

OPONENTNÍ POSUDEK DISERTAČNÍ PRÁCE

Autor: Ing. Ondřej Ambrož

doktorand na Ústavu materiálových věd a inženýrství FSI VUT v Brně

Název práce: Nové metody přípravy vzorků pro moderní rastrovací elektronovou mikroskopii

Školitel: Ing. Mgr. Šárka Mikmeková, Ph.D.

Úvod

Předložená disertační práce deklaruje zabývat se novými metodami přípravy vzorků pro moderní rastrovací elektronovou mikroskopii s cíli tyto nové metody optimalizovat pro korelativní zobrazování zejména mikrostruktury vysokopevných ocelí a dále je automatizovat.

Na 43 stranách z celkového rozsahu 126 stran čistého textu poskytuje autor úvod do současného stavu poznání na základě rešerše informačních zdrojů, kterých uvádí celkem 184. Součástí rešeršní části je i krátký přehled situace na trhu již komerčně dostupnými automatizovanými a robotizovanými systémy přípravy metalografických vzorků. Navazující experimentální část zaujímá 77 stran čistého textu, z nichž 15 stran zabírá popis experimentálního materiálu a použitých přístrojů, včetně robotizovaného pracoviště a laboratorních aparatur sestavených samotným autorem. Na zbylých 62 stranách jsou pak uvedeny popisy a výsledky experimentů, následuje devět stran diskuse a necelá jedna strana závěru.

Aktuálnost řešeného tématu

Nutnost vývoje *princiálně* zcela nových metod přípravy vzorků pro mikroskopii, byť se budeme bavit o technikách elektronové mikroskopie s vysokou povrchovou citlivostí, nevímám ze své zkušenosti jako výrazně palčivou; ostatně tomu se autor ve své práci nakonec nevěnuje. Paleta již známých technik je po mém soudu dostatečně široká, aby se dala vybrat technika – či kombinace technik – které se budou hodit pro právě zkoumanou kombinaci konkrétního materiálu a plánovaných pozorovacích a analytických technik.

Co nicméně je aktuální a čemu se autor také věnuje, je optimalizace postupu přípravy vzorků a vyvolání mikrostruktury u pokročilých vysokopevných ocelí, které jsou ve velkém měřítku využívány v podstatných segmentech průmyslové výroby, jako je automotive a obecně stavba dopravních prostředků. Zaručení úzkých tolerancí užitných vlastností těchto materiálů vyžaduje dostatečně zevrubnou procesní a výstupní kontrolu při jejich výrobě a to zase předpokládá zpracování velkého množství metalografických vzorků. Z tohoto pohledu je idea co největší automatizace, vedoucí k eliminaci rizikových faktorů (ať už směrem k personálu nebo směrem ke zpracovávaným vzorkům) a zejména zajištění přesné reprodukovatelnosti výsledků, dostatečně nosnou, aby se stala tématem disertační práce, byť by se využívaly techniky přípravy vzorků již desetiletí zavedené.

Naplnění stanovených cílů

Cíle práce lze pro účely posouzení naplnění cílů přeuspořádat do následujících tematických celků:

- Stanovení kombinace/kombinací metod přípravy kovových vzorků, jmenovitě vysokopevných ocelí, které splní nároky konkrétních pozorovacích technik (LOM, SLEEM, EBSD, CLSM příp. AFM)
- Stanovení kombinace metod přípravy stejných vzorků, jako v předešlém bodě, která splní nároky více pozorovacích technik zároveň pro korelativní pozorování.
- Nalezení spolehlivého postupu čistění vzorků před založením do SEM.
- Vývoj robotizovaného pracoviště pro chemické a elektrolytické leptání s cílem zlepšení reprodukovatelnosti. Toto bylo samotným autorem vymezeno jako pouze dílčí cíl.

Souhrnně lze konstatovat, že stanovených cílů bylo dosaženo, byť téměř u všech lze spatřovat rezervy. Zejména nalézání metod přípravy vzorků pro korelativní pozorování se ukázalo jako zjevně větší problém, než autor předpokládal, jmenovitě pokud mají být korelovány analýzy SLEEM, LOM, CLSM s EBSD.

Vývoj robotizovaného pracoviště se zdařil, byť dosažená míra reprodukovatelnosti výsledků přípravy stále podléhá náhodným a nepojmenovaným výkyvům – viz vzorky, které se nedařilo napoprvé nebo dokonce vůbec naleptat.

