



**HAL**  
open science

## Fabrication et caractérisation de composites piézoélectriques de connectivité 1-3 à base de monocristaux pour la transduction ultrasonore

Franck Levassort, Anne-Christine Hladky, Louis-Pascal Tran-Huu-Hue, Marc Lethiecq, D. Ekeom, Mai Pham Thi

### ► To cite this version:

Franck Levassort, Anne-Christine Hladky, Louis-Pascal Tran-Huu-Hue, Marc Lethiecq, D. Ekeom, et al.. Fabrication et caractérisation de composites piézoélectriques de connectivité 1-3 à base de monocristaux pour la transduction ultrasonore. 10ème Congrès Français d'Acoustique, Apr 2010, Lyon, France. hal-00551172

**HAL Id: hal-00551172**

**<https://hal.science/hal-00551172>**

Submitted on 2 Jan 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# 10ème Congrès Français d'Acoustique

Lyon, 12-16 Avril 2010

## Fabrication et caractérisation de composites piézoélectriques de connectivité 1-3 à base de monocristaux pour la transduction ultrasonore

F. Levassort<sup>1</sup>, A. C. Hladky-Hennion<sup>2</sup>, P. Tran-Huu-Hue<sup>1,3</sup>, M. Lethiecq<sup>1</sup>, D. Ekeom<sup>4</sup>, M. Pham Thi<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Université François-Rabelais, UMR Imagerie & Cerveau, INSERM U930, CNRS ERL 3106, FANO FR CNRS 3110, 10 bld Tonnelé, BP3223, F-37032 Tours cedex - levassort@univ-tours.fr

<sup>2</sup>Institut d'Electronique, de Micro-électronique et de Nanotechnologie, UMR CNRS 8520, FANO FR CNRS 3110, Département ISEN, Cité Scientifique, Avenue Poincaré, BP 60069, F-59652 Villeneuve d'Ascq cedex,

<sup>3</sup>ENI Val de Loire, 34 rue de la chocolaterie, F-41000, Blois

<sup>4</sup>Microsonics, 39 rue des Granges Galand, 37550 Saint-Avertin

<sup>5</sup>THALES Research & Technology France, 128 Route Départementale, F-91767 Palaiseau cedex,

Pour les applications sous-marines et la fabrication de SONARs, de grandes surfaces de matériaux piézoélectriques avec de très bonnes propriétés électromécaniques sont souvent nécessaires. Les monocristaux piézoélectriques (typiquement les compositions PMN-PT ou PZN-PT) sont des matériaux très performants mais sont difficiles à fabriquer en grandes surfaces tout en gardant des propriétés homogènes. Leur intégration dans la fabrication de composites piézoélectriques de connectivité 1-3 avec la méthode dite « dice and fill » délivre d'excellentes performances mais la taille finale des échantillons est limitée par celle du monocristal d'origine. Récemment, une méthode prometteuse a été proposée par empilement de couches successives (dite « par lamination ») évitant ces restrictions dimensionnelles.

Des piézo-composites de connectivité 1-3 ont ainsi été fabriqués avec les deux méthodes. Les propriétés électromécaniques obtenues sont comparables. Les coefficients de couplage (mode épaisseur) des composites fabriqués sont compris entre 60 et 80% suivant les phases (piézoélectriques et inertes) utilisées.

Finalement, plusieurs mono-transducteurs avec des fréquences de résonance autour de 1 MHz ont été modélisés, fabriqués, caractérisés et comparés. Les résultats confirment l'intérêt de cette méthode par lamination pour la fabrication de piézo-composites de connectivité 1-3.

## 1 Introduction

Les monocristaux piézoélectriques (MCP) et les piézo-composites de connectivité 1-3 intégrant ces matériaux [1] ont d'excellentes propriétés électro-mécaniques en particulier certains coefficients de couplage comme le  $k_{33}$  (autour de 90%). Par contre ces matériaux (MCP) sont difficiles à élaborer en grandes surfaces tout en gardant des propriétés homogènes. Pour différentes applications, comme les SONARs, des éléments de grandes tailles sont nécessaires. Les piézo-composites de connectivité 1-3 sont très souvent fabriqués par la méthode dite de « dice and fill » [2] (DF) où leur taille finale est limitée par celle de la pièce d'origine du matériau piézoélectrique massif. En 2007, une nouvelle méthode dite par « lamination » (LM) a été publiée [3] et très bien adaptée pour obtenir des échantillons de grandes surfaces tout en utilisant des pièces originelles de matériaux piézoélectriques de taille réduite (en particulier pour les MCP). Ce travail décrit la fabrication de piézo-composites 1-3 avec la méthode par lamination (partie 2) jusqu'à la caractérisation de transducteurs ultrasonores mono-élément intégrant ces nouveaux matériaux.

