответственно, а индексы 1, 2, 3 относятся к иммерсионной среде (воде), слою и подложке, соответственно;  $\alpha$  – коэффициент затухания в материале исследуемого слоя.

В том случае, когда  $\alpha d \ll 1$ , т.е. потери за счет поглощения оказываются пренебрежимо малы-

ми, а также для слоев, толщина которых сравнима с длиной волны зондирующего ультразвука, отношение амплитуд импульсов, возникающих при многократном последовательном отражении упругих волн в слое, спадает в соответствии с выражением (1) по экспоненциальному закону  $\gamma^n = (R_{21} R_{23})^n$  и в значительной степени определяется потерями ультразвуковой энергии на границах слоя. Такая ситуация особенно характерна для слоев с идеальной кристаллической структурой, как в рассматриваемом случае с высокоориентированным графитом. Акустическое поглощение этого материала в ходе измерений его упругих свойств [22, 23] оказалось незначительным, что подтверждается при наблюдении эффектов фоновой фокусировки методами акустической микроскопии [24, 25]. В этих экспериментах в широком диапазоне частот от 50–200 МГц и до 1 ГГц наблюдались эффекты множественной реверберации коротких зондирующих импульсов в пластинках толщиной до 10 мм. Амплитуда эхо сигналов уменьшалась по мере возрастания порядкового номера эхоимпульса в соответствии с расчетными данными для акустических потерь за счет переизлучения сигнала в иммерсионную жидкость.

При определенной толщине взаимодействие упругих волн в слое приводит к возникновению резонанса:

$$2d = m\lambda = mC_L/f, \quad (3)$$

где  $m$  – целое число,  $\lambda$  – длина волны упругой волны в слое,  $f$  – частота упругих колебаний. В этом случае, при максимальном коэффициенте  $\gamma$  возникают условия для естественного усиления контраста на акустических изображениях.

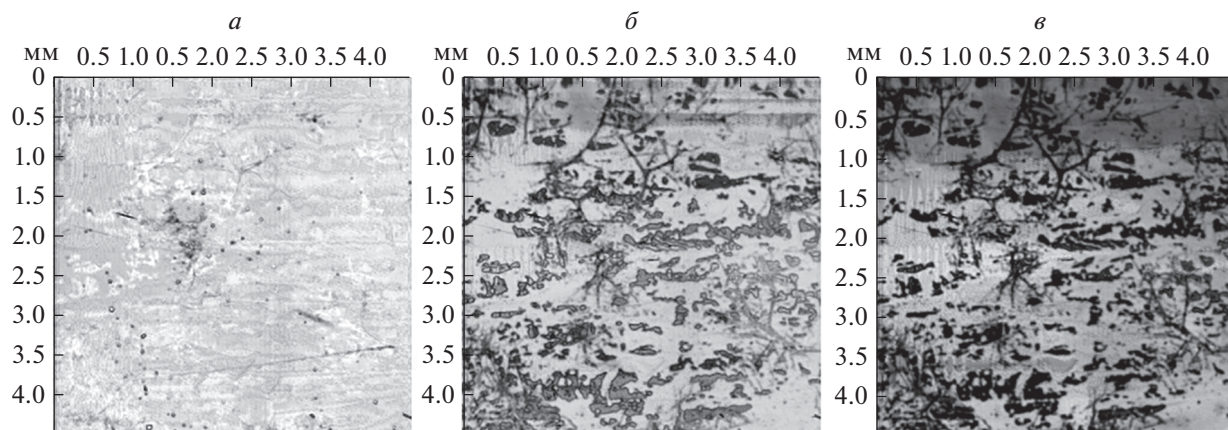
Коэффициенты отражения  $R_{21}$ ,  $R_{23}$  выражаются через акустические импедансы смежных сред  $Z$  по известной формуле [26]:

$$R_{21} = \frac{Z_1 - Z_2}{Z_2 + Z_1}; \quad R_{23} = \frac{Z_3 - Z_2}{Z_2 + Z_3}. \quad (4)$$

