

CFA '18 LE HAVRE ■ 23-27 avril 2018
14^{ème} Congrès Français d'Acoustique



**Caractérisation Acoustique à Haute Fréquence de Céramiques
Poreuses pour les Transducteurs Ultrasonores**

F. Levassort^a, J. Bustillo^a, D. Kuscer^b, T. Bakaric^b et M. Lethiecq^c

^aGREMAN UMR7347 CNRS, U.Tours, INSA-CVL, GREMAN site ST, 10 rue Thales de Milet, 37100
Tours, France

^bJozef Stefan Institute, Electronic Ceramics Departement, Jamova Cesta 39, 1000 Ljubljana, Slovénie

^cGREMAN UMR 7347, Univ. de Tours/CNRS/INSA-CVL, site INSA, 3 rue de la Chocolaterie, 41000
Blois, France

franck.levassort@univ-tours.fr

Les céramiques piézoélectriques poreuses sont aujourd'hui souvent intégrées comme matériaux actifs dans les transducteurs ultrasonores car elles permettent une meilleure adaptation mécanique tout en gardant des propriétés électromécaniques semblables ou supérieures à celles des matériaux denses. Ces matériaux, non polarisés, peuvent aussi être utilisés comme milieu arrière amortisseur (backing) dans ces transducteurs. Le taux de porosité permet d'ajuster leur impédance acoustique et influence l'atténuation selon la taille et la géométrie des pores. A haute fréquence (>20 MHz), les mesures de ces propriétés acoustiques sont souvent difficiles avec les dispositifs standards. Nous proposons dans ce travail un dispositif original pour leurs mesures dans la bande passante du transducteur utilisé. Pour cela, un film épais piézoélectrique est déposé sur le matériau poreux à caractériser. Cette structure est alors immergée devant une cible métallique afin de mesurer sa réponse électroacoustique. L'écho sur la cible est transmis vers le milieu arrière en passant à travers le film épais. Si la couche de ce matériau est suffisamment fine, un signal sera réfléchi sur sa face arrière (en contact avec l'air) et reviendra vers le film épais. Le temps de vol de ce signal est alors suffisamment important pour être séparé de l'impulsion électrique initiale. En diminuant par étapes successives l'épaisseur du matériau poreux, les vitesses de groupe, de phase et les coefficients d'atténuation sont déterminés dans la bande passante de la structure intégrée. Pour cette étude, deux backings poreux ont été fabriqués avec deux tailles de pores (1,5 et 10 μm) et une fraction volumique autour de 20%. Les valeurs des coefficients d'atténuation varient entre 0,3 et 1,7 dB/mm/MHz et les vitesses de groupe sont d'environ 3500 m/s. Ces résultats montrent que ces matériaux sont adéquats pour la fabrication de backings millimétriques, minimisant ainsi l'encombrement de ces dispositifs.

1 Introduction

Pour les applications ultrasonores haute fréquence (>20 MHz) ou haute température, les céramiques poreuses de type PZT (zircono-titanate de plomb) peuvent être utilisées comme milieu arrière (backing) dans un transducteur [1, 2]. Dans ce cas, ce matériau ferroélectrique n'est pas polarisé et n'est donc pas piézoélectrique. La valeur de la fraction volumique de porosité contenue dans le matériau permet d'ajuster celle de l'impédance acoustique mais également l'atténuation en accord avec la taille et la forme des pores. Pour la conception d'un transducteur, la connaissance de ces données est essentielle. Pour les applications en haute fréquence, les dispositifs expérimentaux sont souvent difficiles à mettre en place en utilisant des méthodes standard en réflexion ou transmission [3]. Pour ce travail, nous proposons un dispositif original et simple pour mesurer les propriétés directement aux fréquences de fonctionnement du transducteur haute fréquence. La superposition temporelle de l'excitation électrique et du signal à mesurer, qui apparaît très souvent quand l'épaisseur du matériau est faible, est évitée. Pour cela des structures multicouches composée d'un backing poreux de PZT, d'une électrode arrière en or, d'un film épais piézoélectrique (PZT) déposé par sérigraphie et d'une fine électrode supérieure (or) ont été fabriquées. Deux types de backings avec différentes tailles de pores ont été fabriqués avec un mélange initial de poudre de céramique (PZT) et d'un matériau organique qui sont ensuite frittés à haute température. Ces structures, dites intégrées, sont ainsi considérées comme des transducteurs haute fréquence. Au préalable les connexions électriques ont été réalisées. Tout d'abord, les réponses électroacoustiques de ces deux transducteurs ont été mesurées dans l'eau. La caractérisation des paramètres acoustiques des backings a été faite en utilisant le signal se propageant dans l'eau, réfléchi sur une cible métallique, traversant le film épais piézoélectrique (quelque dizaines de micromètres en épaisseur), le backing, réfléchi sur la face arrière du backing et enfin retournant vers le film piézoélectrique. Nous avons répété ces mesures en diminuant progressivement l'épaisseur du backing poreux (entre 3,5 mm et 500 μm). Avec les mesures de temps de vol et d'amplitude des signaux considérés, les vitesses de phase et

