

## **Оцінка дефектності пористого титану неруйнівними ультразвуковими методами**

**О. В. Вдовиченко, О. О. Мосолаб, В. А. Назаренко**

*За експериментальними результатами визначення швидкості поширення поздовжньої ультразвукової хвилі проведено оцінку наявності недосконалих контактів (планарних дефектів) в зразках титану пористістю 0,05—0,40, одержаних холодним пресуванням порошку і подальшим спіканням в вакуумі при температурах від 773 до 1473 К.*

### **Вступ**

Сплави на основі титану знаходять широке застосування як матеріали спеціального призначення завдяки привабливому комплексу їх властивостей. Зокрема, технічно чистий титан у порівнянні зі сплавами на основі кобальту і хрому, а також з нержавіючими сталями має більшу питому міцність, меншу пружність і кращу стійкість в корозійному середовищі і тому в більшій мірі задовольняє вимогам, що висуваються до матеріалів біомедичного призначення [1, 2]. Останнім часом здійснюються численні дослідження з розробки пористих матеріалів для застосування в ортопедичній хірургії [2—4]. Використання імплантатів з пористих металів дозволяє запобігти руйнуванню кісткової тканини завдяки зменшенню модулів пружності матеріалу імплантатів до величин, близьких до характеристик пружності кістки, а також забезпечити можливість проростання тканин організму через пори.

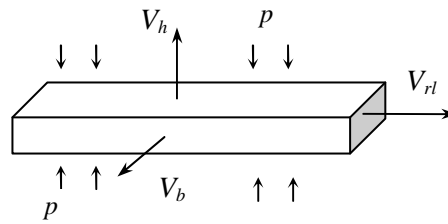
Ефективним методом одержання пористих виробів складної форми є порошкова технологія. Проте, окрім пор, порошковим матеріалам притаманні такі дефекти, як недосконалі контакти між частинками порошку, наявність яких може викликати руйнування, що є абсолютно неприйнятним у випадку ортопедичних виробів. Тому актуальною задачею є розробка технології виготовлення, яка дозволяє одержати матеріали, що містять об'ємні пори, але не містять площинних дефектів. Перспективними неруйнівними методами визначення наявності дефектів в виробах з порошків є ультразвукові методи [5, 6]. В роботі [6] показано, що після спікання при 773 К пористий Ті досягає пружності кісткової тканини, проте не проведено оцінку наявності площинних контактів.

Дана робота присвячена дослідженню за результатами експериментального визначення швидкості поширення поздовжніх ультразвукових хвиль фізичних процесів, що супроводжують формування досконалих контактів між частинками порошку технічно чистого титану, та оцінці дефектності зразків титану з різною пористістю на різних стадіях консолідації з метою встановлення оптимальних технологічних параметрів їх виготовлення.

### **Методи експерименту і об'єкт дослідження**

Для досліджень обрано зразки матеріалів з порошку титану марки ПТЭС з розміром частинок до 630 мкм, одержаних двобічним холодним пре-

Рис. 1. Напрямки пресування та вимірювання швидкостей поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в досліджуваних зразках.



суванням під тиском від 100 до 800 МПа в закритій прес-формі.

Тиск пресування прикладали в напрямку осі  $V_h$ , як показано на рис. 1. Пористість пресовок в залежності від тиску пресування змінювалась в діапазоні 0,05—0,4. Окремі партії пресовок спікали в вакуумі при температурах 773, 973, 1273 та 1473 К [7].