Les propriétés fonctionnelles des composites obtenus par les deux méthodes de fabrication (DF et LM) sont comparés dans la partie 3 (les phases les constituant sont identiques). Une analyse numérique de ces piézo-composites pour l'optimisation de leur conception a été réalisée par éléments finis (ATILA) permettant de calculer entre autres les impédances électriques. Par un procédé d'ajustement des impédances électriques expérimentales,

toujours à l'aide du logiciel ATILA, plusieurs paramètres des phases inertes et piézoélectriques sont déterminés. Certaines caractéristiques des phases peuvent être modifiées pendant le procédé de fabrication et cette méthode permet ainsi de les déterminer en conditions opératoires (partie 4). Finalement, trois transducteurs sont fabriqués (à partir de piézo-composites obtenus par DF et LM) et leurs performances sont comparées pour évaluer l'efficacité de la méthode de fabrication par lamination (partie 5).

## 2 Fabrication des piézo-composites de connectivité 1-3

Trois échantillons sont fabriqués. Le premier avec la méthode DF et les deux autres par la méthode LM. Pour tous les échantillons, le même polymère (phase inerte) a été utilisé (résine époxy, Epotechny E501) dans la fabrication. Pour les échantillons 1 et 2, une phase piézoélectrique polycristalline a été utilisée (PMN-34,5PT) tandis que pour l'échantillon 3, c'est un matériau piézoélectrique monocristallin (PMN-28PT). La méthode par lamination consiste à coller alternativement des plaques de résine époxy et de matériau piézoélectrique pour obtenir dans un premier temps un piézo-composite de connectivité 2-2. Cette structure est alors coupée en tranches dans une direction perpendiculaire aux plaques. Finalement ces nouvelles plaques sont une nouvelle fois collées alternativement avec des plaques de résine époxy pour obtenir une structure finale de connectivité 1-3 [3].

La figure 1 présente des photographies des 3 échantillons. Sur la photographie de l'échantillon 3, on peut noter que la structure obtenue n'est pas régulière (possibilité offerte par la méthode par lamination), contrairement aux deux autres échantillons (Figure 1). Les valeurs moyennes de la périodicité des structures sont précisées dans la Table 1. La fraction volumique de la phase piézoélectrique pour l'échantillon 3 est légèrement supérieure à celles des deux autres échantillons.

En plus du fait de pouvoir fabriquer en plus grandes surfaces des piézo-composites 1-3 avec la méthode par lamination, cette technique permet également de diminuer les étapes d'usinage (découpes). Ceci permet de minimiser les risques de détérioration du cristal piézoélectrique qui reste fragile.

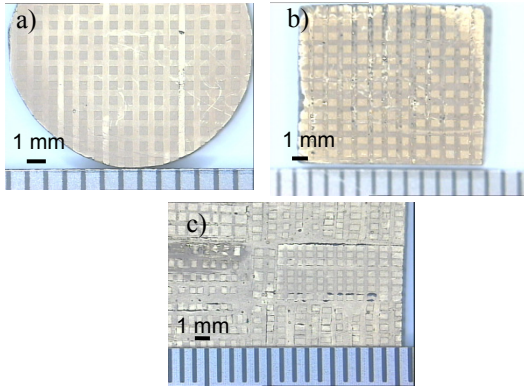


Figure 1 : Photographies des piézo-composites de connectivité 1-3 fabriqués par a) la méthode DF (échantillon 1, table 1), b) par lamination (échantillon 2, table 1) avec une céramique PMN-34,5PT et c) par lamination (échantillon 3, table 1) avec un monocristal PMN-28PT.

Table 1 : caractéristiques des piézo-composites 1-3 fabriqués.