groupe et les coefficients d'atténuation ont été déduits. Dans la partie suivante, nous décrirons dans un premier temps la fabrication de la structure intégrée et en particulier les backings poreux. Le détail de la méthode de mesure sera décrite dans la partie 3 et enfin les propriétés acoustiques à haute fréquence obtenues seront exploitées et discutées dans la dernière partie.

2 Fabrication des structures

Des poudres avec les compositions $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ (nommée PZT) et $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})_{0.98}\text{Nb}_{0.02}\text{O}_3$ avec 2 mol % de PbO en excès (nommée PZTNb) ont été synthétisées. Pour cela, les oxydes ont été homogénéisés et calcinés à 1100°C pendant 1 heure [4, 5]. Les backings poreux sont obtenus à partir de la poudre de PZT où 10% vol. a été stabilisée dans l'eau (pH 7) avec 0,5% en masse de polyéthylèneimine (PEI). Indépendamment, 10% vol. de particules de forme sphérique de PMMA de taille 1,5 μm (nommée PMMA1,5) ou 10 μm (nommée PMMA10) sont aussi stabilisées dans l'eau (pH 7). Les suspensions de PZT et de PMMA (avec 1,5 μm ou 10 μm) ont ensuite été mélangées avec un rapport volumique de 70:30 et séchées à 105°C. Le mélange a été compacté sous forme de cylindre (12 mm de diamètre et 10 mm de hauteur) et enfin fritté à 1080°C pendant 2 heures. Plus de détails de ce procédé de fabrication sont donnés dans la référence [6]. Deux céramiques poreuses sont ainsi obtenues appelées PZT1 (avec les PMMA10) et PZT2 (avec PMMA1,5). Une électrode d'or est déposée sur la surface supérieure des matériaux par sérigraphie (électrode arrière, figure 1).

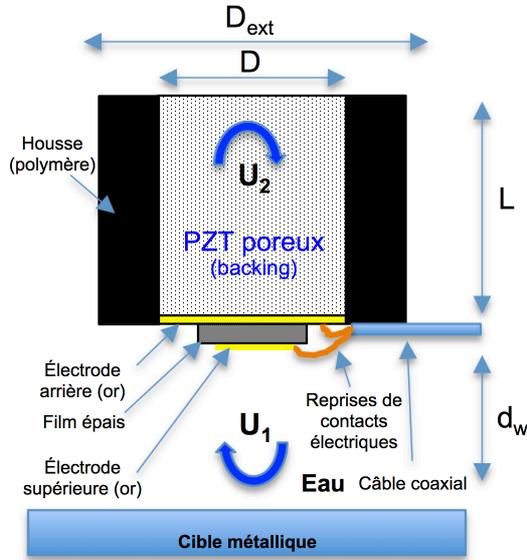


Figure 1: Schéma de la structure utilisée pour la caractérisation du backing poreux à haute-fréquence.