Ультразвукові дослідження проводили на зразках, що мали форму стрижнів прямокутного поперечного перерізу довжиною  $l = 45$  мм, шириною  $b = 7$  мм та висотою  $h = 3—5$  мм. Швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі визначали методом, який реалізовувався таким чином. Зразок розміщали між двома п'єзоелектричними перетворювачами, один з яких випромінював ультразвукові імпульси з частотою 0,6 МГц. Інший перетворювач, що розташовувався на протилежній поверхні зразка, приймав ультразвукові імпульси після їх проходження через матеріал зразку, перетворював їх на електричний сигнал і передавав на електронну апаратуру для реєстрації. Щоб запобігти потраплянню в пори досліджуваного матеріалу імерсійної рідини, що забезпечує акустичний контакт між зразком та перетворювачами, на зразок наклеювали тонку полімерну плівку, вплив якої враховували при визначенні акустичних характеристик матеріалу. Швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі  $V$  розраховували за виміряними шляхом та часом проходження ультразвукового імпульсу. За наведеним методом визначали швидкості поширення ультразвукової хвилі в напрямку пресування  $V_h$  та в напрямку  $b$ , перпендикулярному до напрямку пресування,  $V_b$  (рис. 1).

Крім того, вимірювали швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в стрижні  $V_{rl}$  за методом резонансної ультразвукової спектроскопії. Досліджуваний зразок розміщували між двома п'єзоелектричними перетворювачами, які могли відтворювати та сприймати механічні коливання в широкому діапазоні частот. Механічний контакт між зразком і перетворювачами здійснювався в двох точках (кутах зразка) для мінімізації впливу закріплення на рухомість зразка, а відтак, і на частоти його власних коливань. Детально реалізація методу описана в роботі [8]. Швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в стрижні  $V_{rl}$  розраховували за виміряними частотами власних коливань за формулою [9]

$$V_{rl} = 2l \cdot f_{ln} \cdot n^{-1}, \quad (1)$$

де  $l$  — довжина стрижня, а  $f_{ln}$  — частота  $n$ -ї моди його поздовжніх резонансних коливань.

### Результати та їх обговорення Експериментальні результати

Результати визначення швидкостей поширення ультразвукових хвиль в зразках досліджуваних матеріалів наведено на рис. 2. Як видно на рис. 2, всі виміряні швидкості поширення ультразвукових хвиль в усіх досліджених матеріалах із збільшенням пористості монотонно

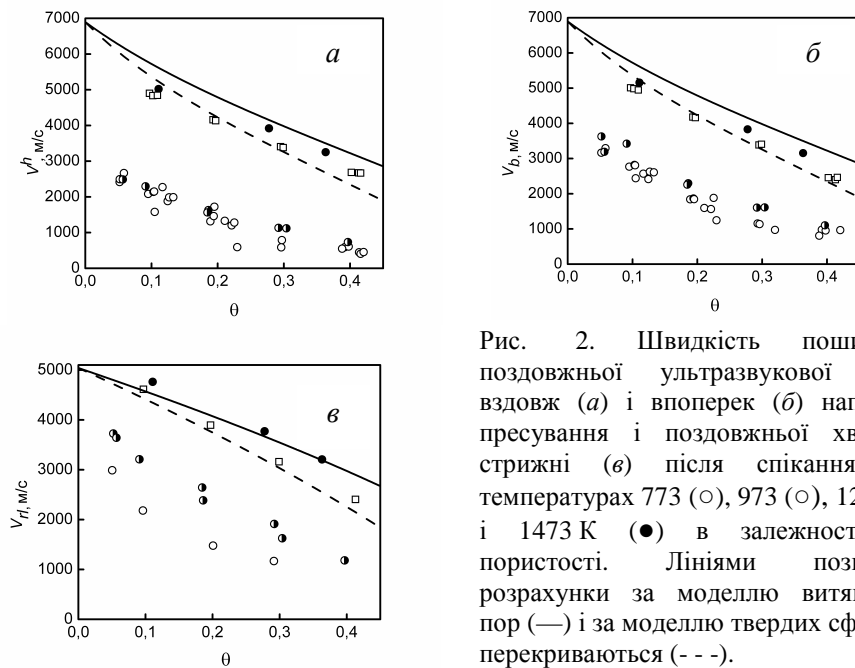


Рис. 2. Швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі вздовж (а) і впоперек (б) напрямку пресування і поздовжньої хвилі в стрижні (в) після спікання при температурах 773 (○), 973 (○), 1273 (□) і 1473 К (●) в залежності від пористості. Лініями позначено розрахунки за моделлю витягнутих пор (—) і за моделлю твердих сфер, що перекриваються (- -).

