

激光超声技术测量高温下蓝宝石单晶的弹性模量*

宋云飞¹⁾ 于国洋¹⁾ 殷合栋¹⁾ 张明福²⁾ 刘玉强¹⁾ 杨延强^{1)†}

1) (哈尔滨工业大学物理系凝聚态科学与技术研究中心, 哈尔滨 150001)

2) (哈尔滨工业大学复合材料与结构研究所, 哈尔滨 150001)

(2011年6月7日收到; 2011年7月14日收到修改稿)

利用纳秒激光脉冲所激发的超声纵波, 非接触地测量了蓝宝石单晶沿 c 轴方向的弹性模量 C_{33} 随温度的变化关系. 结果表明, 在室温到 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 的范围内, 蓝宝石的弹性模量 C_{33} 随温度 T 的升高而减小, 两者之间近似呈如下二次关系: $C_{33} = -1.541 \times 10^{-5} T^2 - 0.021 T + 498.3$. 由于该方法利用激光烧蚀效应激发了强度很大的纵波, 因此对弹性模量的测量具有较高的精度, 估算 C_{33} 的测量误差不超过 0.1% .

关键词: 激光超声, 蓝宝石, 弹性模量, 高温

PACS: 42.62.-b, 78.20.-e

1 引言

蓝宝石是一种优良的光学材料和衬底材料, 被大量地应用于制造红外探测器和各种飞行器的光学窗口或整流罩^[1-3], 以及作为各种功能薄膜材料的生长基片. 飞行器在大气层中飞行时, 由于同空气的剧烈摩擦, 蓝宝石窗口的温度通常会有显著提高, 而蓝宝石有一个严重缺点, 即它的机械性能受温度的影响非常明显. 高温会使得蓝宝石的各项性能出现很大的负面变化, 例如在 $800\text{ }^\circ\text{C}$ 下, 蓝宝石的抗压强度已经锐减至室温时的 2% ^[4], 这将直接影响设备的可靠性. 因此, 精确测定宝石在高温下的机械性能, 可以为工程设计提供重要的参考数据. 传统的检测材料机械性能的手段一般难以在高温的条件下适用, 因为多数检测设备本身无法承受过高的温度; 只有少数方法如瞬时接触法等可以胜任这一工作^[5].

近几十年来, 激光超声技术的发展为在极端条件下测量材料的机械性能提供了一种十分有效的方法^[6-8]. 激光超声技术具有如下一些特点^[9]: 1) 可以进行远距离非接触探测; 2) 一般不会破坏材料; 3) 对被测样品的外型没有很严格的要求; 4) 所激发的超声波频谱很宽, 因此它既可以探测材料的宏观特性, 同时也可以用来探测材料中的细微结构. 激光脉冲在材料中激发超声波有两种机

理: 一种被称为热弹性机理, 在较小的激光功率作用下, 若材料对激光有较强的吸收, 激光的能量可以直接沉积在材料表面附近, 使得材料表面的温度迅速升高, 材料受热膨胀形成偶极子声源并激发中空指向性的超声波向材料内部传播, 这一作用的物理过程相对简单, 关于热弹性波的产生已经有比较详尽的理论描述和应用^[10-12]; 另一种方式被称为烧蚀机理, 这种方式通常要求激光的功率较高, 材料表面需要一层额外的吸光涂层 (一般为金属薄膜), 涂层在激光的作用下被烧蚀 (在材料表面不需保护的情况下, 也可以直接烧蚀被测材料本身), 产生气体向外喷射会在材料表面施加一个反作用力并激发中强指向性的超声纵波. 相比于热弹性波, 这一方法的优势在于它不要求被测材料对激光有吸收, 同时烧蚀产生超声波为垂直表面传播的纵波, 且具有更高的强度, 这使得利用声波测量材料的厚度更加简便. 利用超短脉冲作为激发源时, 利用烧蚀机理还可以产生 GHz 以上的高频超声^[13-15]. 超声波在材料中传播时, 根据超声波在材料中的传播特性以及超声波和材料的相互作用, 可以获知材料的结构、缺陷以及多种力学性质等方面的信息^[16-18]. 对于激光超声技术, 超声波的产生和探测都是由光学手段完成, 因此这种技术可以实现对材料的非接触测量, 这一点对于高温等极端条件下的测量是十分有利的.