Na druhou stranu metoda spolehlivého čistění vzorků nalezena byla a stejně tak lze hovořit o úspěšném nalezení metod přípravy vzorků pro jednotlivé oddělené pozorovací metody (LOM + CLSM vs. SLEEM vs. EBSD).

Zcela mimo stojí otázka posouzení, zda byl dosažen obecný cíl, definovaný autorem jako: .. „vyvinout a otestovat *inovativní* metody metalografické přípravy vzorků,“ .. protože stojíme před problémem definovat, který aspekt budeme považovat za dostatečně inovativní. Pokud budeme posuzovat inovativnost tak, že očekáváme nalezení dosud neznámých kroků přípravy, pak takovou míru inovace nevidím. Pokud zaujmeme pohled metodický, tj. inovaci budeme spatřovat v nové kombinaci známých kroků, případně jejich přesnějším a optimalizovaným prováděním, pak ano, takové míry inovace dosaženo bylo.

Jako poznámku pod čarou k poslednímu tématu jen připojuji, že výstižnější název práce by dle mého názoru měl místo o metodách „nových“ hovořit o „optimalizovaných“.

Zhodnocení postupu řešení

Zvolený postup řešení problému hodnotím jako ne zcela šťastně navržený, ačkoli ke splnění většiny autorem vymezených cílů nakonec vedl. Problematické body vidím zejména tyto:

- Postrádám důkladnější teoretický rozbor a vymezení požadavků, které jednotlivé metody (SEM/SLEEM, LOM, CLSM, EBSD, AFM) na vzorek kladou zejména co se týče přípustného reliéfu, citlivosti na povrchové zhmoždění a do jaké maximální hloubky může zasahovat, dále toleranci popřípadě citlivost na přítomnost vrstvy kontaminace či korozních produktů na povrchu. Zejména v případě SEM/SLEEM a EBSD lze provést jednoduché simulace, ze kterých by pro konkrétní materiály vyplynuly vyčíslené hloubky interakčních objemů, které jasně určují, do jaké hloubky musí být povrch vzorku zachován. Stejně tak by se dalo jednoduchým rozbořením geometrie při měření pomocí EBSD dospět k vymezení maximálního přípustného reliéfu. Obdobně bychom jednoduše dospěli rozbořením hloubky ostrosti k maximálnímu přípustnému reliéfu pro LOM. V neposlední řadě měla být provedena rozvaha, jaké strukturní složky a v jaké minimální velikosti jsme schopni uvažovanými technikami zachytit a za jakých předpokladů. Vůči těmto požadavkům by pak bylo o něco snazší hledat vhodné kombinace metod přípravy vzorků a jejich paleta by se nejspíše zúžila, respektive by hned na úvod bylo jasné, že hledáme specifické metody pro každou pozorovací techniku a materiál.
- Z pohledu tematického směřování práce pokládám experimenty s in-situ leptáním konstrukční oceli a venkoncem i in-situ ohřevem zirkonové keramiky a oceli T11N za zbytečné odbočky. In-situ leptání by mělo smysl, pokud by mu bylo věnováno hlubší úsilí jako metodě pro rychlou optimalizaci např. času leptání. Opravdu stěžejní roli by pak získala případná úspěšná konstrukce in-situ elektrolytické lešticí cely. Obě témata in-situ experimentů tak spíše zavazují, jelikož z nich pro - z mého pohledu - hlavní

téma, tj. optimalizaci metody přípravy ocelových vzorků pro SEM/SLEEM, LOM, CLSM nebylo nic využito. Zejména in-situ ohřev ani nepovažuji za metodu přípravy vzorků; dynamické in-situ experimenty v elektronové mikroskopii jsou rozsáhlé a samostatné téma.