зменшуються. Збільшення температури спікання  $T_s$  спричиняє зростання швидкості звуку в усіх напрямках та в усьому діапазоні пористості, хоча при збільшенні  $T_s$  від 773 до 973 К підвищення швидкості поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в напрямку пресування  $V_h$  є менш помітним, аніж в інших напрямках. Очевидно, що відмінність швидкості поширення ультразвуку в матеріалах однієї пористості, що спечені при різних температурах, свідчить про наявність в досліджуваних матеріалах, крім об'ємних пор, ще й площинних дефектів, які не впливають на густину матеріалу, проте призводять до суттєвого зменшення пружності.

### Анізотропія швидкості поширення ультразвукової хвилі

На рис. 3 наведено дані щодо залежності від пористості параметра анізотропії, визначеного за формулою

$$A = 1 - \frac{V_h}{V_b}, \quad (2)$$

де  $V_h$  та  $V_b$  — швидкості поширення ультразвукової хвилі в напрямках відповідно паралельно та перпендикулярно до напрямку пресування.

Анізотропію швидкості поширення ультразвукової хвилі спостерігали в деяких матеріалах порошкового походження [10] і, зокрема, у матеріалах

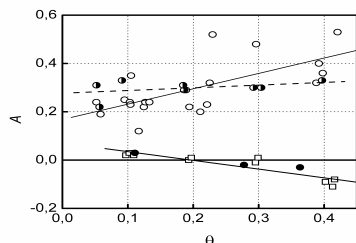


Рис. 3. Залежність параметра анізотропії швидкості поширення ультразвукової хвилі (формула (2)) в матеріалах після спікання при температурах 773 (○, —), 973 (○, - -), 1273 (□, -) і 1473 К (●) від пористості.

з досліджуваного титанового порошку, спечених при менших температурах [6]. Автори роботи [6] висловили припущення, що причиною анізотропії може бути просторове розташування недосконалих контактів, яке формується при пресуванні порошку, або градієнт густини по товщині зразка, що виникає внаслідок тертя частинок порошку об стінки прес-форми. Одержані в даній роботі результати дозволяють провести більш детальний аналіз виявленої анізотропії. Дані, які наведені на рис. 3, свідчать, що відносна різниця між вимірними швидкостями у матеріалів, спечених при 773 і 973 К, має той же порядок, але стрімко зменшується при збільшенні  $T_s$  до 1273 К. Абсолютні значення різниці  $|V_b - V_h|$  (не показані) при цьому теж суттєво зменшуються. Проте встановлено, що характер зміни параметра  $A$  зі зміною пористості залежить від температури спікання. Так, після спікання при температурі 773 К спостерігається збільшення параметра анізотропії з пористістю. При підвищенні  $T_s$  вже до 973 К анізотропія практично не змінюється зі зміною пористості (хоча  $A$  зберігає порядок величини), а при вищих температурах спікання при пористості більше за 0,2 відбувається інверсія анізотропії, коли швидкість  $V_h$  стає більшою за  $V_b$ .

Значне зменшення анізотропії після високотемпературного спікання свідчить на користь впливу саме недосконалих в механічному сенсі контактів на швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в тому чи іншому напрямку.

Натомість швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в стрижні  $V_{rl}$  після спікання при нижчих температурах близька до швидкості  $V_b$ , а після спікання при вищих температурах (1273 і 1473 К)  $V_{rl} < V_b$ . Остання нерівність має теоретичне пояснення. Відомо, що швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в стрижні  $V_{rl}$ , матеріал якого відповідає припущенням теорії пружності, зокрема суцільності і однорідності, відрізняється від швидкості поширення поздовжньої хвилі в безмежному середовищі  $V_l$ . Ці швидкості визначаються за формулами [9]:

$$V_{rl} = \left( \frac{E}{\rho} \right)^{1/2}; \quad (3)$$

$$V_l = \left( \frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)} \right)^{1/2}, \quad (4)$$

де  $E$ ,  $\nu$  та  $\rho$  — модуль Юнга, коефіцієнт Пуассона та густина матеріалу відповідно.