* 国家自然科学基金 (批准号: 20973050) 资助的课题.

† E-mail: yqyang@hit.edu.cn

在本文的工作中,我们将利用激光超声技术非接触的测量材料在高温下的性能变化. 被测样品选择人造蓝宝石单晶,通过宝石中的声速,可以得到材料的弹性模量;为了使声速测量精确且操作简便,应该使用具有一定强度的纵波,因此在实验中我们将利用烧蚀机理;超声信号的检测将借助干涉测量法. 由于实验中采用全光学的手段,蓝宝石晶体所处的高温环境不会对测量产生任何影响.

2 实验

将蓝宝石单晶切割成直径 36 mm, 厚 2 mm 的圆片并抛光,为了弹性模量的计算方便,我们令样品的两个表面垂直于 c 轴方向. 由于样品将被加热至很高的温度,通常使用的金属薄膜如 Al, Ag 等已经不再适合作为吸光涂层,这里我们选用氧化铜 (CuO) 作为吸收光的物质,这是由于 CuO 的熔点高,且外观为黑色粉末,因此对激发光有较强的吸收. 将 CuO 粉末混入黏结剂中并旋涂于样品的表面,蒸干黏结剂后, CuO 粉末紧密地附着在样品的表面,多次旋涂蒸干后,最终形成约 5 μm 厚的吸光涂层. 为了测量蓝宝石在高温下的弹性特性,样品被放置在管式加热炉中,炉内最高温度可升至 1000 $^{\circ}\text{C}$,通过自整定温控方式,可以实现炉内温度稳定在设定值的 $\pm 1^{\circ}\text{C}$ 内.

使用调 QNd-YAG 激光器 (光谱物理: Quanta-Ray) 作为光源激发超声波,激光脉冲的波长为 532 nm,脉宽约 10 ns,单脉冲能量 120 mJ,重复频率为 1 Hz. 实验中,聚焦到样品上的光斑直径约为 2.5 mm,由此可以算出激光的平均功率密度约为 $2.4 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$,样品表面附着的 CuO 将被

烧蚀并激发超声波向样品内传播. 为探测超声信号,我们将使用迈克耳孙干涉系统,样品的后表面 (未涂膜面) 将充当干涉光路中某一路光学臂末端的反射镜,超声波到达样品表面所引起的表面移动会使这一路光的光程发生改变,干涉光场的光强也会因此改变,并可以通过光电二极管探测. 整套实验装置的示意图如图 1 所示.

3 结果及讨论

在我们的实验中,激发光斑的直径大于样品的厚度,并且激发光几乎垂直照射在吸光涂层的表面,因此在样品的另一面可以探测到很强的纵波信号,而横波信号很不明显. 由于样品的厚度已知,精确地测量纵波在材料中的传播时间,即可算出沿 c 轴方向传播的纵波波速,进而推算出该方向上的弹性模量 C_{33} .

3.1 超声信号波形

在实验中能够直接探测到的是干涉光场强度随时间的变化,它代表了超声波到达样品表面时所引起的表面位移变化. 图 2 给出了典型的超声波信号波形,从中可以看出,波形的一个显著特点是超声波信号反复出现了多次,即图中所标识的 1, 2, 3, ..., 并且这些信号以相等的时间间隔出现,这些信号的出现是由超声波在材料的两个表面之间反射导致. 机械波在穿过两种材料的交界面时会同时出现透射和反射,其振幅反射率 R 可以由下式得到:

$$R = \frac{|Z_1 - Z_2|}{Z_1 + Z_2}, \quad (1)$$

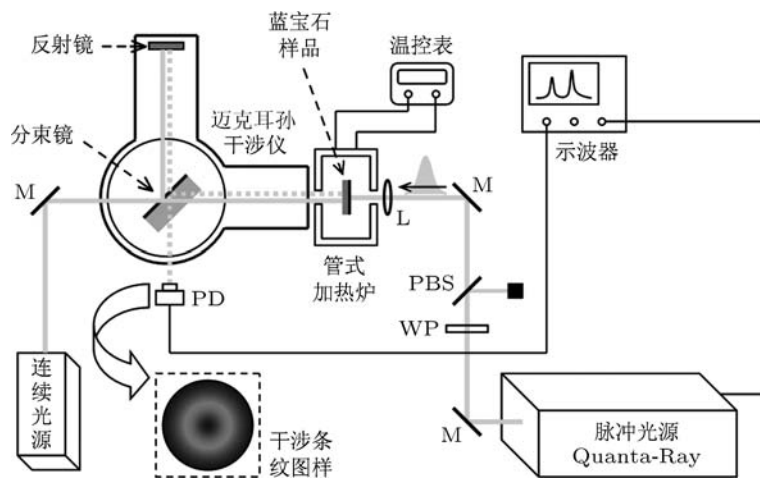


图 1 激光超声实验系统示意图 M 为反射镜, WP 为半波片, PBS 为偏振分光片, L 为凸透镜, PD 为光电二极管

其中, Z_1, Z_2 分别为两种材料的声阻抗. 在我们的实验中, 两种材料分别为蓝宝石和空气, 通常气体的声阻远小于固体, 因此可以近似地认为 $R \approx 1$, 即声波在材料表面可以看作无衰减的反射. 声波在材料中每次往返经过样品后表面时, 都会被示波器记录一次, 由此形成一系列等间隔的信号. 这一系列回波信号的存在使得我们可以十分精确地得到声波在晶体中的传播速度. 图 2 给出的超声波形中, 纵波信号十分明显尖锐, 因此可以精确地测出每次声波到达样品表面的时间. 任意两个信号尖峰之间的时间间隔都等于纵波在晶体内往返一次所需要的时间, 而样品的厚度已知, 于是便可以算出纵波在材料中的传播速度. 图 2 的内插图中给出了每次信号出现的时间和对应的声波传播距离, 利用最小二乘原理进行线性拟合即可得到声波的速度, 在室温下, 纵波的速度 v_0 为 11.2 km/s.

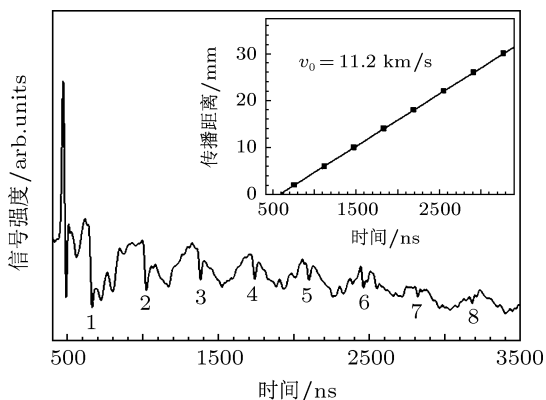


图 2 超声波在蓝宝石样品中多次反射所形成的波形 内插图中给出了每一个超声信号出现时间和传播距离的关系

3.2 蓝宝石弹性模量随温度的变化

图 3 给出了从室温 (约 20 °C) 到 1000 °C 的范围内, 由示波器记录下的超声波在蓝宝石内的传播情况. 从图中可以明显地看出, 随着温度的逐渐升高, 纵波传播的时间逐渐增长, 这说明纵波的传播速度随温度的升高在逐渐降低. 如前所述, 根据纵波信号出现的时间, 以及被测样品的厚度, 即可以得到声波在材料中的传播速度. 但是, 由于我们的实验是在变温的情况下完成, 样品的厚度会随着温度的升高而出现微小的变化. 当温度达到 1000 °C, 蓝宝石的线膨胀率约为 0.74%, 并且在温度小于 1000 °C 的范围内, 蓝宝石的厚度可以近似地看作随温度线性变化 [19], 精确的计算速度必须考虑这一因素.

在图 4 中, 空心方块给出了纵波在蓝宝石中沿 c 轴方向的传播速度随温度的变化趋势, 这里在

计算声速时已经考虑了样品受热膨胀的影响. 根据下式可以计算出蓝宝石的弹性模量:

$$C_{33} = \rho v^2, \quad (2)$$

其中, C_{33} 为蓝宝石沿 c 轴方向的弹性模量, ρ 为蓝宝石密度, v 为沿 c 轴方向的纵波声速. 根据 (2) 式可以算出各个温度下的 C_{33} , 如图 4 中实心方块所示.