Их величина критически зависит от наличия пустот на границе смежных слоев.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ НАБЛЮДЕНИЕ

Для экспериментального наблюдения эффектов реверберации упругих волн в тонком слое использовался образец графитовой пленки толщиной 40 мкм на оптически полированной стеклянной подложке (N-BK7, Laser Components GmbH). Высокоориентированный пиролитический графит (high-oriented pyrolytic graphite, HOPG) представляет собой высококачественный синтетический тип углерода, который уже более двух десятилетий успешно используется для изготовления различной дисперсионной рентгеновской опти-



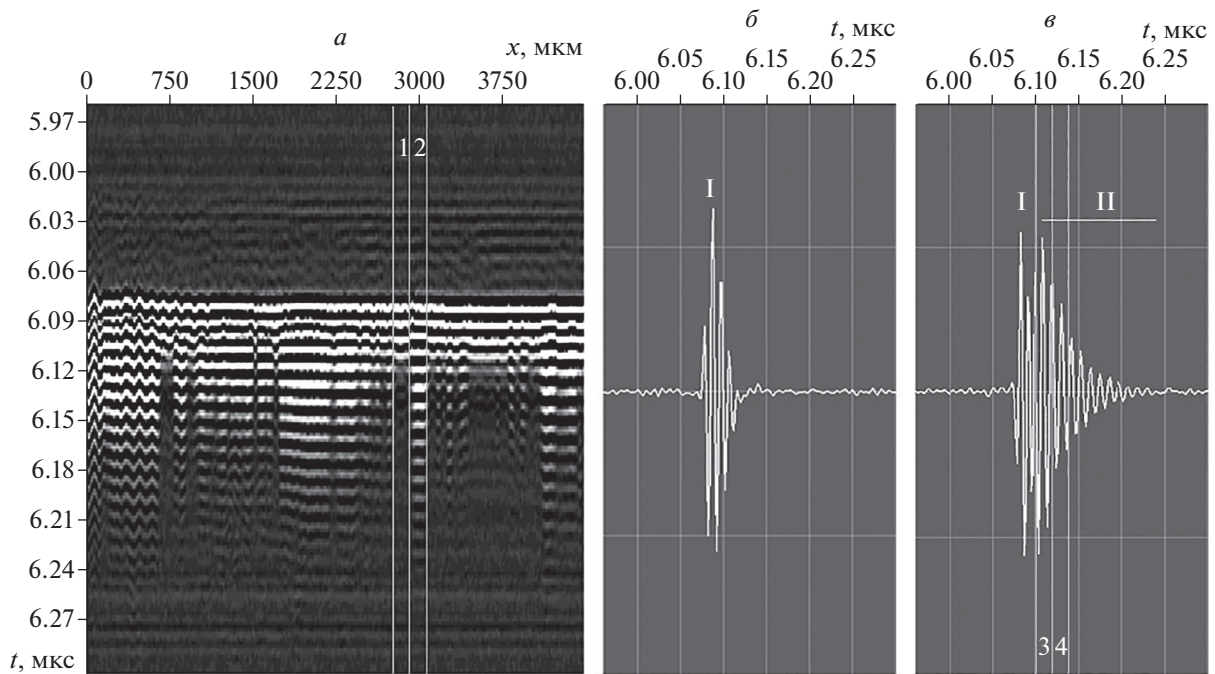
**Рис. 1.** Акустические изображения пленки пиролитического графита толщиной 40 мкм на стеклянной подложке: *a* — поверхность, *b* и *v* — изображения границы слоя с подложкой при разном положении электронных ворот по глубине: 6.10–6.12 и 6.12–6.14 мкс, соответственно (цифры 3 и 4 на рис. 2*в*).