З формул (3) і (4) випливає, що  $V_l > V_{rl}$  при умові  $0 < \nu < 0,5$ , яка практично є справедливою для всіх традиційних матеріалів. Незалежне вимірювання цих двох швидкостей дозволяє визначити обидва модулі пружності, що повністю характеризують пружну поведінку ізотропного матеріалу.

Таким чином, експериментальні спостереження можуть свідчити про те, що зниження температури спікання є причиною зменшення коефіцієнта Пуассона порошкового титану і, як наслідок, зближення вимірних значень швидкостей  $V_b$  і  $V_{rl}$ .

### Формулювання моделі для розрахунку дефектності

Для оцінки якості матеріалів природно визначати дефектність, порівнюючи виміряну обрану характеристику зразка матеріалу з такою ж

характеристикою бездефектного матеріалу. В нашому випадку можна визначати дефектність за формулою

$$D = 1 - \frac{V}{V_{no}}, \quad (5)$$

де  $V$  та  $V_{no}$  — швидкості ультразвуку в досліджуваному та в бездефектному матеріалах відповідно. Під бездефектним матеріалом будемо розуміти матеріал, що містить об'ємні пори, але площинні дефекти (недосконалі контакти та тріщини) в ньому відсутні. Надалі називатимемо такий матеріал бездефектним пористим матеріалом на відміну від бездефектного матеріалу, що не містить пор, який будемо називати матеріалом твердої фази і позначати нижнім індексом "0".

Величину швидкості поширення ультразвукової хвилі в бездефектному пористому матеріалі можна визначити, підставивши в рівняння (3), (4) теоретичні залежності характеристик пружності від пористості. Проте відомі численні теоретичні та емпіричні залежності характеристик пружності від пористості виведені за різних припущень і тому розраховані за цими моделями значення не збігаються, що особливо помітно в діапазоні пористостей 0,2—0,4 [11—14]. Тому для встановлення параметра дефектності матеріалу  $D$  був реалізований такий алгоритм: 1) за характеристики пружності бездефектного пористого матеріалу приймали експериментально знайдені модуль Юнга та коефіцієнт Пуассона порошкового титану, спеченого при температурі 1473 К; 2) обирали модель, що найбільш адекватно описує структуру і поведінку пористого титану; 3) за формулою (5) визначали параметр дефектності зразків, спечених при нижчих температурах.

Модуль Юнга  $E_{no}$  і модуль зсуву  $G_{no}$  титану, що спечений при температурі 1473 К, розраховували за значеннями вимірених частот перших мод резонансних поздовжніх  $f_l$  і крутильних  $f_t$  коливань стрижня за формулами теорії пружності [9]. Зважаючи на встановлений факт практично незначної анізотропії пружності титану, спеченого при згаданій температурі, для визначення коефіцієнта Пуассона  $\nu_{no}$  скористалися відомими співвідношеннями між характеристиками пружності ізотропного матеріалу [9]. Результати експериментального визначення  $E_{no}$  та  $\nu_{no}$  зображені на рис. 4.

З урахуванням структури матеріалу було розглянуто чотири моделі, що пов'язують зміну модуля Юнга з пористістю, а саме: 1) узагальнений метод самоузгодження у припущенні наявності в матеріалі сферичних пор,

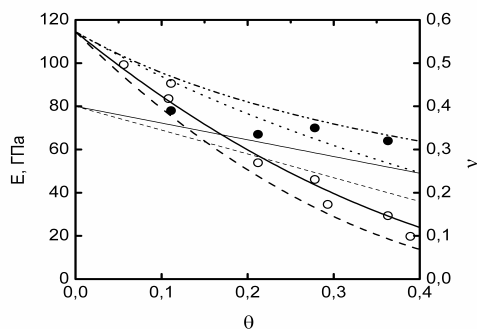


Рис. 4. Модуль Юнга  $E$  ( $\circ$ ) та коефіцієнт Пуассона  $\nu$  ( $\bullet$ ) порошкового титану, спеченого при 1473 К, в залежності від пористості і розрахунок за моделями Маккензі (- · -), Хашина—Штрікмана (— · —), твердих сфер (- -) та витягнутих пор (—). Товсті лінії відносяться до модуля Юнга, тонкі — до коефіцієнта Пуассона.