Sur cette électrode arrière, une pâte de PZT dopée avec du Niobium (PZTNb) est à son tour déposée par sérigraphie. Cette pâte est préparée à partir de poudre de PZTNb (60% en masse) et d'un véhicule organique (terpinéol, 40% en masse). Un traitement thermique à 900°C pendant 2 heures est appliqué à ce film épais. Finalement, une électrode supérieure d'or est déposée par évaporation. Les deux structures obtenues (nommées ST1 et ST2) ont été insérées dans une housse en polymère avec un diamètre extérieur ($D_{ext}=3$ cm) bien plus large que le diamètre des cylindres de PZT poreux ($D=1$ cm). Cette différence importante de diamètre a été choisie pour faciliter la diminution progressive de l'épaisseur des backings par ponçage au papier de verre (figure 1) tout en gardant des surfaces planes et parallèles. Pour terminer, deux reprises de contact électrique sont effectuées sur les deux électrodes et reliées à un câble coaxial (50 Ω).

La masse volumique des films épais a été déterminée avec des coupes polies observées à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) et converties (binaire) pour déterminer la fraction volumique des pores [7, 8].

3 Méthode de caractérisation

Pour les caractérisations acoustiques, les faces avant des deux structures ST1 et ST2 sont immergées en face d'une cible métallique pour évaluer les réponses électroacoustiques des deux transducteurs correspondants. Pour cette première mesure, l'épaisseur des cylindres de PZT poreux est suffisamment élevée pour considérer ces milieux comme semi-infinis (fonction recherchée pour un backing). La face arrière est quant à elle dans l'air pour toutes les mesures. Un émetteur/récepteur (PR5900, Panametrics) a été utilisé avec un câble de 40cm de long pour obtenir le signal U_1 (figure 1) et visualisé sur un oscilloscope (réponse électroacoustique). Ce même signal a également en partie traversé le film épais piézoélectrique, l'électrode arrière et se propage dans le PZT poreux. Il est à son tour réfléchi sur la face arrière (en contact avec l'air

pour maximiser l'énergie réfléchie) et retourne vers le film épais pour être visualisé (signal U_2 , figure 1). Si le cylindre de PZT poreux a une épaisseur suffisamment fine, ce signal U_2 pourra être observé sans subir une atténuation trop importante. Le temps de vol de ce même signal sera suffisamment long pour ne pas se superposer avec le signal initial d'excitation afin de pouvoir l'exploiter de façon optimale. Ces mesures sont répétées en diminuant à chaque fois l'épaisseur du cylindre de PZT poreux de 3,5 mm à 500 micromètres. Les vitesses de groupe et de phase ainsi que le coefficient d'atténuation dans la bande passante de ce transducteur sont alors déduits.

Pour la vitesse de groupe (c_G), la relation suivante est utilisée :

$$c_G = \frac{2L}{\tau_{U_2} - \tau_{U_1}} \quad (1)$$

où L est l'épaisseur du cylindre de PZT poreux, τ_{U_1} et τ_{U_2} sont les temps de vol respectifs des signaux U_1 et U_2 .

Dans le domaine fréquentiel, le signal U_1 est donné par [9] :

$$U_1(f) = A_{exc} e^{-2\alpha_w(f)d_w} e^{2jk_w(f)d_w} R H_E H_R \quad (2)$$

A_{exc} est l'amplitude du signal d'excitation, H_E et H_R sont les fonctions de transfert de l'émetteur et du récepteur, d_w est la distance entre la face avant du film épais et la cible dans l'eau (figure 1), k_w est le nombre d'onde dans l'eau, α_w est le coefficient d'atténuation dans l'eau [10] et R le coefficient de réflexion en amplitude à l'interface eau/cible (aluminium).