- Téma barevného leptání hliníkových slitin je opět odbočkou, jelikož zjevně není metodou vhodnou pro zpracování vzorků pro SEM/SLEEM, EBSD a nakonec ani CLSM. Překáží nicméně v práci o něco méně, než výše zmíněné in-situ experimenty, jelikož může prokázat vhodnost robotizace pro vyvolávání mikrostruktury u jiného typu materiálů a navíc metodou, jak autor správně identifikuje, extrémně citlivou na přesné provedení. Mohlo tedy posloužit jako „benchmark test“ přínosu robotizace, pokud by po nalezení vhodného činidla a procesních parametrů následoval test reprodukovatelnosti. Ten by se navíc patrně vyhodnocoval jednodušeji, než u feriticko – perlitické oceli.
- Aplikace umělé inteligence/strojového učení v mikroskopii je stále aktuální téma s doposud nevyčerpaným potenciálem. Metodika zvolená v této práci ale sleduje pouze jednu linii problému, tj. která ze dvou metod vyvolání mikrostruktury bude při daném nastavení algoritmu AI vést k lepší segmentaci obrazu. Pomíjí druhou linii, tj. zda by pro metodu vyvolání mikrostruktury dle předchozího kritéria méně vhodnou nebylo jiné nastavení algoritmu AI srovnatelně účinné. Nastavení algoritmu není v práci nijak zdůvodněno. Využití AI nebylo ani formálně stanoveno jako jeden z cílů práce, čili zahrnutí tohoto tématu v rozsahu, v jakém je provedeno, nepovažuji za přínosné. To zvláště s přihlédnutím k přirozené návaznosti mezi vhodnou metodou přípravy vzorku pro nějakou zobrazovací techniku a kvalitou získaného zobrazení. Když potom získáme standardizovaně kvalitní zobrazení, pak je nasnadě předpokládat, že na něm snáze natrénujeme vhodně nastavený algoritmus AI. Jinými slovy využití AI dle mého názoru neimplikuje nové nároky na kvalitu přípravy vzorků, jiné než má samotná technika pro získání obrazu. Na případná specifika spojení „příprava vzorku – zobrazovací technika“ lze následně nastavit a natrénovat algoritmus AI.
- U experimentu, jímž byla ověřována reprodukovatelnost výsledků vyvolání mikrostruktury u feriticko – perlitické oceli, považuji za slabinu zejména fázi vyhodnocení s pomocí jednoduchého prahování. Tak, jak byla autorem implementována, totiž nepřináší nic navíc proti subjektivnímu hodnocení „od oka“. Zde zůstalo nevyužité místo pro aplikaci AI a pro stanovení sofistikovanější metriky úspěchu/neúspěchu přípravy. Jinak ale rozsah a ideu experimentu považuji za správné a vlastně stěžejní.

Naopak kladně hodnotím rozvržení optimalizačních experimentů (testy činidel, automatizaci leptání a čištění, optimalizaci polohy vzorku v lázni a míchání činidel), které dle mého názoru byly zcela na místě a logicky zapadají do hlavního tématu. Rovněž oceňuji množství práce, odvedené při realizaci těchto experimentů. V této části práce také vidím hlavní přínos doktoranda, spolu s odzkoušením robotického leptání (vyvolávání mikrostruktury). Práce podle mého názoru mohla nabýt větší tematické koherence a praktického významu, pokud by se v ní robotizace a statistické ověření reprodukovatelnosti kvality připravených vzorků stalo významnějším tématem.

Zhodnocení významu pro praxi a vědní obor

Z předchozího zhodnocení postupu již plyne, které výstupy považuji za přínosné. Zde tedy pro zdůraznění: Robotizaci vyvolání mikrostruktury a tím očekávané dosahování vysoce reprodukovatelných výstupů, zejména ve spojení s masivnějším využitím segmentace a kvantifikace strukturních složek podporované AI, považuji za vysoce perspektivní téma, pro jehož další rozvoj jsou v předložené práci položeny solidní základy.

Rovněž ověření vhodnosti postupů přípravy vzorků TRIP oceli pro různé pozorovací techniky považuji za přínosné. V tomto případě se jedná o přínos, který převádí situaci, jež se dá charakterizovat výrokem: „tušíme, jak je to správně, ale nemáme k tomu důkazy“ na situaci „víme, že je to tak správně a víme proč“.

Zhodnocení formální úpravy a jazykové úrovně

Disertační práce je po stránce grafické úpravy vyvedena vkusně a přehledně, stejně tak je poměrně přehledné i členění do kapitol. Citované zdroje jsou v drtivé většině relevantní a jsou citovány korektně. Ohledně citací

nicméně vnímám s rozpaky časté odkazy na vlastní publikace autora, které ale zhusta neobsahují žádné nové informace nad rámec toho, co je již uvedeno v textu práce. Text jako takový je zatížen únosnou mírou překlepů.