які не взаємодіють між собою [12]; 2) модель Хашина—Штрікмана за умови рівності нулю характеристик пружності включень в матриці з титану [14]; 3) трьохвимірна числова модель твердих сфер, що частково перекриваються [13]; 4) трьохвимірна числова модель твердого тіла з витягнутими порами [13].

Було також проведено розрахунки за двома моделями, що пов'язують коефіцієнт Пуассона з пористістю матеріалу: числова модель твердого тіла з витягнутими порами та числова модель твердих сфер, що частково перекриваються [13]. Результати моделювання наведені на рис. 4. При розрахунках вважали, що характеристики пружності твердої фази становлять  $E_0 = 114,5$  ГПа,  $G_0 = 41,2$  ГПа [15].

Наведені на рис. 4 дані свідчать, що найкраще пружну поведінку порошкового титану описує модель твердого тіла з витягнутими порами. Розрахунок за формулами (3) та (4) підтвердив, що ця модель найбільш придатна для визначення дефектності матеріалу. Результати розрахунку за моделями твердого тіла з витягнутими порами та твердих сфер, що перекриваються, наведено на рис. 1. Тому залежність швидкості поширення ультразвукової хвилі в бездефектному пористому матеріалі  $V_{no}$  розраховували, підставляючи характеристики пружності, що визначені за вказаною моделлю.

### Еволюція площинних дефектів при спіканні

Результати визначення площинної дефектності за формулою (5) з використанням даних про швидкості поширення різних типів поздовжніх ультразвукових хвиль наведені на рис. 5. Отримані результати свідчать, що дефектність матеріалів, особливо спечених при температурах 773 і 973 К, суттєво залежить від їх пористості — площинні дефекти більше впливають на характеристики пружності більш пористих матеріалів.

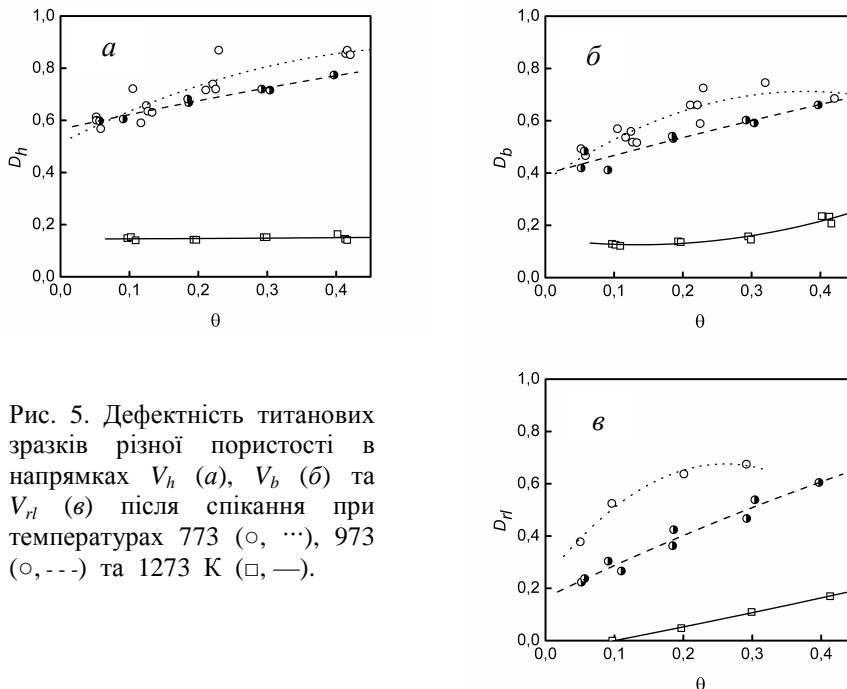


Рис. 5. Дефектність титанових зразків різної пористості в напрямках  $V_h$  (а),  $V_b$  (б) та  $V_r$  (в) після спікання при температурах 773 (○, ⋯), 973 (●, ---) та 1273 К (□, —).