échantillon	Piézo-composites 1-3		
	1	2	3
méthode	DF	LM	LM
polymère	RE	RE	RE
Phase piézo	PMN-34.5PT	PMN-34.5PT	PMN-28PT
$e$ (mm)	2.3	2.9	2.7
$S$ (mm <sup>2</sup> )	129	118	400
$v_f$ (%)	32	30	40
$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	3360	3495	3830
$d_f$ (mm)	0.45	0.5	0.58
$d$ (mm)	0.8	0.92	0.86
$e/d$	2.8	3.15	3.13
$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	505	580	470
$v_1$ (m/s)	3755	3705	3485
$f_a$ (kHz)	830	643	638
$k_t$ (%)	62	57	74

Méthode: DF (dice and fill), LM (lamination); Polymère: RE (résine époxy); phase piézoélectrique: PMN-28PT (monocristal), PMN-34.5PT (polycristallin);  $e$ : épaisseurs;  $S$ : surface de l'électrode supérieure;  $v_f$ : fraction volumique de la phase piézoélectrique;  $\rho$ : masse volumique;  $d_f$ : dimension latérale des barreaux (phase piézoélectrique);  $d$ : dimension latérale de la périodicité;  $\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$ : permittivité;  $v_1$ : vitesse acoustique;  $f_a$ : fréquence d'anti-résonance;  $k_t$ : coefficient de couplage (mode épaisseur).

Finalement, des électrodes d'or d'une épaisseur de 400 nm ont été déposées sur chacune des faces des trois échantillons. Ils ont ensuite été polarisés à température ambiante à 1,1 kV/mm pour les échantillons 1 et 2 et 600 V/mm pour l'échantillon 3.

### 3 Caractérisation des piézo-composites

Les propriétés électro-mécaniques (mode épaisseur) des trois échantillons ont été obtenues par ajustement des courbes expérimentales de l'impédance électrique en fonction de la fréquence. Pour cela, le schéma électrique équivalent KLM [4, 5] a été utilisé. Toutes les caractéristiques obtenues sont précisées dans la Table 1.

L'échantillon 3 délivre le meilleur coefficient de couplage en mode épaisseur ( $k_t$ ), comme on pouvait le prévoir en utilisant une phase monocristalline piézoélectrique. Ces valeurs expérimentales sont en bon accord avec celles calculées en utilisant le modèle d'homogénéisation de Smith [6] pour les échantillons 1 et 2 (avec les données des Tables 2 et 3). En revanche, pour l'échantillon 3, la valeur expérimentale est inférieure à la prédiction théorique. Cette différence observée peut provenir d'une part d'une incertitude sur les caractéristiques (Table 2) du monocristal utilisées et d'autre part d'une modification des paramètres initiaux des deux phases pendant la fabrication.

Dans la Table 2, les paramètres liés au mode épaisseur (notés en italique) sont obtenus par une mesure directe sur des disques directement utilisés pour la fabrication des piézo-composites [7].

Table 2 : caractéristiques des deux phases piézoélectriques.

Phase	PMN-34.5PT (polycristalline)	PMN-28PT (monocristalline)
$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	8060	8060
$c_{11}^E$ (GPa)	174.7	115.4
$c_{12}^E$ (GPa)	116.6	103.4
$c_{13}^E$ (GPa)	119.3	102.6
$c_{33}^E$ (GPa)	<i>154.2</i>	<i>114.1</i>
$c_{44}^E$ (GPa)	26.7	68.9
$c_{66}^E$ (GPa)	29.0	65.8
$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	2373	925
$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	<i>2610</i>	<i>813</i>
$e_{13}$ (C/m <sup>2</sup> )	-6.4	-3.4
$e_{15}$ (C/m <sup>2</sup> )	17.1	10.1
$e_{33}$ (C/m <sup>2</sup> )	<i>23.3</i>	<i>20.5</i>

$\rho$ : masse volumique;  $c^E$ : constante élastique;  $\epsilon^S/\epsilon_0$ : permittivité;  $e$ : coefficient piézoélectrique.

Table 3 : caractéristiques de la phase polymère.

Polymère	$\rho$ (kg m <sup>-3</sup> )	$c_{11}$ (GPa)	$c_{12}$ (GPa)	$c_{44}$ (GPa)	$\epsilon/\epsilon_0$
Résine époxy	1100	7.84	3.90	1.97	3

$\rho$ : masse volumique;  $c$ : constante élastique;  $\epsilon^S/\epsilon_0$ : permittivité