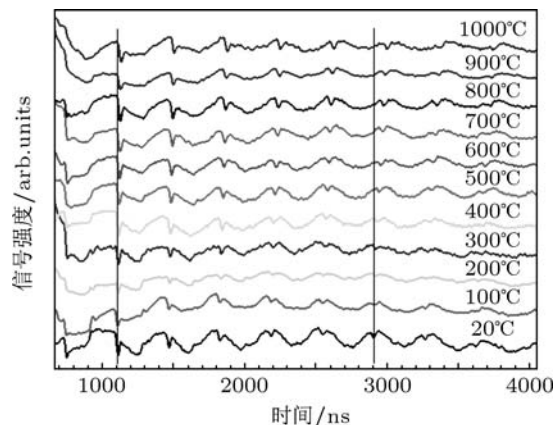


图 3 各个温度下蓝宝石样品中的超声波波形

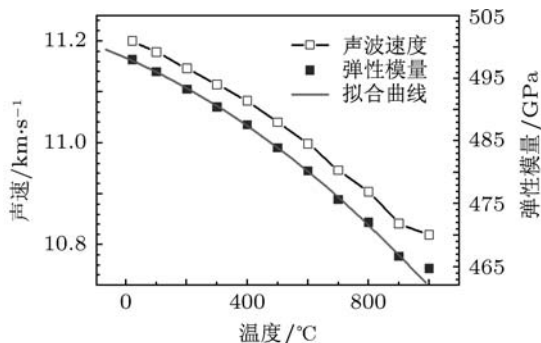


图 4 蓝宝石中沿 c 轴方向的纵波速度 v 及弹性模量 C_{33} 随温度的变化趋势

3.3 结果分析

从图 4 中可以看出, 蓝宝石弹性模量总的变化趋势是随温度升高而减小. 其中, 除 1000 °C 时的数据外, 其他数据点的下降趋势基本一致. 这是由于 1000 °C 已经接近 CuO 的分解温度 (1053 °C), 此时, 约 5 μm 厚的 CuO 涂层在激光脉冲的烧蚀下被更快地消耗掉, 因此得到的数据平均次数很少; 另外, 随着温度的升高, 炉内的空气对流越来越强烈, 导致样品的稳定性越来越差, 在 1000 °C 下已经很难保持干涉条纹的稳定, 因此得到的数据会有很大的误差. 在实验中, 超声波出现的时间由示波器直接读出, 误差约为 ± 2 ns; 样品厚度的测量误

差约为 ± 0.005 mm. 超声波的速度是通过多次超声波出现的时间及传播的距离, 用最小二乘法拟合得到, 拟合测得的声速误差约为 ± 0.005 km/s. 根据测速的误差估计, 除 1000 °C 的情况外, 其他温度下弹性模量的误差应该不超过 0.1% . 这里我们不考虑 1000 °C 的情况, 只对其他数据做二项式拟合, 得到 C_{33} 和温度 T 之间的关系为

$$C_{33} = -1.541 \times 10^{-5} T^2 - 0.021 T + 498.3, \quad (3)$$

其中, C_{33} 的单位为 GPa, T 的单位为 °C. 拟合的曲线如图 4 中的实线所示. 若按照 (3) 式推算, 在 1000 °C 下, C_{33} 约为室温下的 92.8% ; 而在 2000 °C 接近蓝宝石熔点时, C_{33} 已经下降到室温的 79.3% .

4 结论

在本文中, 我们利用纳秒激光脉冲的高功率密度对材料表面吸光涂层的烧蚀作用, 在材料内激发

出较强的纵向声波, 并通过测量纵波在材料中的传播速度得到了材料的弹性模量. 超声波的产生和探测都是通过光学的手段完成, 这一技术最主要的特点是可以实现对材料的远距离非接触测量, 因此可以很方便地在很多极端条件下进行. 利用这一技术, 我们给出了从室温到 1000 °C 的范围内, 蓝宝石沿 c 轴方向的弹性模量 C_{33} 随温度的变化关系. 同样, 这一技术也可以用于测量其他材料在各种极端条件下的性能.

利用烧蚀机理可以在材料中激发出较强且垂直表面传播的超声纵波, 声波可以在材料中多次反射, 在我们的测量方法中正是利用了纵波在样品中多次反射的时间数据, 得到的测量结果更加精确. 由于高温对材料的机械性能有十分明显的影响, 精确地测量各种材料在高温下的性能变化可以加深对材料抗热震性的了解, 对于提高器件在高温下工作的可靠性具有很重要的意义.