Avec un formalisme similaire, le signal U_2 est obtenu avec la relation suivante :

$$U_2(f) \approx U_1(f) e^{-2\alpha_B(f)L} e^{2jk_B(f)L} T_{TB} T_{BT} R_{Bair} H_R \quad (3)$$

où α_B est le coefficient d'atténuation dans le backing (PZT poreux), k_b est le nombre d'onde dans le backing, T_{TB} et T_{BT} sont les coefficients de transmission en amplitude entre le film épais (T) et le backing (B) et inversement. R_{Bair} est le coefficient de réflexion entre le backing et l'air (sur la face arrière). Enfin, la transmission à travers l'électrode arrière d'or est aussi prise en compte dans les expressions des coefficients T_{TB} et T_{BT} .

Si l'on suppose que la réflexion est totale sur la face arrière du backing ($R_{Bair}=1$), les deux relations pour le coefficient d'atténuation et la vitesse de phase dans le backing sont [11]:

$$\alpha_b(f) = \frac{-20 \log_{10} \left(\left| \frac{U_2(f)}{U_1(f) T_{TB} T_{BT} H_R} \right| \right)}{L} \quad (4)$$

$$c_\phi(f) = \frac{4\pi f L}{\text{angle} \left(\frac{U_2(f)}{U_1(f) H_R} \right)} \quad (5)$$

Ici, les deux fonctions de transfert H_E et H_R sont supposées être identiques et déterminées avec l'équation (2).

Les propriétés électromécaniques des films épais sont obtenues avec la mesure de l'impédance électrique autour

de la fréquence de résonance du mode épaisseur. Pour cela, le dispositif expérimental est constitué d'un analyseur de spectre (HP4395A) et de son kit d'impédance. Le schéma électrique équivalent KLM [12] est utilisé pour calculer l'impédance complexe théorique et par ajustement avec la courbe expérimentale, les paramètres du mode épaisseur du film épais sont déduits [1]. Dans ce processus de caractérisation, les propriétés de toutes les couches passives autour du film épais sont prises en compte (les électrodes d'or et le backing). Les caractéristiques de ces couches (vitesse de groupe, masse volumique et atténuation) sont considérées comme fixées dans le processus d'ajustement. Pour les deux structures étudiées, les épaisseurs des électrodes arrière et avant sont respectivement de 13 et 0.1 micromètres. Finalement pour les films épais, cinq paramètres sont extraits : les pertes mécaniques (δ_m) et diélectriques (δ_e), le coefficient de couplage effectif du mode épaisseur (k_t), la vitesse de groupe (c_L) et la constante diélectrique à déformation constante ($\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$).

4 Résultats et discussion

Deux coupes des PZT poreux (PZT1 et PZT2) ont été réalisées et observées au microscope électronique à balayage (figure 2).

De plus, des coupes similaires ont été faites sur les deux structures ST1 et ST2 (figure 3). A partir de ces observations, les épaisseurs et les masses volumiques (en accord avec la fraction volumique de porosité) ont été déterminées.

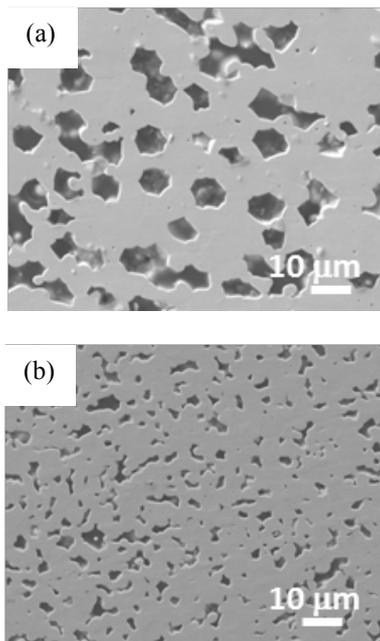


Figure 2: Coupes transversales des backings poreux (PZT) polis (MEB) (a) PZT1 (10 µm) (b) PZT2 (1,5 µm).

Les films épais (PZTNb) ont une épaisseur de 22 µm. Le film épais de la structure ST1 est légèrement plus dense que celui de la structure ST2 avec des densités relatives respectives de 77% et 85% (tableau 1). Enfin, la fraction volumique des pores dans les deux backings est identique avec une valeur de 20%.