## 4 Modélisation des piézo-composites: ajustement des paramètres

Les trois composites piézoélectriques fabriqués et décrits précédemment ont été modélisés en utilisant la méthode des éléments finis (ATILA) [8]. Pour cette modélisation, une seule cellule représentative (de forme parallélépipédique) de la périodicité des échantillons a été maillée. Les conditions périodiques ont ensuite été appliquées sur les faces latérales de la cellule. Une condition spécifique a également été utilisée sur les surfaces supérieure et inférieure de la cellule pour prendre en compte le fluide environnant (ici l'air) [9]. La Figure 2 représente l'impédance électrique dans l'air en fonction de la fréquence pour les trois échantillons. La résonance principale observée correspond au mode épaisseur des composites. L'harmonique de ce mode peut également être observé à des fréquences plus élevées. Les résonances correspondantes aux modes latéraux, en particulier pour l'échantillon 1 sont également observées [10]. La fréquence de ces modes est reliée à la vitesse transverse dans la résine époxy et la largeur de polymère entre les barreaux de céramique. Si les fréquences de résonance de ces modes sont trop proches de celle du mode épaisseur, ils perturbent le bon fonctionnement du composite recherché et donc du transducteur. Le rapport de l'épaisseur de l'échantillon  $e$  sur la largeur  $d$  définie précédemment est une valeur importante qui doit être suffisant élevée (généralement au minimum 3) [9, 10]. Sur la Figure 2, pour l'échantillon 1, ce rapport est seulement de 2,8 (Table 1) et le mode latéral est clairement observé. Enfin, pour l'échantillon 3 (Figure 2.c), aucun mode latéral n'est observé, probablement dû à une périodicité qui n'est pas parfaite à cause de la méthode de fabrication (Figure 1.c).

Sur la Figure 2.a, un décalage est observé entre les résultats théoriques et expérimentaux pour les fréquences de résonance du mode épaisseur et du premier mode latéral. Cette différence est principalement due à l'incertitude que l'on a sur les caractéristiques initiales des matériaux des deux phases (Tables 2 et 3). Ces incertitudes proviennent d'une part des données d'entrée utilisées mais également des modifications possibles de ces propriétés au cours de leurs mises en œuvre pour la fabrication du composite. Ainsi, une méthode numérique originale, en utilisant ATILA, par ajustement de l'impédance électrique, a été mise en place pour déterminer en conditions de fonctionnement les propriétés des deux phases du piézo-composite. Cette méthode est basée sur un ajustement de plusieurs modes de résonance pour en extraire les paramètres élastiques, diélectriques et piézoélectriques. La Table 4 présente les paramètres obtenus après avoir effectué cette procédure itérative. Pour cette étude, seulement quelques paramètres (en particulier ceux liés au mode épaisseur) ont été choisis. La figure 3 présente la courbe d'impédance ajustée qui est maintenant en bon accord avec la courbe expérimentale. En supposant que la valeur de la constante diélectrique  $\epsilon_{33}^S$  obtenue à partir de la première caractérisation avec le modèle KLM est correcte, la détermination des paramètres ajustés pour notre cas est unique.

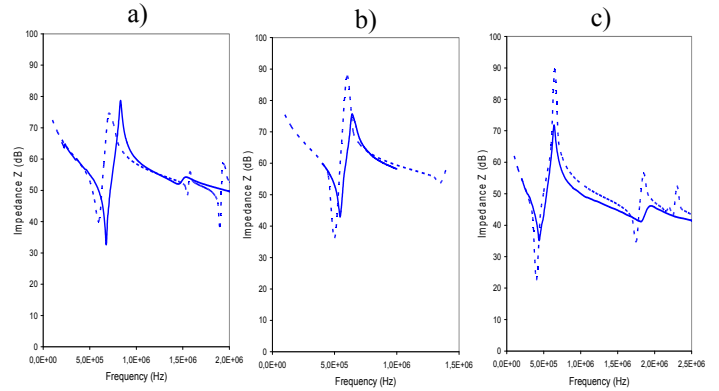


Figure 2 : Module de l'impédance électrique dans l'air en fonction de la fréquence pour les trois échantillons. (a) : PMN-34.5PT et DF (échantillon 1), (b) PMN-34.5PT et LM (échantillon 2), (c) PMN-28PT et LM (échantillon 3). Traits pleins: résultats expérimentaux, pointillés: résultats numériques.

Table 4 : caractéristiques du piézo-composite 1-3 (échantillon 1), avant et après ajustement.

Propriétés	Initiales	Ajustées
<i>PMN-34.5PT</i>		
$c_{33}^E$ (GPa)	154.2	116.6
$e_{33}$ (C/m <sup>2</sup> )	23.3	30.3
<i>Polymère</i>		
E (GPa)	5.25	4.46
tg $\delta_m$	0	0.03
tg $\delta_e$	0	0.01

$c_{33}^E$ : constante élastique;  $e_{33}$ : coefficient piézoélectrique; E: module d'Young; tg  $\delta_m$ : pertes mécaniques; tg  $\delta_e$ : pertes électriques.