-
- [1] Nie H, Lu B Z 2005 *Ship Electronic Engineering* **25** 131 (in Chinese) [聂辉, 陆炳哲 2005 舰船电子工程 **25** 131]
- [2] Xu Z H, Zhang J C, Zhang Z F, Zhu Q W, Duan H T, Hao Y 2009 *Chin. Phys. B* **18** 5457
- [3] Xue J S, Hao Y, Zhang J C, Ni J Y 2010 *Chin. Phys. B* **19** 057203
- [4] Zhang M F, Zhang H L, Guo H X, Han J C, Yang H, Huo C S, Li J M 2010 *Materials Review* **24** 108 (in Chinese) [张明福, 张海亮, 郭怀新, 韩杰才, 杨海, 霍承松, 黎建明 2010 材料导报 **24** 108]
- [5] Papadakis E P, Lynnworth L C, Fowler K A, Carnevale E H 1972 *J. Acoust. Soc. Am.* **52** 850
- [6] Chigarev N, Zinin P, Ming L C, Amulele G, Bulou A, Gusev V 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 181905
- [7] Rossignol C, Chigarev N, Ducouso M, Audoin B, Forget G, Guillemot F, Durrieu M C 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 123901
- [8] Kozhushko V V, Hess P 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 124902
- [9] Krishnaswamy S *Theory and Applications of Laser-ultrasonic Techniques* in Kundu T 2003 *Ultrasonic Nondestructive Evaluation: Engineering and Biological Material Characterization* (Boca Raton: CRC Press) 436
- [10] Telschow K L, Conant R J 1990 *J. Acoust. Soc. Am.* **88** 1494
- [11] McDonald F A 1989 *Appl. Phys. Lett.* **54** 1504
- [12] Blodgett D W, Baldwin K C 2005 *Johns Hopkins APL Technical Digest* **26** 36
- [13] Duquesne J Y, Perrin B 2003 *Phys. Rev. B* **68** 134205
- [14] Saito T, Matsuda O, Wright O B 2003 *Phys. Rev. B* **67** 205421
- [15] Capel P J S, Dijkhuis J I 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 151910
- [16] Han Q B, Qian M L, Zhu C P 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 313 (in Chinese) [韩庆邦, 钱梦驩, 朱昌平 2007 物理学报 **56** 313]
- [17] Antonelli G A, Maris H J, Malhotra S G, Harper M E 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 3261
- [18] Wang J S, Xu X D, Liu X J, Xu G C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7765 (in Chinese) [王敬时, 徐晓东, 刘晓峻, 许钢灿 2008 物理学报 **57** 7765]
- [19] Shao W Q, Chen S O, Qi P, Li D, Zhu H L, Zhang Y C 2006 *Journal of Qingdao University* **19** 35 (in Chinese) [邵渭泉, 陈沙鸥, 戚凭, 李达, 朱海玲, 张永成 2006 青岛大学学报 **19** 35]

Temperature dependence of elastic modulus of single crystal sapphire investigated by laser ultrasonic*

Song Yun-Fei¹⁾ Yu Guo-Yang¹⁾ Yin He-Dong¹⁾ Zhang Ming-Fu²⁾
Liu Yu-Qiang¹⁾ Yang Yan-Qiang^{1)†}

1) (Center for Condensed Matter Science and Technology, Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

2) (Center of Composite Materials, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China)

(Received 7 June 2011; revised manuscript received 14 July 2011)

Abstract

The longitudinal ultrasonic wave launched by ns-laser pulse is used to measure the temperature dependence of the elastic modulus C_{33} of single crystal sapphire. The result shows that in a temperature from room temperature to 1000 °C the elastic modulus of sapphire C_{33} reduces as the temperature increases, following the relationship $C_{33} = -1.541 \times 10^{-5}T^2 - 0.021T + 498.3$. In this method, the ablation mechanism is adopted to launch strong longitudinal waves, therefore, the result is accurate that the error of the measurement is estimated to be no more than 0.1%.

Keywords: laser ultrasonic, sapphire, elastic modulus, high temperature

PACS: 42.62.-b, 78.20.-e

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 20973050).

† E-mail: yqyang@hit.edu.cn