Помітною є також анізотропія дефектності. Після спікання при 773 К матеріали є найбільш дефектними в напрямку пресування, в той час як в обох напрямках перпендикулярно пресуванню величина параметра  $D$  є практично однаковою, тобто  $D_h > D_b \approx D_{rl}$ . Зростання температури спікання до 973 К практично не впливає на дефектність  $D_h$  та  $D_b$  матеріалу пористістю до 0,1, але параметр  $D_{rl}$  зменшується вдвічі. При більших пористостях підвищення температури спікання спричиняє помітне зниження дефектності в усіх напрямках. Після спікання при температурі 1273 К дефектність пористих матеріалів стрімко зменшується, причому ця зміна є більшою в більш дефектних матеріалах, тобто в матеріалах з більшою пористістю і в напрямку, паралельному пресуванню. Таким чином, залежність дефектності таких матеріалів від пористості зменшується, а в напрямку  $V_h$  практично зникає. Проте, незважаючи на зменшення, в напрямках, перпендикулярних до напрямку пресування, залежність дефектності від пористості все ще існує — більш пористі матеріали містять більше площинних дефектів. Слід також відзначити, що, незважаючи на високу температуру спікання, дефектність зразків в усьому дослідженому діапазоні пористостей залишається на рівні 0,2, за винятком напрямку  $V_{rl}$ , в якому при пористостях матеріалів до 0,2 площинні дефекти майже відсутні.

Підсумовуючи, можна стверджувати, що після пресування порошку титану та спікання його при температурі 773 К існує анізотропія дефектності, яка може спричинятись різною орієнтацією площинних дефектів. Підвищення температури спікання до 973 К приводить до суттєвого зменшення дефектності лише в напрямку  $V_{rl}$ . Оскільки при цьому не спостерігається усадки, консолідація відбувається лише за рахунок процесів, що не потребують великого масопереносу, а саме за рахунок формування металічних зв'язків в області деформованих контактів між частинками порошку. Внаслідок подальшого підвищення температури зменшуються дефектність та анізотропія дефектності, що свідчить про перехід структури матеріалу до більш рівноважного стану.

Відомо, що характеристики пружності стегнової кістки при пористості 0,04—0,15 становлять  $E_l = 15—21$  ГПа,  $E_t = 8—13$  ГПа (модуль Юнга в поздовжньому і трансверсальному напрямках відповідно),  $\nu = 0,32—0,44$  [16], швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі в напрямку волокон становить 4000—4400 м/с, а в радіальному напрямку — 3000—3600 м/с [17]. Як видно, характеристики пружності і, відповідно, швидкість звуку спеченого титану в діапазоні досліджених пористостей відповідають відповідним характеристикам кісткової тканини. Проте підвищення температури спікання до 1273 К дозволяє зменшити площинну дефектність матеріалу. Тому для виготовлення імплантатів може бути рекомендований порошковий титан пористістю 0,2—0,3, спечений при 1273 К або вищих температурах.

### Висновки

Встановлено, що характеристики пружності, а відтак швидкість поширення поздовжньої ультразвукової хвилі матеріалів пористістю 0,05, спечених при 773—973 К, а також матеріалу пористістю 0,2—0,3, спеченого при 1273 К, відповідають характеристикам тканини стегнової кістки.