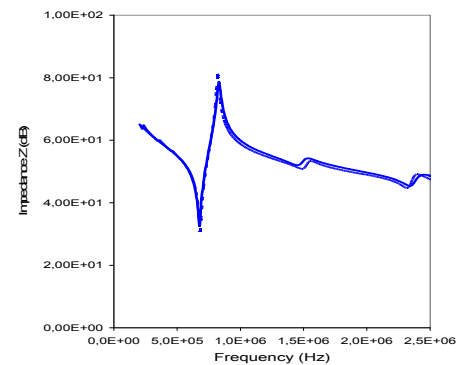


Figure 3 : Module de l'impédance électrique dans l'air en fonction de la fréquence de l'échantillon 1. Traits pleins: résultats expérimentaux, hachurées : résultats numériques de la courbe ajustée.

## 5 Transducteurs

### 5.1 Fabrication des transducteurs

Trois transducteurs mono-éléments ont été fabriqués en utilisant les trois composites piézoélectriques décrits précédemment. Le milieu arrière (backing) a été réalisé avec une résine époxy chargée avec de la poudre de tungstène pour obtenir des impédances acoustiques entre 8

et 10 MRal. Ces backings ont été directement moulés et polymérisés sur les échantillons piézoélectriques. Aucune lame d'adaptation en face avant des transducteurs n'a été ajoutée.

## 5.2 Caractérisation des transducteurs

Les réponses électroacoustiques des transducteurs ont été mesurées dans l'eau sur une cible métallique. Le dispositif expérimental est identique pour les trois transducteurs. La réponse électroacoustique du transducteur intégrant l'échantillon 3 est représentée sur la figure 4.

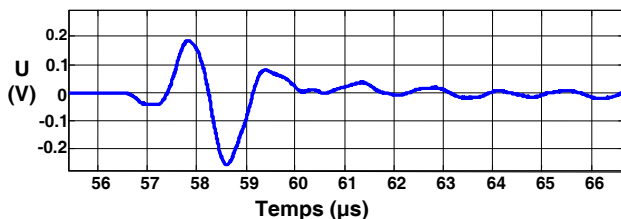


Figure 4 : Réponse électroacoustique du transducteur intégrant l'échantillon 3.

Les caractéristiques obtenues des trois transducteurs sont données dans la Table 5. La sensibilité du transducteur avec l'échantillon 2 est plus faible que celle du transducteur avec l'échantillon 1, ce qui montre que la sensibilité est légèrement plus faible en utilisant la méthode de fabrication par lamination (LM) plutôt que par « dice and fill » (DF). Par contre, en utilisant le monocristal piézoélectrique (échantillon 3), la sensibilité et la bande passante du transducteur correspondant sont comparables à celles du transducteur avec l'échantillon 1.

Table 5 : caractéristiques des transducteurs

	échantillon 1	échantillon 2	échantillon 3
Matériau	PMN-34.5PT	PMN-34.5PT	PMN-28PT
Méthode	DF	LM	LM
$f_c$ (kHz)	840	610	550
S (dB)	0	-8.4	-2
BW(-6dB) (%)	75	50	70
BW(-20dB) (%)	120	105	165

$f_c$ : fréquence centrale; S: sensibilité relative (normalisée avec celle obtenue avec l'échantillon 1); BW(-6dB): bande passante relative à -6dB; BW(-20dB): bande passante relative à -20dB.

En observant les échantillons 2 et 3, on note une légère inclinaison de certains plots, ce qui pourrait être une explication aux performances légèrement plus faibles obtenues avec la méthode par lamination (LM). Ainsi, une étude numérique a été réalisée pour évaluer l'influence de l'inclinaison des plots de céramique sur les paramètres effectifs du piezo-composite 1-3 correspondant. La figure 5 compare plusieurs réponses électro-acoustiques numériques pour des plots non-inclinés ( $0^\circ$ ) et des plots inclinés à  $7^\circ$  et  $15^\circ$ . Ces réponses en fréquence sont calculées autour de la fréquence de résonance du mode épaisseur. Les résultats montrent que l'influence est assez faible (moins d'un dB). En revanche, sur une plus large gamme de fréquence, de nouveaux modes apparaissent (flexion...) qui n'existent pas quand la structure a une symétrie parfaite.