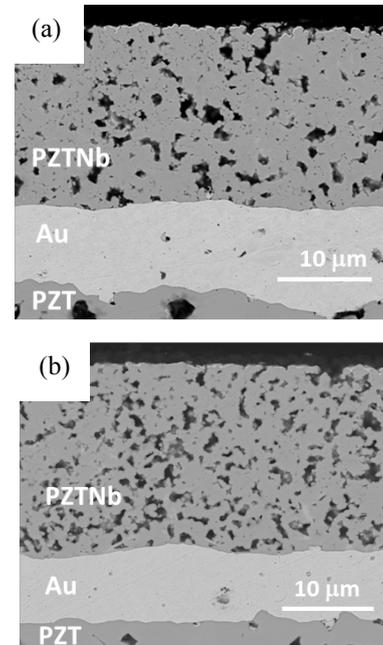


Figure 3: Coupes transversales des structures multicouches polies (MEB) (a) ST1 (10 µm) (b) ST2 (1,5 µm).

Tableau 1: Epaisseurs et masses volumiques des couches constitutives des structures (t : épaisseur des films épais ; ρ : masse volumique des films épais; ρ_b : masse volumique des backing poreux).

Ech.	t (µm)	ρ (kg/m ³)	ρ_b (kg/m ³)
ST1	22	6800	6240
ST2	22	6200	6600

Les propriétés électromécaniques des films épais ont été déduites avec le schéma KLM et une procédure d'ajustement de l'impédance électrique. Les données du tableau 1 ont servi comme valeurs d'entrée pour cette caractérisation et les résultats sont précisés dans le tableau 2 pour le film épais de la structure ST2.

Tableau 2: Propriétés du film épais de la structure ST2 (A : aire de l'électrode supérieure ; $\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$: constant diélectrique à déformation constante ; k_t : coefficient de couplage effectif du mode épaisseur; δ_m : pertes mécaniques; δ_e : pertes diélectriques).

Ech.	A (mm ²)	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	k_t (%)	δ_m (%)	δ_e (%)
ST2	19.6	310	46	15	≈0.5

La fréquence de résonance de la structure ST2 est proche de 30 MHz et la partie réelle de l'impédance électrique à cette fréquence est basse (<2.5 Ω). De plus, l'ajout de fil de cuivre de faible diamètre pour les reprises de contact électrique introduit des valeurs d'inductance non

négligeables. De ce fait, une fréquence de coupure plus basse que celle de la structure est observée, ce qui conduit à une dégradation des performances du transducteur [13]. Pour le cas présent, la fréquence centrale décroît significativement, jusqu'à à 5 MHz. Pour éviter cet effet néfaste, un circuit électrique d'adaptation est ajouté. Un condensateur est placé entre le fil de cuivre et la structure piézoélectrique afin de compenser l'effet inductif du fil. Ici, une capacité de 100pF a été utilisée pour obtenir une fréquence de résonance de la structure dans l'eau à 20 MHz. La réponse électroacoustique correspondante est donnée figure 4.

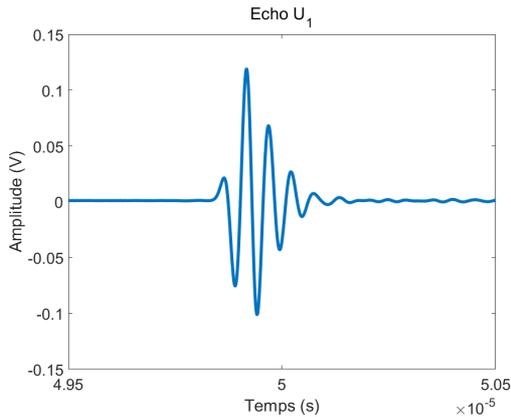


Figure 4: Réponse électroacoustique de la structure ST2 (signal U_1).