ки [27]. Пленка представляла собой мозаичный кристалл, который состоит из множества отдельных слабо разориентированных совершенных кристаллитов. Характеризация кристаллов НОРГ выполнялась с помощью высокоточной рентгеновской дифракционной установки, дифрактометра (Huber Diffraktionstechnik GmbH & Co.), позволяющих обнаруживать возможные неоднородности и измерять соответствующие параметры кристалла, такие как пиковая и интегральная отражательная способность, мозаичный разброс и толщина [28]. Ось симметрии в графите была ориентирована вдоль толщины слоя. В этом направлении поверхность медленностей продольных объемных волн в графите имеет плоский участок [24]. Такая форма поверхности обратных скоростей приводит к тому, что все наклонные компоненты ультразвукового пучка, падающего из жидкости на поверхность пленки, в пределах угловой апертуры после преломления на верхней границе слоя распространяются в виде коллимированного пучка.

Для акустической визуализации высокого разрешения использовался метод импульсной акустической микроскопии [7]. В эксперименте применялся иммерсионный акустический объектив с номинальной частотой 200 МГц и апертурным углом  $11^\circ$ . В качестве иммерсии использовалась капля дистиллированной воды. С помощью акустического микроскопа, разработанного в ИБХФ РАН, были сформированы акустические изображения структуры образцов площадью  $5 \times 5 \text{ мм}^2$  и шагом сканирования 15 мкм (рис. 1). Для формирования изображений на различной глубине использовались электронные ворота, которые позволяют выделить часть эхосигнала с нужной временной задержкой и отображать его амплитуду внутри площади сканирования грациями серо-

го цвета — чем более светлый тон, тем большая величина коэффициента отражения. Таким образом, акустическое изображение границ раздела образца представляет собой распределение коэффициента отражения и прохождения зондирующего звука внутри площади сканирования. На рис. 1*a* электронные ворота установлены в интервале времен задержки 6.07–6.09 мкс на первом максимуме сигнала, что соответствует поверхности графитовой пленки, структура которой выглядит довольно однородной. На двух других изображениях (рис. 1*b* и 1*v*) показана граница контакта пленки с подложкой. Электронные ворота в этом случае установлены на второй и третий максимумы эхосигнала, первое и второе отражение от границы раздела пленки с подложкой, которые находятся в интервалах 6.10–6.12 и 6.12–6.14 мкс, соответственно (цифры 3, 4 на рис. 2*в*). Естественный контраст изображений отличается и, как это ни странно, становится ярче для импульса с меньшей амплитудой и большей задержкой (рис. 1*v*). Такой эффект наблюдается, потому что локальные области с коэффициентом отражения  $R_{23}$  близким к 1 (контакт с воздухом) соседствуют с областями, где реверберация отсутствует (контакт со стеклом).

На рис. 2*a* приведена временная развертка эхо-сигналов вдоль поперечного сечения образца (*B*-скан). Вертикальная шкала изображения соответствует времени задержки импульсов, отраженных от границ графитового слоя. На изображении цифрами отмечены две типичные области, которые наблюдались при сканировании: 1 — локальная область с малым числом ревербераций в зоне идеальной адгезии пленки к подложке, 2 — область с наличием множественных переотражений, зона с высокой разницей в акустических импедансах пленки  $Z_2$  и подложки  $Z_3$ , и соответствующим



**Рис. 2.** Временная развертка акустических эхо-сигналов вдоль поперечного сечения образца: В-скан, вертикальная шкала изображения соответствует времени задержки импульсов от границ графитового слоя, горизонтальная шкала – перемещение линзы вдоль образца (*a*); 1 и 2 – области с отсутствием (А-скан) (*б*) и наличием ревербераций (А-скан) (*в*); 3, 4 – положение электронных ворот по глубине для изображений границы слоя с подложкой на рис. 1*б* и 1*в*.