Анізотропія характеристик пружності, яка притаманна пресовкам та матеріалам, що спечені при відносно низьких температурах, практично зникає при підвищенні температури до 1273 К в усьому дослідженому діапазоні пористості (від 0,05 до 0,4). Зменшення дефектності, яке супроводжує таке підвищення температури, свідчить, що причиною анізотропії є орієнтація недосконалих площинних контактів між частинками порошку.

Одержані дані щодо площинної дефектності дозволяють рекомендувати для виготовлення імплантатів матеріали пористістю до 0,3, що спечені при температурі 1273 К.

1. *Niinomi M.* Mechanical biocompatibilities of titanium alloys for biomedical applications // *J. Mech. Behavior Biomed. Mater.* — 2008. — **1**. — P. 30—42.
2. *Medeiros W. S., Oliveira M. V., Pereira L. C., Andrade M. C.* Bioactive porous titanium: an alternative to surgical implants // *Artificial Organs.* — 2008. — **32** (4). — P. 277—282.
3. *Krishna B. V., Xue W., Bose S., Bandyopadhyay A.* Engineering porous metals for implants // *JOM.* — 2008. — No. 5. — P.45—48.
4. *Ryan G. E., Pandit A. S., Apatsidis D. P.* Porous titanium scaffolds fabricated using a rapid prototyping and powder metallurgy technique // *Biomaterials.* — 2008. — **29**. — P. 3625—3635.
5. *Mullner H., Fritsch A., Kohlhauser C. et al.* Acoustical and poromechanical characterisation of titanium scaffolds for biomedical applications // *Strain.* — 2008. — **44**. — P. 153—163.
6. *Вдовиченко А., Мешкова Г. А., Назаренко В. А.* Исследование упругости пористого титана акустическим неразрушающим методом // *Современные проблемы физического материаловедения.* — К.: Ин-т пробл. материаловедения НАН Украины. — 2008. — Вып. 17. — С. 145—151.
7. *Подрезов Ю. Н., Назаренко В. А., Вдовиченко А. В. и др.* Механические свойства порошкового титана на разных стадиях его получения. III. Анализ процесса контактообразования в порошковом титане по результатам исследования физико-механических свойств при спекании // *Порошковая металлургия.* — 2009. — № 3/4. — С. 98—111.
8. *Вдовиченко А. В.* Исследование упругости и контроль дефектности композитов AlCuMn—SiC резонансными методами // *Ceramics.* — 2005. — **89**. — P. 209—216.
9. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Теоретическая физика: В 10-ти т. Т. VII. Теория упругости. — М.: Наука, 1987. — 248 с.
10. *Роман О. В., Скороход В. В., Фридман Г. Р.* Ультразвуковой и резистометрический контроль в порошковой металлургии. — Минск: Выш. шк., 1989. — 182 с.
11. *Скороход В. В.* Реологические основы теории спекания. — К.: Наук. думка, 1972. — 152 с.
12. *Mackenzie J. K.* Elastic constants of a solid containing spherical holes // *Proc. Phys. Soc. (London).* — 1950. — **63B**. — P. 2—11.
13. *Roberts A. P., Garboczi E. J.* Computation of the linear elastic properties of random porous materials with a wide variety of microstructure // *Proc. R. Soc. Lond.* — 2002. — **A458**. — P. 1033—1054.
14. *Hashin Z., Shtrikman S.* A variational approach to the theory of elastic behaviour of multiphase materials // *J. Mech. Phys. Solids.* — 1963. — **11**. — P. 127—140.
15. *Францевич И. Н., Воронов Ф. Ф., Бакута С. А.* Упругие постоянные и модули упругости металлов и неметаллов. — К.: Наук. думка, 1982. — 286 с.
16. *Dong X. N., Guo X. E.* The dependence of transversely isotropic elasticity of human femoral cortical bone on porosity // *J. Biomech.* — 2004. — **37**. — P. 1281—1287.
17. *Pithioux M., Lasaygues P., Chabrand P.* An alternative ultrasonic method for measuring the elastic properties // *Ibid.* — 2002. — **35**. — P. 961—968.