De plus, le schéma électrique équivalent KLM a été utilisé pour ajuster les impédances théoriques calculées précédemment dans l'eau pour les trois configurations ( $0^\circ$ ,

$7^\circ$  et  $15^\circ$ ) pour déduire l'évolution des propriétés du mode épaisseur. Les résultats confirment les conclusions précédentes où peu de changements sont observés.

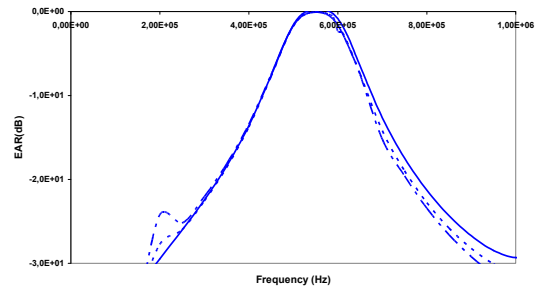


Figure 5 : réponse électroacoustique théorique du transducteur avec l'échantillon 2, en fonction de la fréquence et en considérant des plots inclinés. Plots verticaux (pas d'inclinaison): trait continu, inclinaison  $7^\circ$ : points, inclinaison  $15^\circ$ : ligne hachurée.

## 6 Conclusion

Les performances de trois transducteurs mono-élément intégrant des piézo-composites 1-3 fabriqués par deux méthodes (« lamination » et « dice and fill ») et utilisant deux phases piézoélectriques (monocristal PMN-28PT et poudre polycristalline PMN-34.5PT) ont été présentées. Une technique de caractérisation permettant d'évaluer les caractéristiques en condition de fonctionnement a également été développée. Cette technique de caractérisation, contrairement aux modèles classiques d'homogénéisation qui permettent d'obtenir les paramètres effectifs du composite, permet d'évaluer les caractéristiques de chacune des phases (matrice inerte et matériau piézoélectrique) après la fabrication du composite. De nouvelles études sont nécessaires pour optimiser la géométrie des piézo-composites en prenant en compte les contraintes de fabrication.

## Remerciements

Cette étude a été financée par la DGA (Délégation Générale pour l'Armement) (REI PIEZOACT no. 0634055).

## Références

- [1] R.E. Newnham, D.P. Skinner, L.E. Cross, "Connectivity and piezoelectric-pyroelectric composites", *Mat. Res. Bull.*, 13, 525-536 (1978).
- [2] H.P. Savakus, K.A. Klicker, R.E. Newnham, "PZT-epoxy piezoelectric transducers: a simplified fabrication procedure", *Material Research Bulletin*, 16, 677-680 (1981).
- [3] F. Wang, C. He, Y. Tang, X. Zhao, H. Luo, "Single-crystal 0.7Pb(Mg1/3Nb2/3)O3-0.3PbTiO3/epoxy 1-3 piezoelectric composites prepared by the lamination technique", *Materials Chemistry and Physics*, 105, 273-277 (2007).
- [4] IEEE Std. on Piezoelectricity ANSI/IEEE Std., 176 (1987).
- [5] R. Krimholtz, D.A. Leedom and G.L. Mathei, "New equivalent circuit for elementary piezoelectric transducers", *Electron. Lett.*, 38, 398-399 (1970).

- [6] W.A. Smith, B.A. Auld, "Modeling 1-3 composite piezoelectrics: thickness mode oscillations", *IEEE Trans. Ultras., Ferro. And Freq. Contr*, 38(1), 40 (1991).
- [7] F. Levassort, A.C. Hladky-Hennion, H. Le Khanh, L.P. Tran-Huu-Hue, M. Lethiecq, M. Pham Thi, "0-3 and 1-3 piezocomposites based on single crystal PMN-PT for transducer applications", *Advances in Applied Ceramics*, In press (2009).
- [8] ATILA Finite Element Code for Piezoelectric and Magnetostrictive Transducer Modeling, Version 6.0.2, User's Manual, Acoustics Laboratory, ISEN. (2002).
- [9] A. C. Hladky-Hennion, and J. N. Decarpigny. "Finite element modeling of active periodic structures: application to 1-3 piezocomposites", *J. Acous. Soc. Am.*, 94, 621-635 (1993).
- [10] T.R. Gururaja, W.A. Schulze, L.E. Cross, R.E. Newnham, B.A. Auld, Y.J. Wang, "Piezoelectric composite materials for ultrasonic transducer applications. Part II : evaluation of ultrasonic medical applications", *IEEE Trans. Sonics Ultrason.*, SU-32, 499-513 (1985).