La durée de cette réponse à -6dB est de 400ns et la bande passante relative (toujours à -6dB) de 40%. Pour les structures ST1 et ST2, 13 et 3 mesures ont été successivement réalisées en diminuant l'épaisseur des backings de 3,5 mm à 500 μ m (ST1) et de 3 à 2,3 mm (ST2). Pour les plus grandes épaisseurs, le signal U_2 n'était pas observable. La valeur limite était de 2 mm pour la structure ST1.

Les vitesses de groupe ont été respectivement estimées à 3650 ± 30 m/s et 3400 ± 20 m/s pour les structures ST2 et ST1. Dans la bande passante du transducteur (≈ 15 -25 MHz), la vitesse de phase de la structure ST2 est comprise entre 3475 et 3515 m/s. Les valeurs du coefficient d'atténuation en fonction de la fréquence sont données figure 5 pour les deux structures. En première approximation, un comportement linéaire dans la gamme de fréquence d'étude permet de déduire les valeurs suivantes : 1.7 dB/mm/MHz pour la structure ST1 et 0.32 dB/mm/MHz pour la structure ST2.

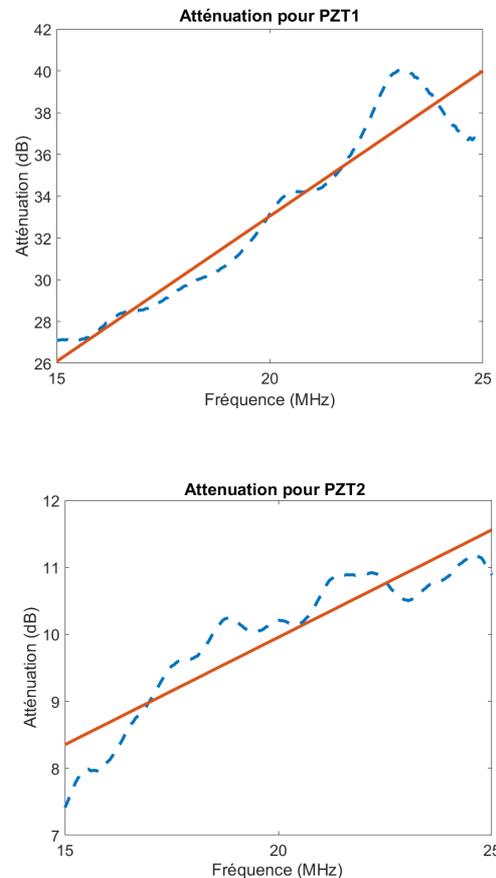


Figure 5: Courbes d'atténuation en fonction de la fréquence pour PZT1 (haut) et PZT2 (bas) (pointillés : résultats expérimentaux ; continu : approximation linéaire dans la bande passante du transducteur).

La plus forte valeur du coefficient d'atténuation dans le backing de la structure ST1 est en accord avec la comparaison entre la taille des pores et la longueur d'onde (environ 170 μ m à 20 MHz) où les effets de diffusion sont renforcés [14].

5 Conclusion

Une méthode pour caractériser les backings de PZT poreux à haute fréquence a été décrite. Pour cela, des structures intégrées ont été fabriquées et elles présentent deux avantages principaux. Premièrement, la réponse électroacoustique de la structure est utilisée pour déterminer les paramètres acoustiques recherchés dans les matériaux poreux (vitesses de groupe et phase et coefficient d'atténuation). Deuxièmement, ces caractérisations se font dans la gamme de fréquence d'intérêt correspondant à la bande passante du transducteur (ici entre 15 et 25 MHz). Pour les deux backings ayant des taux de porosité similaires, la vitesse de groupe est comparable (environ 3500m/s). Par contre la valeur du coefficient d'atténuation est fortement dépendante de la taille des pores. Celle-ci est cinq fois plus importante pour le backing intégrant des pores de 10 μ m (1,7 dB/mm/ MHz) que celui possédant des pores de 1,5 μ m. Grâce à cette forte valeur d'atténuation, l'épaisseur minimale du backing du transducteur correspondant qui doit être considéré comme un milieu semi-infini est de 2 mm (ST1). Cette faible valeur d'épaisseur confirme également que ces matériaux poreux

sont adéquats pour la fabrication de transducteurs haute fréquence miniaturisés.