ющая зоне потери контакта между ними. На рис. 2*б* и 2*в* показаны эхосигналы, характерные для этих локальных зон. Первое колебание в эхосигнале – отражение от передней поверхности слоя (импульс I), имеет максимальную амплитуду и время задержки  $20 \pm 2$  нс, что соответствует пробегу волны “туда и обратно” по толщине графитового слоя; затем следуют множественные отражения от границы слоя со стеклянной подложкой (импульсы II, рис. 2*в*). Поскольку толщина слоя 40 мкм близка к длине волны в графите – 20 мкм для номинальной частоты излучателя 200 МГц, в случае потери адгезии мы наблюдаем не отдельные импульсы от границ слоя, а эффекты близкие к резонансным – длительную реверберацию (рис. 2*в*) с периодом колебаний определенным формулой (3). В эксперименте период реверберации получился  $11 \pm 2$  нс. Точность определения этого времени задается частотой дискретизации (500 МГц). Кроме того, измерения проводились по точкам нулевой амплитуды, что обеспечивает высокую точность измерений. Затухание периодических осцилляций на А-сканах зависит от соотношения импедансов на обеих границах слоя, их величина падает в соответствии с выражением (2), что может быть использовано, например, для определения импеданса неизвестного слоя на известной подложке.

В эксперименте период ревербераций волн в графитовом слое (11 нс) соответствует распространению объемных упругих волн продольной поляризации перпендикулярно атомным плоскостям в графите со скоростью  $C_L = 4$  км · с<sup>-1</sup> [24]. Акустический импеданс слоя при этом оказывается равен  $Z_2 = \rho C_L \approx 2.25 \cdot 4 = 9 \cdot 10^6$  кг · м<sup>-2</sup> · с<sup>-1</sup>. Считая, что импеданс воды равен  $Z_1 = 1.5 \cdot 10^6$  кг · м<sup>-2</sup> · с<sup>-1</sup>, а стеклянной подложки  $Z_3 = 15 \cdot 10^6$  кг · м<sup>-2</sup> · с<sup>-1</sup> [26], получаем оценку коэффициента ослабления за счет многократного переотражения для случая контакта со стеклянной подложкой –  $\gamma = 0.2$ . В случае отсутствия контакта коэффициент отражения на границе с воздухом  $|R_{23}| = 1$ , тогда коэффициент ослабления оказывается равным  $\gamma = 0.71$ . Полученное значение соответствует величине  $\gamma = 0.7$ , полученной экспериментальным путем из отношения амплитуд в соседних точках огибающей эхосигнала, оценивалось по пяти точкам все и варьировалось от 0.65 до 0.78.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотрен механизм усиления акустического контраста при формировании изображений контактных поверхностей слоев и покрытий методом импульсной акустической микроскопии. Показано, что наличие отслоений приводит к значитель-