Z pohledu čtenáře vnímám úkorně doslovné překlady zdrojové literatury v rešeršní části (např. kapitoly 2.1.8, 2.1.9 a další), které jsou ponechány bez jakékoli češtinářské korektury (př. str. 33, druhý odstavec: ...“ Alternativně mohou být dehydratovány tryskami dusíku,“ ...). Autor se také často dopouští nepřesných překladů obecných pojmenování mimo kontext a i zavedených termínů (kap. 2.1.7, první odstavec: ... „přičemž tvar a směr těchto linek závisí na orientaci krystalu“ ... , kde místo „tvar“ z kontextu patří „průběh“ a místo „linek“ mají být „striace“). Rovněž je autorovým velkým nešvarem zejména v rešeršní části vynechávání důležitých slov či celých kontextů, ať již nedbalým překladem nebo nesoustředěným psaním, což pochopení významu dosti ztěžuje (př. kap. 2.2.3, první odstavec: „Tím ovšem potenciál těchto systémů nekončí, protože je v kooperaci také pokročilejší světelný nebo rastrovací elektronový mikroskop, a tak je možné vzorky také automatizovaně nasnímat.“).

Jako slabou hodnotím část 5.2 v diskusi, která spíše než kritickou konfrontací s výsledky jiných vědců překypuje sebechválou a je zejména zatížena vytýkanými autocitacemi, které nepřináší nový kontext. Ostatní podkapitoly vcelku relevantně hodnotí dosažené výsledky a naznačují budoucí plány.

Závěry považuji za poněkud nekonkrétní, nicméně celkem umírněně shrnující úroveň výsledků.

Otázky k obhajobě

1. V kapitole 4.4.4 hovoříte o preferenčním napadení vhodně orientovaných zrn feritu jako jedné z příčin nekvalitního vyvolání mikrostruktury a uvádíte k tomuto tvrzení příklad na obr. 4-35 a 4-38. Kriticky zhodnoťte, zda nemůže být příčina jiná, zejména s přihlédnutím k tomu, že dle obr. 4-36 a 4-37 se „vadné“ vzorky „clusterují“ za sebou (zejména viz snímky LOM).
2. Pro pořízení řady snímků v SEM byl použit režim katodové čočky a detektory CBS a TLD. Prosím zdůvodněte volbu konkrétního nastavení SEM, jako je: WD, HV, proud svazku, předpětí na stage, apod.
3. V kapitole 4.4.7 jste využil mapování chemického složení metodou EDS na vzorcích po barevném leptání. Kriticky zhodnoťte, zda je tato metoda skutečně vhodná pro analýzy chemického složení takto připravených vzorků.
4. V kapitole 4.4.8 v obr. 4-55 je na snímku pořízeném detektorem ETD na vzorku leptaném při 15 V/5 s vidět zhruba diagonální rozhraní mezi světlejší a tmavší částí obrazu. Na snímcích tohoto místa, pořízených jinými detektory a technikami, takové rozhraní vidět není. Jaké máte pro tento jev vysvětlení?
5. V práci na více místech využíváte mapování fázového složení pomocí EBSD. V kapitole 4.4.8 jako komentář k výsledkům v obr. 4-60 uvádíte, že oblasti δ -feritu považujete za správně indexované jako BCC a oblasti austenitu jako FCC. Popište detailně, jak byla data EBSD po akvizici zpracovávána.
6. Na řadě míst v práci jsou mikrostruktury připravených vzorků snímány i metodou CLSM. Jejím výstupem jsou topografické modely snímaného povrchu, které bývají reprezentovány jako 3D profily. Jakým způsobem a v jakém režimu jste pořizoval CLSM snímky? V práci o tom není zmínka, nicméně využíval jste při segmentacích CLSM obrazů nějak výškovou topografickou informaci?
7. Velmi často používáte termín „sekundární fáze“ ve smyslu „ostatní strukturní složky“. Toto použití je z pohledu materiálových věd zavádějící. Vyjasněte rozdíl mezi fází a strukturní složkou a přesně definujte, co je to sekundární fáze.

Závěrečné doporučení

Přes všechny výše uvedené výtky hodnotím práci tak, že v ní převažují přínosy nad nedostatky a proto doporučuji po úspěšné obhajobě udělení titulu Ph.D.

Vyjádření k tezím disertační práce

K předloženým tezím nemám žádné námitky. Jsou adekvátně zestručněnou verzí disertační práce a splňují formální požadavky na ně kladené.

V Brně, dne 7.8.2024

Ing. Ondřej Man, Ph.D.