Remerciements

Les auteurs remercient Jean-Yves Tartu (Université de Tours, iBrain, INSERM 1253) et Laurent Colin pour la fabrication des transducteurs. Ce travail a été soutenu financièrement par l'Agence Slovène de la Recherche (P2-0105), le projet bilatéral PHC PROTEUS 2016 (No. 35246NJ) et le programme ERASMUS+.

Références

- [1] P. Maréchal, F. Levassort, J. Holc, L.P. Tran-Huu-Hue, M. Kosec, M. Lethiecq, "High frequency transducers based on integrated piezoelectric thick films for medical imaging", *IEEE Trans. on Ultra., Ferro. and Freq. Contr.*, **53(8)**, 1524-1533 (2006).
- [2] M-H. Amini, T.-W. Coyle, T. Sinclair, "Porous ceramic as backing element for high-temperature transducers", *IEEE Trans. on Ultra., Ferro. and Freq. Contr.*, **62(2)**, 360-372 (2015).
- [3] H. Wang, T. Ritter, W. Cao, K. Shung, "High frequency properties of passive materials for ultrasonic transducer", *IEEE Trans. on Ultra., Ferro. and Freq. Contr.*, **48(1)**, 78-84 (2001).
- [4] T. Bakarič, B. Budič, B. Malič, and D. Kuscer, "The influence of pH dependent ion leaching on the processing of lead-zirconate-titanate ceramics," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **35**, 2295-2302 (2015).
- [5] D. Kuscer, T. Bakarič, B. Kozlevčar, M. Kosec, "Interactions between Lead-Zirconate Titanate, Polyacrylic Acid, and Polyvinyl Butyral in Ethanol and Their Influence on Electrophoretic Deposition Behavior", *J. Phys. Chem B*, **117**, 1651-1659 (2013).
- [6] T. Bakarič, T. Rojac, A.-P. Abellard, B. Malič, F. Levassort, D. Kuscer, "Effect of pore size and porosity on the piezoelectric and acoustic properties of $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ ceramics", *Advances in Appl. Ceram.*, **115(2)**, 66-71 (2016).
- [7] M. Kuscer, M. Skalar, J. Holc, and M. Kosec, "Processing and properties of $0.65\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.35\text{PbTiO}_3$ thick films," *J. Eur. Ceram. Soc.*, **29(1)**, 105-113 (2009).
- [8] International Centre for Diffraction Data. Powder diffraction file. PDF-ICDD, PCPDFWin version 2.2, Newtown Square, PA (2002).
- [9] J. Bustillo, H. Achdjian, A. Arciniegas, L. Blanc, "Simultaneous determination of wave velocity and thickness on overlapped signals using Forward Backward algorithm", *NDT & E International*, **86**, 100-105 (2016).
- [10] W. D. Wilson, "Speed of sound in distilled water as a function of temperature and pressure", *Journal of the Acoustical Society of America*, **31**, 1067-1072 (1959).
- [11] R. Strelitzki, "On the measurement of the velocity of ultrasound in the os calcis using short pulses", *European Journal of Ultrasound*, **4**, 205-213 (1996).
- [12] D. Leedom, R. Krimholtz, and G. Matthaei, "New equivalent circuits for elementary piezoelectric transducers", *Electronics Letters*, **6(13)**, 398-399 (1970).
- [13] A.-P. Abellard, D. Kuscer, J.-M. Grégoire, M. Lethiecq, B. Malič, F. Levassort, "Lead zirconate titanate-based thick films for high-frequency focused ultrasound transducers prepared by electrophoretic deposition", *IEEE Trans. on Ultra., Ferro. and Freq. Contr.*, **61(3)**, 547-556 (2014).
- [14] R. Wang, T. Li, H. Qiu, F. Wang F, "Pore-Scale Modeling of Pore Structure Effects on P-Wave Scattering Attenuation in Dry Rocks", *PLoS ONE* **10(5)**: e0126941 (2015).