ным реверберационным эффектам, которые усиливаются в условиях близких к геометрическому резонансу. Данное явление может использоваться для корректной интерпретации наблюдаемых изображений структуры покрытий и выявления областей потери адгезии, а также для оценки акустических импедансов слоев на подложке.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Du B., Yang R., He Y., Wang F., Huang S. // *Renew Sust. Energy Rev.* 2017. V. 78. P. 1117.
2. Haldren H., Yost W.T., Perey D. et al. // *Ultrasonics*. 2022. V. 120. Art. No. 106641.
3. Lemons R.A., Quate C.F. // In: *Physical acoustics*. London: Academic Press, 1979.
4. Березина С.И., Лямов В.Е., Солодов И.Ю. // *Вестн. МГУ. Сер. физ. и астроном.* 1977. Т. 18. № 1. С. 3.
5. Briggs A. *Acoustic microscopy*. Oxford, 2010.
6. Zinin P.V. *Handbook of elastic properties of solids, liquids and Gases*. Academic Press, 2001.
7. Закутайлов К.В., Левин В.М., Петрониук Ю.С. // *Завод. лаб. и диагн. матер.* 2009. Т. 75. № 8. С. 28; Zakutailov K.V., Levin V.M., Petronyuk Y.S. // *Inorg. Mater.* 2010. V. 46. No. 15. P. 655.
8. Levin V., Petronyuk Y., Morokov E. et al. // *Phys. Stat. Sol. B*. 2016. V. 253. P. 1952.
9. Петрониук Ю.С., Мороков Е.С., Левин В.М. // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2015. Т. 79. № 10. С. 1425; Petronyuk Y.S., Morokov E.S., Levin V.M. // *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* 2015. V. 79. P. 1268.
10. Briggs A., Kolosov O. *Acoustic microscopy*. Oxford Univ. Press, 2009.
11. Zinin P.V., Kutuza I.B., Titov S.A. // *J. Surf. Invest. X-Ray. Synchrotron. Neutron. Technol.* 2018. V. 12. No. 6. P. 1285.
12. Ngwa W., Luo W., Kamanyi A. et al. // *J. Microscopy*. 2005. V. 218. No. 3. P. 208.
13. Brand S., Vogg, G., Petzold M. // *Microsyst. Technol.* 2018. V. 24. P. 779.
14. Петрониук Ю.С., Мороков Е.С., Левин В.М., и др. // *Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та.* 2014. № 5. С. 145335.
15. Chen J., Bai X., Yang K. et al. // *Ultrasonics*. 2015. V. 56. P. 505.
16. Титов С.А., Левин В.М., Петрониук Ю.С. // *Акуст. журн.* 2017. Т. 63. № 6. С. 692; Titov S.A., Levin V.M., Petronyuk Y.S. // *Acoust. Phys.* 2017. V. 63. No. 6. P. 744.
17. Yang X., Wang C., Sun A. et al. // *Appl. Acoustics*. 2020. V. 159. Art. No. 107090.
18. Ким Е.В., Петрониук Ю.С., Гусейнов Н.А. и др. // *Бюлл. экпер. биол. и мед.* 2020. Т. 170. № 9. С. 352; Kim E.V., Petronyuk Y.S., Guseynov N.A. et al. // *Bull. Exp. Biol. Med.* 2021. V. 170. No. 3. P. 356.
19. Hozumi N., Yoshida S., Kobayashi K. // *Ultrasonics*. 2019. V. 99. Art. No. 105966.
20. Petronyuk Y.S., Levin V.M., Titov S.A. // *Phys. Procedia*. 2015. V. 70. P. 626.
21. Петрониук Ю.С., Левин В.М. // *Кристаллография*. 2005. Т. 50. № 4. С. 744; Petronyuk Y.S., Levin V.M. // *Crystallogr. Rep.* 2005. V. 50. No. 4. P. 690.
22. Blaklee O.L., Proctor D.G., Seldin E.J. et al. // *J. Appl. Phys.* 1970. V. 41. No. 8. P. 3389.
23. Spence G.B., Seldin E.J. // *J. Appl. Phys.* 1970. V. 41. No. 8. P. 3383.
24. Levin V.M., Maev R.G., Maslov K.I. et al. *Acoustical imaging*. V. 19. London: Plenum Press, 1991. P. 651.
25. Levin V. *Acoustical imaging*. V. 20. Boston: Springer, 1993. P. 233.
26. Birks A.S., Green R.E., McIntire P. *Ultrasonic testing. Nondestructive testing handbook*. The McGraw-Hill Companies, 1991.
27. Grigorieva I.G., Antonov A.A. // *X-Ray Spectrometry*. 2003. V. 32. No. 1. P. 64.
28. Gerlach M., Anklamm L., Antonov A. et al. // *J. Appl. Crystallogr.* 2015. V. 48. No. 5. P. 1381.

## Features of ultrasonic visualization of layered objects

Y. S. Petronyuk<sup>a, b, \*</sup>, S. A. Titov<sup>b</sup>, A. N. Bogachenkov<sup>a</sup>, V. M. Levin<sup>a</sup>, I. G. Grigorieva<sup>c</sup>

<sup>a</sup>*Emanuel Institute of Biochemical Physics of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119334 Russia*

<sup>b</sup>*Scientific and Technological Center of Unique Instrumentation of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 117342 Russia*

<sup>c</sup>*Optigraph GmbH, Berlin, 12489 Germany*

\**e-mail: jps7@mail.ru*

Pulsed acoustic microscopy (100–200 MHz) was used to study layers of pyrolytic graphite on a glass substrate with a thickness comparable to wavelength of the probing sound. Mechanism of natural amplification of acoustic contrast in visualization process of such structures is shown. Images interpretation of the inhomogeneous structure of the layer-substrate contact is supported by a quantitative assessment of acoustic impedances.